

**THÈSE DE DOCTORAT
de PHYSIQUE NUCLÉAIRE**

Spécialité : Rayonnements Ionisants

présentée par

Charlène Bisch

pour obtenir le grade de Docteur en Sciences
de l'Université de Strasbourg

Étude de la forme des spectres β

CEA LIST et Laboratoire national de métrologie et d'essais,
Laboratoire National Henri Becquerel
Cellule de Données Fondamentales

Thèse dirigée par le Pr. Abdel-Mjid Nourreddine,
co-encadrée au CEA LIST par le Dr. Xavier Mougeot et le Dr. Marie-Martine Bé.
soutenue le 26 septembre 2014,
devant le jury composé de :

M. E. García-Toraño	(Rapporteur)
M. P-A. Hervieux	(Président du jury)
Mme L. Manduci	(Rapporteur)
M. X. Mougeot	(Encadrant CEA)
M. A-M. Nourreddine	(Directeur de thèse)

Remerciements

Je voudrais tout d'abord remercier l'ensemble du personnel du LNHB de m'avoir accueilli au sein de ce laboratoire. J'ai passé trois années très agréables à vos côtés et je vous en remercie.

Je souhaite remercier chaleureusement mon directeur de thèse, le professeur Abdel-Mjid Nourreddine, qui malgré un emploi du temps très chargé à toujours pris le temps de suivre avec attention le bon déroulement de mon travail. J'espère que la collaboration initiée avec cette thèse, entre la CDF et le Ramses, continuera encore longtemps.

Je tiens à remercier Marie-Martine pour son implication dans mon encadrement. Merci pour m'avoir toujours encouragé, pour avoir pris le temps de lire et relire et relire mon manuscrit et pour avoir exercé cette pression légère mais constante dont j'avais sérieusement besoin pour avancer dans ma rédaction.

Je ne trouve pas vraiment les mots pour dire à quel point je remercie Xavier pour son encadrement, le temps qu'il m'a consacré, les relectures, les sessions de vissage/dévisage de brides et encore tellement d'autres choses... Son soutien indéfectible m'a été précieux et m'a rassuré lors de l'épuisante dernière ligne droite. J'ai le sentiment que nous avons formé une très bonne "équipe" qui va beaucoup me manquer.

Merci à Mark et Christophe, les deux derniers membres de la CDF, pour les pauses café récréatives mais aussi et surtout pour avoir toujours répondu présents pour m'aider en cas de besoin.

Je souhaite aussi remercier l'ensemble des personnes qui ont contribué de près ou de loin à ce travail. Je pense notamment aux membres de mon jury de thèse et aux relecteurs "LNHB", merci à Philippe et Bruno. Un grand merci aux membres du pôle source : Valérie, Sophie, Isabelle et Didier. Merci à Sylvie, Isabelle et Laurent qui ont, à de nombreuses reprises, rempli nos tanks d'azote. Je remercie également Cheick et Christophe pour leurs conseils et les discussions autour des simulations Monte Carlo ainsi que Jacques pour les aspects "électroniques". Merci à Gérard, Cédric et aux mécaniciens de l'atelier du CNRS à Strasbourg pour l'aide à la conception et la fabrication du dispositif expérimental. Pour ceux que j'aurais oublié qu'ils sachent que je les remercie aussi !

Enfin, je tiens à remercier mes proches qui m'ont accompagné et "supporté" ces derniers mois ; je vous en suis très reconnaissante ;-).

Table des matières

1 Motivations et généralités	5
1.1 Les utilisateurs de spectres β	5
1.1.1 La base de données NUCLÉIDE	5
1.1.2 Métrologie des rayonnements ionisants	6
1.1.3 Radiothérapie et dosimétrie	6
1.1.4 Puissance résiduelle d'un réacteur, déchets nucléaires et prolifération	8
1.1.5 Physique fondamentale	9
1.2 Mesure des spectres β	10
1.2.1 Phénomènes nucléaires : la radioactivité β et γ	10
1.2.2 Phénomènes atomiques : les rayons X et les électrons Auger	12
1.2.3 Interactions rayonnement matière	14
1.2.4 Détecteurs β	20
1.2.5 Propriétés d'un semi-conducteur au silicium	29
1.2.6 Spectromètres β utilisant des semi-conducteurs silicium	29
Bibliographie	31
2 La désintégration β et le calcul des spectres en énergie	35
2.1 Forme des spectres β	35
2.2 Théorie de Fermi	36
2.2.1 Un spectre continu	36
2.2.2 Interaction de Fermi	37
2.2.3 Spectre statistique	39
2.2.4 Règles de sélection des transitions permises	40
2.3 Violation de la parité et théorie V-A	41
2.4 Transitions interdites	43
2.5 Facteurs de formes théoriques des spectres β	44
2.6 Dynamique de l'électron	47
2.6.1 L'équation de Dirac	47
2.6.2 Fonctions d'onde d'un électron plongé dans un potentiel coulombien	50
2.6.3 Effet d'échange	53
2.7 Codes de calcul	54
Bibliographie	57
3 Dispositif expérimental	59
3.1 Géométrie du dispositif	59
3.2 Contraintes expérimentales	64
3.2.1 Montage sous vide	64
3.2.2 Refroidissement du détecteur	66
3.3 Détection	69
3.3.1 Détecteur PIPS	70

3.3.2	Détecteur Si(Li)	72
3.4	Électronique de détection	73
3.4.1	Câbles	73
3.4.2	Haute tension	73
3.4.3	Préamplificateur	74
3.4.4	Pulser	76
3.4.5	Mise en forme du signal	77
3.4.6	Codeur	80
3.4.7	Logiciel de spectrométrie	80
3.5	Sources radioactives	80
3.5.1	Sources Vyns	81
3.5.2	Sources Langmuir-Blodgett	87
3.6	Optimisation du dispositif expérimental à l'aide de simulations Monte Carlo	87
3.6.1	GEANT4	88
3.6.2	Développement des outils sous GEANT4	91
3.6.3	Énergie déposée en fonction de la qualité du vide	92
3.6.4	Influence de l'épaisseur du détecteur	92
3.6.5	Étude de la chambre de détection	93
3.6.6	Étude du porte-source	94
	Bibliographie	97
4	Comparaison des simulations aux mesures	99
4.1	Simulations Monte Carlo avec GEANT4	99
4.2	Caractérisation du détecteur PIPS	105
4.2.1	Étalonnage du détecteur PIPS avec une source de ^{133}Ba	105
4.3	Caractérisation des sources	113
4.4	Validation des simulations	114
4.4.1	Mouvement propre	115
4.4.2	Analyse du ^{14}C	119
4.4.3	Analyse du ^{151}Sm	122
4.4.4	Analyse du ^{99}Tc	126
4.4.5	Analyse du ^{60}Co	129
	Bibliographie	131
5	Déconvolution spectrale	133
5.1	Simulation d'une distribution uniforme	133
5.2	Fonction de réponse	134
5.2.1	Réponse impulsionnelle du système de détection	135
5.2.2	Modèle simple	135
5.2.3	Modèle élaboré	137
5.2.4	Fonction réponse adaptée	142
5.3	Déconvolution	143
	Bibliographie	149

Introduction

En tant que laboratoire primaire pour la métrologie des rayonnements ionisants, le Laboratoire National Henri Becquerel (LNHB) a pour mission de répondre aux besoins des utilisateurs notamment en matière de données nucléaires. Une forte demande pour une connaissance précise de la forme des spectres β a émergé ces dernières années. Les utilisateurs, issus de l'industrie nucléaire, du secteur médical, de la métrologie des rayonnements ionisants mais également de la physique fondamentale, sont à la recherche de données mesurées ou calculées couplées à des incertitudes bien établies.

Un spectre β correspond à la probabilité d'émission P d'un électron, issu de la désintégration d'un noyau, en fonction de son énergie W ,

$$\frac{dP}{dW} \propto pWq^2 \cdot F_0L_0 \cdot C(W) \quad (1)$$

Le spectre est le résultat du produit :

- (i) d'un facteur statistique pWq^2 correspondant à la répartition de l'impulsion entre l'électron (p) et le neutrino (q),
- (ii) de la fonction de Fermi F_0L_0 qui regroupe l'ensemble des corrections coulombiennes,
- (iii) d'un facteur de forme $C(W)$ qui dépend du type de transition.

Les transitions β sont classées en fonction de règles de sélection qui dépendent des variations de spin et de parité entre les niveaux initiaux et finaux des états nucléaires. Les termes de transitions permises, interdites uniques et interdites non uniques, sont employés. Pour une transition permise, le facteur de forme est égal à 1 en première approximation. Les facteurs de forme des transitions interdites uniques peuvent aussi être calculés car il est possible de découpler les effets dus à la structure nucléaire de ceux dus à la dynamique des leptons émis (e^- , ν) en première approximation. Dans le cas des transitions interdites non uniques, la situation est plus complexe car ce découplage n'est plus possible et les facteurs de forme dépendent alors des éléments de matrices nucléaires. L'utilisation de facteurs de forme expérimentaux est alors nécessaire afin de vérifier les prédictions théoriques.

Cependant, les données expérimentales disponibles se résument à une compilation d'environ 130 facteurs de forme expérimentaux, dans une gamme en énergie souvent restreinte. Depuis la fin des années 1970, le sujet a été délaissé et peu de nouveaux spectres ont été mesurés. Le facteur de forme permet de prendre en compte la forme du spectre par rapport au type de la transition. La mesure des spectres β présente des difficultés expérimentales, les spectres étant déformés par le système de détection et les phénomènes physiques tels que la rétrodiffusion des électrons sur la surface du détecteur ou l'auto-absorption au sein de la source. Or, la déconvolution des spectres mesurés par la fonction de réponse du système de détection n'a pas toujours été réalisée avant d'extraire les facteurs de forme trouvés dans la littérature. Certains facteurs de forme publiés sont donc à utiliser avec prudence puisqu'ils peuvent être d'origine purement expérimentale. Par ailleurs, peu de ces mesures ont été réalisées en dessous de 50 keV

et elles portent, pour la plupart, sur des transitions de type permises ou premières interdites. De nouvelles mesures sont donc nécessaires pour compléter et confirmer celles publiées.

Concernant les prédictions théoriques, des codes de calcul existent mais sont limités aux transitions permises et premières interdites uniques. Pour le calcul des transitions d'ordre supérieur, ils supposent la connaissance des facteurs de forme expérimentaux. Ainsi, ces programmes ne permettent pas d'apporter une réponse là où les données expérimentales sont inaccessibles ou inexistantes. Un programme capable de calculer n'importe quelle transition de n'importe quel radionucléide serait souhaitable pour répondre efficacement aux besoins des utilisateurs. Les calculs seuls ne sont cependant pas suffisants et doivent être validés par l'expérience. De nouvelles études à la fois théoriques et expérimentales sont indispensables.

Les activités du LNHB concernant l'évaluation de la forme des spectres β se développent autour des aspects théoriques et expérimentaux. Le code de calcul BETASHAPE, d'approche analytique, apporte une première réponse en permettant de calculer spécifiquement les transitions permises et interdites uniques de n'importe quel ordre. Les approximations introduites par l'approche analytique sont corrigées par des facteurs correctifs. Le calcul des transitions interdites non uniques, plus complexe, n'est pour l'instant pas pris en compte spécifiquement. Du point de vue expérimental, le LNHB dispose de calorimètres métalliques magnétiques (MMC). Il s'agit d'une technique particulièrement performante pour mesurer, depuis une énergie seuil de 300 eV, des spectres β de basse énergie. La qualité de ces mesures a permis de comparer un spectre expérimental d'une transition permise avec le résultat d'un calcul théorique avec un degré de précision jamais atteint auparavant. La comparaison entre le spectre calculé avec BETASHAPE et le spectre mesuré a ainsi mis en évidence d'importants effets atomiques agissant sur la forme du spectre à basse énergie. L'évaluation numérique des fonctions d'ondes électroniques permet désormais de prendre en compte ces effets atomiques (effets d'échange et d'écrantage). Les spectres calculés de cette manière présentent un accord remarquable avec les spectres mesurés. La prochaine étape, en cours de développement, est l'implémentation, dans BETASHAPE, des effets atomiques pour les transitions interdites uniques. Ces résultats démontrent la nécessité de confronter les prédictions théoriques à des mesures expérimentales de haute précision.

Pour être complet, BETASHAPE devra être en mesure de calculer spécifiquement les transitions interdites non uniques pour lesquelles la forme du spectre dépend de la structure nucléaire du noyau. Le problème est bien plus complexe que dans le cas des transitions permises et interdites uniques puisque le calcul des éléments de matrice nucléaire est nécessaire. Ces calculs devront être systématiquement comparés à des mesures pour les valider et éventuellement les contraindre. Or, les facteurs de forme expérimentaux pour des transitions interdites non uniques d'ordre supérieur à 1 sont anecdotiques dans la littérature (environ une dizaine).

Les MMC, malgré leurs performances, sont limités aux spectres de basse énergie et trop compliqués à mettre en œuvre pour produire des mesures de qualité en quantité. La nécessité de mettre en place une nouvelle technique de mesure complémentaire aux MMC, mais plus souple, s'est imposée.

L'objectif principal de cette thèse est la mise en place, au LNHB, d'un nouveau système de détection dédié à la mesure de spectres β . Les spécifications du dispositif expérimental doivent tenir compte de la nature hautement diffusante des électrons afin de limiter les déformations d'origine physique du spectre mesuré. Dans un second temps, la fonction de réponse du système de détection et de la source doit être évaluée. Les spectres mesurés et déconvolués par la fonction de réponse peuvent alors être corrigés des déformations expérimentales. Dans le cas de transitions autres que permises, un facteur de forme expérimental est extrait. Ce facteur de forme est à comparer avec les facteurs de forme expérimentaux publiés et avec les calculs

réalisés avec BETASHAPE dont il devient alors possible d'évaluer la qualité globale.

Dans une première partie nous expliciterons les raisons qui motivent cette étude puis nous rappellerons les principes de la désintégration bêta et les principes théoriques régissant le calcul des spectres en énergie. Dans le chapitre 3, nous décrirons la conception, la réalisation et la mise en œuvre du montage expérimental que nous avons réalisé. Les simulations Monte Carlo utilisées pour optimiser le dispositif expérimental seront alors détaillées. Dans un second temps, nous exposerons la technique mise en place pour préparer des sources dédiées à la spectrométrie β . Les résultats obtenus grâce aux outils mis en place au chapitre 3 seront ensuite analysés et interprétés dans le chapitre 4. Ce chapitre décrit toutes les analyses complémentaires sur l'ensemble du dispositif expérimental, le détecteur, la source, etc. qui ont été faites pour extraire les facteurs de forme des spectres mesurés. Enfin, dans le chapitre 5 nous aborderons en détail les démarches entreprises pour déterminer la réponse globale du système de détection. Cette étape est nécessaire afin de corriger les spectres mesurés des déformations expérimentales. Nous terminerons par extraire un facteur de forme expérimental de nos données.

Cette thèse s'inscrit dans le projet de recherche européen MetroMRT (*Metrology for Molecular RadioTherapy*) financé par l'Union européenne dans cadre du septième programme-cadre.

Chapitre 1

Motivations et généralités

Nous commencerons par présenter le contexte qui motive cette étude au travers des besoins des utilisateurs de spectres β . Ensuite, nous rappellerons des notions de base de physique nucléaire auxquelles nous nous référerons tout au long de ce manuscrit. Nous poursuivrons par un état des lieux des connaissances expérimentales sur la mesure des spectres β . Enfin le choix d'un semi-conducteur au silicium comme instrument de mesure sera explicité.

1.1 Les utilisateurs de spectres β

1.1.1 La base de données NUCLÉIDE

Le Laboratoire National Henri Becquerel (LNHB) est le laboratoire national de métrologie dans le domaine des rayonnements ionisants. La métrologie est la « science des mesurages et ses applications » [1]. Elle permet d'assurer la cohérence des mesures, aussi bien sur le plan national que sur le plan international. Pour les rayonnements ionisants, le LNHB est le garant des références des unités de l'activité, le becquerel (Bq), et de la dose, le gray (Gy). Le laboratoire est en charge de diverses missions : la mise au point de méthodes de mesures primaires et secondaires, la préparation de sources radioactives, la réalisation de prestations d'étalonnage auprès des utilisateurs des rayonnements ionisants, la mesure et l'évaluation de données nucléaires et atomiques associées aux désintégrations radioactives.

Cette dernière tâche est assurée par la Cellule de Données Fondamentales (CDF) dont le rôle est également de diffuser auprès des utilisateurs les données recommandées [2, 3, 4, 5, 6, 7, 8, 9, 10]. La base de données NUCLÉIDE, accessible sous format papier et numérique (figure 1.1), permet de maintenir un lien avec les utilisateurs et de connaître leurs besoins en données nucléaires et atomiques.

Depuis quelques années, la CDF a constaté une demande croissante des utilisateurs pour une connaissance précise de la forme des spectres en énergie des émissions β des radionucléides obéissant à ce mode de désintégration, assortie d'incertitudes bien établies. Ces spectres sont nécessaires en métrologie des rayonnements ionisants, dans le secteur médical pour la radiothérapie et la dosimétrie, ainsi que pour les industriels du nucléaire pour les calculs de puissance résiduelle des réacteurs ou la gestion du combustible après irradiation. Enfin, en physique fondamentale, des expériences ayant pour but de tester les limites du modèle standard nécessitent des données, comme la forme des spectres β , mesurées ou calculées avec une bonne précision.



FIGURE 1.1 – La Mini Table de radionucléides tabule les principales caractéristiques pour environ 250 radionucléides les plus rencontrés en milieu médical, industriel, nucléaire, etc. La base de données NUCLÉIDE comprend environ 220 radionucléides pour lesquels des données détaillées sont disponibles, et inclut environ 200 autres radionucléides pour lesquels nous disposons de données partielles. Les données proposées ont fait l’objet d’une évaluation spécifique afin de dégager la meilleure valeur à partir des données publiées dans les journaux scientifiques.

1.1.2 Métrologie des rayonnements ionisants

En tant que laboratoire national pour la métrologie des rayonnements ionisants, le LNHB fournit aux utilisateurs (industriels, hôpitaux, etc.) des étalons d’activité avec la meilleur incertitude possible. Certaines techniques de mesure de l’activité ont besoin de connaître la forme des spectres β : compteurs proportionnels à gaz, chambres d’ionisation, scintillation liquide.

Par exemple, pour modéliser l’émission de la lumière à utiliser dans la méthode RCTD (Rapport des Coïncidences Triples à Doubles) en scintillation liquide, qui établit une relation entre le rendement de détection et le ratio RCTD expérimental, il est nécessaire de connaître la forme du spectre β de chaque radionucléide mesuré. Dans le cadre de cette méthode, une meilleure connaissance de la forme des spectres β , et des incertitudes sur la forme, permettraient de réduire les incertitudes dans les mesures de l’activité.

La récente étude conduite par le LNHB sur l’influence de l’effet d’échange sur le spectre du ^{63}Ni a démontré que la prise en compte de cet effet induit un biais systématique de 0.5 % dans la mesure de l’activité spécifique en ^{63}Ni par la méthode RCTD ([11] [12]). Ce biais est égal à l’incertitude de 0.5% obtenue pour cette méthode. De même une étude conduite dans le cadre d’une intercomparaison internationale de la valeur de l’activité d’une solution de ^{241}Pu a mis en évidence l’influence de la connaissance du spectre d’émission β [13] : suivant les facteurs de forme utilisés, le résultat final varie de plusieurs pour cents.

1.1.3 Radiothérapie et dosimétrie

Une forte demande vient également du domaine médical, où les radionucléides émetteurs β sont utilisés en radiothérapie interne vectorisée. La « première génération » de radionucléides thérapeutiques, le ^{32}P , le ^{89}Sr et le ^{131}I sont employés en médecine depuis la fin des années 1930. La recherche de nouveaux radiopharmaceutiques est un domaine très actif et de nombreux nouveaux émetteurs β pourraient être utilisés à l’avenir pour traiter des patients.

La radiothérapie vectorisée se développe comme modalité de traitement du cancer avec l’apparition de nouveaux produits radiopharmaceutiques [14]. En pratique, le médicament radiopharmaceutique, comme un peptide ou un anticorps, marqué par un radionucléide est administré au patient. La molécule vectrice va se diriger sélectivement vers les cellules tumorales, s’y fixer, et les bombarder en émettant des rayonnements ionisants. La pénétration des émetteurs

β dans les tissus est de l'ordre de quelques millimètres à quelques centimètres, ce qui convient parfaitement pour irradier des tumeurs peu ou moyennement volumineuses.

Les développements dans ce domaine concernent d'une part la molécule vectrice qui porte le radionucléide et sa capacité à cibler les tissus à traiter, d'autre part le choix du radionucléide et ses caractéristiques de désintégration. Outre les aspects énergétiques, les émetteurs β doivent également avoir des périodes favorables qui varient de quelques heures à quelques jours.

Comme dans tout traitement utilisant les rayonnements ionisants, la connaissance de la dose délivrée au sein de la tumeur et dans le reste du corps est essentielle pour assurer l'efficacité et la sécurité du traitement. Un premier problème est de connaître la répartition du produit dans le corps, en particulier dans la zone tumorale, et son évolution dans le temps. Le second problème concerne le calcul de la dose délivrée dans les volumes d'intérêt selon la quantité de radionucléides qui y est présente. Les particules β , émises par le radiopharmaceutique, ont un fort pouvoir ionisant et sont à l'origine de la majeure partie de la dose absorbée dans les cellules du patient. Les éléments cellulaires sensibles à la dose absorbée (ADN, ARN, protéines) sont des polymères dont les structures spatiales sont typiquement inférieures à 130 nm. Or, comme le montre la figure 1.2, le transfert d'énergie linéique, quantité décrivant l'énergie transférée au milieu traversé par une particule ionisante, augmente fortement à basse énergie pour les électrons. Une meilleure connaissance de la forme des spectres β à basse énergie permettrait donc d'améliorer l'estimation de la dose absorbée dans les cellules du patient pour, à terme, les réduire [15].

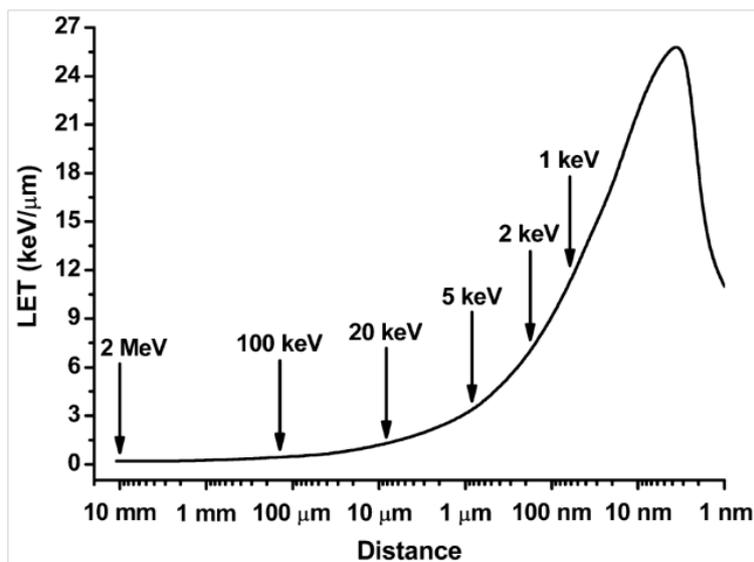


FIGURE 1.2 – Transfert d'énergie linéique (Linear Energy Transfer) des électrons en fonction de la distance parcourue. Figure extraite de [16].

Projet MetroMRT - Metrology for molecular radio therapy

Le projet de recherche européen MetroMRT rassemble les milieux de la métrologie des rayonnements ionisants et de la médecine nucléaire afin d'aborder le problème de la réalisation d'une dosimétrie personnalisée d'un patient traité par radiothérapie interne vectorisée. Actuellement, le radiopharmaceutique, d'une activité donnée, est administré au patient sans tenir compte de la quantité réellement fixée par les tissus malades. Or cette quantité est propre à chaque individu et la dose absorbée varie ainsi d'un patient à un autre. Le résultat d'un traitement est fortement corrélé à la dose absorbée par les tissus d'où l'importance de la déterminer pour chaque patient.

Un radiopharmaceutique étudié dans ce projet se présente sous la forme de microsphères d' ^{90}Y qui est un émetteur de particules β d'énergie maximale égale à 2279.8 keV [6]. Avant de pouvoir connaître la dose absorbée, il faut s'assurer que l'activité de la solution à injecter est connue avec une incertitude inférieure à 10 %. La mesure primaire de l'activité est réalisée par la méthode RCTD Cerenkov qui, comme la méthode RCTD classique évoquée précédemment, nécessite la connaissance du spectre β de l' ^{90}Y . Cette donnée est également indispensable pour une détermination précise de la dose délivrée aux tissus tumoraux.

Dans ce projet, notre tâche consiste à mesurer le spectre d'émission bêta de l' ^{90}Y , transition première interdite unique. Ce spectre expérimental servira à déterminer l'activité de la solution.

1.1.4 Puissance résiduelle d'un réacteur, déchets nucléaires et prolifération

La quantification précise de la chaleur induite par la fission nucléaire est un facteur majeur pour la conception des installations nucléaires de production d'électricité, ainsi que pour la gestion du combustible après irradiation (déchargement du combustible, transport, stockage, retraitement des déchets). La chaleur résiduelle totale, incluant la composante de désintégration β , en fonction du temps de refroidissement d'un réacteur à l'arrêt a un impact significatif sur la sûreté des opérations, sur les diverses contraintes législatives et sur les aspects économiques de la production d'énergie nucléaire. Ces études quantitatives nécessitent un ensemble complet de données nucléaires, des estimations fiables et des incertitudes bien établies [17].

La puissance résiduelle peut être déterminée à partir de mesures expérimentales ou par des calculs théoriques, basés sur l'inventaire des noyaux créés pendant le processus de fission et après l'arrêt, et leurs caractéristiques de désintégration. Les calculs, par leur généralisation possible, présentent un net avantage mais ils doivent être validés par des mesures expérimentales afin de s'assurer de leur fiabilité. Les deux méthodes sont donc complémentaires et un bon accord entre les calculs et les mesures de puissance résiduelle signe une bonne maîtrise de l'ensemble des processus en jeu dans le réacteur. Toutefois, il existe des écarts entre les puissances résiduelles calculée et mesurée. L'incertitude sur l'estimation de la puissance résiduelle est déterminée à partir des informations extraites des bases de données nucléaires. Elle résulte donc des incertitudes élémentaires sur les données de base (sections efficaces, rendements, chaleur de désexcitation, période de chaque nucléide), de celles qui sont liées aux conditions de fonctionnement du réacteur et enfin des incertitudes sur les modèles de calcul. Des études ont montré qu'une source importante de divergence est liée aux données de désintégrations β pour des produits de fission de courte durée de vie. Beaucoup de ces radionucléides, au schéma de désintégration complexe, sont très mal caractérisés du fait d'une surestimation de l'énergie moyenne libérée par les particules β et une sous-estimation de l'énergie emportée par les rayons γ . L'effet expérimental à l'origine de cette mauvaise estimation de la chaleur de décroissance est connu sous le nom d'effet Pandemonium et a été mis en évidence par Hardy [18]. Il est dû à l'utilisation de détecteurs germanium de haute résolution pour mesurer les spectres γ émis lors de la décroissance des produits de fission. Les schémas de désintégration incluant les branches β sont ensuite reconstruits à partir des spectres γ . Cependant, les détecteurs germanium ont un inconvénient majeur : leur efficacité de détection chute drastiquement à haute énergie. Ainsi les désexcitations γ entre les niveaux de plus haute énergie ne sont pas observées et les branches β alimentant ces niveaux ne sont donc pas déterminées. L'utilisation de la technique d'absorption totale (*Total Absorption Gamma-ray Spectrometer* - TAGS) pour les études de la désintégration β des produits de fission permet de s'affranchir de l'effet Pandemonium. De nouvelles mesures utilisant cette technique sont actuellement entreprises afin de corriger les bases de données. Une

meilleure connaissance de la forme des spectres β permettrait d'améliorer la compréhension et les incertitudes sur les calculs d'énergie résiduelle.

Les propriétés de la décroissance β^- des produits de fission sont également importantes pour la simulation du spectre des antineutrinos émis par les réacteurs. Depuis plusieurs années, la mesure des neutrinos produits au coeur des réacteurs fait l'objet d'intenses recherches. Elle permettrait une surveillance infalsifiable et en temps réel des installations nucléaires de par le monde, tout en donnant un accès direct à la quantité produite de matériaux fissiles à usages militaires [19]. Le spectre en énergie des neutrinos d'un réacteur dépend de la contribution de chaque désintégration β , et est donc directement lié aux intensités et aux spectres en énergie des particules β .

1.1.5 Physique fondamentale

Magnétisme faible

La physique fondamentale est également demandeuse de spectres β mesurés avec une très bonne précision et aussi de codes de calcul performants. Les travaux du groupe de recherche sur l'interaction faible de l'université catholique de Louvain portent notamment sur la mesure de transitions permises avec une extrême précision afin de sonder la structure de l'interaction électro-faible. D'éventuelles déviations par rapport aux prédictions du Modèle standard mettraient en évidence une nouvelle physique.

Certaines de leurs préoccupations, telle que la mesure très précise d'un spectre β , sont assez semblables aux nôtres. Leur dispositif expérimental [20] diffère de l'appareillage mis en place dans ce travail. Cependant, ils ont eu besoin, de façon similaire à nos propres problématiques, de réaliser des simulations Monte Carlo de l'ensemble du dispositif afin de contrôler et quantifier les effets systématiques induits par l'expérience. Le logiciel de simulation qui a été utilisé est GEANT4 dans lequel a été intégré leur propre code de calcul des spectres β . C'est également la démarche que nous avons suivie.

Dans le cadre de ce travail, nous sommes allés à la rencontre du professeur N. Severijns et de son équipe afin de partager nos expériences. Actuellement, un nouveau spectromètre β est en train d'être développé. Le miniBETA consiste en une chambre à dérive multifils et plusieurs détecteurs scintillants. Le but est toujours de mesurer avec une extrême précision des spectres β permis afin de déterminer un éventuel terme de magnétisme faible. Dans le cadre d'une collaboration, notre expertise quant à la fabrication de sources β de haute qualité pourrait les aider dans leurs travaux.

Projet CeLAND

Les neutrinos sont un sujet de recherche fondamentale au centre des préoccupations de la physique moderne. L'oscillation des neutrinos qui implique la non-nullité de leur masse n'est pas correctement décrite par le Modèle standard. Des théories dites « au-delà » du Modèle standard sont développées. Le modèle des neutrinos « stériles » [21] prédit l'existence d'un quatrième neutrino, qui ne serait sensible qu'à la gravitation. Cette nouvelle particule permettrait d'expliquer un résultat expérimental surprenant connu sous le terme d'« anomalie des neutrinos de réacteurs » [22].

Dans les expériences menées à une distance proche des réacteurs, la quantité de neutrinos mesurée est près de 6 % inférieure aux prédictions théoriques. Cette anomalie pourrait s'expliquer par des biais notables, soit dans la prédiction du flux d'antineutrinos, soit dans l'ensemble des résultats des expériences de neutrinos de réacteurs. Mais l'observation de la transformation d'une partie des neutrinos émis en neutrinos stériles permettrait de signer l'existence de cette nouvelle particule et d'expliquer l'origine du déficit. Ce phénomène ne serait visible que dans

les premiers mètres du parcours des neutrinos, au plus près du réacteur. La mesure la plus sensible à ce jour, réalisée à 8.76 m du cœur d'un réacteur, n'est pas suffisamment sensible pour apporter des éléments de réponse. De nouvelles expériences sont donc nécessaires.

Le projet CeLAND [23] vise à examiner l'anomalie des neutrinos de réacteur en mesurant une source très intense (2.8 PBq) d'antineutrinos, émis lors de la désintégration du couple ^{144}Ce - ^{144}Pm , à l'aide du détecteur KamLAND. Situé sur le site de l'observatoire Kamioka au Japon, ce dispositif possède une cuve de 13 m de diamètre de liquide scintillant entourée par des photomultiplicateurs. Les antineutrinos sont détectés par désintégration β inverse.

Nous avons été conviés aux discussions d'un groupe du CEA impliqué dans ce projet. Le LNHB pourrait prendre part à l'étude en réalisant une mesure de la source par scintillation liquide et, si une source est techniquement réalisable, avec le dispositif réalisé dans cette étude. Le concours du LNHB est également requis pour un calcul précis de ces spectres β .

1.2 Mesure des spectres β

Les applications pour les spectres β sont nombreuses et les données actuelles ne suffisent pas à répondre aux exigences des utilisateurs. La désintégration β est, pourtant, un phénomène physique considéré comme bien connu. Elle a été beaucoup étudiée, théoriquement et expérimentalement, au cours des années 1950-1980. Cependant, depuis 30 ans, peu de facteurs de forme expérimentaux ont été mesurés et on constate que les données existantes sont insuffisantes ou dépourvues d'incertitudes.

Des codes de calcul théorique existent mais ils sont limités aux transitions permises ou supposent la connaissance des facteurs de forme expérimentaux pour le calcul des transitions interdites.

Pour pallier le manque de données, l'objectif de cette thèse est de mettre au point un dispositif expérimental dédié à la mesure des spectres β ainsi qu'une méthode d'analyse pour extraire les facteurs de forme expérimentaux assortis d'incertitudes. Ces nouvelles mesures iront enrichir la base de données NUCLÉIDE, et serviront à contraindre et valider le code de calcul BETASHAPE développé au laboratoire.

Après des rappels sur la radioactivité et les interactions rayonnement-matière, nous décrirons les différentes techniques de mesure des spectres β et analyserons leurs avantages et inconvénients.

1.2.1 Phénomènes nucléaires : la radioactivité β et γ

En 1903, le prix Nobel de physique est décerné à Henri Becquerel pour la découverte de la radioactivité ainsi qu'aux époux Curie pour leurs recherches portant sur les phénomènes radiatifs. À la suite de ces découvertes, de nombreux travaux débouchent rapidement sur la mise en évidence de trois types de rayonnement (α , β , γ) qui se distinguent entre eux d'une part par leur aptitude à traverser une épaisseur plus ou moins importante de matière, et d'autre part par la courbure de leur trajectoire dans un champ électrique ou magnétique (voir figure 1.3).

De nos jours, nous savons que la radioactivité est une réaction nucléaire spontanée qui se produit parce que son bilan énergétique est plus favorable : le noyau se transforme alors en un noyau plus stable. Chacun des trois types de processus (α , β , γ) entraîne un changement caractéristique au sein du noyau.

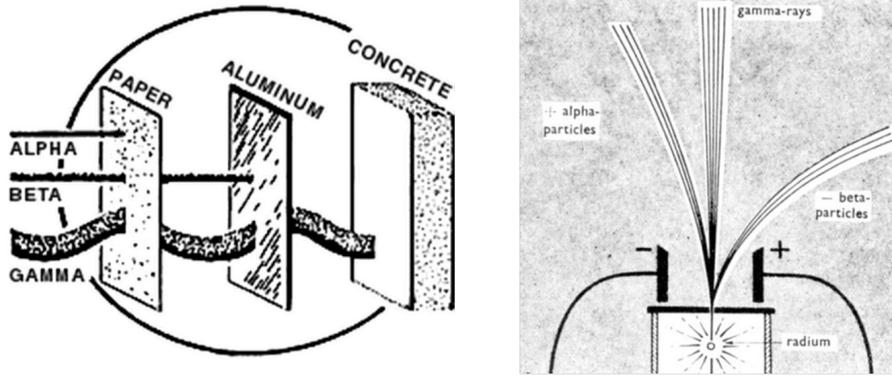


FIGURE 1.3 – Les trois types de rayonnement ionisant et leur pouvoir de pénétration dans la matière. L'image de droite, issue de [24], illustre le comportement des trois types de rayonnements dans un champ magnétique.

Les particules α ont été identifiées comme étant des noyaux d'hélium. La radioactivité α est, au même titre que la fission spontanée, une transformation par partition (les nucléons sont partagés entre les produits de la réaction). C'est l'interaction forte qui gouverne ces transformations. La radioactivité α se produit pour des noyaux lourds ($A > 150$), et la fission spontanée pour des noyaux très lourds ($A > 220$), en compétition avec la désintégration α .

La désintégration β est liée à l'interaction faible et a lieu pour des noyaux ayant un excès ou un déficit de neutrons (n). Il s'agit d'une transformation isobarique (le nombre de nucléons est conservé) où un nucléon d'une espèce, sous l'effet de l'interaction faible, est transformé en une autre espèce. Pour compenser le changement de charge un électron (e^-) ou un positron (e^+) est expulsé du noyau, ce qui permet la conservation de la charge électrique. La désintégration par interaction faible dans un noyau peut être représentée schématiquement par l'ensemble des processus suivants :

$$\begin{aligned}
 \text{la désintégration } \beta^- & : n \rightarrow p + e^- + \bar{\nu}_e, \\
 \text{la désintégration } \beta^+ & : p \rightarrow n + e^+ + \nu_e, \\
 \text{la capture électronique} & : e^- + p \rightarrow n + \nu_e.
 \end{aligned}$$

Ici p désigne le proton, ν_e symbolise le neutrino électronique et $\bar{\nu}_e$ son antiparticule, l'anti-neutrino. Pour que la désintégration β^+ puisse avoir lieu, il faut que le bilan énergétique de la réaction soit supérieur à un seuil en énergie correspondant à $2m_e c^2$, où m_e est la masse de l'électron et c la vitesse de la lumière. La capture électronique est un phénomène qui est toujours en compétition avec la désintégration β^+ . Ce mode de désintégration s'affranchit de l'énergie seuil en exploitant le cortège électronique de l'atome. Un électron du cortège électronique est alors capturé par le noyau. La probabilité de capture d'un électron est plus élevée pour la couche K que pour les autres couches car le recouvrement de cette orbitale avec le noyau est maximal. La lacune électronique laissée par l'électron sur la couche W ($W = K, L, M, \dots$) va induire des phénomènes secondaires dus au réarrangement des électrons atomiques que nous expliciterons plus tard.

Dans ce travail, nous nous intéressons à la mesure de la distribution en énergie des électrons issus d'une désintégration β^- . L'excès de neutrons est beaucoup plus fréquent parmi les noyaux radioactifs naturels que le déficit en neutrons à cause de la répulsion coulombienne entre les protons. La radioactivité β^- est donc de loin la plus observée. Le processus est ainsi schématisé :



où X est le noyau père et Y le noyau fils. Comme il s'agit d'une désintégration à trois corps, l'espace des phases de chaque particule autorise des spectres à valeurs continues. Cependant, l'énergie cinétique du noyau de recul Y est suffisamment faible pour être négligée. Nous considérons donc que toute l'énergie de la désintégration est partagée entre la particule β et l'antineutrino. Ainsi, l'énergie de l'électron varie de zéro à une énergie maximale (E_{max}), comme illustré sur la figure 1.4, qui dépend du niveau d'excitation du noyau fils et de l'énergie disponible (Q -value). Si la désintégration s'effectue vers le niveau fondamental, cette énergie E_{max} correspond à l'énergie résiduelle après la réaction, caractéristique à chaque désintégration. La forme d'un spectre β est propre à chaque désintégration. Nous détaillerons ces aspects dans le chapitre suivant.

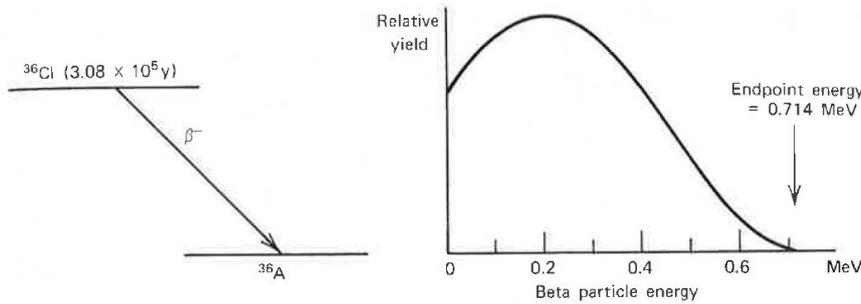


FIGURE 1.4 – Schéma de décroissance du ${}^{36}\text{Cl}$ et distribution en énergie de la particule β en résultant.

L'émission γ est liée à l'interaction électromagnétique. Il ne s'agit pas réellement d'une désintégration radioactive puisque les noyaux initiaux et finaux sont les mêmes mais dans des états d'énergie différents. Pour évacuer le surplus d'énergie, un noyau excité d'énergie E_{initiale} va émettre des particules γ en passant vers un état d'énergie E_{finale} . Il existe des règles de sélection dans la désexcitation des noyaux dues à la mécanique quantique. Quand l'émission γ est très peu probable, une alternative existe. Il s'agit du mécanisme de la conversion interne par lequel le noyau se désexcite en communiquant son énergie à un électron W du cortège électronique. Celui-ci est alors éjecté avec une énergie cinétique telle que :

$$E_{e^-} = (E_{\text{initiale}}^* - E_{\text{finale}}^*) - E_W^{\text{liaison}} \quad (1.2)$$

Contrairement à l'émission β , le spectre obtenu est un spectre de raies dont l'énergie est donnée par la formule (1.2). Comme on peut le voir sur la figure 1.5, le processus nucléaire de conversion interne engendre des électrons de conversion que l'on peut considérer comme monoénergétiques. Dans ce travail, des sources d'électrons de conversion ont été utilisées pour étalonner en énergie les détecteurs qui ont ensuite servi à mesurer des spectres continus.

1.2.2 Phénomènes atomiques : les rayons X et les électrons Auger

La capture électronique et la conversion interne sont des processus qui donnent lieu à la création de lacunes dans le cortège électronique. C'est également le cas lorsqu'un électron est arraché de l'atome après le passage d'une particule ionisante. L'atome existe alors dans un état

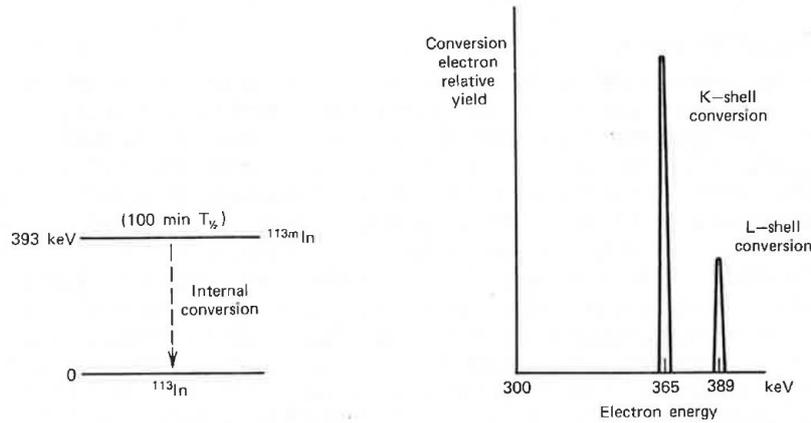


FIGURE 1.5 – Le spectre en énergie des électrons de conversion attendu suite à une conversion interne du niveau isomérique à 393 keV de ^{113m}In .

excité pendant une courte période de temps. Rapidement, le cortège électronique se réarrange pour que l'atome retrouve une configuration stable. Si la transition entre l'état excité et l'état fondamental est permise, ce laps de temps est de l'ordre de la nanoseconde. L'énergie libérée prend la forme d'un photon X caractéristique et est égale à la différence d'énergie entre les deux niveaux. Les photons issus du réarrangement des couches électroniques portent le nom générique de la couche contenant la vacance initiale : X_K , X_L ... Par exemple, si une lacune créée sur la couche K est comblée par un électron en provenance de la couche L, alors un photon K_α est produit et son énergie est égale à la différence d'énergie entre l'énergie de liaison de la couche K et celle de la couche L. La lacune peut également être comblée par des électrons provenant des niveaux M, N... L'ensemble de ces photons X_K , très proches en énergie, forment la série K. De la même manière, en fonction de l'origine de la lacune, des photons X de séries L, M, ... peuvent être émis.

Les énergies des rayons X dépendent des énergies de liaison des atomes et sont donc caractéristiques d'un élément donné. La méthode d'analyse par fluorescence X exploite cette propriété. Elle permet d'aller sonder la matière en excitant un matériau à l'aide d'un faisceau externe de rayons X. En mesurant le spectre des raies X émises, les atomes entrant dans la composition du matériau peuvent être identifiés. Nous avons utilisé cette technique non destructive sur nos détecteurs afin de mieux les caractériser.

L'énergie d'excitation de l'atome peut aussi être directement transférée à un électron, qui est éjecté du cortège électronique. On parle alors d'électron Auger, du nom du physicien français qui travailla sur cet effet [25]. Le rendement de fluorescence pour une couche donnée ω_W ($W = K, L, M, \dots$) est défini comme le rapport du nombre de photons X_W sur le nombre de vacances de la couche W. Il permet de rendre compte de la compétition entre les phénomènes de rayonnement X et d'émission Auger. L'électron éjecté a une énergie bien définie, correspondant à l'énergie à évacuer moins son énergie de liaison. La nomenclature des électrons Auger, par exemple e_{AKLL} , correspond aux niveaux où se trouvent la lacune (K), l'électron qui vient la combler (L) et l'électron qui est éjecté (L). Les électrons Auger ont en général des énergies relativement faibles, typiquement inférieures à une dizaine de keV pour les e_{AK} , en comparaison des énergies des particules β pouvant atteindre plusieurs MeV ou des électrons de conversion de l'ordre de centaines de keV. La figure 1.6 illustre ces deux processus.

Les sources radioactives β ou d'électrons de conversion que nous allons mesurer émettent des rayons X et des électrons Auger auxquels le détecteur peut être sensible. Pour analyser

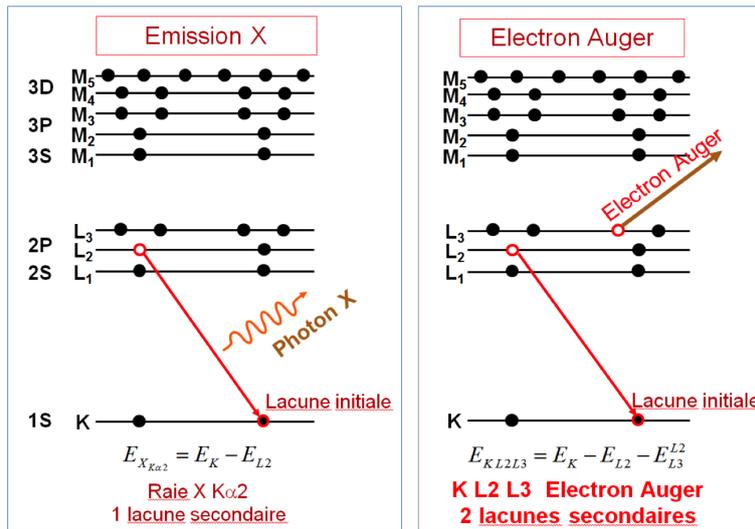


FIGURE 1.6 – Emission d’un rayon X ou d’un électron Auger lors du réarrangement des couches électroniques.

les spectres mesurés nous utiliserons la Table des Radionucléides [3] qui tabule des données nucléaires et atomiques, telles que les énergies et les intensités d’émission des électrons et des photons. La nomenclature décrite précédemment est celle utilisée dans ces tables.

1.2.3 Interactions rayonnement matière

Nous allons maintenant voir comment les particules issues des phénomènes nucléaires et atomiques que nous venons de décrire se comportent lorsqu’elles pénètrent dans la matière.

Dans ce paragraphe, nous décrirons les principaux types d’interaction des électrons et des photons avec la matière.

Interactions électron matière

Le passage d’un électron dans la matière va se traduire par deux effets. D’une part, la particule va perdre de l’énergie et ralentir. D’autre part, elle va être déviée de sa direction incidente. Ces deux effets résultent de plusieurs modes d’interaction possibles (voir figure 1.7).

- **Collision inélastique avec les électrons atomiques du milieu.** Il s’agit du mécanisme prédominant par lequel un électron incident de basse énergie va céder son énergie (E) au milieu. Suite au passage de l’électron, les atomes du milieu vont être excités ou ionisés. Les collisions *hard* se traduisent par l’émission d’un électron avec une énergie élevée ($E - U_i$), avec U_i l’énergie d’ionisation, (ionisation primaire). Ces électrons secondaires, appelés rayons δ , sont générés avec une énergie suffisante pour aller ioniser à leur tour le milieu (ionisations secondaires). Les collisions *soft* se traduisent par l’émission d’électron des couches périphériques de très faibles énergies et qui perdent leur énergie localement.
- **Diffusion élastique avec les électrons atomiques.** Un électron incident peut être dévié par le champ des électrons d’un atome du milieu. L’énergie et l’impulsion sont conservés et l’énergie transférée est généralement inférieure au potentiel d’ionisation le plus faible de sorte que l’interaction peut être vue comme une diffusion sur l’ensemble de

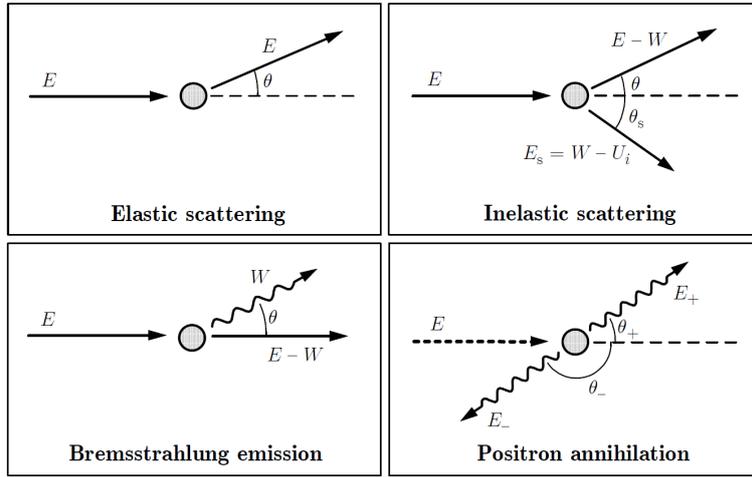


FIGURE 1.7 – Les différentes interactions possibles des électrons et des positrons avec la matière.

l'atome. De telles collisions sont significatives pour des électrons incidents de très basse énergie (< 100 eV).

- **Collision inélastique sur les noyaux du milieu.** Lors d'une diffusion sur un noyau, l'électron incident va systématiquement être dévié. Certaines déviations s'accompagnent de l'émission d'un photon. Dans le phénomène de *bremstrahlung*, toute charge accélérée émet du rayonnement électromagnétique qui véhicule une énergie proportionnelle au carré de l'accélération qu'elle subit. En fonction de la distance entre l'électron et le noyau, l'énergie cinétique transférée au photon va de l'énergie nulle à toute l'énergie cinétique de l'électron. Pour des électrons monoénergétiques qui interagissent par collision inélastique sur les noyaux d'un matériau donné, le spectre en énergie des photons de *bremstrahlung* va être continu avec une énergie maximale égale à l'énergie cinétique des électrons.
- **Diffusion élastique sur les noyaux du milieu.** Pour les électrons, la probabilité d'une diffusion élastique sur un noyau est élevée. Dans ce cas, il n'y a pas de photons émis ni d'excitation du noyau. La particule incidente perd uniquement l'énergie cinétique nécessaire pour conserver le moment cinétique.

Pour quantifier le ralentissement d'une particule chargée, la grandeur appelée le pouvoir d'arrêt (S) est utilisée. Cette grandeur représente la perte d'énergie moyenne par unité de longueur de trajectoire :

$$(S/\rho)_{\text{tot}} = \frac{1}{\rho} \frac{dE}{dx}, \quad (1.3)$$

où ρ est la masse volumique du milieu.

La perte d'énergie totale est la somme de la perte d'énergie par collision (ionisation et excitation) et de la perte d'énergie par rayonnement :

$$\left(\frac{dE}{\rho dx} \right)_{\text{tot}} = \left(\frac{dE}{\rho dx} \right)_{\text{rad}} + \left(\frac{dE}{\rho dx} \right)_{\text{col}} \quad (1.4)$$

La perte d'énergie par collision a été initialement calculée par Bohr dans un cadre classique. Puis, avec l'avènement de la mécanique quantique, le problème a été développé notamment pour les particules légères et relativistes par Mott, Bethe, Möller et Bloch. Le détail des calculs

et des formules peut être trouvé dans [26].

Lorsque l'électron ionise la matière, le transfert d'énergie se fait de façon quasicontinue. En effet, l'électron subit un grand nombre de collisions avec les électrons du milieu, où seulement une petite quantité d'énergie est transférée à chaque fois (collisions *soft*). Les collisions avec un transfert d'énergie important (collisions *hard*) existent mais sont peu probables. En pratique, on se place toujours dans l'approximation du ralentissement continu (CSDA, *Continuous Slowing Down Approximation*). *A contrario*, un électron qui transfère son énergie par radiation peut être absorbé après seulement une ou deux interactions avec un noyau.

L'importance relative des deux contributions dépend de l'énergie. À basse énergie, la collision domine. À partir d'une dizaine de MeV, la contribution des pertes radiatives est prépondérante alors que la contribution de l'ionisation reste quasiment constante (voir figure 1.8). Pour évaluer rapidement l'importance relative des deux effets, le rapport des pertes d'énergie est estimé ainsi :

$$\left(\frac{dE}{\rho dx}\right)_{\text{rad}} / \left(\frac{dE}{\rho dx}\right)_{\text{ionisation}} \approx \frac{T \cdot Z}{1600 \cdot m_e c^2} \quad (1.5)$$

avec T l'énergie cinétique de l'électron et Z le numéro atomique du matériau traversé. Pour les sources β , dont les énergies sont en général inférieures à quelques MeV, la contribution radiative constitue une petite fraction de la perte d'énergie totale, excepté pour des matériaux de Z élevé. En prenant l'exemple d'un électron se propageant à $T = 5$ MeV dans du silicium $Z = 14$, la contribution radiative représente environ 10 % de la perte d'énergie totale.

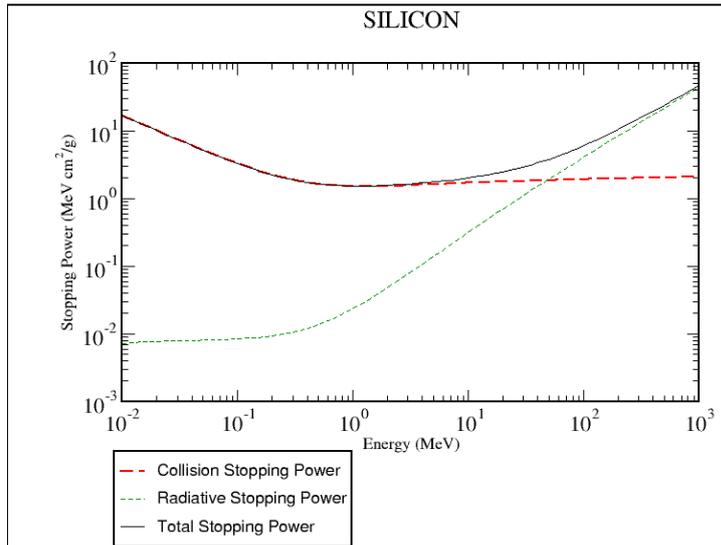


FIGURE 1.8 – Perte d'énergie totale des électrons, avec les contributions radiative et de collision, dans le silicium. La figure a été obtenue avec le programme ESTAR du NIST [27] .

Parcours des électrons dans la matière

Quel que soit le type de collision, l'électron va systématiquement subir une déviation. L'angle de diffusion peut même être supérieur à 90° (rétrodiffusion). Les trajectoires des électrons dans la matière sont erratiques. Par conséquent, même avec une faible épaisseur de matériau, un faisceau d'électrons est atténué. La notion de parcours (*path length*) fait référence à la distance totale parcourue par l'électron le long de sa trajectoire jusqu'à son arrêt complet

indépendamment de la direction prise par la particule. Le *range* est défini dans l'approximation du ralentissement continu comme le parcours moyen de la particule le long de sa trajectoire :

$$R_{\text{CSDA}} = \int_0^{E_0} \left[\frac{S(E)}{\rho} \right]_{\text{tot}}^{-1} dE \quad (1.6)$$

avec E_0 l'énergie cinétique initiale de l'électron, ρ la masse volumique du matériau traversé et $S(E)$ le pouvoir d'arrêt de la particule.

La trajectoire des électrons étant erratique, le *range* R ne permet pas de connaître la profondeur de pénétration des électrons dans une direction donnée. Pour cela, il faut introduire la notion de portée P (voir figure 1.9). Cette information pouvant être utile, notamment pour dimensionner le détecteur, nous avons souvent eu recours à la formule semi-empirique [28] afin de l'estimer :

$$P(\text{cm}) = \frac{0.412 \cdot E^n(\text{MeV})}{\rho(\text{g} \cdot \text{cm}^{-3})}, \quad \text{avec } n = 1.265 - 0.0954 \ln E(\text{MeV}) \quad (1.7)$$

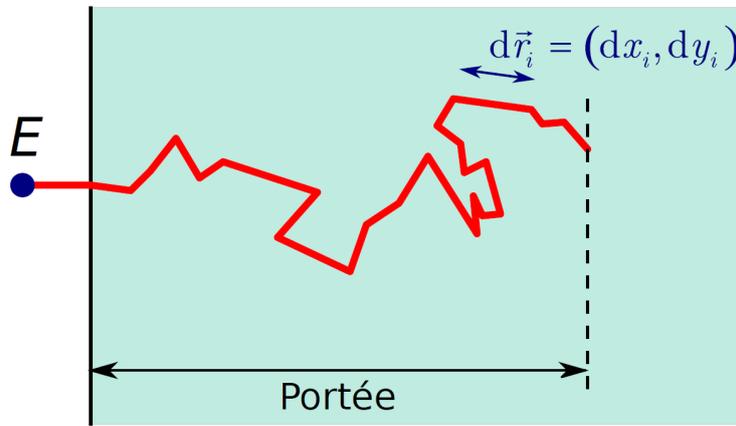


FIGURE 1.9 – Représentation de la notion de portée. Il s'agit de la profondeur maximale ($|\sum dx_i|$) atteinte par l'électron dans le matériau. Elle est à différencier de celle de parcours qui correspond à la distance totale ($|\sum d\vec{r}_i|$) parcourue par la particule.

Interaction photon matière

Les photons sont différenciés en fonction de leurs origines. Les rayons γ sont des photons qui accompagnent les transitions nucléaires et les rayons X sont associés aux transitions atomiques et aux photons de *bremstrahlung*. L'énergie d'un photon s'exprime par $E = h\nu$, où ν est la fréquence et h la constante de Planck.

En pénétrant dans la matière, le photon peut interagir avec les électrons atomiques, avec les nucléons, avec le champ électrique entourant le noyau ou les électrons, et enfin avec le champ mésonique entourant les nucléons. La particule peut alors être complètement absorbée ou diffusée, élastiquement ou inélastiquement. Parmi l'ensemble de ces processus, dans la gamme d'énergie des γ issus des sources radioactives usuelles, typiquement comprise entre 0.01 et 10 MeV, seuls trois effets nous intéressent.

- **L'effet photoélectrique.** Dans ce type d'interaction, le photon incident entre en collision avec un électron d'une couche interne (photoélectron) et lui cède toute son énergie.

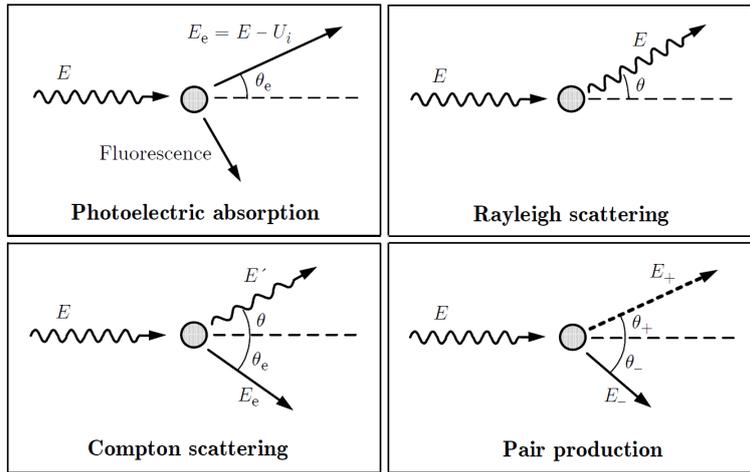


FIGURE 1.10 – Les différentes interactions possibles des photons avec la matière.

Le photon disparaît et l'électron est arraché du cortège électronique avec une énergie cinétique $E_c = h\nu - E_W$, avec $h\nu$ l'énergie initiale du photon incident et E_W l'énergie de liaison de l'électron sur la couche W (W = K, L, M...). La lacune laissée par l'électron entraîne un réarrangement du cortège électronique suivi de l'émission de photons X caractéristiques et d'électrons Auger.

- **La diffusion Compton.** Le processus d'interaction de la diffusion Compton a lieu entre le photon γ incident et un électron du matériau absorbant. Le γ incident est diffusé à un angle θ par rapport à sa direction d'origine. Une partie de son énergie est transférée à l'électron, supposé initialement au repos et libre, qui recule selon l'angle θ_e . Étant donné que les diffusions peuvent avoir lieu selon n'importe quelle direction, l'énergie transférée à l'électron varie de l'énergie nulle à une importante fraction de l'énergie du photon γ . L'électron possède l'énergie de recul maximale lorsque le photon est complètement rétrodiffusé ($\theta = \pi$).
- **La création de paire.** Si la particule γ a une énergie supérieure à deux fois celle de l'électron au repos (1.022 MeV), le processus de création de paire est énergétiquement possible. La section efficace d'interaction reste cependant très faible tant que l'énergie de la particule γ n'atteint pas plusieurs MeV. C'est donc essentiellement un phénomène qui domine à haute énergie. Le photon qui pénètre dans le champ coulombien d'un noyau se matérialise sous la forme d'une paire électron-positron. L'électron et le positron se partagent l'énergie cinétique restante après la matérialisation. Après avoir ralenti dans la matière environnante, le positron va interagir avec un électron du milieu avec lequel il s'annihile, produisant deux γ de 511 keV chacun (voir figure 1.7).

Parmi les autres processus susceptibles d'avoir lieu, on peut évoquer la diffusion Rayleigh avec un électron lié, la diffusion Thomson avec un électron libre ou encore la diffusion Delbrück avec le champ coulombien du noyau. Lors de ces interactions, le photon incident est simplement dévié, sans transmission d'énergie au milieu traversé.

Section efficace d'interaction

La probabilité d'interagir par l'un de ces modes est reliée à la section efficace d'interaction. La section efficace de l'effet photoélectrique, notée $\tau_{photoelectrique}$, dépend de l'énergie du photon

incident (E) et du numéro atomique du matériau traversé (Z). La probabilité d'interagir par cet effet diminue quand l'énergie augmente et devient négligeable, en comparaison des autres effets, lorsque $E > 1$ MeV. À énergie fixée, plus Z est grand, plus τ augmente. Pour favoriser cet effet il est donc préférable d'utiliser des matériaux lourds.

La section efficace par atome de l'effet Compton (σ) est indépendante de Z . En effet, l'énergie initiale (E) du photon incident étant supposée très grande devant l'énergie de liaison de l'électron, ce dernier peut être considéré comme libre. Ainsi σ est une fonction dépendant uniquement de l'énergie initiale du photon incident qui décroît de façon monotone quand E augmente. Cependant, il est évident que plus le nombre d'électrons sera grand dans le milieu donné, plus l'effet Compton sera favorisé. Cette dépendance est simplement linéaire. Pour un atome contenant Z électrons, la section efficace Compton est définie telle que : $\sigma_{Compton} = Z \sigma$.

La section efficace de production de paire, notée κ_{paire} , croît avec E et en fonction du carré de Z . Lorsque l'énergie initiale du photon incident excède 5 MeV ce processus devient dominant.

L'importance relative de ces trois modes en fonction de E et Z est représentée sur la figure 1.11. On définit la probabilité totale d'interaction μ , également appelée coefficient atténuation li-

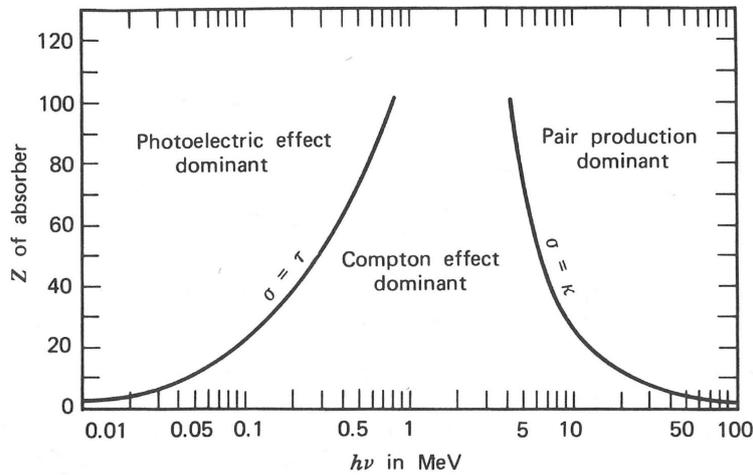


FIGURE 1.11 – Importance relative des trois principaux types d'interaction des particules γ avec la matière, où τ , σ et κ sont les sections efficaces respectives de l'effet photoélectrique, de la diffusion Compton et de l'effet de création de paire. Au niveau des lignes, les sections efficaces sont égales. Figure extraite de [26].

néique, comme égal à la somme de ces trois principaux effets : $\mu = \tau_{photoelectrique} + \sigma_{Compton} + \kappa_{paire}$. Physiquement, μ est la probabilité d'interaction par unité de distance.

Atténuation des photons dans la matière

L'atténuation d'un faisceau de γ est définie comme la fraction des γ qui émergent d'un écran sans avoir interagi. L'atténuation est d'autant plus rapide que la probabilité d'interaction est forte. La capacité à atténuer est évaluée par le coefficient d'atténuation μ caractéristique du matériau traversé. L'intensité d'un faisceau de photon décroît avec l'épaisseur selon une loi exponentielle :

$$I(x) = I_0 e^{-\mu x} \quad (1.8)$$

La longueur de demi-atténuation représente l'épaisseur de matériau nécessaire pour diminuer de moitié l'intensité d'un faisceau de photons. Le tableau 1.1 donne la longueur de demi-atténuation de photons dans différents matériaux. En comparaison, les parcours (*range*) des électrons dans ces mêmes matériaux sont bien plus faibles.

Particule / énergie	Range (cm)		
	Air	Silicium	Germanium
e^- (1 keV)	$5.0 \cdot 10^{-3}$	$3.6 \cdot 10^{-6}$	$2.3 \cdot 10^{-6}$
e^- (10 keV)	$2.4 \cdot 10^{-1}$	$1.5 \cdot 10^{-4}$	$8.9 \cdot 10^{-5}$
e^- (100 keV)	$1.3 \cdot 10^1$	$7.8 \cdot 10^{-3}$	$4.4 \cdot 10^{-3}$
e^- (1 MeV)	$4.1 \cdot 10^2$	$2.3 \cdot 10^{-1}$	$1.2 \cdot 10^{-1}$
	Longueur de demi-atténuation (cm)		
γ (10 keV)	$1.1 \cdot 10^2$	$8.9 \cdot 10^{-2}$	$3.6 \cdot 10^{-3}$
γ (100 keV)	$3.8 \cdot 10^3$	1.6	$2.4 \cdot 10^{-1}$
γ (1 MeV)	$9.1 \cdot 10^3$	4.7	2.3

TABLE 1.1 – Parcours (*range*) et longueurs de demi-atténuation d'électrons et de photons à différentes énergies dans plusieurs matériaux.

1.2.4 Détecteurs β

Dans une compilation de facteurs de forme expérimentaux publiée en 1976 [29], Behrens et Szybisz listent cinq techniques expérimentales utilisées pour la mesure des spectres β : les spectromètres électrostatiques et magnétiques, les compteurs proportionnels, la scintillation liquide et enfin les semi-conducteurs. À cela nous ajoutons une technique beaucoup plus récente et utilisée au LNH : les calorimètres métalliques magnétiques.

Afin de pouvoir comparer ces différentes techniques, nous commencerons par rappeler quelques propriétés générales des détecteurs, puis nous décrirons les différentes méthodes. Enfin, nous détaillerons les caractéristiques des semi-conducteurs au silicium et justifierons l'emploi de ce type de détecteur pour notre étude.

Propriétés générales des détecteurs

Les particules ionisantes déposent leur énergie en interagissant dans la matière selon les mécanismes décrits précédemment. Le principe de détection, pour la plupart des détecteurs, consiste à collecter les charges électriques apparues dans le volume actif du détecteur suite à l'interaction. Cette charge est ensuite convertie en un signal électrique exploitable. En pratique, l'énergie de la particule incidente est déposée de façon quasiment instantanée par rapport au temps de collection de charge et de traitement du signal.

La nature du milieu actif va varier en fonction de la famille de détecteurs. Pour les détecteurs gazeux, les particules interagissent avec un gaz à fort potentiel d'ionisation comme l'argon. Les scintillateurs peuvent être solides, c'est le cas des cristaux inorganiques tel que le NaI ou des plastiques scintillants, mais également liquides. Enfin, le volume actif d'un semi-conducteur est solide, les matériaux les plus courants étant le silicium et le germanium.

Trois principaux critères entrent en ligne de compte dans le choix d'un détecteur : sa résolution, son efficacité et son seuil en énergie. Comme le détecteur idéal n'existe pas, un compromis doit être trouvé en fonction de ce que l'on souhaite mesurer. Par exemple, une mesure dont le but est de déterminer avec précision la forme d'un spectre β n'a pas les mêmes exigences que la mesure de l'activité absolue d'une source. Bien évidemment, différentes techniques de mesure peuvent être complémentaires.

- **La résolution en énergie.** La réponse d'un détecteur à un faisceau monoénergétique prend la forme d'un pic centré sur l'énergie du faisceau. Ce pic peut être plus ou moins étalé en fonction de la résolution du détecteur. Le pic est d'autant plus fin que la résolution du détecteur est bonne (voir figure 1.12). La résolution est formellement définie comme la largeur à mi-hauteur du pic (*Full Width at Half Maximum* - FWHM) divisée par l'énergie de la particule (H_0). Cette définition est illustrée figure 1.13.

La résolution traduit les fluctuations de la réponse du détecteur. Ces dernières proviennent de la dérive des caractéristiques du détecteur pendant la mesure, les sources de bruit aléatoire dans le détecteur ou l'instrumentation, et du bruit statistique venant de la nature discrète du signal mesuré lui-même. Dans beaucoup d'applications, le bruit statistique est la contribution la plus importante et surtout il est inévitable. Le seul moyen pour réduire la limite statistique de la résolution en énergie est d'augmenter le nombre de porteurs d'information par impulsion : pour une particule d'énergie donnée, plus l'énergie nécessaire pour créer des porteurs de charge est faible, plus le nombre de porteurs libérés est important et meilleure sera la résolution.

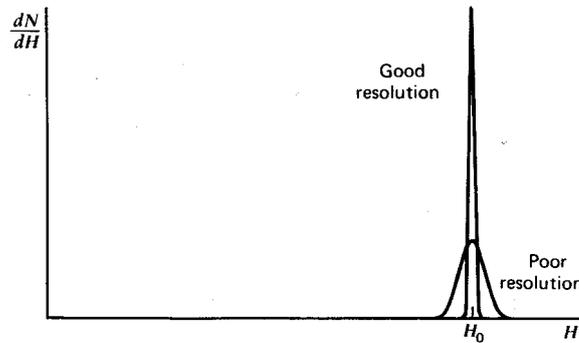


FIGURE 1.12 – Exemples de fonctions de réponse de détecteurs ayant des résolutions différentes.

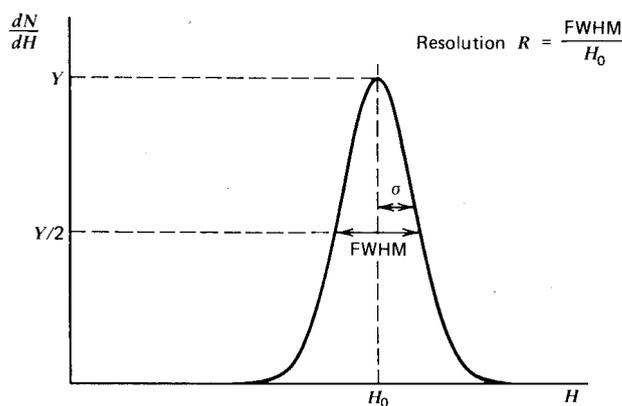


FIGURE 1.13 – Définition de la résolution d'un détecteur. Pour les pics gaussiens avec un écart-type σ , la largeur à mi-hauteur FWHM est donnée par $\sigma \times 2\sqrt{2 \ln 2}$.

- **Le rendement de détection.**

Dans un cas idéal, chaque particule émise par une source radioactive interagit avec le volume sensible du détecteur et produit un signal. Sous ces conditions, le détecteur est dit efficace à 100 %. En pratique, l'efficacité de comptage (ou rendement de détection)

est divisée en deux catégories. L'efficacité absolue, ϵ_{abs} , est définie comme :

$$\epsilon_{\text{abs}} = \frac{\text{nombre d'événements enregistrés}}{\text{nombre de particules émises}} \quad (1.9)$$

et dépend des propriétés du détecteur, mais également de la géométrie de détection, comme par exemple la distance entre la source et le détecteur.

Afin de se passer de la dépendance à la géométrie de comptage, l'efficacité intrinsèque, ϵ_{int} , permet de se concentrer sur l'efficacité propre du détecteur.

$$\epsilon_{\text{int}} = \frac{\text{nombre d'événements enregistrés}}{\text{nombre de particules incidentes à l'entrée du détecteur}} \quad (1.10)$$

L'efficacité intrinsèque dépend principalement des matériaux qui constituent le détecteur, de l'énergie de la radiation et de l'épaisseur de volume actif du détecteur dans la direction de la radiation incidente.

Lorsque les sources sont isotropes, les deux efficacités sont reliées par : $\epsilon_{\text{int}} = \epsilon_{\text{abs}} \frac{\Omega}{4\pi}$ avec Ω l'angle solide.

L'angle solide définit une portion de l'espace vue d'un point particulier. En l'occurrence, nous nous intéressons à la surface du détecteur vue depuis la source. L'expression générale est donnée par :

$$\Omega = \int_A \frac{\cos\alpha}{r^2} dA \quad (1.11)$$

où r représente la distance entre la source et l'élément de surface dA et α l'angle entre la normale à l'élément de surface et la direction de la source. Dans l'approximation d'une source ponctuelle positionnée à une distance d sur l'axe d'un détecteur cylindrique de rayon a , Ω est égal à :

$$\Omega = 2\pi \left(1 - \frac{d}{\sqrt{d^2 + a^2}} \right) \quad (1.12)$$

- **Le seuil en énergie.** Il s'agit de l'énergie minimale détectable. La limite est liée à la limite théorique de la résolution.

Propriétés « idéales » d'un détecteur β

En spectrométrie β , pour que la forme du spectre ne soit pas déformée par le système de détection, un détecteur idéal devrait respecter les propriétés suivantes :

- Une résolution en énergie suffisamment fine pour ne pas masquer les variations du spectre.
- Un rendement de détection égal à 100 %, c'est à dire que toutes les particules émises par la source sont détectées et toute l'énergie est absorbée dans le volume de détection.
- Une réponse en énergie linéaire. La relation de proportionnalité entre l'amplitude du signal et l'énergie déposée doit être conservée sur toute la gamme de mesure.
- Un temps de réponse rapide afin de détecter chaque interaction. Le temps mort du détecteur correspond au temps utilisé pour traiter une information, durant lequel d'autres événements ne peuvent pas être enregistrés. Avec un bon dispositif de gestion des temps morts, ce critère devient, cependant, moins important.

Selon ces critères, nous allons passer en revue les différentes techniques de mesure et juger de leurs performances pour l'application qui nous intéresse ici.

Spectromètres magnétiques et électrostatiques

L'utilisation de spectromètres magnétiques a été la technique la plus couramment utilisée pour la mesure de spectres β . En 1976, à l'époque de la publication de la compilation de Behrens et Szybisz, plus de 70 % des spectres avaient été mesurés par cette technique. L'emploi de spectromètres électrostatiques est quant à lui resté anecdotique pur cette application. L'ouvrage de Siegbahn publié en 1955 [30] donne un bon aperçu des divers développements de ces techniques.

Le principe d'un spectromètre magnétique plan consiste à placer un électron (charge e , vitesse v) dans un champ magnétique homogène \vec{B} . L'électron se déplace perpendiculairement aux lignes de champ et décrit une trajectoire circulaire qui converge vers le détecteur avec un rayon de courbure égale à ρ . L'équation du mouvement est donnée par :

$$Bev = \frac{mv^2}{\rho} \quad \text{avec} \quad m = \frac{m_0}{\sqrt{1 - \frac{v^2}{c^2}}} \quad (1.13)$$

et la quantité de mouvement : $p = mv = e \cdot B\rho$.

La quantité de mouvement étant proportionnelle à B , en variant l'intensité du champ magnétique, on parcourt, point par point, la distribution en quantité de mouvement des particules β . Pour chaque valeur du champ magnétique, le détecteur compte le nombre de particules détectées pendant un même laps de temps Δt . Différents types de détecteur peuvent être utilisés, un semi-conducteur ou un compteur à gaz par exemple. On notera que dans les spectromètres magnétiques hélicoïdaux, les électrons se déplacent parallèlement aux lignes de champ selon une trajectoire hélicoïdale.

Hughes et Rojanski ont montré [31] qu'en utilisant un champ électrostatique radial, un faisceau d'électrons de même énergie pouvait être focalisé de la même manière qu'avec un champ magnétique. En revanche, ce type de spectromètre électrostatique, basé sur une différence de vitesse des électrons, ne peut plus être utilisé dans le domaine relativiste. Le seuil haut de ce type de détection dépend de la différence de potentiel maximale applicable, et est de l'ordre d'une vingtaine de keV.

Les spectromètres magnétiques et électrostatiques sont particulièrement bien adaptés à l'étude des spectres β car ils peuvent atteindre une très bonne résolution en énergie pouvant descendre jusqu'à quelques eV. Néanmoins, le très faible angle solide de ces dispositifs diminue considérablement leur taux de comptage; de ce fait réduire l'incertitude statistique implique de mesurer des sources intenses sur des temps longs. La taille des sources ne pouvant pas être infinie, l'activité d'une source est forcément bornée, limitant ainsi les performances de ces techniques. De plus, la quantité de matière importante constituant la source favorise l'autoabsorption des rayonnements β au sein même de la source. En termes de radioprotection, l'utilisation de sources intenses présente également un sérieux inconvénient. Les longs temps d'acquisition restreignent les mesures à des radionucléides dont les périodes sont suffisamment longues. Les spectromètres électrostatiques sont limités par leur seuil bas en énergie et sont donc dédiés à des applications de basse énergie. En spectrométrie β , ils ont essentiellement été utilisés pour mesurer le spectre du tritium dans le cadre de la recherche de la masse du neutrino [32, 33].

Compteurs proportionnels

À partir de la fin des années 1940, les compteurs à gaz ont été utilisés en spectrométrie β essentiellement comme détecteurs dans les spectromètres magnétiques et électrostatiques. Cependant, pour mesurer directement des spectres β de qualité, la résolution des compteurs proportionnels n'est pas suffisamment bonne et cette application est restée anecdotique. Ils peuvent néanmoins servir pour des mesures de l'activité β .

Le compteur proportionnel appartient, avec les compteurs Geiger-Müller et les chambres d'ionisation, à la famille des détecteurs à ionisation de gaz. L'interaction d'une particule ionisante avec le gaz neutre contenu dans le détecteur peut entraîner l'apparition d'une ou plusieurs paires électron-ion. Avant de collecter ces charges, un mécanisme de multiplication à l'intérieur même du gaz permet d'amplifier le signal de sortie. Sous l'action d'un champ électrique intense, les électrons des paires sont accélérés et vont ioniser les molécules de gaz. Les électrons issus des ionisations secondaires vont à leur tour ioniser le gaz créant de nouvelles paires et ainsi de suite. Le processus de multiplication des charges prend la forme d'une cascade connue sous le nom d'avalanche de Townsend. Pour une valeur de champ donné, le coefficient de Townsend α est constant et la densité électronique croît exponentiellement avec la distance (x) :

$$n(x) = n(0)e^{\alpha x} \quad (1.14)$$

L'avalanche se termine par la collection des charges par l'anode. La charge collectée, bien qu'amplifiée, est proportionnelle à la charge initiale.

Les compteurs proportionnels sont des détecteurs relativement sensibles à basse énergie. En effet, le coefficient de Townsend croît en fonction de l'intensité du champ électrique. Ainsi pour une valeur de champ suffisamment intense, une seule paire électron-ion peut déclencher une avalanche avec assez de particules secondaires pour obtenir un signal de sortie. Le rendement de détection peut être élevé, pouvant atteindre 100 % si la source est placée au centre du volume de gaz et que l'ensemble des particules β est arrêté dans le gaz. Cependant, le volume de la chambre de détection fixe le seuil haut en énergie du compteur. Dans un gaz, la portée des électrons peut rapidement être supérieur aux dimensions du détecteur. C'est pourquoi, les spectres β mesurés avec des compteurs proportionnels sont souvent de basse énergie comme c'est le cas pour le tritium [34]. Cela étant, le faible pouvoir de résolution des compteurs proportionnels limite leur utilisation comme spectromètres β . L'énergie pour créer une paire électron-ion est comprise, en fonction du gaz, entre 10 et 30 eV. Or, nous l'avons vu précédemment, la résolution est directement liée au nombre de porteurs de charges libérés lors de l'interaction. En pratique, cela se traduit par une résolution de quelques dizaines de keV à 100 keV.

Scintillation liquide

La mesure du rayonnement lumineux produit par le passage de particules ionisantes dans certains matériaux est l'une des plus anciennes techniques de détection.

Le principe de la scintillation liquide repose sur l'interaction d'un rayonnement avec un liquide scintillant, constitué de molécules scintillantes diluées dans un solvant organique [11]. Le solvant, composant principal du cocktail scintillant, absorbe l'énergie des particules ionisantes émises par le radionucléide. Cette énergie, transmise sous forme d'excitation ou d'ionisation, migre d'une molécule de solvant à une autre, dans un laps de temps inférieur à la nanoseconde, jusqu'à être transformée en chaleur ou, avec une faible probabilité, être piégée par une molécule fluorescente du soluté.

Apparaissant lors de la désexcitation de la molécule du soluté, la fluorescence est détectée par des photomultiplicateurs positionnés face à face qui détectent les photons en coïncidence, ce qui permet de s'affranchir du bruit de fond des photomultiplicateurs [11].

L'avantage majeur de cette technique vient du fait qu'il s'agit d'une mesure relativement facile à mettre en œuvre et permettant une détection dans un angle solide de 4π sr puisque l'échantillon liquide est mélangé au cocktail scintillant.

Le rendement lumineux de ce type de détecteur est faible car, au final, il faut environ 1 keV d'énergie électron pour produire quelques photoélectrons dans les photomultiplicateurs. Les fluctuations statistiques du nombre de photoélectrons sont importantes, ce qui conduit à une très mauvaise résolution en énergie. Ainsi, bien que la scintillation liquide soit très efficace pour la mesure de l'activité, elle n'est pas la technique à privilégier pour la spectrométrie bêta.

Calorimètres métalliques magnétiques

L'utilisation de calorimètres métalliques magnétiques (MMC) pour la mesure de spectres β est récente et peu développée. Cette méthode existe au LNHB et a été utilisée pour cette application [35]. Il existe d'autres types de micro-calorimètres dont une description peut être trouvée dans [12].

Les calorimètres métalliques magnétiques sont des détecteurs cryogéniques c'est-à-dire que leur température de fonctionnement est inférieure à 4 K. Ils sont constitués essentiellement de trois modules de base : un absorbeur de rayonnement, un senseur thermique et un lien thermique qui connecte l'absorbeur ou le senseur à une source froide. Lorsqu'une particule ionisante interagit avec l'absorbeur, l'énergie cédée par la particule se traduit par une élévation de la température proportionnelle à l'énergie déposée et inversement proportionnelle à la capacité thermique du détecteur. Le senseur, soumis à un champ magnétique et en fort contact thermique avec l'absorbeur, est un matériau paramagnétique dont le moment magnétique va changer en fonction de l'élévation de température. La variation de flux magnétique ϕ du senseur est mesurée par un magnétomètre de type SQUID (*Superconducting QUantum Interference Device*), caractérisé par une sensibilité excellente et un très faible niveau de bruit. La relation entre la variation de flux magnétique et l'énergie déposée est donnée par :

$$\delta\phi = \mu_0 \frac{G}{r} \left(\frac{C_s}{C_s + C_\alpha} \right) \frac{\delta E}{B} \quad (1.15)$$

où μ_0 est la perméabilité du vide,
 G un facteur de couplage sans unité entre la variation du moment magnétique et le flux mesuré par le magnétomètre,
 r le rayon de la boucle sensible du magnétomètre,
 C_s et C_α respectivement, les capacités thermiques de l'absorbeur et du senseur,
 B le champ magnétique extérieur.

Finalement, la tension mesurée aux bornes du SQUID est proportionnelle à l'énergie déposée par le rayonnement incident dans l'absorbeur.

Après l'interaction, un faible lien thermique entre le détecteur et un bain thermostaté ramène le détecteur à sa température d'équilibre. La constante de temps de remise à l'équilibre doit être suffisamment grande pour ne pas évacuer la chaleur avant qu'elle ne soit lue par le senseur et suffisamment petite pour discriminer chaque interaction rayonnement-absorbeur.

La capacité thermique d'un matériau dépend de sa masse et de la température. D'après l'équation (1.15), pour augmenter le signal il faut minimiser la capacité thermique du détecteur, d'où la nécessité de refroidir le détecteur à des températures cryogéniques.

Pour la spectrométrie β^- développée avec les calorimètres magnétiques, la source de rayonnement est située à l'intérieur même de l'absorbeur. Cette géométrie permet une détection dans un angle solide de 4π sr. De plus, pour une transition β pure, si l'absorbeur est dimensionné pour arrêter tous les électrons, le rendement de détection peut atteindre 100 % et l'énergie du rayonnement β peut être absorbée en totalité. Le seuil de détection en énergie est très bas puisque la moindre interaction d'un rayonnement avec la matière provoque un dégagement de chaleur. La limite de la résolution intrinsèque théorique est fixée par les fluctuations thermodynamiques, qui sont très faibles à très basse température.

La spectrométrie β^- utilisant les MMC remplit les critères pour mesurer des spectres β de très bonne qualité. Cependant, nous devons souligner certaines limites de cette technique. L'absorbeur doit être dimensionné de sorte à arrêter tous les électrons et comme il s'agit souvent d'un métal lourd, il faut faire attention à limiter les phénomènes radiatifs qui conduisent à l'échappement de photons de l'absorbeur. Ces deux points limitent l'application des MMC au domaine des basses énergies. Le temps de remise à l'équilibre étant de quelques millisecondes, l'activité de la source doit nécessairement être faible, typiquement une dizaine de Bq, pour éviter un temps mort de détection important. Pour atteindre une statistique suffisante, les temps d'acquisition sont typiquement de plusieurs semaines. Par ailleurs, atteindre des températures cryogéniques nécessite un équipement approprié, souvent coûteux et encombrant. Au LNHB, un cryostat à dilution, mélange ^3He - ^4He , est utilisé.

Les MMC restent une technique exigeante et récente mais prometteuse. Pour mesurer des spectres de basse énergie, ce sont des détecteurs très performants. Ils permettent d'aller sonder des effets très fins de structure atomique ([36] [12]) qui ne sont pas atteignables avec des techniques « traditionnelles ». Nous verrons que leur utilisation est complémentaire à celle des semi-conducteurs.

Semi-conducteurs

À partir des années 1960, les matériaux semi-conducteurs ont commencé à être couramment utilisés dans de nombreux domaines. En physique nucléaire, ils deviennent rapidement des détecteurs très populaires du fait de leur excellente résolution en énergie. Ils apportent, en spectrométrie β , une véritable alternative à l'utilisation des spectromètres magnétiques et sont dès lors communément employés pour mesurer des spectres β .

Les matériaux solides sont classés en fonction de leur résistivité, c'est-à-dire de leur capacité à s'opposer à la circulation d'un courant électrique, en trois grandes familles :

Solide	Résistivité
Métaux	$< 10^{-5} \Omega \cdot \text{cm}$
Isolants	$> 10^8 \Omega \cdot \text{cm}$
Semi-conducteurs	$10^{-3} \text{ à } 10^4 \Omega \cdot \text{cm}$

Les semi-conducteurs sont donc des corps dont la résistivité est intermédiaire entre celle des conducteurs et celle des isolants. Parmi les matériaux semi-conducteurs utilisés comme détecteurs de particules, le silicium et le germanium sont les plus répandus.

Dans un cristal de silicium ou de germanium, les quatre électrons périphériques situés sur la couche de valence sont mis en commun avec les quatre atomes voisins donnant ainsi la périodicité du réseau. Chaque atome « voit » huit électrons sur sa couche périphérique, qui est désormais pleine. Cette configuration, énergétiquement favorable (structure des gaz rares), est particulièrement stable et confère au matériau ses propriétés mécaniques de solide.

Les atomes isolés possèdent des niveaux d'énergie discrets et chaque niveau peut être dégénéré en sous-niveaux. Dans un solide cristallin, l'influence des atomes voisins conduit à une levée de dégénérescence et à l'élargissement des niveaux atomiques discrets en bandes de niveaux d'énergie permises séparées par des bandes d'énergies interdites (*gaps*). L'existence de ces bandes découle de la périodicité du réseau cristallin. Nous ne détaillerons pas ici la théorie des bandes d'énergie mais une explication approfondie peut être trouvée dans [37].

La bande de valence contient les électrons liés au réseau cristallin. La bande de conduction correspond à des énergies supérieures et elle représente les électrons qui peuvent migrer à travers le cristal. Les électrons présents dans cette bande contribuent à la conductivité électrique du matériau. Les deux bandes sont séparées par la bande d'énergie interdite dont la largeur détermine la classification du matériau comme semi-conducteur ou isolant. En l'absence d'agitation thermique, la bande de valence reste pleine et la bande de conduction complètement vide, il n'y a pas de conduction possible et le semi-conducteur se comporte comme un isolant. Pour un isolant, le gap en énergie est typiquement supérieur ou égal à 5 eV. Pour un semi-conducteur, cette valeur est de l'ordre de 1 eV.

Lorsque la température augmente, les électrons sont excités thermiquement de la bande de valence à la bande de conduction et laissent derrière eux un site vacant (trou). Lors de l'application d'un champ électrique, les électrons de la bande de conduction sont mis en mouvement. Les trous vont quant à eux migrer dans la direction opposée. Le mouvement des porteurs de charges positifs et négatifs contribue à la conductivité du matériau. La probabilité par unité de temps qu'une paire électron-trou soit générée thermiquement est donnée par :

$$p(T) = CT^{3/2} \exp\left(-\frac{E_g}{2kT}\right) \quad (1.16)$$

où T est la température absolue,
 E_g largeur de la bande interdite,
 k la constante de Boltzmann,
 C une constante caractéristique du matériau.

En l'absence de l'application d'un champ électrique, les paires électron-trou finissent par se recombiner. À l'équilibre, la concentration en paires électron-trou est proportionnelle au taux de formation des paires.

Lorsqu'un champ électrique est appliqué au semi-conducteur, les électrons et les trous se mettent en mouvement dans des directions opposées. Dans un semi-conducteur, les mobilités des porteurs positifs et négatifs sont du même ordre et une vitesse de saturation est atteinte pour une valeur de champ suffisante. Les vitesses de saturation sont typiquement de l'ordre de $10^7 \text{ cm}\cdot\text{s}^{-1}$, le temps de collecte des porteurs est donc de 10 ns pour une épaisseur de 0.1 cm. Ceci explique la réponse rapide des semi-conducteurs lors d'une interaction avec une particule ionisante, typiquement de l'ordre de quelques dizaines de nanosecondes.

Lorsqu'une particule chargée interagit dans le cristal semi-conducteur de nombreuses paires électron-trou se forment le long de sa trajectoire. Dans un silicium ou un germanium, l'énergie

nécessaire pour créer une paire électron-trou est d'environ 3 eV. Pour une même énergie initiale, une particule ionisante va créer environ dix fois plus de porteurs de charges dans ce milieu solide que dans un détecteur gazeux. Comme le nombre de porteurs de charge par impulsion est important, les fluctuations statistiques contribuent moins au bruit. À basse énergie, les impulsions peuvent être noyées dans le bruit de la chaîne d'acquisition. Une quantité plus importante de porteurs par impulsion conduit également à un meilleur rapport signal-sur-bruit. Ainsi, la résolution atteignable par un semi-conducteur est bien plus fine que celle des détecteurs gazeux et scintillants.

Un semi-conducteur dit intrinsèque ne comporte aucune impureté. Il s'agit d'un modèle idéal car en réalité il est impossible d'obtenir un matériau parfaitement pur. Le dopage est l'action d'ajouter volontairement des impuretés en petites quantités à un semi-conducteur afin de contrôler la quantité de porteurs de charge libres (e^- , trous) et par conséquent la résistivité. Un matériau P est un semi-conducteur dopé par un élément accepteur d'électrons dont les porteurs de charge majoritaires sont donc les trous. Un matériau N est un semi-conducteur dopé par une impureté qui va fournir un excès d'électrons. Un semi-conducteur extrinsèque seul (N ou P) présente peu d'intérêt, c'est l'association de plusieurs semi-conducteurs dopés qui permet de créer des composants semi-conducteurs. Le plus simple d'entre eux étant la jonction PN (ou diode).

Pour transformer un matériau semi-conducteur en détecteur, il faut pouvoir collecter la charge déposée par la particule ionisante avec une bonne efficacité. Les détecteurs Si et Ge sont basés essentiellement sur le principe de la jonction PN. Lorsque la région dopée P est mise en contact avec la région N, les électrons et les trous diffusent spontanément de part et d'autre de la jonction. L'apparition de charges d'espace de part et d'autre de la jonction conduit à l'établissement d'une différence de potentiel à travers la jonction. À l'équilibre, le champ électrique ainsi établi empêche toute diffusion, créant une zone de déplétion où la concentration en porteurs libres est quasiment nulle. Cette zone déplétée présente des propriétés qui rendent l'utilisation de la jonction PN comme détecteur de particules particulièrement attractive. En effet, les seules charges présentes dans la zone de déplétion sont les sites immobiles donneurs ou accepteurs. Ces charges ne participant pas à la conductivité, la zone de déplétion possède une résistivité très importante en comparaison des bords de la jonction. Lorsqu'une particule ionisante interagit dans la zone de déplétion, les paires électron-trou créées le long de sa trajectoire sont très efficacement diffusées en dehors de cette zone par le champ électrique, et leur mouvement va constituer un signal électrique.

La jonction PN que nous venons de décrire peut fonctionner comme un détecteur, cependant ses performances vont être médiocres. La différence de potentiel spontanément établie à travers la jonction est insuffisante pour que les porteurs diffusent très rapidement. Par conséquent, des phénomènes de recombinaison affectent les paires électron-trou ce qui conduit à une collection des charges incomplète. Pour remédier à ce problème, une tension inverse est appliquée à la jonction. Lors de l'application de ce champ électrique externe, la taille de la zone de déplétion augmente en fonction de la tension. Le volume actif d'un détecteur basé sur une jonction PN, à laquelle une tension inverse est appliquée, varie en fonction de la valeur de cette dernière.

Les propriétés des semi-conducteurs Si et Ge remplissent un grand nombre des exigences de la spectrométrie β , qui ont été listées au paragraphe 1.2.4. Ils ont une résolution en énergie bien supérieure à celle des détecteurs à ionisation de gaz ou des scintillateurs et une réponse linéaire. Si la source à mesurer est intercalée entre deux détecteurs, un angle solide de presque 4π sr peut être atteint. Dans ce type de configuration, la compacité des semi-conducteurs présente un avantage considérable. Enfin, lorsqu'ils sont polarisés, leur temps de réponse est court ce qui permet de mesurer des sources d'une activité de quelques kBq sans craindre des temps morts

excessifs tout en conservant des temps de comptage raisonnables (c'est-à-dire de quelques jours).

1.2.5 Propriétés d'un semi-conducteur au silicium

Pour mesurer les particules chargées, les détecteurs silicium sont préférés aux détecteurs Ge. Les détecteurs germanium ont pourtant une résolution en énergie bien plus fine que celle des détecteurs silicium. Cependant, il ne s'agit plus ici d'un critère déterminant. En effet, les particules chargées, et en particulier les électrons, vont interagir même dans des épaisseurs extrêmement fines de matériaux. Or les détecteurs germanium commerciaux, généralement dédiés à la spectrométrie γ , sont de type ultra-pur. Ces détecteurs sont donc conditionnés sous vide dans des cylindres hermétiques afin d'éviter qu'ils ne se dégradent au contact de l'air. Sur la face avant du cylindre se trouve une fenêtre d'entrée en béryllium d'une épaisseur d'une centaine de μm . Une telle épaisseur de béryllium est suffisante pour arrêter des électrons de 120 keV, il est donc absolument inenvisageable d'utiliser ce type de détecteur pour mesurer des spectres β .

De plus, le facteur de rétrodiffusion des électrons sur la surface d'entrée du détecteur est dépendant du numéro atomique du matériau et de l'énergie de la particule. Ce phénomène sera d'autant plus important que le Z du matériau est élevé et l'énergie de l'électron faible. Le numéro atomique du silicium ($Z = 14$) étant inférieur à celui du germanium ($Z = 32$) les électrons diffuseront beaucoup moins sur la surface d'entrée d'un détecteur au silicium.

1.2.6 Spectromètres β utilisant des semi-conducteurs silicium

Nous avons montré dans les paragraphes précédents que les semi-conducteurs au silicium sont des détecteurs de choix pour mesurer des spectres β . La majeure partie des publications portant sur la mesure de spectres β avec des détecteurs silicium sont parues dans les années 1965-1975. Les dispositifs expérimentaux les plus aboutis couplent deux détecteurs silicium positionnés face à face offrant ainsi une géométrie de mesure de 4π sr [38, 39, 40, 41, 42]. En pratique, l'angle solide n'est pas exactement de 4π sr. En effet, un léger espace est laissé entre les détecteurs afin de pouvoir y insérer une source sans risquer de contaminer les surfaces des détecteurs. Néanmoins, si cette distance est faible les déformations engendrées par d'éventuelles fuites sont négligeables. Ces dispositifs présentent deux grands avantages : un rendement de détection élevé et, surtout, ils contournent le problème de la rétrodiffusion sur la face d'entrée des détecteurs. Si un même électron dépose de l'énergie dans les deux détecteurs, les signaux en provenance des deux détecteurs sont simplement sommés. Pour optimiser la résolution les détecteurs sont refroidis et placés dans une chambre à vide. Certains de ces dispositifs ont été améliorés en ajoutant des compteurs scintillants de type Na(I) permettant ainsi de faire de la détection en coïncidence afin de mesurer proprement des émetteurs β à transitions multiples.

Les déformations expérimentales des spectres mesurés sont très faibles, et, souvent, seule la résolution finie est prise en compte avant d'extraire un facteur de forme expérimental indépendant de la mesure.

Les résultats obtenus avec ces spectromètres montrent qu'il s'agit d'une technique simple, fiable et que ces instruments sont très performants pour étudier la désintégration β en mesurant des spectres.

L'objectif principal de cette thèse est de développer un spectromètre optimisé pour la mesure des spectres β . Il aurait été souhaitable de réaliser un système couplant deux détecteurs. Cependant, pour des raisons de délais et de coûts, nous avons choisi de nous orienter vers un dispositif plus simple ne fonctionnant qu'avec un seul détecteur silicium. Les déformations ex-

périmentales, en particulier les effets de rétrodiffusion, peuvent être importantes et il est alors nécessaire de corriger les spectres mesurés avant d'espérer extraire une information physique de la mesure. Nous avons cependant veillé à imaginer un système suffisamment modulable pour envisager des évolutions.

Ce chapitre avait pour but de préciser les applications qui motivent ce travail de thèse et de servir de « boîte à outils » pour le reste du manuscrit. Les points importants à retenir sont :

- les applications requérant des spectres β de haute précision sont nombreuses et diversifiées,
- les performances et les caractéristiques des semi-conducteurs au silicium en font des détecteurs de choix pour la spectrométrie β .

Bibliographie

- [1] BIPM. Vocabulaire international de métrologie - concepts fondamentaux et généraux et termes associés. *JCGM*, 200 : 2012.
- [2] Decay data evaluation project. <http://www.nucleide.org/DDEP.htm>.
- [3] M.-M. Bé, B. Duchemin, J. Lamé, C. Morillon, F. Piton, E. Browne, V. Chechev, R. Helmer, and E. Schönfeld. *Table de Radionucléides*, volume 1. Commissariat à l'Énergie Atomique, DAMRI/LPRI BP 52, F-91193 Gif-sur-Yvette Cedex, France, 1999.
- [4] M.-M. Bé, V. Chisté, C. Dulieu, E. Browne, V. Chechev, N. Kuzmenko, R. Helmer, A. Nichols, E. Schönfeld, and R. Dersch. *Table of Radionuclides*, volume 1 of *Monographie BIPM-5*. Bureau International des Poids et Mesures, Pavillon de Breteuil, F-92310 Sèvres, France, 2004.
- [5] M.-M. Bé, V. Chisté, C. Dulieu, E. Browne, V. Chechev, N. Kuzmenko, R. Helmer, A. Nichols, E. Schönfeld, and R. Dersch. *Table of Radionuclides*, volume 2 of *Monographie BIPM-5*. Bureau International des Poids et Mesures, Pavillon de Breteuil, F-92310 Sèvres, France, 2004.
- [6] M.-M. Bé, V. Chisté, C. Dulieu, E. Browne, C. Baglin, V. Chechev, N. Kuzmenko, R. Helmer, F. Kondev, D. MacMahon, and K. B. Lee. *Table of Radionuclides*, volume 3 of *Monographie BIPM-5*. Bureau International des Poids et Mesures, Pavillon de Breteuil, F-92310 Sèvres, France, 2006.
- [7] M.-M. Bé, V. Chisté, C. Dulieu, E. Browne, V. Chechev, N. Kuzmenko, F. Kondev, A. Luca, M. Galán, A. Pearce, and X. Huang. *Table of Radionuclides*, volume 4 of *Monographie BIPM-5*. Bureau International des Poids et Mesures, Pavillon de Breteuil, F-92310 Sèvres, France, 2008.
- [8] M.-M. Bé, V. Chisté, C. Dulieu, X. Mougeot, E. Browne, V. Chechev, N. Kuzmenko, F. Kondev, A. Luca, M. Galán, A. L. Nichols, A. Arinc, and X. Huang. *Table of Radionuclides*, volume 5 of *Monographie BIPM-5*. Bureau International des Poids et Mesures, Pavillon de Breteuil, F-92310 Sèvres, France, 2010.
- [9] M.-M. Bé, V. Chisté, C. Dulieu, X. Mougeot, V. Chechev, N. Kuzmenko, F. Kondev, A. Luca, M. Galán, A. L. Nichols, A. Arinc, A. Pearce, X. Huang, and B. Wang. *Table of Radionuclides*, volume 6 of *Monographie BIPM-5*. Bureau International des Poids et Mesures, Pavillon de Breteuil, F-92310 Sèvres, France, 2011.
- [10] M.-M. Bé, V. Chisté, C. Dulieu, X. Mougeot, V.P. Chechev, F. G. Kondev, A. L. Nichols, X. Huang, and B. Wang. *Table of Radionuclides*, volume 7 of *Monographie BIPM-5*. Bureau International des Poids et Mesures, Pavillon de Breteuil, F-92310 Sèvres, France, 2013.
- [11] R. Broda, P. Cassette, and K. Kossert. Radionuclide metrology using liquid scintillation counting. *Metrologia*, 44(4) :S36–S52, 2007.
- [12] C. Le-Bret. *Développement de Calorimètres Métalliques Magnétiques pour la Spectrométrie Bêta*. PhD thesis, ED534 MIPEGE, 2012.
- [13] W. M. van Wyngaardt, B. R. S. Simpson, M. J. van Staden, and J. Lubbe. Absolute standardization of ^{241}Pu by the TDCR technique and effect of the beta spectral shape. *Appl. Radiat. Isotopes*, 70(9) :2188–2194, 2012. Proceedings of the 18th International Conference on Radionuclide Metrology and its Applications.
- [14] C. A. Boswell and M. W. Brechbiel. Development of radioimmunotherapeutic and diagnostic antibodies : an inside-out view. *Nucl. Med. Biol.*, 34(7) :757–778, 2007.
- [15] M. Bardies and J.-F. Chatal. Absorbed doses for internal radiotherapy from 22 beta-emitting radionuclides : beta dosimetry of small spheres. *Phys. Med. Biol.*, 39(6) :961, 1994.

- [16] A. I. Kassis. The amazing world of auger electrons. *Int. J. Radiat. Biol.*, 80(11-12) :789–803, 2004.
- [17] A. L. Nichols. Beta-decay and decay heat. *International Nuclear Data Committee - Nuclear Data Section*, INDC(NDS)-0483, 2005.
- [18] J. C. Hardy, L. C. Carraz, B. Jonson, and P. G. Hansen. The essential decay of pandemonium : A demonstration of errors in complex beta-decay schemes. *Phys. Lett. B*, 71(2) :307–310, 1977.
- [19] International Atomic Energy Agency (IAEA), editor. *Final report : Focused workshop on antineutrino detection for safeguards applications*, IAEA Headquarters, Vienna, 28-30 October 2008.
- [20] F. Wauters, I. Kraev, D. Zákoucký, M. Beck, M. Breitenfeldt, V. De Leebeeck, V. V. Golovko, V. Yu. Kozlov, T. Phalet, S. Roccia, G. Soti, M. Tandecki, I. S. Towner, E. Traykov, S. Van Gorp, and N. Severijns. Precision measurements of the ^{60}Co β -asymmetry parameter in search for tensor currents in weak interactions. *Phys. Rev. C*, 82 :055502, Nov 2010.
- [21] K. N. Abazajian *et al.* Light sterile neutrinos : A white paper. *arXiv*, 1204.5379, 2012.
- [22] G. Mention, M. Fechner, Th. Lasserre, Th. A. Mueller, D. Lhuillier, M. Cribier, and A. Letourneau. Reactor antineutrino anomaly. *Phys. Rev. D*, 83 :073006, Apr 2011.
- [23] M. Cribier, M. Fechner, Th. Lasserre, A. Letourneau, D. Lhuillier, G. Mention, D. Franco, V. Kornoukhov, and S. Schönert. Proposed search for a fourth neutrino with a PBq antineutrino source. *Phys. Rev. Lett.*, 107 :201801, Nov 2011.
- [24] E. J. Konopinski. *The Theory of Beta Radioactivity*. Oxford University Press, 1966.
- [25] P. Auger. Sur les rayons β secondaires produits dans un gaz par des rayons X. *C.R.A.S.*, 177 :169–171, 1923.
- [26] R. D. Evans. *Atomic Nucleus*. Tata McGraw-Hill Publishing Compagny Ltd, 1955.
- [27] M. J. Berger, J. S. Coursey, M. A. Zucker, and J. Chang. *ESTAR, PSTAR, and ASTAR : Computer Programs for Calculating Stopping-Power and Range Tables for Electrons, Protons, and Helium Ions*. version 1.2.3. National Institute of Standards and Technology, Gaithersburg, MD, 2005.
- [28] L. Katz and A. S. Penfold. Range-energy relations for electrons and the determination of beta-ray end-point energies by absorption. *Rev. Mod. Phys.*, 24 :28–44, Jan 1952.
- [29] H. Behrens and L. Szybisz. *Shapes of Beta Spectra*. Physics data. ZAED, 1976.
- [30] K. Siegbahn. *Beta- and Gamma-ray spectrometry*. North-Holland Publishing Compagny, 1955.
- [31] A. Ll. Hughes and V. Rojansky. On the analysis of electronic velocities by electrostatic means. *Phys. Rev.*, 34(2) :284–290, Jul 1929.
- [32] D. R. Hamilton, W. P. Alford, and L. Gross. Upper limits on the neutrino mass from the tritium beta spectrum. *Phys. Rev.*, 92 :1521–1525, Dec 1953.
- [33] R. C. Salgo and H. H. Staub. Re-determination of the β -energy of tritium and its relation to the neutrino rest mass and the gamow-teller matrix element. *Nucl. Phys. A*, 138(2) :417–428, 1969.
- [34] G. C. Hanna and B. Pontecorvo. The β -spectrum of ^3H . *Phys. Rev.*, 75 :983–984, Mar 1949.
- [35] M. Loidl, M. Rodrigues, C. Le-Bret, and X. Mougeot. Beta spectrometry with metallic magnetic calorimeters. *Appl. Radiat. Isotopes*, 87(0) :302–305, 2014. Proceedings of the 19th International Conference on Radionuclide Metrology and its Applications 17-21 June 2013, Antwerp, Belgium.

- [36] X. Mougeot, M.-M. Bé, C. Bisch, and M. Loidl. Evidence for the exchange effect in the β decay of ^{241}Pu . *Phys. Rev. A*, 86 :042506, Oct 2012.
- [37] C. Kittel. *Physique de l'état solide*. Science Sup. Dunod, Paris, 8 edition, 1998.
- [38] H. J. Gils, D. Flothmann, R. Löhken, and W. Wiesner. A $4\pi\beta-\gamma$ coincidence spectrometer using Si(Li) and NaI(Tl) detectors. *Nucl. Instrum. Methods*, 105(2) :179–188, 1972.
- [39] E. H. Spejewski. Beta-spectrum shape measurements with a 4π semiconductor spectrometer. *Nucl. Phys.*, 82(3) :481–498, 1966.
- [40] E. B. Shera, M. P. Bedesem, and K. J. Casper. Superconducting magnet beta-ray spectrometer. *Rev. Sci. Instrum.*, 38(8) :1110–1114, 1967.
- [41] V. Andersen and C. J. Christensen. A $4\pi\beta$ -spectrometer with Li(Si) counters. *Nucl. Instrum. Methods*, 61(1) :77–83, 1968.
- [42] J. M. Trischuk and E. Kankeleit. The beta spectrum of ^{207}Tl . *Nucl. Phys. A*, 90(1) :33–40, 1967.

Chapitre 2

La désintégration β et le calcul des spectres en énergie

2.1 Forme des spectres β

La matière qui compose l'Univers est constituée de particules dites élémentaires qui interagissent par l'intermédiaire des quatre interactions fondamentales que sont la gravitation, l'interaction électromagnétique, ainsi que les interactions nucléaires forte et faible.

À l'échelle atomique et nucléaire, la cohésion de la matière est assurée par les interactions nucléaire forte et électromagnétique. Les nucléons (protons et neutrons), constituants du noyau, sont maintenus ensemble par un effet résiduel de l'interaction nucléaire forte qui agit à un niveau subnucléaire. Le noyau, quant à lui, interagit par interaction électromagnétique avec les électrons du cortège électronique, chargés négativement, pour former un atome. Ceci n'est qu'une des manifestations de l'interaction électromagnétique qui intervient également lors des échanges d'énergie par rayonnement électromagnétique.

L'interaction faible est responsable de l'instabilité de nombreux noyaux et particules. Elle permet à tous les fermions d'échanger de l'énergie, de la masse et de la charge électrique - par l'intermédiaire des bosons vecteurs W^+, W^- et Z^0 - pouvant ainsi changer de famille et de saveur. Par exemple, dans un noyau présentant un excédent de neutrons, une configuration énergétique plus favorable peut être atteinte lors de la transformation d'un des neutrons en proton par l'échange d'un boson W^- qui va se désintégrer immédiatement en un électron et un anti-neutrino. Nous venons ici de décrire un des mécanismes de la désintégration β qui est la manifestation la plus évidente de l'interaction faible. Cette désintégration à trois corps explique l'observation expérimentale de spectres à valeurs d'énergies continues.

La mesure des spectres β avec une précision toujours plus fine a permis de contraindre et de guider la forme de l'interaction faible jusqu'à sa forme actuelle. Des règles de sélection émergent de la forme de l'interaction. Elles permettent de classer les transitions β en fonction des variations de spins et de parité entre les niveaux initial (J, π_i) et final (J', π_f) des états nucléaires d'une transition donnée. Ces règles sont les suivantes :

$L = 0, 1$	$\pi_i \cdot \pi_f = +1$	transitions permises
$L = 0, 1$	$\pi_i \cdot \pi_f = -1$	transitions premières interdites non uniques
$L > 1$	$\pi_i \cdot \pi_f = (-1)^L$	transitions $L^{\text{ième}}$ interdites non uniques
	$\pi_i \cdot \pi_f = (-1)^{(L-1)}$	transitions $(L - 1)^{\text{ième}}$ interdites uniques

avec $L = \Delta J = |J - J'|$.

Dans ce travail expérimental, nous cherchons à mesurer des spectres avec une grande précision afin de tester les prédictions théoriques de spectres β . Les spectres β correspondent à la probabilité d'émission N pour une énergie située entre W et $W + dW$, qui est proportionnelle à :

$$N(W)dW \sim pW(W_0 - W)^2 F(Z, W)C(W)dW \quad (2.1)$$

où $W = E/m_0c^2 + 1$ l'énergie totale de l'électron,
 E l'énergie cinétique de l'électron,
 m_0c^2 la masse de l'électron,
 $p = \sqrt{W^2 - 1}$ son impulsion,
 W_0, E_0 les valeurs maximales de W, E ,
 Z le numéro atomique du noyau fils,
 A le nombre de masse.

$pW(W_0 - W)^2$ est le facteur statistique. Il correspond à la répartition de l'impulsion entre l'électron et le neutrino.

$F(\mathbf{Z}, \mathbf{W})$ est appelée la fonction de Fermi. Elle regroupe l'ensemble des corrections coulombiennes : la modélisation de la charge du noyau, la modélisation du potentiel coulombien, des corrections d'écrantage dues au nuage électronique, et des corrections radiatives. Cette fonction est tabulée dans [1] et [2]. Son évaluation nécessite le calcul des fonctions d'onde de l'électron. Ces aspects seront détaillés dans la section 2.6.

$C(\mathbf{W})$ est le facteur de forme. Il permet de rendre compte de la différence de forme entre des transitions de degrés d'interdiction différents. Nous donnerons les expressions de ces facteurs de forme pour différents types de transitions telles qu'elles ont été définies par Behrens et Szybisz dans [3] en section 2.5.

Pour comprendre l'origine de ces différents facteurs, nous allons dans un premier temps aborder la théorie de la désintégration β formulée par Fermi. Cette première approche nous permettra d'explicitier le facteur statistique ainsi que la fonction de Fermi, et d'introduire les notions de transitions permises et interdites.

2.2 Théorie de Fermi

2.2.1 Un spectre continu

En 1914, Chadwick utilisa un spectromètre magnétique couplé à un compteur à gaz pour étudier l'émission β du ^{214}Pb . Le spectre continu qui en résulta surpris la communauté scientifique, et son interprétation fut sujette à de nombreuses controverses. En effet, les physiciens de l'époque s'attendaient à un spectre de raies à l'instar des mesures d'émission γ ou α . Une hypothèse courante, soutenue notamment par Lise Meitner, expliquait que les électrons étaient tous émis avec l'énergie maximale disponible pour la transition (E_{max}), et que cette énergie était ensuite dégradée lors d'interactions secondaires par collisions avec les atomes du milieu constituant la source. En 1925, Eliss et Wooster apportèrent la preuve que les particules β étaient émises avec une énergie comprise entre 0 et E_{max} . Leur expérience [4] consista à absorber dans un calorimètre tous les rayonnements primaires et secondaires émis par une source de ^{210}Bi . L'élévation de température qui fût mesurée correspondait à l'énergie moyenne du spectre

et non à E_{\max} , comme ça aurait été le cas si toutes les particules primaires étaient émises à l'énergie E_{\max} .

Le principe physique de la conservation de l'énergie fut mis à mal par la continuité des spectres β et plongea les physiciens dans l'embarras. Au début des années 1930, afin de sauver ce principe fondamental que Bohr était prêt à abandonner, Pauli émit l'idée de l'existence d'une particule indétectable qui emporterait la fraction d'énergie manquante. En effet, du fait de la répartition de l'impulsion entre ces trois corps, la conservation de l'énergie-impulsion implique un spectre en énergie continu pour chaque corps. Le concept d'une désintégration à trois corps avec l'émission d'une particule β et d'une particule qui sera nommée plus tard *neutrino* était né. La première formulation théorique de la désintégration β est donnée par Fermi en 1934, dans un désormais célèbre article envoyé au journal *Zeitschrift für Physik* [5].

Il faudra attendre 1956 pour que la preuve de l'existence du neutrino soit apportée par Reines et Cowan [6]. En utilisant le flux de neutrinos fournis par le réacteur nucléaire de Savannah River (États-Unis), ils réussirent à mesurer la section efficace de la réaction : $\bar{\nu} + p \rightarrow n + e^+$. Le comportement des neutrinos montre de manière évidente que leur masse est soit nulle, soit extrêmement faible. De très nombreuses expériences ont tenté de mesurer cette masse. Le spectre du tritium en spectrométrie β a, en particulier, été mesuré dans ce but. Ces expériences ont permis d'abaisser au fur et à mesure la borne supérieure de la masse possible. En 1998, l'expérience Super-Kamiokande met en évidence pour la première fois le phénomène d'oscillation des neutrinos, ce qui établit que le neutrino a une masse non nulle bien qu'extrêmement faible. La masse du neutrino électronique est actuellement inférieure à $2.5 \text{ eV}/c^2$.

En spectrométrie β , l'approximation usuelle consiste à considérer la masse du neutrino nulle. Cette dernière influence la forme du spectre au voisinage de l'énergie maximale, là où la statistique de comptage est faible. Nous n'y sommes donc pas sensible, et $m_\nu = 0$ est une bonne approximation.

2.2.2 Interaction de Fermi

Dans la première description théorique de la désintégration β , Fermi fit l'hypothèse d'une nouvelle interaction de contact entre les quatre fermions que sont le proton, le neutron, l'électron et l'anti-neutrino. Il supposait que l'interaction était de courte portée, puisqu'elle n'avait pas été observée au niveau macroscopique. Il s'agit de la première formulation de l'interaction faible.

L'existence du neutrino est l'hypothèse de base de Fermi. Il adopte également le point de vue de Heisenberg en considérant que le noyau n'est constitué que de particules lourdes : les protons et les neutrons. Par conséquent, les particules légères que sont les β et les neutrinos ne préexistent pas dans le noyau. Lors d'une désintégration β , nous assistons à la création ou à l'annihilation de particules instantanément. Cette situation rappelle les phénomènes d'émission et d'absorption des photons. Sans pouvoir spécifier autrement la nature de l'interaction faible, Fermi développa son formalisme par analogie avec l'interaction électromagnétique. Il postula que l'interaction pouvait être exprimée comme le produit de deux courants « faibles » : le courant leptonique (e, ν) et le courant baryonique (p, n). Le courant baryonique, associé à la transformation d'un neutron en proton, est l'analogue du quadri-courant électromagnétique et le courant leptonique correspond au quadri-potentiel. Le hamiltonien de l'interaction s'écrit alors :

$$H = \sum_n G J_\mu^+(\mathbf{r}_n) \cdot L_\mu(\mathbf{r}_n) \quad (2.2)$$

- où J_μ est le courant associé à la transformation du neutron en proton,
 L_μ est le "potentiel vecteur" du champ leptonique émis,
 \mathbf{r}_n est la position de la n^{ième} particule,
 G est la constante de couplage qui mesure l'intensité de l'interaction.

Les courants prennent la forme de covariants bilinéaires, combinaisons linéaires des composantes des spineurs de Dirac attribués à chaque particule ($\psi_n, \psi_p, \psi_e, \psi_\nu$) et de produits obtenus à partir des matrices de Dirac (γ_μ).

$$J_\mu = \bar{\psi}_p \gamma_\mu \psi_n \quad L_\mu = \bar{\psi}_e \gamma_\mu \psi_\nu \quad (2.3)$$

Ces courants se transforment comme un quadrivecteur lors d'une transformation de Lorentz, conformément à l'hypothèse de Fermi d'une interaction vectorielle ponctuelle comme en électromagnétisme.

L'élément de matrice de la décroissance d'un neutron en proton avec l'émission d'un électron et d'un anti-neutrino correspondant à la transition d'un état initial i du noyau vers un état final f , a la forme suivante :

$$H_{fi} = G \int [\bar{\psi}_p(\mathbf{r}) \gamma_\mu \psi_n(\mathbf{r})] [\bar{\psi}_e(\mathbf{r}) \gamma_\mu \psi_\nu(\mathbf{r})] d\mathbf{r} \quad (2.4)$$

où les leptons peuvent être décrits par des fonctions d'onde planes, solution de l'équation de Dirac, normalisées au volume (V) :

$$\int \bar{\psi} \psi d\mathbf{r} = 1, \quad \bar{\psi}_e(\mathbf{r}) = \frac{e^{i\mathbf{p}_e \cdot \mathbf{r}}}{\sqrt{V}} \bar{u}_e \quad \psi_\nu(\mathbf{r}) = \frac{e^{i\mathbf{p}_\nu \cdot \mathbf{r}}}{\sqrt{V}} u_\nu \quad (2.5)$$

où \bar{u}_e et u_ν sont les bi-spineurs de Dirac décrivant les leptons, et p_e, p_ν leurs quantités de mouvement.

Pour calculer l'élément de matrice de la transition, il faut intégrer sur le volume du noyau puisque en dehors les fonctions d'onde nucléaires sont nulles.

En faisant l'hypothèse que la vitesse des protons et des neutrons dans le noyau est faible devant c (approximation non-relativiste), l'interaction se simplifie et l'élément de matrice s'écrit alors :

$$H_{fi} = \frac{G}{V} \int (\bar{\psi}_p \psi_n) (\bar{\psi}_e \psi_\nu) d\mathbf{r} \quad (2.6)$$

Seule la partie temporelle des quadri-vecteurs intervient dans l'interaction.

En utilisant l'approximation en onde plane, le champ leptonique est décrit par le produit des deux exponentielles. Pour des électrons et des neutrinos d'environ 1 MeV $\frac{1}{\hbar}(p_e + p_\nu) \approx 10^{11} \text{ cm}^{-1}$ et pour $R \approx 1 \text{ fm}$, $\frac{1}{\hbar}(p_e + p_\nu)R$ sera de l'ordre de 10^{-2} . L'exponentielle peut être développée selon :

$$\exp \left[-\frac{i}{\hbar}(\mathbf{p}_e + \mathbf{p}_\nu) \cdot \mathbf{r} \right] \simeq 1 - \frac{i}{\hbar}(\mathbf{p}_e + \mathbf{p}_\nu) \cdot \mathbf{r} - \frac{1}{2} \left[-\frac{i}{\hbar}(\mathbf{p}_e + \mathbf{p}_\nu) \cdot \mathbf{r} \right]^2 + \dots \quad (2.7)$$

Les termes successifs du développement décroissent donc très rapidement. Dans l'approximation non-relativiste et pour des particules sans spin, l'ordre du développement est associé au moment angulaire orbital (l) emporté par le champ radiatif. Dans ce cas, l'ordre croissant du moment cinétique orbital coïncide avec une décroissance de l'intensité des termes du développement. L'ordre $l = 0$ est associé à des transitions dites « permises » car très probables par rapport aux transitions dites « interdites » ($l \geq 1$).

Finalement, en ne considérant que le premier terme, l'élément de matrice (2.6) se résume, pour une transition permise à :

$$H_{fi} = \frac{GM_{fi}}{V} \quad (2.8)$$

où $M_{fi} = \int (\bar{\psi}_p \psi_n) d\mathbf{r}$ est l'élément de matrice nucléaire. Ce terme dépend de la structure nucléaire du noyau et peut être difficile à déterminer.

2.2.3 Spectre statistique

La constante de couplage de l'interaction est faible. Par conséquent, la théorie des perturbations de la mécanique quantique peut être utilisée pour calculer la probabilité de transition en fonction du temps, d'un état i à un état f , donnant lieu dans le cas qui nous intéresse à l'émission d'un électron d'énergie E_e . La probabilité est donnée par la règle d'or de Fermi,

$$P(E_e)dE_e = \frac{2\pi}{\hbar} |H_{fi}|^2 \frac{dn}{dE_0} \quad (2.9)$$

où $\frac{dn}{dE_0}$ est la densité des états finaux par unité d'énergie.

La probabilité qu'un électron présente une impulsion p à dp près est proportionnelle à $4\pi p_e^2 dp$, qui correspond au volume élémentaire d'une couche sphérique dans l'espace des impulsions d'épaisseur dp ; de même pour le neutrino. La proportion de paires électron-neutrino présentant les impulsions p_e et p_ν est donc, à un facteur de normalisation près :

$$dn \propto 16\pi^2 p_e^2 dp_e p_\nu^2 dp_\nu \quad (2.10)$$

Si la masse du neutrino est nulle alors pour une énergie constante de l'électron, on a

$$E_\nu = cp_\nu, dE_\nu = \frac{c^2 p_\nu}{E_\nu} dp_\nu \text{ et } dE_0 = dE_\nu,$$

Ici, $E_0 = E_e + E_\nu$ correspond à l'énergie maximale de l'électron dans la désintégration β . Finalement, la densité d'état est égale à :

$$\frac{dn}{dE_0} = \frac{V^2}{4\pi^4 \hbar^5 c^5} p_e E_e (E_0 - E_e)^2 dE_e \quad (2.11)$$

En utilisant les unités naturelles $\hbar = c = m = 1$ et exprimant les quantités en unité de masse ($E = \frac{E_e}{m \cdot c^2}, p = \frac{p_e}{m \cdot c}, E_0 = \frac{E_0}{m \cdot c^2}$), nous obtenons pour la probabilité d'émission d'un électron d'énergie E :

$$P(E)dE = \frac{m \cdot c^2}{\hbar} \frac{G^2}{2\pi^3} |M_{fi}|^2 p E (E_0 - E)^2 dE. \quad (2.12)$$

L'équation (2.12), dont le spectre est représenté sur la figure 2.1, reproduit bien le spectre continu caractéristique d'une transition β .

La comparaison avec l'expérience montre cependant que la correspondance peut être améliorée si l'influence du champ coulombien du noyau ainsi que du cortège électronique sur la particule β est considérée. Pour tenir compte de la déformation du spectre statistique engendrée par ces effets, la fonction de Fermi ($F(Z, W)$) est multipliée à l'équation (2.12). Nous reviendrons sur ce point lorsque nous aborderons plus en détail les questions liées à la dynamique de l'électron.

Transition de Fermi

L'élément de matrice M_{fi} dépend du recouvrement du champ nucléaire avant et après la transition. Il a une valeur non nulle uniquement si les états nucléaires initiaux et finaux ont le même spin. Cependant, des transitions impliquant un changement de spin ont été mesurées.

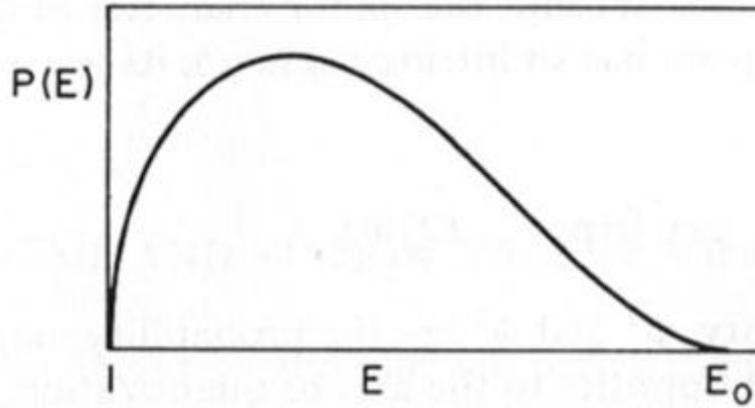


FIGURE 2.1 – Spectre statistique correspondant à la répartition de l’impulsion entre l’électron et l’anti-neutrino (cf. éq. 2.12).

C’est par exemple le cas de la désintégration β^- de ${}^6\text{He}$ ($0^+ \rightarrow 1^+$). Les transitions de ce type ne peuvent pas être induites par l’interaction (2.6) introduite par Fermi. Il faut donc généraliser cette dernière afin de tenir compte des variations de spin.

2.2.4 Règles de sélection des transitions permises

Gamov et Teller [7] modifièrent la forme de l’interaction pour tenir compte des spins des particules. Nous ne reviendrons pas ici sur la description de la forme de l’interaction, qui peut être trouvée dans de nombreux ouvrages [8, 9, 10]. Précisons tout de même que nous sommes toujours dans un traitement qui découle de l’analogie avec l’électromagnétisme et qui ne tient pas compte de l’ensemble des invariants relativistes.

Les leptons sont des particules de spin $1/2$. Les deux spins d’une paire électron-neutrino peuvent être combinés pour donner un spin total égal à 0 (forme singulet) ou 1 (forme triplet). Les particules légères peuvent être émises soit dans la forme singulet soit dans la forme triplet, ou dans une combinaison des deux. En analysant les conséquences de ces différentes possibilités, des règles de sélection peuvent être établies pour savoir quelle type d’émission a effectivement eu lieu.

Si la paire est émise sous la forme singulet, le seul moment cinétique emporté par la paire de leptons est du moment cinétique orbital qui est nul pour une transition permise. En vertu du principe de la conservation du moment cinétique, le spin du noyau père doit donc être égal à celui du noyau fils. De plus, puisqu’à la fois l’électron et le neutrino sont émis dans un état s ($l = 0$) qui est de parité paire, il ne peut pas y avoir de changement de parité des fonctions d’onde nucléaires. Dans le cas d’une émission singulet, les règles de sélection de Fermi pour une transition permise sont donc :

$$\Delta J = 0 \quad \pi_i = \pi_f \quad (2.13)$$

Si la paire est émise sous la forme triplet, une règle de sélection différente est obtenue. Comme il s’agit d’une transition permise, le moment cinétique orbital reste nul et le moment cinétique total correspond à la somme des deux particules, qui vaut 1. Puisque la parité n’est pas impliquée dans les spins, la règle reste la même que précédemment. Nous obtenons donc dans le cas d’une émission triplet les règles de sélection de Gamov-Teller pour les transitions permises :

$$\Delta J = \pm 1, 0 \quad \pi_i = \pi_f \quad (2.14)$$

Les transition Gamov-Teller $0 \rightarrow 0$ sont cependant impossibles.

La théorie de Fermi, enrichie des apports de Gamov-Teller, s'avère performante pour décrire la forme globale des spectres β - un spectre statistique déformé par les effets coulombiens. Elle permet de plus d'introduire les notions de transitions permises et interdites et les règles de sélection de Gamov et Teller. L'ensemble de ces résultats a néanmoins été obtenu dans un cadre non-relativiste. Cette approximation importante a l'avantage de simplifier grandement le problème. Cependant, les énergies typiquement mises en jeu dans les transitions β sont de l'ordre de quelques MeV. Les électrons et les neutrinos étant des particules légères, elles sont relativistes dans ce domaine en énergie et doivent être traitées comme telles.

2.3 Violation de la parité et théorie V-A

L'interaction (2.4), qui a la forme d'une interaction entre deux courant vecteurs ($\bar{\psi}\gamma_\mu\psi$), découle d'une analogie avec l'interaction électromagnétique. Les outils de la théorie des champs et de seconde quantification sont nécessaires pour donner une description quantique de l'interaction électromagnétique. Cependant, cette description découle directement de la formulation classique de la théorie. Il n'existe pas d'analogie classique à la désintégration β pour contraindre la forme de l'interaction. L'interaction proposée par Fermi ne repose donc que sur cette analogie avec l'électromagnétisme sans aucune autre justification.

Si aucune autre hypothèse que celle d'une interaction ponctuelle de deux courants faibles, invariants par transformation de Lorentz, n'est considérée alors le hamiltonien le plus général est une combinaison linéaire des 16 formes bilinéaires indépendantes ($\bar{\psi}O_i\psi$) permises par l'équation de Dirac ($4^2 = 16$, 2 spineurs de Dirac à 4 composantes chacun). Les opérateurs O_i sont listés dans le tableau 2.1. Ils peuvent être regroupés en 5 classes en fonction de leurs propriétés de transformation, et ainsi cinq différentes densités d'interaction peuvent être formées.

Opérateur O_i	Nombres de matrices indépendantes	Propriétés de transformation des formes bilinéaires $\bar{\psi}O_i\psi$
1	1	scalaire (S)
γ_μ	4	vectorielle (V)
$\gamma_\mu\gamma_\nu$	6	tensorielle (T)
$\gamma_\mu\gamma_5$	4	pseudo-vectorielle (A)
$\gamma_1\gamma_2\gamma_3\gamma_4 = \gamma_5$	1	pseudo-scalaire (P)

TABLE 2.1 – Tableau récapitulatif des formes bilinéaires invariantes par transformation de Lorentz, avec leurs propriétés de transformation. Les matrices qui se transforment de la même manière sont regroupées sous une même classe.

Le hamiltonien prend la forme suivante :

$$H_i = g_i (\bar{\psi}_p O_i \psi_n) (\bar{\psi}_e O_i \psi_\nu) + h.c., \quad (2.15)$$

$$H = g \sum_i C_i H_i \quad \text{et} \quad g_i = g C_i \quad \text{et} \quad \sum_i |C_i|^2 = 1. \quad (2.16)$$

où $i = S, V, T, A, P$ représente les cinq modes d'interaction et C_i l'intensité relative de chaque mode d'interaction.

La question est de savoir si tous ces opérateurs participent à l'interaction. Seule l'expérience peut apporter une réponse à cette question. Si les effets de certains de ces opérateurs ne s'observent pas, c'est qu'ils ne participent pas ou peu à l'interaction.

Une nouvelle modification de la forme de l'interaction s'avéra nécessaire quand la non-conservation de la parité fut mise en évidence par Wu en 1956 [11]. Les physiciens théoriciens Lee et Yang avaient suggéré cette expérience, invoquant qu'aucune preuve expérimentale de l'hypothèse de la conservation de la parité dans les désintégrations β n'existait.

L'expérience consista à enregistrer la direction d'émission des électrons issus de la désintégration β nucléaire d'atomes de ^{60}Co qui avaient été préalablement polarisés (les spins étaient tous alignés dans le même sens). Une large asymétrie de la distribution angulaire des particules β fut observée, la majorité d'entre eux étant émis dans la direction du spin nucléaire. Cette corrélation entre la direction de polarisation des noyaux et l'impulsion des électrons constitue une preuve de l'existence de termes pseudoscalaires dans le hamiltonien de l'interaction faible, seuls capables de changer le signe d'observables sous transformation de symétrie miroir.

La dissymétrie provient du champ neutrinique qui n'a en fait que deux composantes et non quatre. Alors qu'il existe des électrons et des antiélectrons (positrons), chacun pouvant avoir l'un ou l'autre spin, il n'existe que deux sortes de neutrinos : le neutrino et l'antineutrino, chacun n'ayant qu'une seule possibilité de spin.

Il faut donc contraindre l'interaction pour qu'elle soit conforme aux résultats obtenus expérimentalement en tenant compte de la violation de la parité. Le hamiltonien prend la forme :

$$H = g \sum_i (\bar{\psi}_p O_i \psi_n) [\bar{\psi}_e O_i (C_i + C'_i \gamma_5) \psi_\nu] + h.c. \quad (2.17)$$

$(C_i + C'_i \gamma_5) \psi_\nu$ peut s'écrire sous la forme :

$$(C_i + C'_i) \phi_+ + (C_i - C'_i) \phi_- \quad \text{avec} \quad \phi_\pm = \frac{1}{2}(1 \pm \gamma) \psi_\nu \quad (2.18)$$

L'expérience ayant montré que le neutrino est d'hélicité¹ négative et inversement pour l'antineutrino, il en résulta que : $C_i = C'_i$.

La relation 2.17 devient alors :

$$H = g \sum_i (\bar{\psi}_p O_i \psi_n) [\bar{\psi}_e O_i (1 + \gamma_5) \psi_\nu] + h.c. \quad (2.19)$$

Pour déterminer les O_i , il a fallu confronter les prédictions théoriques avec les résultats expérimentaux, principalement issus des désintégrations β nucléaires. Pour préciser les prédictions attendues concernant les observables issues des désintégrations en fonction des types d'interactions en jeu, on se place dans l'approximation non relativiste qui est toujours vérifiée dans le cas de nucléons se désintégrant. La contribution éventuelle du terme pseudo-scalaire est supprimée car elle fait intervenir un facteur v/c où v est la vitesse, toujours négligeable, du nucléon. La présence des matrices de Pauli pour les couplages T et A autorise un changement de spin nucléaire lorsque ces derniers contribuent au processus d'interaction, ce qui correspond aux transitions de type Gamow-Teller. À l'inverse, les transitions de Fermi ne peuvent recevoir que des contributions de type S et V. Pour chaque type de transition, si les deux types de

1. L'hélicité est la projection du spin d'une particule sur la direction de son mouvement.

courants possibles avaient une contribution, un terme d'interférence dit « de Fierz » devrait apparaître, déformant de manière caractéristique les spectres d'énergies β [12]. Comme aucun effet de ce type n'a jamais été observé, il en a été déduit que les transitions de Fermi sont de type S ou V et celles de Gamow-Teller de type T ou A. Dans les désintégrations β , il est possible de montrer au travers des mesures de corrélation angulaire entre l'électron et l'antineutrino que l'hélicité des électrons possède une valeur fixe en fonction du type de couplage considéré. Plus précisément, si les couplages sont constitués de la paire V et A, l'électron doit forcément avoir une hélicité négative et inversement pour la paire T et S. Tous les résultats expérimentaux jusqu'à maintenant font état d'hélicités négatives pour les électrons, allant dans le sens d'une interaction faible faisant intervenir uniquement le couple V et A [13]. Les expériences portant sur la mesure du paramètre de corrélation angulaire $\beta - \nu$, $a\beta - \nu$, ont aussi contribué de manière importante à fixer les couplages en jeu dans les désintégrations nucléaires faibles.

Considérant uniquement les couplages V et A, le hamiltonien s'écrit de la façon suivante :

$$H = g \int (C_V(\bar{\psi}_p \gamma_\nu \psi_n) [\bar{\psi}_e \gamma_\nu (1 + \gamma_5) \psi_\nu] - C_A(\bar{\psi}_p \gamma_\nu \gamma_5 \psi_n) [\bar{\psi}_e \gamma_\nu (1 + \gamma_5) \psi_\nu] d\mathbf{r}) \quad (2.20)$$

où $-C_A/C_V = 1.251 \pm 0.009$ [14] est le rapport entre la constante de couplage axiale à la constante de couplage vectorielle.

La formulation « V-A » de l'interaction faible décrit bien la désintégration β . Cependant, il s'agit d'une théorie incomplète puisqu'elle n'est pas renormalisable. À la fin des années 1960, de nouveaux modèles renormalisables ont vu le jour. Ces modèles sont basés sur des théories de jauge unifiant l'interaction faible et l'interaction électromagnétique. Ces théories de jauge prévoient que l'interaction faible contient des courants neutres en plus des courants chargés, ce qui a été confirmé en 1983 expérimentalement par la mise en évidence du boson associé Z^0 .

2.4 Transitions interdites

Une transition permise est une transition d'ordre zéro (premier terme du développement en série de la fonction d'onde). En raison des règles de sélection il est nécessaire de poursuivre le développement en série. Nous avons alors une transition dite interdite dont l'ordre est donnée par le nombre de termes du développement.

Remplaçons $\mathbf{p}_e + \mathbf{p}_\nu$ dans 2.7 par \mathbf{P} . L'exponentielle peut être développée en utilisant la fonction de Bessel j_l et la fonction harmonique sphérique Y_l^m

$$e^{i\mathbf{P}r} = 4\pi \sum_{l=0}^{\infty} \sum_{m=-l}^l (-1)^l j_l(P, r_n) Y_l^m(\Theta, \Phi) \cdot Y_l^{m*}(\theta_n, \phi_n) \quad (2.21)$$

Les directions du vecteur \mathbf{P} sont données par Θ et Φ et celles du vecteur de position du nucléon par θ_n et ϕ_n . Par ailleurs, nous avons toujours :

$$P \cdot r_n \ll 1 \quad (2.22)$$

où $P = |\mathbf{P}|$ et r_n est la distance entre l'électron et le nucléon.

Pour simplifier, la fonction de Bessel peut être mise sous la forme approximative

$$J_l(P, r_n) \approx \frac{r_n^l}{(2l+1)!!} P^l \quad (2.23)$$

Alors, l'élément matriciel d'interaction (singulet) devient :

$$H_{if} = 4\pi g (\bar{\phi}_e O_\nu \phi_\nu) \sum_{l=0}^{\infty} \sum_{m=-l}^l \frac{(-i)^l}{(2l+1)!!} p^l Y_l^m(\Theta, \Phi) \langle r | Y_l^m \rangle \quad (2.24)$$

L'élément de matrice nucléaire est :

$$\langle r | Y_l^m \rangle = \sum_{n=1}^A \int \psi_f^* r_n^l Y_l^{m*}(\theta_n, \phi_n) \phi_i d\tau \quad (2.25)$$

En général une transition β interdite du 1^{er} ordre est définie par deux expressions du type suivant :

$$\sum_{n=1}^A \int Y_l r^l \begin{pmatrix} 1 \\ \sigma \end{pmatrix} d\tau \quad (2.26)$$

$$\sum_{n=1}^A \int Y_{l-1} r^{l-1} \begin{pmatrix} \gamma_5 \\ \sigma \end{pmatrix} d\tau \quad (2.27)$$

L'équation 2.26 est une généralisation des transitions de Fermi et de Gamov-Teller, et l'équation 2.27 tient compte de l'effet relativiste négligé dans la transition permise.

Pour $l > 1$, les règles de sélection sont les suivantes : $\Delta I = \pm 1$ $\Delta \pi = (-1)^l$ Pour $\Delta I = \pm(l+1)$ $\Delta \pi = (-1)^l$

la règle de sélection $\Delta I = 2^-, 3^+, 4^-, \dots$ la transition est dite unique.

Pour les transitions interdites, la forme des spectres est en général différente de celle des transitions permises.

2.5 Facteurs de formes théoriques des spectres β

Dans les sections précédentes nous avons décrit la forme de l'interaction faible. De nombreuses études expérimentales, incluant celles portant sur des mesures de spectres β , ont été réalisées dans le but de déterminer cette interaction. Étant donné qu'il est très difficile, voire impossible de donner une forme explicite exacte du courant nucléaire, les mesures portaient sur des observables indépendantes de la structure nucléaire (transitions permises), ou sur des cas particulier où les éléments de matrice nucléaire étaient connus.

Considérons maintenant que la forme de l'interaction faible est effectivement bien de la forme « V - A ». Alors la désintégration β peu permettre d'aller sonder la structure nucléaire. Cela implique, cependant, d'être capable de séparer proprement les contributions nucléaires des contributions leptoniques.

Au début des années 1960, une reformulation de la théorie de la désintégration β par Stech *et al.* [15], Schülke [16] et Bühring a été proposée afin que les effets cinématiques, les effets des interactions électromagnétiques entre l'électron et le noyau ainsi que les effets liés au modèle nucléaire soient clairement séparés. Dans ce traitement, les éventuelles approximations sont introduites le plus tardivement possible dans le développement et elles sont explicites.

Behrens et Bühring donnent une description très complète de cette reformulation dans [17], et une version plus condensée peut être trouvée dans [1]. Les formules développées dans ces travaux sont conséquentes et nous nous limiterons ici aux points essentiels.

L'étape importante consiste à décomposer les éléments de la matrice du courant nucléaire en des quantités phénoménologiques que sont les facteurs de forme. Ils permettent d'analyser

les résultats d'une expérience de désintégration β , et inversement ce sont les seules quantités qui peuvent être déduites des données expérimentales. La décomposition est indépendante de la structure nucléaire et de la forme de l'interaction faible. Des changements dans ces termes influenceraient les valeurs des coefficients des facteurs de forme mais leurs relations avec les observables resteraient identiques.

Les facteurs de forme ne change pas si l'interaction électromagnétique de l'état final est pris en compte. Seule la relation entre les facteurs de forme et la probabilité d'interaction est modifiée. Par conséquent, la déformation de la fonction d'onde électronique par le champ coulombien du noyau peut être prise en compte avec précision et correctement séparée des effets nucléaires.

La matrice de transition (T) qui découle du hamiltonien de l'interaction « V-A » est donnée par :

$$T = \frac{G_\beta}{\sqrt{2}} \int \langle f | V_0(0) - A_0(0) | i \rangle L_\mu(\mathbf{q}) d^3q \quad (2.28)$$

où $L_\mu(\mathbf{q})$ est la transformée de Fourier du courant leptonique et $\langle f | V_0(0) - A_0(0) | i \rangle$ le courant nucléaire. Ici T est exprimé dans l'espace des impulsions qui est mieux adapté au développement multipolaire du courant nucléaire. Ce dernier a la forme [17] :

$$\begin{aligned} (-i) \langle f | V_\mu(0) + A_\mu(0) | i \rangle \gamma_4 \gamma_\mu &= \sum_{KLMs} (-1)^{J_f - M_f + M} \\ &\times (-i)^L \sqrt{4\pi} \sqrt{2J_i + 1} \begin{pmatrix} J_f & K & J_i \\ -M_f & M & M_i \end{pmatrix} \\ &\times T_{KLS}^{-M}(\hat{q}) \frac{(qR)^L}{(2L + 1)!!} F_{KLS}(q^2). \end{aligned} \quad (2.29)$$

$\gamma_4 \gamma_\mu$ a été sortie du courant leptonique. Par conséquent, les opérateurs tensoriels irréductibles $T_{KLS}^{-M}(\hat{q})$ agissent sur les leptons. $F_{KLS}(q^2)$ sont les facteurs de forme nucléaire qui contiennent toute l'information sur la structure nucléaire. Ils représentent l'élément de matrice nucléaire qui décrit la transition entre deux noyaux d'impulsion relative $q = |\mathbf{q}|$ et un moment angulaire relatif L . J_i et J_f sont les spins initial et final du noyau, et M_i et M_f leurs composantes z . Le terme $(qR)^2 / (2L + 1)!!$ est extrait du facteur de forme.

Le facteur de forme nucléaire peut également être développé en séries de puissances de qR puisque $qR \leq \Delta R = W_0 R$. Pour la désintégration β étant donné que $qR \ll 1$ seuls les deux premiers termes du développement sont pertinents :

$$F_{KLS}(\mathbf{q}^2) = F_{KLS}^{(0)} - \frac{(\mathbf{q}R)^2}{2(2L + 3)} F_{KLS}^{(1)} + \dots \quad (2.30)$$

où $F_{KLS}^{(n)}$ sont les coefficients de facteur de forme.

En développant l'exponentielle $e^{i\mathbf{q}\mathbf{r}}$ de la transformée de Fourier du courant leptonique en ondes planes puis en intégrant sur q . La matrice de transition est maintenant donnée par :

$$\begin{aligned} T &= \frac{G_\beta}{\sqrt{2}} \cdot \frac{1}{\pi^{3/2}} \sum_{KLSM} (-1)^{J_f - M_f + M + L} \sqrt{2J_i + 1} \begin{pmatrix} J_f & K & J_i \\ -M_f & M & M_i \end{pmatrix} \\ &\times \int_0^\infty q^2 dq \int_0^\infty r^2 dr \frac{(qR)^L}{(2L + 1)!!} j_l(qr) F_{KLS}(q^2) \\ &\times \int \bar{\phi}_e(\mathbf{r}) T_{KLS}^{-M}(\hat{r}) (1 + \gamma_5) \phi_{\bar{\nu}_e}(\mathbf{r}) d\hat{r}. \end{aligned} \quad (2.31)$$

Les fonctions d'onde de l'électron et du neutrino apparaissant dans le dernier membre de l'équation 2.31 peuvent être développées en ondes partielles. La matrice de transition devient :

$$T = \frac{G_\beta}{\sqrt{2}} \cdot \frac{1}{\pi^{3/2}} \sum_{KLSM} \sum_{\substack{\kappa_e \mu_e \\ \kappa_\nu \mu_\nu}} (-1)^{J_f - M_f + j_e - \mu_e} (-1)^{L - M + j_\nu + \mu_\nu} \begin{pmatrix} J_f & K & J_i \\ -M_f & M & M_i \end{pmatrix} \begin{pmatrix} j_e & K & j_\nu \\ -\mu_e & -M & -\mu_\nu \end{pmatrix} \\ \times a_{\kappa_e \mu_e}^* b_{\kappa_\nu \mu_\nu}^* \int_0^\infty q^2 dq \int_0^\infty r^2 dr \frac{(qR)^L}{(2L+1)!!} j_l(qr) F_{KLS}(q^2) \\ \times \langle \phi_{\kappa_e \text{electron}} || T_{KLS}(1 + \gamma_5) || \phi_{\kappa_\nu \text{antineutrino}} \rangle. \quad (2.32)$$

où $a_{\kappa_e \mu_e}^*$ et $b_{\kappa_\nu \mu_\nu}^*$ sont les coefficients du développement.

L'élément de matrice leptonique dans l'équation ci-dessus peut être calculé puisque les fonctions d'onde, solutions de l'équation de Dirac, ainsi que les opérateurs sont connus.

La forme finale du hamiltonien, obtenue après intégration sur q et r , sépare explicitement les effets de structure nucléaire, qui sont contenus dans les coefficients des facteurs de forme, des quantités concernant les fonctions d'onde leptonique. Les termes restant sont des facteurs géométriques excepté le terme de phase coulombien dans $a_{\kappa, \mu}^*$.

La probabilité de la transition, pour des transitions interdites, dépend de la matrice de transition élevée au carré. Le développement de ce terme est compliqué. Cependant le problème se simplifie en négligeant certaines quantités devant d'autres. Finalement, des facteurs de forme ($C(W)$) peuvent être établis en fonction du type de transition. Les coefficients $F_{KLS}^{(n)}$, qui dépendent de la structure nucléaire et sont difficiles à calculer, interviennent dans ces facteurs de forme. Néanmoins, pour les transitions permises et interdites uniques, ils ne prennent part au facteur de forme qu'à travers un facteur de normalisation global indépendant des observables de l'électron.

Le facteur de forme pour une transition permise ou interdite unique est :

$$C(W) = (2L-1)! \sum_{k=1}^L \lambda_k \frac{p^{2(k-1)} q^{2(L-k)}}{(2k-1)![2(L-k)+1]!} \quad (2.33)$$

avec $k = |\kappa|$ et $\lambda_k = (\alpha_{-k}^2 + \alpha_k^2) / (\alpha_{-1}^2 + \alpha_1^2)$. Les paramètres λ_k doivent être calculés numériquement et la procédure n'est pas directe. Pour ces transitions, le calcul précis du spectre β se résume donc au calcul de la fonction d'onde l'électron. Ces calculs seront détaillés dans la section suivante.

Dans le cas des transitions interdites non uniques, le facteur de forme dépend des coefficients $F_{KLS}^{(n)}$ et elles sont donc difficiles à calculer. Cependant pour une transition première interdite non unique une approximation consiste à poser :

$$\frac{\alpha Z}{R} \gg W_0 - 1 \quad (2.34)$$

où $\frac{\alpha Z}{2R} = \xi$ et R est le rayon du noyau. C'est-à-dire que l'énergie coulombienne à la distance R est supposée plus grande que l'énergie totale de la désintégration β . Dans la plupart des cas cette approximation est valable ; la forme du spectre est alors identique à celles des transitions permises.

Dans les cas où l'approximation ξ n'est pas valable ou pour les transitions d'ordre supérieures, les coefficients de facteurs de forme peuvent être déterminés expérimentalement.

2.6 Dynamique de l'électron

Pour connaître le comportement dynamique d'un électron dans un potentiel coulombien, nous devons résoudre l'équation de Dirac. Nous commencerons donc par donner une description du formalisme de cette équation. Puis, les solutions associées à différents potentiels, de plus en plus complexes, seront établies.

2.6.1 L'équation de Dirac

En mécanique quantique, toute la dynamique d'une particule est contenue dans l'équation de Schrödinger. Cette équation traduit en langage quantique le principe de la conservation de l'énergie totale :

$$E = \frac{1}{2m}\mathbf{p}^2 + V(\mathbf{r}, t) \quad (2.35)$$

La correspondance entre les valeurs classiques et les opérateurs agissant sur les fonctions d'onde est donnée par :

$$E \leftrightarrow i\hbar\frac{\partial\psi}{\partial t}, \quad \mathbf{p} \leftrightarrow -i\hbar\nabla\psi, \quad V \leftrightarrow V\psi.$$

Ainsi en substituant les valeurs classiques dans l'équation (2.35) nous obtenons l'équation de Schrödinger dépendante du temps :

$$i\hbar\frac{\partial}{\partial t}\psi(\mathbf{r}, t) = \left[-\frac{\hbar^2}{2m}\nabla^2 + V(\mathbf{r}, t) \right] \psi(\mathbf{r}, t) \quad (2.36)$$

L'inconvénient de cette équation est qu'elle ne tient pas compte des exigences de la relativité. Même si l'on y applique des corrections relativistes, l'équation de Schrödinger se heurte à expliquer certaines observations expérimentales telles que la structure fine des raies spectrales des atomes ou bien l'effet Zeeman « anormal ». C'est l'étude de cet effet et des résultats de l'expérience de Stern et Gerlach ([18], [19]) qui va conduire à la découverte expérimentale, en 1925, du spin de l'électron. Ce moment cinétique intrinsèque de l'électron est d'origine purement quantique puisqu'il ne possède pas d'analogue classique. En 1927, Pauli développe une théorie qui permet d'incorporer aisément le spin à la mécanique quantique non relativiste. Pour décrire les composantes du spin de l'électron, il définit trois matrices qui portent désormais le nom de matrices de Pauli :

$$\sigma_x = \begin{pmatrix} 0 & 1 \\ 1 & 0 \end{pmatrix} \quad \sigma_y = \begin{pmatrix} 0 & -i \\ i & 0 \end{pmatrix} \quad \sigma_z = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{pmatrix} \quad (2.37)$$

Ainsi améliorée par des postulats relatifs au spin, la mécanique quantique obtient pour les spectres atomiques des prévisions théoriques dont l'accord avec l'expérience est excellent. Il n'en demeure pas moins que pour être complète, elle doit également être exprimée dans un cadre relativiste.

Le principe de conservation de l'énergie totale en mécanique relativiste est donnée par :

$$E^2 = c^2p^2 + m^2c^4 \quad (2.38)$$

Lorsqu'elle est traduite en mécanique quantique, en utilisant le principe de correspondance énoncé précédemment et avec $c = 1$ pris comme unité de vitesse, elle prend la forme :

$$\frac{\partial^2\psi}{\partial t^2} = \frac{\partial^2\psi}{\partial x^2} + \frac{\partial^2\psi}{\partial y^2} + \frac{\partial^2\psi}{\partial z^2} + (im)^2\psi \quad (2.39)$$

ou encore, à quatre dimensions avec $it \equiv x_4$:

$$\sum_{\mu=1}^4 \frac{\partial^2 \psi}{\partial x_\mu^2} = m^2 \psi \quad (2.40)$$

Cette équation, établie indépendamment en 1926 et 1927 par les physiciens Walter Gordon et Oskar Klein, est appelée équation de Klein-Gordon et est la version relativiste de l'équation de Schrödinger.

Dans un article publié en 1928 [20], Dirac, insatisfait par les solutions apportées par l'équation de Klein-Gordon, donne une nouvelle équation relativiste de la mécanique quantique. Nous savons aujourd'hui que l'équation de Klein-Gordon est bien adaptée à la description des propriétés des particules de spin nul comme le pion découvert bien plus tard en 1947. Dans une écriture condensée et en l'absence d'énergie potentielle, l'équation de Dirac se présente de la façon suivante :

$$\frac{\partial \psi}{\partial t} = -(c\boldsymbol{\alpha} \cdot \mathbf{p} + i\beta mc^2)\psi \quad (2.41)$$

où $\boldsymbol{\alpha}$ est un vecteur à 3 composantes de matrices 4×4 ,
 \mathbf{p} le vecteur d'impulsion,
 ψ un spineur de Dirac.

Afin de comprendre l'origine des éléments apparaissant dans l'équation de Dirac, nous allons suivre la démarche de Dirac pour établir cette équation.

La principale difficulté de l'équation de Klein-Gordon est qu'il s'agit une équation différentielle du second ordre par rapport au temps. Il faut donc connaître simultanément ψ et $\partial\psi/\partial t$ à l'instant initial pour que ψ soit complètement déterminé à tout instant ultérieur. Ceci est apparemment en contradiction avec les principes de la mécanique quantique selon lesquels toute l'information accessible sur un système quantique est contenue dans la fonction d'onde. De plus, l'équation de Klein-Gordon peut être satisfaite par des solutions à énergies négatives ce qui déplaît à Dirac, bien que cette difficulté subsiste dans sa propre théorie.

Dirac recherche donc une équation du premier ordre par rapport au temps. La structure des transformations de Lorentz, où les coordonnées d'espace et de temps apparaissent de façon symétrique, suggère que cette équation devrait aussi être du premier ordre dans les variables d'espace. Ainsi, Dirac recherche une sorte de racine carrée de l'équation de Klein-Gordon.

Pour cela, cherchons à factoriser² le terme de droite de (2.38) en posant :

$$(\alpha_x p_x + \alpha_y p_y + \alpha_z p_z + \beta mc)^2 = p_x^2 + p_y^2 + p_z^2 + m^2 c^2 \quad (2.42)$$

Les relations suivantes peuvent être déduites de l'identité (2.42) :

$$\begin{cases} \alpha_k \beta + \beta \alpha_k = 0 \\ \alpha_k \alpha_l + \alpha_l \alpha_k = 0 \quad (k \neq l) \\ \beta^2 = \alpha_k^2 = 1 \end{cases} \quad (2.43)$$

Les propriétés d'hermité des opérateurs α_k et β et les relations (2.43) qui définissent leurs propriétés algébriques permettent de déterminer que l'espace des états dynamiques de l'électron

2. Pour factoriser une expression algébrique du second degré de la forme $\sum x_i^2 = N^2$, il faut poser $N = \sum x_i e_i$, élever l'ensemble au carré puis résoudre le système d'équation permettant de retrouver une identité.

a quatre dimensions. Ainsi, la fonction d'onde dans l'équation de Dirac ne peut plus être scalaire comme c'est le cas dans l'équation de Schrödinger mais doit comporter quatre composantes. Les relations (2.43) ne permettent pas de définir uniquement les matrices α_k et β . La représentation « usuelle », où β est diagonale, est donnée par :

$$\alpha_i = \begin{pmatrix} 0 & \sigma_i \\ \sigma_i & 0 \end{pmatrix} \quad \beta = \begin{pmatrix} \mathbb{I} & 0 \\ 0 & -\mathbb{I} \end{pmatrix} \quad (2.44)$$

De plus, en posant $\gamma_i = -i\beta\alpha_i$ ($i=1,2,3$) et $\gamma_4 = \beta$, on a

$$\gamma_1 \equiv -i \begin{pmatrix} 0 & \sigma_x \\ -\sigma_x & 0 \end{pmatrix} \quad \gamma_2 \equiv -i \begin{pmatrix} 0 & \sigma_y \\ -\sigma_y & 0 \end{pmatrix} \quad \gamma_3 \equiv -i \begin{pmatrix} 0 & \sigma_z \\ -\sigma_z & 0 \end{pmatrix} \quad \gamma_4 \equiv \begin{pmatrix} \mathbb{I} & 0 \\ 0 & -\mathbb{I} \end{pmatrix} \quad (2.45)$$

où \mathbb{I} est la matrice unité 2×2 , et σ_i les matrices de Pauli définies en (2.37).

Sans aucune hypothèse supplémentaire, simplement en exigeant qu'elle obéisse aux règles de la relativité restreinte, l'équation de Dirac implique que l'électron a un spin qui peut être décrit par les matrices de Pauli.

L'équation (2.41) est relative à l'électron libre. L'équation de Dirac relative à un électron dans un champ électromagnétique (ϕ, \mathbf{A}) s'obtient avec les substitutions :

$$E \rightarrow E - e\phi, \quad \mathbf{p} \rightarrow \mathbf{p} - e\mathbf{A} \quad (2.46)$$

Nous trouvons :

$$[(E - e\phi) - \boldsymbol{\alpha} \cdot (\mathbf{p} - e\mathbf{A}) - \beta m] \boldsymbol{\psi} = 0 \quad (2.47)$$

Considérons une particule libre, c'est-à-dire un champ identiquement nul en tout point de l'espace. Les solutions en ondes planes de la forme

$$u(\mathbf{p})e^{i\mathbf{p}\cdot\mathbf{r}} \quad (2.48)$$

où $u(\mathbf{p})$ est un spineur à 4 composantes indépendant de \mathbf{r} , sont solutions de l'équation de Dirac. L'équation aux valeurs propres est donnée par :

$$Hu(\mathbf{p}) = Eu(\mathbf{p}) \quad (2.49)$$

H est le hamiltonien du système, et vaut :

$$H = \boldsymbol{\alpha} \cdot \mathbf{p} + \beta m \quad (2.50)$$

En résolvant l'équation aux valeurs propres, nous trouvons quatre couples de valeurs propres :

$$\left(+E_p, +\frac{1}{2}\right) \quad \left(+E_p, -\frac{1}{2}\right) \quad \left(-E_p, +\frac{1}{2}\right) \quad \left(-E_p, -\frac{1}{2}\right)$$

où $E_p = \sqrt{p^2 + m^2}$.

L'énergie peut donc être positive ou négative même pour des énergies cinétiques et de masse toutes deux positives. L'équation de Dirac autorise donc les énergie négatives comme le faisait déjà celle de Klein-Gordon. Dirac, se basant sur le principe d'exclusion de Pauli, réussit à interpréter les états à énergie négative comme ceux correspondants à des états de charge électrique opposée. La mécanique quantique ne permet pas d'ignorer cette solution d'énergie

négative comme pourrait le faire la mécanique classique du fait de son caractère continu. En effet, comme la mécanique quantique procède par sauts, l'électron pourrait spontanément sauter d'un état d'énergie positive à un état d'énergie négative. Cependant, aucune transition de ce type n'a jamais été observée. Dans un article paru en 1929, Dirac explore la possibilité que ces porteurs de charge positive soient des protons. Mais Oppenheimer objecte que si le proton est une solution négative de l'équation de Dirac alors l'atome d'hydrogène ne pourrait pas être stable. Convaincu par cet argument, Dirac finit par publier un article en 1931 qui prédit l'existence d'une nouvelle particule, un « anti-électron », qui aurait la même masse que l'électron et s'annihilerait avec l'électron. Finalement, les électrons positifs sont découverts dans le rayonnement cosmique par Anderson en 1932, confirmant ainsi l'existence d'une particule d'anti-matière.

Construction de quantités covariantes

Avec les composantes du spineur $\psi(\mathbf{x})$ et celle de son adjoint $\bar{\psi}(\mathbf{x})$, on peut former en tout 16 fonctions de x^0, x^1, x^2, x^3 , linéairement indépendantes et bilinéaires en $\psi(\mathbf{x})$ et $\bar{\psi}(\mathbf{x})$. On peut les grouper en cinq champs de caractère tensoriel bien déterminé, à savoir : un scalaire S , un vecteur V^μ , un tenseur antisymétrique à deux indices $T^{\mu\nu}$, un tenseur antisymétrique à trois indices ou pseudovecteur $A^{\lambda\mu\nu}$ et un tenseur antisymétrique à quatre indices ou pseudoscalaire P .

À partir de l'équation de Dirac d'un électron dans le champ électromagnétique (ϕ, \mathbf{A}) multipliée scalairement par $\bar{\psi}$, solution de l'équation hermitique conjuguée, il vient :

$$i \frac{\partial}{\partial t} (\bar{\psi}\psi) = -i \sum_k \frac{\partial}{\partial x^k} (\bar{\psi}\alpha^k\psi) \quad (2.51)$$

Cette équation équivaut à l'équation de continuité

$$\frac{\partial}{\partial t} P + \nabla \cdot \mathbf{j} = 0 \quad (2.52)$$

Le quadrivecteur densité de courant est donc identifié à :

$$\mathbf{j} = \bar{\psi}\boldsymbol{\gamma}\psi \quad (2.53)$$

2.6.2 Fonctions d'onde d'un électron plongé dans un potentiel coulombien

Pour calculer un spectre bêta, il faut déterminer les fonctions d'onde radiales de l'électron, ou du positron, plongé dans le champ coulombien du noyau fils. Le comportement de l'électron est décrit par l'équation de Dirac. Deux approches existent pour résoudre ce problème : analytique et numérique.

L'approche analytique résout exactement le problème. Le spectre bêta se réduit à une succession de formules analytiques, ce qui permet un calcul rapide. Mais les fonctions d'onde radiales sont solutions d'un système d'équations différentielles couplées : des simplifications sont nécessaires. La plus importante est de considérer que le noyau est une source ponctuelle du potentiel coulombien. Le spectre ainsi calculé ne prend pas en compte les effets dus à un noyau de taille fini, ou ceux dus à l'écrantage du nuage électronique. Ces effets influent sur la forme du spectre principalement à basse énergie, et sont de l'ordre de 5%. Les effets radiatifs déforment moins le spectre : leur influence est inférieure à 1%.

La résolution numérique des équations de Dirac radiales permet d'obtenir une solution approchée. Cette méthode récursive nécessite des algorithmes plus complexes et une puissance de calcul plus importante. Les travaux théoriques ont été menés avant les années 1980, à une époque où les ordinateurs étaient bien moins performants. Les résultats étaient tabulés, et les valeurs des différents paramètres étaient obtenues par interpolation. Ces interpolations induisent des déformations non négligeables dans les spectres calculés. Mais l'approche numérique nécessite moins d'approximations. Le noyau peut être considéré comme une sphère de taille finie chargée uniformément, et les facteurs de correction de l'approche analytique ne sont plus nécessaires. Dans la pratique, à cause de la puissance de calcul limitée de l'époque, des facteurs de correction d'écrantage et de corrections radiatives étaient parfois ajoutés.

De l'équation de Dirac aux équations radiales

Pour résoudre l'équation de Dirac, une hypothèse simple et raisonnable consiste à considérer le noyau, et donc le champ coulombien, sphérique. Grâce à cette symétrie, il est possible de séparer les composantes angulaires et radiales de la fonction d'onde.

La fonction d'onde de l'électron est définie dans [17] en symétrie sphérique à partir des fonctions d'ondes radiales $f_\kappa(r)$ (petite composante), $g_\kappa(r)$ (grande composante) et des fonctions spin-orbitales χ_κ^μ par :

$$\psi(\mathbf{r}) = \psi_\kappa^\mu = \begin{pmatrix} S_\kappa f_\kappa(r) \chi_{-\kappa}^\mu \\ g_\kappa(r) \chi_\kappa^\mu \end{pmatrix} \quad (2.54)$$

avec $S_\kappa = \kappa/|\kappa|$ le signe de κ . Si $\mathbf{l} = \mathbf{r} \times \mathbf{p}$ est l'opérateur de moment angulaire orbital, l'opérateur L^2 ne commute pas avec le hamiltonien du système. À la place, il faut utiliser l'opérateur $K = \beta \{(\boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{l}) + 1\}$, de valeur propre non nulle $\kappa = \pm 1, \pm 2, \dots$

Le système d'équations différentielles couplées auquel obéissent les fonctions d'onde radiales de l'électron f_κ et g_κ est le suivant

$$\begin{cases} \frac{df_\kappa}{dr} = \frac{(\kappa - 1)}{r} f_\kappa - [W - 1 - V(r)] g_\kappa \\ \frac{dg_\kappa}{dr} = [W + 1 - V(r)] f_\kappa - \frac{(\kappa + 1)}{r} g_\kappa \end{cases} \quad (2.55)$$

Nous noterons ici que le neutrino n'étant sensible à aucun potentiel, le système d'équations (2.55) se simplifie en

$$\begin{cases} \frac{df_\kappa^\bar{\nu}}{dr} = \frac{(\kappa - 1)}{r} f_\kappa^\bar{\nu} - W g_\kappa^\bar{\nu} \\ \frac{dg_\kappa^\bar{\nu}}{dr} = W f_\kappa^\bar{\nu} - \frac{(\kappa + 1)}{r} g_\kappa^\bar{\nu} \end{cases} \quad (2.56)$$

dont les solutions sont les fonctions Bessel et Neuman sphériques. Ici, W correspond à l'impulsion de l'antineutrino.

Pour résoudre le système (2.55), il faut découpler les deux équations afin d'obtenir pour chaque fonction d'onde une équation différentielle unique. Ceci est rendu possible par un changement de variables. Deux équations différentielles du second ordre sont alors obtenues :

$$\frac{d^2 u_1}{dr^2} + \frac{dV/dr}{W + 1 - V(r)} \frac{du_1}{dr} + \left[\{W - V(r)\}^2 - 1 + \frac{\kappa}{r} \frac{dV/dr}{W + 1 - V(r)} - \frac{\kappa(\kappa + 1)}{r^2} \right] u_1 = 0 \quad (2.57)$$

$$\frac{d^2 u_2}{dr^2} + \frac{dV/dr}{W-1-V(r)} \frac{du_2}{dr} + \left[\{W - V(r)\}^2 - 1 - \frac{\kappa}{r} \frac{dV/dr}{W-1-V(r)} - \frac{\kappa(\kappa-1)}{r^2} \right] u_2 = 0 \quad (2.58)$$

Il n'existe pas de solutions analytiques pour ces deux équations dans le cas d'un potentiel $V(r)$ quelconque. En revanche, il en existe dans le cas d'une particule dans le champ coulombien d'une charge nucléaire ponctuelle.

Charge nucléaire ponctuelle

Ici, le noyau est simplement considéré comme une source ponctuelle du potentiel coulombien. Le potentiel est de la forme :

$$V(r) = -\frac{\alpha Z}{r} \quad (2.59)$$

où α est la constante de structure fine et Z le nombre de charges du noyau.

Il faut alors découpler le système d'équation 2.55 en tenant compte de $V(r) = -\alpha Z/r$. Puis, moyennant quelques substitutions et un changement de variables une équation unique de second ordre est trouvée.

$$\frac{d^2 \phi_1}{dx^2} + \frac{1}{x} \frac{d\phi_1}{dx} - \left[\frac{1}{4} + \left(\frac{1}{2} + iy \right) \frac{1}{x} + \frac{\gamma^2}{x^2} \right] \phi_1 = 0 \quad (2.60)$$

où $\gamma^2 = \kappa^2 + (\alpha Z)^2$.

Il est possible de mettre l'équation (2.60) sous la forme d'une équation d'onde de Coulomb dont les solutions connues sont les fonctions d'onde de Coulomb. Cela conduit à l'expression de ϕ_1 :

$$\phi_1 = \frac{e^{\pi y/2}}{2i} (2pr)^\gamma \frac{|\Gamma(\gamma - iy)|}{\Gamma(2\gamma + 1)} e^{-ipr} {}_1F_1(\gamma + 1 + iy, 2\gamma + 1, 2ipr) \quad (2.61)$$

où $\Gamma(z)$ est la fonction gamma,
 ${}_1F_1(a, b, z)$ est la fonction hypergéométrique conflente.

Nous retrouvons alors l'expression des fonctions d'onde radiales de l'électron plongé dans le champ coulombien (2.59), données par Rose dans [21] :

$$\left. \begin{aligned} rf &= i(W-1)^{1/2} \\ rg &= (W+1)^{1/2} \end{aligned} \right\} \times \\ \times (2pr)^\gamma (4\pi p)^{-1/2} e^{\pi y/2} \frac{|\Gamma(\gamma + iy)|}{\Gamma(2\gamma + 1)} [e^{-ipr+iy} (\gamma + iy) {}_1F_1(\gamma + 1 + iy, 2\gamma + 1, 2ipr) \mp \text{c.c.}] \quad (2.62)$$

où c.c. signifie « complexe conjugué ».

Le modèle d'un noyau ponctuel n'est cependant pas très réaliste, le potentiel doit être complexifié pour tenir compte du volume du noyau.

Charge nucléaire étendue

Le potentiel est généré non plus par une particule ponctuelle de charge Ze , mais par un noyau modélisé par une sphère de rayon R uniformément chargée :

$$V(r) = \begin{cases} -\frac{\alpha Z}{2R} \left[3 - \left(\frac{r}{R} \right)^2 \right] & \text{si } 0 \leq r \leq R \\ -\frac{\alpha Z}{r} & \text{si } R \leq r \leq \infty \end{cases} \quad (2.63)$$

Cette légère modification du potentiel par rapport au potentiel (2.59) est suffisante pour qu'il n'existe plus de solution analytique pour les fonctions d'onde radiales. Cependant, il est possible de déterminer ces solutions numériquement, en utilisant la technique du développement en séries entières.

Charge nucléaire étendue écrantée

Une description encore plus réaliste du potentiel peut être donnée. En effet, les électrons atomiques de l'atome écrantent en partie la charge du noyau. La construction du potentiel issu d'un noyau sphérique uniformément chargé et écranté par les électrons atomiques n'est cependant pas évidente. Si l'on considère un potentiel correspondant à une situation physique réelle, il est raisonnable de le supposer différentiable en tout point de l'espace, et même de le supposer localement C^∞ . L'espace est alors subdivisible en intervalles où le potentiel est exprimé par un développement en série de Taylor. Soit, à l'origine :

$$V(r) = \sum_{m=0}^{\infty} v_m(0) r^m \quad (2.64)$$

à l'infini :

$$V(r) = \sum_{m=0}^{\infty} v_m(\infty) r^{-m} \quad (2.65)$$

et en tout autre point de l'espace :

$$rV(r) = \sum_{m=0}^{\infty} \tilde{v}_m(r_0) (r - r_0)^m \quad (2.66)$$

Cette forme très générale, proposée par Bühring dans [22], permet d'envisager l'utilisation d'un potentiel numérique donné sur une grille (uniforme ou non) dont on déterminerait une approximation polynomiale locale.

Dans l'approche analytique l'effet d'écrantage peut être simplement pris en compte en remplaçant dans (2.62) W par $W - V_0$ quand l'électron a une énergie cinétique supérieure à $m_e V_0$, V_0 étant un potentiel dépendant de Z et qui corrige de l'effet d'écrantage. Il s'agit cependant d'une correction grossière qui ne tient pas compte de la dépendance en r , distance de l'électron émis au noyau, de l'effet d'écrantage.

2.6.3 Effet d'échange

Les fonctions d'onde radiales de l'électron solutions du système d'équations (2.55) sont de deux types : celles correspondant à un continuum d'états, et celles correspondant à des états

liés. Le continuum d'états est précisément le type de solution qui nous intéresse, puisque le spectre en énergie des électrons est continu. Cependant, la particule β peut également être créée directement dans une orbitale atomique du noyau fils, même si cette orbitale était occupée dans le noyau père. L'électron atomique est alors éjecté de cette orbitale vers un état du continuum. Ce processus est appelé effet d'échange. L'électron éjecté aura l'énergie de l'électron β initial moins l'énergie de liaison de l'orbitale atomique. L'effet d'échange tend donc à déformer le spectre β vers les basses énergies.

Harston et Pyper ont développé un formalisme permettant d'étudier l'influence des orbitales atomiques sur la décroissance β^- [23]. Ce formalisme développé plus en détails dans [24], n'est valable que pour les transitions permises. Ainsi, seules les orbitales ns sont prises en compte. En effet, lors d'une transition permise, l'électron et le neutrino n'emportent pas de moment angulaire, comme explicité plus haut. Pour une transition permise, la variation de moment cinétique total ne résulte que de l'alignement des spins de ces deux particules, d'où $\Delta J = 0, \pm 1$. La création d'un électron β n'est donc possible que sur des orbitales atomiques ns . Les électrons des autres orbitales restent spectateurs.

Sauf pour les radionucléides pour lesquels Z est proche de 1, l'intensité du spectre bêta incluant les effets d'échange peut s'exprimer en fonction de l'intensité du spectre bêta ignorant ces effets :

$$\frac{dI}{dE} = \frac{dI^{NE}}{dE} [1 + \eta_{\text{ex}}^T(E)] \quad (2.67)$$

où NE signifie *no exchange*, et η_{ex}^T est le facteur d'échange total [23]. La prise en compte de l'effet d'échange dans le calcul d'un spectre bêta apparaît donc comme un simple facteur correctif.

Le facteur d'échange total est donné par l'expression :

$$\eta_{\text{ex}}^T(E) = f_s(2T_s + T_s^2) \quad (2.68)$$

avec

$$f_s = \frac{P_{Es'}^2(R)}{P_{Es'}^2(R) + Q_{Ep'}^2(R)} \quad (2.69)$$

et

$$T_s = - \sum_{ns'} \langle Es' | ns \rangle \frac{P_{ns'}}{P_{Es'}} \quad (2.70)$$

$P_{Es'}^2(R)$ et $Q_{Ep'}^2(R)$ sont respectivement la large et la petite composante radiale de la fonction d'onde de Dirac décrivant l'électron s' d'énergie cinétique E . $\langle Es' | ns \rangle$ représente le recouvrement entre la fonction d'onde décrivant l'électron dans l'orbital ns de l'atome parent et la fonction d'onde de l'électron s d'énergie cinétique E du continuum.

2.7 Codes de calcul

Les codes de calcul des spectres β qu'ils soient d'approche analytique ou numérique, se limitent généralement au calcul des transitions permises et supposent la connaissance de facteurs de forme expérimentaux pour calculer les transitions interdites. La figure 2.2 présente les différents codes et leurs caractéristiques.

Les deux codes d'approche numérique utilisent l'interpolation entre les valeurs tabulées des tables de Behrens ou de Dzhelepov pour calculer la fonction de Fermi. Les valeurs tabulées permettent de tenir compte de l'effet d'écrantage et de la taille finie du noyau. Ces tables, qui ont été publiées en 1969, sont cependant très restreintes à cause du long temps de calcul

nécessaires pour les générer.

Le code RADLIST est le plus élaboré, il calcule les transitions permises et interdites uniques, et traite les transitions non-unesiques comme des transitions uniques de même ΔJ selon l'approximation ξ . Cependant, il ne s'agit pas d'un programme dédié spécifiquement aux calculs de spectres bêta, ce qui complique son utilisation et son évolution. Ce constat a poussé le LNHB a développer son propre code de calcul : BETASHAPE [25].

Programme	Auteur	Transitions	Méthode	Corrections
SimpBeta	C. Michotte (BIPM)	Permises	Numérique, Behrens	Ecrantage
BetaSpectrum	V. Gorozhankin (JINR – DNLP)	Permises + facteurs de forme	Numérique, Behrens, Dzhelepov	Ecrantage
SpeBeta	R. Vatin P. Cassette (LNHB)	Permises + facteurs de formes	Analytique, Rose	Ecrantage
RadList, logft	T. Burrows (BNL)	Permises + interdites uniques (1-2)	Analytique, Gove et Martin	Ecrantage, taille du noyau

FIGURE 2.2 – Synthèse des différents programmes de calculs de spectres β .

BETASHAPE

BETASHAPE dans sa première version est d'approche analytique. Les spectres β sont calculés suivant le formalisme de Gove et Martin qui utilise les résultats de Rose pour l'expression des fonctions d'onde radiales de l'électron. Les fonctions d'onde sont calculées en considérant le noyau comme une charge ponctuelle. Le potentiel est donc de la forme (2.59). Pour tenir compte de cette approximation, la correction de taille finie du noyau est introduite dans les calculs. Cette correction reflète l'influence de la distribution des charges nucléaires sur la forme du spectre β . Cet effet apparaît comme relativement faible. L'effet d'écrantage est pris en compte de façon analytique selon la méthode décrit précédemment à l'aide d'un potentiel de Fermi-Thomas, V_0 , indépendant de l'énergie de l'électron. La valeur de V_0 est explicitée par Good dans [26]. Cette correction n'est appliquée qu'à partir d'une certaine énergie seuil, $m_e V_0$, ce qui induit une discontinuité non physique dans le spectre calculé à cette énergie. Enfin, les corrections radiatives peuvent être prises en compte dans BETASHAPE. Ces corrections sont dues à la perte d'énergie de l'électron dans le champ électromagnétique du noyau (photons virtuels et *bremsstrahlung* interne). Elles sont calculées comme décrit dans [17, 27, 28]. Les effets relatifs à cette correction, dans le calcul du spectre, sont faibles. Elles induisent approximativement un écart relatif inférieur ou égal à 1% sur les trois-quarts du spectre.

BETASHAPE a évolué pour tenir compte de l'effet d'échange. Dans un premier temps, l'effet d'échange est calculé selon le formalisme de Harston et Pyper [23] en utilisant les fonctions d'onde analytiques de l'électron liées et du continuum. Dans ce cas, l'écrantage qui peut contribuer significativement au recouvrement des fonctions d'onde liées au fonctions d'onde du continuum, est pris en compte via l'utilisation de charges effectives. Ces développements sont

présentés dans [29]. Ces derniers travaux ont mis en évidence la nécessité de prendre en compte la variation de la charge nucléaire dans l'espace pour corriger proprement de l'effet d'écrantage. Une approche numérique a été implémentée pour calculer de façon exacte les fonctions d'onde de l'électron dans un potentiel coulombien complet, incluant un potentiel d'écrantage et un potentiel d'échange. Une description de ces travaux est donnée dans [30].

Ce chapitre théorique permet d'introduire la classification des transitions β en transitions permises, interdites uniques et interdites non uniques ainsi que la notion centrale de facteur de forme. Il est également important de retenir et de comprendre les hypothèses et les approximations introduites lors du calcul des fonctions d'onde de l'électron et dont dépend la précision du calcul d'un spectre β .

Bibliographie

- [1] H. Behrens and J. Jänecke. *Numerical tables for beta-decay and electron capture*. Landolt-Bornstein, Numerical Data and Functional Relationships in Science Technology, New Series. edited by H. Schopper, Springer-Verlag, Group 1 : Nuclear Physics and Technology, Volume 4, 1969.
- [2] L. N. Zyryanova B. S. Dzhelepov and Yu. P. Suslov. *Beta Processes. Functions for Analysis of Beta Spectra and Electron Capture*. Nauka Press, 1972.
- [3] H. Behrens and L. Szybisz. *Shapes of Beta Spectra*. Physics data. ZAED, 1976.
- [4] W. Wooster C. Ellis. Average energy of disintegration of radium e. *Proy. Soc. A*, 117 :109, 1927.
- [5] E. Fermi. Versuch einer theorie der β -strahlen. i. *Z. Phys*, 88 :161–177, mar 1934.
- [6] C. L. Cowan Jr., F. Reines, F. B. Harrison, H. W. Kruse, and A. D. McGuire. Detection of the free neutrino : A confirmation. *Science*, 124 :103, 1956.
- [7] G. Gamow and E. Teller. Selection rules for the β -disintegration. *Phys. Rev.*, 49 :895–899, Jun 1936.
- [8] E. J. Konopinski. *The Theory of Beta Radio Activity*. International series of monographs on physics. Clarendon P., 1966.
- [9] H. F. Schopper. *Weak interactions and nuclear beta decay*. North-Holland Publishing Company, 1966.
- [10] M. Morita. *Beta Decay and Muon Capture*. W.A. Benjamin, Incorporated, Advanced Book Program, 1973.
- [11] C. S. Wu, E. Ambler, R. W. Hayward, D. D. Hoppes, and R. P. Hudson. Experimental test of parity conservation in beta decay. *Phys. Rev.*, 105 :1413–1415, feb 1957.
- [12] M. Fierz. Zur fermischen theorie des β -zerfalls. *Z. Phys*, 104(7-8) :553–565, 1937.
- [13] M. Goldhaber, L. Grodzins, and A. W. Sunyar. Helicity of neutrinos. *Phys. Rev.*, 109 :1015–1017, Feb 1958.
- [14] A. Kropf and H. Paul. Least squares adjustment of the coupling constants in nuclear beta-decay. *Z. Phys*, 267(2) :129–133, 1974.
- [15] B. Stech and L. Schülke. Nuclear β -decay. i. *Z. Phys*, 179(3) :314–330, 1964.
- [16] L. Schülke. Nuclear β -decay. ii. *Z. Phys*, 179(3) :331–342, 1964.
- [17] H. Behrens and W. Bühring. *Electron Radial Wave Functions and Nuclear Beta-Decay*. The International Series of Monographs on Physics Series. Clarendon Press, 1982.
- [18] W. Gerlach and O. Stern. Das magnetische moment des silberatoms. *Z. Phys.*, 9(1) :353–355, 1922.
- [19] W. Gerlach and O. Stern. Der experimentelle nachweis der richtungsquantelung im magnetfeld. *Z. Phys.*, 9(1) :349–352, 1922.
- [20] P. A. M. Dirac. The quantum theory of the electron. *Proy. Soc. Lond. A*, 117(778) :610–624, 1928.
- [21] M. E. Rose. *Relativistic electron theory*. Wiley and Sons, 1961.
- [22] W. Bühring. Beta decay theory using exact electron radial wave functions : (iii). the influence of screening. *Nucl. Phys.*, 61 :110, 1965.
- [23] M. R. Harston and N. C. Pyper. Exchange effects in beta decays of many-electrons atoms. *Phys. Rev. A*, 45 :6282, 1992.

- [24] N. C. Pyper and M. R. Harston. Atomic effect on beta-decay. *Proy. Soc. Lond. A*, 420 :277–321, 1988.
- [25] X. Mougeot *et al.* Calculation of beta spectra for allowed and unique forbidden transitions. In Philippe Cassette, editor, *LSC2010*, pages 249–257. Radiocarbon, University of Arizona, september 2010.
- [26] R. H. Good. Effect of atomic electron screening on the shape of forbidden beta spectra. *Phys. Rev.*, 94 :931–933, May 1954.
- [27] W. Jaus. Electromagnetic corrections of order $z\alpha^2$ and $z^2\alpha^3$ to fermi β -decays. *Phys. Lett. B*, 40(6) :616 – 620, 1972.
- [28] A. Sirlin. General properties of the electromagnetic corrections to the beta decay of a physical nucleon. *Phys. Rev.*, 164 :1767–1775, Dec 1967.
- [29] X. Mougeot, M.-M. Bé, C. Bisch, and M. Loidl. Evidence for the exchange effect in the beta decay of ^{241}Pu . *Phys. Rev. A*, 86 :042506, 2012.
- [30] X. Mougeot and C. Bisch. Consistent calculation of the screening and exchange effects in allowed β^- transitions. *Phys. Rev. A*, 90 :012501, 2014.

Chapitre 3

Dispositif expérimental

Dans cette étude nous cherchons à analyser la forme des spectres β et donc à connaître avec précision la distribution en énergie d'une particule β issue d'une désintégration radioactive. On parle alors de spectrométrie β . La méthode consiste à mesurer le signal qui fait suite à l'interaction de la particule dans le détecteur. Une électronique adaptée permet ensuite de traiter le signal, d'en extraire son amplitude et enfin d'incrémenter les canaux d'un histogramme en fonction de la valeur de cette amplitude. Pour un détecteur silicium, étant donné que l'amplitude de l'impulsion est proportionnelle à l'énergie déposée, il est possible de remonter jusqu'au spectre en énergie du rayonnement à partir de l'histogramme mesuré. Il faut auparavant avoir établi la relation de correspondance entre le numéro de canal et l'énergie, ce qui est fait en étalonnant le détecteur à l'aide d'une source de raies monoénergétiques dont les énergies sont bien établies.

Une difficulté majeure de la spectrométrie β est que le spectre mesuré peut différer fortement du spectre du rayonnement émis. En effet, la forme du spectre mesuré peut être déformée :

- par la détection : la résolution finie, le rendement intrinsèque ainsi que l'épaisseur des zones mortes du détecteur.
- par les phénomènes physiques : la diffusion et la rétrodiffusion des électrons sur les matériaux environnants et sur le détecteur lors de la mesure, le phénomène de bremsstrahlung qui conduit à l'apparition d'un fond Compton dans le spectre ou encore l'auto-absorption du rayonnement au sein de la source radioactive.

Ce chapitre présente le spectromètre β que nous avons réalisé et dont la conception tient compte des besoins spécifiques de la spectrométrie β . Nous commencerons par une description globale du montage expérimental, puis nous détaillerons les différents éléments.

3.1 Géométrie du dispositif

La géométrie globale du montage a été pensée afin de limiter au maximum les déformations du spectre liées à la diffusion des particules et à la résolution finie du détecteur. Pour ces raisons le détecteur est refroidi et la chambre de détection doit être sous vide poussé (10^{-3} – 10^{-7} mbar¹). Cette dernière précaution permet de limiter la diffusion des électrons mais aussi, et surtout, d'éviter que l'humidité ne se condense sur la surface froide du détecteur refroidi. Les vibrations générées par le fonctionnement continu de la pompe à vide vont contribuer à dégrader le rapport signal-sur-bruit du détecteur et doivent être atténuées autant que possible.

1. Le pascal (symbole : Pa) est l'unité de pression reconnue par le Système international d'unités (SI). Cependant, nos instruments de mesure sont en millibar (mbar) c'est donc l'unité que nous utiliserons. $1 \text{ Pa} = 10^{-2} \text{ mbar}$

Une première étude de faisabilité avait été faite en 2010 [1]. Elle avait mis en évidence un certain nombre d'autres critères à respecter :

- le temps de pompage ne devait pas être trop long afin de gagner du temps et de pouvoir mesurer des radionucléides avec une période relativement courte,
- la source devait être accessible rapidement pour les mêmes raisons,
- un positionnement horizontal de la source était préférable pour éviter tout risque de contamination.

Enfin, nous disposons de deux détecteurs, un détecteur de type PIPS et un détecteur Si(Li). Étant donné que ces détecteurs possèdent des géométries proches mais n'ont pas exactement les mêmes dimensions, le dispositif devait être suffisamment modulaire pour passer facilement de l'un à l'autre.

Conception Assistée par Ordinateur

La figure (3.1) présente une vue de face obtenue par Conception Assistée par Ordinateur (CAO) du dispositif expérimental. Nous avons eu recours au logiciel de CAO SolidEdge édité par Siemens pour fabriquer virtuellement les prototypes de ce dispositif expérimental. L'utilisation de cet outil a été d'une aide précieuse pour réaliser ce projet, notamment afin de disposer de plans détaillés et d'images 3D de la maquette virtuelle. Ces supports ont grandement facilité les échanges avec nos collègues lors des différentes discussions de validation du prototype, et par la suite avec les ingénieurs d'étude de l'atelier de mécanique de Strasbourg en charge de la conception finale du montage.

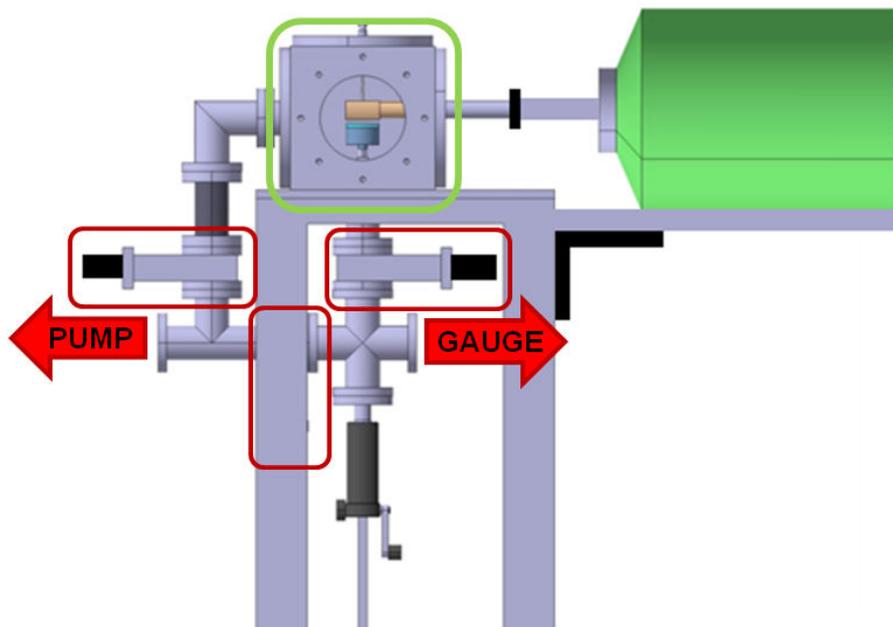


FIGURE 3.1 – Dessin technique par CAO du spectromètre β retravaillé par C. Schwab du CNRS à Strasbourg. La chambre de détection est indiquée par un rectangle vert et les vannes tiroirs par les rectangles rouges.

La chambre de détection

La chambre de détection, qui apparaît dans le cadre vert sur la figure (3.1), est l'élément central du dispositif. Elle a été conçue à partir d'un bloc d'un alliage d'aluminium (duralu-

minium) de 170 mm de côté dont les six faces ont été creusées avec une fraise de 100 mm de diamètre. Les choix du matériau et des dimensions de la chambre de détection ont fait l'objet d'une attention particulière. En effet, plus les côtés du bloc de matériau initial étaient grands, plus il devenait facile d'enlever de la matière en son sein et ainsi de limiter les phénomènes de diffusion par la suite. Cependant, il fallait également tenir compte de l'encombrement et du temps de pompage qu'occasionnerait un cube de dimensions importantes. En réalisant des simulations Monte Carlo, nous avons pu vérifier que l'aluminium, de numéro atomique plus faible, était moins diffusant que l'acier inoxydable. Ces simulations nous ont permis d'optimiser la chambre de détection. Elles sont détaillées au paragraphe (3.6.5).

Six brides viennent ensuite fermer la chambre de détection.

- Sur le haut de la chambre de détection, la bride est traversée par un connecteur BNC-Microdot. Deux fils de cuivre simples, partant du connecteur, sont reliés au détecteur situé au centre de la chambre de détection. Le premier fil transporte l'information et la haute tension afin de polariser le détecteur, le second permet de s'assurer de la mise à la masse du détecteur. Ces éléments sont visibles sur la figure (3.2). De l'autre côté de la bride, à l'extérieur de la chambre de détection, un préamplificateur est directement branché au connecteur BNC. Nous avons ainsi réduit, autant que possible, la distance entre le détecteur et le préamplificateur afin de minimiser les effets capacitifs et de maximiser le rapport signal-sur-bruit.
- La bride située à l'arrière du cube permet de connecter une jauge à vide afin de mesurer la pression au sein de la chambre de détection. Cette information est nécessaire pour s'assurer de l'étanchéité de la chambre de détection. Par ailleurs, la jauge permet indirectement de s'assurer du refroidissement du détecteur puisque la pression diminue quand la température baisse².
- La bride de gauche et celle située en dessous sont reliées au système de vannes qui permet d'isoler la chambre de détection et d'y maintenir le vide lors du changement de la source.
- La bride de droite est traversée par un doigt froid en cuivre qui transporte le froid depuis le Dewar situé à l'extérieur de la chambre jusqu'au détecteur. Ce dernier est contenu dans un porte-détecteur en cuivre qui est fixé au doigt froid à l'aide d'un collier de serrage (voir figure (3.2)).
- Enfin, la bride placée à l'avant du cube est pleine. Elle permet d'accéder facilement à l'intérieur de la chambre, ce qui est particulièrement utile pour certaines manipulations et observations.

Le porte-détecteur permet le refroidissement homogène du détecteur. Quand l'ensemble est refroidi, le point froid principal est le porte-détecteur, et non le détecteur lui-même. Ainsi, s'il y a une entrée d'air, la condensation de l'humidité aura lieu préférentiellement sur le porte-détecteur plutôt que sur la surface d'entrée du détecteur, ce qui impliquerait une zone morte supplémentaire. Chaque détecteur possède son propre porte-détecteur, adapté à ses dimensions, et qui est toujours centré dans la chambre de détection. Ainsi le positionnement du détecteur est toujours le même et également au centre de la chambre de détection.

Pour finir, la chambre de détection est fixée sur un lourd châssis qui assure d'une part la

2. Le doigt froid agit comme un piège à froid sur lequel vont venir se condenser les molécules encore présentes dans la chambre de détection.



FIGURE 3.2 – Vue avant de l’intérieur de la chambre de détection. Le porte-détecteur et les deux fils, qui connectent le détecteur à la chaîne d’acquisition, sont visibles sur l’image. Une bague de serrage permet de fixer le porte-détecteur au doigt froid.

stabilité de l’ensemble, et d’autre part l’atténuation des vibrations générées par la pompe à vide grâce à des pieds anti-vibrations.

Positionnement de la source

Comme le détecteur est centré dans la chambre de détection, la source est acheminée par le dessous du cube afin de s’assurer de son alignement avec le détecteur. La source est placée horizontalement dans un porte-source, lui-même fixé sur une canne de translation graduée qui est illustrée sur la figure (3.3). Cette graduation est utilisée afin de contrôler la distance entre la source et le détecteur. La canne de translation a une course de 152 mm, ce qui permet, dans la configuration finale du dispositif, une distance minimale entre la surface de la source et la surface du détecteur d’environ 8.5 mm. Nous souhaitions pouvoir jouer sur la distance entre le détecteur et la source afin d’étudier la déformation des spectres en fonction de la distance. Pour répondre plus spécifiquement à nos besoins, nous avons demandé au constructeur de nous fournir la même canne de translation avec une course de 162 mm. Avec cette nouvelle canne, le porte-source peut venir au contact du porte détecteur, la distance entre le surface du détecteur et la surface de la source est alors minimale, environ 5 mm.

Le porte-source est en PEEK (*polyether ether ketone*), un polymère organique qui convient particulièrement aux applications sous vide car il a l’avantage de peu dégazer. Deux encoches situées sur les flancs du porte-source garantissent un bon équilibre des pressions de part et d’autre de la source. Cette précaution est nécessaire pour ne pas abîmer la source lors de la mise sous vide, ou en cas de variations de pression brutales et accidentelles. Des simulations Monte Carlo ont été réalisées pour s’assurer que le PEEK était bien un matériau peu diffusant, et afin de déterminer la géométrie qui limite au mieux la diffusion des électrons sur le porte-source. Cette étude est détaillée au paragraphe 3.6.6. Le connecteur BNC visible sur la photo (3.4) sert uniquement comme système d’accroche entre le porte-source et la canne de translation.

Pour changer la source, la canne de translation est démontée au niveau de la croix (voir figure (3.1)). Auparavant, il faut prendre la précaution d’isoler la croix en fermant la vanne du milieu et celle de droite. Cette action permet d’éviter une remise à l’air de la chambre de détection dont les conséquences seraient d’une part la formation d’une gangue de glace autour du porte détecteur lorsque celui-ci est froid, et d’autre part de devoir pomper, à chaque

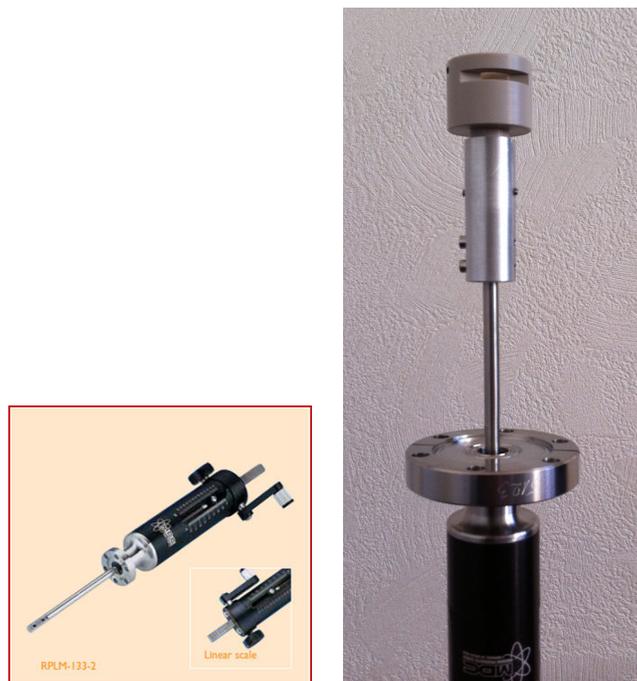


FIGURE 3.3 – À gauche, une image de la canne de translation qui est graduée en millimètres. À droite, une photographie de la canne avec le porte source et la pièce d'accroche dans laquelle le porte-source vient s'enchâsser, et qui est d'autre part vissée sur le bout de la canne de translation.

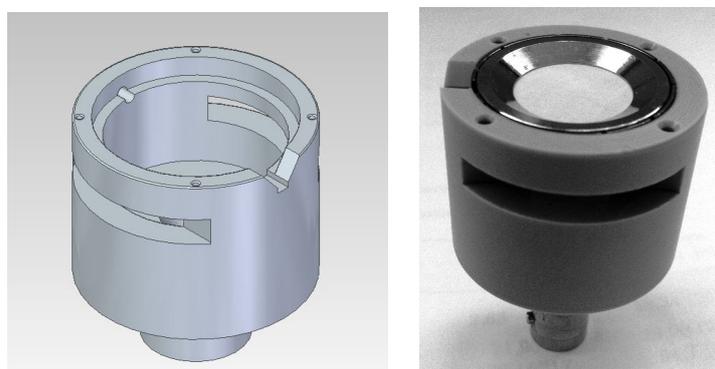


FIGURE 3.4 – À gauche, une vue en 3D, conçue par CAO, du porte-source. À droite, une photographie du porte-source en présence d'une source.

changement de source, le volume d'air contenu dans la chambre. Une fois la canne remise en place avec la nouvelle source à mesurer, la vanne de gauche est fermée puis celle du milieu est progressivement ouverte. La chambre de détection ainsi isolée, le pompage n'a lieu que dans la croix. La pompe à vide n'étant pas faite pour supporter des différences de pression importantes, il faut faire preuve de délicatesse lors de cette manipulation. Au bout d'environ cinq minutes, la pression dans la croix atteint les 10^{-4} mbar. Cette pression est contrôlée grâce à une seconde jauge à vide localisée à droite de la croix. La différence de pression entre le cube et la croix est alors suffisamment faible pour procéder à l'ouverture de la vanne de gauche puis, dans la foulée, de la vanne de droite, le pompage se fait alors dans l'ensemble du dispositif. Au bout d'un quart d'heure, la pression au niveau de la chambre de détection et de la croix est de 10^{-7} mbar à froid. La source est alors insérée dans la chambre de détection à l'aide de la canne

de translation. Le dispositif est opérationnel pour la mesure.

Une photographie de l'ensemble du dispositif expérimental est présentée figure (3.5).

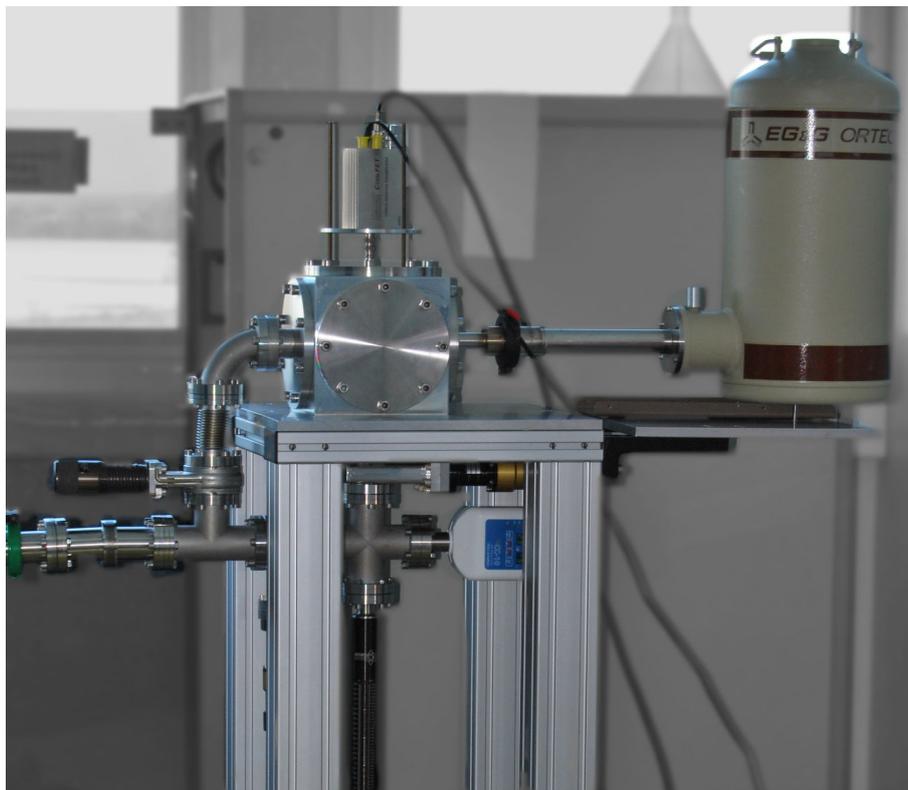


FIGURE 3.5 – Photographie du dispositif expérimental.

3.2 Contraintes expérimentales

3.2.1 Montage sous vide

Les phénomènes de diffusion participent fortement à la déformation du spectre mesuré. Par conséquent, il est primordial de les limiter autant que possible. Afin de réduire au maximum les interactions des électrons avec les molécules d'air, nous avons décidé de placer le détecteur et la source sous un vide secondaire, c'est-à-dire inférieur à 10^{-3} mbar. Lorsque le détecteur est refroidi, la vapeur d'eau contenue dans l'air peut venir se condenser sur le point froid et former une zone morte supplémentaire. Dans ce cas, il devient d'autant plus important d'atteindre une très bonne qualité de vide. Nous nous sommes donc fixés comme objectif d'atteindre l'ultravide (10^{-7} à 10^{-10} mbar). La pompe, les vannes tiroirs ainsi que le type de brides utilisées dans le montage ont été choisis en conséquence.

Groupe de pompage, vannes tiroirs et raccords pour le vide

Un groupe de pompage Drytel 1025 de chez Adixen, posé sur un tapis anti-vibration, est utilisé pour faire le vide dans le dispositif. Un flexible souple (*tombac*) d'environ 1 m permet d'éloigner la pompe du reste du montage. Le tombac est connecté à un soufflet, visible tout à fait à gauche de l'image (3.5), qui isole un peu plus le dispositif des vibrations de la pompe.

Le pompage primaire, effectué par une pompe sèche à membrane, permet d'évacuer l'air de l'enceinte jusqu'à environ 1 Pa (10^{-2} mbar). Ensuite, une pompe turbo-moléculaire, la pompe secondaire, prend le relais pour atteindre le domaine du vide poussé puis de l'ultravide. À ces pressions, l'état du gaz est raréfié et son régime d'écoulement est moléculaire : c'est le domaine du vide moléculaire.

Les vannes tiroirs utilisées ont été conçues pour des applications ultravide. Elles permettent de réguler le flux d'air en ouvrant, fermant ou obstruant un passage. Une vanne tiroir se compose d'un actionneur, d'une porte et du corps de la vanne (figure (3.6)). Lorsque la porte est complètement ouverte toute la section est libre permettant le passage des gaz ou du porte-source. Dans notre dispositif, les actionneurs sont manuels.

Il existe plusieurs types de brides pour raccorder les différents composants du montage :

- **Composants à bride KF.** Chaque embout de tubulure se raccorde par l'intermédiaire d'un anneau de centrage portant le joint d'étanchéité. L'assemblage est maintenu par le collier de serrage qui agit sur les embouts.
- **Composants à bride à griffes ISO KF.** Les embouts sont raccordés par l'intermédiaire d'un anneau de centrage et d'un joint d'étanchéité. L'ensemble est maintenu par des boulons à griffes. L'étanchéité est de haute qualité, le vide allant jusqu'à 10^{-7} mbar.
- **Composants à bride à couteau CF.** L'étanchéité des raccords est obtenue par l'interposition d'un joint plat en cuivre entre les couteaux des 2 brides de type CF (voir figure (3.6)). Ce principe assure une étanchéité permettant un vide jusqu'à 10^{-13} mbar.

Pour l'ultravide, les brides ISO KF et CF sont fortement recommandées. Étant donné que le montage n'avait pas à être démonté et que nous voulions atteindre le meilleur vide possible, les brides CF étaient le choix le plus pertinent. Seuls les raccords avec la pompe et ceux des brides de la chambre de détection sont de type KF.

Enfin, pour faciliter le pompage dans l'ensemble du dispositif, nous avons choisi des raccords avec une section de 40 mm de diamètre sur l'ensemble du dispositif.

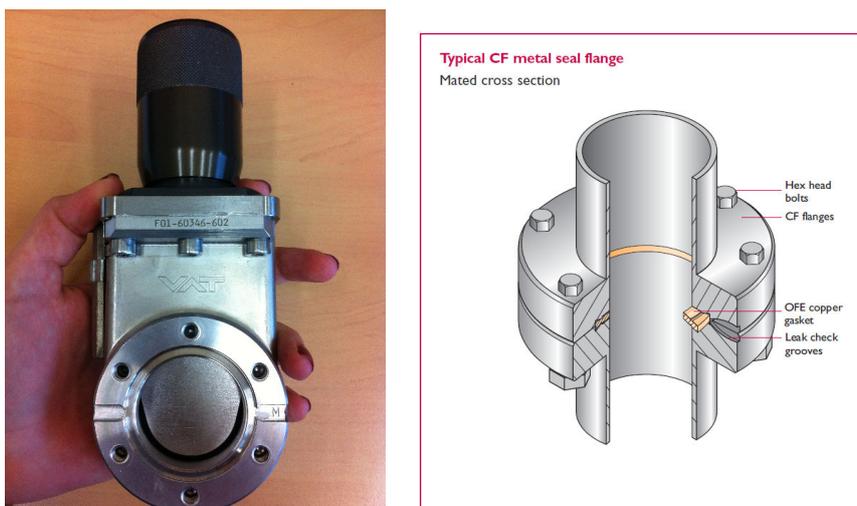


FIGURE 3.6 – À gauche, photo d'une vanne tiroir. À droite, schéma illustrant une bride de type CF.

Mesure du vide

Pour contrôler les pressions à l'intérieur du montage, des jauges à vide *Wide Range* sont utilisées. Elles sont capables de couvrir un domaine de pression allant de la pression ambiante jusqu'à 10^{-9} mbar. La première, un modèle Edwards WRG-S-NW25, mesure la pression de la chambre de détection. La seconde, un modèle Tevac CC-10-C40, est placée au niveau du sas où a lieu le changement de la source. Les deux modèles fonctionnent sur une technologie hybride couplant deux modules.

La jauge WRG combine une jauge Pirani et une jauge à cathode froide magnétron inverse. La jauge Pirani évalue indirectement la pression en mesurant la dissipation thermique d'un filament chauffant dans un gaz. Le transfert thermique par conduction est proportionnel à la concentration du gaz dans l'enceinte et donc à la pression. Lorsque la pression est inférieure à $5 \cdot 10^{-2}$ mbar, le libre parcours moyen des molécules de gaz est grand devant le diamètre du filament. Les pertes d'énergie par conduction sont alors négligeables et il devient difficile de mesurer la pression par cette méthode.

Dans le domaine du vide secondaire ($10^{-3} - 10^{-7}$ mbar), la jauge magnétron inverse prend le relais. La mesure de la pression est déduite du courant ionique produit par une décharge dans un champ électrique et en présence d'un champ magnétique. Le mécanisme de la décharge est le suivant : les ions et les électrons soumis d'une part à l'action du champ électrique dont le signe s'inverse dans le plan de l'anode, d'autre part à celle du champ magnétique, décrivent des hélices d'axe parallèle au champ magnétique. Les ions et les électrons parcourent ainsi un trajet relativement long avant leur capture par les électrodes et peuvent ioniser un grand nombre de molécules. Le nombre de molécules ionisées, donc le courant, est proportionnel au nombre de molécules, donc à la pression.

La jauge Tevac CC-10-C40 est également composée d'un magnétron inverse mais la jauge primaire repose sur un principe différent. Il s'agit d'un oscillateur à quartz. La pression mécanique exercée par les molécules de gaz sur la surface du matériau piézoélectrique crée des charges qu'il est possible de mesurer électriquement. Le signal électrique est ensuite converti en unité de pression.

3.2.2 Refroidissement du détecteur

Les semi-conducteurs au silicium peuvent fonctionner à température ambiante mais la contribution des courants de fuite au bruit est alors importante. La résolution du détecteur peut être améliorée en le refroidissant. Notre détecteur est refroidi à la température de 77 K, soit -196.15 °C, en utilisant de l'azote liquide. À cette température, les courants de fuite sont compris entre 10^{-9} et 10^{-12} A. En pratique, le refroidissement se fait par simple contact thermique, par l'intermédiaire du porte-détecteur, du détecteur avec le doigt froid en cuivre qui plonge dans un réservoir isolé thermiquement du milieu extérieur dans lequel est conservé l'azote liquide (le vase *Dewar*). Ses performances ne sont pas altérées à cette température.

Le refroidissement à l'azote liquide présente l'avantage de ne pas produire de vibrations mécaniques et c'est une méthode très accessible puisqu'elle est couramment utilisée au laboratoire. Toutefois, il existe des alternatives à cette méthode. Des systèmes commerciaux basés sur le cycle de Solvay produisent suffisamment peu de vibrations pour être utilisés quand le détecteur est en fonctionnement. Des modules Peltier montés en série peuvent également être utilisés mais ils sont limités à une température minimale de quelques dizaines de °C. Ces solutions seraient à envisager si le refroidissement à l'azote liquide n'était pas possible, ce qui n'est pas le cas ici.

En pompant directement dans le Dewar, nous avons constaté qu'il était difficile d'atteindre un vide inférieur à 10^{-2} mbar. Nous avons donc décidé d'isoler le Dewar de la chambre de détection. La première solution envisagée consistait à simplement souder le doigt froid à la bride. Mais une soudure métal sur métal aurait induit une déperdition thermique importante. Il fallait donc trouver un moyen d'isoler la chambre de détection du Dewar tout en assurant un bon refroidissement du détecteur. Les ingénieurs de l'atelier de mécanique de Strasbourg nous ont proposé une solution utilisant un joint de colle, visible sur l'image de la figure (3.7).

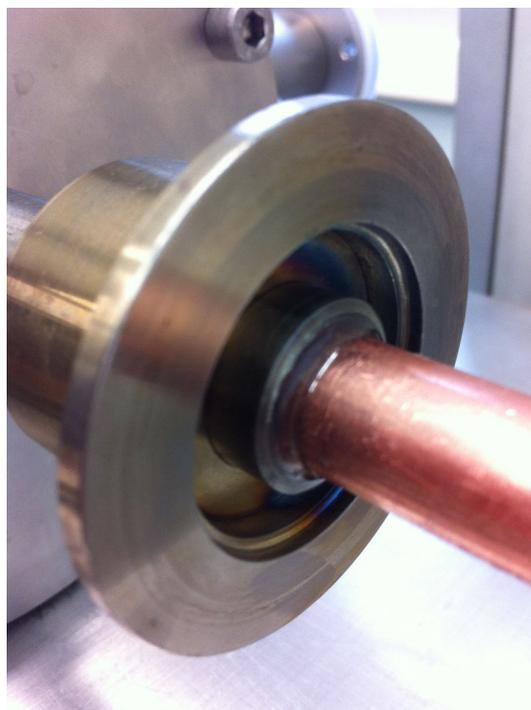


FIGURE 3.7 – Le joint de colle assure l'étanchéité de la chambre de détection. En fonctionnement, le doigt froid s'enclasse dans une pièce en cuivre en contact avec l'azote liquide contenue dans le Dewar. L'embout visible sur la photo est de type KF.

La colle utilisée est un adhésif époxyde bi-composant ARALDITE 2011 adapté aux collages des métaux et qui présente une bonne tenue aux sollicitations dynamiques. Les tests réalisés à l'atelier de mécanique ont démontré une bonne résistance du joint de colle à l'azote liquide. Cependant, une fois en place, les contraintes de froid et de contraction du barreau de cuivre, après plusieurs cycles de refroidissement, ont fragilisé le joint de colle causant des microfissures. En régime continu, la pression n'était pas altérée par ces microfissures. Mais lors des remplissages d'azote, les contraintes sur le barreau de cuivre occasionnaient des sauts de pression de plusieurs ordres de grandeur. Il n'était pas envisageable de réaliser des mesures dans des conditions expérimentales instables. Dans un premier temps, les fissures ont été colmatées en ajoutant de la colle sur le joint. Cette réparation superficielle n'a pas résisté longtemps et une solution pérenne a dû être envisagée.

Nous avons finalement imaginé une solution, que nous avons rejetée lors de la conception, qui consiste à pomper le volume d'air entre le joint de colle et le Dewar. Pour cela, nous avons cherché un nouveau Dewar avec une meilleure étanchéité. Le joint de colle a été conservé pour maintenir le barreau de cuivre. Le volume d'air est pompé directement grâce à l'ajout d'une vanne comme illustré sur le schéma de la figure (3.8). Pour réaliser cela, le tuyau en inox a été percé puis un tube de 6 mm de diamètre y a été soudé. La vanne est ensuite fixée sur ce tube. À la place du « té » visible à gauche sur les images des figures (3.1) et (3.5), nous avons installé

une croix. Un tombac est connecté de la base de la croix à la vanne située au niveau du Dewar. Quand cette vanne est ouverte, le volume d'air derrière le joint de colle est pompé.

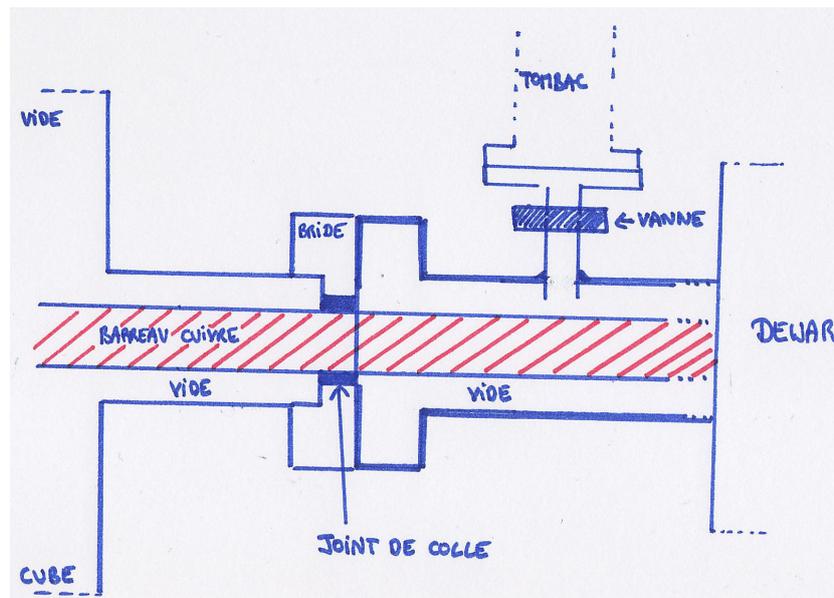


FIGURE 3.8 – Schéma de la zone entre la chambre de détection et le Dewar.

En ajoutant les pièces décrites dans le paragraphe précédent, nous avons augmenté le volume d'air à pomper. De plus, nous sommes maintenant en présence d'un nombre de raccords plus important. Par conséquent, nous ne sommes plus en mesure d'atteindre des pressions inférieures à 10^{-7} mbar à froid comme ce fut le cas avec la première configuration du dispositif expérimental. Cependant, nous avons mis en évidence, à l'aide de simulations Monte Carlo détaillées au paragraphe 3.6.3, qu'avec une pression de 10^{-3} mbar les interactions des électrons avec les molécules sont négligeables. Or, nous atteignons un vide de l'ordre de $5 \cdot 10^{-6}$ mbar, ce qui est tout à fait satisfaisant. Avec cette qualité de vide, les rares molécules d'eau contenues dans l'air iront s'adsorber préférentiellement sur le porte-détecteur dont la température est inférieure à celle de la surface du détecteur. Enfin, nous descendons suffisamment bas en pression pour ne pas être inquiétés par la remontée d'un ordre de grandeur de la pression au sein de la chambre de détection lors du changement de la source.

Le mode opératoire à suivre lors d'un changement de source a déjà été décrit précédemment. Nous revenons rapidement dessus pour préciser l'utilisation de la nouvelle vanne. Suite à un changement de source, une entrée d'air a lieu. La chambre de détection, qui a préalablement été isolée en fermant des vannes, reste sous vide. La nouvelle vanne doit également avoir été fermée. Quand la croix est refermée, le pompage a uniquement lieu à son niveau. Quand la différence de pression entre la chambre de détection et la croix est suffisamment faible, toutes les vannes peuvent être rouvertes, y compris la nouvelle.

Le nouveau Dewar, d'un volume plus important, est posé sur un second châssis fabriqué pour l'occasion. Un Dewar de ce volume positionné en hauteur est discutable d'un point de vue pratique. Mais les contraintes en termes de budget et de temps nous ont poussés à être astucieux et à utiliser au maximum les ressources dont nous disposons au laboratoire. Finalement, l'ensemble du dispositif expérimental est sûr et ne présente aucun risque de sécurité.

La principale difficulté rencontrée au cours de ce travail concerne l'absence d'étanchéité de la chambre de détection causée par les microfissures du joint de colle. Plusieurs solutions ont été testées avant de trouver la bonne, occasionnant un arrêt de plusieurs mois de l'expérience. Nous disposons aujourd'hui d'un dispositif opérationnel et stable présenté sur la figure (3.9).



FIGURE 3.9 – Photographie du « nouveau » dispositif expérimental.

3.3 Détection

Dans le chapitre 1.2.4, nous avons passé en revue les différentes techniques de détection employées pour mesurer des spectres β . Les propriétés des semi-conducteurs au silicium sont particulièrement bien adaptées aux exigences de la spectrométrie β et c'est donc cette technologie que nous avons choisi d'utiliser.

Il existe différents types de semi-conducteur au silicium. Les détecteurs passivés et implantés,



FIGURE 3.10 – La figure de gauche représente des détecteurs PIPS de différents diamètres. Sur l'image de droite sont visibles des détecteurs de type Si(Li).

à barrière de surface ou compensés au lithium en sont des exemples. Le principe de fonctionnement des semi-conducteurs, décrit au chapitre 1.2.4, reste valable quelle que soit la technologie utilisée, mais les processus de fabrication et quelques caractéristiques diffèrent toutefois. Nous disposons de deux détecteurs, un détecteur de type passivé et implanté (PIPS) et un détecteur compensé au lithium (Si(Li)).

Les détecteurs de type passivé et implanté (à gauche sur la figure (3.10)) ont des caractéristiques particulièrement intéressantes pour notre application. Les courants de fuite, qui peuvent contribuer fortement au bruit électronique, sont très faibles car les bords de la jonction sont contenus à l'intérieur du volume de cristal de silicium. Par ailleurs, le dopage du cristal se fait

par implantation ionique, ce qui permet de réduire à une épaisseur de l'ordre de la centaine de nanomètres, équivalent SiO_2 la zone morte à l'entrée du détecteur. Étant donné que les électrons perdent de l'énergie dans cette zone morte, il est important qu'elle soit aussi mince que possible. Enfin, les surfaces sont aluminisées afin de créer les contacts ohmiques en face avant et arrière du détecteur. Une surface aluminisée présente l'avantage d'être robuste et peu sujette aux dégradations extérieures. Il est ainsi possible de manipuler ce type de détecteur sans gants et sa surface peut être nettoyée à l'aide d'un simple chiffon et d'un peu d'isopropanol. Ces détecteurs sont idéaux pour la spectrométrie β , leur seul inconvénient étant que les modèles commerciaux sont limités à des épaisseurs de volume actif de 1 mm .

Pour mesurer des spectres β avec une énergie maximale de quelques MeV, un détecteur de 1 mm d'épaisseur de volume actif n'est pas suffisant. Il faut donc utiliser un autre type de détecteur silicium. Les détecteurs silicium compensés au lithium, communément appelés Si(Li), sont fabriqués en utilisant la technique de l'entraînement au lithium. Cette technique permet d'atteindre des volumes actifs faisant jusqu'à 10 mm d'épaisseur. À cause de l'épaisseur de cette zone, les courants de fuite contribuent significativement au bruit à température ambiante. Il est donc nécessaire de refroidir le détecteur pour améliorer ses performances. Le processus de fabrication des Si(Li) implique une épaisseur de zone morte à l'entrée du détecteur plus importante que sur les détecteurs passivés et implantés. Ces détecteurs doivent être manipulés avec précaution et en utilisant des gants.

3.3.1 Détecteur PIPS

Le détecteur PIPS (Passivated Implanted Planar Silicon) (figure (3.10)) est fabriqué par Canberra. Selon les données du constructeur, sa fenêtre d'entrée est de 50 nm d'épaisseur en équivalent silicium. Les courants de fuite sont faibles comparés à d'autres types de semi-conducteurs au silicium. Le PIPS pourrait être utilisé à température ambiante. Cependant, nous avons choisi de le refroidir afin d'améliorer ses performances. En effet, la figure (3.11) illustre la mesure d'une source de ^{109}Cd réalisée à température ambiante puis avec le détecteur refroidi à la température de l'azote liquide. Le gain en résolution et en seuil apparaît clairement.

Le cristal de silicium a une épaisseur de 500 μm et une surface de 450 mm^2 . Une interpolation linéaire dans les tables de *range* des électrons dans le silicium [2] nous donne une distance parcourue d'environ 500 μm pour une énergie de 320 keV. En utilisant la formule empirique, équation (1.7), un électron d'environ 390 keV est arrêté dans 500 μm de silicium. En première approximation, nous considérons que des spectres ayant une énergie maximale inférieure à 390 keV peuvent être mesurés avec le détecteur PIPS de 500 μm .

La surface du détecteur est de 450 mm^2 , soit un diamètre d'environ 24 mm. La résolution d'un semi-conducteur dépend de ses dimensions, comme nous le précisons par la suite. Avec une surface plus petite, nous pourrions atteindre une résolution plus fine. Cependant, cela se ferait au détriment du taux de comptage. La taille des sources que nous utilisons est typiquement d'une dizaine de millimètres de diamètre. Ainsi, lorsqu'elles sont mesurées au plus près du détecteur, nous atteignons une efficacité géométrique d'environ 20 % de l'espace total.

Radiographie du détecteur

Des différences significatives peuvent exister entre les données du constructeur et les caractéristiques réelles du détecteur [3]. Nous avons donc fait radiographier le détecteur par notre collègue B. Rattoni du Laboratoire Images, Tomographie et Traitement (LITT), du Département Imagerie Simulation pour le Contrôle (DISC). Les radiosgraphies du détecteur ont été numérisées. Pour traiter et analyser les images nous avons utilisé le logiciel libre IMAGEJ. Le

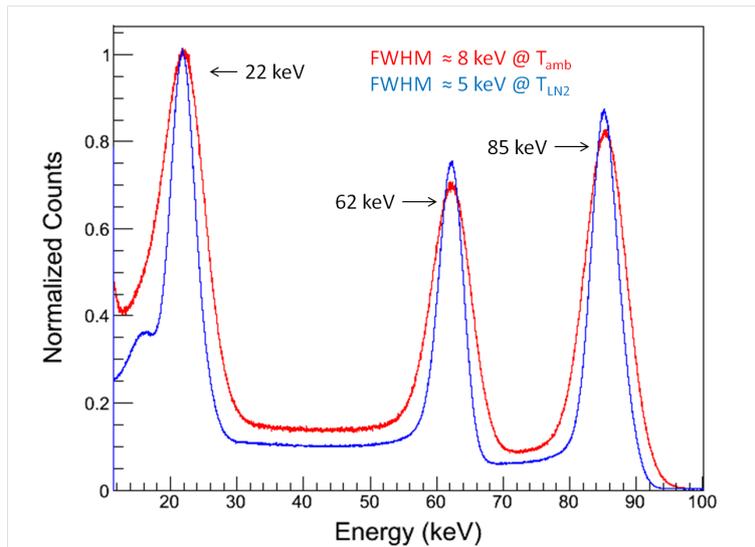


FIGURE 3.11 – Spectre en énergie des électrons de conversion issus d’une source de ^{109}Cd . Le spectre a été mesuré avec le PIPS à température ambiante (courbe rouge) et à 77 K (courbe bleue). Le pic à 85 keV contient les pics des électrons L et M. Le spectre est normalisé selon le pic à 22 keV.

résultat est visible sur la figure (3.12).

Pour estimer les épaisseurs des différents volumes visibles sur l’image (3.12), IMAGEJ dispose

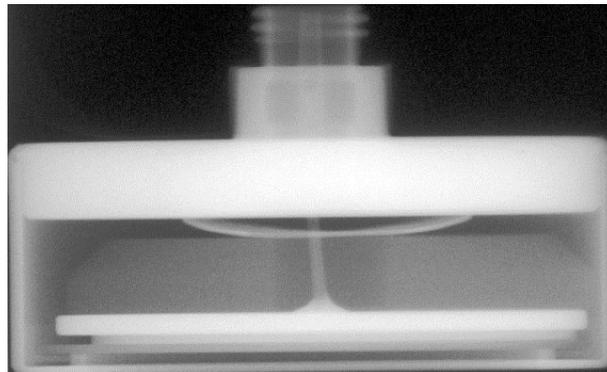


FIGURE 3.12 – Radiographie du détecteur PIPS.

d’un outil, dans l’onglet *Analyze*, qui permet de fixer une échelle en pixels/unité à partir d’une distance connue (*SetScale...*). L’outil de traçage de ligne combiné avec celui de mesure (*Analyze/Measure*) permet alors de déterminer la distance entre deux points.

La radiographie nous apporte de nombreuses informations sur la géométrie du détecteur. Elle permet également d’avoir une idée de la densité des matériaux présents mais aucune information concernant leur composition. Pour cela, nous avons analysé le détecteur par fluorescence X.

Fluorescence X sur le détecteur

Nous disposons au LNHB d’un générateur de rayons X qui permet de faire des études par fluorescence de divers matériaux. Nous avons donc fait appel aux collègues du pôle de spectrométrie γ afin de l’utiliser pour analyser notre détecteur PIPS. Le générateur de rayons X est

constitué d'une haute tension qui alimente un tube à rayons X. Des électrons sont émis par l'échauffement d'un fil de tungstène, la cathode, placée d'un côté du tube à rayons X. Ils sont accélérés par la haute tension jusqu'à ce qu'ils percutent une cible, l'anode. Il se produit alors une émission de rayons X de raies et de bremsstrahlung. Le générateur utilisé a une tension maximale d'environ 20 kV. Le détecteur est placé au centre de la chambre d'irradiation, visible sur la figure (3.13). Le faisceau de rayons X émerge par le haut de la chambre. Sur la droite de l'image, un détecteur Si(Li) détecte les raies de fluorescence caractéristiques de l'excitation d'un niveau électronique d'un matériau.

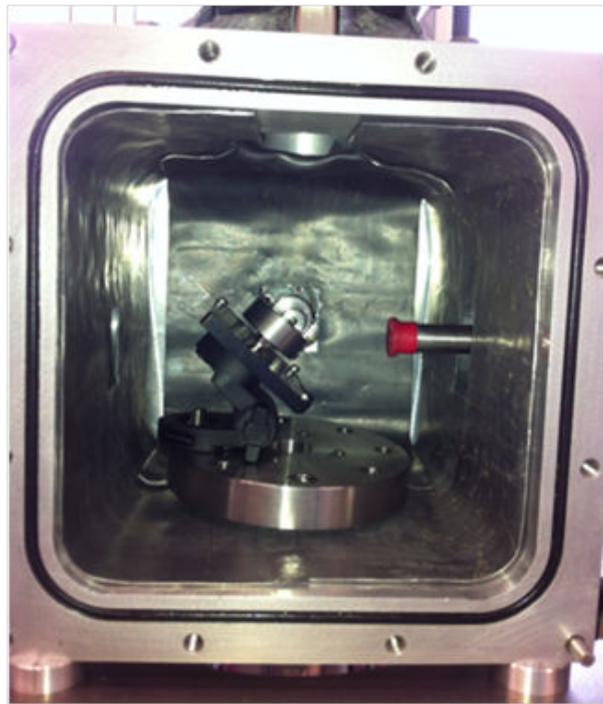


FIGURE 3.13 – Détecteur PIPS dans la chambre d'irradiation du générateur de rayons X.

Les matériaux comme le silicium, l'aluminium, l'oxygène qui entrent nécessairement dans la composition du détecteur, ont des raies de fluorescence en deçà du seuil de détection du détecteur Si(Li). Par contre, nous avons clairement identifié un pic à 22 keV provenant de la fluorescence du niveau $K\alpha$ de l'argent. L'argent n'est pas un matériau que nous nous attendions à trouver dans la composition du détecteur PIPS. Nous avons finalement obtenu de Canberra un plan précis de la géométrie du détecteur et des matériaux entrant dans sa composition. L'argent est contenu dans une pâte thermique placée derrière le disque de silicium et qui assure son bon refroidissement. Lors de l'achat du détecteur, nous avons pris l'option *CY - cryogenic* pour les applications à 77 K, ce qui explique *in fine* la présence de cette pâte thermique. Grâce à la radiographie, la fluorescence X et, finalement, le plan fourni par Canberra, nous avons pu caractériser précisément, en géométrie et en matériaux, le détecteur PIPS. Certaines informations, telles que l'épaisseur des zones mortes et de déplétion, restent néanmoins inaccessibles par ces méthodes d'analyse directes.

3.3.2 Détecteur Si(Li)

Le détecteur PIPS que nous avons caractérisé précédemment est une technologie avantageuse pour la mesure des électrons car sa fenêtre d'entrée est mince. Mais l'épaisseur du volume actif est limitée par le procédé de fabrication et Canberra ne propose pas dans son catalogue des

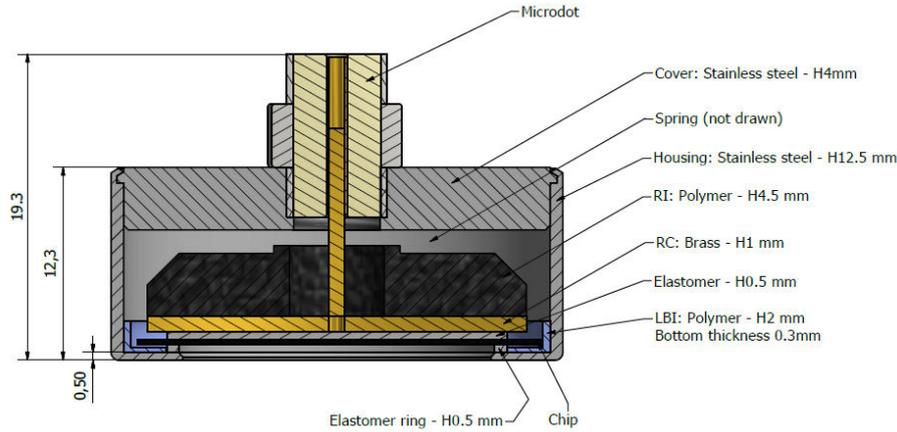


FIGURE 3.14 – Géométrie et matériaux du détecteur PIPS.

détecteurs PIPS avec une épaisseur supérieure à $500 \mu\text{m}$. Pour mesurer des spectres avec une énergie maximale supérieure à 400 keV , le volume actif du détecteur doit être plus important. Dans le cadre du projet MetroMRT, nous avons comme objectif de mesurer le spectre de ^{90}Y , avec $E_{max} = 2279.8 \text{ keV}$. D'après l'équation (1.7), il faut 4.7 mm de silicium pour arrêter un électron de cette énergie. Le procédé de fabrication des détecteurs Si(Li) permet d'obtenir des zones actives épaisses. Le cristal de silicium de notre détecteur a une épaisseur de 5 mm et une surface de 500 mm^2 .

3.4 Électronique de détection

Lorsqu'une particule chargée interagit dans le volume actif du détecteur, une quantité Q de charge est libérée. Pour un semi-conducteur, Q est trop faible pour être directement exploitée. Par conséquent, il est nécessaire d'amplifier le signal avant son enregistrement. C'est le rôle de la chaîne d'acquisition.

L'électronique analogique de détection mise en place à la suite du détecteur est une chaîne classique pour la spectrométrie, composée d'un préamplificateur connecté à des modules dédiés à l'instrumentation nucléaire (*Nuclear Instrumentation Module - NIM*) : une haute tension, un amplificateur et un analyseur multicanal. Dans la suite, les fonctions de ces différents modules vont être détaillées et les paramètres de réglages que nous avons choisis seront explicités.

3.4.1 Câbles

Les câbles coaxiaux qui permettent de transporter les impulsions d'un module à un autre sont blindés pour se protéger des perturbations électromagnétiques. Ces câbles ont généralement une capacité linéique de 50 à 100 pFm^{-1} et une impédance caractéristique de 50Ω . Afin d'éviter certaines déformations dues à une mauvaise adaptation d'impédances (échos entre générateur et récepteur), il peut être nécessaire d'adapter ces impédances. Cela est fait grâce à des bouchons adaptateurs.

3.4.2 Haute tension

La collection des charges aux bornes du détecteur nécessite l'application d'un champ électrique. Il faut polariser le détecteur de manière :

- à maintenir aux électrodes la tension moyenne nécessaire au bon fonctionnement du détecteur,
- à contrôler l'évacuation des charges collectées.

La tension de polarisation préconisée du détecteur PIPS est de 90 V, et de 500 V pour le Si(Li). Pour alimenter les détecteurs, un module haute tension TC 954A HVPS de chez Tennelec est utilisé. Une alimentation haute tension doit remplir les conditions suivantes :

- être réglable pour les tensions imposées par les détecteurs,
- avoir un bruit très faible,
- être stabilisée pour ne pas présenter de dérive au cours du temps.

Dans notre chaîne acquisition, et comme c'est souvent le cas pour des raisons pratiques, la haute tension alimente le préamplificateur qui fournit la tension au détecteur. Pour que le bruit soit faible, un transistor à effet de champ (FET) doit être présent à l'entrée du préamplificateur. Les FETs sont très sensibles à des changements brutaux de tension. La plupart des préamplificateurs commerciaux sont donc dotés d'un circuit de protection qui va ajouter du bruit au niveau du préamplificateur. Pour améliorer le rapport signal-sur-bruit, nous avons pensé à remplacer le module haute tension pour l'alimentation du PIPS par un circuit composé de piles de 9 V en série et d'un potentiomètre. Cette possibilité n'a pas été testée et reste à explorer dans le futur.

3.4.3 Préamplificateur

Le préamplificateur est le premier étage de la chaîne d'acquisition. Il sert d'interface entre le détecteur et le reste de la chaîne. En tant que tel, il a deux fonctions clés :

- adapter la haute impédance du détecteur au reste du circuit, l'impédance du préamplificateur devant être élevée en entrée et basse en sortie afin de préserver le niveau maximum de signal à travers la chaîne ;
- maximiser le rapport signal-sur-bruit.

Il peut être de deux types :

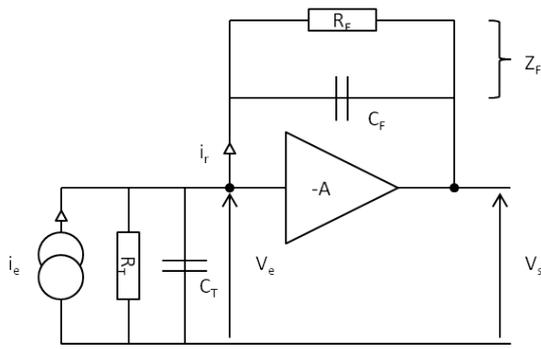
- préamplificateur de tension,
- préamplificateur de charge (PAC).

Dans une configuration sensible à la tension, l'amplitude du signal de sortie est proportionnelle à la charge tant que la capacité du détecteur est constante. Cette condition n'est pas réalisée pour les semi-conducteurs dont la capacité varie avec les paramètres de fonctionnement comme la température, la tension de polarisation du détecteur, ou le câblage. Il faut alors utiliser un préamplificateur de charge dont le schéma de principe est illustré figure (3.15).

Le préamplificateur de charge est constitué d'un amplificateur de tension (dit montage boucle ouverte) auquel on applique une contre-réaction entre les bornes d'entrée et de sortie. Le montage boucle ouverte doit avoir :

- une impédance d'entrée la plus grande possible pour ne pas perturber le signal d'entrée et adapter la grande impédance du détecteur,
- une impédance de sortie la plus faible possible afin de minimiser la perte de signal,
- un gain élevé.

L'intérêt de la contre-réaction est de rendre la tension de sortie indépendante d'une quelconque variation de la capacité du détecteur lors d'un événement. Si les conditions de la figure (3.15)



- Conditions :
- $C_T \ll (1+A)C_F$
 - $R_T \ll (1+A)R_F$
 - $A \gg 1$

FIGURE 3.15 – Schéma du préamplificateur de charges. C_T est la capacité d'entrée équivalente incluant celles du détecteur, de l'élément du préamplificateur et du câblage. R_T est la résistance d'entrée équivalente incluant celles de polarisation et d'entrée du préamplificateur.

sont réalisées, on peut écrire :

$$|V_s(t)| = \frac{Q}{C_F} e^{-t/\tau} \quad (3.1)$$

où $\tau = R_F C_F$ est la constante de temps. L'amplitude maximale du signal de sortie $V_{s_{max}} = -Q/C_F$ ne dépend que de C_F . La résistance de contre-réaction R_F doit être la plus grande possible pour minimiser le bruit. La constante de temps τ est typiquement comprise entre $50 \mu s$ et $500 \mu s$. Le temps de montée du signal de sortie est quant à lui de l'ordre de grandeur du temps de collection des charges du détecteur, c'est-à-dire quelques nanosecondes pour un semi-conducteur. La figure (3.16) illustre la réponse du préamplificateur à un échelon de charge Q .

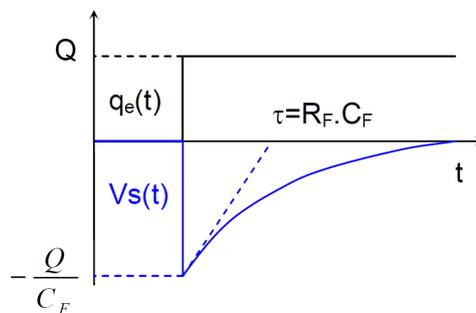


FIGURE 3.16 – Réponse d'un PAC à un échelon de charge Q .

Bruit électronique au niveau du préamplificateur de charge

Le bruit électronique, que l'on peut définir comme n'importe quelle fluctuation indésirable qui se superpose au signal, contribue à dégrader la résolution du détecteur. Le signal sortant d'un semi-conducteur est très faible. Il faut donc être particulièrement attentif à minimiser les sources de bruit avant et dans le préamplificateur. Le bruit peut être classé en deux catégories :

- le bruit parallèle : il est induit par les résistances et le courant de fuite du détecteur. En minimisant C_T et C_F devant R_T et R_F , le bruit est réduit. Dans la pratique, cela consiste surtout à réduire C_T , qui dépend en partie des effets capacitifs du câblage, en plaçant le préamplificateur au plus près du détecteur. Les courants de fuite sont diminués en refroidissant le détecteur.

— le bruit série : son origine est l'élément actif et peut être limité en le refroidissant.

Dans notre dispositif expérimental, nous avons choisi comme préamplificateur un A250CF Co-olFET de chez Amptek dont les caractéristiques techniques sont adaptées à notre application. L'avantage de celui-ci est que le transistor à effet de champ (FET), nécessaire à l'amplification du signal, est refroidi à $-50\text{ }^\circ\text{C}$ à l'aide de modules Peltier. Sa contribution au bruit est donc considérablement réduite.

La capacité du PIPS est égale à :

$$C = \epsilon \frac{S}{e} \quad \text{avec} \quad \epsilon = \epsilon_0 \epsilon_R. \quad (3.2)$$

Avec $S = 450\text{ mm}^2$, $\epsilon_0 = 8.854187817 \cdot 10^{-12}\text{ Fm}^{-1}$ la permittivité du vide [4] et $\epsilon_R = 11.7$ la constante diélectrique du silicium, nous obtenons $C = 93.2\text{ pF}$. La figure de bruit du préamplificateur, fournie par le constructeur, nous donne la contribution du PAC à la largeur à mi-hauteur (*Full Width at Half Maximum* - FWHM) en fonction de la capacité du détecteur. En s'y rapportant, nous trouvons que la contribution du bruit à la FWHM pour ce détecteur est d'environ 2 keV .

La capacité du détecteur, qui est une composante importante de la capacité totale C_T et donc du bruit, est fixée par la surface du cristal de silicium. Elle ne peut être diminuée qu'en choisissant un détecteur plus petit ou plus épais pour une même surface.

Réglages du préamplificateur de charge

Il est possible de personnaliser le PAC à ses besoins. Trois FETs sont disponibles, deux de capacité égale à 8 pF et le dernier de capacité égale à 30 pF pour les détecteurs de capacité supérieure à 100 pF . Cette opération nécessite de démonter le préamplificateur pour sélectionner le FET de son choix en soudant un petit fil électrique. À environ 90 pF , la figure de bruit du PAC donne des résultats similaires pour les deux valeurs de FETs. Nous avons donc gardé le FET 1 (8 pF) sélectionné par défaut.

Le second réglage possible de l'A250CF porte sur la résistance de courant drain. Trois valeurs sont disponibles : 511 , 348 et $267\ \Omega$. La capacité du détecteur étant relativement élevée, nous avons conservé la résistance à $511\ \Omega$. Comme pour le choix du FET, le préamplificateur doit être démonté et ouvert pour changer la valeur de cette résistance.

Enfin, pour améliorer le rapport signal-sur-bruit du PAC, il est possible de retirer le circuit de protection du FET. Ce circuit, qui contribue à augmenter le bruit électronique, permet cependant de protéger le FET en cas de variation brutale de la tension. Nous avons préféré laisser cette protection en place.

3.4.4 Pulser

Un outil très utile permet de tester la réponse du préamplificateur et de la chaîne de détection à un signal. Il s'agit d'un générateur de signaux ou *pulseur*. Le pulseur permet de choisir le type de signal (carré, pulse) et de régler son temps de descente et son amplitude. Ainsi nous avons pu mettre en forme un signal dont les caractéristiques sont celles attendues pour notre semi-conducteur. Le signal du pulseur est envoyé dans l'entrée TEST du préamplificateur, qui est prévue pour cela.

3.4.5 Mise en forme du signal

La réponse d'un préamplificateur à un échelon de charge est illustrée figure (3.16). Pour assurer la collecte de l'ensemble des charges et pour limiter le bruit, la constante de temps du préamplificateur doit être suffisamment longue. Pour le CoolFET, le temps de montée est de 15 ns et le temps de décroissance de 500 μ s. En sortie de préamplificateur, quand une source radioactive est mesurée, nous sommes face à un train d'impulsions dont l'espacement entre les pulses est aléatoire. Si l'activité de la source est importante, les impulsions peuvent se superposer (effets de *pileup*). L'empilement d'une impulsion sur la traîne de l'impulsion précédente, qui n'a pas complètement décru, est problématique puisque l'information qui nous intéresse, l'amplitude du signal, est perdue.

La solution à ce problème est de mettre en forme le signal pour tendre vers une impulsion idéalement de forme carrée où les traînes sont éliminées mais l'information portée par l'amplitude est préservée. L'amplificateur linéaire, placé à la suite du préamplificateur, a pour fonction de mettre en forme et de multiplier avec un gain ajustable le signal qu'il reçoit en vue de son traitement.

La mise en forme du signal est réalisée par une série de circuit intégrateurs (RC ou filtre passe-bas) et différenciateurs (CR ou filtre passe-haut). Lorsqu'un circuit différenciateur est suivi par plusieurs circuits intégrateurs, la forme de l'impulsion va tendre vers une gaussienne. En pratique, quatre étages d'intégration sont suffisants pour que la différence entre l'impulsion mise en forme et une gaussienne soit négligeable. Ces circuits agissent également comme des filtres en fréquence, et en mettant le signal en forme le rapport signal-sur-bruit est amélioré. Dans les amplificateurs linéaires récents, des filtres actifs, incorporant des éléments comme des diodes et des transistors, sont utilisés à la place des circuits passifs RC, mais leur fonction reste la même.

Nous utilisons l'amplificateur pour la spectrométrie modèle 570 de chez Ortec. Les réglages possibles concernent le gain et la constante de temps du signal de sortie, mais aussi l'annulation du pôle-zéro (P/Z). En spectrométrie, lorsque le détecteur a une résolution fine comme c'est le cas ici, les réglages de l'électronique doivent se faire avec précaution pour ne pas dégrader la résolution.

Annulation du pôle-zéro

Le signal issu d'un circuit RC-CR n'est pas tout à fait unipolaire et présente un dépassement (*undershoot*). Ce phénomène, représenté sur la figure (3.17), résulte de la mise en forme d'un signal qui décroît. Plus le temps de décroissance est long et plus le signal d'entrée « ressemble » à un échelon de tension, moins le phénomène d'*undershoot* est important.

L'annulation du pôle-zéro est une technique qui permet d'obtenir un signal de sortie sans *undershoot*. Elle consiste à ajouter une résistance en parallèle à la capacité du circuit CR. La valeur que doit avoir la résistance dépend du temps de décroissance du signal de sortie du préamplificateur.

En pratique, pour régler l'annulation du pôle-zéro, le signal de sortie de l'amplificateur est visualisé à l'oscilloscope. Un petit potentiomètre, agissant sur la valeur de la résistance, est alors vissé jusqu'à ce que l'*undershoot* disparaisse. Le réglage de l'annulation du pôle-zéro doit être réalisé proprement puisqu'un signal surcompensé réduira la hauteur du signal suivant et un signal sous-compensé l'augmentera.

Constante de temps

La constante de temps de notre amplificateur linéaire peut prendre six valeurs : $0.5 \mu\text{s}$, $1 \mu\text{s}$, $2 \mu\text{s}$, $3 \mu\text{s}$, $6 \mu\text{s}$, $10 \mu\text{s}$. Pour minimiser le risque de *pileup*, la constante de temps doit, en théorie, être la plus faible possible.

L'activité de nos sources radioactives est typiquement de l'ordre de la dizaine de kBq ou moins, c'est-à-dire environ 10 000 désintégrations par seconde. Nous sommes donc face à un taux de comptage intermédiaire et les effets de *pileup* sont *a priori* peu contraignants. L'amplificateur est doté d'un système actif de rejet des impulsions affectées par du *pileup*. La contrepartie est l'augmentation du temps mort lorsque le nombre d'impulsions à traiter est important.

Pour régler la constante de temps τ , nous avons mesuré la résolution, exprimée en canaux, des pics à 62 keV et 84 keV d'une source de ^{109}Cd . Les résultats observés sont cohérents : plus la constante de temps est longue et plus le temps mort est important. Il reste cependant inférieur à 5 %. La résolution en fonction de la constante de temps passe par un minimum (figure (3.18)). Quand la constante de temps augmente, l'effet balistique diminue et la contribution du bruit série est réduite car la fréquence de coupure du filtre passe-haut (CR) est abaissée. La résolution devient cependant plus sensible aux courants parallèles et nous observons une dégradation de la résolution à $\tau = 10 \mu\text{s}$. Au regard des résultats obtenus, nous avons réglé la constante de temps afin d'avoir la meilleure résolution, c'est-à-dire $\tau = 6 \mu\text{s}$.

Quelques-unes de nos sources ont une activité supérieure à celle typiquement rencontrée. Dans les premiers instants de l'acquisition, nous vérifions toujours la valeur du temps mort. Lorsque ce dernier dépasse 5 %, la constante de temps est abaissée à $\tau = 3 \mu\text{s}$.

Gain

Le gain permet de multiplier l'amplitude du signal en provenance du préamplificateur par un facteur allant de 1 à 1 500. Il est ajustable à l'aide de deux potentiomètres qui permettent de régler le gain principal et le gain fin. Si le produit du gain par l'amplitude du signal est supérieur au maximum imposé par le constructeur (typiquement 10 V pour un signal unipolaire), l'amplificateur va saturer. En branchant un oscilloscope sur la sortie du préamplificateur, un signal saturé est clairement identifiable par sa crête coupée à la valeur de la tension de saturation. Pour acquérir les spectres sur la totalité de leur gamme en énergie, le gain doit être réglé correctement afin que le signal soit suffisamment amplifié mais ne sature pas. Pour un détecteur donné, le gain est réglé une seule fois et les réglages sont ensuite conservés pour l'ensemble des mesures. En effet, chaque modification de la valeur du gain implique de devoir étalonner à nouveau le détecteur.

Le détecteur PIPS a une réponse linéaire en énergie jusqu'à environ 400 keV. Le gain doit être réglé de sorte à couvrir au moins l'ensemble de cette gamme en énergie, c'est-à-dire que le signal d'un électron de 400 keV ne doit pas saturer l'amplificateur. Nous avons choisi une gamme de mesure qui s'étend au-delà de 400 keV. Pour régler le gain, nous avons utilisé une source d'électrons de conversion de ^{133}Ba . Ce radionucléide émet un électron de conversion à 320 keV avec une intensité suffisante pour que le pic apparaisse au bout de quelques minutes de comptage. Lors de ce réglage, nous ne connaissions pas encore la droite d'étalonnage du détecteur. La détermination de la position du pic s'est donc faite approximativement en évaluant la position des autres pics visibles et en utilisant le schéma de décroissance du ^{133}Ba . Nous avons réglé le gain afin que le pic identifié comme celui à 320 keV soit positionné au milieu de la gamme de mesure. Dans ces conditions, la gamme de mesure devrait s'étendre de 0 keV à environ 640 keV. Après étalonnage du détecteur, nous avons pu vérifier que la gamme atteint 646 keV.

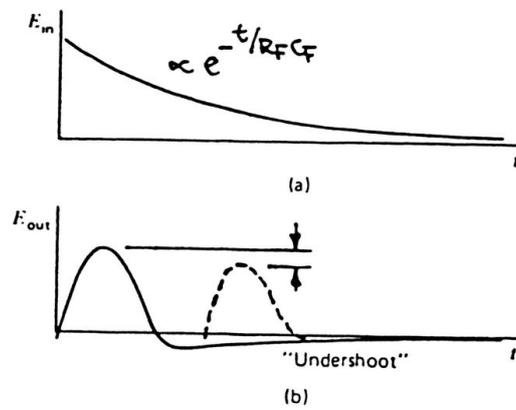


FIGURE 3.17 – Illustration du phénomène d’undershoot produit par la mise en forme du signal.

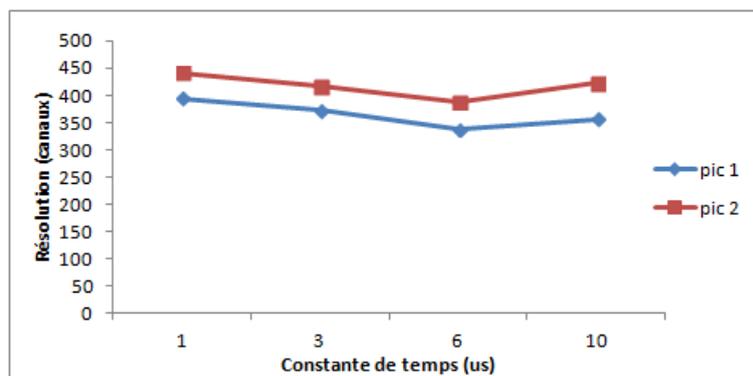


FIGURE 3.18 – Résolution des pics à 62 keV et 84 keV du ^{109}Cd en fonction du réglage de la constante de temps de l’amplificateur.

Nous avons procédé de façon similaire pour déterminer le réglage du gain du détecteur Si(Li). Avec une épaisseur de volume actif de 5 mm, la gamme de mesure doit au moins aller jusqu'à 2.5 MeV. Nous avons utilisé une source de ^{207}Bi qui émet plusieurs électrons de conversion autour de 1 MeV. Après avoir lancé l'acquisition, nous avons réglé le gain afin que ces pics se positionnent environ au tiers de la gamme totale de mesure.

3.4.6 Codeur

Le codeur, ou analyseur multicanal (*Multiple Channel Analyser* - MCA), permet de convertir l'amplitude du signal analogique en information numérique et de la classer dans un segment de mémoire (canal). Son fonctionnement peut être vu comme la somme de nombreux analyseurs monocanaux contigus, chacun correspondant à un canal du MCA. Un analyseur monocanal (*Single Channel Analyser* - SCA) est fondé sur le principe du mode « fenêtre » : deux discriminateurs associés à une fonction d'anti-coïncidence permettent de ne prendre en compte que les impulsions dont l'amplitude est comprise entre deux seuils de discrimination. Lorsque l'amplitude du signal d'entrée est comprise dans cette fenêtre, une impulsion logique est générée. Cette impulsion va alors incrémenter le canal correspondant.

Le nombre de canaux mémoires va couramment de 512 à 16384. Le choix de ce nombre doit résulter du compromis entre la précision souhaitée dans le spectre et le temps d'acquisition nécessaire. Nous avons codé l'ensemble de nos spectres sur 16384 canaux. La gamme de mesure du détecteur PIPS est donc codée sur 16384 canaux de 0 keV à 646 keV, soit une largeur de canal d'environ 40 eV.

3.4.7 Logiciel de spectrométrie

Pour acquérir les spectres, nous utilisons le logiciel commercial MAESTRO de chez Ortec. L'interface utilisateur nous permet de suivre en direct l'acquisition en cours. À la fin d'une acquisition, deux temps sont donnés : le temps réel et le temps d'acquisition. Le temps d'acquisition correspond au temps réel corrigé du temps mort. Nous surveillons attentivement les estimations du temps mort au début de chaque acquisition. Si celui-ci est important ($> 5\%$), c'est que la source est trop active ou que les réglages de l'électronique ne sont pas assez restrictifs et que du bruit est compté. Dans ce cas, nous ne poursuivons pas l'acquisition, les corrections de temps morts importants n'étant pas gérées correctement par MAESTRO [5].

À la fin d'une acquisition, chaque spectre est enregistré au format texte (.Spe) et en fichier MAESTRO (.chn).

3.5 Sources radioactives

Dans les paragraphes précédents, nous avons fait une description détaillée du dispositif expérimental et de la chaîne d'acquisition qui traite le signal généré lors de l'interaction d'un électron dans le volume actif de détection. Les caractéristiques du dispositif expérimental et les réglages de la chaîne d'acquisition ont été choisis afin de limiter certaines sources de déformations des spectres β . Les sources radioactives peuvent également être à l'origine de déformations importantes. C'est pourquoi elles ont fait l'objet d'une étude poussée que nous allons maintenant détailler.

Exigences des sources β

Une source solide consiste en un dépôt radioactif, correspondant à un certain nombre d'atomes radioactifs distribués dans une grande quantité de matériau inactif, sur un support.

Pour que le spectre émergent de la source soit le plus proche possible du spectre d'émission, il faut veiller à limiter les phénomènes de rétrodiffusion sur le support ainsi que l'auto-absorption du rayonnement par le dépôt radioactif lui-même.

Les électrons émis par la source peuvent rétrodiffuser sur le support. Le phénomène de rétrodiffusion sera d'autant plus probable que le numéro atomique du support est élevé et que son épaisseur est importante [6]. Afin de minimiser cet effet, le support doit être en un matériau de faible numéro atomique et de faible épaisseur.

Le phénomène d'auto-absorption, c'est-à-dire l'absorption du rayonnement par le dépôt radioactif lui-même, est responsable d'une chute importante du rendement d'émission des particules de faible énergie. Ce phénomène est fortement dépendant de la cristallisation des sels d'entraîneur.

Cristallisation des sels d'entraîneur

Lors du séchage des sources, la cristallisation des sels d'entraîneur s'effectue en deux étapes distinctes : la nucléation et la croissance. La nucléation est le phénomène suivant lequel apparaissent les premiers germes cristallins d'une phase solide, souvent générés par une impureté en solution. Les germes, ou nucleus, sont des groupes d'atomes ou d'ions présentant une structure ordonnée correspondant à la maille d'une structure cristalline. L'addition, couche après couche, de soluté au nucleus provoque un grossissement des cristaux appelé croissance. La répartition de la taille des cristaux dépend de la relation entre le phénomène de nucléation et de croissance. Si une multitude de nucleus est formée, il en résultera un très grand nombre de cristaux de petites tailles. *A contrario*, en présence d'un petit nombre de nucleus, les cristaux résultant seront de taille importante. Plus les cristaux sont de petite taille et répartis de façon homogène, plus les phénomènes d'auto-absorption sont faibles. La cristallisation du dépôt radioactif peut être améliorée en modifiant localement les propriétés physiques de la surface de la membrane porteuse ou en contrôlant l'étape de séchage de la goutte de solution de radioactivité [7], [8]. Les membranes peuvent être traitées par des agents produisant à leur surface des amorces de cristallisation agissant comme promoteurs de nucléation. C'est notamment le rôle des sous-couches.

Source solide

La source solide comprend plusieurs composants :

- **le support** : dans le cadre de cette étude, nous nous sommes intéressés à deux types de supports : les membranes de Vyns d'une part, et les membranes de type Langmuir-Blodgett d'autre part.
- **la sous-couche**, qui peut être de composition variée : dépôts de résines échangeuses d'ions [9], dépôts de monoxyde de silicium [10] ou encore dépôts de microbilles de latex [11] comme c'est le cas dans cette étude.
- **le dépôt de solution active**.

3.5.1 Sources Vyns

Le Vyns [12] (copolymère d'acétate de chlorure de polyvinyle) permet de préparer des films minces sur lesquels sont déposés par la suite une sous-couche, puis le dépôt de solution radioactive. Les caractéristiques de ce type de support sont parfaitement adaptées aux sources β puisqu'ils ont une épaisseur comprise entre 0.05 et 1 μm et sont en un matériau de faible numéro atomique. Ils ont, de plus, une meilleure résistance aux acides que d'autres types de films, comme le collodion par exemple.

Des sources radioactives sur films de Vyns sont régulièrement fabriquées au LNHB pour réaliser des mesures d'activité avec des compteurs proportionnels. Nous avons ainsi bénéficié de l'expérience et du matériel disponible pour fabriquer nos propres sources. Quelques adaptations ont néanmoins été nécessaires. Dans les paragraphes suivants nous allons décrire les différentes étapes de la préparation d'une source β sur film de Vyns.

Préparation d'un film

1. La solution de Vyns est préparée à partir de la solubilisation de Vyns solide, sous la forme d'une poudre blanche, dans un solvant organique tel que le cyclohexanone. La concentration de Vyns dans la solution détermine l'épaisseur du film. Pour nos films, nous avons utilisé la solution préparée par les radiochimistes du LNHB à une teneur de 8 %.
2. 200 μl de la solution de Vyns sont alors déposés au centre d'une plaque de verre de 4 cm de côté préalablement nettoyée à l'isopropanol.
3. La plaque de verre est placée au centre d'un *spin coater*. La solution de Vyns est étalée à la surface du verre par le procédé de *spin coating* à la vitesse de 3 000 rotations par minute pendant 1 minute.
4. Le carré est redimensionné à 2 cm² en grattant à l'aide d'un scalpel le surplus de Vyns.
5. La membrane est alors délicatement décollée de la surface de verre en immergeant la plaque dans de l'eau ultra-pure à la température de (20 ± 2) °C.
6. L'étape la plus délicate, dite de « la pêche aux Vyns », que l'on voit illustrée sur la figure (3.19), consiste à récupérer la membrane qui flotte à la surface de l'eau sur un anneau en acier inoxydable qui a été usiné aux dimensions du porte-source : $\Phi_{ext} = 25$ mm, $\Phi_{int} = 15$ mm, épaisseur = 0.15 mm.
7. Enfin, la membrane est mise à sécher verticalement dans une armoire ventilée pendant au moins 12 heures avant de procéder aux étapes suivantes. Si les films de Vyns ne sont pas bien tendus sur l'anneau après le séchage, ils ne pourront pas être utilisés. En effet, une source sur un Vyns gondolé ne sera pas homogène.

Ces étapes sont résumées dans le schéma présenté en figure (3.20).



FIGURE 3.19 – Transfert d'un film de Vyns flottant à la surface de l'eau sur un anneau en acier inoxydable.

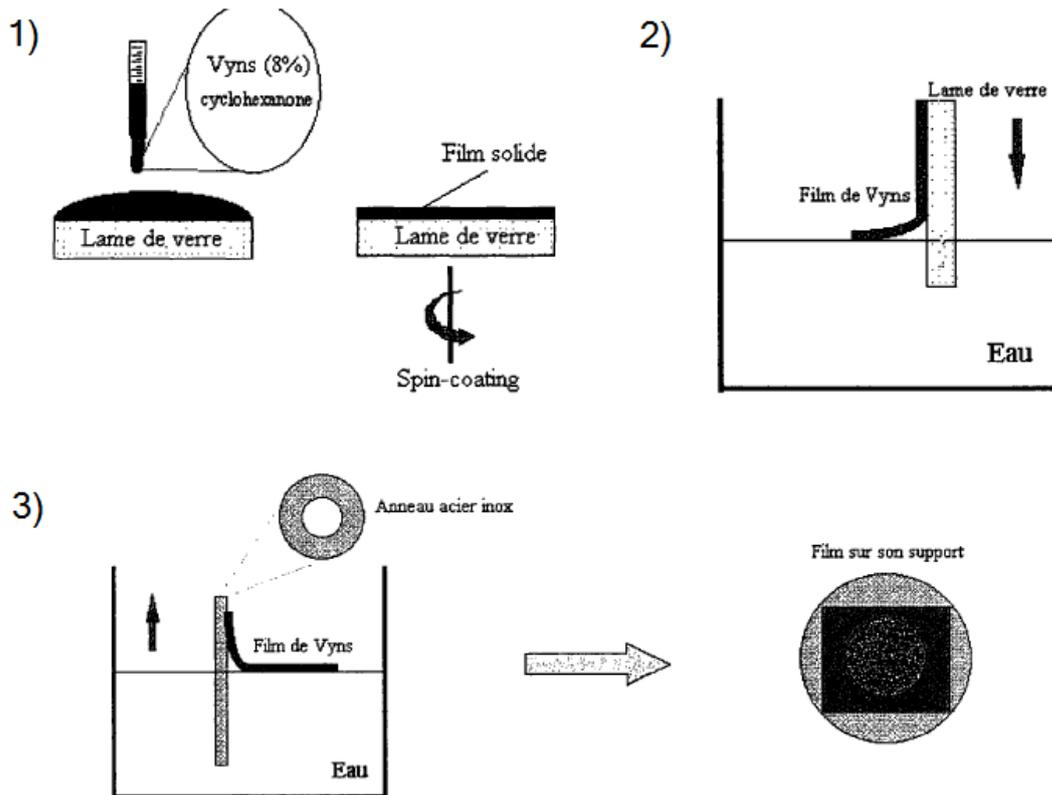


FIGURE 3.20 – Schéma du protocole de préparation d'un film de Vyns.

Résistance au vide

Nous avons réalisé des tests de résistance au vide de ces films. Dans les conditions normales d'utilisation, si les procédures d'ouverture et de fermeture des vannes décrites au paragraphe 3.1 lors de la mise en place ou du démontage de la source sont respectées, il n'y a aucun risque que le film de Vyns se déchire. Un Vyns gondolé que nous avons soumis à un saut brutal de pression, de 10^{-6} mbar à la pression atmosphérique en quelques secondes, s'est replié sur lui-même. Cependant, nous avons entrepris le même test sur un Vyns bien tendu qui a tenu bon. *A priori*, sauf dans le cas d'une importante erreur de manipulation, il est improbable qu'un tel saut de pression ait lieu. Dans le cas d'une coupure de courant, la pompe ne fait pas une entrée d'air et la pression ne remonte pas brutalement. Nous sommes donc confiants quant à l'utilisation de sources radioactives sur film de Vyns à des pressions proches de l'ultravide.

Métallisation à l'or

Lorsque les sources sont préparées pour être mesurées dans un compteur proportionnel, le support doit être conducteur afin de ne pas déformer le champ électrique dans le compteur. L'anneau, en acier inoxydable, est conducteur mais pas le film de Vyns, qu'il faut alors métalliser. La membrane de Vyns est placée dans l'enceinte à vide d'un évaporateur. De l'or, déposé dans le creuset d'évaporation, est chauffé jusqu'à évaporation. L'épaisseur d'or est mesurée par l'intermédiaire d'un cristal de quartz et lorsque l'épaisseur désirée est atteinte, on coupe l'alimentation électrique du creuset. L'opération est renouvelée sur l'autre face. En général, pour des sources mesurées avec un compteur, chaque face est métallisée avec 30 nm d'or [13].

Dans un spectromètre β utilisant un semi-conducteur, la source n'a aucunement besoin d'être conductrice. La présence d'or, qui a un numéro atomique élevé, est plutôt handicapante car elle risque d'augmenter la diffusion, la rétrodiffusion et l'auto-absorption par la source des électrons avant leur détection. Cependant, pour déposer une sous-couche de microbilles de latex par la méthode de l'électro-pulvérisation, le film doit *a priori* être conducteur. Nous verrons néanmoins comment la méthode a été adaptée pour se passer de l'étape de métallisation des films de Vyns.

Sous-couche de microbilles de latex

Si le dépôt de matière radioactive est directement fait sur le film de Vyns, la cristallisation des sels résiduels est inhomogène et l'autoradiographie de ce type de source montre une cristallisation en forme de couronne. Or, l'inhomogénéité des sources et la quantité de sels résiduels génèrent une auto-absorption importante. La sous-couche a un double rôle : d'une part diminuer la tension superficielle de la goutte de solution afin qu'elle mouille le support et, d'autre part, fournir des germes de cristallisation du dépôt sec. Elle doit donc à la fois présenter des propriétés tensioactives et des propriétés d'amorceur de cristallisation.

La sous-couche utilisée actuellement au LNHB est une suspension alcoolique de sphères de polystyrène-latex mono-dispersées, d'un diamètre aérodynamique de $0.15 \mu\text{m}$. Le dépôt est fait par électro-pulvérisation. L'épaisseur du dépôt est estimée à $0.15 \mu\text{m}$ (une couche) ce qui correspond à un dépôt massique d'environ $15 \mu\text{g}/\text{cm}^2$. Notons cependant que l'épaisseur de ces dépôts n'a pas été caractérisée et que le fait que ces dépôts soient visibles à l'œil nu nous incite à penser que leur épaisseur est très supérieure à la valeur estimée. Le dépôt de latex diminue la tension superficielle du film par l'augmentation de sa porosité et du fait de son caractère hydrophile. L'électro-pulvérisation produit certainement un dépôt homogène, mais on peut s'interroger sur l'éventualité de remise en suspension des microbilles de latex par le dépôt de la goutte de solution radioactive.

Électro-pulvérisation

L'électro-pulvérisation, proposée à l'origine par Carswell et Milsted [14] est une méthode particulièrement efficace pour fabriquer des échantillons uniformes de presque n'importe quel élément. Rapide et facile à mettre en œuvre, elle est vivement recommandée pour la fabrication de sources pour la spectrométrie β [15].

Le dispositif consiste en un capillaire surmonté d'un petit réservoir dans lequel se trouve la solution à pulvériser. Dans notre cas, il s'agit de la solution de microbilles de latex décrite précédemment. L'électrode de pulvérisation traverse le capillaire, qu'elle dépasse légèrement comme on le voit sur la figure (3.21). L'électrode, qui est fixée sur le haut du capillaire, est connectée à la borne positive d'une haute tension. La membrane conductrice, sur laquelle la pulvérisation a lieu, est connectée au pôle négatif de l'alimentation par l'intermédiaire d'un support. La distance entre le bout de l'électrode et le film de Vyns est de 2.3 cm. Lorsqu'une haute tension de 7.5 kV est appliquée, le liquide est arraché au capillaire qui se répand en gouttelettes extrêmement fines en formant un cône. La phase organique va s'évaporer, ne laissant que les particules solides atteindre le film de Vyns.

Pendant la pulvérisation, le film subit un mouvement planaire circulaire aléatoire afin que le dépôt soit distribué de façon homogène. Un diaphragme de 10 mm de diamètre, disposé au-dessus du film, permet de contraindre le diamètre de la source. À la fin de la pulvérisation, le dépôt blanchâtre se distingue clairement sur le film de Vyns et il peut être qualifié à l'œil nu. Idéalement, le dépôt doit être centré sur le Vyns, rond et homogène.

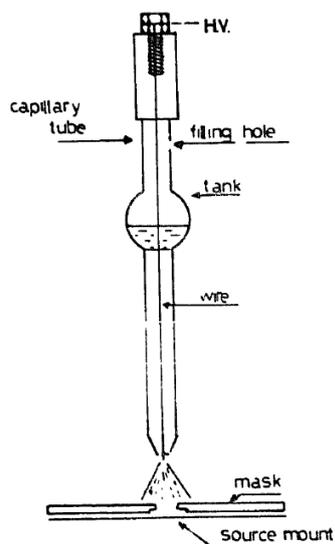


FIGURE 3.21 – Principe de l'électro-pulvérisation.

Pour ne pas avoir à métalliser la membrane, nous avons ajouté un disque d'argent entre le support connecté et la membrane. Par contact électrostatique, la membrane se colle au disque. Au-dessus du Vyns, nous avons ajouté un second anneau en acier inoxydable de diamètre extérieur supérieur aux dimensions de l'anneau du film de Vyns. Cet anneau encapsule la source afin d'assurer à l'ensemble d'être conducteur. Dans ces conditions, le cône de pulvérisation se forme correctement sans que la membrane n'ait été métallisée au préalable. Les dépôts obtenus sont de bonne qualité, mais il faut procéder avec beaucoup de délicatesse pour ne pas déchirer le film de Vyns lorsqu'il est décollé du disque d'argent.

Dépôt radioactif

Il faut un certain temps pour que le détecteur et sa chaîne d'acquisition traite une information. Pendant ce temps mort, aucun autre événement ne peut être enregistré et sera perdu. La quantité d'information perdue sera d'autant plus importante que le taux de comptage est élevé. Il est possible de corriger ces pertes, cependant une étude réalisée au LNHB [5] montre que la correction de temps mort appliquée par le logiciel Maestro sur des mesures de spectrométrie γ réalisées avec deux détecteurs différents, introduit une incertitude supplémentaire dans la mesure de la surface des pics d'intérêt. Il est alors recommandé de ne pas dépasser des temps morts de 5 %. Par précaution, nous avons décidé d'appliquer cette recommandation à nos propres mesures. Afin que le taux de comptage ne soit pas trop élevé, il faut que la source ne soit pas trop intense. Un bon compromis entre le temps de mesure et le taux de comptage est trouvé pour un dépôt radioactif ayant une activité d'une dizaine de kBq.

La solution mère a souvent une activité trop élevée pour produire des sources avec un taux de comptage raisonnable du point de vue du temps mort. La concentration en entraîneur peut également être trop importante pour avoir des sources qui minimisent les phénomènes d'auto-absorption. Il faut alors procéder à des dilutions pour obtenir des concentrations en activité ou entraîneur convenables.

Le diamètre de la source est fixé par celui du diaphragme. Le choix de la taille de la source résulte là encore d'un compromis. En effet, une surface de source importante permet d'étaler le dépôt radioactif et de limiter ainsi les phénomènes d'auto-absorption. Cependant, plus la source

s'éloigne d'une géométrie ponctuelle et plus l'angle solide est faible. Nous avons préféré favoriser la qualité du dépôt radioactif par rapport au taux de comptage en conservant le diaphragme de 10 mm de diamètre.

Séchage

Le séchage de la goutte de solution peut conditionner le mode de cristallisation du dépôt. Le séchage peut simplement s'effectuer à l'air libre ou dans un four à pression atmosphérique à la température de 60 °C. Mais ces méthodes ne permettent pas une cristallisation homogène des sels d'entraîneur. En effet, de grands cristaux vont se former principalement en bordure de la goutte et au niveau des impuretés, créant un dépôt non homogène. Dans [16], une comparaison entre des sources séchées dans un four et des sources séchées par lyophilisation montre une nette amélioration de l'efficacité de détection des électrons pour les sources lyophilisées.

La lyophilisation est la dessiccation par sublimation d'un produit préalablement surgelé. Contrairement à un séchage à pression atmosphérique, une source lyophilisée ne subit pas de changement de forme pendant le séchage. La technique consiste à congeler les composants aqueux contenus dans la solution radioactive en refroidissant le dépôt. La vitesse de congélation est un paramètre important : plus elle sera lente et plus la taille des cristaux sera importante, ce qui n'est pas souhaitable. La pompe à vide est ensuite mise en route et la pression diminue. Les corps solides vont alors subir un changement d'état en passant directement à l'état de gaz sans passer par l'état liquide. Les vapeurs dégagées sont alors condensées sur un point froid à une température inférieure à celle du dépôt. Une description plus complète de la procédure de lyophilisation sous vide et de l'appareil commercial utilisé pour la fabrication des sources est donnée dans [17].

La lyophilisation est une technique de séchage incontournable pour obtenir des sources homogènes, mais elle est coûteuse en temps. Une autre technique plus rapide est disponible au laboratoire. Il s'agit du séchage par jets chauds de diazote. Dans [16], une comparaison entre l'efficacité de détection de sources séchées selon les deux techniques a été menée. L'étude n'étant pas concluante quant à technique la plus performante, la lyophilisation reste pour le moment la technique la plus courante.

Conservation des sources Vyns

Les films de Vyns sont très fins et fragiles. Ils doivent être manipulés avec beaucoup de précaution. Nos sources sont donc stockées dans des supports spéciaux, fabriqués sur mesure (voir figure (3.22)), et l'ensemble est placé dans une boîte de Petri.

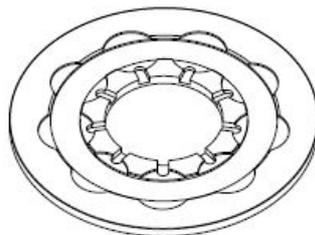


FIGURE 3.22 – Illustration d'un support conçu pour accueillir les sources dédiées à la spectrométrie β .

Les films de Vyns se dégradent avec le temps. Cependant, nous n'avons pas encore le recul nécessaire pour savoir au bout de combien de temps il devient déraisonnable de manipuler ces sources.

3.5.2 Sources Langmuir-Blodgett

La méthode de Langmuir-Blodgett permet la fabrication de films organiques très fins. Elle repose sur la propriété amphiphile de certains acides gras qui vont s'épandre à la surface d'une solution aqueuse et qui, sous une légère contrainte, vont former une couche monomoléculaire (avec d'un côté la tête hydrophile de la molécule et de l'autre la queue hydrophobe). Cette couche peut, en partie, être transférée sur un substrat solide en jouant sur les affinités chimiques des molécules et du substrat. En réalisant des dépôts successifs, il devient possible de créer une multicouche. Les films de Langmuir-Blodgett ont pour caractéristiques d'être très fins (≈ 2.5 nm) et d'avoir une structure très ordonnée. C'est pourquoi ils présentent un réel intérêt pour la fabrication de sources radioactives β puisque les phénomènes d'auto-absorption vont être limités par la faible épaisseur de la source. D'autre part, les dépôts réalisés ont une très bonne homogénéité.

Des études préliminaires ont été réalisées au laboratoire dans les années 1990 où des sources LB ont été fabriquées [11]. La technique semblait prometteuse et nous nous y sommes, à notre tour, intéressés. Cependant, une étude détaillée du procédé de fabrication a mis en évidence la nécessité d'acquiescer un appareillage coûteux. Apprendre à manipuler cet appareillage aurait de plus demandé beaucoup de temps. Enfin, l'une des difficultés inhérentes à ce procédé est la décontamination, après chaque préparation de sources d'un radionucléide donné, de la cuve utilisée. Nous avons donc préféré dans un premier temps utiliser les compétences en radiochimie disponibles au laboratoire. Il s'agit cependant d'une voie d'amélioration possible qu'il serait intéressante d'explorer.

3.6 Optimisation du dispositif expérimental à l'aide de simulations Monte Carlo

La mesure des spectres β présente une difficulté majeure : les spectres expérimentaux peuvent être déformés par le système de détection et les phénomènes physiques. Afin d'atteindre la distribution initiale en énergie d'une transition donnée, les processus qui conduisent à des déformations doivent être limités autant que possible lors de l'acquisition des spectres. Les déformations restantes peuvent être corrigées lors d'un post-traitement des spectres expérimentaux, que nous détaillerons dans le chapitre suivant.

La simulation Monte Carlo est un outil puissant pour étudier les origines des déformations. Lors de l'étape de conception, un modèle simple du futur dispositif expérimental a été développé à l'aide du logiciel de simulation GEANT4 afin de déterminer les conditions nécessaires, en termes de matériaux et de géométrie, limitant les phénomènes à l'origine d'importantes déformations du spectre.

Dans cette section, nous donnerons une description succincte du code GEANT4, puis nous expliciterons le choix de son utilisation plutôt qu'un autre code de simulation Monte Carlo. Enfin, les différentes études menées dans le but d'optimiser le dispositif expérimental seront détaillées.

3.6.1 GEANT4

Les méthodes Monte Carlo désignent une classe d’algorithmes numériques basés sur la génération de nombres aléatoires. Elles ont été développées dans les années 1940 par les physiciens travaillant sur le projet Manhattan à Los Alamos. Ces travaux ont notamment donné naissance au code de simulation de transport de particule *Monte Carlo N-Particle transport code* (MCNP) [18].

Dans une simulation Monte Carlo de transport de particule, l’histoire ou la trace (*track*) d’une particule est vue comme une succession de parcours aléatoires au cours desquels la particule interagit et change de direction, perd de l’énergie et, occasionnellement, produit des particules secondaires.

Afin d’explicitier le principe d’une simulation Monte Carlo, prenons l’exemple d’un photon d’environ 1 MeV entrant dans un milieu d’épaisseur e . La première étape consiste à calculer le libre parcours moyen λ du photon dans le milieu traversé à partir de la section efficace totale σ_{tot} :

$$\lambda = \frac{1}{n\sigma_{\text{tot}}} = \frac{1}{(\rho N_A/A)\sigma_{\text{tot}}} \quad (3.3)$$

- où n est le nombre d’atomes par unité de volume,
- ρ est la masse volumique du milieu,
- N_A le nombre d’Avogadro,
- A la masse molaire.

La distance x_1 d’interaction du photon dans le milieu est tirée suivant une loi exponentielle $e^{-x/\lambda}$:

- si $x_1 < e^{-e/\lambda}$ le photon interagit et continue d’être suivi,
- sinon le photon n’interagit pas dans l’épaisseur e et la particule n’est plus suivie.

Dans le cas où la particule interagit, il faut déterminer par quel processus a lieu cette interaction (diffusion Rayleigh σ_R , effet photoélectrique σ_{PE} , diffusion Compton σ_C). La section efficace totale est : $\sigma_{\text{tot}} = \sigma_R + \sigma_{PE} + \sigma_C$. Un nombre r est aléatoirement tiré entre 0 et 1.

- si $r < \sigma_R/\sigma_{\text{tot}}$ l’interaction est une diffusion Rayleigh,
- si $\sigma_R/\sigma_{\text{tot}} < r < (\sigma_R + \sigma_{PE})/\sigma_{\text{tot}}$ il s’agit d’un effet photoélectrique,
- si $(\sigma_R + \sigma_{PE})/\sigma_{\text{tot}} < r < 1$ le processus d’interaction est la diffusion Compton.

Lors de l’interaction, la particule peut être diffusée et changer de direction. Dans ce cas, l’angle de diffusion est déterminé par un tirage aléatoire suivant la section efficace différentielle Compton. Le photon diffusé est à son tour suivi, de même que les particules secondaires. Et ainsi de suite...

Les méthodes de simulation Monte Carlo sont des outils puissants car précis. Cependant, comme toute méthode numérique, elles présentent l’inconvénient, en comparaison des méthodes déterministes, de nécessiter une importante puissance de calcul.

Choix de GEANT4

Parmi les codes Monte Carlo utilisés pour simuler le transport de particules dans la matière, nous pouvons citer GEANT4 [19], PENELOPE [2], MCNP [18] et EGSNRC [20]. À l’origine, ces différents codes ont été développés pour répondre à des besoins particuliers. GEANT4 pour la physique des hautes énergies, MCNP pour la bombe atomique et la physique des réacteurs,

EGSNRC est aujourd'hui considéré comme le « gold standard » de la physique médicale et PENELOPE se consacrait initialement au transport des électrons et des positrons. Ces codes ont aujourd'hui une portée beaucoup plus généraliste et sont tous capables de transporter les deux types de particules qui nous concernent dans ce travail : les électrons et les photons.

Une simulation détaillée consiste à simuler chaque collision ou interaction que subit une particule. Dans ce cas, la simulation est considérée comme « exacte » et donne le même résultat que l'équation de transport. La simulation du transport des photons est assez directe puisque le nombre moyen d'événements par histoire est faible. En effet, un photon est absorbé après un seul effet photoélectrique ou une seule création de paire ou après quelques interactions Compton (de l'ordre d'une dizaine). Avec la puissance de calcul dont nous disposons aujourd'hui, la simulation détaillée du transport d'un photon dans la matière ne présente aucune difficulté.

Pour les électrons et les positrons, la situation est beaucoup plus compliquée. Comme nous l'avons déjà précisé en section 1.2.3, la perte d'énergie moyenne par interaction pour un électron est faible, de l'ordre de quelques dizaines d'eV. Par conséquent, les électrons de haute énergie subissent un grand nombre d'interactions avant d'être absorbés dans le milieu. En pratique, afin que le temps de calcul reste raisonnable, une simulation détaillée n'est faisable que lorsque le nombre moyen de collisions par histoire de particule n'est pas trop grand, typiquement quelques centaines. C'est le cas pour des géométries de faible épaisseur ou pour un milieu gazeux de faible densité. Puisque ces conditions ne sont généralement pas rencontrées, les codes Monte Carlo utilisent des algorithmes de simulation condensée dans lesquels les effets globaux des collisions sont simulés à la fin d'un segment de l'histoire de l'électron. Cependant, les théories de diffusions multiples (*Multiple Scattering* – MSC) implémentées dans les algorithmes de simulation condensée sont approximatives et peuvent conduire à des erreurs systématiques.

PENELOPE est un code Monte Carlo qui a initialement été conçu pour traiter le transport des électrons et des positrons dans la matière, dans une gamme d'énergie allant de quelques centaines d'eV à 1 GeV. La simulation du transport de ces particules chargées est réalisée au moyen d'une procédure mixte. Les interactions (*hard collisions*) pour lesquelles le transfert d'énergie W ou l'angle de diffusion θ est supérieur à une valeur prédéfinie sont traitées en détail puisqu'elles sont peu fréquentes mais que leurs effets, sur l'évolution de la trace de la particule, sont importants. En dessous du seuil, les interactions (*soft collisions*) sont décrites au moyen d'une approche MSC. Les simulations mixtes sont préférables aux simulations condensées puisqu'elles donnent des résultats plus précis et qu'elles présentent moins de paramètres à définir par l'utilisateur. Ces raisons font de PENELOPE le code de référence pour le transport des électrons.

Cependant, son utilisation comme une « boîte noire » et le langage de programmation en FORTRAN77 nous a poussé à lui préférer GEANT4.

GEANT4 peut être vu comme une « boîte à outils ». L'utilisation du langage orienté objet C++ permet une grande flexibilité dans les usages sans pour autant risquer de perturber l'architecture de base du code. Les utilisateurs peuvent implémenter leurs propres géométries, sélectionner différents processus physiques, différentes particules et, grâce à la programmation orientée objet (POO), ajouter facilement des modules développés en fonction de leurs besoins. Ainsi, GEANT4 nous offre la possibilité d'implémenter facilement nos propres classes de calcul de spectres β et de génération des schémas de désintégration. GEANT4 possède plusieurs modèles physiques pour traiter le transport des électrons dans la matière.

Modèles physiques dans GEANT4

Initialement développé au CERN pour répondre aux besoins de la physique des hautes énergies, GEANT4 est aujourd'hui utilisé dans divers domaines tels que la physique nucléaire, l'astrophysique, la physique médicale... Ses fonctionnalités continuent d'être étendues et ses performances améliorées par de nombreuses collaborations à travers le monde et des mises à jour sont régulièrement disponibles.

L'énergie maximale d'une particule β peut atteindre plusieurs MeV. Dans notre étude, l'épaisseur de nos détecteurs, 500 μm et 5 mm, limitent les mesures à des énergies maximales d'environ 390 keV et 2.5 MeV. Dans cette gamme d'énergie, les processus physiques impliqués sont essentiellement d'origine électromagnétique. Dans GEANT4, le traitement de l'effet photoélectrique, la diffusion Compton, la création de paire pour les photons, l'ionisation, le bremsstrahlung et les processus de diffusion pour les électrons, nous intéressent particulièrement. Chacun de ces processus est décrit par un modèle.

Ces modèles sont développés par deux collaborations qui travaillent sur les aspects électromagnétiques de GEANT4. Le groupe de travail pour la physique électromagnétique standard (*Geant4 EM Standard Physics*) est en charge du développement et du maintien du sous-ensemble de classes dédié à la simulation des interactions électromagnétiques des particules chargées, des gammas et des photons optiques. La validité des modèles est comprise entre 1 keV et 10 PeV. Les approches de la physique sont optimales pour les applications de haute et moyenne énergie. Un second groupe de travail (*Geant4 Low Energy EM Physics*) se concentre sur le développement et le maintien d'un ensemble de modèles qui décrivent les interactions électromagnétiques des photons, électrons, hadrons et ions avec la matière jusqu'à très faible énergie (à l'échelle de l'eV). Après s'être développées indépendamment l'une de l'autre, les deux collaborations travaillent aujourd'hui ensemble. Pour des applications de basse énergie, leurs recommandations sont d'utiliser les listes physiques : *Standard_option4*, *Livermore*, et *Penelope*. Une liste physique (*physics list*) est un ensemble de modèles physiques qui décrivent des processus physiques. Il existe dans GEANT4 plusieurs modèles pour décrire un même processus. L'utilisateur a également la possibilité de créer sa propre liste physique en fonction de ses besoins et des modèles qu'il souhaite utiliser.

La liste *Standard_option4* a été récemment implémentée dans GEANT4. Elle mélange les modèles physiques les plus précis issus des listes de physique standard et de basse énergie (Livermore et Penelope) et offre des options qui permettent des simulations précises aux énergies basses et intermédiaires. Les listes physiques de basse énergie, Livermore et Penelope, fournissent leurs propres versions de plusieurs processus, telles que les classes *G4LivermoreIonisationModel* ou *G4PenelopeBremsstrahlungModel* par exemple. Cependant, le processus de diffusion multiple par défaut est le même dans les trois listes physiques. En particulier, l'algorithme mixte de simulation tel qu'il existe dans le code PENELOPE n'existe pas dans la liste physique *Penelope* sous GEANT4.

Le traitement de la diffusion des électrons est un point clé dans tout code de transport de particules. La probabilité de diffusion élastique est très grande lorsque l'énergie de l'électron décroît, d'où la nécessité d'introduire des approches de diffusion multiple (MSC) afin d'avoir un temps de calcul raisonnable. Ainsi, les effets globaux tels que la perte d'énergie nette, le déplacement latéral et le changement de direction de la particule, sont simulés à la fin d'un des segments qui composent l'histoire de la particule et non à la suite de chaque interaction. Le déplacement latéral et le changement de direction sont calculés à partir des théories de diffusion multiple. La précision des simulations condensées est donc dépendante de la précision

des approximations faites dans les théories MSC. Les théories de diffusions multiples les plus courantes dans les codes de simulation sont celles de Molière, Goudsmit et Saunderson, et Lewis.

- Dans GEANT4, deux modèles de diffusions multiples sont implémentés pour les électrons :
- le modèle MSC de Urban. Il s’agit du modèle utilisé par défaut dans les listes physiques évoquées précédemment. Ce modèle est basé sur la théorie de MSC de Lewis et il est applicable pour tous types de particules.
 - le modèle MSC de Goudsmit et Saunderson. Ce modèle, uniquement applicable pour les électrons et les positrons, est basé sur la théorie développée par Goudsmit et Saunderson. Il utilise une base de données de sections efficaces générées par le code ELSEPA [21] et un algorithme d’échantillonnage similaire à celui présenté dans [22] .

Enfin, il est toujours possible de simuler les interactions coulombiennes individuellement, bien qu’en pratique cela soit très coûteux en temps de calcul. L’avantage du processus de diffusion simple est la possibilité d’utiliser une théorie utilisant des sections efficaces, contrairement aux modèles MSC de GEANT4 qui utilisent des approximations phénoménologiques, en particulier pour le modèle de Lewis.

La qualité d’une simulation peut fortement varier en fonction du choix des modèles physiques et de leurs paramètres. Nous les préciserons donc lorsque ce sera nécessaire.

3.6.2 Développement des outils sous GEANT4

GEANT4 est composé d’un ensemble de classes C++ dont se sert l’utilisateur pour construire son application. Les nombreuses classes de base, dont le nom commence toujours par *G4*, comme par exemple *G4ParticleTable*, *G4Material* ou *G4RadioactiveDecay*, sont accessibles en lecture à l’utilisateur. Chaque classe consiste en deux fichiers. La déclaration des attributs et des méthodes se fait dans un fichier d’en-tête (extension *.hh*), alors que la définition de la classe se fera dans un fichier source (extension *.cc*). Les classes spécifiquement codées par l’utilisateur doivent avoir cette même structure.

Comme il est d’usage en programmation C++, l’application consiste en un fichier principal, le *main*, à partir duquel sont appelées et initialisées les classes. Trois classes doivent obligatoirement être implémentées par l’utilisateur pour que le code de simulation fonctionne correctement. Il s’agit de :

- *DetectorConstruction* : implémentation de la géométrie du dispositif expérimental et définition des matériaux.
- *PhysicsList* : définition des particules et processus physiques, réglages de certains paramètres de simulation, comme par exemple le seuil de production des particules secondaires.
- *PrimaryGeneratorAction* : génération des particules primaires.

En plus de ces classes, d’autres classes utilisateurs peuvent être implémentées. Les classes *RunAction*, *EventAction*, *SteppingAction* permettent de spécifier des actions aux différents stades de la simulation, notamment pour extraire de l’information.

De très nombreux exemples sont disponibles dans GEANT4. Nous y avons parfois eu recours pour construire nos propres applications. C’est l’avantage de la POO, des morceaux de code peuvent facilement être récupérés de tous côtés puis implémentés. Certains exemples ont été utilisés directement, lorsque c’est le cas nous préciserons de quel exemple il s’agit.

Enregistrement des données de simulation

L'information que nous souhaitons avant tout récupérer lors d'une simulation est l'énergie déposée par les particules incidentes dans le volume actif du détecteur. Notre code GEANT4 génère un fichier ROOT dans lequel les données de simulations sont stockées. Afin de pouvoir manipuler les résultats de la simulation selon nos souhaits, les données de simulation ne sont pas rangées dans des histogrammes au cours de la simulation mais dans un arbre qui possède autant que branches que de variables, comme par exemple l'énergie déposée ou l'énergie primaire événement par événement. Ce fichier est ensuite traité et analysé avec le programme d'analyse ROOT [23] .

3.6.3 Énergie déposée en fonction de la qualité du vide

Nous avons évoqué précédemment l'importance de travailler sous vide pour éviter que la vapeur d'eau ne se condense sur la surface froide du détecteur. Un vide secondaire présente comme autre avantage d'être un environnement peu diffusant. L'air à pression atmosphérique est un environnement hautement diffusant comme l'illustre la figure (3.23).

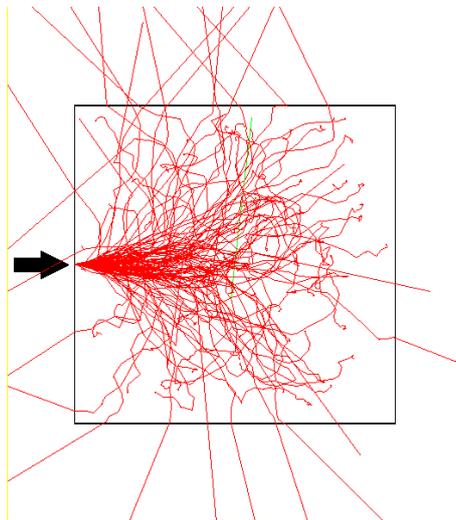


FIGURE 3.23 – Simulation d'un faisceau d'électrons de 200 keV, pénétrant dans un volume d'air de 40 cm³ à pression atmosphérique.

L'influence du vide a été étudiée à l'aide de GEANT4. La géométrie est simple : une boîte de 40 cm³ remplie avec de l'air à différentes pressions. L'air est modélisé comme un gaz parfait sec à température constante. Nous nous intéressons à l'énergie déposée dans ce volume d'air par un faisceau d'un million d'électrons pénétrant dans ce volume. Les résultats sont reportés dans le graphique (3.24).

Pour que l'énergie déposée dans le volume d'air par un faisceau d'électrons de 1 keV soit négligeable ($< 1\%$), il faut que la pression soit inférieure à 10^{-3} mbar, ce qui correspond à un vide secondaire.

3.6.4 Influence de l'épaisseur du détecteur

Nous cherchons ici à démontrer l'importance de l'épaisseur du volume actif du détecteur utilisé pour mesurer un spectre β .

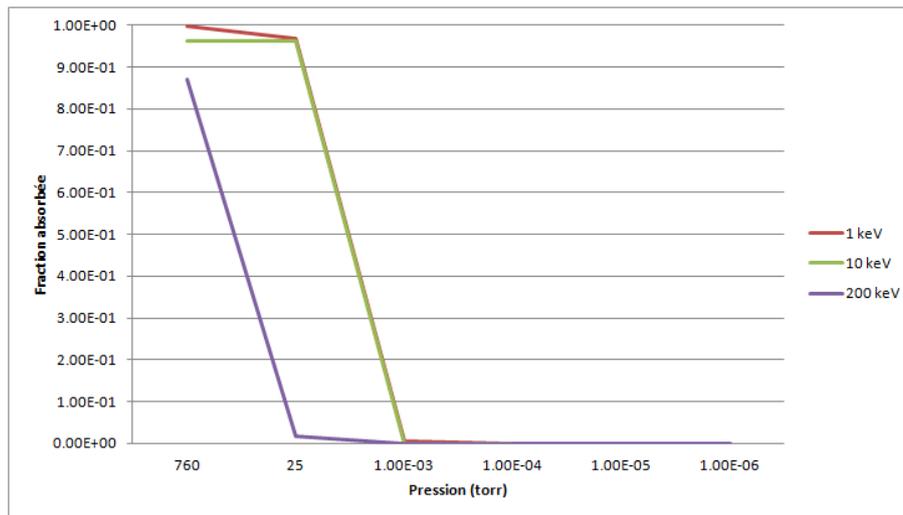


FIGURE 3.24 – Fraction d'énergie déposée dans le volume d'air par des électrons de différentes énergies initiales en fonction de la pression de l'air.

Le seuil d'énergie maximale d'un semi-conducteur au silicium dépend de l'épaisseur du volume actif. Nous avons modélisé la chambre de détection comme un simple cube fermé avec des parois de 5 mm d'épaisseur. Le spectre simulé est celui de la transition 1^{ère} interdite unique à 2279.8 keV de l'⁹⁰Y. La source est isotrope et située à 10 mm de la surface du détecteur. Le détecteur est simplement modélisé comme un cylindre de rayon 11.97 mm de différentes épaisseurs avec une zone morte de 50 nm. Quatre épaisseurs ont été modélisées : 500 μ m, 2 mm, 5 mm, 8 mm.

La figure (3.25) présente les résultats obtenus pour les différentes épaisseurs de volume actif. Pour une épaisseur de 500 μ m, le spectre est très fortement déformé (courbe rouge). En effet, les électrons de haute énergie ne sont pas arrêtés dans le volume actif du détecteur. Ils le traversent et n'y déposent qu'une petite partie de leur énergie. Ainsi, des événements appartenant à la fin du spectre sont comptés comme des événements de basse énergie. C'est le phénomène de repliement du spectre. Dans une moindre mesure, une déformation similaire est observée pour une épaisseur de 2 mm (le spectre vert).

Pour éviter ces déformations, il suffit de choisir une épaisseur de volume actif en accord avec l'énergie maximale du spectre à mesurer. C'est la raison pour laquelle nous disposons de deux détecteurs. Le détecteur PIPS a un volume actif de 500 μ m et son utilisation est limitée aux transitions d'énergie inférieure à 390 keV. Le détecteur Si(Li) d'une épaisseur de 5 mm peut mesurer des spectres jusqu'à 2.5 MeV.

3.6.5 Étude de la chambre de détection

L'objet de cette étude est de déterminer quelle géométrie et quel matériau permettent de réduire les phénomènes de diffusion au sein de la chambre de détection.

Nous avons modélisé la chambre de détection comme un simple cube fermé avec des parois de 5 mm d'épaisseur. Le spectre simulé est celui de la transition 1^{ère} interdite unique à 2279.8 keV de l'⁹⁰Y. Le détecteur est simplement modélisé comme un cylindre de rayon 11.97 mm et d'épaisseur 5 mm avec une zone morte de 50 nm.

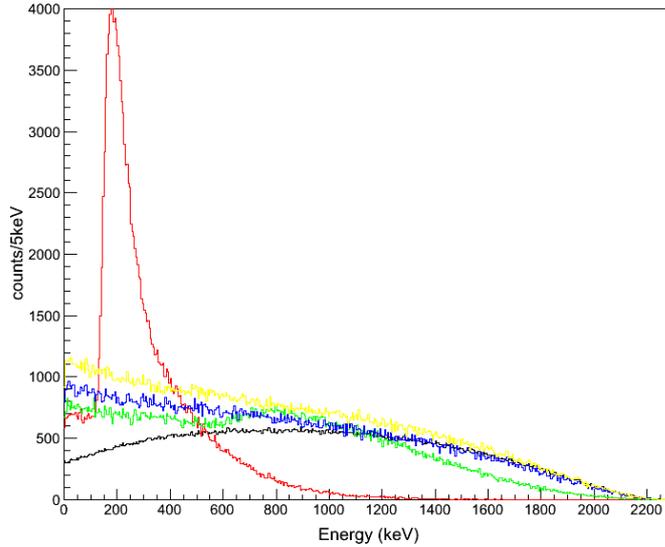


FIGURE 3.25 – Étude des déformations du spectre en fonction de l'épaisseur du volume actif de détection. La courbe noire est le spectre théorique calculé avec BETASHAPE. Les courbes rouge, verte, bleue et jaune correspondent respectivement aux épaisseurs 500 μm , 2 mm, 5 mm et 8 mm.

Nous avons testé différentes tailles de chambre de détection, allant de 150 à 250 mm, pour deux matériaux : l'acier inoxydable et l'aluminium. La source a été positionnée à une distance du détecteur variant de 10 à 40 mm par pas de 10 mm. En géométrie proche du détecteur, l'effet de diffusion est presque négligeable. À faible distance du détecteur, comme illustré sur la figure (3.26), les effets de la diffusion sont notables et il apparaît clairement que l'aluminium doit être préféré à l'acier inoxydable. Moins il y a de matière présente autour du système source-détecteur, moins l'effet de diffusion est important. Mais comme nous avons également des contraintes mécaniques et d'encombrement, le cube ne pouvait pas être infiniment grand. Finalement, la chambre de détection a été choisie en aluminium avec des côtés de 170 mm.

Lors de cette étude, en comparant les spectres en l'absence de chambre de détection en géométrie proche et éloignée, nous avons mis en évidence une déformation due à l'épaisseur du détecteur. Lorsque le détecteur est épais, des électrons ayant une énergie suffisante peuvent s'échapper du volume actif par ses côtés et ne déposer qu'une partie de leur énergie. Des électrons de haute énergie sont alors comptabilisés à basse énergie. L'origine de cette déformation est purement géométrique. L'importance de cet effet est inversement proportionnelle à la distance et proportionnelle à l'épaisseur du détecteur.

3.6.6 Étude du porte-source

L'objectif est d'éviter autant que possible la détection d'électrons rétrodiffusés par le porte-source. La rétrodiffusion est plus importante pour des électrons de basse énergie et pour des matériaux absorbants de numéro atomique élevé [6].

Des simulations GEANT4 ont été réalisées à partir de l'exemple *TestEm5*, que nous avons adapté à notre application. Deux matériaux ont été envisagés pour la fabrication du porte-

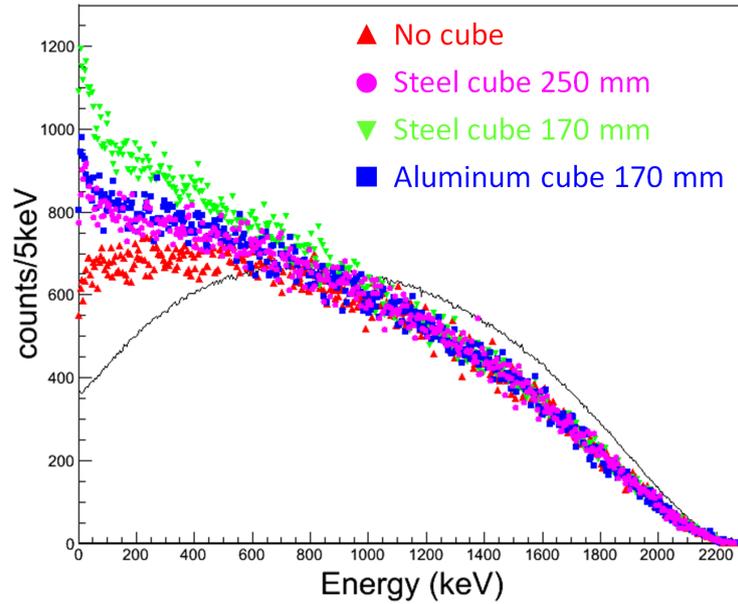


FIGURE 3.26 – Étude des déformations du spectre en fonction du matériau et des dimensions de la chambre de détection. La courbe noire est le spectre théorique calculé avec BETASHAPE.

source :

1. l'aluminium, facilement usinable et qui a un Z plus faible que l'acier inoxydable,
2. le PEEK, un plastique qui a la propriété de ne pas dégazer contrairement à la plupart des matières plastiques.

Ces matériaux ont été testés dans deux configurations simples. Un faisceau monoénergétique d'électrons de 500 keV est envoyé sur un bloc de matière plein puis, en conservant les mêmes paramètres, sur un bloc creusé sur 1 cm de profondeur. Les résultats sont présentés dans le tableau 3.1.

	Fraction réfléchie porte-source plein	Fraction réfléchie porte-source creux
Aluminium ($Z=13$)	11.4 %	5.1 %
PEEK ($C_6H_4-O-C_6H_4-Co-$) $_n$	2.7 %	1.3 %

TABLE 3.1 – Électrons rétrodiffusés en fonction du matériau et de la géométrie du porte-source.

Le porte-source creux en PEEK rétrodiffuse beaucoup moins les électrons que les autres géométries. La géométrie finale du porte-source tient compte de ces résultats, comme nous pouvons le constater sur la figure (3.4).

Ce chapitre a présenté en détail l'étude du dispositif expérimental ainsi que la technique de préparation des sources radioactives. Les points importants à retenir sont :

- le dispositif expérimental incluant l'électronique de détection a été optimisé afin de limiter au mieux les sources de déformations au cours de l'acquisition des spectres β ;
- les sources radioactives peuvent être également à l'origine de déformations du spectre β et une nouvelle méthode de préparation a été mise en place pour la fabrication de sources dédiées à la spectrométrie β ;
- des simulations Monte Carlo ont été réalisées avec des outils spécifiques développés pour le logiciel GEANT4 afin de mener à bien toutes les études d'optimisation.

Bibliographie

- [1] M. Michel. Mise en place d'un système de détection pour la mesure des spectres bêta. Rapport de stage (M2), 2010.
- [2] F. Salvat, J. M. Fernandez-Varea, and J. Sempau. PENELOPE - A code system for Monte Carlo simulation of electron and photon transport. NEA-OECD, Paris, 2003.
- [3] M. Mesradi, A. Elanique, A. Nourreddine, A. Pape, D. Raiser, and A. Sellam. Experimental characterization and Monte Carlo simulation of Si(Li) detector efficiency by radioactive sources and PIXE. *Appl. Radiat. Isot.*, 66 :780 – 785, 2008. Proceedings of the 16th International Conference on Radionuclide Metrology and its Applications.
- [4] NIST. CODATA recommended values, 2010.
- [5] S. Pierre and X. Mougeot. Étude de la correction de temps mort du logiciel Maestro sur les détecteurs G8 et G9. Note Technique LNHB. 2011/32, 2011.
- [6] G. F. Knoll. *Radiation detection and measurement*. Wiley, 1989.
- [7] J. S. Merritt, J. G. V. Taylor, and P. J. Champion. Self-absorption in sources prepared for 4π beta counting. *Can. J. Chem.*, 37(6) :1109–1114, 1959.
- [8] B. Denecke, G. Sibbens, T. Szabo, M. Hult, and L. Persson. Improvements in quantitative source preparation. *Appl. Radiat. Isot.*, 52(3) :351 – 355, 2000.
- [9] G.C. Lowenthal and H.A. Wyllie. Thin 4π sources on electro sprayed ion exchange resin for radioactivity standardization. *Int. J. Appl. Radiat. Isot.*, 24(7) :415, 1973.
- [10] Y. Lachance and J. C. Roy. Studies on the measurement of the disintegration rate of ^{63}Ni by $4\pi - \beta$ counting. *Nucl. Instrum. Methods*, 104(2) :393 – 400, 1972.
- [11] P. Blanchis, J. Page, J. Bouchard, M. Vandevyver, and A. Ruaudel-Teixier. Recent developments in the preparation of radioactive sources at LMRI. *Nucl. Instrum. Meth. A*, 286(3) :447 – 452, 1990.
- [12] B. D. Pate and L. Yaffe. A new material and techniques for the fabrication and measurement of very thin films for use in 4π -counting. *Can J. Chem.*, 33(1) :15–23, 1955.
- [13] J. de Sanoit, B. Leprince, and D. Vailhen. Optimisation des sources ponctuelles sur film mince par une approche expérimentale de type plan d'expériences. application aux sources de ^{60}Co . Rapport CEA-R-5970, 2001.
- [14] D. J. Carswell and J. Milsted. A new method for the preparation of thin films of radioactive material of thin films of radioactive material. *J. Nucl. Energ. (1954)*, 4(1) :51 – 54, 1957.
- [15] E. Bruninx and G. Rudstam. Electro-spraying : A method of making samples for β counting allowing accurate correction for self-scattering and self-absorption . *Nucl. Instrum. Methods*, 13(0) :131 – 140, 1961.
- [16] T. Branger, C. Bobin, M.-G. Iroulart, M.-C. Lépy, I. Le Garrères, S. Morelli, D. Lacour, and J. Plagnard. Comparative study of two drying techniques used in radioactive source preparation : Freeze-drying and evaporation using hot dry nitrogen jets . *Appl. Radiat. Isot.*, 66(6-7) :685 – 690, 2008. Proceedings of the 16th International Conference on Radionuclide Metrology and its Applications.
- [17] J. de Sanoit, B. Leprince, Ch. Bobin, and J. Bouchard. Freeze-drying applied to radioactive source preparation. *Appl. Radiat. Isot.*, 61(6) :1391 – 1395, 2004.
- [18] J. G. Briesmeister. A General Monte Carlo N-Particle transport Code. Los Alamos National Laboratory, 2000.
- [19] S. Agostinelli *et al.* Geant4 a simulation toolkit. *Nucl. Instrum. Meth. A*, 506(3) :250 – 303, 2003.

- [20] I. Kawrakow and D.W.O. Rogers. The EGSnrc code system : Monte Carlo simulation of electron and photon transport. NRCC, Report PIRS-701, 2003.
- [21] F. Salvat, A. Jablonski, and C. J. Powell. ELSEPA dirac partial-wave calculation of elastic scattering of electrons and positrons by atoms, positive ions and molecules. *Comput. Phys. Commun.*, 165(2) :157 – 190, 2005.
- [22] I. Kawrakow and A. F. Bielajew. On the representation of electron multiple elastic-scattering distributions for monte carlo calculations. *Nucl. Instrum. Meth. B*, 134(3 – 4) :325 – 336, 1998.
- [23] R. Brun and F. Rademakers. ROOT- An Object Oriented Data Analysis Framework. *Nucl. Instrum. Meth. A*, 389 :81–86, 1996.

Chapitre 4

Comparaison des simulations aux mesures

Dans le chapitre précédent, nous avons utilisé des simulations GEANT4 pour étudier l'influence de l'environnement sur la forme des spectres. Nous avons ainsi pu déterminer les géométries et les matériaux à utiliser afin de limiter la diffusion des électrons avant leur détection. Ce chapitre décrit toutes les analyses complémentaires : sur l'ensemble du dispositif expérimental, le détecteur, la source, etc. qui ont été faites pour extraire les facteurs de forme des spectres mesurés.

4.1 Simulations Monte Carlo avec GEANT4

Bien que nous ayons essayé de bâtir un système de détection limitant au maximum la diffusion des électrons avant leur détection, tous ces phénomènes ne peuvent pas être complètement éliminés. Afin d'extraire un résultat physique et précis des données enregistrées, la réponse de l'ensemble du dispositif expérimental incluant la source radioactive, et non uniquement du détecteur, doit être parfaitement connue afin de corriger les spectres mesurés. Pour cela, nous avons développé une application sous GEANT4 qui décrit précisément la géométrie de la chambre de détection et de ses différents composants : le détecteur, le porte-détecteur, le porte-source et la source elle-même.

Modélisation de la chambre de détection et de ses composants

Grâce à une radiographie, une analyse par fluorescence X et le plan du constructeur du détecteur PIPS, nous connaissons en détail sa géométrie et sa composition (voir figure 3.14). Chaque détecteur est décrit dans une classe qui lui est propre, et qui est appelée depuis le fichier *DetectorConstruction*. Ainsi la simulation est également modulaire. Étant donné que nous avons conçu la chambre de détection, le porte-détecteur et le porte-source, nous disposons de toutes les informations nécessaires pour les modéliser précisément. La figure 4.1 illustre la modélisation dans GEANT4 de la chambre de détection et de ces différents éléments.

Modélisation des sources radioactives

Les sources peuvent être à l'origine de déformations importantes, il est donc primordial de les modéliser en détail. Avant de disposer de nos propres sources fabriquées selon le protocole décrit au chapitre 3.5.1, nous avons testé le dispositif expérimental avec des sources prévues pour des techniques de mesure ayant des contraintes différentes des nôtres.

Nous disposons par exemple d'une source de ^{133}Ba qui a été fabriquée pour des mesures

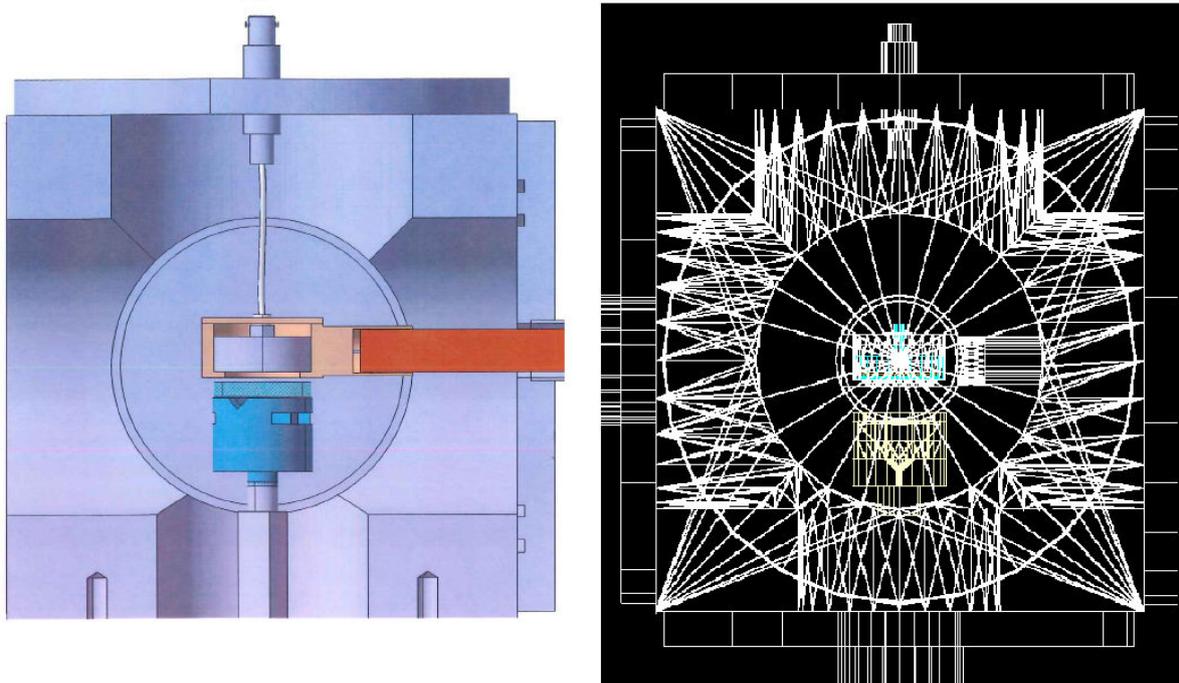


FIGURE 4.1 – À gauche, plan de l'intérieur de la chambre de détection dont les différents éléments sont le détecteur, le porte-détecteur, le porte-source et la source. Sur cette image, un écran est également représenté. À droite, la chambre de détection et ses composants tels qu'ils sont modélisés dans GEANT4, mais sans écran.

d'activité primaire¹ par la méthode dite du cristal-puits. Cette technique a été développée pour la mesure de radionucléides γ qui sont peu absorbés dans les matériaux légers. Le dépôt radioactif d'environ 5 mm de diamètre est ainsi simplement intercalé entre une feuille de Mylar de 18 μm et un scotch de 45 μm d'épaisseur. Dans GEANT4, le matériel radioactif de 10 nm d'épaisseur est défini entre ces deux couches de matériaux.

Par ailleurs, les sources fabriquées pour la méthode du compteur proportionnel doivent être conductrices et sont donc métallisées. Le support de la source est un film de Vyns de 500 nm d'épaisseur doré sur ses deux faces avec 30 nm d'or. Une sous-couche de microbilles de latex de 0.15 μm d'épaisseur et 10 mm de diamètre est ensuite électro-pulvérisée sur le film puis une goutte de solution radioactive est déposée sur la sous-couche. Notre source de ^{109}Cd a été préparée de cette manière puis, afin d'accroître sa résistance, une feuille de Mylar de 18 μm d'épaisseur a été ajoutée derrière le film de Vyns.

Les sources dédiées à la spectrométrie β sont préparées selon un protocole dérivé de celui utilisé pour les sources mesurées avec un compteur proportionnel. Le film de Vyns n'est cependant pas doré et la résistance au vide de ces sources s'est avérée suffisante, de sorte que la feuille de Mylar n'est pas nécessaire. Les sources de ^{133}Ba , ^{60}Co , ^{151}Sm et ^{99}Tc que nous avons mesurées dans cette étude, sont de ce type. Enfin, comme nous disposons d'une solution mère de ^{14}C de plusieurs GBq, nous en avons tiré une source en transférant très simplement, par contact à l'aide d'un bâtonnet, un peu de solution sur une feuille de Mylar de 18 μm .

Les différents types de source utilisés dans cette étude sont résumés dans la figure (4.2).

1. Une mesure primaire permet d'obtenir l'activité d'une source sans connaître préalablement les caractéristiques de la chaîne de détection utilisée et ne nécessite pas de disposer d'étalon de radioactivité.

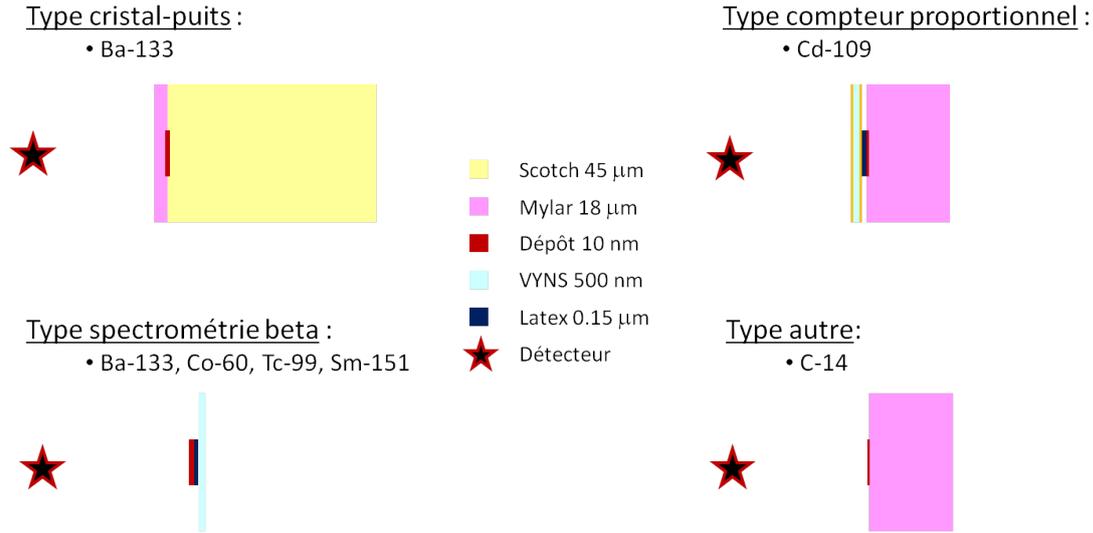


FIGURE 4.2 – Les sources radioactives telles qu’elles sont modélisées dans GEANT4 avec les différentes épaisseurs de matériaux qui les composent. Les épaisseurs dessinées ne sont pas à l’échelle des épaisseurs réelles.

Résolution en énergie du détecteur

La performance d’un détecteur se caractérise en particulier par sa résolution en énergie qui influe sur le pouvoir séparateur et les limites de détection.

La résolution globale du détecteur est déterminée par la combinaison de trois facteurs : les fluctuations statistiques inhérentes à la nature discrète du signal (W_D), les variations dans la collection de la charge (W_X), et les contributions du bruit électronique (W_E).

Le bruit électronique dépend fortement de la capacité du détecteur et des composants électroniques de la chaîne d’acquisition. Sa contribution à la largeur à mi-hauteur totale ne dépend pas de l’énergie.

Par contre, les effets d’une collection de charge incomplète sont linéairement dépendants de l’énergie. Lorsque celle-ci augmente, le nombre de porteurs de charge créés dans le milieu est plus important et la collection de charge peut être incomplète. Cet effet augmente également avec les dimensions du cristal. Plus la distance entre le point de création de la paire électron-trou et sa collecte est importante, plus il est probable que des phénomènes de recombinaison aient lieu en chemin.

Enfin, la contribution statistique s’exprime comme

$$W_D = 2\sqrt{2 \ln 2} \sqrt{F \epsilon E} \quad (4.1)$$

avec F le facteur de Fano, ϵ l’énergie nécessaire à la création d’une paire électron-trou, et E est l’énergie de la particule incidente. La FWHM totale (W_T), qui est la racine carrée de la somme quadratique de ces trois termes, croît donc avec l’énergie.

La contribution W_D dépend directement du nombre de porteurs de charge créés lors de l’interaction d’une particule dans un volume sensible et est naturellement prise en compte dans la simulation. Par contre, GEANT4 ne prend pas en compte les effets de la collection des charges ni du bruit électronique, qui dégradent, dans la réalité, la résolution intrinsèque du détecteur. Nous n’introduisons donc pas cet effet lors des simulations mais les spectres seront traités *a posteriori* pour en tenir compte.

Lors d'une simulation, toute l'énergie déposée dans le volume sensible de détection par un événement est enregistrée dans un fichier. À la fin de la simulation, une macro ROOT de lecture traite ce fichier événement par événement et remplit un histogramme en fonction de l'énergie déposée. Pour tenir compte de la résolution du détecteur, il suffit de générer un nombre dans une distribution gaussienne dont la largeur à mi-hauteur correspond à la résolution du détecteur, et qui est centrée sur la valeur de l'énergie déposée. La nouvelle valeur de l'énergie déposée est enregistrée dans un autre histogramme.

La résolution est déterminée à partir d'un spectre expérimental d'une source d'électrons de conversion de ^{109}Cd . La résolution de 4.4 keV du pic à 62.52 keV est évaluée en ajustant une gaussienne sur cette raie monoénergétique. En première approximation, nous supposons constante sur toute la gamme en énergie, la contribution du bruit électronique et de collection de charge à la résolution totale. Dans GEANT4, seul le pic à 62.52 keV est simulé. Le pic d'absorption totale visible en rouge sur le figure 4.3 a une largeur à mi-hauteur d'environ 600 eV. Le pic simulé est donc convolué par une gaussienne de largeur à mi-hauteur égale à 4.36 keV qui permet de tenir compte du bruit électronique et de collection de charge. La comparaison entre la mesure et le pic simulé tenant compte de la résolution est représentée sur la figure 4.3 et présente un excellent accord.

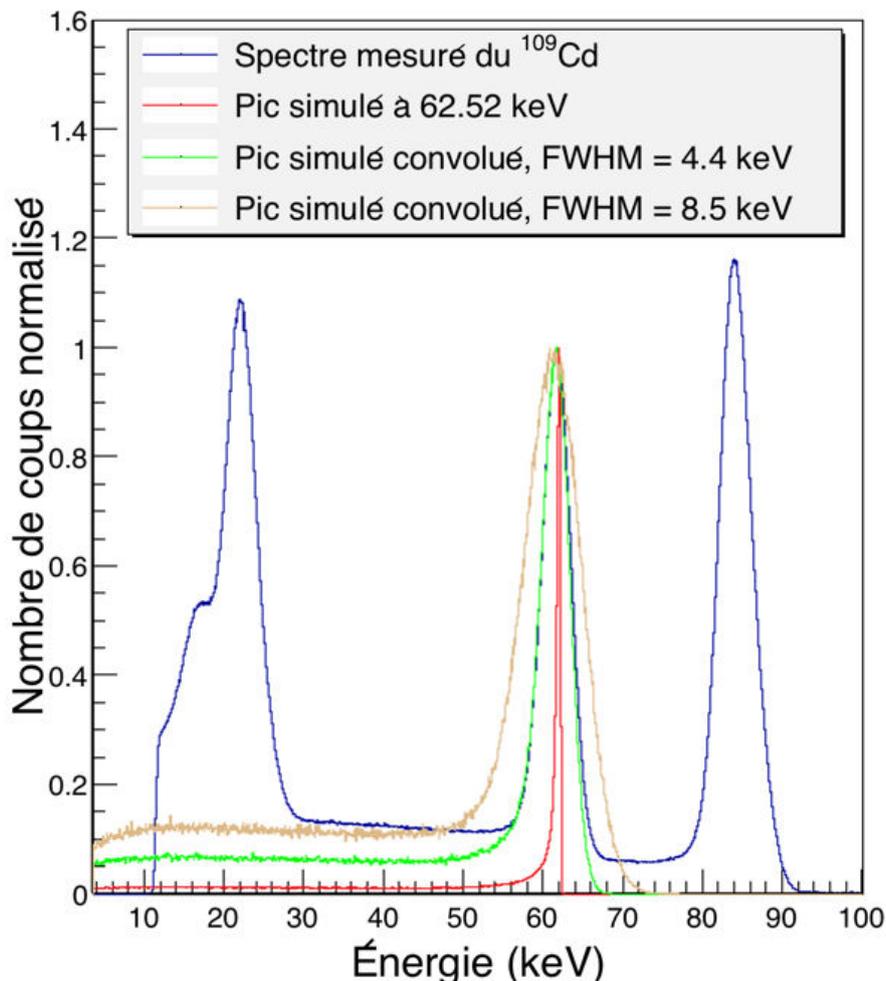


FIGURE 4.3 – Comparaison entre la mesure et la simulation du pic à 62.52 keV à différentes résolutions.

À titre d'exemple, nous avons également représenté sur la figure 4.3, l'aspect du pic à 62.52 keV si la résolution du détecteur était de 8.5 keV.

Simulation d'une source radioactive

Le moyen le plus simple de simuler une source radioactive dans GEANT4 est d'utiliser le module *General Particle Source* (GPS) et d'ajouter le processus physique de désintégration radioactive dans la *Physics List* du code utilisateur. Ainsi, le radionucléide ayant été préalablement défini comme un ion neutre au repos est généré comme une particule primaire. GEANT4 va ensuite laisser la particule décroître puis suivre les produits de la décroissance comme des particules secondaires.

Les décroissances radioactives sont traitées par la classe *G4RadioactiveDecay* et les classes associées. Le module de décroissance radioactive permet de simuler la désintégration, en vol ou au repos, d'un noyau radioactif par désintégration α , β^\pm et par capture électronique (EC). Les données utilisées par les modèles, telles que :

- la période ;
- la structure nucléaire des noyaux père et fils ;
- les rapports d'embranchement ;
- l'énergie de la désintégration ;

sont extraites des tables de *the Evaluated Nuclear Structure Data File* (ENSDF).

Trois versions de GEANT4 ont été utilisées au cours de cette thèse :

- geant4 9.4 (décembre 2010),
- geant4 9.5 (décembre 2011),
- geant4 9.6 (novembre 2012).

Nous avons choisi de mettre à jour les versions au fur et à mesure car GEANT4 est en constante évolution. Nous avons notamment constaté une nette amélioration du modèle de décroissance radioactive entre la version 9.4 et la version 9.6. Le calcul des spectres β a été complètement revu. Avant la version 9.5, seules les transitions permises étaient implémentées dans la classe *G4RadioactiveDecay*. Les dernières versions ont été étendues aux transitions interdites uniques et le calcul de la fonction de Fermi a été amélioré.

Nous avons cependant favorisé l'utilisation de BETASHAPE qui a été implémenté directement dans notre code utilisateur. Une classe *BetaSource* qui hérite de la classe *General Particle Source* a ainsi été créée et permet de générer des spectres β calculés avec BETASHAPE. Les spectres incluant les effets atomiques fins et nécessitant un temps de calcul plus important sont néanmoins calculés en dehors de la simulation. Ils sont ensuite stockés dans un fichier texte puis générés dans la simulation. Cette manière de procéder permet de gagner du temps de calcul.

Des sources d'électrons de conversion ont été utilisées afin d'étalonner le détecteur. Ces spectres de raies nous permettent également de connaître la résolution du détecteur (voir paragraphe 4.8). Nous avons cherché à tester la capacité de GEANT4 à générer des schémas de décroissance complexes. Le module de décroissance de GEANT4 fait appel à la classe *G4AtomicRelaxation* lorsqu'une lacune est créée dans le cortège suite à l'émission d'un électron de conversion. Cette même classe gère également la relaxation atomique induite par n'importe quel processus d'ionisation laissant l'atome dans un état excité (i.e. avec une lacune dans sa structure électronique). Les données sont extraites de *the Livermore Evaluation Atomic Data Library* EADL [1] et décrivent la relaxation des atomes qui se désexcitent après avoir été ionisés. Les résultats préliminaires montrent que le module de relaxation atomique génère les X et les électrons Auger des sources de ^{133}Ba et ^{109}Cd aux bonnes énergies mais leurs intensités ne sont pas toujours en accord avec les valeurs théoriques. C'est la raison pour laquelle pour ces deux radionucléides, les schémas de désintégration ont également été écrits « à la main » à partir des données extraites de NUCLÉIDE puis implémentés dans GEANT4.

Utilisation des données extraites de NUCLÉIDE

Le module de décroissance de GEANT4 est facile à implémenter dans la liste des processus physiques utilisés dans la simulation mais présente, cependant, certains inconvénients. D’une part, les données utilisées sont extraites de la base ENSDF. Or, cette base de données, bien qu’étant largement utilisée comme référence dans le domaine des données nucléaires et atomiques, ne suit pas les recommandations du groupe de travail international d’évaluation de données de décroissance *Decay Data Evaluation Project* (DDEP) dont le but est de fournir aux utilisateurs des données recommandées établies avec soin selon des règles précises. Les données recommandées par la DDEP font l’objet de monographies publiées par le Bureau International des Poids et Mesures (BIPM) et sont compilées dans la base de données NUCLÉIDE. Dans le tableau 4.1, les probabilités de capture électronique pour le ^{109}Cd sur les couches K, L et M sont reportées. Nous constatons que si les probabilités de capture sur les couches K et L sont semblables aux incertitudes près, ce n’est pas le cas pour la couche M pour laquelle les données diffèrent sensiblement.

	GEANT4	NUCLÉIDE
^{109}Cd		
P_K	0.8125	0.8118 (23)
P_L	0.1489	0.1497 (23)
P_M	0.386	0.321 (8)

TABLE 4.1 – Comparaison des probabilités de capture sur les couches K, L, M données dans GEANT4 et dans NUCLÉIDE.

Les données mesurées concernant les émissions de photons X et d’électrons Auger sont limitées, en particulier pour les intensités d’émission et les transitions de faible énergie. Des calculs sont nécessaires pour fournir ces données. Les différents programmes utilisent diverses bases de données et les valeurs calculées sont parfois divergentes.

Autres paramètres d’entrée de la simulation

Nous avons évoqué dans le chapitre précédent l’importance du choix des modèles physiques utilisés dans la simulation. Notre liste physique est dérivée de l’exemple *rdecay02*. Cette classe permet de spécifier l’ensemble des particules et processus physiques impliqués dans la simulation, c’est-à-dire, ici, les processus de transport, de désintégration radioactive et électromagnétiques.

Pour les processus électromagnétiques, plusieurs sous-listes sont en option en fonction de la gamme en énergie et du but de la simulation. La sous-liste que nous utilisons contient les modèles physiques de basse énergie Livermore. Certains paramètres d’entrée sont à choisir avec attention. C’est notamment le cas du paramètre *Cut For Secondaries* (CFS) qui détermine le seuil en énergie à partir duquel les particules secondaires ne sont plus créées, l’énergie étant alors absorbée localement. Ce paramètre est donné par l’utilisateur dans une unité de distance qui est convertie au début de la simulation en une énergie seuil en fonction des matériaux. Pour une simulation précise, sa valeur doit être inférieure aux dimensions des volumes sensibles. Étant donné la précision que nous recherchons, nous avons fixé le paramètre CFS à 10 nm. Les modèles physiques de Livermore décrivent les interactions des électrons et des photons dans la matière jusqu’à 250 eV, cependant par défaut l’énergie équivalente au CFS est limitée à 990 eV. Afin de garder un temps de calcul raisonnable nous avons conservé la valeur par défaut.

Nous utilisons le modèle de diffusion multiple de Goudsmit-Saunderson avec les paramètres ($F_R = 0.04$, $F_G = 2.5$ et $Skin = 3$). Les valeurs par défaut ont été étudiées et validées par ailleurs.

4.2 Caractérisation du détecteur PIPS

4.2.1 Étalonnage du détecteur PIPS avec une source de ^{133}Ba

Pour étalonner le détecteur, nous avons utilisé une source de ^{133}Ba qui présente des pics monoénergétiques d'électrons de conversion et des raies de photons. Les électrons perdent de l'énergie dans l'ensemble des matériaux traversés avant leur détection. Pour un étalonnage précis utilisant les électrons, les pertes d'énergie, au sein de la source et de la zone morte sur la surface d'entrée du détecteur, doivent être prises en compte. Or, en première approximation, l'énergie nécessaire pour créer une paire électron-trou dans un cristal de silicium est indépendante de la nature et de l'énergie de la particule incidente. Il nous a donc semblé plus indiqué de réaliser l'étalonnage du détecteur en utilisant les pics des photons. Afin de ne mesurer que les rayons X et γ , nous avons inséré des écrans suffisamment épais pour arrêter les électrons.

Écrans

Pour déterminer les matériaux et les épaisseurs des écrans, nous avons utilisé la formule semi-empirique de portée des électrons dans un matériau. Le matériau doit avoir un pouvoir d'arrêt suffisant pour arrêter les électrons et ne pas trop atténuer les photons. Le tableau 4.2 présente les portées des électrons de 400 keV et 2.5 MeV dans différents matériaux.

Matériau	Masse volumique ($\text{g}\cdot\text{cm}^{-3}$)	Portée (400 keV)	Portée (2.5 MeV)
Or	19.32	62 μm	630 μm
Argent	10.5	110 μm	1.15 mm
Cuivre	8.96	130 μm	1.35 mm
Inox	7.76	154 μm	1.56 mm
Aluminium	2.699	440 μm	4.50 mm
Pyrex	2.23	540 μm	5.4 mm
PEEK	1.3	920 μm	9.3 mm
Plexiglas	1.19	1 mm	1.02 cm

TABLE 4.2 – Portées d'électrons d'énergie 400 keV et 2.5 MeV dans différents matériaux. En rouge, les matériaux retenus pour notre étude (cuivre et PEEK).

Ces deux énergies correspondent, respectivement, aux énergies maximales en électron pour les détecteurs PIPS et Si(Li). Au-delà de ces valeurs, les particules sont susceptibles de traverser l'épaisseur de volume actif du détecteur et de n'y déposer qu'une partie de leur énergie. Les épaisseurs des écrans ont donc été dimensionnées en fonction de ces énergies maximales.

L'écran permettant d'arrêter les électrons d'énergie maximale 400 keV est en PEEK et fait environ 1 mm d'épaisseur. Ce matériau plastique présente l'avantage de ne pas dégazer sous vide et son numéro atomique est faible, limitant ainsi les phénomènes radiatifs (rayonnement de freinage et diffusion Compton). Pour arrêter les électrons de haute énergie, nous avons choisi d'utiliser du cuivre de 1 mm d'épaisseur. En effet, pour des raisons d'encombrement au sein de la chambre de détection, nous ne souhaitons pas que les écrans excèdent une épaisseur de

2 mm. L'utilisation d'un métal était donc nécessaire. Afin de limiter les phénomènes radiatifs, nous avons choisi le cuivre plutôt que l'argent ou l'or dont les densités sont plus élevées.

Finalement nous disposons de deux écrans en PEEK de 1 mm et de deux écrans en cuivre de 1 mm qui peuvent, si besoin, être superposés.

Mesures du ^{133}Ba

Nous disposons de trois sources de ^{133}Ba dont les caractéristiques sont rappelées dans le tableau 4.3.

Solution	N° de source	Masse (mg)	Technique de mesure
IPL n°614-73	^{133}Ba -59	23.2740	Cristal Puits
LNHB 133Ba-10-10-13	Ba7	28.585	Spectrométrie β
LNHB 133Ba-10-10-13	Ba8	24.232	Spectrométrie β

TABLE 4.3 – Caractéristiques des différentes sources de ^{133}Ba .

N° de source	Date	Source	Écran	Temps (s)	Couleur
^{133}Ba -59	08/08/2013	Mylar	non	89311	marine
^{133}Ba -59	20/08/2013	Mylar	oui	85634	rouge
Ba7	16/10/2013	Vyns n°7	non	63597	
Ba8	15/04/2014	Vyns n°8	oui	323476	fushia
Ba8	17/04/2014	Vyns n°8	non	172800	turquoise

TABLE 4.4 – Résumé des différentes conditions des mesures qui ont été réalisées avec les sources de ^{133}Ba .

Le premier ensemble de données pour le ^{133}Ba a été enregistré pour la source recouverte de Mylar. Dans un second temps, nous avons utilisé une source Vyns dédiée à la spectrométrie β . Il est important de rappeler ici que les sources Vyns ne sont pas sandwichées. Il n'y a donc aucun matériau au-dessus du dépôt contrairement à la source avec du Mylar. Les résultats sont présentés sur la figure 4.4.

Sur le graphe du bas de la figure 4.4, les spectres de photons enregistrés pour les deux sources écrantées sont comparés. Seuls les pics X et gamma sont visibles puisque les électrons sont arrêtés par l'écran. Les deux spectres sont semblables. Ce résultat est attendu puisque les photons sont très peu atténués dans le Mylar. Par contre, lorsque les spectres complets sont mis côte à côte, nous constatons que :

1. les pics électrons de haute énergie de la source Mylar présentent une traîne à gauche et sont décalés vers les basses énergies ;
2. les pics électrons de basse énergie de la source Mylar n'apparaissent pas sur le spectre.

Ces résultats ne sont pas surprenants. En effet, l'épaisseur de Mylar est suffisamment importante pour absorber des électrons de basse énergie. En utilisant la formule semi-empirique de portée, pour une masse volumique $\rho_{\text{Mylar}} = 1.4 \text{ g/cm}^3$, un électron de $E = 45 \text{ keV}$ est arrêté dans $23 \mu\text{m}$ de Mylar. Ces résultats confirment d'une part la nécessité de travailler avec des sources minces lorsque l'on s'intéresse aux électrons, et d'autre part, qu'il est effectivement pertinent de réaliser l'étalonnage du PIPS en utilisant les spectres de photons donnés sur le graphe du bas de la figure (4.4), les pics électrons pouvant présenter un décalage systématique vers les basses énergies.

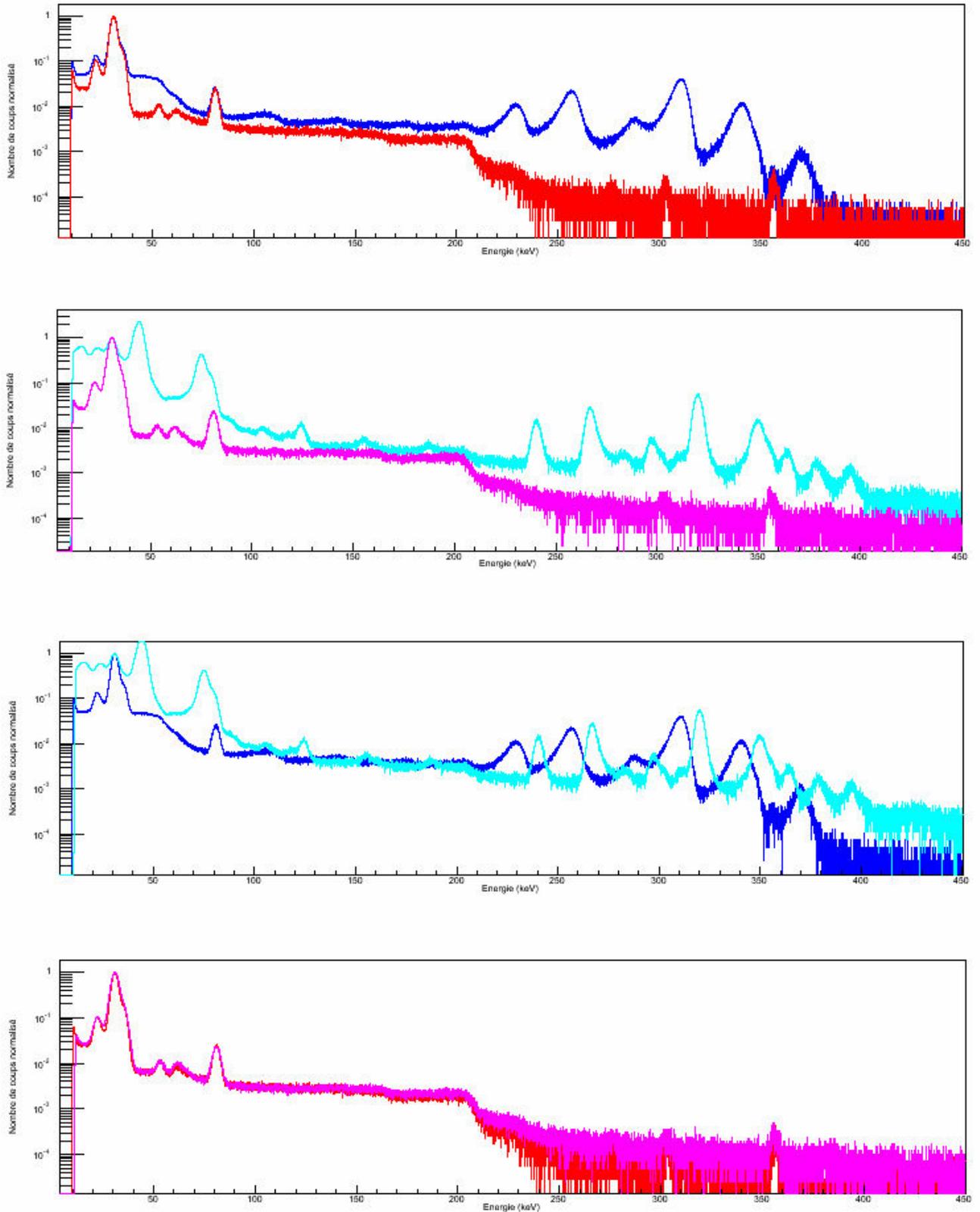


FIGURE 4.4 – De haut en bas. La première figure compare, pour la source $^{133}\text{Ba-59}$ (le dépôt radioactif est recouvert par une feuille de Mylar), le spectre complet (électrons et photons) au spectre écranté (photons). La seconde figure est similaire à la première mais pour la source Ba8. Les figures suivantes comparent les deux sources entre elles. Sur l'avant-dernière figure, sont représentés les spectres complets où les pics électrons de haute énergie sont clairement décalés vers les basses énergies pour la source $^{133}\text{Ba-59}$. Enfin, les spectres de photons des deux sources sont présentés en dernier.

Pour déconvoluer les spectres nous utilisons le logiciel COLEGRAM [2] développé par le LNHB. Le processus de traitement consiste à ajuster des fonctions mathématiques aux points expérimentaux décrivant les différents pics contenus dans le spectre. Différents types de fonction peuvent être utilisés et dépendent des formes naturelles spécifiques de chaque pic à traiter. L'ajustement de la fonction mathématique se fait en utilisant l'algorithme de Marquardt-Levenberg selon le critère des moindres carrés ou celui du χ^2 .

Concernant les raies gamma, leur forme naturelle correspond à une gaussienne pure dont la largeur augmente en fonction de l'énergie et dont l'origine provient de la statistique de comptage et de la réponse de l'électronique d'acquisition.

Un exemple d'ajustement des pics à basse énergie du spectre échanté de ^{133}Ba est donné sur la figure (4.5).

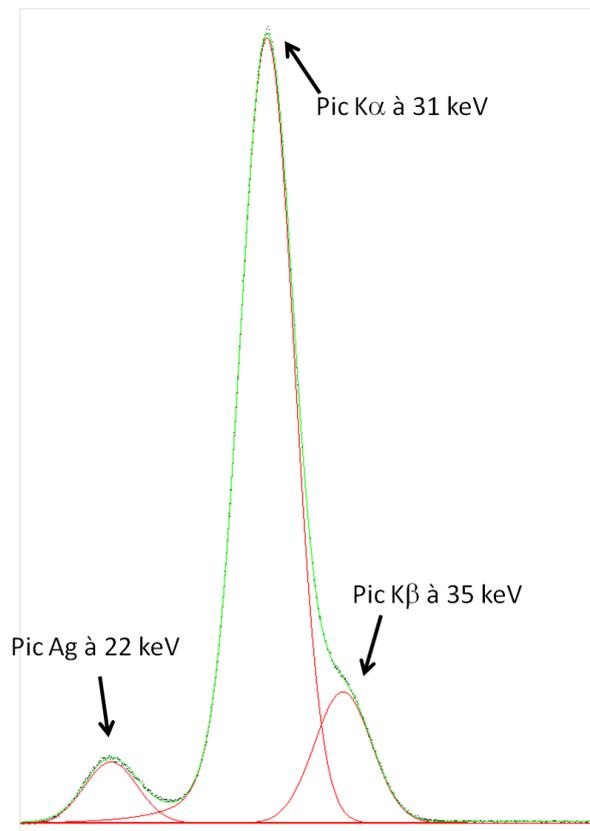


FIGURE 4.5 – Ajustement des pics autour de 30 keV du ^{133}Ba avec COLEGRAM.

Les données des régions d'intérêt (*Region Of Interest* - ROI) extraites à l'aide de COLEGRAM sont reportées dans le tableau (4.5).

Il convient de faire un certain nombre de remarques concernant le tableau (4.5).

- Le pic 1 (X de fluo) correspond à un X de fluorescence de l'argent. En effet, le détecteur contient une pâte thermique composée de particules solides d'argent. Comme nous avons clairement identifié l'origine de ce pic et que son énergie est bien connue, nous avons choisi d'utiliser ce point supplémentaire pour l'étalonnage du détecteur.
- Le pic 6 ($\gamma_{3,0}$) a une faible statistique. Il s'agit d'un gamma de 356 keV dont la probabilité d'interagir dans les 500 μm de silicium est faible. Étant donné que nous arrivons à ajuster une gaussienne sur ce pic, nous le considérons comme un point de la courbe

ID	Nature	Énergie (keV)	Intensité (%)	N° de canal	Surface du pic
pic 1	X de fluo	22.163		464	
pic 2	XK α (Cs)	30.851	96.8	698	4225650
pic 3	XK β (Cs)	35.263	22.8	805	731065
pic 4	$\gamma_{4,3}$ (Cs)	53.1622	2.14	1266	16912
pic 5	$\gamma_{2,1}$ (Cs)	80.8948	35.55	1975	87049
	$\gamma_{1,0}$ (Cs)				
pic 6	$\gamma_{3,0}$ (Cs)	356.0129	62.05	8996	887

TABLE 4.5 – Colonnes de gauche, données extraites de NUCLÉIDE. Colonnes de droite, données des ROI extraites du spectre échanté de la source de ^{133}Ba n°59 .

d'étalonnage. Nous avons ainsi des points d'étalonnage sur l'ensemble de la gamme en énergie du détecteur. Il faut cependant considérer avec précaution la valeur de sa surface.

- La résolution du détecteur PIPS n'est pas suffisante pour déconvoluer certains pics trop proches en énergie. Lorsque le pic identifié résulte de la contribution de plusieurs raies, l'énergie correspondante est la somme pondérée par la probabilité d'émission de chaque contribution. C'est notamment le cas pour le pic 5.

À partir des données reportées dans le tableau (4.5), nous avons établi la droite d'étalonnage suivante :

$$E(\text{keV}) = 0.0397 \cdot \text{canal} + 3.5218 \quad (4.2)$$

Ajustement des données expérimentales par une fonction

D'une manière générale, l'ajustement de données expérimentales par une fonction permet de relier deux grandeurs x et y par une loi du type $y = f(x)$ où f est une fonction dépendant d'un certain nombre de paramètres. L'ajustement en tant que tel consiste à déterminer la valeur de ces paramètres à partir des points de mesure. Des outils statistiques permettent ensuite d'estimer la qualité de l'ajustement.

Pour déterminer la droite d'étalonnage du détecteur PIPS, nous avons utilisé le logiciel Excel. Plusieurs types d'ajustements sont possibles : linéaire, polynomial, exponentiel... Une des caractéristiques des semi-conducteurs au silicium est leur réponse linéaire en énergie. Nous avons donc décidé d'ajuster les données selon une courbe de tendance linéaire du type $y = a \cdot x + b$. Pour déterminer la valeur des paramètres a et b , la méthode des moindres carrés est utilisée. Elle consiste à chercher les valeurs de a et b qui minimisent le carré de la différence entre les points expérimentaux (y_i) et les points ajustés, i.e.

$$\sum_{i=1}^n (y_i - (a + bx_i))^2 \quad (4.3)$$

La courbe de tendance (4.2) renvoyée par Excel est accompagnée du coefficient de détermination R^2 qui est ici égal à 0.99999809. Le coefficient de détermination est un indicateur qui permet de juger la qualité de l'ajustement linéaire. Sa valeur est comprise entre 0 et 1, et va d'autant plus tendre vers 1 que l'adéquation entre le modèle et les données observées est bonne. Le coefficient de détermination R^2 donné par Excel est le carré du coefficient de corrélation r défini comme le rapport de la covariance entre les variables x et y sur le produit de leurs écarts types.

La réponse en énergie du détecteur est bien linéaire sur la gamme d'énergie considérée, allant approximativement de 20 keV à 360 keV. La validité de la courbe d'étalonnage n'est valable qu'aux points d'observations et nous ne pouvons pas extrapoler ce résultat au-dessous de 20 keV.

Ré-étalonnage du détecteur PIPS

Plusieurs mois se sont écoulés entre la mesure de la source n°59 et de la source n°8. Le préamplificateur a été démonté à plusieurs reprises mais les réglages des modules NIM n'ont pas été touchés. Nous avons réalisé un second étalonnage avec le deuxième ensemble de données, qui nous a conduit à la nouvelle droite d'étalonnage suivante, représentée sur la figure (4.6) :

$$E(\text{keV}) = 0.0392 \cdot \text{canal} + 3.5692 \quad (4.4)$$

La différence entre les deux courbes d'étalonnage est de l'ordre de 1%. L'électronique semble donc stable dans le temps.

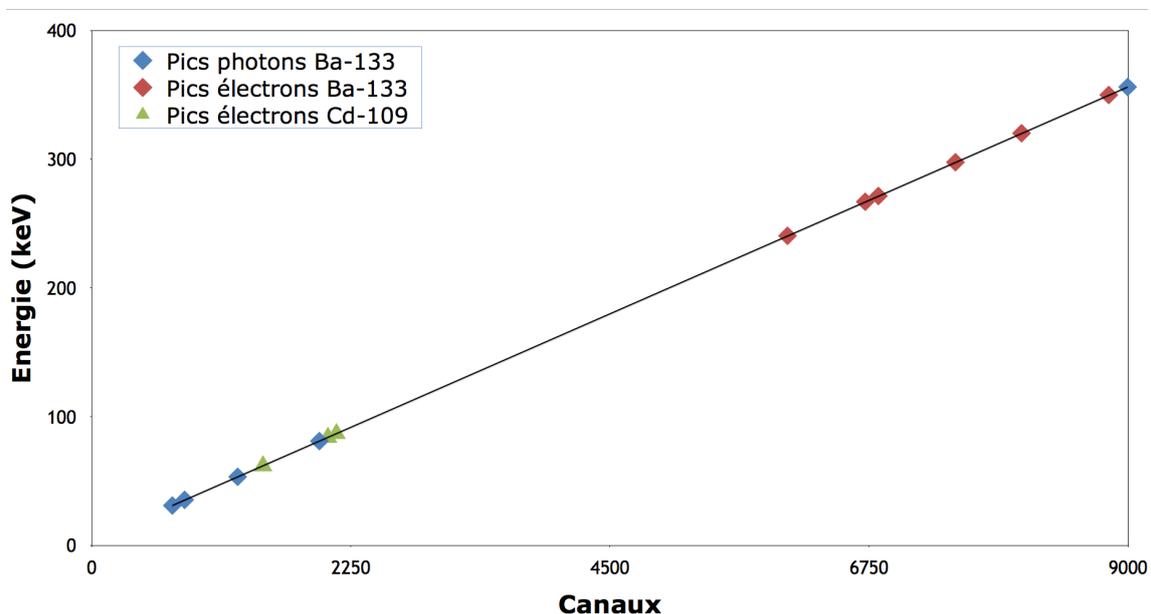


FIGURE 4.6 – Droite d'étalonnage du détecteur PIPS établie en utilisant les pics photons d'une source de ^{133}Ba . La linéarité de la réponse du détecteur en énergie est corroborée par les pics électrons du ^{133}Ba et du ^{109}Cd .

Pics d'électrons

À partir du spectre complet enregistré pour la source Vyns, nous avons extrait avec COLEGRAM les régions d'intérêt des pics électrons de haute énergie. Les données des ROI sont rassemblées dans le tableau 4.6. La relation d'étalonnage (4.4) a été appliquée afin de déterminer l'énergie de ces pics. La comparaison des énergies mesurées avec les énergies tabulées présente un excellent accord.

La zone morte est estimée par le constructeur à 50 nm équivalent silicium. Pour un électron de 320 keV, cela correspond à une perte d'énergie de 22 eV. La résolution du détecteur n'est pas suffisamment fine et les incertitudes sont trop importantes pour déterminer avec précision l'épaisseur de la zone morte à partir des pertes d'énergie observées. Cependant, nous pouvons tout de même conclure que les électrons ayant une énergie comprise entre 240 keV et 350 keV

perdent très peu d'énergie dans la zone morte de la face avant du détecteur et donc que la valeur donnée par le constructeur est cohérente.

Nature	Énergie (keV)	Canal	Énergie (keV)	ΔE
ec _{4,2} K	240.4143	6042	240.4	0.00 %
ec _{3,1} K	266.8862	6718	266.9	0.01 %
ec _{4,2} L	270.69	6843	271.8	0.41 %
ec _{3,1} L	297.14	7500	297.6	0.15 %
ec _{4,1} K	320.0283	8075	320.1	0.02 %
ec _{3,0} K	347.8639	8779	347.7	0.04 %
ec _{4,1} L	350.655	8848	350.4	0.07 %
ec _{4,1} MNO	355.365	8959	354.8	0.17 %

TABLE 4.6 – Ce tableau présente les pics électrons de haute énergie du ¹³³Ba que nous avons utilisés pour valider la droite d'étalonnage obtenue avec les pics de photons. Les énergies théoriques sont indiquées à gauche et les énergies calculées à partir du numéro de canal et de la relation d'étalonnage sont à droite. La dernière colonne illustre la différence relative entre ces deux valeurs de l'énergie.

Nous disposons également d'une source d'électrons de conversion de ¹⁰⁹Cd. Ce radionucléide présente des raies d'électrons de conversion autour de 63 keV, 84 keV et 88 keV. Les points expérimentaux sont reportés sur la courbe d'étalonnage présentée en figure 4.6 et sont cohérents avec cette courbe. Cependant, un léger décalage systématique vers les basses énergies est observé. Les différences relatives entre les énergies théoriques et les énergies déterminées expérimentalement sont de l'ordre de 1 % (voir tableau 4.7). L'origine de ce décalage provient de la nature de la source de ¹⁰⁹Cd dont la description a été détaillée précédemment. Les électrons avant d'être détectés traversent deux épaisseurs de 30 nm d'or et un film de Vyns d'environ 500 nm. Nous avons calculé à l'aide du logiciel eSTAR les pertes d'énergie dans ces épaisseurs de matériaux pour des électrons de 63 keV et 84 keV. Nous trouvons des valeurs de l'ordre de plusieurs centaines d'eV qui correspondent typiquement aux différences observées entre l'énergie déterminée par la droite d'étalonnage et les énergies théoriques.

Nature	Énergie (keV)	Canal	Énergie (keV)	ΔE
ec _{4,2} K	62.520	1486	61.820	1.12 %
ec _{3,1} K	84.456	2050	83.929	0.62 %
ec _{4,2} L	87.808	2124	86.830	1.11 %

TABLE 4.7 – Ce tableau présente les pics électrons du ¹⁰⁹Cd que nous avons utilisés pour valider la droite d'étalonnage obtenue avec les pics photons du ¹³³Ba. Les énergies théoriques sont indiquées à gauche et les énergies calculées à partir du numéro de canal et de la relation d'étalonnage sont à droite. La dernière colonne illustre la différence relative entre ces deux valeurs de l'énergie.

Résolution du détecteur

Les contributions W_E et W_X sont ajoutées *a posteriori* en convoluant les spectres simulés par une gaussienne dont la largeur à mi-hauteur est égale à 4.36 keV. Nous estimons que la somme quadratique de ces deux contributions est constante sur la gamme de mesure du détecteur. Afin de valider la pertinence de cette hypothèse nous avons déterminé l'évolution

de la largeur des pics en fonction de l'énergie. Pour être fiable, cette détermination doit être réalisée à partir de pics parfaitement isolés. Nous avons utilisés les raies suivantes : 62.52 keV (^{109}Cd) et 320.03 keV (^{133}Ba). Les valeurs de la largeur à mi-hauteur déterminées pour chacun de ces pics sont rassemblées dans le tableau (4.8).

Énergie (keV)	Intensité (%)	FWHM (keV)
62.520 (2)	40.8 (5)	4.4
320.0283 (7)	1.31 (3)	4.4

TABLE 4.8 – Valeurs des largeurs à mi-hauteur des pics à 62.52 keV du ^{109}Cd , à 240.4143 keV et 320.0283 keV du ^{133}Ba .

Nous n'observons pas d'augmentation de la largeur totale à mi-hauteur en fonction de l'énergie. Dans les données rapportées dans le tableau (4.8), la résolution observée du pic à 62.520 keV est la même que celle observée à 320.0283 keV. Nous pouvons conclure que sur cette gamme en énergie la largeur totale à mi-hauteur est complètement dominée par le bruit électronique. Dans la section 3.4.3, nous avons déterminé que, pour le détecteur PIPS, le bruit électronique au niveau du PAC contribuait à près de 2 keV à la largeur à mi-hauteur. Cette source de bruit électronique ne peut pas être réduite. Cependant, en travaillant sur les autres sources de bruit électronique et, en particulier, sur la qualité de la connection entre le détecteur et le préamplificateur, nous pensons qu'une résolution plus fine peut être atteinte et le seuil de détection abaissé de 1 ou 2 keV.

Nous pouvons souligner ici l'importance de choisir un détecteur bien dimensionné en fonction de l'application. En effet, nous observons que l'effet de perte de collection de charge est constant. Si le volume du détecteur était beaucoup plus grand que le parcours moyen des particules β , les phénomènes de recombinaisons le long de la trajectoire de la particule conduiraient à des variations de la collection de charges beaucoup plus importantes.

Intensités des raies

Afin de s'assurer que la réponse du détecteur est bien celle attendue, nous pouvons également vérifier que les rapports des surfaces entre des pics mesurés correspondent bien aux rapports des intensités théoriques.

Les pics de photons sont émis avec une certaine intensité, exprimée comme le nombre de photons émis pour 100 désintégrations. À partir du coefficient d'atténuation totale en fonction de l'énergie, obtenu avec le programme XCOM [3], il est possible de déterminer la fraction de l'intensité atténuée dans 500 μm de silicium. En première approximation, nous considérons que la fraction de photons atténués a été absorbée localement dans les 500 μm de silicium. Il faut également tenir compte de l'atténuation des photons dans l'écran de PEEK et la source. À partir du spectre de ^{109}Cd écranté, nous avons extrait des ROI la surface des pics de photons qui représente le nombre de particules absorbées à cette énergie. En divisant la surface du pic par la fraction de photons absorbés, puis par la fraction de photons transmis à la suite de l'écran, nous obtenons la valeur de l'intensité des photons émis dans l'angle solide du détecteur par la source et pour chaque raie d'énergie. Les photons émis par la source de ^{109}Cd traversant également deux épaisseurs d'or de 30 nm et une épaisseur de Vyns de 500 nm avant d'émerger de la source, l'atténuation dans la source a également été prise en compte. Comme nous ne connaissons pas précisément l'activité de la source, nous ne pouvons pas travailler avec des intensités absolues. Afin de comparer les intensités mesurées aux intensités théoriques, nous nous intéressons au rapport des intensités de deux pics à des énergies différentes. Les résultats sont rapportés dans le tableau (4.9).

	Rapport surfaces	Rapport intensités	Différence relative
XK_α/XK_β	4.71	5.0	6 %
$XK_\alpha/\gamma_{1,0}$	23.08	88.81	74 %
$XK_\beta/\gamma_{1,0}$	4.90	17.77	72 %

TABLE 4.9 – Rapports d'intensités théoriques et mesurées des pics de photons du ^{109}Cd .

Le rapport XK_α/XK_β expérimental est cohérent avec la valeur théorique. La différence observée est attribuée aux incertitudes statistiques et d'ajustement. Par contre les rapports $XK_\alpha/\gamma_{1,0}$ et $XK_\beta/\gamma_{1,0}$ présentent une différence relative importante. Nous remarquons cependant que cette différence semble systématique et pourrait donc être attribuée à la même cause. L'explication la plus évidente est une contribution des X de fluorescence provenant de la pâte thermique à l'argent située à l'arrière du chip de silicium dans le détecteur. Nous estimons cette contribution à près de 70 % de la surface totale des pics XK_α et XK_β .

4.3 Caractérisation des sources

Nous avons mis en évidence dans le paragraphe précédent l'importance de travailler avec des sources fines. Au laboratoire, les sources fabriquées pour des mesures avec un compteur proportionnel possèdent des caractéristiques proches de nos besoins. Cette méthode couramment utilisée nécessite cependant de rendre les films de Vyns conducteurs. Pour cette application, les sources sont donc métallisées avec de l'or. Afin d'étudier l'influence de la couche d'or nous avons mesuré trois sources de ^{60}Co métallisées avec 30 nm d'or, 10 nm et sans or. Les résultats sont présentés sur la figure (4.7).

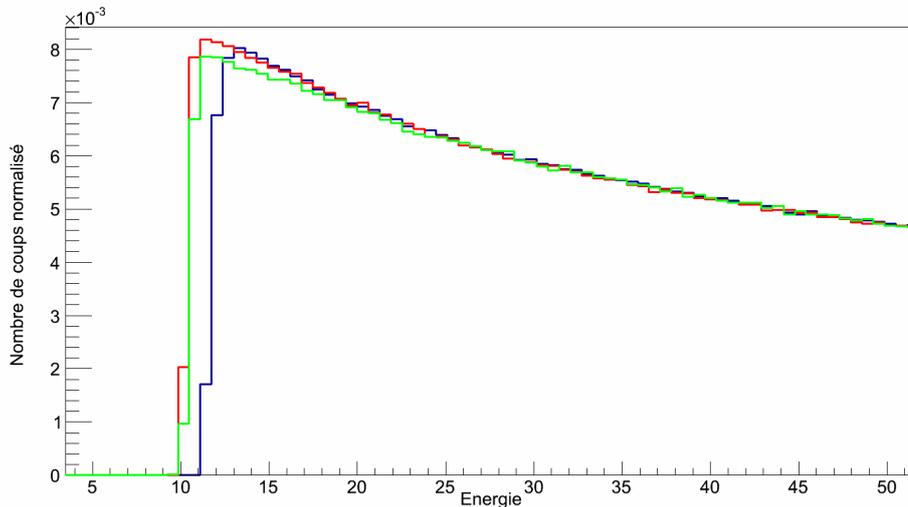


FIGURE 4.7 – Influence de la métallisation des sources sur la forme du spectre. Les spectres rouge et bleu correspondent aux sources dorées. Le spectre vert a été mesuré avec une source non métallisée.

À basse énergie la contribution de l'or apparaît clairement. La rétrodiffusion des électrons sur l'or est l'explication la plus évidente à cette déformation à basse énergie. Cette comparaison met en évidence la nécessité d'adapter la méthode de fabrication afin de ne plus avoir à métalliser les

films de Vyns. Le processus de fabrication des sources dédiées à la spectrométrie β est détaillé au chapitre (3.5.1).

4.4 Validation des simulations

Trois radionucléides se désintégrant par radioactivité β ont été mesurés. Il s'agit du ^{14}C , du ^{151}Sm et du ^{99}Tc . Pour chacune de ces sources, une simulation a été réalisée. La simulation enregistre l'énergie déposée par les particules interagissant dans un volume spécifique correspondant au volume sensible du détecteur PIPS. L'énergie déposée est alors enregistrée événement par événement dans un fichier qui est ensuite analysé à l'aide du logiciel ROOT.

Avant de pouvoir comparer les simulations aux mesures, il faut tenir compte de la résolution observée et normaliser les spectres simulés aux spectres mesurés. Nous avons décrit dans le paragraphe 4.1 comment tenir compte de la résolution observée. Pour la normalisation, nous ne connaissons pas précisément l'activité des sources que nous utilisons. Les histogrammes simulés sont donc normalisés pour chaque radionucléide par intégration du spectre mesuré sur un intervalle donné.

Pour comparer deux spectres entre eux, une appréciation visuelle est suffisante dans certaines situations. Ce fut notamment le cas lors des études d'optimisation de la géométrie et des matériaux qui ont été réalisées au chapitre 3. La modélisation de la géométrie était alors grossière et nous cherchions à mettre en évidence des effets quantitatifs.

Dans ce chapitre, nous cherchons à déterminer avec précision la réponse du système de mesure sur la plus grande gamme en énergie possible. Nous avons donc besoin d'un critère qualitatif pertinent pour évaluer la qualité globale de la simulation par rapport au spectre expérimental.

Pour un ensemble de n mesures y_i , la qualité d'un modèle d'ajustement conduisant à n prédictions y_i^{th} est donnée par la quantité :

$$R^2 = 1 - \frac{\text{var}(\hat{e}_i)}{\text{var}(y_i)}. \quad (4.5)$$

Cette définition générale est valide pour $n \gg 1$ et pour n'importe quel type de modèle. La quantité R^2 est comprise entre $0 \leq R^2 \leq 1$. Lorsque $R^2 = 1$, l'accord entre les prédictions et l'expérience est parfait. L'erreur de modélisation est définie comme $\hat{e}_i = y_i - y_i^{th}$. Les estimateurs non biaisés de la variance sont :

$$\text{var}(y_i) = \sum_{i=1}^n \frac{(y_i - \bar{y})^2}{n - 1}, \quad \text{var}(\hat{e}_i) = \sum_{i=1}^n \frac{(\hat{e}_i)^2}{n - p - 1} \quad (4.6)$$

avec \bar{y} la moyenne simple des mesures et p le nombre de paramètres du modèle. Nous considérons que deux paramètres contraignent le modèle : l'énergie maximale de la transition et la normalisation du spectre simulé sur les données expérimentales. Le coefficient $1 - R^2$ permet de quantifier le désaccord entre la mesure et la simulation. Il s'agit donc du critère que nous utiliserons pour évaluer la qualité de nos simulations. Nous proposons également de considérer la distribution des résidus standardisés :

$$r_i = \frac{\hat{e}_i}{\sqrt{\text{var}(\hat{e}_i)}} \quad (4.7)$$

Si les résidus sont répartis de manière uniforme autour de zéro, nous pouvons considérer qu'ils suivent une loi normale. En projetant les résidus sur l'axe des ordonnées nous obtenons l'his-

togramme des résidus où une gaussienne peut être ajustée. La variance de la gaussienne nous donne alors un second critère pour jauger de la qualité globale de la simulation.

4.4.1 Mouvement propre

La réponse du système de détection lors d'une acquisition en l'absence de source radioactive n'est pas nulle. Dans ce cas, le spectre mesuré correspond au mouvement propre provenant des impulsions électroniques parasites ainsi que la radioactivité naturelle et les rayonnements cosmiques. Lors de la mesure d'une source radioactive, le mouvement propre se rajoute au comptage. Afin d'améliorer l'exactitude des mesures, il est souhaitable de soustraire le mouvement propre à chaque mesure. Les acquisitions de mouvement propre permettent également de s'assurer de l'absence de contamination radioactive dans la chambre de détection.

Ainsi, dans l'idéal, chaque mesure devrait être suivie d'une acquisition de mouvement propre dans exactement les mêmes conditions expérimentales mais en l'absence de matériel radioactif. Cependant, ces spectres nécessitent un temps d'acquisition long (une semaine) pour atteindre une statistique raisonnable et, en pratique, nous avons enchaîné plusieurs mesures de spectres de différents radionucléides sans procéder à des mesures du mouvement propre systématiquement. Si les conditions de mesure (géométrie, électronique) ne changent pas entre différentes acquisitions et qu'il n'y a pas eu de contamination, alors nous pouvons estimer que le mouvement propre est constant. Un seul spectre normalisé au temps d'acquisition est alors suffisant pour corriger toutes les mesures.

Le spectre rouge représenté sur les figures (4.8, 4.9, 4.10) correspond à une acquisition de mouvement propre du détecteur PIPS. Elle a été réalisée sur une période de cinq jours à la suite des mesures des sources de : ^{14}C , ^{99}Tc , ^{36}Cl , ^{151}Sm , et ^{60}Co . Sur ces figures, il s'agit toujours du même spectre mais normalisé aux mesures de deux manières différentes. Pour les mesures de ^{14}C et de ^{151}Sm , sur les figures de gauche, les spectres mesurés sont normalisés par un facteur de dilatation qui correspond aux rapports des aires des deux spectres entre 300 et 600 keV. En-dessus de 300 keV, les structures de la mesure et du mouvement propre diffèrent. Sur les figures de droite, le facteur de dilatation correspond aux rapports des temps d'acquisition.

Nous observons un épaulement dans le bruit de fond qui s'étend de 120 à 300 keV avec un maximum autour de 180 keV. Ce résultat est surprenant d'autant plus que le mouvement propre compte plus d'événements dans cette zone que la mesure pour un même temps d'acquisition. Dans un premier temps, nous avons suspecté une contamination qui aurait eu lieu entre la mesure de ^{14}C et celle du mouvement propre. L'hypothèse d'une faible contamination par une source de ^{36}Cl semblait cohérente avec les observations. En effet, la source de ^{36}Cl présente un épaulement semblable aux mêmes énergies. Cependant, la source de ^{151}Sm qui a été mesurée après le source de ^{36}Cl présente également un épaulement ainsi qu'un surcomptage. Si ces phénomènes étaient causés par une contamination alors le mouvement propre correspondrait au bruit de fond de la mesure du ^{151}Sm . Or, ce n'est pas le cas. La source de ^{36}Cl n'est donc pas contaminante.

Finalement, nous attribuons l'épaulement à des particules de haute énergie qui traverseraient le détecteur. En effet, le spectre mesuré pour une source de ^{60}Co (figure 4.10) nous indique que les particules γ qui interagissent par effet Compton dans le détecteur sont à l'origine d'un épaulement sur exactement la même gamme en énergie 120–300 keV. Il ne peut néanmoins pas s'agir d'une contamination au ^{60}Co puisqu'une ancienne mesure de mouvement propre réalisée bien avant toute mesure de ^{60}Co présente la même structure. De plus, cela suggérerait une contamination écrantée, ce qui serait pour le moins étrange.

Nous n'avons pas trouvé d'explication au surcomptage au niveau de l'épaulement. La seule mesure de mouvement propre ne peut pas être utilisée pour corriger l'ensemble des spectres

mesurés en amont. En l'absence d'une caractérisation plus précise du mouvement propre, nous préférons ne pas le soustraire aux spectres mesurés de ^{14}C et de ^{151}Sm .

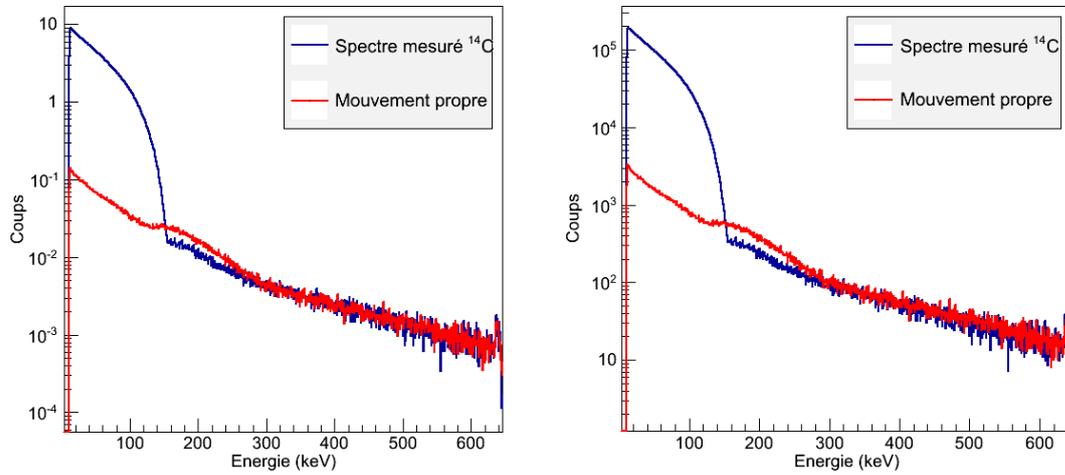


FIGURE 4.8 – En bleu : mesure d’un spectre de ^{14}C dont la solution a été déposée sur feuille de Mylar. La courbe rouge est une mesure de mouvement propre qui a été réalisée dans les mêmes conditions de mesure mais en l’absence de source environ 40 jours plus tard, pendant 5 jours.

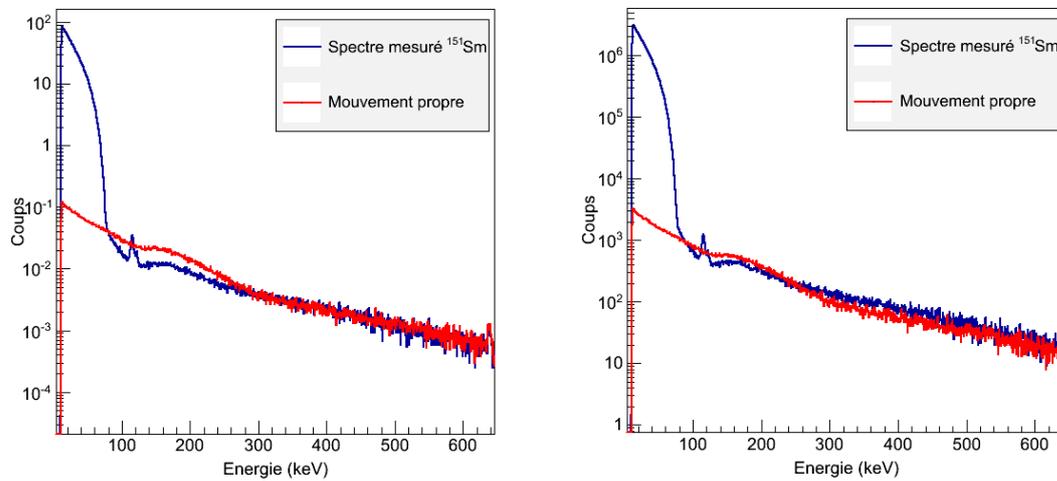


FIGURE 4.9 – En bleu : mesure d’un spectre de ^{151}Sm dont la solution a été déposée sur feuille de Vyns. La courbe rouge est une mesure de mouvement propre qui a été réalisée dans les mêmes conditions de mesure mais en l’absence de source environ 10 jours plus tard pendant 5 jours.

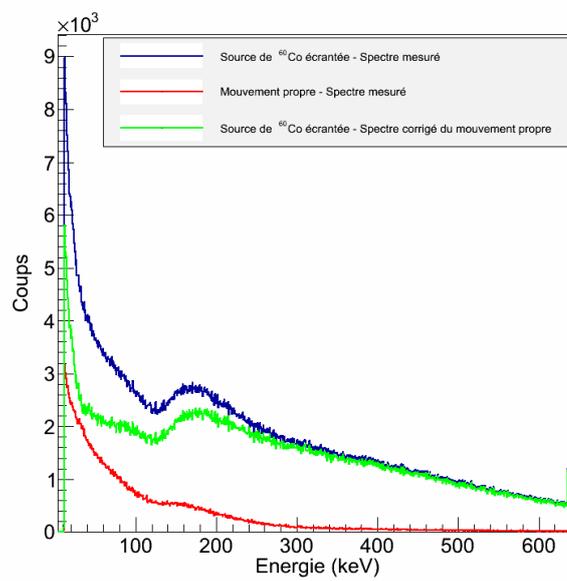


FIGURE 4.10 – Le spectre bleu correspond à la mesure d’une source de ^{60}Co déposée sur un film de Vyns non doré et écrantée par un disque de PEEK de 1 mm d’épaisseur. Le spectre rouge est une mesure de mouvement propre qui a été réalisée dans les mêmes conditions de mesure mais en l’absence de source suite à la mesure, pendant 5 jours. Le spectre vert est le spectre résultant de la soustraction du mouvement propre à la mesure.

4.4.2 Analyse du ^{14}C

Le ^{14}C est un radionucléide intéressant pour tester la capacité de nos simulations à reproduire le spectre mesuré. En effet, il s'agit d'un émetteur β pur qui décroît comme une transition permise avec $E_{\text{max}} = 156.468$ keV [4]. Trois spectres sont présentés sur la figure (4.11). La courbe bleue correspond au spectre mesuré. La courbe rouge, proche de la courbe bleue, est le spectre simulé. Enfin, le spectre théorique apparaît en noir. Nous utilisons ce dernier spectre dans la simulation comme spectre d'émission initial. Le spectre théorique a été calculé analytiquement selon les approximations usuelles sans tenir compte des effets atomiques fins. Ces derniers sont de toute manière très faibles pour un élément de numéro atomique $Z = 6$. La normalisation du spectre simulé est réalisée sur l'intervalle 20–140 keV.

À première vue, nous obtenons un excellent accord entre la simulation et le spectre mesuré sur la gamme d'énergie allant de 15 keV à E_{max} . Le spectre des résidus est représenté sur la figure (4.13). Les résidus standardisés sont à peu près répartis uniformément autour de zéro. Nous notons tout de même une légère déformation illustrée par l'ajustement d'un polynôme d'ordre 2, en considérant que tous les résidus ont le même poids. L'origine de cette déformation pourrait être un effet systématique qui ne serait pas correctement simulé. Néanmoins, le critère $1 - R^2$ qui quantifie le désaccord entre la simulation et l'expérience est égal à 0.12 % sur l'intervalle 15–157 keV. Ce résultat signe l'excellente qualité de la simulation sur cet intervalle. En deçà de 15 keV, l'accord est moins bon. L'ensemble des spectres mesurés présente systématiquement une statistique plus faible que la simulation sur l'intervalle 12–15 keV. Cela pourrait être dû à « un effet de bord » purement expérimental ou à une méconnaissance de notre système de détection comme par exemple la modélisation exacte de la zone morte. Nous ne considérerons jamais les données mesurées en dessous de 15 keV. La valeur de l'écart-type est de l'ordre de 1 %, l'erreur sur la simulation est donc faible. Nous avons tout de même cherché à comprendre quel effet systématique pouvait être à l'origine de la déformation des résidus.

Dans cette simulation, nous n'avons pas considéré les effets de la relaxation atomique. Ces phénomènes, comme la fluorescence, peuvent apporter une contribution non négligeable à basse énergie. Nous avons notamment démontré l'influence de la fluorescence sur le spectre mesuré d'une source d'électrons de conversion de ^{109}Cd au paragraphe 4.2.1. Ici, le ^{14}C est un émetteur pur, seul des électrons sont émis. Les phénomènes de relaxation atomique ont une faible probabilité de se produire avec un électron de $E_{\text{max}} = 156$ keV (les collisions *hard* sont rares). De plus, il interagit faiblement par *bremssstrahlung* dans le silicium (0.3 %) et peu de photons vont être émis. Les phénomènes de relaxations atomiques devraient donc être négligeables. Cependant, pour être complet, nous avons décidé d'en tenir compte dans la simulation.

Dans un second temps, ces phénomènes ont donc été pris en compte dans les paramètres de la simulation. La comparaison entre le spectre simulé et le spectre mesuré est illustrée sur la figure (4.12). Nous observons que les deux spectres se superposent moins bien sur l'ensemble de la gamme en énergie. Ce résultat reflète un moins bon accord même si à basse énergie les résultats semblent plus cohérents. Les résidus (figure 4.14) présentent beaucoup plus de disparités que précédemment et le critère $1 - R^2$, qui est égal à 0.15 %, confirme un moins bon accord entre la simulation et la mesure lorsque les phénomènes de relaxation sont ajoutés dans la simulation. Ce résultat est contre-intuitif puisque nous nous attendions à améliorer la qualité de la simulation en étant plus complet et en considérant les effets de la relaxation atomique. Il est cependant possible que ce phénomène physique ne soit pas correctement simulé par GEANT4. Par conséquent, nous pensons qu'il est préférable de ne pas activer les paramètres de relaxation atomique pour des simulations de spectres β purs d'énergie inférieure à 1 MeV.

Les effets combinés de la collection de charge et du bruit électronique sur le spectre sont considérés comme constants sur toute la gamme de mesure. Cette approximation nous a semblé raisonnable (voir paragraphe 4.1). Cependant, comme l'accord entre la simulation et la mesure

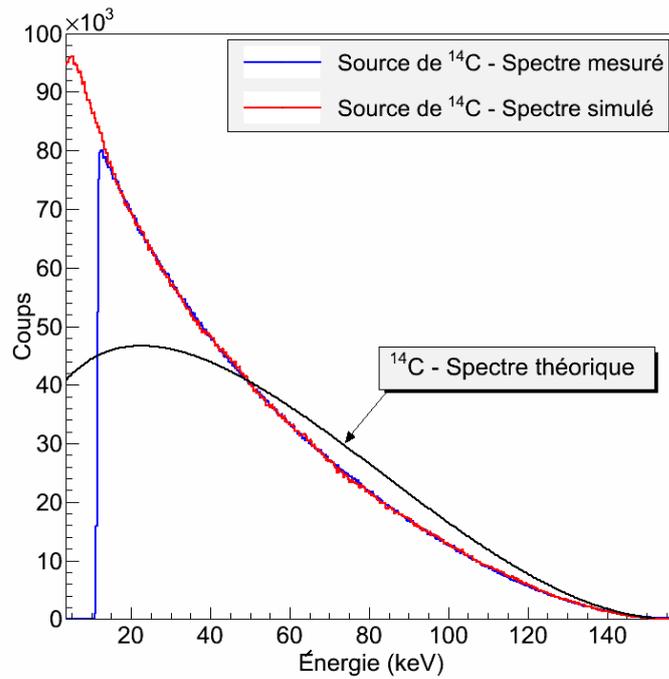


FIGURE 4.11 – Comparaison entre le spectre mesuré (courbe bleue, avec un seuil en énergie de 12 keV) et le spectre simulé (courbe rouge). Le spectre théorique (représenté en noir) a été utilisé dans la simulation, comme spectre d'émission initial. Il permet d'illustrer les déformations induites par le dispositif expérimental.

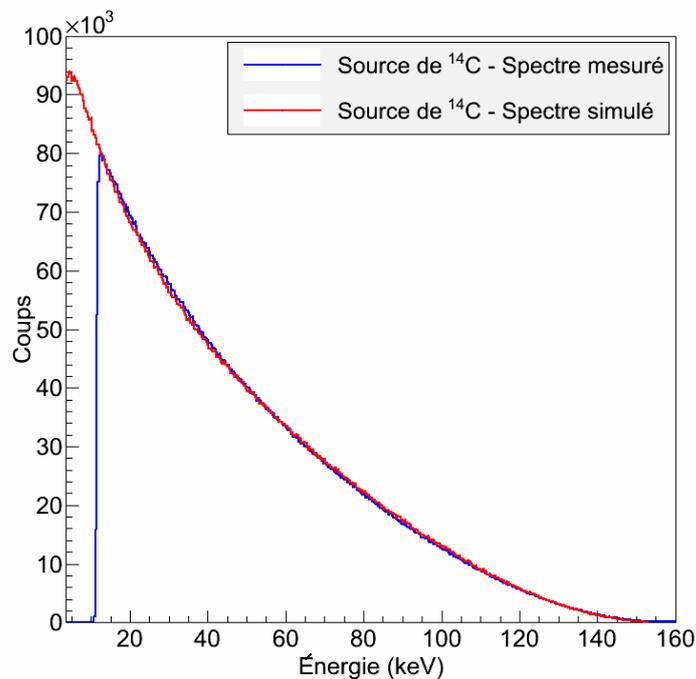


FIGURE 4.12 – Comparaison entre le spectre mesuré (courbe bleue, avec un seuil en énergie de 12 keV) et le spectre simulé tenant compte de la fluorescence (courbe rouge).

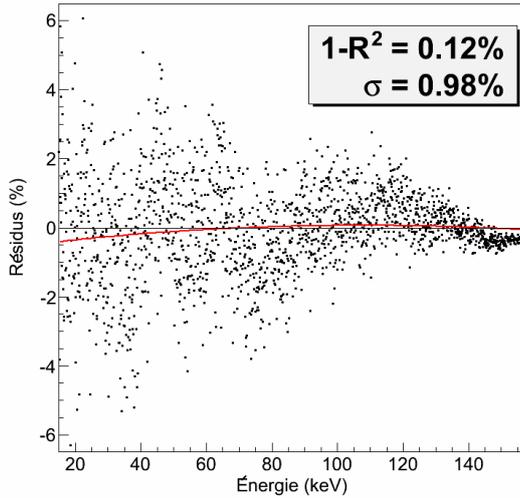


FIGURE 4.13 – Résidus standardisés pour le ^{14}C ; $W_T = 4.4$ keV; sans fluorescence.

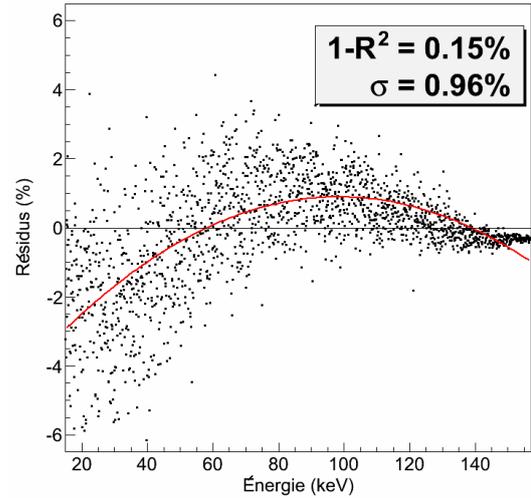


FIGURE 4.14 – Résidus standardisés pour le ^{14}C ; $W_T = 4.4$ keV; avec fluorescence.

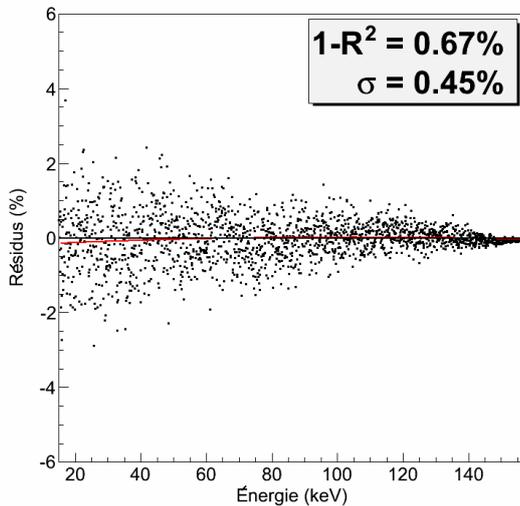


FIGURE 4.15 – Résidus standardisés pour le ^{14}C ; Sans résolution; sans fluorescence.

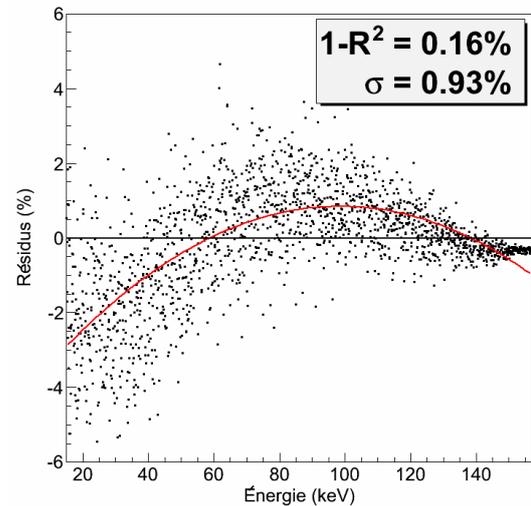


FIGURE 4.16 – Résidus standardisés pour le ^{14}C ; Sans résolution; avec fluorescence.

est excellent, nous recherchons si des effets fins pourraient être engendrés par cette approximation. Les résidus des spectres simulés avant qu'ils ne soient traités pour tenir compte de la résolution globale sont représentés figure (4.15) sans les effets de la relaxation atomique et figure (4.16) en tenant compte de la fluorescence. Sur la figure (4.15) les résidus sont très uniformément répartis et la déformation illustrée par le polynôme est très faible. Le critère $1 - R^2$ est cependant moins bon car les fluctuations statistiques ne sont plus lissées par l'effet de convolution avec la gaussienne qui permet de tenir compte de la résolution. Il apparaît toujours de façon évidente que la fluorescence ne doit pas être prise en compte dans la simulation.

La source de ^{14}C est faiblement active. Le mouvement propre peut donc avoir une influence non négligeable et le spectre mesuré devrait être corrigé du mouvement propre. Cependant, comme nous l'avons expliqué dans la section 4.4.1 la soustraction de mouvement propre ne peut pas être réalisée correctement. Cette contribution n'est donc pas retirée de la mesure.

Nous n'avons pas pu déterminer un effet systématique global qui pourrait être à l'origine des légères déformations des résidus observées sur la figure (4.13). Il est tout à fait possible

que ce soit le résultat d'une accumulation de plusieurs imprécisions dans la modélisation de la géométrie, dans la qualité de la simulation en elle-même ou encore dans la lecture des données. Il se pourrait également que la cause soit un biais expérimental due à la contribution du mouvement propre. De nouvelles mesures de mouvement propre sont à envisager. Enfin, la forme du spectre du ^{14}C pourrait dévier de celle d'une transition permise. De nouvelles simulations, prenant en compte le facteur de forme trouvé dans [5], seraient nécessaires pour tester cette hypothèse.

Malgré l'observation de légères déformations sur les résidus, nous insistons tout de même sur le fait que l'accord entre le spectre mesuré et le spectre simulé est excellent.

4.4.3 Analyse du ^{151}Sm

Le ^{151}Sm présente deux transitions premières interdites non uniques. Celle d'intensité la plus faible ($I_\beta = 0.91\%$) décroît vers le premier niveau excité de l' ^{151}Eu avec $E_{\text{max}} = 55.1\text{ keV}$, et la seconde vers le niveau fondamental avec une intensité $I_\beta = 99.09\%$ et $E_{\text{max}} = 76.6\text{ keV}$. Nous ne considérons que ces deux transitions. Les autres particules émises (e^- et γ) ne sont pas simulées car leurs probabilités d'émission sont trop faibles. À notre connaissance, il n'existe pas dans la littérature de facteur de forme expérimental pour cette transition première interdite non unique. La condition $2\xi = 15.6\text{ MeV} \gg E_{\text{max}}$ étant vérifiée pour la transition principale, l'approximation ξ est a priori valable : ces deux transitions premières interdites non uniques peuvent être considérées comme des transitions permises. Le spectre théorique est donc calculé avec cette hypothèse, en sommant les contributions des deux transitions.

Nous avons commencé par calculer le spectre théorique analytiquement avec BETASHAPE. Le ^{151}Sm est un radionucléide de faible énergie avec un numéro atomique moyen de 62. La forme du spectre est potentiellement sensible aux effets atomiques fins de basse énergie. Nous avons donc également calculé le spectre en tenant compte des effets d'échange et d'écrantage. Les deux spectres théoriques sont représentés sur la figure (4.17). La différence entre les deux spectres est surtout évidente en dessous de 10 keV, où la forme globale du spectre s'en trouve affectée.

La normalisation des spectres simulés par rapport aux données expérimentales a été réalisée dans l'intervalle allant de 15 keV à 70 keV. À première vue, les deux simulations représentées sur les figures (4.18) et (4.19) présentent toutes les deux un excellent accord avec la mesure.

Pour déterminer si nous sommes effectivement sensibles aux effets atomiques fins, une analyse des résidus est nécessaire. Ces derniers sont représentés pour l'intervalle 15–70 keV sur les figures (4.24, 4.25, 4.26, 4.27) pour le spectre sans effet atomique, et sur les figures (4.20, 4.21, 4.22, 4.23) pour le spectre incluant les effets atomiques. La première chose à noter est que l'accord entre la simulation et l'expérience est excellent dans tous les cas. L'erreur sur la simulation, illustrée par le σ , est de l'ordre de 0.1 %, ce qui est très faible. Par ailleurs, il apparaît immédiatement que la distribution des résidus est bien meilleure lorsque nous tenons compte des effets atomiques fins. Cette analyse est confirmée par le critère de désaccord entre la simulation et l'expérience $1 - R^2$, qui est nettement plus faible dans ce cas.

Nous retrouvons tout de même une déformation globale des résidus pour les deux simulations semblable à celle observée pour le ^{14}C . Étant donné que les types de sources diffèrent pour ces deux radionucléides, nous pouvons supposer que l'effet systématique ne provient pas des sources. Par ailleurs, contrairement à la source de ^{14}C la contribution du fond physique est faible, puisque le temps de mesure est d'environ 2 jours.

Les spectres présentés sur les figures (4.18) et (4.19) sont simulés avec les phénomènes de relaxation atomiques. Nous avons également réalisé des simulations qui n'en tenaient pas compte. Contrairement au ^{14}C , où ils semblent ne pas être correctement simulés, l'effet de ces phénomènes apparaît ici tout à fait négligeable. Ce résultat n'est pas étonnant compte tenu

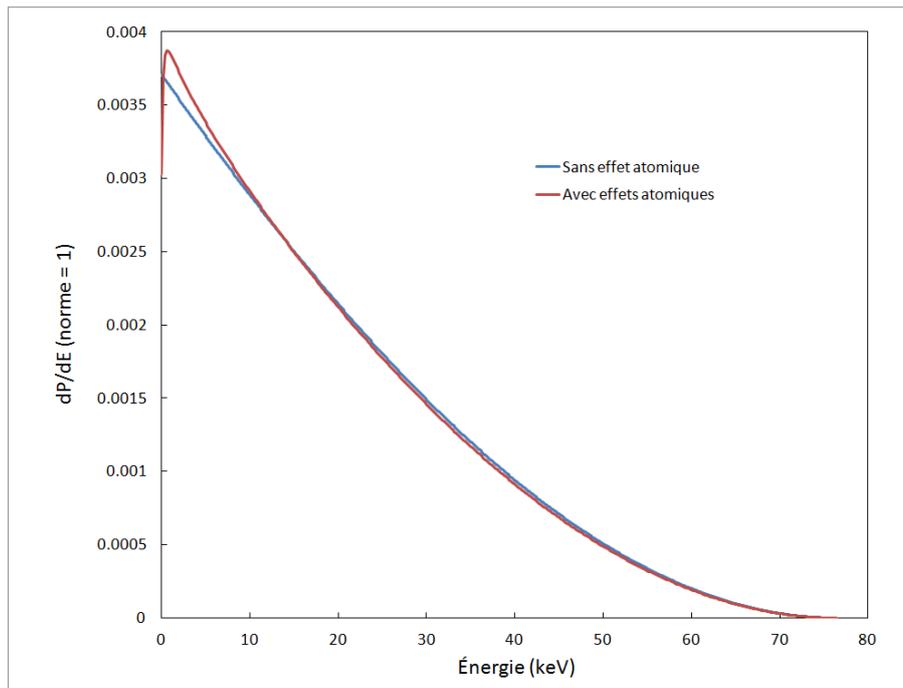


FIGURE 4.17 – Comparaison entre le spectre théorique incluant les effets d’échange et d’écran-tage (courbe rouge) et le spectre calculé sans les effets atomiques (courbe bleue).

de la faible énergie maximale de la transition principale ($E_{\max} = 76.6$ keV). Les photons de *bremsstrahlung* qui pourraient être à l’origine de photons de fluorescence sont très peu probables.

Nous en concluons que cette transition a bien le comportement d’une transition permise, comme le prévoyait l’approximation ξ . Notons enfin la qualité remarquable de notre mesure qui permet, par la forme du spectre au-delà de 15 keV, de mettre en évidence l’influence d’effets atomiques fins dont la contribution au spectre β du ^{151}Sm est surtout prépondérante en dessous de 10 keV.

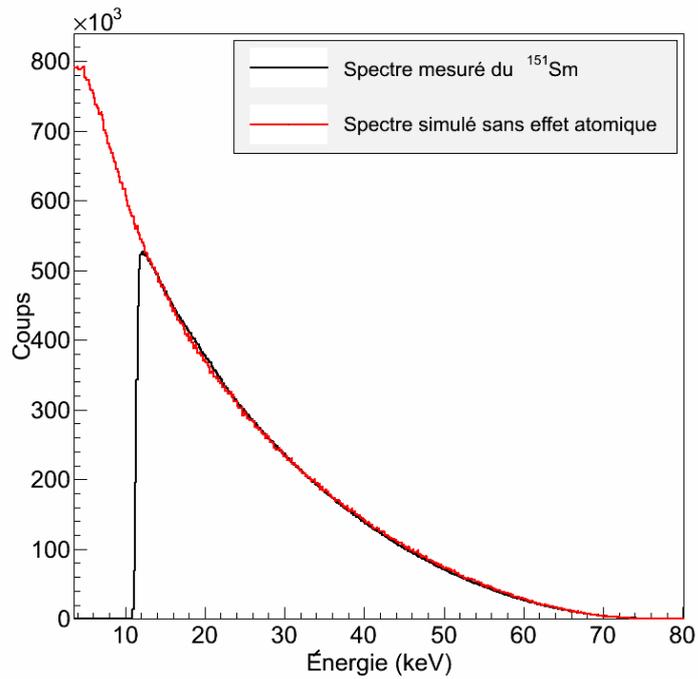


FIGURE 4.18 – Comparaison entre le spectre mesuré (courbe noire, avec un seuil en énergie de 12 keV) et le spectre simulé sans effet atomique (courbe rouge) pour une source de ^{151}Sm .

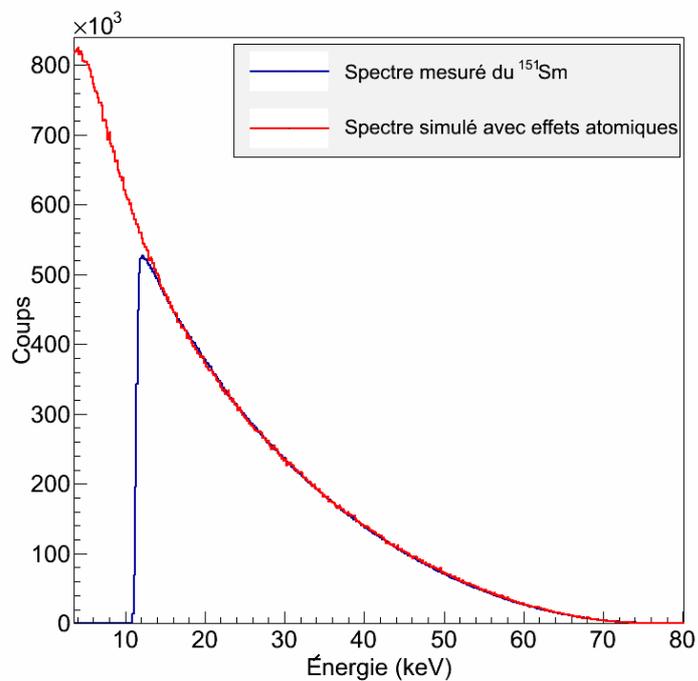


FIGURE 4.19 – Comparaison entre le spectre mesuré (courbe noire, avec un seuil en énergie de 12 keV) et le spectre simulé avec effets atomiques (courbe rouge) pour une source de ^{151}Sm .

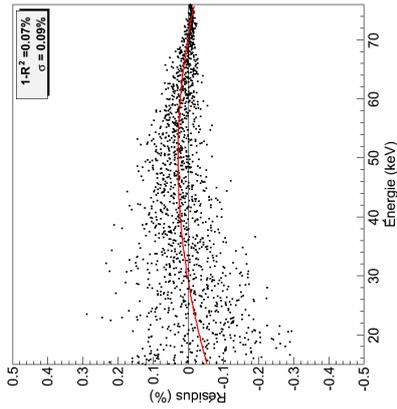


FIGURE 4.20 – Résidus standardisés pour le ^{151}Sm ; Effets atomiques ; $W_T = 4.4$ keV ; avec fluorescence.

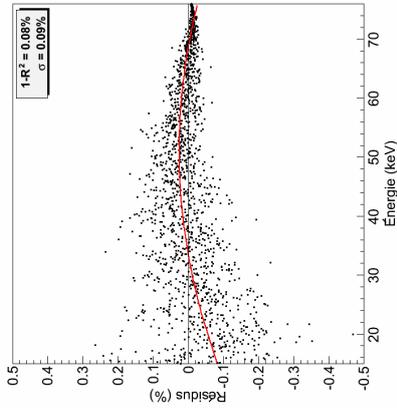


FIGURE 4.21 – Résidus standardisés pour le ^{151}Sm ; Effets atomiques ; sans résolution ; avec fluorescence.

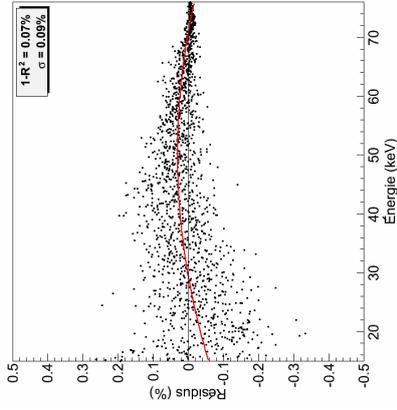


FIGURE 4.22 – Résidus standardisés pour le ^{151}Sm ; Effets atomiques ; $W_T = 4.4$ keV ; sans fluorescence.

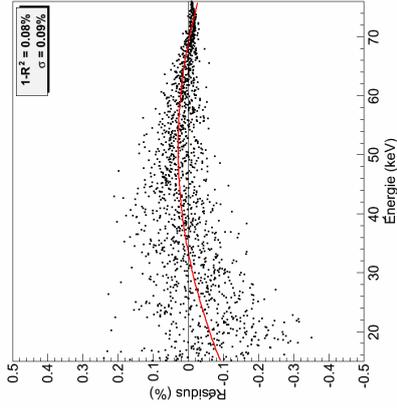


FIGURE 4.23 – Résidus standardisés pour le ^{151}Sm ; Effets atomiques ; sans résolution ; sans fluorescence.

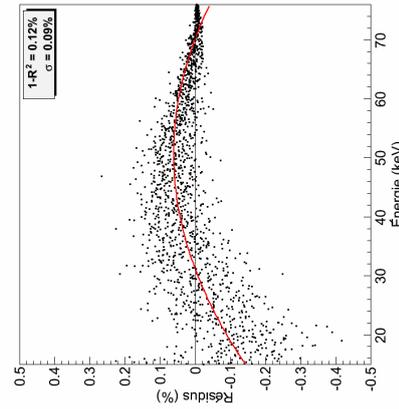


FIGURE 4.24 – Résidus standardisés pour le ^{151}Sm ; $W_T = 4.4$ keV ; avec fluorescence.

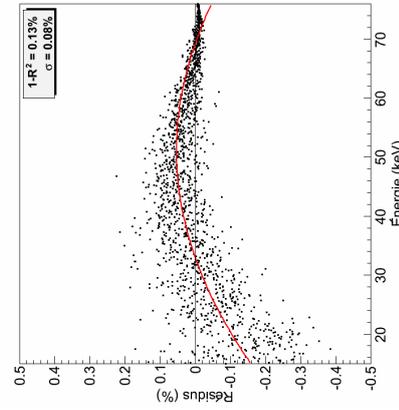


FIGURE 4.25 – Résidus standardisés pour le ^{151}Sm ; sans résolution ; avec fluorescence.

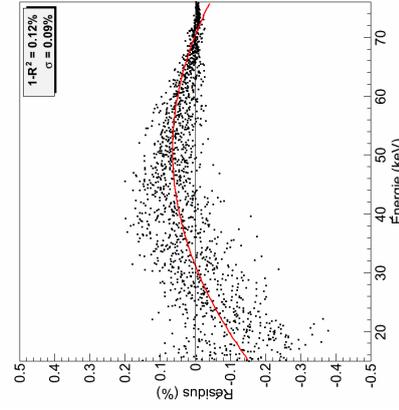


FIGURE 4.26 – Résidus standardisés pour le ^{151}Sm ; $W_T = 4.4$ keV ; sans fluorescence.

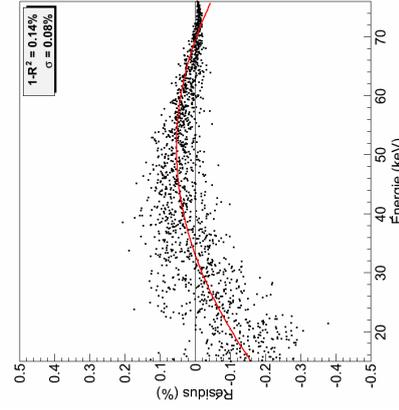


FIGURE 4.27 – Résidus standardisés pour le ^{151}Sm ; sans résolution ; sans fluorescence.

4.4.4 Analyse du ^{99}Tc

Le ^{99}Tc est un radionucléide très intéressant pour notre étude car il se désintègre principalement par une transition β d'intensité $I_\beta = 99.99855\%$ vers le niveau fondamental du ^{99}Ru avec $E_{\text{max}} = 293.8$ keV. Les probabilités d'émission des autres particules sont suffisamment faibles pour que nous puissions les négliger dans la simulation. La transition qui nous intéresse ici est du type seconde interdite non unique. Ce type de transition est difficile à calculer car il est nécessaire de tenir compte de la structure nucléaire des noyaux en jeu. Aucun code de calcul disponible actuellement ne permet de calculer spécifiquement cette transition. De plus, contrairement au cas du ^{151}Sm , l'approximation ξ n'est pas applicable ici et nous ne pouvons pas calculer le spectre théorique comme une transition première interdite unique. Il existe néanmoins un facteur de forme expérimental pour cette transition qui a été mesurée par Reich et Schüpferling [6]. L'intervalle en énergie sur lequel le facteur de forme expérimental a été mesuré s'étend de 55 keV à 250 keV. La figure (4.28) permet d'apprécier la différence de forme entre le facteur de forme expérimental de Reich (f.f Reich) et le facteur de forme théorique calculé comme une transition première interdite unique (1 u.f). Il apparaît clairement que les deux spectres ne s'accordent pas. La divergence s'accroît en deçà de 90 keV.

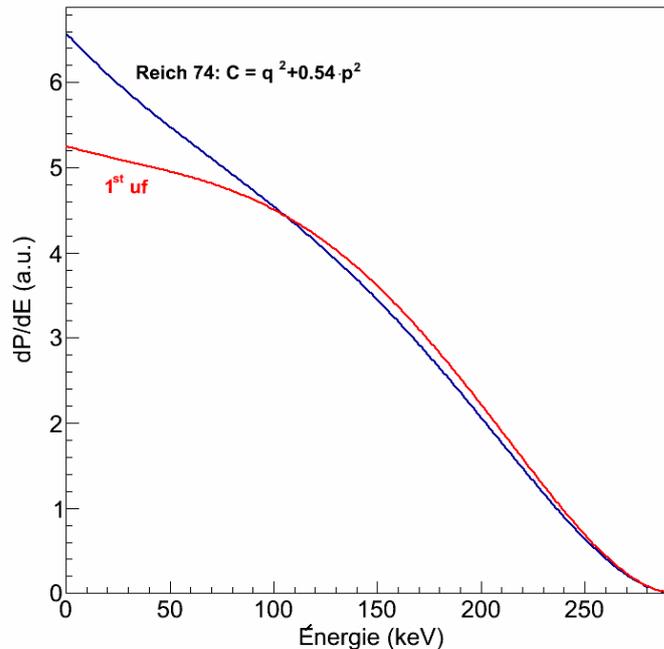


FIGURE 4.28 – Comparaison entre le spectre mesuré par Reich (courbe noire, valide entre 55 keV et 250 keV) et le spectre théorique (courbe rouge) calculé comme une transition première interdite unique, pour une source de ^{99}Tc .

Pour simuler le spectre du ^{99}Tc , nous avons convolué la forme permise de la transition par le facteur de forme expérimental de Reich. Le résultat est illustré sur la figure (4.29). Nous avons également réalisé une simulation avec un spectre théorique calculé comme une transition première interdite unique comme spectre d'émission initial. Cette simulation est représentée sur la figure (4.30).

Il apparaît clairement qu'aucun des deux spectres initiaux ne conduit à une bonne reproduction de la mesure sur toute la gamme en énergie. Cependant, sur l'intervalle de mesure donné par Reich, la simulation et la mesure s'accordent relativement bien. L'analyse des rési-

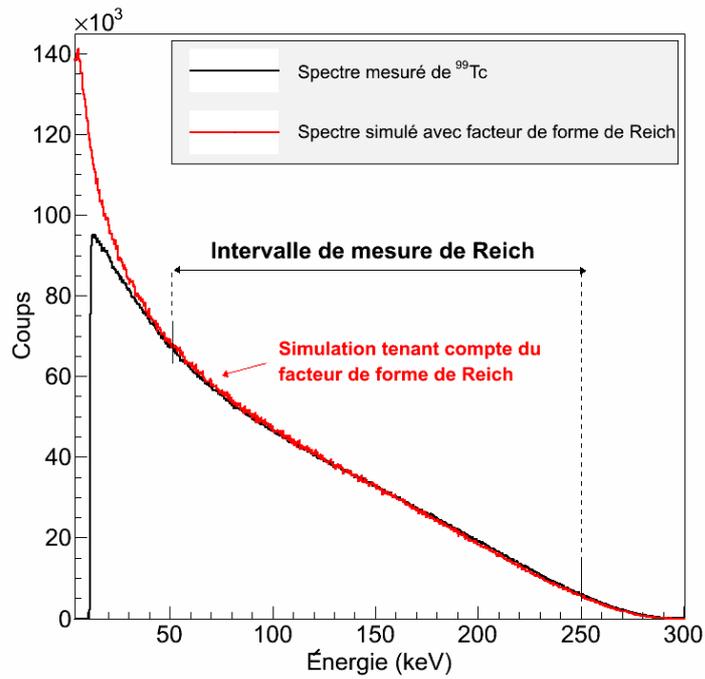


FIGURE 4.29 – Comparaison entre le spectre mesuré (courbe bleue, avec un seuil en énergie de 12 keV) et le spectre simulé (courbe rouge) pour une source de ^{99}Tc . Le facteur de forme expérimental de Reich [6] a été utilisé pour calculer le spectre en entrée de la simulation.

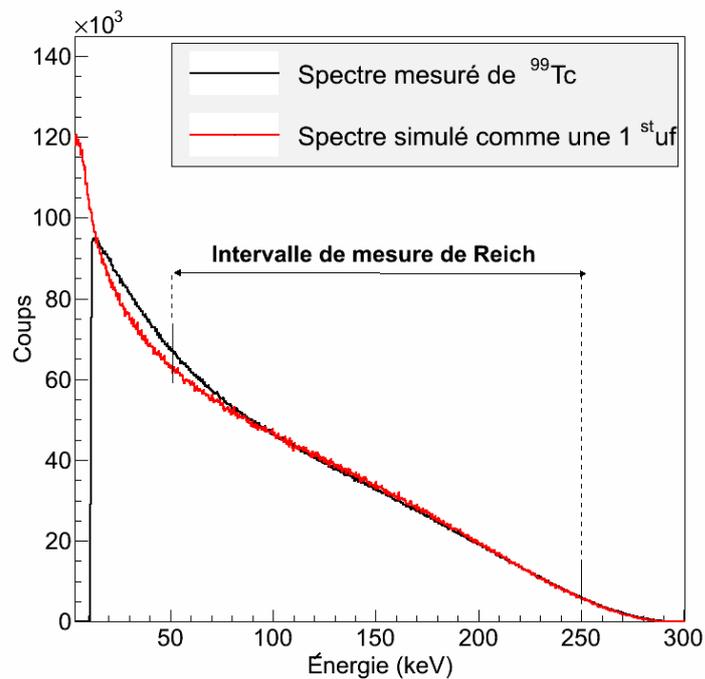


FIGURE 4.30 – Comparaison entre le spectre mesuré (courbe bleue, avec un seuil en énergie de 12 keV) et le spectre simulé à partir du spectre théorique calculé comme une première interdite unique (courbe rouge).

dus, illustrés sur les figures (4.31) et (4.32), conduit à un facteur $1 - R^2$ de l'ordre de 0.7 %. Le désaccord est plus important dans le cas où la transition est calculée comme une première interdite unique.

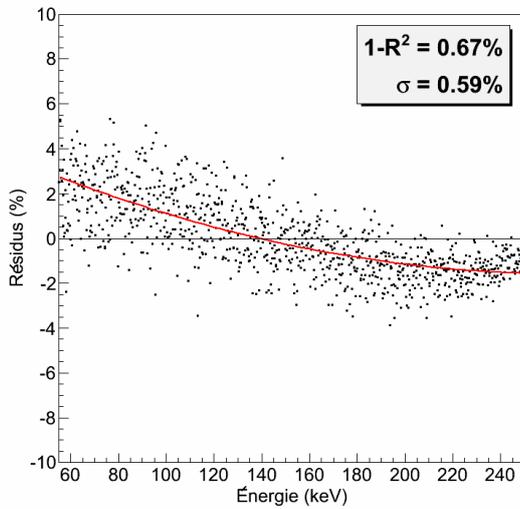


FIGURE 4.31 – Résidus standardisés pour le ^{99}Tc ; $W_T = 4.4$ keV ; f.f Reich

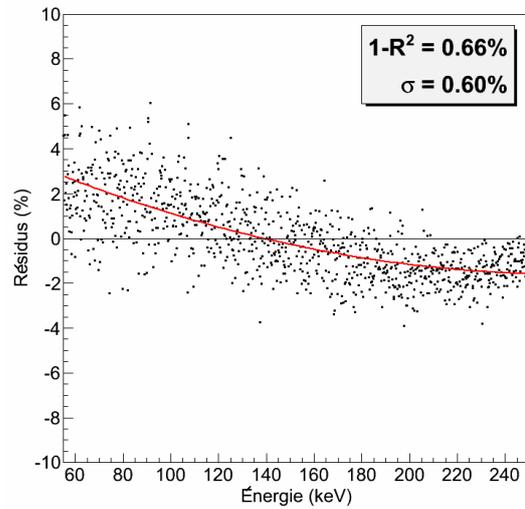


FIGURE 4.32 – Résidus standardisés pour le ^{99}Tc ; sans résolution ; f.f Reich

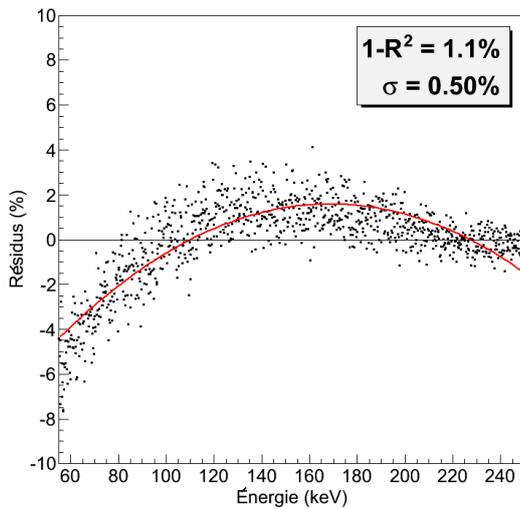


FIGURE 4.33 – Résidus standardisés pour le ^{99}Tc ; $W_T = 4.4$ keV ; 1 u.f

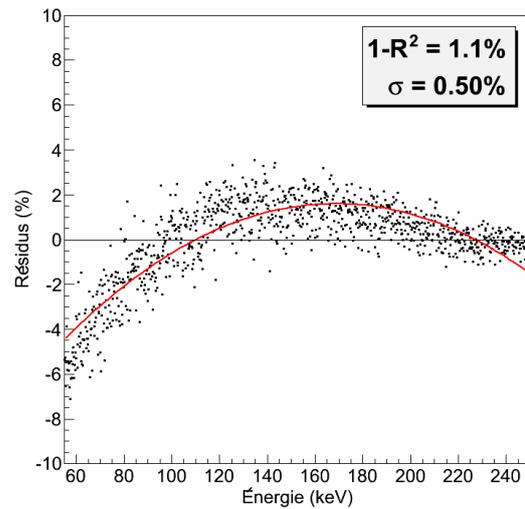


FIGURE 4.34 – Résidus standardisés pour le ^{99}Tc ; sans résolution ; 1 u.f

4.4.5 Analyse du ^{60}Co

Nous avons jusqu'à présent considéré des spectres purs où une seule transition était considérée et la contribution des autres particules primaires (photons et électrons) émises lors de la désintégration étaient négligées. Lorsque cette contribution n'est plus négligeable elle contribue à déformer le spectre mesuré. Plutôt que de corriger cette déformation, en en tenant compte dans la fonction de réponse du détecteur, cette composante peut simplement être soustraite à la mesure. Nous avons notamment étudié le cas du ^{60}Co dont le schéma de décroissance est illustré sur la figure (4.35). La transition β principale décroît à 99,88 % vers le troisième niveau excité du ^{60}Ni qui se désexcite alors vers son niveau fondamental en émettant, en particulier, deux γ énergétiques intenses de 1173,240 keV ($I = 99,85\%$) et 1332,508 keV ($I = 99,9988\%$). Le processus dominant par lequel les γ interagissent dans le silicium est la diffusion Compton (voir la figure 4.36). Un photon de 1173 keV est atténué de 0,68 % par 500 μm de silicium. Un photon de 1332 keV est atténué de 0,64 % par 500 μm de silicium. Les électrons émis lors de la diffusion Compton vont être absorbés localement tandis que les photons vont s'échapper du volume sensible du détecteur et le fond Compton va alors contribuer au spectre mesuré. La composante photonique peut être mesurée directement en écrantant la source de ^{60}Co . Une mesure utilisant un écran en peek de 1 mm d'épaisseur est illustrée sur la figure 4.10.

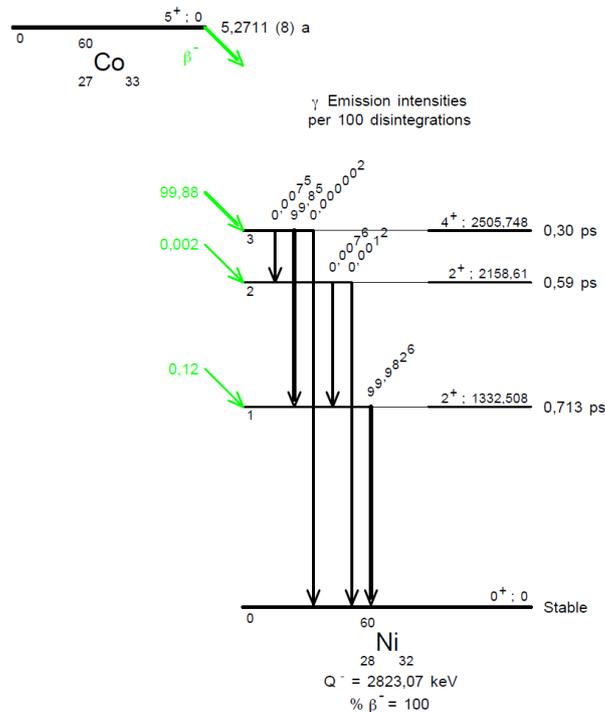


FIGURE 4.35 – Schéma de désintégration du ^{60}Co .

Silicon

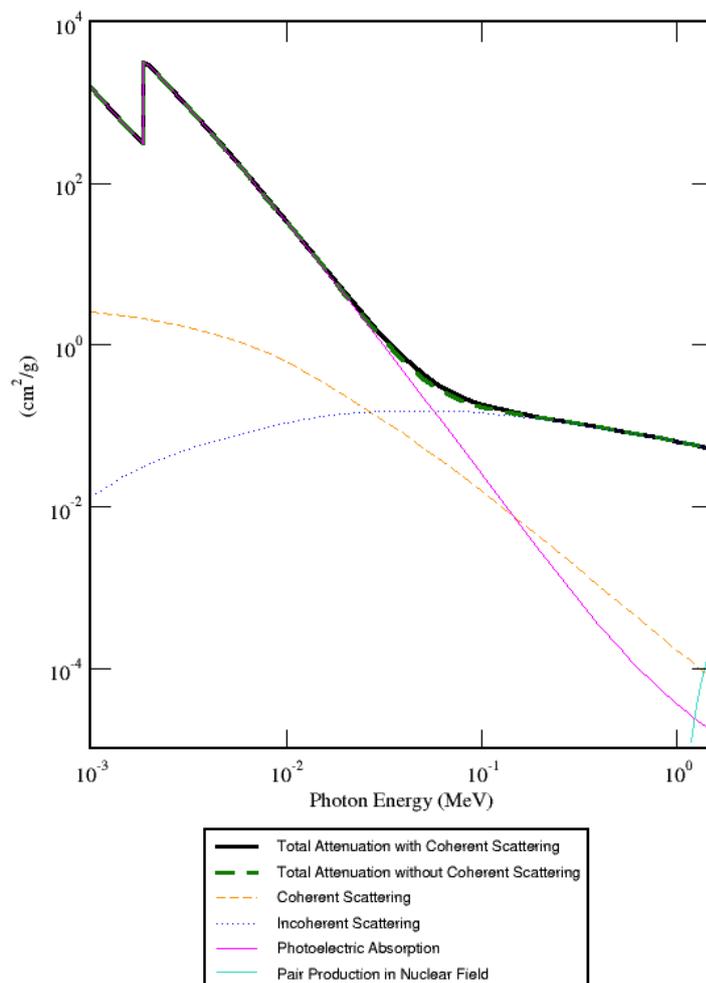


FIGURE 4.36 – Atténuation des photons dans le silicium pour des énergies comprises entre 1–1200 keV.

Bibliographie

- [1] S. T. Perkins, D. E. Cullen, M. H. Chen, J. H. Hubbell, J. Rathkopf, and J. Scofield. Tables and Graphs of Atomic Subshell and Relaxation Data Derived from the LLNL Evaluated Atomic Data Library (EADL), $Z=1-100$. UCRL-50400 Vol.30.
- [2] H. Ruellan, M.-C. Lépy, M. Etcheverry, J. Plagnard, and J. Morel. A new spectra processing code applied to the analysis of ^{235}U and ^{238}U in the 60 to 200 keV energy range. *Nucl. Instrum. Meth. A*, 369 :651, 1996.
- [3] M. J. Berger, J. H. Hubbell, S. M. Seltzer, J. Chang, J. S. Coursey, R. Sukumar, D. S. Zucker, and K. Olsen. XCOM : Photon Cross Section Database (version 1.5). National Institute of Standards and Technology, Gaithersburg, MD, 2010.
- [4] M.-M. Bé, V. Chisté, C. Dulieu, X. Mougeot, V. P. Chechev, F. G. Kondev, A. L. Nichols, X. Huang, and B. Wang. *Table of Radionuclides*, volume 7 of *Monographie BIPM-5*. Bureau International des Poids et Mesures, Pavillon de Breteuil, F-92310 Sèvres, France, 2013.
- [5] V. V. Kuzminov and N. Ja. Osetrova. Precise measurement of ^{14}C beta spectrum by using a wall-less proportional counter. *Phys. Atomic Nuclei*, 63(7) :1292–1296, 2000.
- [6] M. Reich and H. M. Schüpferling. Formfaktor des β -spektrums von ^{99}Tc . *Z. Phys.*, 271 :107, 1974.

Chapitre 5

Déconvolution spectrale

Nous considérons dans cette étude un spectre β mesuré avec un détecteur semi-conducteur, et la chaîne d'électronique associée. Le spectre mesuré diffère de la « vraie » distribution en énergie de l'électron à cause d'effets de distorsion : pertes d'énergie dans la source et les zones mortes du détecteur, diffusions et rétrodiffusions, etc. Le but est de corriger le spectre mesuré afin de déterminer le spectre d'émission initial, qui pourra alors être comparé directement aux calculs théoriques.

La première étape consiste à déterminer la fonction de réponse du système qui tient compte de l'ensemble des déformations expérimentales. Sa détermination précise est primordiale avant de passer à l'étape de déconvolution qui permet de corriger les spectres mesurés.

Pour déterminer la fonction de réponse du détecteur nous utilisons des simulations Monte-Carlo. Dans le chapitre précédent, nous avons validé les simulations réalisées avec GEANT4 en les comparant à des mesures. Un excellent accord a été trouvé entre les spectres simulés et les spectres mesurés quelle que soit la source utilisée. Ainsi, nous pouvons nous appuyer sur ces simulations pour déterminer la fonction de réponse du système de détection. La fonction de réponse à déterminer permet de corriger des déformations expérimentales d'un ensemble {système expérimental + source} donné et dépend donc de la géométrie de mesure. Toute modification apportée à la géométrie de mesure peut facilement être prise en compte dans les simulations et la fonction de réponse générée en conséquence.

5.1 Simulation d'une distribution uniforme

Étant donné que la simulation reproduit correctement les déformations expérimentales d'un spectre continu, une première approche serait de considérer une distribution plate en entrée, le spectre en sortie représentant alors le spectre « global » des déformations à prendre en compte sur une gamme d'énergie donnée.

Pour corriger le spectre du ^{14}C , une distribution uniforme a été simulée sur l'intervalle 0–160 keV. Le résultat de la simulation est représenté en bleu sur la figure 5.1.

Le spectre bleu, qui représente la déformation globale à prendre en compte, est alors simplement multiplié bin à bin avec le spectre théorique du ^{14}C . Le résultat est illustré en rouge sur la figure 5.1. Après normalisation, la comparaison entre le spectre mesuré et le spectre théorique nous montre que la déformation globale du spectre théorique est effectivement reproduite mais que l'accord n'est pas satisfaisant.

Cette approche assez intuitive est trop imprécise pour être exploitable. De plus, elle est dépendante de l'intervalle en énergie choisi. Nous avons donc cherché à décomposer le problème afin de le traiter exactement.

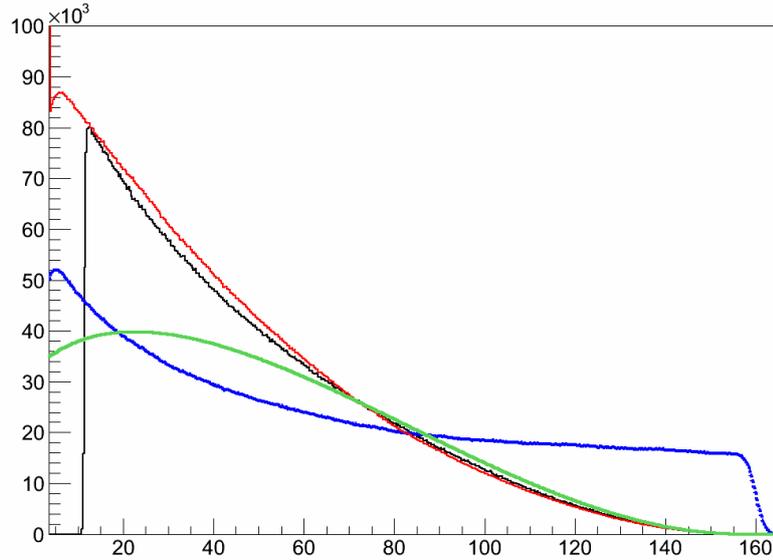


FIGURE 5.1 – Comparaison entre le spectre mesuré (courbe noire, avec un seuil bas en énergie égal à 12 keV) et la multiplication (en rouge) du spectre théorique du ^{14}C (en vert) avec le spectre simulé (en bleu) d’une distribution uniforme allant de 0 keV à 160 keV.

5.2 Fonction de réponse

Soit $M(E)$ le nombre d’électrons mesurés à l’énergie E . Cette quantité résulte de la convolution du spectre initial $S(E')$, émis lors de la désintégration radioactive, avec la fonction réponse $R(E, E')$ du système de détection :

$$M(E) = \int_0^\infty R(E, E') \cdot S(E') \, dE' \quad (5.1)$$

Pour faciliter l’implémentation des algorithmes et éviter toute déformation intempestive, il est préférable de travailler avec un spectre initial et une fonction réponse normalisée :

$$\int_0^\infty S(E') \, dE' = \int_0^\infty R(E, E') \, dE' = 1 \quad (5.2)$$

Le spectre « mesuré » $M(E)$ ainsi calculé est ensuite normalisé au spectre expérimental par un facteur de dilatation global.

La fonction réponse $R(E, E')$ correspond à la probabilité par unité d’énergie qu’un électron d’énergie impulsionnelle E' soit mesuré entre E et $E + dE$. La réponse impulsionnelle est donc obtenue en fixant E' et en faisant varier E entre 0 et ∞ .

À la convolution, *i.e.* lors du calcul de $M(E)$, c’est cette fois-ci l’énergie E qui est fixée, et c’est l’énergie impulsionnelle E' , à laquelle le spectre initial $S(E')$ est évalué, qui varie. La fonction réponse permet donc de reconstruire la probabilité pour qu’un électron mesuré à l’énergie E provienne d’une énergie impulsionnelle E' , et cette probabilité est pondérée par celle que l’électron soit émis à l’énergie E' initialement, c’est-à-dire $S(E')$.

Il existe des algorithmes complexes de déconvolution aveugle qui ne nécessitent pas la connaissance de la fonction réponse. Certaines hypothèses sur le comportement global de cette dernière sont néanmoins nécessaires, puis l’algorithme itératif ajuste, étape par étape, à la fois le spectre initial à déterminer et la fonction réponse.

Par manque de temps, nous avons fait le choix dans ce travail de nous intéresser à un processus de déconvolution moins complexe, mais qui nécessite de connaître au préalable la fonction réponse du système de détection.

Nous présentons ici tout d'abord la méthode qui nous a permis d'établir la fonction réponse de notre système de mesure de spectres β . Puis, nous utiliserons la formulation analytique simple de Tsoufanidis [1], et nous en montrerons les limites. Enfin, nous présenterons la formulation analytique plus élaborée que nous avons établie et qui nous permet d'obtenir un résultat proche de la mesure.

5.2.1 Réponse impulsionnelle du système de détection

Nous cherchons à connaître la réponse du système à une impulsion d'énergie donnée, c'est-à-dire la réponse impulsionnelle du système de détection. Dans l'idéal, une mesure est toujours préférable, mais les sources radioactives purement mono-énergétiques n'existent pas et il n'est pas concevable d'utiliser un faisceau d'électrons sans modifier la géométrie du dispositif, ce qui nécessairement induirait une modification de la fonction de réponse. Nous avons cependant démontré que nos simulations reproduisaient bien les spectres mesurés. Nous pouvons donc nous appuyer dessus. Une série de simulations a été réalisée pour différentes énergies impulsionnelles. L'ensemble des développements qui vont suivre utilisent les résultats de ces simulations.

Dans la géométrie standard de mesure, une source monoénergétique d'électrons, dont la géométrie est identique à celle d'une source de ^{14}C décrite sur la figure 4.2, est simulée par pas de 1 keV entre 0 et 160 keV. La réponse du système à différentes énergies est illustrée sur la figure 5.2.

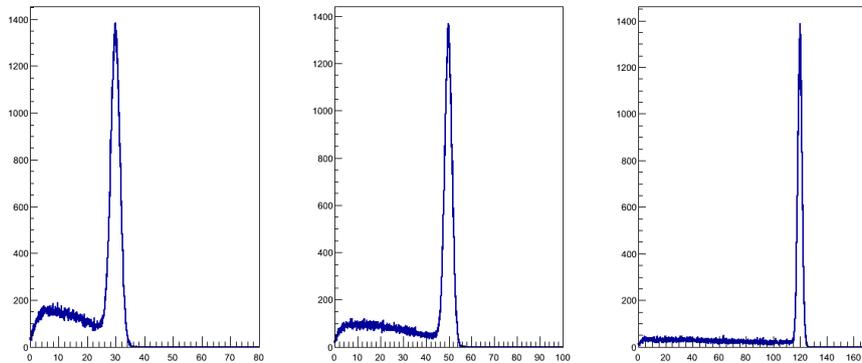


FIGURE 5.2 – Réponse impulsionnelle simulée du système de détection à 30, 50 et 120 keV.

5.2.2 Modèle simple

La réponse du système de détection à une impulsion d'énergie E' est propre à chaque système expérimental. Elle présente néanmoins des caractéristiques communes quel que soit le dispositif expérimental utilisé. Toutes les mesures montrent que $R(E, E')$ consiste en une gaussienne centrée sur E' ainsi qu'un fond continu à basse énergie. Il faut donc déterminer une fonction qui décrive ces deux aspects.

La fonction réponse proposée par Tsoufanidis dans [1] a été construite pour un scintillateur plastique. Le pic d'énergie totale déposée est représenté par une distribution de Dirac centrée sur l'énergie impulsionnelle E' , et les électrons qui ne déposent que partiellement leur énergie dans le détecteur sont représentés par une distribution plate de l'énergie nulle à E' . Pour tenir

compte de la résolution en énergie de la mesure, ces deux distributions sont convoluées par une distribution gaussienne normalisée :

$$G(E, E') = \frac{1}{\sigma\sqrt{2\pi}} \cdot \exp \left[- \left(\frac{E - E'}{\sigma\sqrt{2}} \right)^2 \right] \quad (5.3)$$

La fonction réponse du système de détection, illustrée en figure 5.3, est alors :

$$R(E, E') = \frac{\beta}{2E'} \cdot \operatorname{erfc} \left(\frac{E - E'}{\sigma\sqrt{2}} \right) + (1 - \beta) \cdot G(E, E') \quad (5.4)$$

où la fonction erreur complémentaire

$$\operatorname{erfc}(x) = 1 - \operatorname{erf}(x) \quad (5.5)$$

est définie à partir de la fonction erreur

$$\operatorname{erf}(x) = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \int_0^x e^{-t^2} dt \quad (5.6)$$

Le paramètre β correspond à la fraction d'électrons détectés n'ayant pas déposés toute leur énergie. Dans cette étude, il s'agit essentiellement d'électrons rétrodiffusés. L'air de la gaussienne correspondant au pic d'énergie totale déposée vaut donc $(1 - \beta)$. Le paramètre σ est l'écart-type usuel de la distribution gaussienne utilisée.

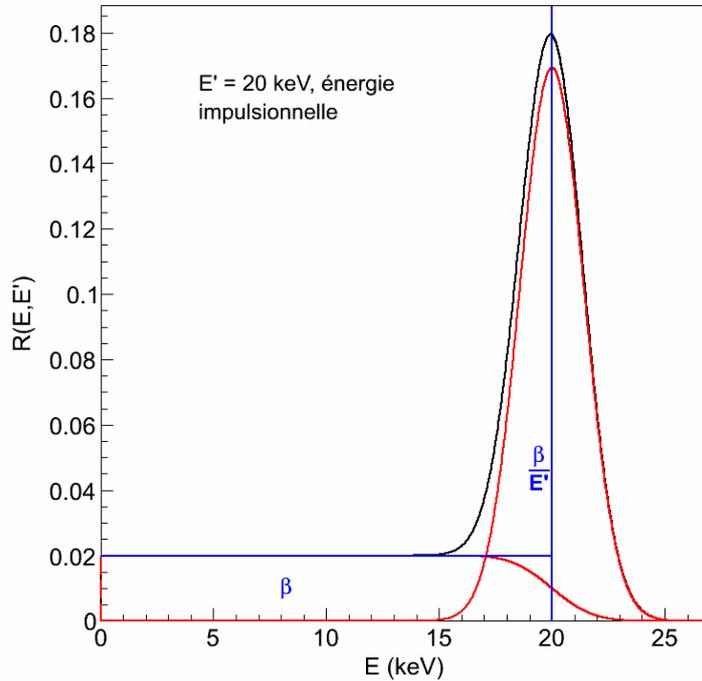


FIGURE 5.3 – Fonction réponse proposée par Tsoulfanidis dans [1]. La fonction bleue, formée à partir d'une distribution de Dirac et d'une fonction constante, est convoluée avec une gaussienne. La fonction réponse globale, en noir, est décomposée en un fond et un pic d'énergie totale déposée, tous les deux rouge pointillés.

La fonction (5.4) est ajustée pour chaque réponse impulsionnelle. L'ajustement se fait par minimisation de χ^2 et les paramètres d'ajustement sont σ et β . Les valeurs des paramètres sont

stockées dans un tableau pour chaque énergie impulsionnelle E' . La figure 5.4 représente l'ajustement de la fonction simple, en bleu, sur la réponse impulsionnelle du dispositif expérimental à 50 keV, en noire. Il apparaît de façon évidente qu'un fond plat ne décrit pas correctement le fond réel.

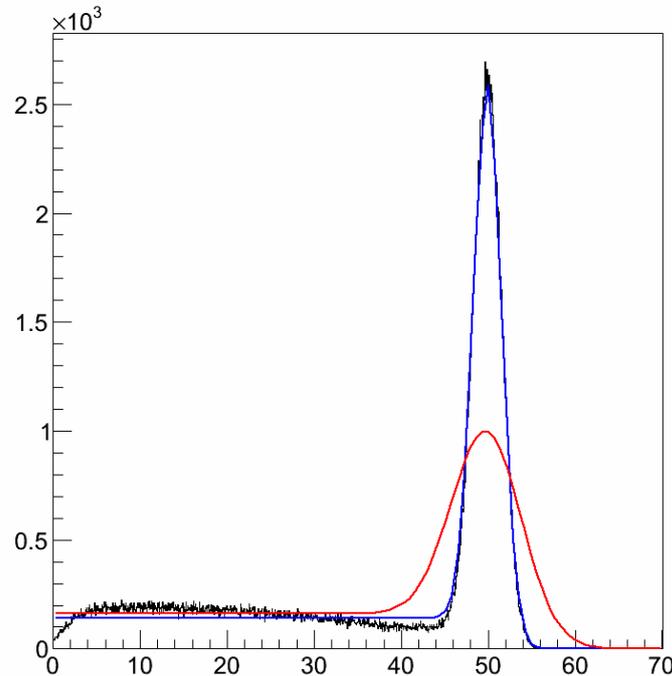


FIGURE 5.4 – Réponse impulsionnelle simulée du système de détection à 50 keV (en noir). La courbe bleue correspond à l'ajustement de la fonction (5.4) sur le courbe noire. La courbe rouge est la fonction réponse adaptée obtenue en ajustant le spectre convolué au spectre simulé.

La convolution de la fonction réponse avec le spectre théorique se fait bin à bin, par bin de 40 eV. Les paramètres de la fonction réponse ont été déterminés par pas de 1 keV. Une interpolation linéaire entre les paramètres est donc nécessaire lors de la convolution pour déterminer les valeurs des paramètres des énergies E' qui n'ont pas été simulées.

La convolution de cette fonction réponse avec le calcul théorique du spectre de ^{14}C est illustrée en bleu sur la figure (5.5). Ce résultat est à comparer avec le spectre simulé en vert. Les deux spectres sont normalisés entre 110 et 150 keV et nous constatons que l'accord n'est pas bon. Il apparaît clairement que le nombre d'événements qui ne déposent qu'une fraction de leur énergie est sous-estimé dans le spectre bleu. Ce résultat nous incite à déterminer une fonction qui prend mieux en compte la forme du fond réel.

5.2.3 Modèle élaboré

Comme nous venons de le voir, la fonction réponse proposée par Tsoulfanidis dans [1] est trop simple pour bien reproduire celle de notre système de détection. Nous avons décidé d'établir une nouvelle fonction réponse permettant de mieux reproduire le fond dû aux électrons n'ayant déposé qu'une partie de leur énergie.

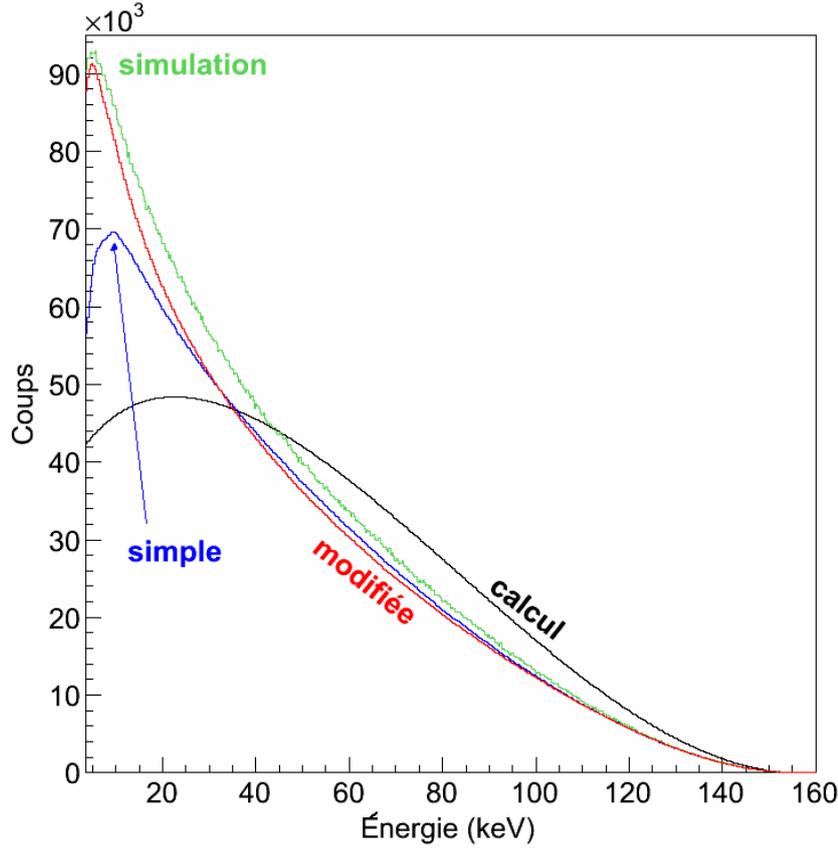


FIGURE 5.5 – La convolution du spectre théorique du ^{14}C , en noir, avec la fonction réponse simple donnée par (5.4) est représentée en bleu. Ce résultat est à comparer avec le spectre simulé, en vert. La convolution de la fonction réponse élaborée avec le spectre théorique est illustrée en rouge. Les spectres sont normalisés sur l'intervalle 110–150 keV.

Déformation linéaire du fond

Plutôt que de convoluer une gaussienne avec une distribution plate, une distribution carrée normalisée déformée linéairement est utilisée :

$$LS(E) = \begin{cases} \frac{aE + b}{N} & \text{si } E_1 \leq E \leq E' \\ 0 & \text{sinon} \end{cases} \quad (5.7)$$

avec le facteur de normalisation :

$$N = \int_{E_1}^{E'} (aE + b) dE = \frac{a}{2}(E'^2 - E_1^2) + b(E' - E_1) \quad (5.8)$$

Le fond est alors défini par :

$$\begin{aligned} B(E, E') &= \int_0^\infty LS(E'') G(E, E'') dE'' \\ &= \frac{1}{N} \int_{E_1}^{E'} (aE'' + b) \frac{dE''}{\sigma\sqrt{2\pi}} \exp\left[-\left(\frac{E - E''}{\sigma\sqrt{2}}\right)^2\right] \end{aligned} \quad (5.9)$$

Nous allons mener cette intégration en séparant les intégrandes :

$$B(E, E') = I_a + I_b \quad (5.10)$$

où

$$I_a = \frac{a}{N\sigma\sqrt{2\pi}} \int_{E_1}^{E'} E'' \exp \left[- \left(\frac{E - E''}{\sigma\sqrt{2}} \right)^2 \right] dE'' \quad (5.11)$$

et

$$I_b = \frac{b}{N\sigma\sqrt{2\pi}} \int_{E_1}^{E'} \exp \left[- \left(\frac{E - E''}{\sigma\sqrt{2}} \right)^2 \right] dE'' \quad (5.12)$$

On fait apparaître la fonction erreur en posant le changement de variable suivant :

$$t = \frac{E - E''}{\sigma\sqrt{2}} \quad \text{soit} \quad dt = -\frac{dE''}{\sigma\sqrt{2}} \quad (5.13)$$

On obtient pour I_b :

$$I_b = \frac{b}{N} \int_{E_1}^{E'} \left(\frac{-1}{\sqrt{\pi}} \right) e^{-t^2} dt = \frac{b}{N} \left[- \int_0^{E_1} \left(\frac{-1}{\sqrt{\pi}} \right) e^{-t^2} dt + \int_0^{E'} \left(\frac{-1}{\sqrt{\pi}} \right) e^{-t^2} dt \right] \quad (5.14)$$

Soit finalement :

$$I_b = \frac{b}{2N} \left[\operatorname{erf} \left(\frac{E - E_1}{\sigma\sqrt{2}} \right) - \operatorname{erf} \left(\frac{E - E'}{\sigma\sqrt{2}} \right) \right] \quad (5.15)$$

Pour I_a , le changement de variable conduit à :

$$I_a = \frac{a}{N\sqrt{\pi}} \int_{E_1}^{E'} (E - \sigma\sqrt{2}t) e^{-t^2} (-dt) \quad (5.16)$$

On sépare à nouveau les intégrandes selon $I_a = I_{a_1} + I_{a_2}$. I_{a_1} s'obtient directement :

$$I_{a_1} = -\frac{aE}{N} \int_{E_1}^{E'} \frac{dt}{\sqrt{\pi}} e^{-t^2} = \frac{aE}{2N} \left[\operatorname{erf} \left(\frac{E - E_1}{\sigma\sqrt{2}} \right) - \operatorname{erf} \left(\frac{E - E'}{\sigma\sqrt{2}} \right) \right] \quad (5.17)$$

L'intégration sur I_{a_2} ne permet pas de faire apparaître la fonction erreur, mais on reconnaît une forme simple d'intégrale. En effet :

$$I_{a_2} = \frac{a\sigma\sqrt{2}}{N\sqrt{\pi}} \int_{E_1}^{E'} t e^{-t^2} dt \quad (5.18)$$

et en remarquant que :

$$\frac{d}{dt} (e^{-t^2}) = (-2t) e^{-t^2} \quad (5.19)$$

on obtient :

$$I_{a_2} = \frac{a\sigma}{N\sqrt{2\pi}} \left\{ \exp \left[- \left(\frac{E - E_1}{\sigma\sqrt{2}} \right)^2 \right] - \exp \left[- \left(\frac{E - E'}{\sigma\sqrt{2}} \right)^2 \right] \right\} \quad (5.20)$$

La nouvelle fonction réponse du système de détection que nous venons d'élaborer, illustrée en figure 5.6, est donc :

$$R(E, E') = \beta \cdot B(E, E') + (1 - \beta) \cdot G(E, E') \quad (5.21)$$

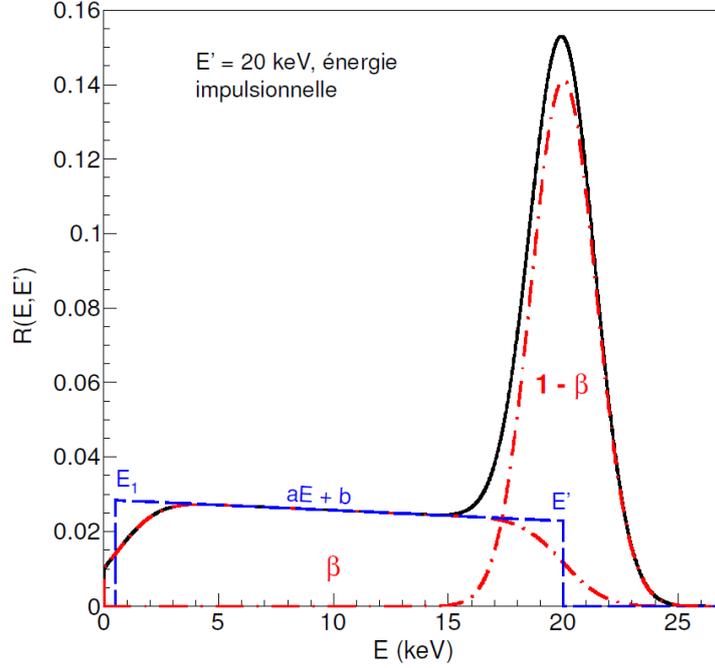


FIGURE 5.6 – Fonction réponse modifiée que nous proposons afin de mieux tenir compte du fond dû aux électrons n'ayant déposé qu'une partie de leur énergie. La fonction bleue, formée à partir d'une distribution carrée normalisée déformée linéairement, est convoluée avec une gaussienne. La fonction réponse globale, en noir, est décomposée en un fond et un pic d'énergie totale déposée, tous les deux rouge pointillés.

Notons enfin que cette fonction réponse modifiée peut être aisément étendue à des déformations polynomiales autres que linéaire. Il existera toujours une solution analytique, qui pourra être établie de la même manière.

Déformation quadratique du fond

Afin d'améliorer encore l'accord entre notre fonction de réponse analytique et les simulations impulsionnelles, nous proposons une déformation du fond quadratique plutôt que linéaire. La distribution $LS(E)$ équation (5.7) est remplacée par la distribution $DS(E)$:

$$DS(E) = \begin{cases} \frac{cE^2 + aE + b}{N} & \text{si } E_1 \leq E \leq E' \\ 0 & \text{sinon} \end{cases} \quad (5.22)$$

avec le facteur de normalisation :

$$N = \int_{E_1}^{E'} (cE^2 + aE + b) dE = \frac{a}{2}(E'^2 - E_1^2) + b(E' - E_1) + \frac{c}{3}(E'^3 - E_1^3) \quad (5.23)$$

Nous pouvons réutiliser en grande partie les calculs de la section précédente en séparant les intégrandes :

$$B(E, E') = I_a + I_b + I_c \quad (5.24)$$

Il ne nous reste plus alors qu'à établir I_c . En utilisant le même changement de variable, on obtient :

$$\begin{aligned} I_c &= \frac{1}{N} \int_{E_1}^{E'} cE''^2 \frac{dE''}{\sigma\sqrt{2\pi}} \exp \left[- \left(\frac{E - E''}{\sigma\sqrt{2}} \right)^2 \right] \\ &= \frac{c}{N\sqrt{\pi}} \int_{E_1}^{E'} (E^2 - 2\sqrt{2}\sigma Et + 2\sigma^2 t^2) e^{-t^2} (-dt) \end{aligned} \quad (5.25)$$

On sépare à nouveau les intégrandes selon $I_c = I_{c_1} + I_{c_2} + I_{c_3}$. Les deux premiers s'obtiennent directement à partir des résultats de la section précédente :

$$I_{c_1} = \frac{cE^2}{2N} \left[\operatorname{erf} \left(\frac{E - E_1}{\sigma\sqrt{2}} \right) - \operatorname{erf} \left(\frac{E - E'}{\sigma\sqrt{2}} \right) \right] \quad (5.26)$$

et :

$$I_{c_2} = \sqrt{\frac{2}{\pi}} \cdot \frac{c\sigma E}{N} \left\{ \exp \left[- \left(\frac{E - E_1}{\sigma\sqrt{2}} \right)^2 \right] - \exp \left[- \left(\frac{E - E'}{\sigma\sqrt{2}} \right)^2 \right] \right\} \quad (5.27)$$

Le troisième intégrande doit être calculé spécifiquement. On a :

$$I_{c_3} = -\frac{2\sigma^2 c}{N\sqrt{\pi}} \int_{E_1}^{E'} t^2 e^{-t^2} dt \quad (5.28)$$

La primitive de cette intégrale n'est pas triviale, mais on peut vérifier par dérivation que :

$$\int t^2 e^{-t^2} dt = \frac{e^{-t^2}}{4} \left[\sqrt{\pi} e^{t^2} \operatorname{erf}(t) - 2t \right] \quad (5.29)$$

On obtient alors :

$$\begin{aligned} I_{c_3} &= \frac{\sigma^2 c}{2N} \left\{ \operatorname{erf} \left(\frac{E - E_1}{\sigma\sqrt{2}} \right) - \frac{2}{\sqrt{\pi}} \left(\frac{E - E_1}{\sigma\sqrt{2}} \right) \exp \left[- \left(\frac{E - E_1}{\sigma\sqrt{2}} \right)^2 \right] \right. \\ &\quad \left. - \operatorname{erf} \left(\frac{E - E'}{\sigma\sqrt{2}} \right) + \frac{2}{\sqrt{\pi}} \left(\frac{E - E'}{\sigma\sqrt{2}} \right) \exp \left[- \left(\frac{E - E'}{\sigma\sqrt{2}} \right)^2 \right] \right\} \end{aligned} \quad (5.30)$$

L'expression générale de cette nouvelle fonction réponse du système de détection reste identique à celle de l'équation (5.21). La figure 5.7 illustre cette nouvelle fonction réponse.

L'ajustement de la fonction est illustré par la courbe bleue sur la figure 5.8. Les paramètres d'ajustement sont maintenant σ , β , a , b , c . Nous obtenons un bien meilleur ajustement qu'en suivant le modèle simple de Tsoufanidis. Les valeurs des paramètres ajustés sont stockées dans un tableau pour chaque énergie impulsionnelle simulée.

Une fois la fonction réponse déterminée, nous procédons à la convolution bin à bin du spectre théorique du ^{14}C par la fonction élaborée de la même manière que précédemment. Le résultat est illustré en rouge sur la figure (5.5). Par rapport au cas précédent, les événements à basse énergie sont mieux pris en compte mais semblent maintenant surestimés au dépend du pic d'absorption totale.

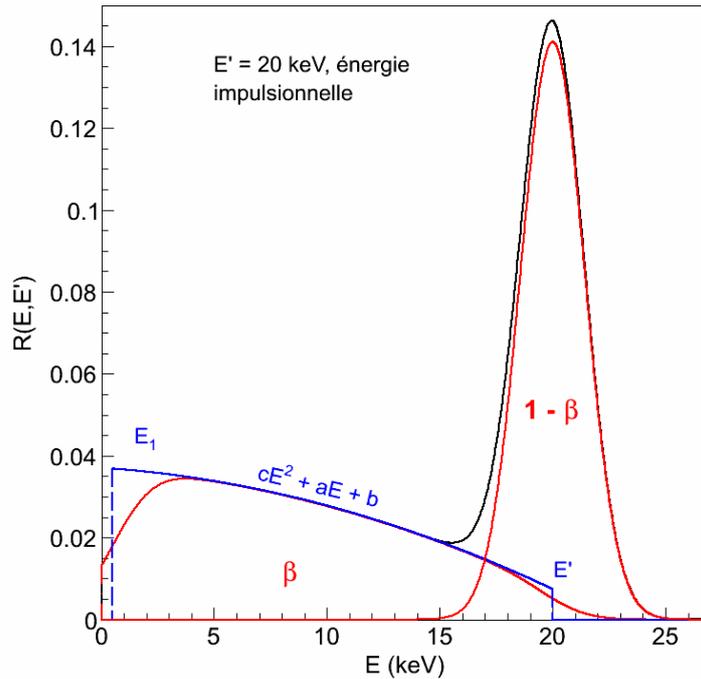


FIGURE 5.7 – Fonction réponse modifiée que nous proposons afin de mieux tenir compte du fond dû aux électrons n’ayant déposé qu’une partie de leur énergie. La fonction bleue, formée à partir d’une distribution carrée normalisée déformée quadratiquement, est convoluée avec une gaussienne. La fonction réponse globale, en noir, est décomposée en un fond et un pic d’énergie totale déposée, tous les deux rouge pointillés.

La fonction réponse déterminée précédemment ne décrit pas suffisamment bien la réponse impulsionnelle. Il faudrait probablement plus de paramètres pour décrire correctement la déformation du fond. Par ailleurs une statique de simulation plus importante permettrait d’améliorer la qualité de l’ajustement. Ces deux points sont des voies d’amélioration possibles pour déterminer la fonction réponse proprement. Cependant, nous avons préféré mettre en place une autre méthode.

5.2.4 Fonction réponse adaptée

Nous avons vu dans la section précédente qu’il est difficile de déterminer proprement la fonction réponse à partir d’une fonction analytique ajustée sur la réponse impulsionnelle à différentes énergies du dispositif expérimental. Dans les cas précédents, les déformations proviennent de la mauvaise prise en compte de la répartition en fonction de l’énergie du nombre d’événements dans le pic d’absorption totale par rapport au fond continu. L’ajustement énergie par énergie n’est pas suffisamment précis.

Afin de mieux prendre en compte cette répartition, la fonction réponse est adaptée jusqu’à ce que la convolution du spectre théorique avec cette fonction adaptée coïncide avec le spectre simulé.

Dans le cas de la fonction simple, la fonction adaptée correspond alors à la fonction rouge sur la figure 5.4. Cette fonction réponse convoluée au spectre théorique permet de reproduire correctement le spectre simulé (voir figure 5.9). Cependant elle n’est pas réaliste par rapport à la réponse impulsionnelle simulée et ne peut pas être utilisée. Par contre, la réponse impulsionnelle

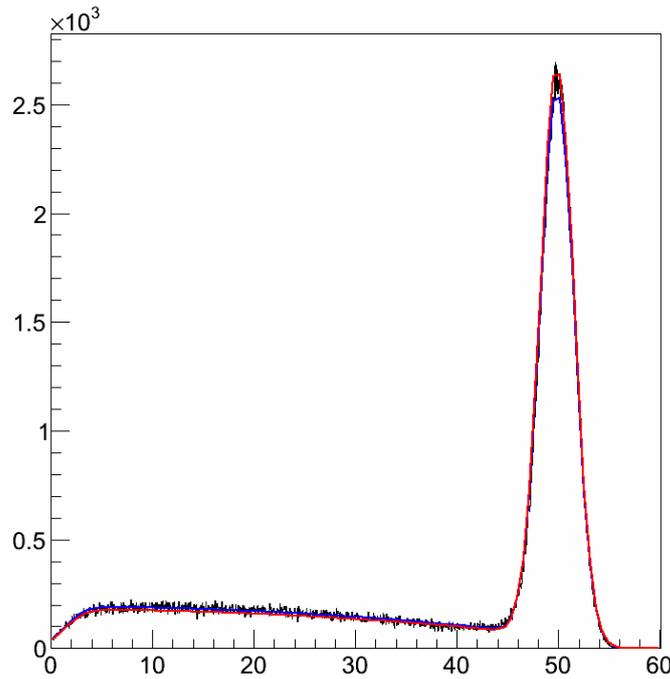


FIGURE 5.8 – Réponse impulsionnelle simulée du système de détection à 50 keV (en noir). La courbe bleue correspond à l’ajustement de la fonction élaborée sur le spectre noir. La courbe rouge est la fonction réponse adaptée obtenue en ajustant le spectre convolué au spectre simulé. Ces deux courbes sont très proches.

de la fonction réponse élaborée adaptée, en rouge sur la figure 5.8, est tout à fait cohérente avec la réponse impulsionnelle simulée du dispositif expérimental. La fonction réponse élaborée adaptée est réaliste et décrit correctement la réponse du dispositif expérimental. Cette fonction peut être utilisée pour déconvoluer le spectre mesuré.

5.3 Déconvolution

L’algorithme de déconvolution utilisé a été décrit dans le cadre de la déconvolution d’une image bruitée dans [2]. Le problème peut être adapté à notre application.

En considérant l’absence de bruit dans les données, la relation suivante peut être établie :

$$d_i = \sum_{j=1}^M S_{ij} f_j \quad (5.31)$$

Le problème de la déconvolution consiste à déterminer f_i , la « vraie » distribution, sachant d_i , les données et S_{ij} , la réponse impulsionnelle. L’inversion directe de la matrice S_{ij} conduit à des oscillations importantes. Le processus de déconvolution est instable, il s’agit d’un problème mal posé : une faible erreur sur les données conduit à une grande erreur sur la solution. Pour éviter les oscillations, une contrainte peut être ajoutée. Pour notre application, il est raisonnable de poser la condition $f_i \geq 0$ puisqu’une particule β ne peut pas être émise avec une probabilité négative. Si aucune valeur négative n’est admise, les oscillations sont automatiquement amorties. Comme nous avons $d_i \geq 0$ et que la réponse impulsionnelle est toujours positive, un processus de résolution qui assure la positivité de f_i peut être construit. L’algorithme est le suivant :

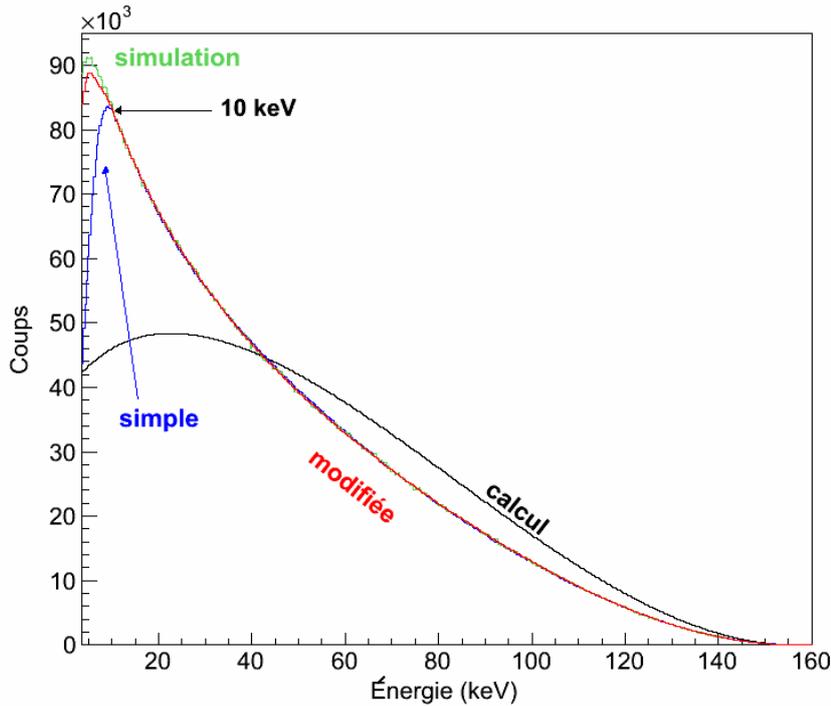


FIGURE 5.9 – La convolution du spectre théorique du ^{14}C , en noir, avec la fonction réponse simple adaptée est représentée en bleu. Ce résultat est à comparer avec le spectre simulé, en vert. La convolution de la fonction réponse élaborée adaptée avec le spectre théorique est illustrée en rouge. Les spectres sont normalisés sur l’intervalle 110–150 keV.

$$f_i^{(n+1)} = f_i^{(n)} \frac{d_i}{\sum_{j=1}^M S_{ij} f_j^{(n)}} \quad (5.32)$$

où $f_i^{(n)}$ est la $n^{\text{ième}}$ estimation de f_i .

En partant des données, $f_i^{(1)} = d_i$, la distribution $f_i^{(n+1)}$ est juste dilatée dans un rapport données réelles sur données estimées. Notons que nous pouvons également, dans notre cas, partir d’un spectre théorique permis, puisque nous cherchons à déterminer un facteur de forme. Étant donné que cet algorithme ne prend pas le bruit en compte, il est bien adapté à la déconvolution de spectres faiblement bruités.

Validation de la procédure de déconvolution

Avant de procéder à la déconvolution d’un spectre mesuré, il faut s’assurer que le processus de déconvolution ne déforme pas le spectre. Ici, nous appliquons le processus de déconvolution au spectre simulé du ^{14}C . Dans le cas de la déconvolution d’un spectre β , il est raisonnable de considérer comme première estimation de f_i une forme permise. La convergence du processus de déconvolution est immédiate. Le spectre déconvolué est représenté en rouge sur la figure 5.10.

Étant donné que nous connaissons la distribution « vraie » à retrouver, *i.e.* le spectre théorique utilisé en entrée de la simulation, le processus de déconvolution peut être testé. Les résidus du spectre déconvolué par rapport à la transition permise calculée en entrée de la simulation sont représentés sur la figure 5.11. Sur la gamme en énergie où a été établie la fonction réponse, les résidus ne présentent aucune déformation. Ils sont répartis de façon homogène autour de

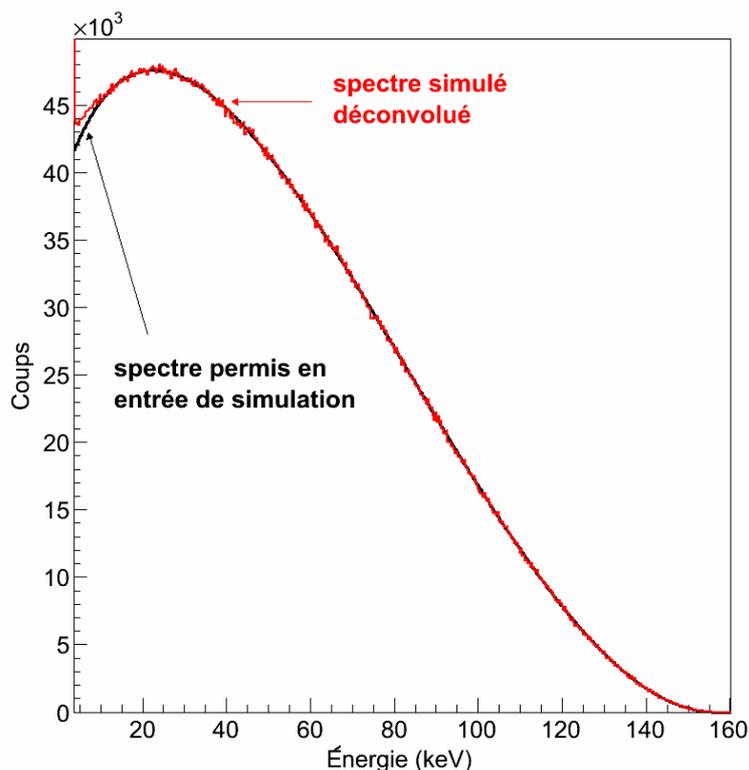


FIGURE 5.10 – Le spectre rouge représente le spectre simulé du ^{14}C déconvolué de la fonction réponse élaborée adaptée. En noir figure le spectre permis qui a été calculé en entrée de la simulation.

zéro, les seules différences qui existent entre les deux spectres résultent du bruit statistique. Nous pouvons donc en conclure que la procédure de déconvolution ne déforme pas le spectre.

Déconvolution du spectre mesuré de ^{14}C

Le résultat de la déconvolution du spectre mesuré de ^{14}C est présenté sur la figure 5.12.

Le désaccord avec la forme permise apparaît nettement. Nous avons évoqué dans la section 4.4.2 l'existence d'un possible facteur de forme pour cette transition. Nous avons donc utilisé le facteur de forme donné par Kuzminov dans [3] :

$$C(E) = 1 + \beta(E_{\max} - E) \quad (5.33)$$

et nous l'avons ajusté sur notre spectre déconvolué. Les paramètres d'ajustement sont β et E_{\max} comme dans les travaux de Kuzminov. Les valeurs ajustées de ces paramètres sont à comparer à celles déterminées par Kuzminov :

	E_{\max} (keV)	β (keV $^{-1}$)
Notre étude	154.9 ± 1.9	$(1.272 \pm 0.028) \cdot 10^{-3}$
Kuzminov	156.27 ± 0.17	$(1.24 \pm 0.04) \cdot 10^{-3}$

Nos résultats sont cohérents avec ceux de Kuzminov. L'incertitude sur l'énergie maximale correspond à l'écart-type déterminé à partir de la résolution de 4.4 keV que nous avons déterminée expérimentalement. Pour déterminer l'incertitude sur le paramètre β , nous avons convolué deux incertitudes. La première est liée au processus de déconvolution en lui-même, et est estimée à partir de l'écart-type σ_{dec} donné en figure 5.11. La seconde provient de la comparaison directe entre le spectre théorique tenant compte du facteur de forme ajusté et le spectre mesuré

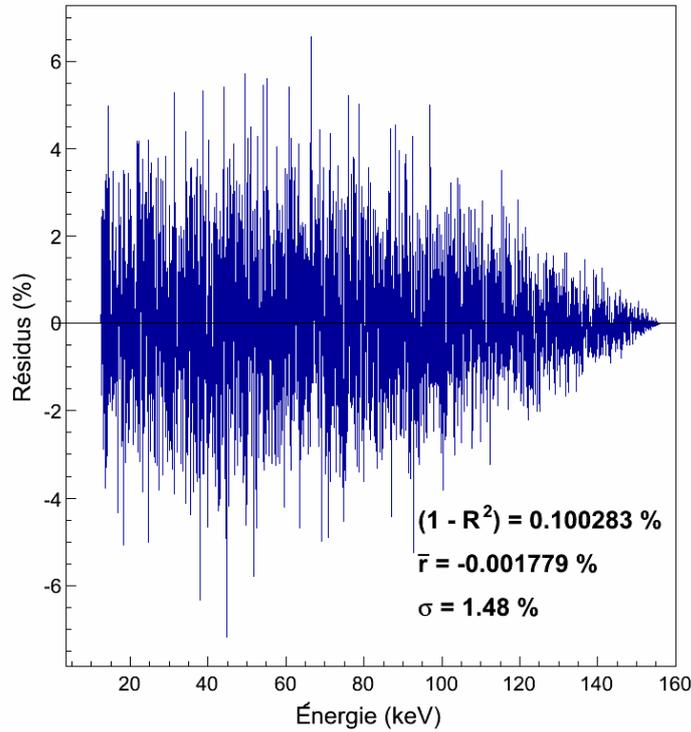


FIGURE 5.11 – Spectre des résidus du spectre simulé déconvolué comparé au spectre permis calculé en entrée de la simulation. Les paramètres de désaccord $(1 - R^2)$, de valeur moyenne des résidus \bar{r} et d'écart-type des résidus σ , tels que décrits en section 4.4, sont également donnés.

déconvolué. Le spectre des résidus présenté en figure 5.13 donne l'écart-type σ_{ff} utilisé. Nous en déduisons l'incertitude relative $\sigma_{\beta} = \sqrt{\sigma_{\text{dec}}^2 + \sigma_{\text{ff}}^2} = 2.18 \%$. Le spectre de ces résidus est illustré sur la figure 5.13. Les déformations observées dans le spectre des résidus nous indiquent que le facteur forme ne permet pas de décrire précisément la forme du spectre mesuré. En particulier, un important décrochage est observé dans le spectre des résidus en deçà de 20 keV. Ce résultat est cependant en accord avec la figure 6 dans [3] qui présente le rapport du spectre expérimental sur le spectre théorique de Kuzminov, où un décrochage similaire existe sur cette gamme en énergie.

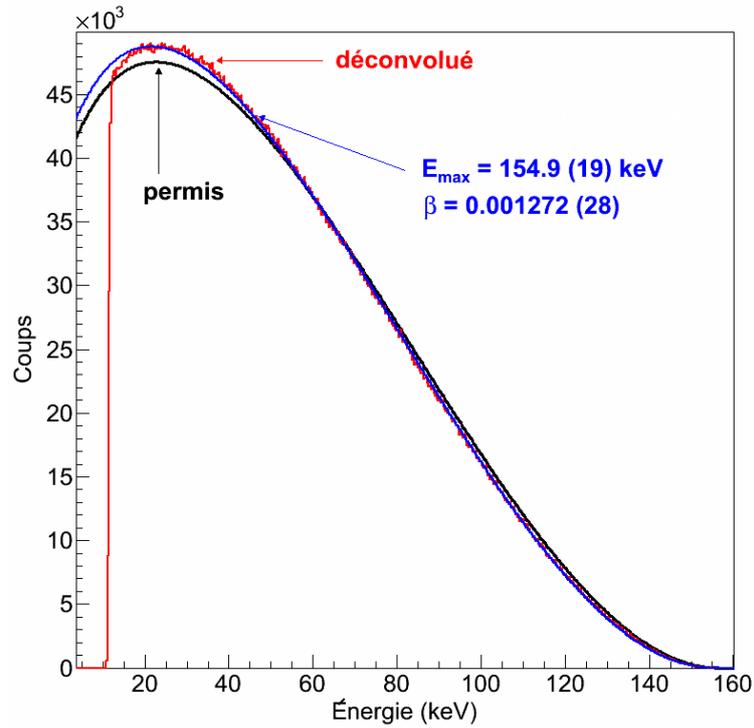


FIGURE 5.12 – Spectre déconvolué du ^{14}C en rouge. Le spectre théorique d’une transition permise est représenté en noir. Le spectre bleu correspondant à un spectre permis ajusté avec le facteur de forme 5.33 où les paramètres d’ajustement sont β et E_{max} .

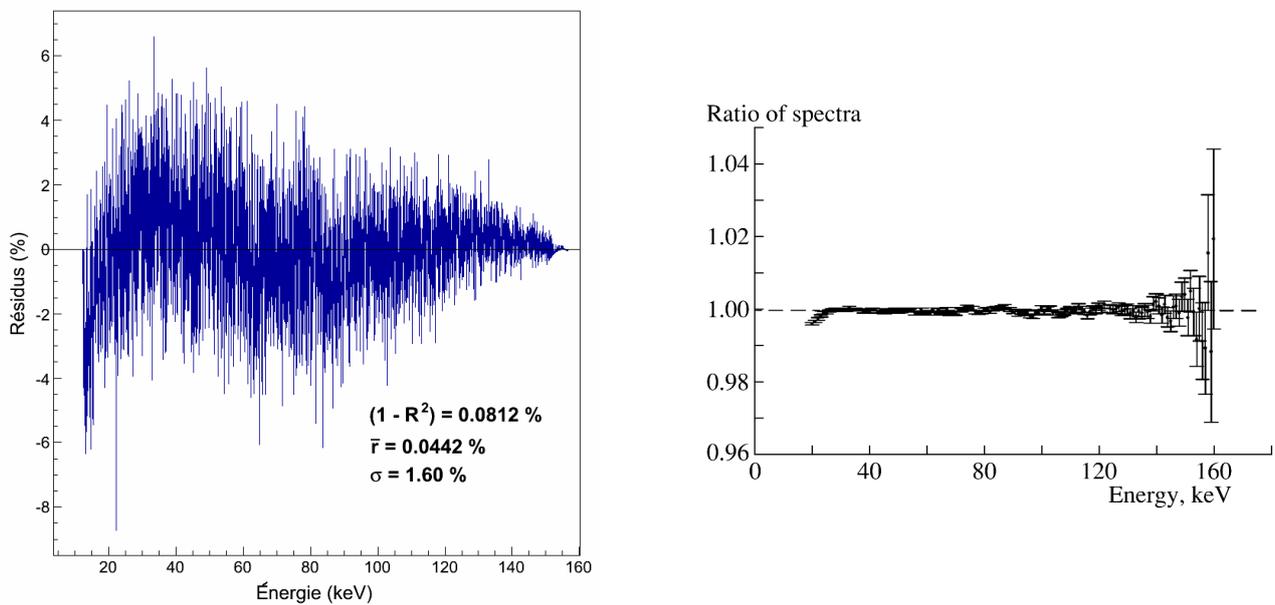


FIGURE 5.13 – À gauche. Résidus du spectre mesuré déconvolué comparé au spectre permis tenant compte du facteur de forme (5.33) avec les paramètres β et E_{max} égaux aux valeurs données sur la figure 5.12. Les paramètres de désaccord $(1 - R^2)$, de valeur moyenne des résidus \bar{r} et d’écart-type des résidus σ , tels que décrits en section 4.4, sont également donnés. À droite, figure extraite de [3]. Rapport entre le spectre mesuré corrigé des déformations expérimentales et le spectre théorique tenant compte du facteur de forme de Kuzminov.

Ce chapitre a présenté les outils développés pour corriger les spectres mesurés des déformations expérimentales. Les points importants à retenir sont :

- une fonction analytique a pu être déterminée pour décrire les réponses impulsionnelles générées entre 0 et 160 keV ;
- l'ajustement de la fonction réponse du dispositif expérimental convoluée au spectre en entrée de la simulation sur le spectre simulé permet de déterminer précisément la fonction réponse du dispositif expérimental ;
- le processus de déconvolution étant stable, la fonction réponse peut être utilisée pour déconvoluer le spectre mesuré ;
- la transition « permise » du ^{14}C admet en réalité un facteur de forme et notre résultat est cohérent avec la littérature.

Bibliographie

- [1] N. Tsoufanidis, B.W. Wehring, and M.E. Wyman. The use of an analytical response function for unfolding beta spectra. *Nuclear Instruments and Methods*, 73(1) :98 – 102, 1969.
- [2] P. Magain. A simple deconvolution algorithm. In 1st *ESO/ST-ECF Data Analysis Workshop*.
- [3] V.V. Kuzminov and N.Ja. Osetrova. Precise measurement of ^{14}C beta spectrum by using a wall-less proportional counter. *Physics of Atomic Nuclei*, 63(7) :1292–1296, 2000.

Conclusion et perspectives

L'intérêt pour une connaissance précise de la forme des spectres β couplée à une incertitude bien établie est partagé par une communauté d'utilisateurs divers et variés. Que ce soit pour faire des calculs de dose en médecine nucléaire, réduire les incertitudes sur les mesures d'activité en scintillation liquide ou pour déterminer des termes fins de l'interaction faible en physique fondamentale, de nouvelles mesures sont nécessaires. Les bases de données actuelles sont trop restreintes pour satisfaire la demande, en particulier pour des transitions interdites. Dans le chapitre 1, une revue précise des besoins des différents utilisateurs a été réalisée.

L'objectif de ce travail de thèse était de répondre à cette demande en mettant en place un nouveau dispositif expérimental dédié à la mesure de spectres β avec une précision métrologique.

Le type de détecteur que nous avons choisi d'utiliser, un semi-conducteur silicium, a des performances adaptées à la spectrométrie β : une bonne résolution en énergie, une réponse linéaire et une faible fenêtre d'entrée. La gamme en énergie dépend de l'épaisseur de volume actif, mais il est possible de couvrir une large étendue d'émetteurs β avec plusieurs détecteurs. Ces détecteurs sont faciles à implémenter et l'électronique consiste en une chaîne d'acquisition classique de spectrométrie.

La technique de mesure est donc relativement simple, accessible et utilisable pour un grand nombre de radionucléides. La difficulté en spectrométrie β est que les spectres mesurés sont déformés de leur forme réelle par la mesure. Ces déformations sont liées à la nature hautement diffusante des électrons (phénomènes de rétrodiffusion, de dissusion, d'auto-absorption dans la source et dans les zones mortes) et à la détection (bruit électronique, résolution du détecteur). Lors de la conception du dispositif, nous avons tenu compte des potentielles sources de déformations afin de les limiter autant que possible.

Dans chapitre 3, nous avons décrit les contraintes expérimentales liées aux spécificités de la mesure. Ainsi, le détecteur est refroidi et placé sous vide. Des études réalisées avec GEANT4 nous ont permis d'optimiser les géométries et les matériaux présents autour du détecteur afin de limiter la diffusion. Une attention particulière a également été portée à la fabrication des sources radioactives. Nous avons adapté une méthode éprouvée à nos besoins. Des sources minces ont été fabriquées par lyophilisation d'un dépôt radioactif sur un film de Vyns. Enfin, l'électronique a été finement réglée afin de réduire le bruit électronique.

Les premières mesures réalisées avec des sources d'électrons de conversion de ^{109}Cd et ^{133}Ba ont permis de caractériser le dispositif de mesure. Nous avons explicitement démontré qu'il y avait un gain non négligeable à refroidir le détecteur, et que la qualité des sources était primordiale. L'étalonnage d'un détecteur PIPS de $500\ \mu\text{m}$ d'épaisseur de volume actif et $450\ \text{mm}^2$ de surface a été réalisé à l'aide d'une source de ^{133}Ba écrantée. Une résolution de 4.4 keV est obtenue pour le pic à 62.520 keV d'une source de ^{109}Cd . Le seuil en énergie est d'environ 10 keV. Différents types de spectres β , issus des radionucléides, ^{14}C , ^{60}Co , ^{151}Sm et ^{99}Tc , ont ensuite été mesurés.

En parallèle des mesures, nous avons implémenté dans GEANT4 la géométrie de la chambre de détection avec une très grande précision. Pour caractériser proprement le détecteur, ce dernier a été préalablement analysé par radiographie et fluorescence X. Une comparaison entre les

spectres mesurés et les spectres simulés a été décrite dans le chapitre 4. Nous obtenons un très bon accord, ce qui nous permet de valider la qualité de nos simulations.

Un traitement des spectres après la mesure est nécessaire afin de corriger des déformations restantes. Une fonction de réponse doit donc être déterminée pour chaque géométrie de mesure. Cette détermination peut se faire à l'aide des simulations Monte-Carlo puisqu'elles ont été validées. L'analyse de la réponse impulsionnelle simulée du système de détection est la voie la plus prometteuse pour définir cette fonction de réponse précisément. Nos premiers résultats montrent qu'une déconvolution du spectre mesuré avec la réponse du système de détection doit permettre à terme d'obtenir la forme réelle du spectre β avec une grande précision.

Les points abordés résument le travail qui a été accompli au cours de cette thèse. Les objectifs ont été atteints : en partant de zéro, un dispositif expérimental fonctionnel ainsi que des outils d'analyse ont été développés, réalisés et caractérisés, permettant une étude expérimentale approfondie de la forme des spectres β .

À court terme, les résultats obtenus avec le détecteur PIPS pourront être renforcés par ceux obtenus avec un détecteur Si(Li). Nous avons déjà implémenté ce détecteur à la place du détecteur PIPS avec succès. Son épaisseur de volume actif est de 5 mm et sa surface de 450 mm², permettant de mesurer des spectres avec une énergie maximale de 2.5 MeV. Les premiers résultats montrent que le dispositif reste opérationnel en changeant de détecteur. Les spectres de ³⁶Cl, ⁶⁰Co, ¹³³Ba, ²⁰⁷Bi, ¹⁴C ont été mesurés et restent à analyser.

Des améliorations du dispositif sont à envisager, notamment au niveau de l'électronique car le seuil pourrait être abaissé si le bruit électronique était réduit. L'alimentation haute tension pourra être remplacé par une alimentation utilisant des piles. Nous suspectons une instabilité de la haute tension qui, de plus, est génératrice de bruit haute fréquence. Il pourrait donc y avoir des avantages à s'en passer. L'utilisation de modules numériques pourra également être testée. Enfin, la connection entre le détecteur et le préamplificateur est fragile et devra être renforcée.

Nous avons abordé en chapitre 3 les sources de type Langmuir-Blodgett. Ces sources sont encore plus minces que les films de Vyns et constituent une voie d'amélioration possible.

Enfin, des évolutions du dispositif peuvent également être envisagées, car le dispositif a été conçu pour être le plus modulaire possible. Nous avons évoqué dans le premier chapitre l'existence de spectromètres β utilisant deux détecteurs silicium face à face, ce qui limite considérablement les phénomènes de rétrodiffusion et donc les déformations. Le dispositif actuel pourrait facilement tendre vers ce type de géométrie, par exemple en plaçant une source entre le détecteur PIPS et le détecteur Si(Li).

Conférences

- *Symposium on Radiation Measurements and Applications (SORMA XV)*. 9–12 juin 2014, Ann Arbor, États-Unis. Présentation orale.
- *Interim Meeting MetroMRT Project*. 20–21 mai 2014, Paris, France Présentation orale.
- *International Conference on Nuclear Data for Science and Technology 2013 (ND2013)*. Du 4 au 8 Mars 2013, New York, États-Unis. Présentation orale.
- *Decay Data Evaluation Project Meeting 2012 (DDEP12)*. 8–12 octobre 2012, Paris, France. Présentation orale.
- *16th International Congress of Metrology*. 7–9 octobre 2013, Paris, France. Poster.

Publications

C. Bisch, X. Mougeot, M.-M. Bé, A.-M. Nourreddine, *Development of a system for measuring the shape of beta spectra using a semiconductor Si detector*, Proceedings of the International Conference on Nuclear Data for Science and Technology 2013, New-York, États-Unis, published in Nuclear Data Sheets 119, 1 – 428 (2014).

X. Mougeot, M.-M. Bé, C. Bisch, M. Loidl, *Corrections for exchange and screening effects in low-energy beta decays*, Proceedings of the International Conference on Nuclear Data for Science and Technology 2013, New-York, États-Unis, published in Nuclear Data Sheets 119, 1 – 428 (2014).

X. Mougeot, M.-M. Bé, C. Bisch, *Calculation of beta spectra shapes – Calcul de la forme des spectres bêta*, Radioprotection (accepted for publication : 12th June 2014).

X. Mougeot, C. Bisch, *Consistent calculation of the screening and exchange effects in allowed beta minus transitions*, Physical Review A 90, 012501 (2014) .

C. Bisch, X. Mougeot, M.-M. Bé, *Evaluation of the beta spectral shapes*, 16th International Congress of Metrology, Paris, France, 7-10 October 2013, EDP Science, Web of Conference (2013).

X. Mougeot, M.-M. Bé, C. Bisch, M. Loidl, *Evidence for the exchange effect in the beta decay of Pu-241*, Physical Review A 86 (4), 042506 (2012).

Résumé

L'objectif de ce travail de thèse est de mettre au point un nouveau dispositif expérimental dédié à la mesure de spectres β avec une précision métrologique. Le dispositif conçu autour d'un semi-conducteur silicium doit tenir compte des phénomènes physiques (diffusion et rétro-diffusion des électrons, auto-absorption dans la source) et de détection (résolution et linéarité) à l'origine de déformations dans le spectre mesuré, afin de les limiter et de les réduire au maximum. Le détecteur est refroidi à la température de l'azote liquide et maintenu sous un vide secondaire. Des simulations Monte-Carlo de la chambre de détection ont permis de déterminer la géométrie et les matériaux à utiliser. La qualité des sources radioactives est déterminante pour obtenir des spectres de qualité. Des sources minces sont fabriquées par lyophilisation d'un dépôt radioactif sur un film de Vyns. L'étalonnage a été réalisé à l'aide d'une source de ^{133}Ba écrantée. Une résolution de 4.4 keV est obtenue pour le pic à 62.520 keV d'une source de ^{109}Cd . Différents types de spectres β , ^{14}C , ^{60}Co , ^{151}Sm et ^{99}Tc , ont été mesurés avec un détecteur PIPS de 500 μm d'épaisseur de volume actif et 450 mm^2 de surface. Le seuil en énergie est d'environ 10 keV. Un traitement des spectres après la mesure est nécessaire afin de corriger des déformations restantes. Une fonction de réponse doit donc être déterminée pour chaque géométrie de mesure. Cette détermination peut se faire à l'aide des simulations Monte-Carlo qui ont préalablement été validées par la comparaison entre les spectres simulés et les spectres mesurés, qui présentent un excellent accord. L'analyse de la réponse impulsionnelle simulée du système de détection est la voie la plus prometteuse pour définir cette fonction de réponse précisément. Nos premiers résultats montrent qu'une déconvolution du spectre mesuré avec la réponse du système de détection permet d'obtenir la forme réelle du spectre β avec une grande précision.

Abstract

The goal of this PhD work is to build a new experimental device dedicated to measuring beta spectra with a precision relevant to modern metrology requirements. The device, which is based on a silicon semi-conductor detector, must take into account certain physical phenomena (diffusion and scattering of electrons, auto-absorption in the source) and detector characteristics (resolution and linearity) which could lead to deformation of the measured spectra. These must be understood and minimized. The detector is cooled to liquid nitrogen temperatures and held in a secondary vacuum. Monte-Carlo simulations have allowed the geometry and construction materials to be optimized. The quality of the radioactive sources is paramount in obtaining spectra of high-quality. Thin sources were produced by freeze-drying of the radioactive material on a Vyns film. The calibration was achieved using a screened ^{133}Ba source. A resolution of 4.4 keV was obtained for the 62.520 keV peak of ^{109}Cd . Different types of β spectra, ^{14}C , ^{60}Co , ^{151}Sm and ^{99}Tc , were measured with a 500 μm PIPS detector, and a surface area of 450 mm^2 . The energy threshold is approximately 10 keV. Nonetheless, the measured spectra must be corrected for any remaining distortion. A response function must therefore be determined for each measurement geometry. This can be achieved via Monte-Carlo simulations, which have previously been validated through the excellent agreement between simulated and measured spectra. Analysis of the simulated pulse height spectrum for the detector system is the most promising route to an accurate definition of the response function. The first results show that de-convolution of the measured spectra with the response function allows the accurate determination of the true form of the beta spectra.

Mots-Clés

Spectres β , semi-conducteur, sources minces, fonction de réponse, déconvolution, facteurs de forme