HAL
open science

Etude du radon et du thoron par collection électrostatique et par spectrométrie gamma dans le cadre de l'expérience NEMO de décroissance double bêta

Thi Cam Ha Nguyen

To cite this version:

Thi Cam Ha Nguyen. Etude du radon et du thoron par collection électrostatique et par spectrométrie gamma dans le cadre de l'expérience NEMO de décroissance double bêta. Physique Nucléaire Expérimentale [nucl-ex]. Université de Bordeaux1, 2010. Français. NNT : . tel-00658985

HAL Id: tel-00658985

https://theses.hal.science/tel-00658985

Submitted on 11 Jan 2012

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

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

N° d'ordre : 4199

THESE

Présentée à

L'UNIVERSITE BORDEAUX 1

Ecole Doctorale des Sciences Physiques et de l'Ingénieur

Par

NGUYEN Thi Cam Ha

Pour obtenir le grade de

DOCTEUR

Spécialité : Physique Nucléaire

==========

Etude du radon et du thoron par collection électrostatique et par spectrométrie gamma dans le cadre de l'expérience NEMO de décroissance double bêta

==========

Soutenue le 16 décembre 2010

Après avis de :

M. A. NOURREDDINE	Professeur, Université Louis Pasteur, Strasbourg	Rapporteurs
M. G. SKLARZ	Directeur de Recherche CNRS, LAL, Orsay	

Devant la commission d'examen formée de :

M. Ph.HUBERT	Directeur de Recherche Emérite CNRS, CENBG	Président
M. A. NACHAB	Ingénieur de Recherche, CNRS, CENBG	Rapporteur
M. G. SKLARZ	Directeur de Recherche CNRS, LAL, Orsay	
M. A. NOURREDDINE	Professeur, Université Louis Pasteur, Strasbourg	
M. F. GOBET	Professeur, CENBG, Université Bordeaux 1	
M. M.C. NGUYEN	Docteur, Université des Sciences Naturelles de Hanoï	
M. F. PIQUEMAL	Directeur de Recherche CNRS, CENBG	

Centre d'Etudes Nucléaires de Bordeaux - Gradignan

À mes parents,

mon mari,

mes amis,

et mes professeurs…

Remerciements

Je tiens à remercier toutes les personnes qui m'ont aidé dans la réalisation de ce travail.

J’aimerais remercier tout d’abord M. Philippe Quentin qui, avec son enthousiasme infini pour le Vietnam et la collaboration franco-vietnamienne en Physique Nucléaire, m’a donné la chance de venir étudier en France.

Je voudrais également remercier M. Fabrice Piquemal et Mme. Christine Marquet de m’avoir accueilli dans leur groupe de recherche au CENBG, où j’ai appris beaucoup de choses intéressantes dans la vie scientifique, notamment l’esprit et la méthodologie du travail en groupe et en collaboration.

Je suis aussi très reconnaissante à M. Pham Quoc Hung, mon co-directeur de thèse, de m’avoir ouvert la porte à découvrir le monde de recherche. Je le respecte toujours pour sa gentillesse et son grand enthousiasme pour la formation des nouvelles générations d’étudiants ainsi que pour le développement de la Physique Nucléaire du Vietnam.

J’exprime ma plus vive gratitude à M. Philippe Hubert, mon Directeur de thèse, pour son accueil et son encadrement durant toute la durée de cette thèse, en me faisant partager son esprit admirable de travail ainsi que ses larges connaissances en physique générale et sa longue expérience dans la recherche, en particulier celle des faibles radioactivités et des bruits de fond. J’ai pu apprendre plein de choses avec lui, surtout des techniques et des méthodes très utiles pour les études expérimentales.

J’adresse évidemment mes sincères remerciements à M. Abdellatif Nachab pour sa grande disponibilité tout au long de ce travail, pour sa gentillesse, sa compréhension et ses conseils non-quantifiables dans la vie professionnelle ainsi que quotidienne. Sans lui, j'aurais sans doute été découragé par des difficultés incontournables pour une jeune étudiante étrangère pendant une période si dure de sa vie.

Je tiens à remercier également M. Frédéric Perrot pour ses aides toujours «à point» et pour son soutien que j’apprécie beaucoup. Merci aussi pour son sens de l’humour et son esprit ouvert qui m’ont beaucoup aidé dans les temps difficiles.

Je n’oublierai évidemment pas Emmanuel Chauveau, «Manolo», mon camarade que je considère aussi comme un grand frère, qui m’a toujours aidé et encouragé depuis mes premiers jours en France. Je suis très heureuse d’avoir trouvé un ami précieux comme lui.

Je pense également à tous ceux du personnel du CENBG qui m’ont apporté leur aide ou qui ont contribué à créer une ambiance agréable aussi bien durant le travail qu’en dehors. Merci à Nadine Carmona pour sa gentillesse et ses aides pour des procédures administratives que je sais parfois très compliquées pour une étrangère ; à Johny Pinson – le « voisin » en face – pour ses supports informatiques et pour ses joyeuses rigolades ; à Patricia Castel pour sa disponibilité et ses aides au niveau des dispositifs expérimentaux et à Pascal Chambon pour son efficacité dans la recherche des publications.

Je remercie aussi vivement Guillaume Lutter – Guigui le boss, Véra Kolavenko et Hubert Chiron pour les corrections orthographiques et grammaticales de mon français très approximatif, leurs conseils au niveau de ma présentation et surtout leur gentillesse et leur disponibilité même en dernières minutes.

« Last but not least », mes remerciements s’adressent également aux membres du jury pour leurs conseils avisés et leurs commentaires très constructifs, qui seront sans doute très utiles pour le chemin professionnel que je souhaiterais continuer dans l’avenir.

Je ne terminerai pas sans adresser un immense merci à mes parents pour tout ce qu’ils ont fait et pour l’amour infini qu’ils m’ont donné et pour le soutien qu’ils m’ont apporté durant toutes mes études, à qui je dois le tout. Et mon mari qui était toujours à côté de moi, qui m’a encouragé et même «débloqué » dans les moments les plus durs, surtout pendant les derniers mois où je devais me concentrer totalement à l’achèvement de la thèse.

Table des matières

Introduction 1

1 – Introduction générale sur le radon et le thoron 3

1.1 – Historique du radon 3
1.2 – Propriétés des trois isotopes du radon 4
1.3 – Emanation du radon 5
1.4 – Propriétés des descendants du radon et du thoron 7
1.5 – Techniques de détection du radon 9
1.6 – Capture du radon par le charbon actif 11

2 – Radon et thoron dans l'expérience NEMO 13

2.1 – Introduction sur l'expérience NEMO 13
2.2 – Description du détecteur NEMO3 15
2.3 – Résultats préliminaires 19
2.4 – Effet du radon et du thoron dans NEMO 22
2.4.1 – Le radon et le ^{214}Bi 22
2.4.2 – Le thoron et le ^{208}Tl 23
2.5 – Origine du radon dans NEMO3 24
2.5.1 – Origine externe 24
2.5.2 – Origine interne 28
2.6 – Conclusions 30

3 – Détecteur de radon 33

3.1 – Description du détecteur de radon 34
3.2 – Bruit de fond du détecteur 37
3.3 – Analyse de la radiopureté des principaux composants par spectrométrie gamma 41
3.4 – Calibration du détecteur 43

4 – Etudes du radon au CENBG 45

4.1 – Vue d'ensemble du dispositif expérimental 46
4.2 – Influence des paramètres expérimentaux sur la détection de radon 48
4.2.1 – Influence de la haute tension 48
4.2.2 – Influence de la température de la source 49
4.2.3 – Influence de l'humidité 50
4.2.4 – Influence du débit du gaz porteur 54
4.2.5 – Etude de la distance source-détecteur 57
4.3 – Calibration du détecteur en radon 58

5 – Etudes du thoron au CENBG 63

5.1 – Vue d'ensemble du dispositif expérimental 64
5.2 – Influence des différents paramètres sur la réponse du détecteur 66
5.2.1 – Influence de l'humidité 66
5.2.2 – Influence du débit du gaz porteur 69
5.2.3 – Influence de la distance source-détecteur 70
5.3 – Etude du dépôt des descendants du thoron pendant le transit source-détecteur ..71
5.4 – Calibration du détecteur pour le thoron 76
5.4.1 – Mesure de l'émanation de la source de thorium à l'aide d'un spectromètre GeHP 76
5.4.2 – Calibration du détecteur de thoron 79
5.4.3 – Efficacités de détection 80

Conclusion 85

Annexe 1 – Spectrométrie gamma bas bruit de fond .....…… 87

Annexe 2 – Dépôt radioactif sur les surfaces .....…… 93

Bibliographie ……..... 97

Introduction

Les travaux de recherches de cette thèse préparée en co-direction entre l'Université de Bordeaux I et l'Université de Hanoi (Vietnam), concernent l'étude du radon et du thoron par collection électrostatique et par spectrométrie gamma dans le cadre de l'expérience NEMO3 (Neutrino Ettore Majorana Observatory).

L'expérience NEMO a pour but la recherche de la double désintégration bêta sans émission de neutrino ($2\beta0\nu$). L'observation d'un tel phénomène rare permettrait de mettre en évidence la nature (Dirac ou Majorana) et la masse de neutrino. Les exigences de bruit de fond requises pour l'étude de la désintégration $2\beta0\nu$ ont impliqué d'une part l'installation de l'expérience dans un laboratoire souterrain au-dessous de 1700 m de roches, afin de minimiser l'effet du rayonnement cosmique et, d'autre part, des contraintes fortes quant à la radioactivité de chaque matériau utilisé pour la construction du détecteur NEMO3.

Les premières données enregistrées avec le détecteur NEMO3 ont montré l'importance du radon comme source de bruit de fond. L'origine du radon provient essentiellement de l'air du laboratoire, et le problème a été résolu en entourant le détecteur d'une tente aussi étanche que possible et en injectant de l'air purifié en radon. Toutefois, les mesures des teneurs en radon et en thoron du gaz du détecteur NEMO3 ainsi que les analyses des données ont montré qu'il existait encore une très faible contamination en radon et thoron à l'intérieur de NEMO3, probablement due au dégazage des matériaux. Pour une compréhension totale des bruits de fond de NEMO3, et dans l'optique du projet SuperNEMO, nous avons décidé de reprendre les études sur le radon et plus particulièrement sur le thoron, à l'aide d'un appareillage mis à notre disposition par l'Université de Saga au Japon. L'objectif principal de ce travail porte sur l'étude de la réponse du détecteur de radon à diverses conditions expérimentales.

Ce rapport est scindé en cinq chapitres. Le premier porte sur une revue générale sur le radon et le thoron (propriétés, origines et leurs descendants). Il décrit aussi brièvement les différentes techniques de détection du radon.

La deuxième partie est dédiée à la description du détecteur NEMO3. Les différentes contributions du radon et du thoron comme sources de bruit de fond dans le signal $\beta\beta0\nu$ y sont détaillées. On conclut par des mesures du taux de radon et de thoron dans le gaz à la sortie du NEMO3.

Dans le troisième chapitre, on décrit le principe du détecteur de radon par collection électrostatique, son fonctionnement et sa sensibilité. On présentera également une étude de son bruit de fond.

Le quatrième chapitre est consacré à l'étude de la réponse du détecteur au radon en fonction de différents paramètres expérimentaux qui sont l'humidité, le débit du gaz porteur, la haute tension appliquée, la température de la source et enfin la distance entre la source et le détecteur. Dans ce chapitre, nous discutons aussi de deux possibilité d'étalonnage du détecteur, soit par comparaison avec un moniteur étalonné soit en y associant à un détecteur Germanium Hyper Pur (GeHP). Le but de cette dernière méthode était de calibrer le détecteur dans les conditions de gaz semblables à NEMO3.

Le dernier chapitre concerne l'utilisation du détecteur pour la détection du thoron. Tout d'abord, nous avons étudié la réponse du détecteur en fonction de différents paramètres expérimentaux. Et enfin, toujours en utilisant un détecteur GeHP, nous avons pu mesurer le facteur d'émanation du thoron à partir des sources de thorium et effectuer ainsi un étalonnage du détecteur.

Chapitre 1

Introduction générale sur le radon

1.1 – Historique du radon.

Dès l'année 1899, Pierre et Marie Curie observèrent un dépôt actif dû au radium qui persistait pendant près d'un mois en l'absence de source [1]. La découverte du radon n'arriva qu'un an après, grâce à Friedrich Ernst Dorn, un chercheur allemand, qui le baptisa *«émanation de radium »* (RaEm). D'autres expériences réalisées par Robert Owens en 1899 et par Ernest Rutherford en 1900 [2] sur les radiations d'oxydes de thorium révélèrent l'émission d'un autre gaz radioactif dont la radioactivité subsistait plusieurs minutes. Ce gaz fut nommé «émanation» et par la suite *« émanation de thorium »* (ThEm). En 1903, des émanations similaires provenant de l'actinium furent découvertes par André-Louis Debierne et appelées « émanation d'actinium » (AcEm) [3].

A partir de l'année 1920, ces trois émanations furent appelées « radon », « thoron » et « actinon », suivant leurs origines respectives : radium (^{226}Ra), thorium (^{232}Th) et actinium (^{227}Ac). En fait, ce sont les isotopes naturels d'un même radioélément : le radon ($_{86}$Rn). Ce dernier est le troisième élément radioactif naturel découvert après le radium et le polonium. En particulier, c'est le seul radioélément sous forme gazeuse à l'état naturel, ce qui lui permet de facilement diffuser dans l'environnement et d'être présent dans l'air. Il peut présenter un danger en cas de concentrations importantes dans des sites fermés et, pour les expériences souterraines telles que NEMO, il représente une source importante de bruit de fond.

1.2 – Propriétés des trois isotopes naturels du radon.

Le radon est un gaz rare, inerte, inodore, incolore et environ 7,5 fois plus lourd que l'air. Les températures de fusion (-71°C) et d'ébullition (-62°C) sont les plus élevées parmi tous les gaz rares [4].

La solubilité du radon dépend du fluide et de la température. En général, elle diminue en fonction de la température, et présente une valeur plus élevée dans les milieux organiques que dans l'eau. Le radon s'absorbe facilement sur certains solides comme le charbon actif, souvent utilisé comme piège afin de purifier en radon un volume de gaz.

L'élément $_{86}$Rn se compose de 33 isotopes différents (3 naturels et 30 artificiels), tous radioactifs, avec une gamme de masses atomiques allant de 195 à 228. Parmi ces radioisotopes, les trois plus importants sont ceux des familles radioactives naturelles, le ^{222}Rn (radon), le ^{220}Rn (thoron) et le ^{219}Rn (actinon) - voir figure 1.1.

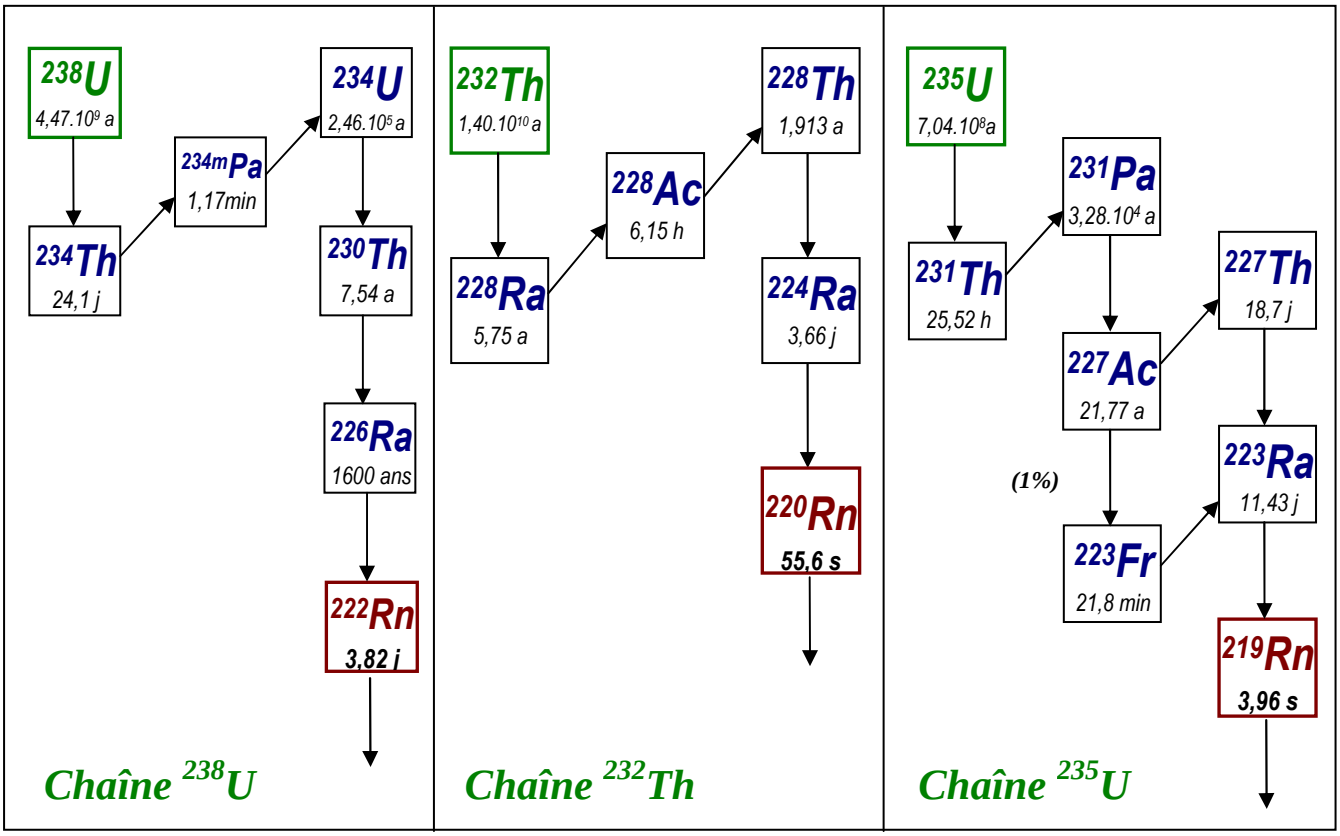


FIG. 1.1 - Familles radioactives naturelles. Le ^{222}Rn (radon) appartient à la chaîne de l' ^{238}U, le ^{220}Rn (thoron) appartient à la chaîne du ^{232}Th et le ^{219}Rn (actinon) appartient à la chaîne de l' ^{235}U.

Le radon (^{222}Rn), issu de l'^{238}U, est le plus abondant dans la nature, en raison de la teneur de l'^{238}U dans la croûte terrestre (30-40 mg/kg) et surtout de sa période relativement longue de 3,82 jours, ce qui lui permet de migrer facilement à l'air libre. Les niveaux de radioactivité en radon de l'air peuvent varier de quelques Bq/m^3 à plusieurs centaines ou même milliers de Bq/m^3 suivant le site géographique.

Le thoron (^{220}Rn) est issu du ^{232}Th dont la teneur dans les sols et les roches est plus élevée (3 à 4 fois) que celle de l' ^{238}U. Cependant, il est moins abondant que le radon à cause de sa période de décroissance assez courte, environ 56 s. Les valeurs typiques de l'activité du thoron dans un espace confiné ou à l'air libre varient de 0,1 Bq/m^3 à quelques Bq/m^3.

L'actinon (^{219}Rn) est le moins abondant dans la nature, dû à la faible teneur en ^{235}U de la croûte terrestre (~ 0,2 mg/kg) et à sa période très courte d'environ 4 s. Il est complètement négligeable dans le cadre de nos expériences.

Les trois isotopes du radon sont tous des émetteurs de particules alpha. Les périodes de décroissance et les énergies des particules alpha correspondantes sont présentées dans le tableau 1.1.

Nom usuel	Isotope	Désintégration		
		$T_{1/2}$	Mode et énergie	Energie de recul (keV)
Radon	^{222}Rn	3,82 j	α (5,5 MeV)	86
Thoron	^{220}Rn	55,6 s	α (6,3 MeV)	103
Actinon	^{219}Rn	3,96 s	α (6,8 MeV et 6,5 MeV)	103

TAB. 1.1- Propriétés nucléaires des isotopes du radon.

1.3 - Emanation du radon

Le processus d'émanation du radon dans l'atmosphère est relativement complexe et dépend de nombreux paramètres tels que la concentration en radium, l'énergie de recul du noyau, les processus d'ionisation et de neutralisation, la granulométrie et la porosité du milieu, l'humidité, la pression et la température ainsi que les mécanismes de sorption et de désorption [5,6,7]. Par conséquent, la concentration de radon dans l'atmosphère est extrêmement variable suivant les sites géographiques. La figure 1.2, ci-dessous, présente un schéma simple de l'émanation du radon d'un milieu poreux à l'atmosphère, qui comprend trois processus consécutifs : l'émanation microscopique, le transport dans le milieu poreux et la dispersion dans l'atmosphère [5].

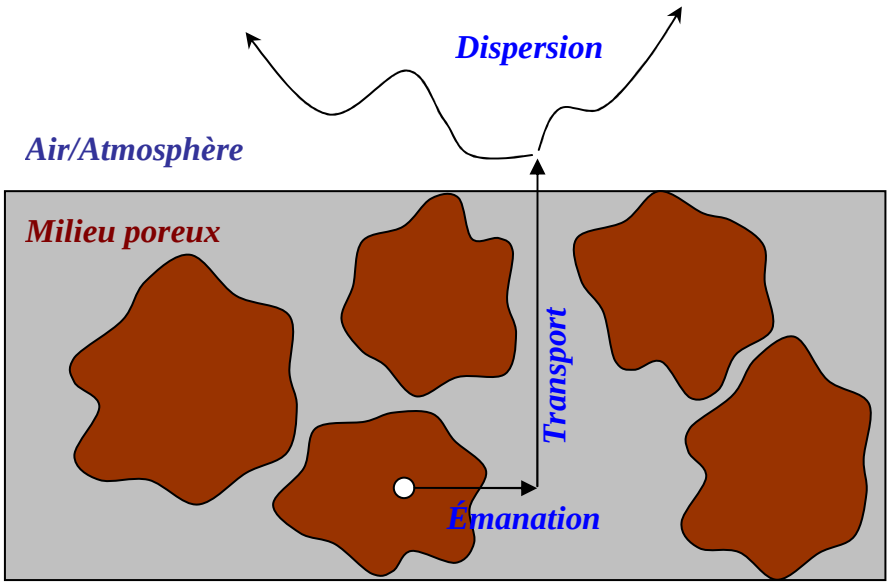


FIG. 1.2 – Représentation schématique de l'émanation du radon [5].

Pour donner des ordres de grandeur, le tableau 1.2 ci-dessous donne quelques valeurs du facteur d'émanation du ^{222}Rn pour quelques matériaux [4]. Le facteur d'émanation est défini comme le rapport du nombre de noyaux de radon émis au nombre de noyaux de radon formés après la désintégration du ^{226}Ra.

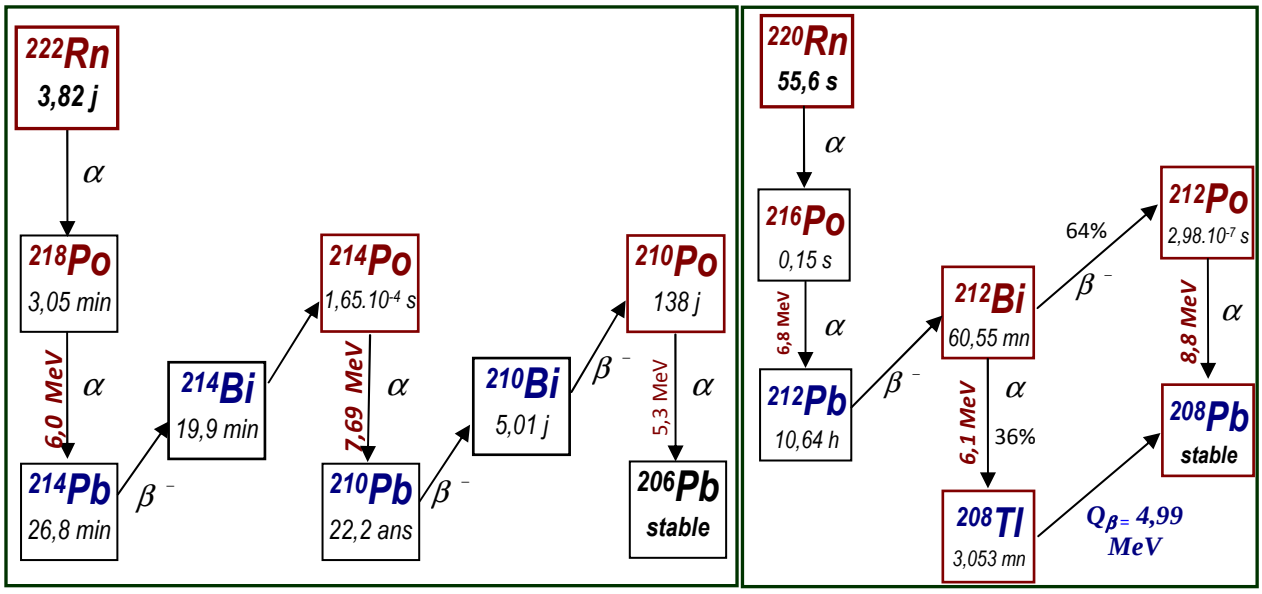
Matériaux	Facteur d'émanation du ^{222}Rn	
	Moyen	Gamme
Sols	0,1	0,01 – 0,5
Roches	0,08	< 0,01 – 0,4
Matériaux de construction	0,05	< 0,01 – 0,3
Briques d'argile	0,04	0,02 – 0,1
Béton	0,15	0,1 – 0,4

TAB. 1.2- Facteur d'émanation du ^{222}Rn dans différents matériaux.

Ces quelques exemples montrent que l'émanation du ^{222}Rn est d'environ 1 noyau pour 10 créés. Jusqu'à présent, nous n'avons pas trouvé de données équivalentes pour l'émanation de thoron. Compte tenu de sa période courte, ce facteur doit être faible mais non nul puisque nous l'avons observé dans l'air au cours de nos expériences.

1.4- Propriétés des descendants du radon et du thoron

Le radon et le thoron décroissent jusqu'aux isotopes stables de ^{206}Pb et ^{208}Pb par émissions successives de particules alpha ou bêta, en passant par les différents isotopes de polonium, bismuth et plomb suivant le schéma montré dans la figure 1.3.



(a) Chaîne du radon *(b) Chaîne du thoron*

FIG. 1.3- Chaînes radioactives du radon et du thoron. En rouge : les émetteurs alpha et l'énergie des particules alpha émises. En bleu : les émetteurs bêta.

Au cours de cette cascade, les isotopes se retrouvent dans des états ionisés généralement positifs mais le degré d'ionisation est variable suivant la nature du gaz porteur, s'il est filtré ou non et suivant son taux d'humidité, sa pression, sa température, etc.

Le tableau 1.3 présente les résultats de quelques expériences réalisées sur le radon [8]. Nous pouvons observer, par exemple dans l'air ambiant, qu'au moment de sa formation, le descendant ^{218}Po est chargé positivement dans environ 80% à 90 % des cas. Il semble que ce pourcentage soit quasiment indépendant de l'humidité. Si le temps de résidence augmente, le processus de neutralisation intervient : au bout de 2 minutes, les fractions chargées et neutres sont voisines et, au bout de 5 minutes, tous les ions ^{218}Po sont neutralisés. Ces temps de neutralisation sont, quant à eux, très dépendants du taux d'humidité du gaz porteur.

Le tableau 1.4 présente les résultats pour les descendants du thoron [8]. Comme dans le cas du radon, au moment de leur formation, les descendants sont chargés positivement à plus de 85 %, et leur neutralisation apparaît au bout de quelques secondes.

Références	Isotope	Gaz porteur	Temps de résidence (s)	Humidité relative (%)	**Charge (%)**		
					+	**-**	**0**
Wellisch (1913)	Descendants du ^{222}Rn	air	-	air sec	**88**		**12**
Renoux (1965)	^{218}Po	air filtré	180	air ambiant	**81,5**		**18,5**
Raabe (1968)	^{218}Po	air	330	13 & 33	**Neutre**		
Porstendörfer (1979)	^{218}Po	air	au moment de la formation	≥ 95	**88**		**12**
Dua (1981)	Descendants du ^{222}Rn	air	0,046	16 -19	**90,8**	**3,9**	**5,3**
Dankelman et al (2001)	^{218}Po	air filtré	120	50	**49**		**51**
Porstendörfer (2005)	^{218}Po (fraction libre) ^{214}Pb (fraction libre)	air ambiant	-	30 – 95	**48** **45**		**52** **55**

TAB. 1.3 – Résultats de différentes expériences sur la charge électrique des descendants du radon [8].

Références	Isotope	Gaz porteur	Temps de résidence (s)	Humidité relative	**Charge (%)**		
					+	**-**	**0**
Madelaine (1966)	^{212}Pb	-	0 – 3300	-	**Neutre**		
Fontan (1969)	^{212}Pb	air filtré à 99,995%	- 30 – 815	-	**Chargé** **Neutre**		
Porstendörfer (1979)	^{212}Pb	air	au moment de la formation	30 – 90	**85-88**		**12-15**
Dua (1981)	Descendants du ^{220}Rn	air	0,046	16-19	**99,17**	**0,48**	**0,35**

TAB. 1.4 – Résultats de différentes expériences sur la charge électrique des descendants du thoron [8].

La neutralisation des ions se produit essentiellement suivant les trois processus suivants [8] :

- la recombinaison avec des ions négatifs du milieu,

- le transfert des charges avec des molécules neutres de plus bas potentiel d'ionisation,

- la capture électronique des radicaux OH^- formés par la radiolyse.

Le rendement de neutralisation est fortement dépendant des conditions ambiantes, telles que la nature et la pureté du gaz porteur et, particulièrement, le taux d'humidité qui conduit à la formation d'ions OH^-.

1.5 - Techniques de détection du radon

Les techniques de détection du radon se sont développées au cours du temps principalement pour les contrôles dans l'environnement avec des sensibilités au-dessus de quelques dizaines de Bq/m^3 dans l'air. Avec l'avènement des expériences de physique souterraines, l'amélioration des sensibilités au niveau du mBq/m^3, voire en dessous est rapidement devenue indispensable.

Il existe toute une série de techniques pour détecter le radon dans l'environnement. Une des plus anciennes est basée sur la scintillation du sulfure de zinc (ZnS) (fioles de Lucas) [9].

Actuellement, on utilise couramment les détecteurs de traces nucléaires qui sont basés sur l'utilisation de films photographiques ou de polymères très sensibles aux particules alpha [10,11]. Les impacts de ces particules alpha sur les films minces créent des dommages qui sont par la suite révélés par traitement chimique et comptés par microscopie optique. Des exemples de traces d'impact révélées sur un film Kodak et sur une feuille de polycarbonate sont montrés sur la figure 1.4 [5].

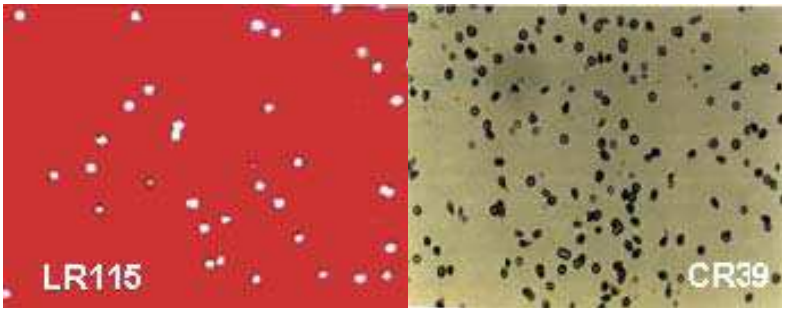


FIG. 1.4 – Exemple des traces d'impact sur un film Kodak (LR115, à gauche) et une feuille de polycarbonate (CR39, à droite).

Une autre technique consiste à utiliser une chambre d'ionisation. Le gaz porteur du radon circule dans un volume de détection à pression et température connues. L'émission des particules alpha crée une ionisation de charges et les électrons produits sont collectés par un champ électrique sur une électrode. Cette technique permet un contrôle continu du niveau de radon dans un gaz comme l'air [12].

Une technique plus récente consiste à faire passer le gaz porteur dans un volume de scintillateur liquide. La solubilité du radon dans les scintillateurs liquides est relativement grande. On détecte alors la décroissance du radon par l'effet appelé « BiPo », c'est-à-dire par la coïncidence retardée entre la particule bêta émise par le bismuth (Bi) et la particule alpha émise par le polonium (Po). Dans le cas du radon, la particule alpha est retardée de 165 μs tandis que dans le cas du thoron, la particule alpha est retardée de 0,3 μs. La détection par cette coïncidence retardée permet de diminuer considérablement le bruit de fond et d'obtenir des sensibilités de l'ordre du Bq/m^3 [13].

Une autre technique efficace pour la détection du radon est basée sur la collection électrostatique des descendants ionisés, suivie d'une spectrométrie alpha à l'aide d'un semi-conducteur en silicium [14]. C'est cette méthode de détection qui a été utilisée dans le cadre de ce travail car elle permet d'obtenir une sensibilité en radon de l'ordre du mBq/m^3 de gaz et de différencier le radon du thoron. Cette technique sera largement détaillée dans le chapitre 3.

En ce qui concerne le radon de période « longue » de 3,82 jours, il existe une littérature très intense sur les techniques de détection et son comportement dans les milieux solides ou gazeux. Ceci est une conséquence de son abondance importante dans l'environnement et le rôle qu'il joue en radioprotection. Par contre, le nombre d'études sur le thoron, de période « courte » de 55,6 secondes, est très limité, du fait de sa faible abondance dans la nature. Cependant, dans les expériences souterraines, il joue un rôle important au niveau du bruit de fond par la valeur élevée $Q_\beta \sim 5$ MeV de son descendant le ^{208}Tl.

1.6 – Capture du radon par le charbon actif

Le charbon présente une grande capacité d'adsorption du radon grâce à sa structure poreuse qui amène à une grande surface interne. Dans le but de favoriser l'adsorption du radon, le charbon est souvent « activé » à 400-600 °C par présence d'acide phosphorique ou de chlorure de zinc, ce qui permet d'élargir le diamètre des pores dans sa structure. En général, un charbon actif présente un volume poreux interne de 0,5 à 1 cm^3/g (50-70% de volume correspondant) et une surface spécifique de 500 à 1500 m^2/g, suivant sa qualité.

Les caractéristiques d'adsorption du charbon actif sont dépendantes des paramètres environnementaux comme l'humidité, la température et notamment la pollution dans l'air ambiant.

Notons qu'il existe des techniques de détection basées sur la capture du radon par le charbon actif. Après piégeage, le gaz radon est « désorbé » et dissous dans un scintillateur liquide [15]. Il est aussi possible de détecter les descendants du radon par une simple spectrométrie gamma [16]. Notons que dans ce cas, le contrôle de la pureté en radium du charbon actif est nécessaire.

Chapitre 2

Radon et thoron dans l'expérience NEMO

2.1 – Présentation de l'expérience NEMO

L'expérience NEMO est actuellement en cours de prise de données au Laboratoire Souterrain de Modane (LSM), situé au milieu du tunnel routier du Fréjus, à environ 1700 m sous le sommet du Fréjus, montagne à la frontière entre la France et l'Italie. Elle a débuté en 1989 par une collaboration internationale entre 5 pays (France, Russie, Ukraine, Japon et Tchéquie) avec comme objectif principal l'étude de la nature et des caractéristiques du neutrino à travers la recherche d'un événement extrêmement rare : la désintégration double bêta sans émission de neutrino (2β0ν). Remarquons que le neutrino est la particule connue la plus abondante dans l'Univers.

La décroissance 2β0ν est un processus interdit dans le cadre du Modèle Standard par la loi de conservation du nombre leptonique. Elle ne peut se produire que dans l'hypothèse d'un neutrino de type Majorana (et non de Dirac) pour lequel le neutrino est identique à son antiparticule. Ce processus, s'il existe, conduit à une information complémentaire sur la masse absolue du neutrino. En effet, la période du processus 2β0ν est liée à la masse effective du neutrino suivant la formule théorique :

$$(T_{1/2}^{0\nu})^{-1} = \left|\langle m_\nu \rangle\right|^2 \times \left|M_{0\nu}\right|^2 \times G^{0\nu}(Z, Q_{\beta\beta}) \qquad [2.1]$$

où $\langle m_\nu \rangle$ est la masse effective du neutrino,

$|M_{0\nu}|$ l'élément de matrice nucléaire,

$G^{0\nu}$ le facteur d'espace de phase,

et $T_{1/2}^{0\nu}$ la période du processus 2β0ν.

Du point de vue expérimental, la période de décroissance du processus interdit 2β0ν est donnée par la formule ci-dessous :

$$T_{1/2}^{0\nu} = \frac{ln2 \times N_A}{A} \frac{M \times t \times \varepsilon}{N_s} \qquad [2.2]$$

où N_A est le nombre d'Avogadro,

M la masse du noyau émetteur,

A la masse atomique du noyau émetteur,

t le temps d'exposition,

N_s le nombre d'événements observés du processus 2β0ν,

et ε l'efficacité de détection du processus.

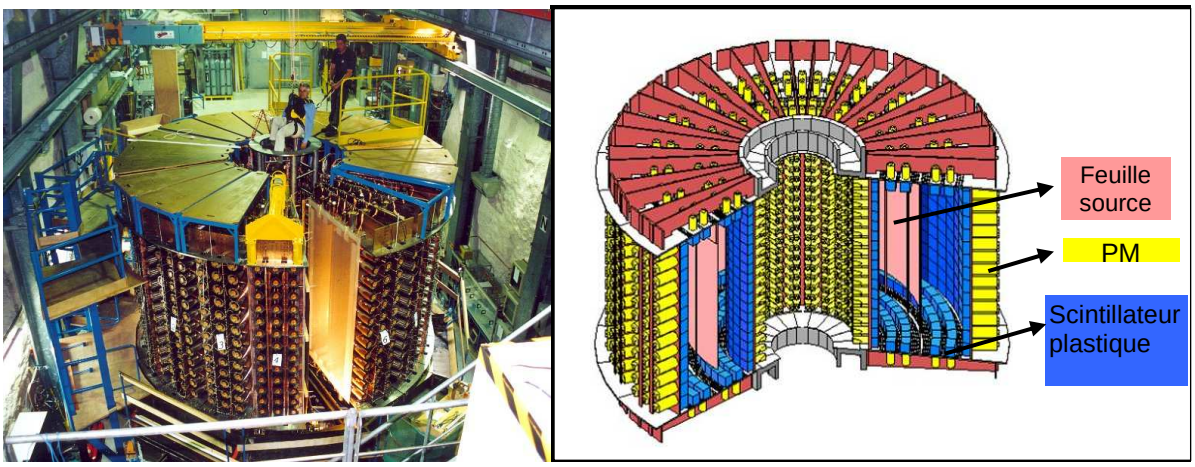
La sensibilité sur la période de décroissance 2β0ν de l'expérience NEMO3 se situe autour de 10^{24} ans, correspondant à une valeur de masse effective du neutrino d'environ 1 eV. Avec cette période, le nombre d'événements attendus est très faible, de l'ordre de quelques événements par an, ce qui implique une étude très détaillée de toutes les composantes du bruit de fond (radioactivité des matériaux, rayonnements cosmiques, radon et thoron, neutrons, etc).

Rappelons qu'il existe également un processus de double bêta permis dans le Modèle Standard, noté 2β2ν, pour lequel l'émission simultanée de deux électrons est accompagnée de deux neutrinos. Suivant les isotopes étudiés, les périodes de ce processus peuvent varier de $T_{1/2} \sim 10^{18}$ à $\sim 10^{21}$ ans. Ce processus permis est un bruit de fond pour la recherche de la désintégration 2β0ν, mais la mesure de sa période permet de tester les modèles nucléaires nécessaires pour calculer les éléments de matrice nucléaire $M_{2\nu}^2$. Il impose en outre des contraintes très fortes sur la résolution en énergie du détecteur.

Le principe du détecteur NEMO3 repose sur la reconstruction des trajectoires (tracking) et la mesure des énergies des deux électrons émis à partir de sources minces émettrices double bêta. Le tracking est obtenu avec une chambre à fils en régime Geiger tandis que les énergies sont mesurées à l'aide d'un ensemble de scintillateurs couplés à des photomultiplicateurs. Les contraintes de bruit de fond imposent de mesurer le temps de vol des électrons et d'appliquer un champ magnétique pour discriminer les électrons des positrons.

2.2 – Description du détecteur NEMO3

Le détecteur NEMO3 se présente sous une forme cylindrique d'environ 3 m de hauteur et 4 m de diamètre. Il est constitué de 20 secteurs identiques placés l'un à côté de l'autre comme dans un camembert (voir figure 2.1a).



(a) (b)

FIG. 2.1 – Détecteur NEMO3

(a) Vue avant l'installation du dernier secteur.

(b) Schéma du détecteur montrant la position des feuilles sources (en rose), des scintillateurs plastiques (en bleu) et des photomultiplicateurs (PM) (en jaune). L'espace entre les feuilles sources et les scintillateurs est composé des cellules Geiger. Il y a 309 cellules et 97 blocs de scintillation par secteur.

Dans ce type d'expérience, le bruit de fond est essentiellement déterminé par le niveau de radioactivité des matériaux, notamment par les deux émetteurs bêta naturels, le ^{214}Bi et le ^{208}Tl qui ont des valeurs Q_β élevées, respectivement de 3,27 MeV et de 4,99 MeV. De plus, ils émettent également des rayonnements gamma d'énergies élevées pouvant aller jusqu'à 3 MeV mais avec des intensités très variables. Notons que le rayonnement gamma de plus grande intensité et de plus grande énergie dans la nature est celui de 2,61 MeV provenant de la décroissance du ^{208}Tl. Compte tenu de ces considérations, les candidats émetteurs double bêta doivent être choisis avec des valeurs $Q_{\beta\beta}$ les plus grandes possibles, et évidemment avec les abondances isotopiques les plus élevées. Le tableau 2.1 liste les différents isotopes introduits dans NEMO3 avec leur valeur $Q_{\beta\beta}$ et leur abondance naturelle ainsi que celle après enrichissement isotopique [17,18].

Isotopes	*$Q_{\beta\beta}$ (keV)*	*Abondance isotopique naturelle (%)*	*Abondance isotopique dans NEMO3 (%)*
^{130}Te	2533 ± 4	34	89,4
^{116}Cd	2802 ± 4	7	87,2
^{82}Se	2995 ± 6	9	**97,0**
^{100}Mo	3034 ± 6	10	**95,1 - 98,9**
^{96}Zr	3350 ± 3	3	57,3
^{150}Nd	3367 ± 2	6	91,0
^{48}Ca	4271 ± 4	0,187	73,0

TAB. 2.1 – Caractéristiques des isotopes sources utilisés dans NEMO3 [17,18].

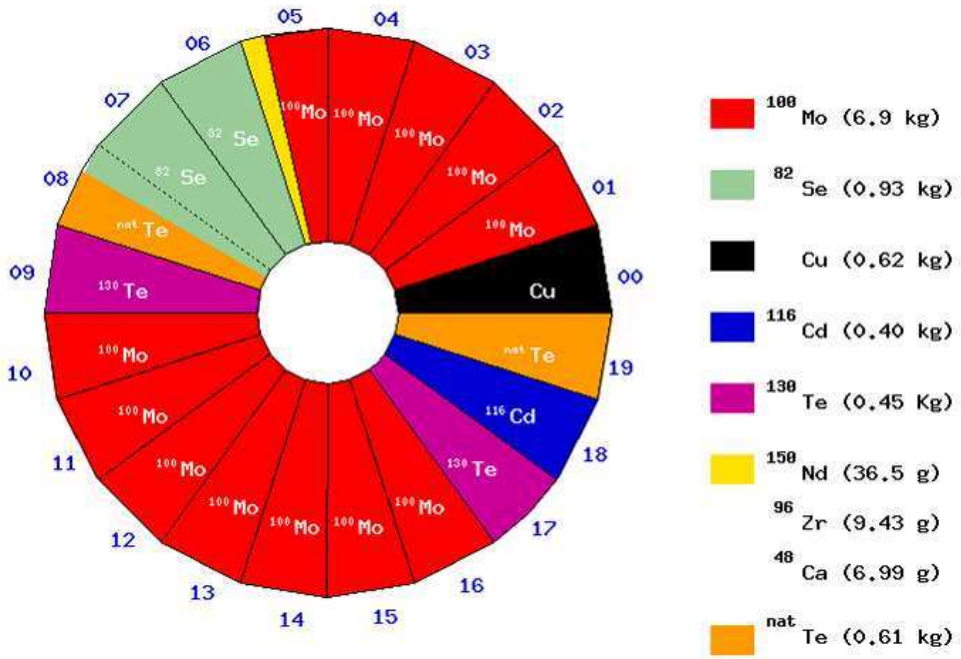


FIG. 2.2 – Répartition des sources dans les 20 secteurs du détecteur NEMO3 [18].

La répartition des sources dans les secteurs est donnée sur la figure 2.2. La majorité des secteurs comprend le ^{100}Mo (6,9 kg) et le ^{82}Se (0,93 kg). Le secteur 00 est constitué d'une feuille de cuivre de très grande radiopureté pour la mesure du bruit de fond. On notera qu'une faible portion du secteur 05 est composée de quelques grammes ou dizaines de grammes de ^{150}Nd, ^{96}Zr et ^{48}Ca dont les valeurs de $Q_{\beta\beta}$ sont les plus élevées. L'objectif pour ces trois derniers isotopes est de mettre une contrainte sur la période de la $2\beta0\nu$ et aussi de mesurer la période du processus permis $2\beta2\nu$.

Comme compromis entre la résolution en énergie et le nombre d'événements attendu, l'épaisseur des feuilles a été choisie entre 50-60 mg/cm^2.

La chambre à fils est un ensemble de 6180 cellules à dérive. Chaque cellule est formée de 8 fils de masse et d'un fil central anodique, comme représenté figure 2.3.

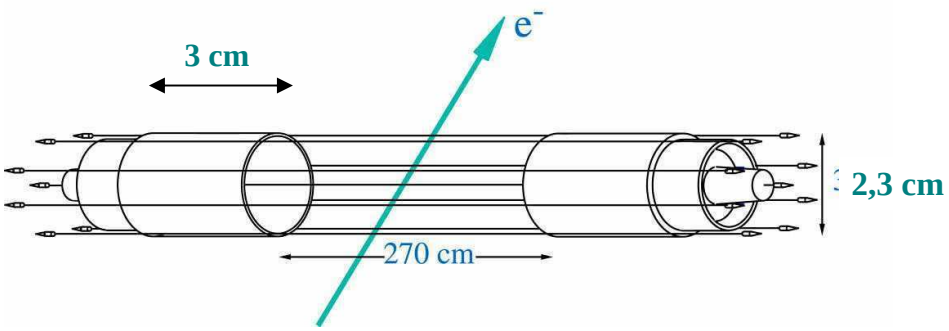


FIG. 2.3 – Cellule Geiger montrant les fils de masse, le fil central anodique et les deux cathodes à l'extrémité de chaque cellule.

Tous les fils sont en acier inoxydable de 50 µm de diamètre et de 2,7 m de longueur, les tubes cathodiques font 3 cm de longueur et 2,3 cm de diamètre. Une tension de 1800 V est appliquée entre l'anode et les deux cathodes. L'ensemble de ces cellules baigne dans un mélange de gaz composé de 94,4 % d'hélium, 4,3 % d'alcool, 1,3 % d'argon et 0,1 % d'eau sous une pression légèrement supérieure à celle du laboratoire. Cette composition de gaz a été optimisée pour favoriser la propagation du plasma et la stabilité du fonctionnement des cellules [18,19].

En traversant une cellule, toute particule chargée crée un plasma électrons-ions qui migre vers les cathodes. En mesurant, pour toutes les cellules touchées, les hauteurs d'impulsion et les temps de dérive on peut remonter ainsi aux trajectoires des particules.

Le calorimètre se compose de 1940 compteurs formés de blocs scintillateurs plastiques couplés à des photomultiplicateurs bas bruit de fond radioactif (de 3 pouces et de 5 pouces fabriqués par Hamamatsu). Les scintillateurs plastiques ont été choisis pour minimiser la rétrodiffusion et pour leur radiopureté. La résolution en énergie des PM 5” et des PM 3” est respectivement de 6,1 % et de 7,3 % (σ_E/E à 1 MeV). La résolution en temps entre PM est d’environ 250 ps *(σ à 1 MeV)*, ce qui est largement suffisant pour séparer, par mesure du temps de vol, les traces de deux électrons issues de la source (différence des temps de vol $\Delta t \sim 0$ ns) de celles des électrons traversant toute la chambre ($\Delta t \sim 5$ ns) [18].

Pour se protéger de la radioactivité naturelle ambiante, le détecteur est placé dans un blindage de 18 cm de fer contre les rayonnements gamma et d’un blindage d’eau borée (35 cm) ou de bois (28 cm) contre les neutrons (voir figure 2.4).

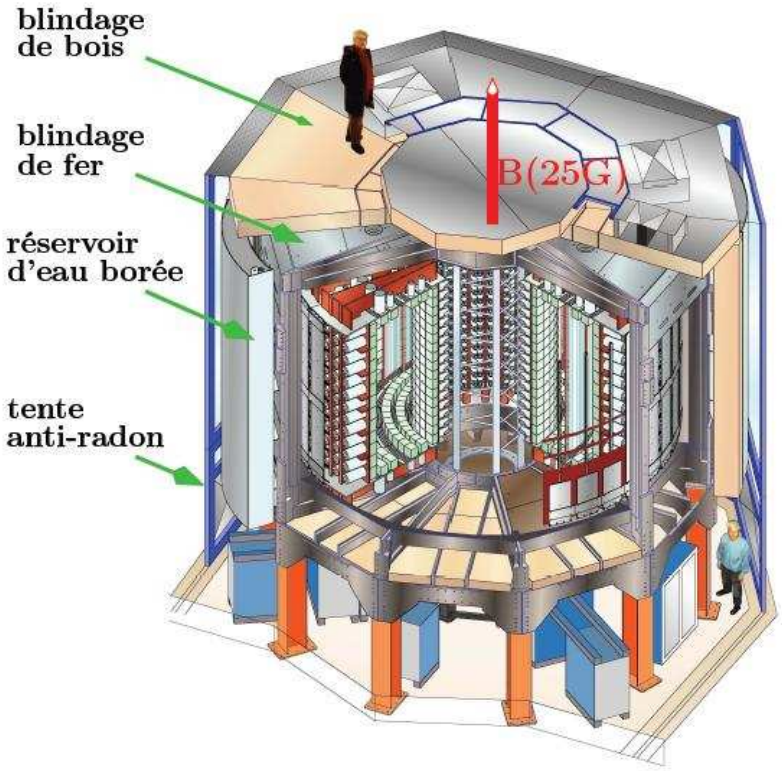
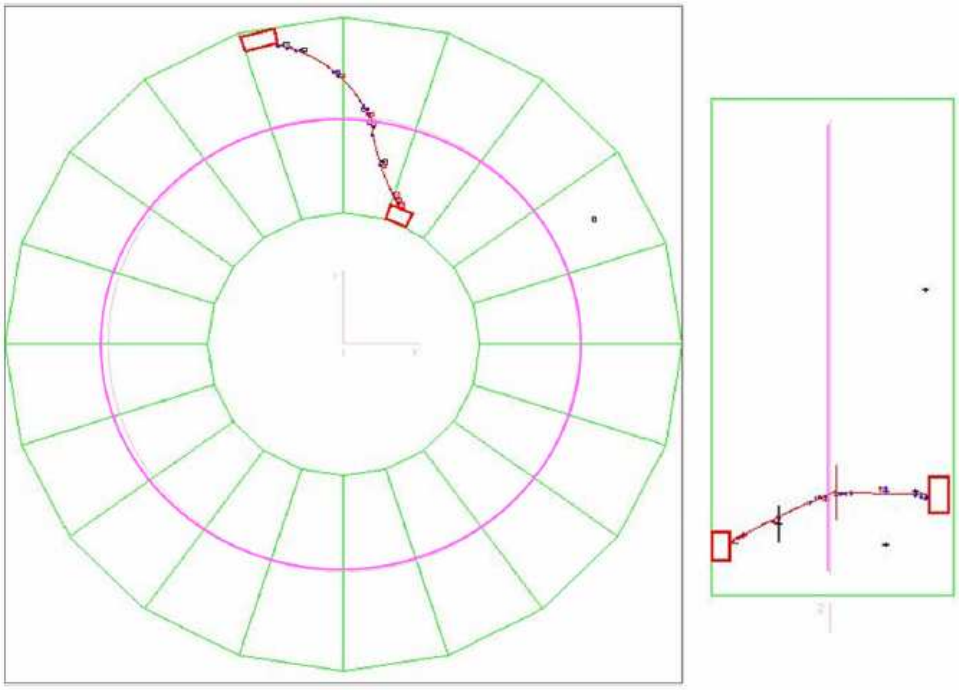


FIG. 2.4 – Les blindages du détecteur NEMO3. De l’intérieur vers l’extérieur : le blindage de fer, d’eau borée, de bois et la tente anti-radon.

De plus, une tente anti-radon étanche, en aluminium ou en film plastique, a été installée autour du blindage pour séparer le détecteur de l’air ambiant du laboratoire. L'origine et le fonctionnement de cette tente seront expliqués en détail dans la partie 2.5.1.

2.3 – Résultats préliminaires

A titre d'exemple, la figure 2.5 présente un événement à deux électrons issus de la feuille source située dans le secteur 04, c'est-à-dire d'une feuille métallique de ^{100}Mo [19]. Les trajectoires des deux particules sont légèrement courbées sous l'effet du champ magnétique de 25 Gauss, ce qui est compatible avec l'émission de deux électrons. Pour cet événement, la différence de temps de vol entre les deux électrons (Δt) est de 0,2 ns et l'énergie déposée est de 2,088 MeV, ce qui en fait un événement compatible avec une désintégration double bêta permise.



Vue de dessus du détecteur

Vue latérale

FIG. 2.5 – Vue de dessus et vue de côté du détecteur lors d'un événement à deux électrons. Les deux blocs de scintillateurs touchés sont représentés par les rectangles rouges, le trajet des particules est la courbe rouge passant par les cellules Geiger touchées, représentées par des cercles bleus.

La figure 2.6 montre un événement à deux traces quasi rectilignes. La différence de temps de vol est de 4,7 ns, l'énergie déposée dans les deux scintillateurs est de 5,638 MeV. Cet événement possède toutes les caractéristiques d'un électron traversant la chambre à fils. Il est rejeté par simple critère sur le temps de vol.

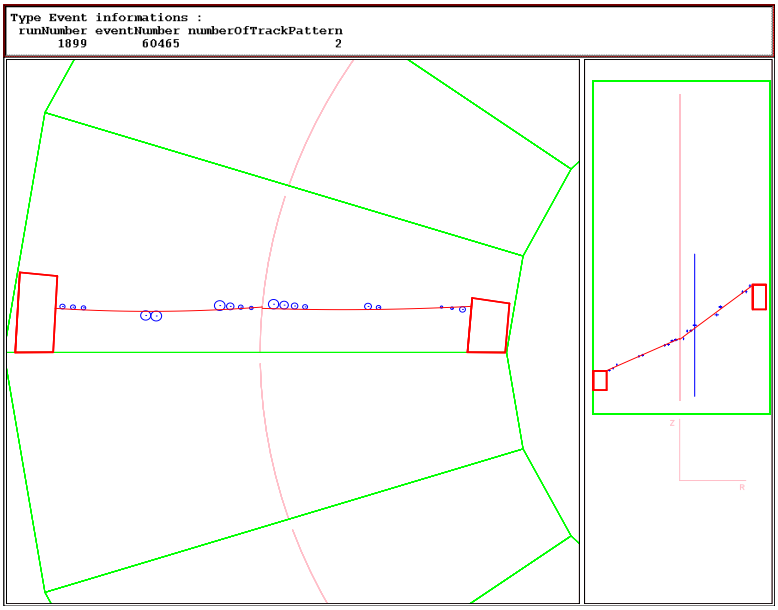


FIG. 2.6 – Représentation d'un événement d'un électron traversant la chambre à fils.

L'association d'une chambre à fils et d'un calorimètre permet d'analyser toute une série d'événements tels que l'émission d'électrons (e^-), l'émission d'un électron accompagné par un rayonnement gamma ($e^-\gamma$), par deux rayonnements gamma ($e^-\gamma\gamma$), par une particule alpha retardé ($e^-\alpha_{retardé}$) ou l'émission de deux rayonnements gamma ($\gamma\gamma$), etc. De ces analyses, on en déduit les activités des principales sources du bruit de fond telles que le niveau de radioactivité des feuilles sources, les contaminations en radon/thoron, l'effet des neutrons résiduels, etc [20,21]

La figure 2.7 présente les résultats préliminaires obtenus pour les deux sources les plus abondantes dans NEMO3, c'est-à-dire le ^{100}Mo et le ^{82}Se, pour 4,5 ans de prise de données [22]. L'abscisse correspond à la somme en énergie des deux électrons émis et l'ordonnée donne le nombre d'événements observés. La figure ne présente que les événements d'énergie supérieure à 2 MeV. Tous ces événements sont à deux électrons purs (sans rayonnement gamma détecté) avec un vertex sur la feuille source et une différence de temps de vol $\Delta t \sim 0$ ns. La majeure partie des événements (en bleu) correspond au processus 2β permis. Les événements détectés ont conduit aux durées de vie moyenne suivantes :

$2\beta2\nu$ ^{100}Mo, $T_{1/2} = [7{,}17 \pm 0{,}01\ (stat) \pm 0{,}54\ (sys)] \times 10^{18}$ ans,

$2\beta2\nu$ ^{82}Se, $T_{1/2} = [9{,}6 \pm 0{,}1\ (stat) \pm 1{,}0\ (sys)] \times 10^{19}$ ans.

De la même façon, les niveaux de radon et les contaminations de radioactivité naturelle des sources sont évalués à partir des analyses des données de NEMO3. Ces valeurs sont alors comparées aux mesures effectuées par le détecteur de radon ou par spectrométrie gamma.

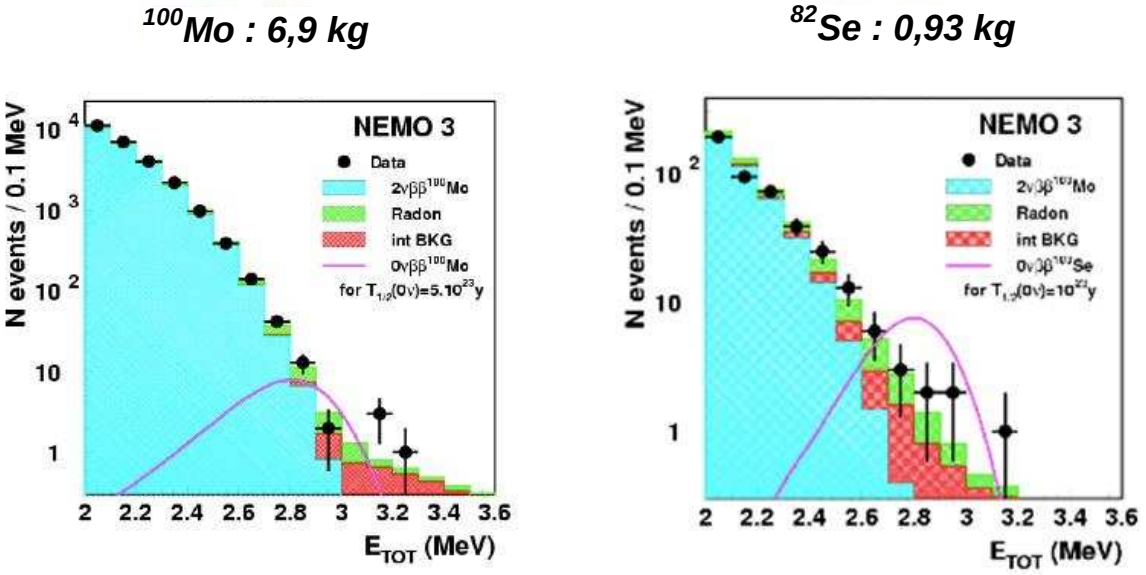


FIG. 2.7 – Résultats de l'expérience NEMO3 après 4,5 années de mesure pour les deux sources ^{100}Mo et ^{82}Se. Les données expérimentales sont les points noirs, la contribution $2\beta2\nu$ est en bleu, la contribution radon en vert et le bruit de fond de radioactivité interne en rouge. La courbe en violet montre le spectre simulé $2\beta0\nu$ pour une période de 5.10^{23} ans dans le cas du ^{100}Mo et de 10^{23} ans dans le cas du ^{82}Se [22].

A partir de ces valeurs, une simulation Monte-Carlo permet de calculer la contribution des différentes composantes du bruit de fond pour le processus 2β0ν, comme présenté dans la figure 2.7.

Pour le ^{100}Mo, le nombre d'événements détectés en 4,5 années est de 18 dans l'intervalle en énergie [2,8-3,2] MeV. La somme des composantes de bruit de fond, calculée par simulation, nous a donné (16 ± 1,4) événements. De la même façon, pour le ^{82}Se, on observe dans la fenêtre en énergie [2,6-3,2] MeV 14 événements pour un bruit de fond calculé de (10,9 ± 1,3) événements. Les limites sur les périodes des processus 2β0ν et les contraintes sur la masse effective du neutrino pour ces deux noyaux sont alors [22] :

$T_{1/2}^{0\nu} > 1{,}0\times10^{24}\,ans$ et $<m_\nu> < (0{,}47 – 0{,}96)$ eV pour l'isotope ^{100}Mo,

$T_{1/2}^{0\nu} > 3{,}2\times10^{23}\,ans$ et $<m_\nu> < (0{,}94 – 2{,}5)$ eV pour l'isotope ^{82}Se.

La figure 2.7 montre que le radon est une composante importante du bruit de fond, surtout pour les événements d'énergies proches des valeurs de $Q_{\beta\beta}$. Pour le thoron, l'analyse avec les différents canaux a montré qu'il est également présent dans le détecteur NEMO3 mais qu'il joue un rôle négligeable [23].

2.4 – Effet du radon et du thoron dans NEMO3

2.4.1 - Radon et ^{214}Bi

Comme nous l'avons déjà souligné, le ^{222}Rn alimente le noyau ^{214}Bi, une des composantes les plus importantes du bruit de fond de NEMO3. Ce noyau possède une valeur Q_β de 3,27 MeV. Son schéma de décroissance est très complexe, la figure 2.8 ci-dessous ne donne qu'un schéma partiel avec les embranchements bêta supérieurs à 1%.

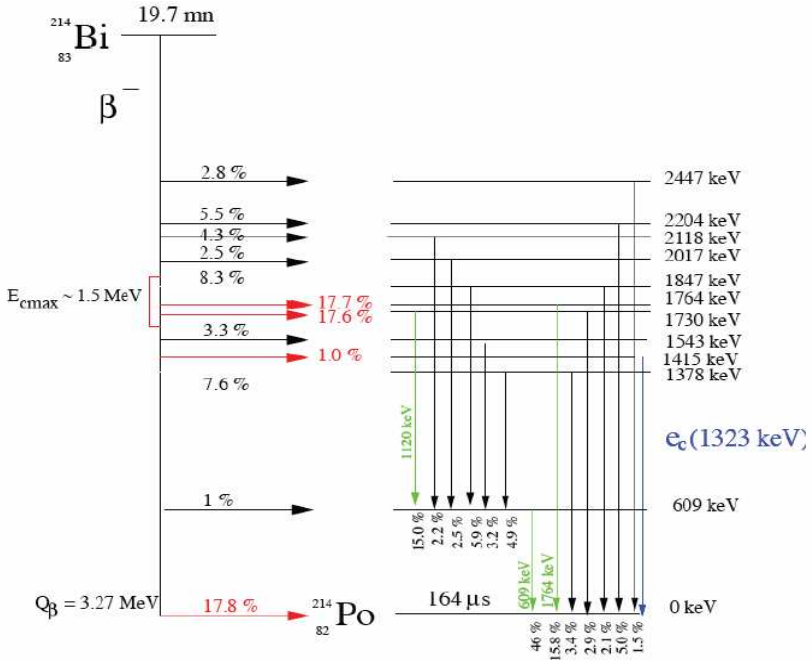


FIG. 2.8 – Schéma partiel de la décroissance du ^{214}Bi.

On notera un embranchement assez important de 17,8 % vers l'état fondamental du ^{214}Po. L'électron émis peut donner par diffusion Möller un événement à deux traces comme présentée la figure 2.9.a. De plus, environ 35 % des désintégrations donnent un électron de $Q_{\beta max}$ ~ 1,5 MeV suivi d'un rayonnement gamma de 1,7 MeV. On peut donc obtenir un événement à deux traces si le rayonnement gamma interagit par effet Compton (figure 2.9.c) ou si un électron de conversion est émis (figure 2.9.b).

Enfin, dans la décroissance bêta du ^{214}Bi, il existe une transition vers l'état excité (0^+) de 1,415 MeV du ^{214}Po. Bien que son embranchement soit faible (1%), cette décroissance donne lieu à un électron d'énergie $Q_{\beta max}$ = 1,857 MeV suivi d'un électron de conversion de 1,323 MeV. L'énergie totale des deux électrons émis peut ainsi atteindre une valeur voisine de 3 MeV.

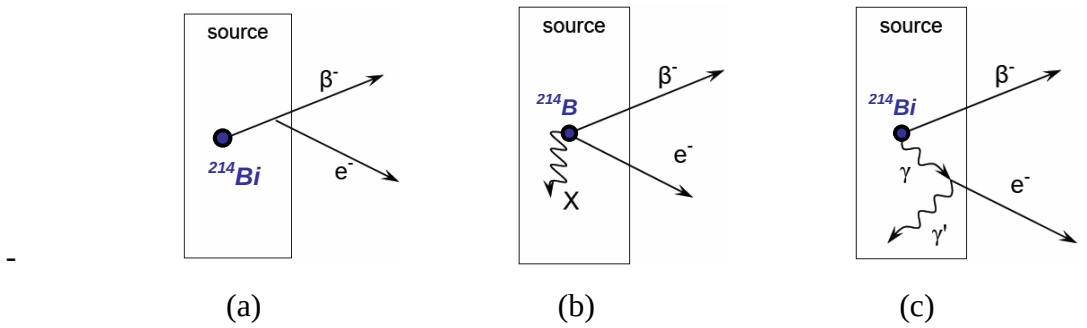


FIG. 2.9 – a) Diffusion Möller d'un bêta émis par le ^{214}Bi. b) Emission bêta suivie d'un électron de conversion. c) Emission bêta, gamma, suivie d'une diffusion Compton.

2.4.2 - Thoron et ^{208}Tl

Dans le cas du thoron (^{220}Rn), le descendant pouvant produire des événements à deux traces est le ^{208}Tl de Q_β = 4,99 MeV. La figure 2.10 ci-dessous présente le schéma partiel de décroissance du ^{208}Tl vers le ^{208}Pb.

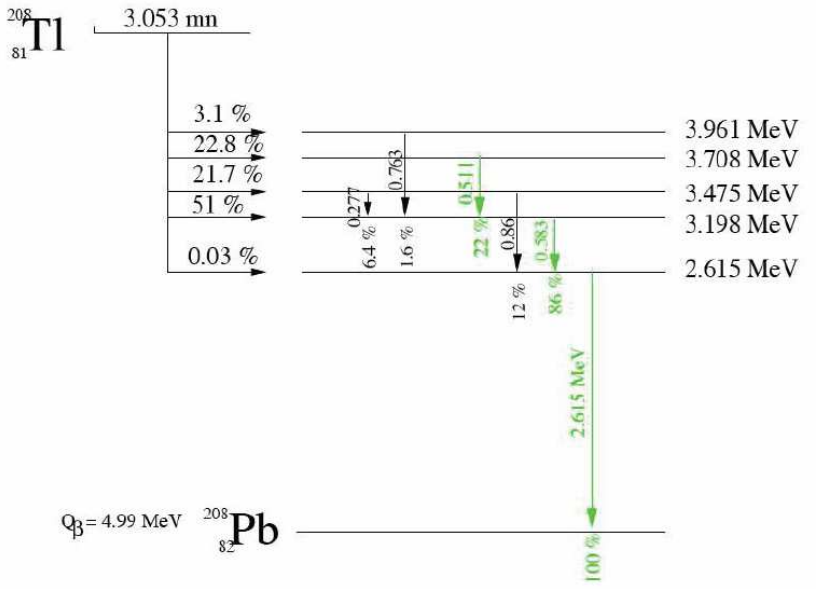


FIG. 2.10- Schéma de décroissance du ^{208}Tl.

On notera tout d'abord qu'il n'y a pas de transition de l'état fondamental vers l'état fondamental. Ensuite, la transition bêta vers le premier état excité (3^-) d'énergie de 2,615 MeV est d'intensité très faible. Toutes les autres transitions émettent un électron de Q_β entre 1 MeV et 1,8 MeV suivi d'une cascade des rayonnements gamma de multiplicité ≥ 2 comprenant toujours le rayonnement gamma de 2,615 MeV. Le ^{208}Tl peut conduire à un événement à deux traces compatible avec un événement 2β0ν si le rayonnement gamma de 2,615 MeV est converti (dans 0,2 % des cas) et si le ou les rayonnements gamma associés (583 keV, 860 keV…) ne sont pas détectés.

2.5 – Origine du radon dans NEMO3

2.5.1 - Origine externe

Après son installation au LSM, le détecteur NEMO3 a commencé à prendre des données en février 2003. Très rapidement, les premières analyses ont montré un taux d'événements à deux électrons vers 3 MeV anormalement élevé, ce qui ne pouvait s'expliquer que par la présence éventuelle de radon au sein du détecteur. Pour vérifier cette hypothèse, le niveau de radon dans le gaz de NEMO3 a été mesuré en plaçant un détecteur de radon (voir chapitre 3) en série avec NEMO3.

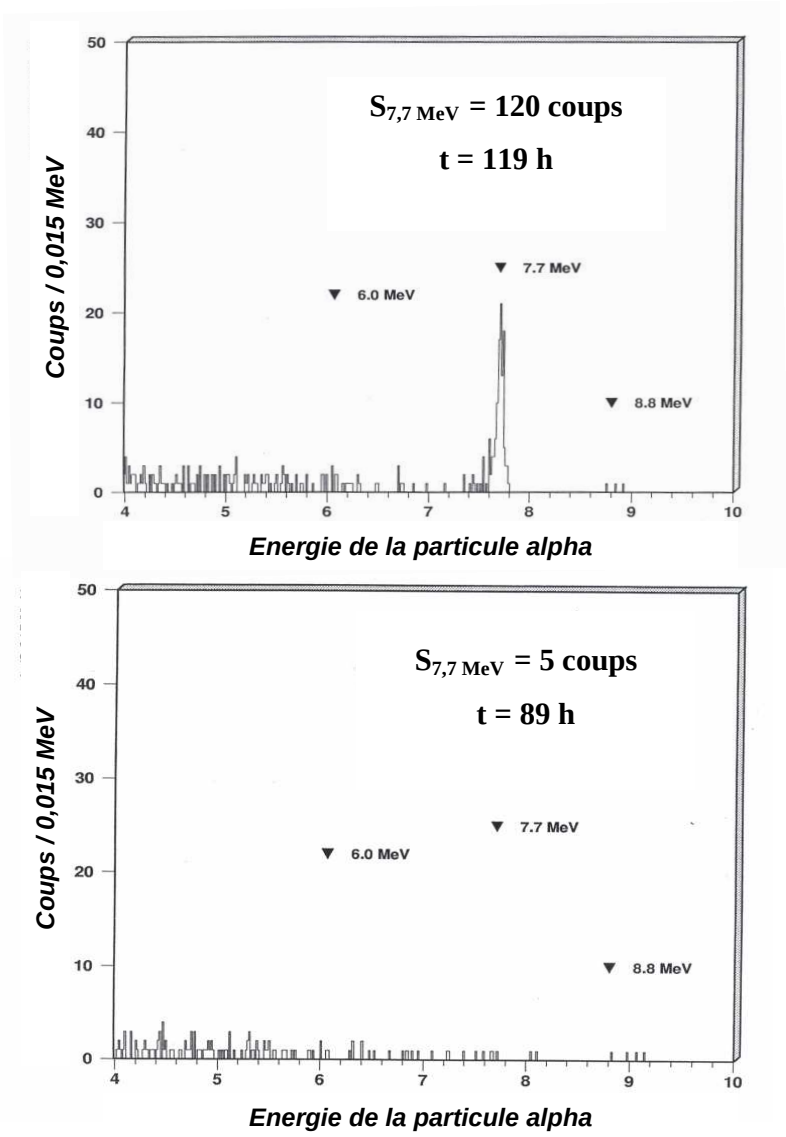


FIG. 2.11 – Spectres en énergie des particules alpha obtenu par le détecteur de radon pour des mesures du gaz à la sortie (en haut) et à l'entrée (en bas) du NEMO3. Le pic de 7,7 MeV correspond à la particule alpha émise par le descendant ^{214}Po du radon [24].

Le spectre en énergie des particules alpha obtenu avec le détecteur de radon en sortie de NEMO3 est montré dans la partie supérieure de la figure 2.11. On y voit nettement le pic alpha de 7,7 MeV qui contient 120 événements en 119 h de comptage [24]. En utilisant un étalonnage donné par les constructeurs de 1 coups/j équivalent à 1 mBq/m^3 [14], nous obtenons une activité de 25 mBq/m^3. Cette valeur a été confirmée par les analyses des différents canaux, surtout les événements $e^-\alpha_{retardé}$ correspondant à l'effet BiPo, c'est-à-dire la décroissance β du ^{214}Bi suivie de l'émission α retardée du ^{214}Po (voir figure 1.3).

Afin de vérifier que le radon n'est pas amené par le gaz lui-même, le même détecteur de radon a été placé pendant 89 h à l'entrée de NEMO3 [24]. Le spectre correspondant est montré dans la partie inférieure de la figure 2.11. Les taux de comptage dans les raies alpha de 7,7 MeV (radon) et de 8,8 MeV (thoron) sont tout à fait compatibles avec le bruit de fond du détecteur, soit environ 1 coup/j dans chacune des deux raies.

L'hypothèse la plus probable sur l'origine du radon était une éventuelle entrée de l'air du LSM à cause de défauts d'étanchéité entre les secteurs. En effet, une mesure du niveau de radon dans l'air du laboratoire montra qu'il contenait environ 18 Bq/m^3. Cette valeur était variable suivant le jour ou la nuit, et probablement en fonction de la température et de la pression à l'intérieur du laboratoire.

Une première action, qui s'est révélée insuffisante, fut d'améliorer l'étanchéité entre secteurs à l'aide de résines. La deuxième action fut l'installation d'une tente en aluminium et en plastique pour couvrir le détecteur NEMO3 afin de l'isoler de l'air du laboratoire. Un système de ventilation permettait en outre d'injecter à l'intérieur de la tente de l'air frais provenant directement de la cheminée d'aération du tunnel. Malgré ces efforts, les mesures effectuées montrèrent que le niveau de radon dans la tente restait à peu près le même, c'est-à-dire autour de 18 Bq/m^3. Une troisième étape fut alors de construire un dispositif à base de colonnes de charbon actif refroidi à – 50°C permettant ainsi de réduire le niveau de radon dans l'air à ~ 15 mBq/m^3, soit d'un facteur 1000 [25]. L'air ainsi « déradonisé » est alors injecté à l'intérieur de la tente avec un flux de 150 m^3/h. Avec ce dispositif, le niveau de radon dans la tente, c'est-à-dire à l'extérieur de NEMO3, n'a été malheureusement réduit que d'un facteur 3, c'est-à-dire ~ 5 Bq/m^3, largement insuffisant [19].

Clairement, il était évident qu'il existait une source importante de radon à l'intérieur de la tente venant très probablement de l'électronique située juste sous le détecteur NEMO3. En effet, il est bien connu que les composants électroniques contiennent en général des niveaux assez élevés de radium provenant essentiellement des isolants ou des céramiques. De

plus, la température élevée de l'électronique favorise énormément l'émanation du radon. Il a alors été décidé de séparer l'électronique de l'ensemble du détecteur par une double couche de film plastique. Avec ce dispositif, le niveau de radon dans la tente est tombé rapidement autour de 0,4 Bq/m^3. Enfin, en dernier ressort, le système de ventilation de l'électronique a été modifié pour éloigner rapidement l'air chargé en radon le plus loin possible de la tente. Avec ce dernier dispositif et une recherche continuelle d'éventuelles fuites entre l'extérieur et l'intérieur de la tente, le niveau de radon dans la tente a pu être amené autour de 100 mBq/m^3, comme montré sur la figure 2.12 (page suivante), qui présente le suivi de radon sur une période d'environ un mois et demi.

La figure 2.13 montre un suivi de radon dans le gaz de NEMO sur une période d'environ 20 jours, avec une valeur moyenne de 3,8 mBq/m^3 [27].

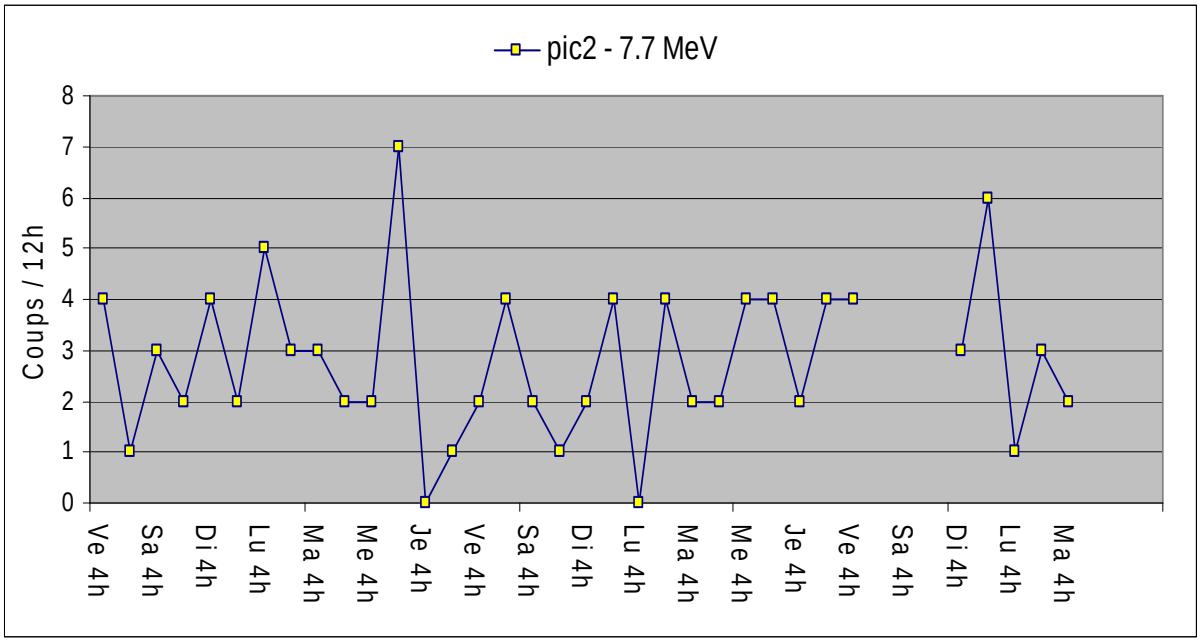


FIG. 2.13 – Suivi du radon dans le gaz à la sortie de NEMO3 [27].

Il faut remarquer ici qu'après tous ces efforts, le niveau de radon à l'extérieur de NEMO3 a été diminué d'environ deux ordres de grandeurs, tandis que le niveau de radon dans le gaz à la sortie de NEMO3 n'a été diminué que d'un facteur 6 à 7. Ceci semble indiquer une source à l'intérieur de NEMO3, probablement due à l'émanation des matériaux.

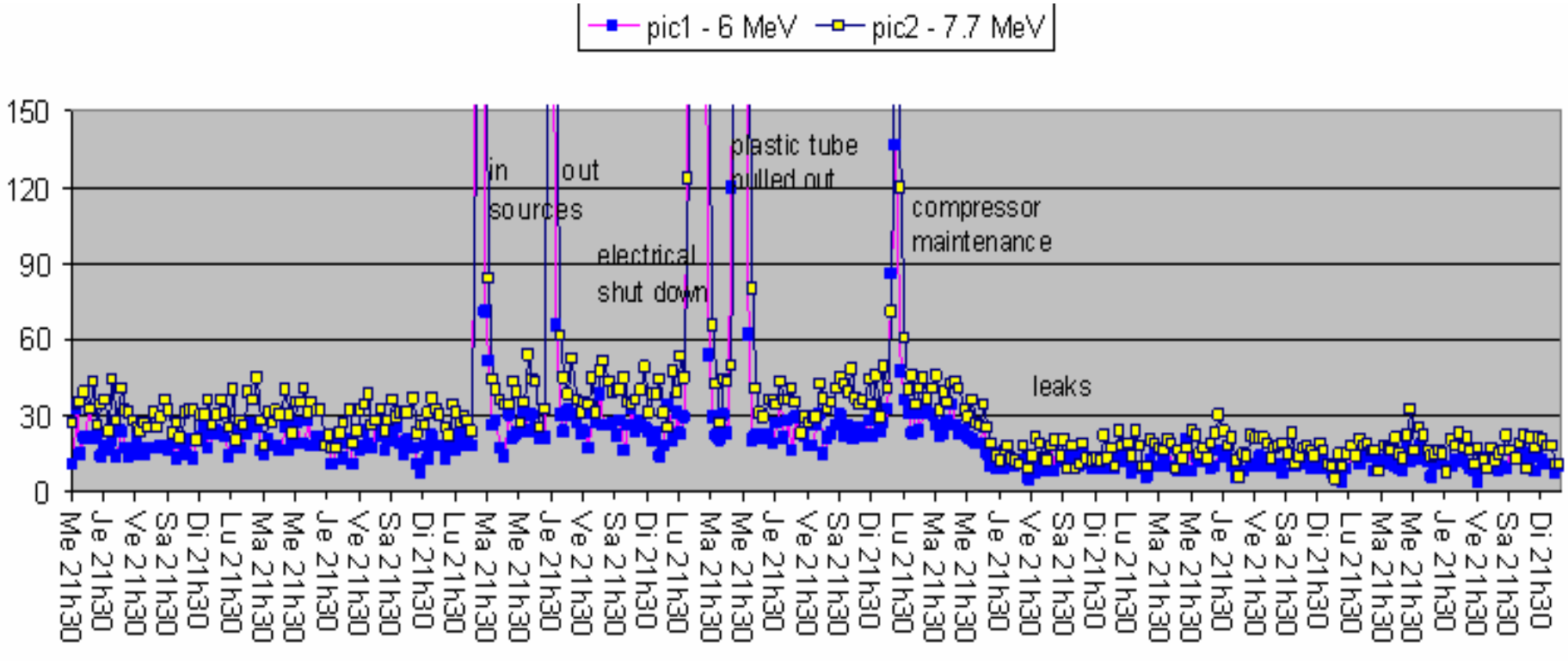


FIG. 2.12 – Suivi du radon dans la tente de NEMO3 pour la période du 12/01/2005 au 28/02/2005. Les points bleus et jaunes représentent respectivement le nombre de coups détectés dans les deux pics alpha de 6,0 MeV et 7,7 MeV pendant 3 h. Les points de taux de comptage élevés correspondent aux ouvertures de la tente (phases de calibration) et aux divers incidents (coupure d'électricité, entretien du compresseur). Les derniers points, présentant un taux de comptage autour de 10 coups/3h, ont été obtenus après l'amélioration de l'étanchéité de la tente, surtout au niveau du film plastique séparant le détecteur de son électronique.

2.5.2 – Origine interne

Les principaux matériaux susceptibles d'émaner du radon à l'intérieur de NEMO3 sont peu nombreux et ont tous été mesurés par spectrométrie gamma avant la construction de NEMO3. Nous examinerons successivement les feuilles sources, les fils Geiger, les films de mylar aluminisé couvrant les faces avant des scintillateurs plastiques et enfin la structure métallique qui se trouve au-dessus et en-dessous du détecteur, appelée pétale.

Le tableau 2.2 présente les limites de radioactivité en radium (^{226}Ra) pour toutes les feuilles sources distribuées dans les 20 secteurs [27]. Rappelons que dans chaque secteur, il y a 7 bandes sources de largeur 65 mm et de longueur 2,48 m.

N° du secteur	Isotope	Nature	Nombre de bandes	Masse (g)	^{226}Ra (mBq/kg)	**^{226}Ra (mBq/unité)**
0	Cu	métallique	7	633	0,12	**0,07**
1	^{100}Mo	métallique	5	432	0,67	**0,29**
		composite	2	176	0,33	**0,06**
2	^{100}Mo	métallique	7	633	0,33	**0,21**
3	^{100}Mo	métallique	7	710	0,33	**0,24**
4	^{100}Mo	métallique	7	626	0,33	**0,21**
5	^{100}Mo	métallique	2	192	0,33	**0,06**
	^{100}Mo	composite	3	251	0,33	**0,08**
	$^{150}Nd_2O_3$	composite	1	47	3,33	**0,16**
	ZrO_2	composite		22	16,67	**0,37**
	$^{40}CaF_2$	composite	1	18	4,17	**0,08**
6	^{82}Se	composite	7	385	4,17	**1,60**
7	^{82}Se	composite	7	459	1,17	**0,54**
8	^{82}Se	composite	1	74	4,17	**0,31**
	^{82}Se	composite	1	63	1,17	**0,07**
	nat Te	composite	5	296	0,17	**0,05**
9	^{130}Te	composite	7	319	0,67	**0,21**
10	^{100}Mo	composite	7	604	0,33	**0,20**
11	^{100}Mo	composite	7	603	0,33	**0,20**
12	^{100}Mo	composite	7	608	0,33	**0,20**
13	^{100}Mo	composite	7	603	0,33	**0,20**
14	^{100}Mo	composite	7	625	0,33	**0,21**
15	^{100}Mo	composite	7	632	0,5	**0,32**
16	^{100}Mo	composite	7	593	0,33	**0,20**
17	^{130}Te	composite	7	314	0,67	**0,21**
18	^{116}Cd	métallique	7	434	1,67	**0,72**
19	nat Te	composite	7	472	0,17	**0,08**
Radioactivité totale en Ra (mBq)						**< 7,14**

TAB. 2.2 – Radiopureté des feuilles sources dans le détecteur NEMO3. Les activités de ^{226}Ra correspondent aux limites supérieures obtenues par spectrométrie gamma.

En supposant que l'activité du radium pour chaque feuille est égale à sa valeur limite, le total de l'activité des feuilles ne peut pas dépasser 7 mBq. Avec un facteur d'émanation du radon de 100%, largement surestimé, et un volume de la chambre à fils de 28 m^3, on est conduit à une activité maximum de 0,25 mBq/m^3.

Les mesures effectuées pour les fils des cellules Geiger ont montré que l'activité en ^{226}Ra est inférieure à 0,7 mBq/kg [27]. Pour une masse totale d'environ 1,7 kg, une probabilité d'émanation de 100 % et le même volume de la chambre, on obtient une activité inférieure à 0,05 mBq/m^3 en radon.

De la même façon, les feuilles de mylar aluminisé couvrant les faces avant des blocs de scintillateur présentent une activité inférieure à 35 mBq/kg en ^{226}Ra [27]. La superficie totale de ces feuilles de mylar est d'environ 100 m^2, leur épaisseur 12 μm, ce qui conduit à une masse totale estimée d'environ 1 kg. En supposant un facteur d'émanation de 50 % (vers l'intérieur de la chambre à fils), on obtient une activité radon < 0,6 mBq/m^3.

Pour les pétales, la masse totale est de 10 tonnes et la limite mesurée par spectrométrie gamma est de 0,6 mBq/kg [18,28]. Avec le même facteur d'émanation maximum de 50 % (vers l'intérieur de la chambre à fils), on obtient une activité radon < 100 mBq/m^3.

De tous ces matériaux, seuls les pétales peuvent éventuellement contribuer au niveau du radon dans le gaz. Toutefois, la probabilité d'émanation est largement surestimée pour un tel matériau de densité élevée 7,9 g/cm^3. De plus, la topologie des événements $e^-\alpha_{retardé}$, montrée dans la figure 2.14, n'est pas en faveur de cette hypothèse puisque la distribution de ces événements est loin d'être homogène [18,29]. En effet, les événements BiPo sont plutôt localisés en haut des cellules 4 et 5 et en bas des cellules 14 et 15. L'hypothèse la plus probable est que les couronnes de scintillateurs proches de ces cellules possèdent une activité en ^{226}Ra sur les feuilles de mylar aluminisé ou sur les colles utilisées. Cette hypothèse devra être vérifiée au moment du démontage de NEMO3 par des mesures complémentaires de spectrométrie gamma.

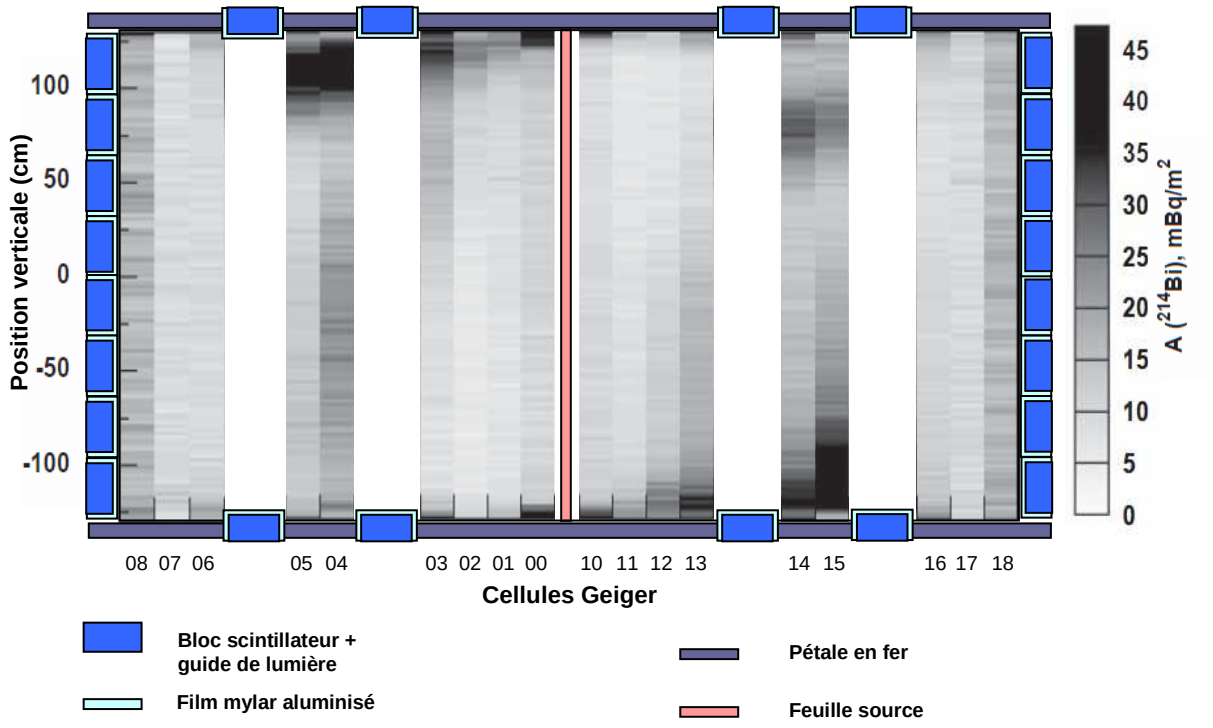


FIG. 2.14 – Vue de profil du détecteur NEMO3. La feuille source est située au centre, le mur interne de scintillateurs est à gauche en bleu, le mur externe à droite. Le haut et le bas sont formés des pétales en fer pur (en violet gris) et de quatre couronnes de scintillateurs plastiques. Les bandes grises verticales correspondent aux couronnes des cellules Geiger dont les numéros varient de 00 à 08 pour la partie interne et de 10 à 18 pour la partie externe. L'ordonnée correspond à la position verticale avec l'origine prise au centre du détecteur. Les variations dans la distribution des vertex des événements $e^-\alpha_{retardé}$, intégrés pour tous les secteurs sont indiquées par les nuances de gris. L'échelle sur le nombre d'événements correspondant aux activités ^{214}Bi ou ^{226}Ra est présentée sur la droite de la figure [18,29].

2.6 – Conclusions

En conclusion, le rôle du radon dans l'expérience NEMO3 a été fortement réduit d'une part par une sélection rigoureuse des matériaux au moment de la construction du détecteur et d'autre part avec l'installation d'un système anti-radon, comme montré sur la figure 2.15. Il reste encore une contamination radon de l'ordre de 5 mBq/m^3 dans le gaz provenant probablement du dégazage des matériaux.

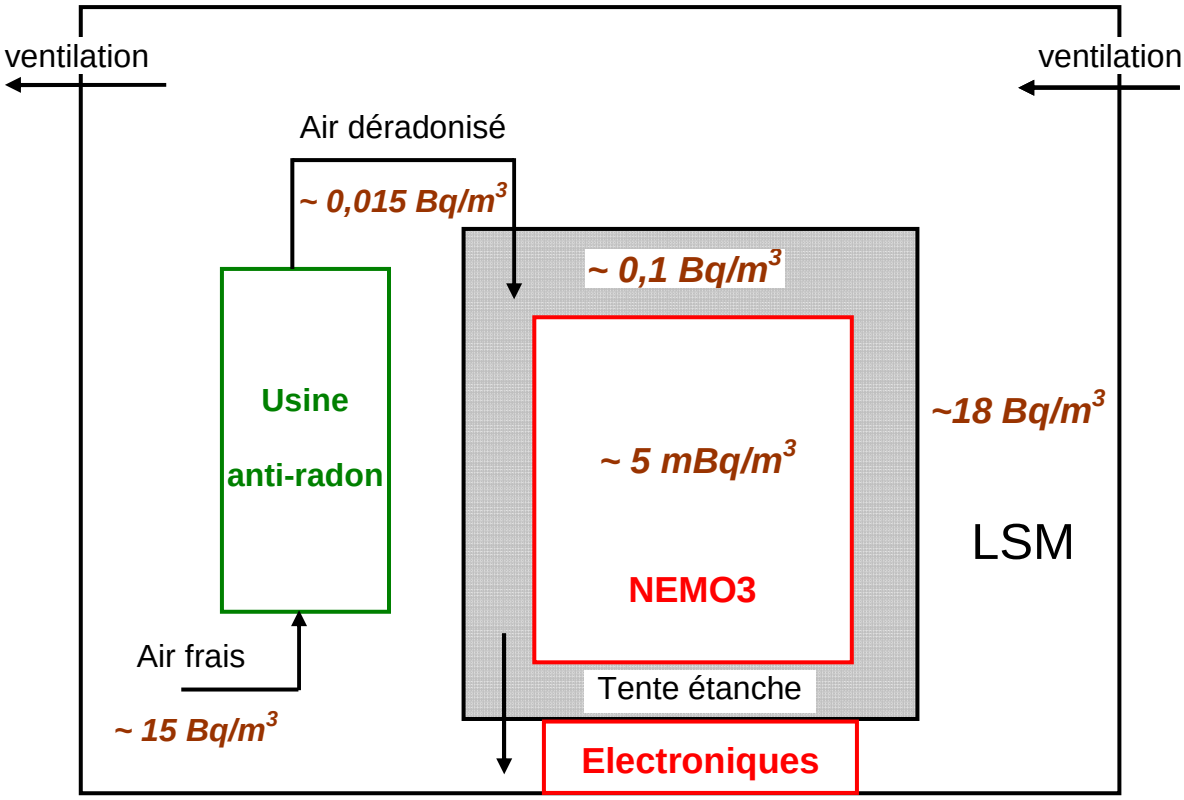


FIG. 2.15 – Le radon au LSM et autour de NEMO3. L'arrivée d'air frais du LSM contient ~ 15 Bq/m^3 de radon, valeur légèrement inférieure à l'air interne ~ 18 Bq/m^3. A la sortie de l'usine anti-radon, l'air injecté dans la tente NEMO3 contient ~ 0,015 Bq/m^3. Le niveau résiduel du radon dans la tente est ~ 0,1 Bq/m3, et dans le gaz NEMO3 ~ 5 mBq/m^3.

Le niveau du radon dans le gaz de NEMO3 a été évalué de deux façons, d'une part avec les analyses des données de NEMO3 qui ont convergé vers 37,7 ± 0,1 mBq/m^3 pour la phase avant le dispositif anti-radon (appelée phase I) et 6,46 ± 0,02 mBq/m^3 pour la phase avec la tente (phase II) [18]. D'autre part, le niveau de radon dans le gaz à la sortie de NEMO3 a été mesuré par intermittence avec le détecteur de radon en série. La figure 2.16 montre le suivi en radon sur une période de 34 jours pendant la phase II. La valeur moyenne observée est de 2,7 ± 0,1 coups/j avec un bruit de fond de 1,1 ± 0,1 coups/j dans le pic à 7,7 MeV. Le calcul de l'activité radon dans le gaz n'est pas immédiat pour les raisons suivantes : le détecteur de radon mesure le gaz en sortie et non pas l'activité du gaz à l'intérieur de NEMO3, le facteur de calibration en présence d'alcool n'est pas connu et la réponse du détecteur de radon est dépendante de plusieurs paramètres tels que le débit de gaz et la distance entre la sortie de NEMO3 et le détecteur de radon.

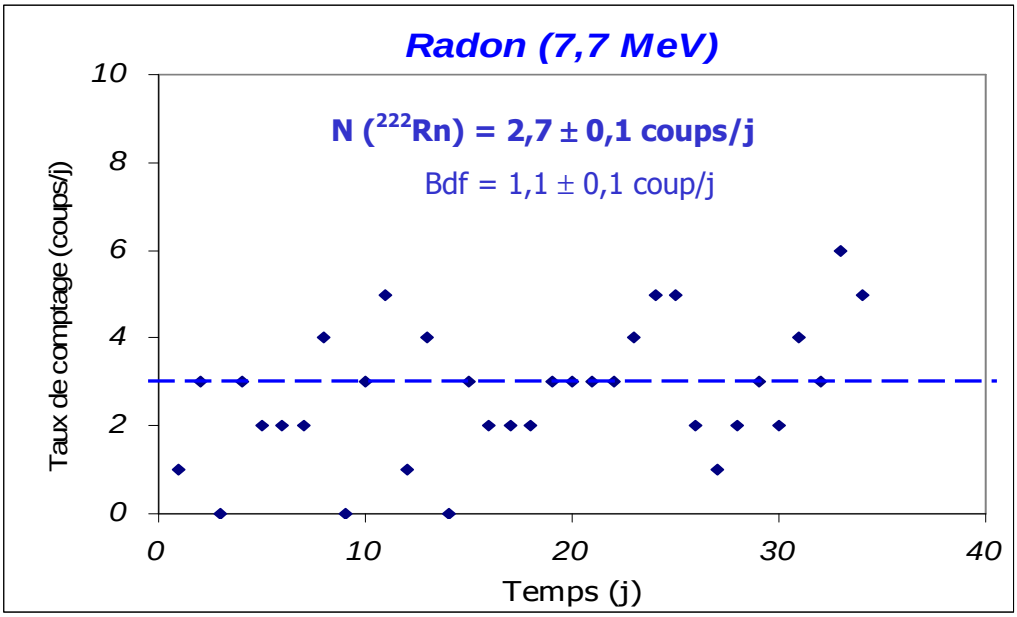


FIG. 2.16 – Taux de comptage du pic alpha de 7,7 MeV du radon sur une période de 804 h, soit 34 jours.

Pendant la même période d'acquisition, la figure 2.17 présente le taux de comptage de la raie alpha de 8,8 MeV de la décroissance du ^{212}Po provenant de la chaîne du thoron. Le taux de comptage est supérieur au bruit de fond, mais le facteur de calibration pour le thoron n'est absolument pas connu.

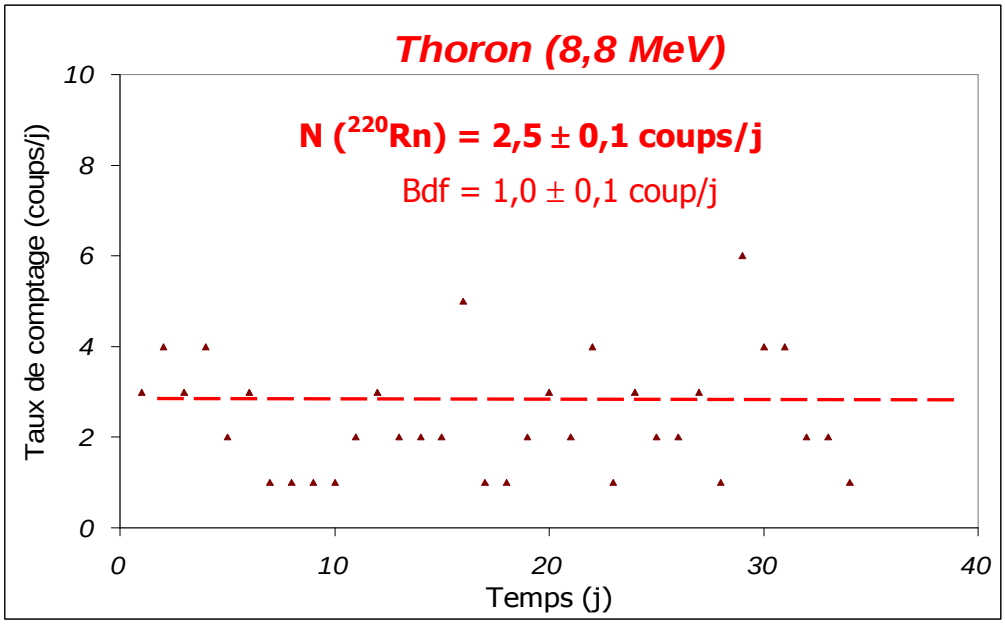
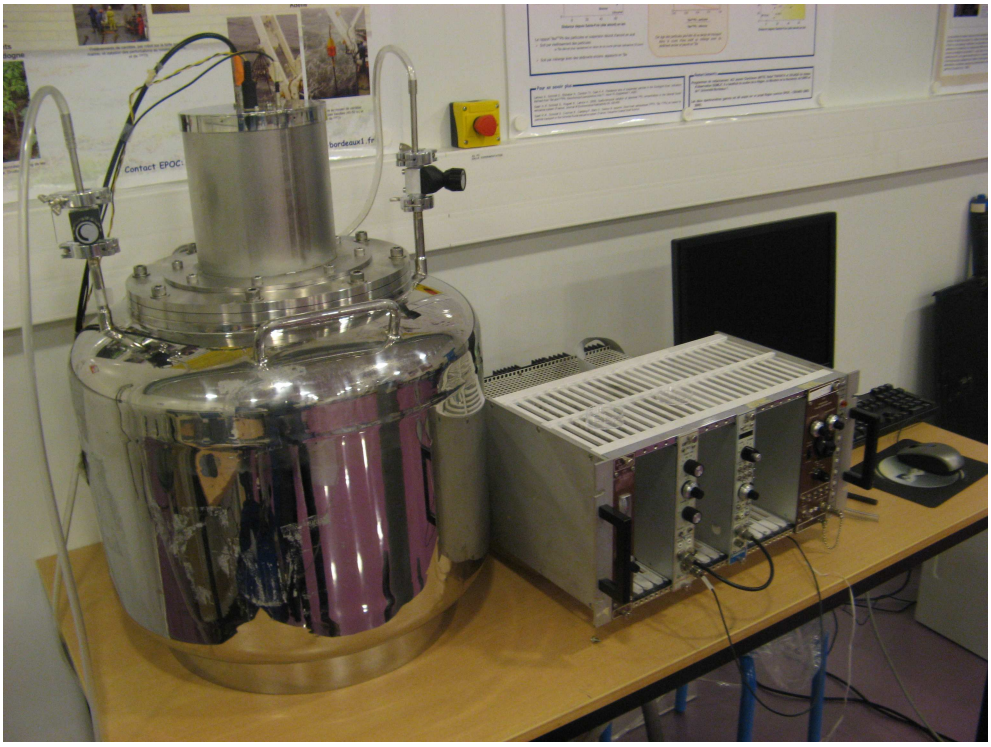


FIG. 2.17 – Taux de comptage du pic à 8,8 MeV du thoron en évolution de temps.

Pour terminer, il est important de remarquer que le temps moyen de résidence du gaz dans NEMO3 est de l'ordre de 4 jours, c'est-à-dire comparable avec la période du radon (3,8 jours) mais très long par rapport à celle du thoron (55,6 s) y compris de son descendant le ^{212}Pb (10,64 h).

Chapitre 3

Détecteur de radon



Détecteur de radon par collection électrostatique (KAMIOKANDE, Japon).

Le détecteur de radon utilisé dans ce travail a été développé initialement pour l'expérience KAMIOKANDE (KAMIOKA Neutrino Detection Experiment) située au laboratoire souterrain de Kamioka au Japon. Cette expérience est dédiée à la mesure du flux de neutrinos solaires par la technique Cherenkov avec 50000 tonnes d'eau purifiée et elle nécessite une réduction du bruit de fond dû au radon dans l'eau jusqu'à environ 2-3 mBq/m^3 [30]. Dans ce chapitre on décrira le principe du détecteur de radon, son fonctionnement, sa sensibilité ainsi que son bruit de fond.

3.1- Description du détecteur de radon

Le schéma général du détecteur est présenté sur la figure 3.1. Il comprend une cuve de 80 litres en acier inoxydable et deux vannes d'entrée et de sortie permettant la circulation du gaz à mesurer.

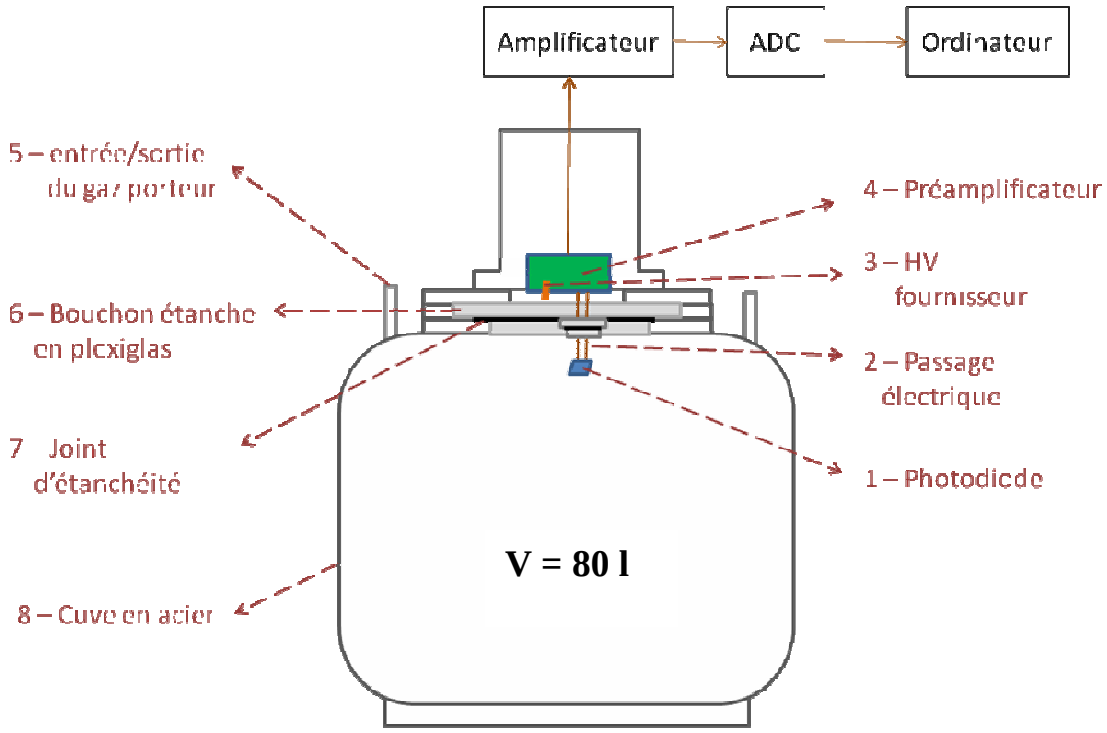


FIG. 3.1 – Structure schématique du détecteur de radon.

La détection du radon s'effectue indirectement à travers ses descendants par spectrométrie alpha. Au centre de la partie supérieure est placée une photodiode silicium de dimensions 18 x 18 x 1,2 mm^3, enchâssée dans un support en céramique de 25 x 25 x 2,5 mm^3 [31] (voir figure 3.2). Une tension négative de 1500 V est établie entre la cuve en inox et la photodiode. Lorsque le radon contenu dans le gaz porteur décroît par émission d'une particule alpha, le noyau résiduel de ^{218}Po d'une période de ~ 3 minutes se retrouve dans un état multichargé positif et migre ainsi vers la surface de la photodiode. Le ^{218}Po ou ses descendants émettent des particules alpha ou des électrons qui sont détectés par la photodiode.

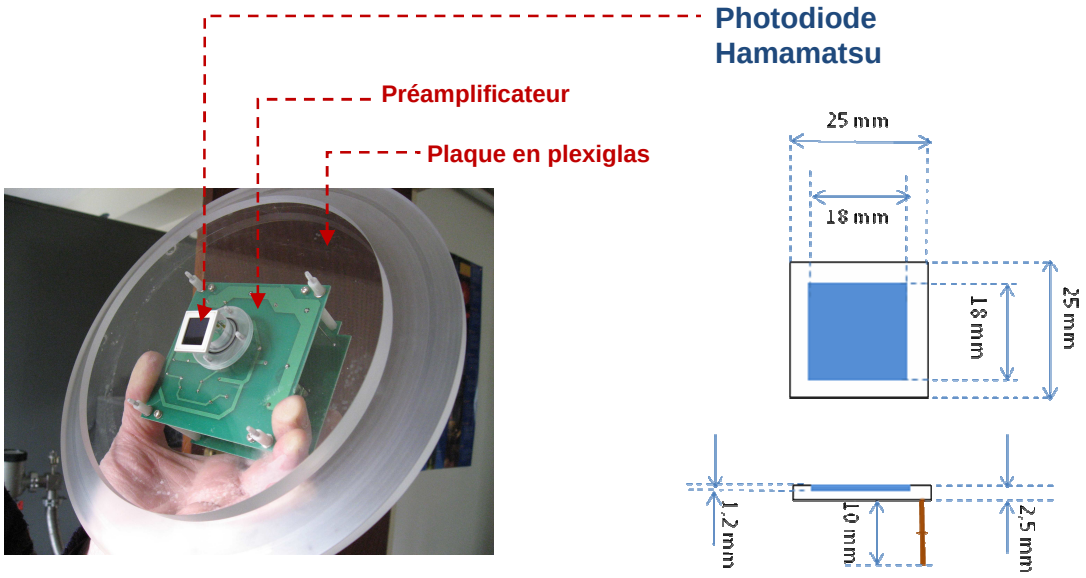


FIG. 3.2 – La photodiode Hamamatsu S3024-06.

L'électronique d'acquisition standard comprend un préamplificateur, un amplificateur et un codeur couplé à un PC. Un exemple d'un spectre en énergie des particules alpha obtenu pour la détection du radon émané à partir d'une source de radium est présenté dans la figure 3.3. Ici, le gaz porteur est l'air ambiant du laboratoire.

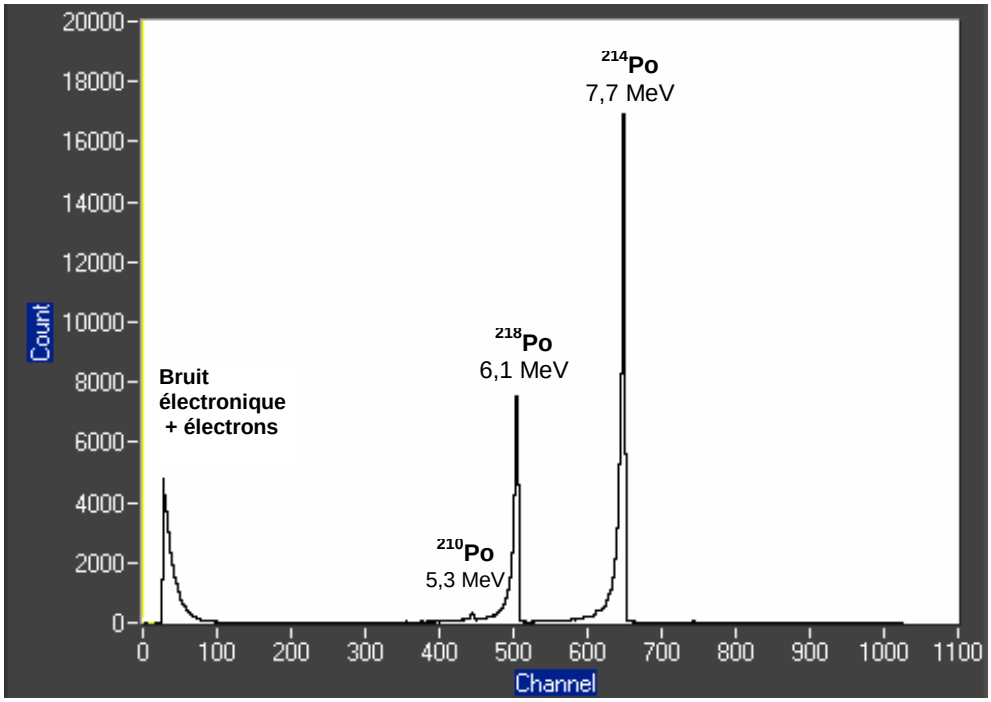


FIG. 3.3 – Exemple d'un spectre en énergie des particules alpha obtenu pour la détection du radon émané à partir d'une source de radium montrant les pics alpha de 6,0 MeV du ^{218}Po, de 7,7 MeV du ^{214}Po, et très faiblement le pic de 5,3 MeV du ^{210}Po.

On y voit très nettement les pics alpha de 6,0 MeV du ^{218}Po et de 7,7 MeV du ^{214}Po, et très faiblement le pic de 5,3 MeV du ^{210}Po. Le ^{210}Po fait partie de la décroissance du ^{210}Pb de période très longue (~ 22 ans). Au cours des mesures le ^{210}Pb a donc tendance à s'accumuler sur la surface de la photodiode. A très basse énergie, la remontée est due au bruit électronique et aux électrons émis.

Un exemple d'un spectre en énergie des particules alpha obtenu pour la détection du thoron émané à partir d'une source de ^{232}Th est présenté dans la figure 3.4. Ici, le gaz porteur est de l'azote comprimé. On observe les trois pics alpha du ^{212}Bi (6,1 MeV), du ^{216}Po (6,8 MeV) et du ^{212}Po (8,8 MeV). Le rapport des intensités entre les pics alpha de 8,8 MeV et 6,1 MeV est constant, donné par les rapports d'embranchement, respectivement de 64 % vers le ^{212}Po et de 36 % vers le ^{208}Tl (voir figure *1.3*). Le ^{212}Bi décroit par émission d'une particule bêta vers le ^{212}Po de période très courte ~ 300 ns, lequel décroît par émission d'une particule alpha. Il s'ensuit une sommation entre la particule bêta et la particule alpha, ce qui est très nettement visible sur la figure.

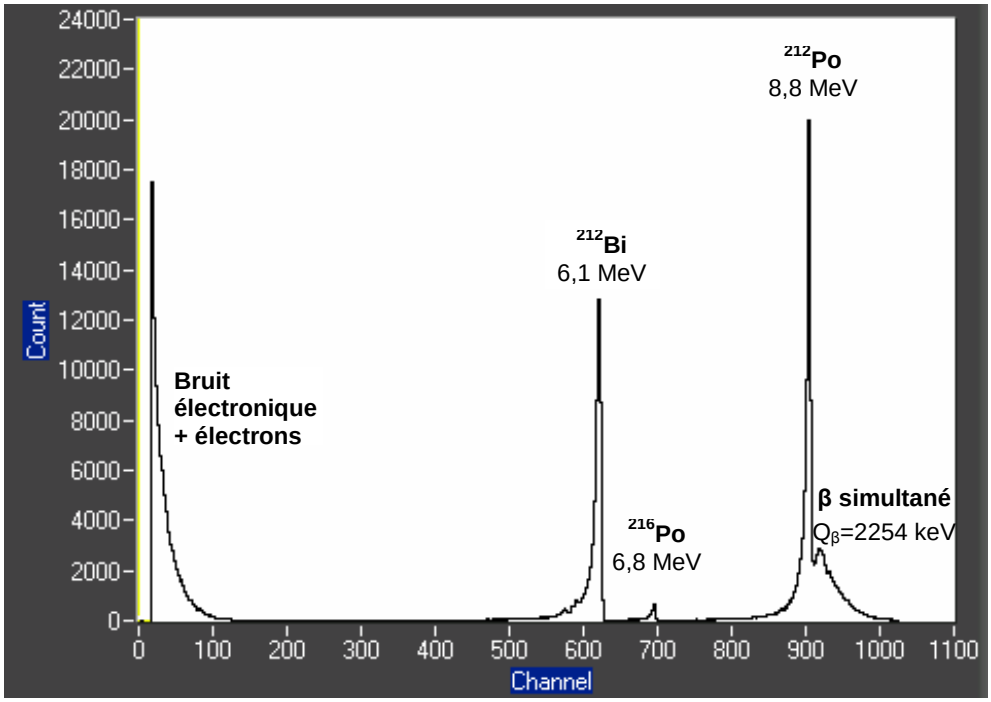


FIG. 3.4 – *Exemple d'un spectre en énergie des particules alpha obtenu pour la détection du thoron émané à partir d'une source de thorium montrant les pics alpha de 6,8 MeV du ^{216}Po, de 6,1 MeV du ^{212}Bi, et de 8,8 MeV du ^{212}Po. Ce dernier pic est sommé avec la particule bêta du ^{212}Bi.*

3.2 – Bruit de fond du détecteur

En 2006, H. Oshumi de l'Université de Saga (Japon) a mis à la disposition de la collaboration NEMO et du CENBG un détecteur de radon identique à ceux développés pour l'expérience KAMIOKANDE. Dès son arrivé au CENBG, le fonctionnement du détecteur a été testé par une mesure de radon dans l'air en faisant circuler l'air ambiant avec une petite pompe de débit d'environ 4 l/mn. La figure 3.5 donne la variation du taux de radon mesuré sur la raie d'alpha de 7,7 MeV pour 6 jours de mesure. Ici, un point représente le nombre de coups enregistrés pour 6 h d'acquisition. La saturation est obtenue après 6 jours, soit environ 1,5 fois la période. La valeur de saturation est de $4{,}2 \times 10^4$ coups/jour. Nous verrons que le temps de saturation et la valeur de saturation sont dépendants de plusieurs paramètres comme le débit, le taux d'humidité …

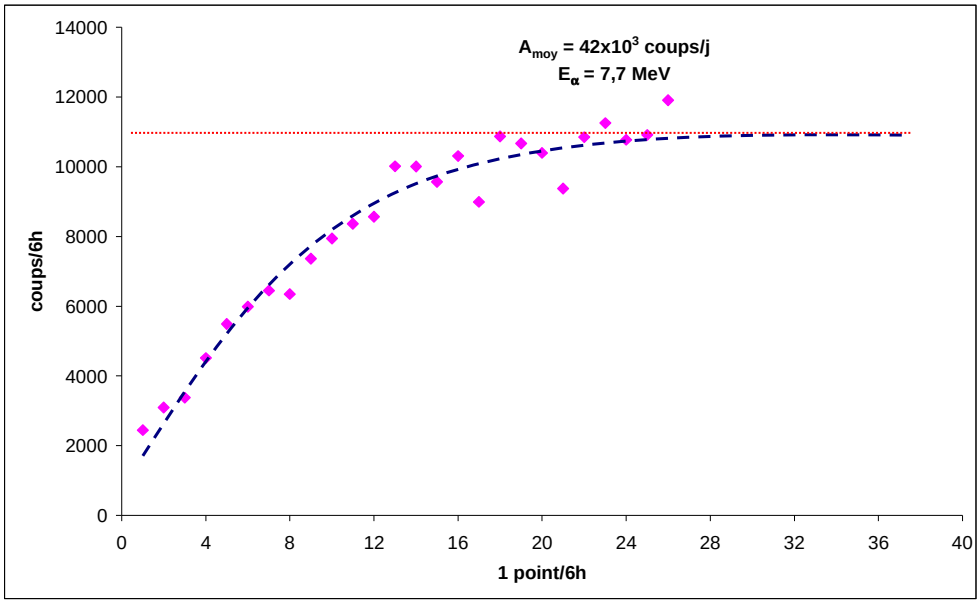


FIG. 3.5 – Evolution du taux de comptage du radon dans l'air en fonction du temps.

Par la suite, une mesure du bruit de fond intrinsèque du détecteur a été entreprise. Pour ceci, le détecteur a été purgé avec de l'azote comprimé, qui est supposé être exempt en radon [32]. La figure 3.6 montre la variation du taux de radon dans le pic à 7,7 MeV en fonction du temps. Ici, un point présente le nombre de coups enregistrés pendant 6 h d'acquisition. La valeur moyenne du bruit de fond obtenue durant 18 jours de mesure est de (8,8 ± 0,3) coups/jour.

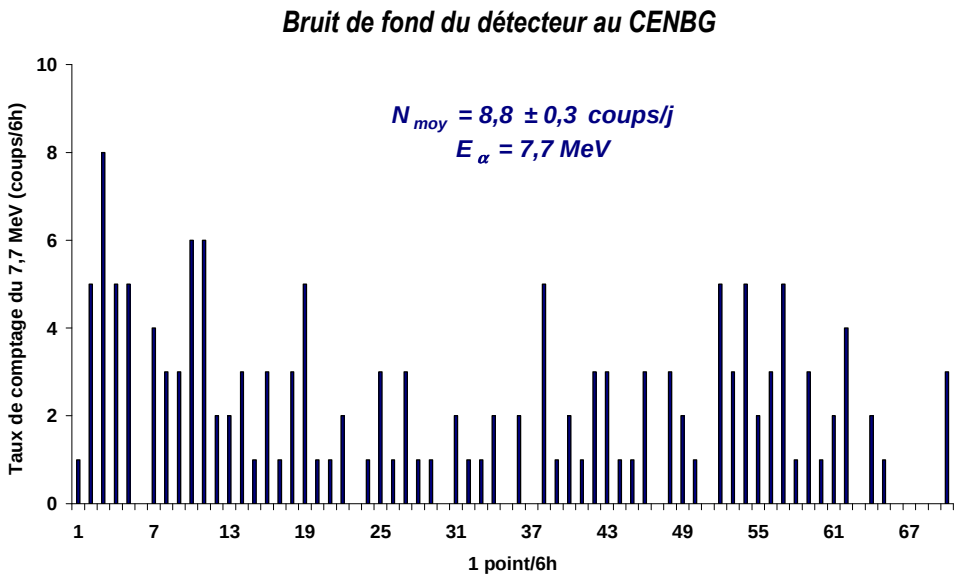


FIG. 3.6 – Bruit de fond du détecteur en radon.

Pour comprendre la ou les sources de ce bruit de fond intrinsèque, nous nous sommes placés dans deux configurations différentes. La première a consisté à couvrir la photodiode par une petite boite étanche en plastique afin de créer un petit volume (quelques cm^3) autour de celle-ci et de la séparer ainsi du volume total de la cuve d'acier (voir figure 3.7). La haute tension de collection était de -1500 V et la polarisation de la diode de 15 V. Notons que, avant chaque mesure, le détecteur est purgé avec de l'azote comprimé.

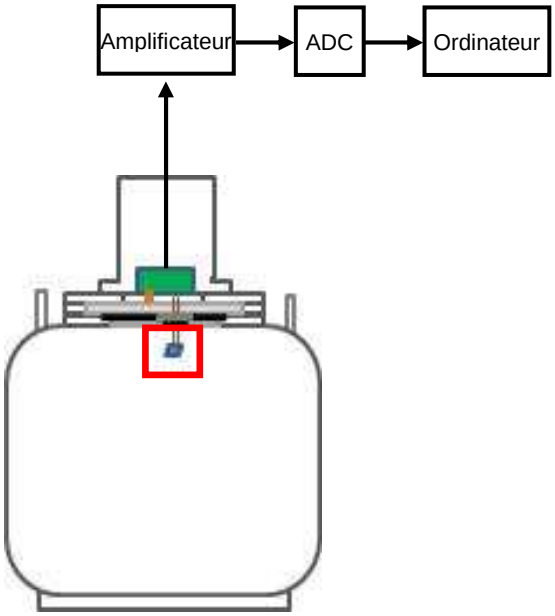


FIG. 3.7 – Schéma du détecteur avec la diode recouverte d'une boite étanche en plastique.

Cette mesure permet d'évaluer le taux de radon émané par la photodiode, probablement dû à la présence de radium dans la céramique. La figure 3.8 présente la variation du taux de comptage en fonction du temps. Ici, un point correspond à un comptage de 12 h. La valeur moyenne obtenue après une semaine de mesure est de (3,1 ± 0,7) coups/j.

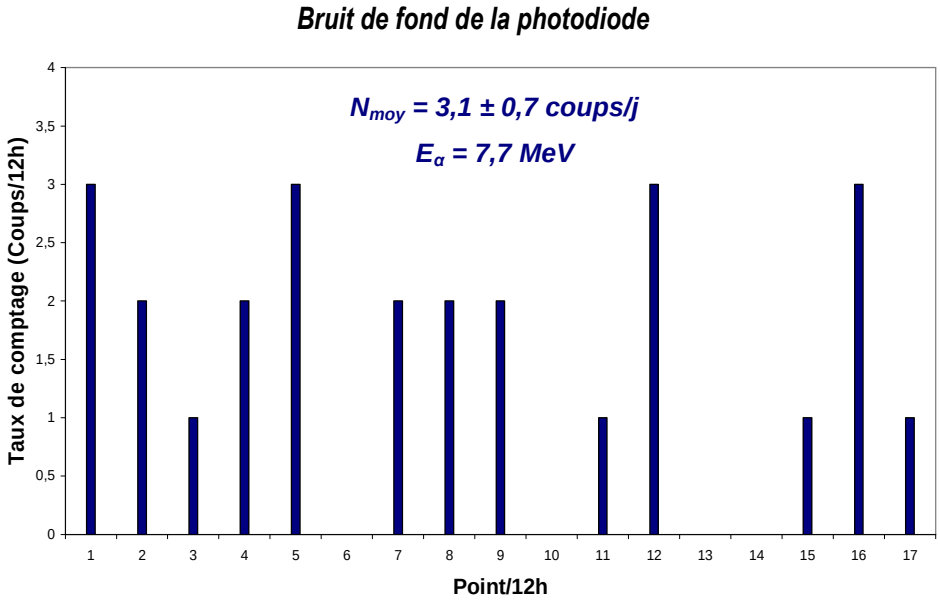


FIG. 3.8 – Bruit de fond intrinsèque du détecteur avec la photodiode couverte d'une boîte plastique.

Ce résultat montre qu'effectivement environ 50 % du niveau de bruit de fond provient de la photodiode elle-même et qu'il existe probablement une autre source.

Une deuxième mesure a été réalisée en couvrant la majeure partie de l'intérieur de la cuve d'acier par un film étanche en plastique (voir figure 3.9). La mesure a été effectuée toujours dans les mêmes conditions de polarisation et de haute tension, après avoir purgé le détecteur avec de l'azote comprimé.

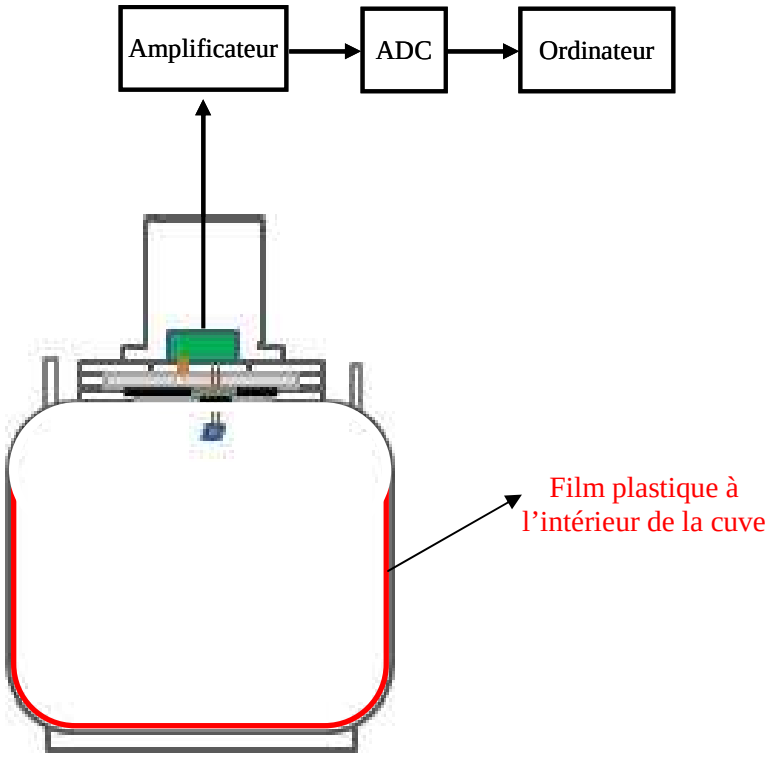


FIG. 3.9 - Schéma du détecteur avec la cuve couverte par un film étanche en plastique.

La variation du taux de comptage dans le pic à 7,7 MeV en fonction du temps est présentée dans la figure 3.10. Pour cette mesure, chaque point représente le taux de comptage pendant 12 h. La valeur moyenne obtenue après une semaine de mesure est de (4,5 ± 0,8) coups/j, statistiquement compatible avec la mesure précédente, ce qui implique qu'environ 50% du bruit de fond provient de l'émanation de la cuve en acier.

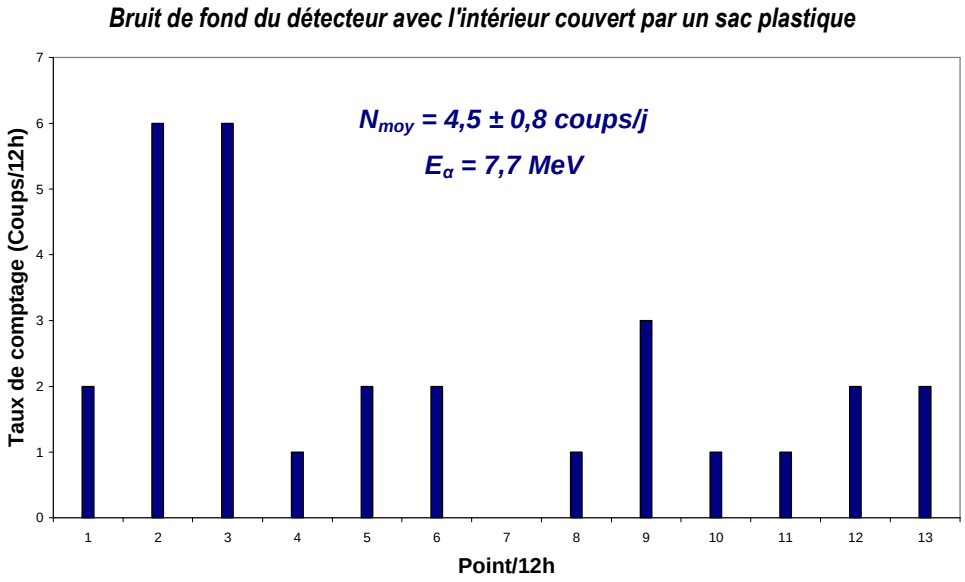


FIG. 3.10 – Bruit de fond intrinsèque du détecteur avec la cuve d'acier couverte.

Dans le cadre de l'expérience NEMO3, la collaboration utilise deux autres détecteurs de radon du même type appelé Radon 1 et Radon 2. Le détecteur Radon 1 est dédié au contrôle du niveau de radon dans la tente et Radon 2 au contrôle du niveau de radon à la sortie de l'usine anti-radon. Les mesures de bruit de fond de ces derniers ont donné respectivement (1,1 ± 0,1) coup/j pour Radon 1 et (5,8 ± 0,6) coups/j pour Radon 2. Le fait que le bruit de fond intrinsèque soit variable d'un détecteur à l'autre reflète probablement le niveau de pollution en ^{226}Ra de la photodiode et/ou de l'acier. Pour le vérifier, nous avons entrepris quelques mesures complémentaires par spectrométrie gamma.

3.3 – Analyse de la radiopureté des principaux composants par spectrométrie gamma

Les seuls matériaux du détecteur susceptibles d'émaner du radon sont la photodiode en silicium sertie dans un support en céramique, la cuve en acier inoxydable et enfin le joint d'étanchéité de la cuve. Tous les trois échantillons ont été analysés avec les détecteurs GeHP ultra bas bruit de fond de type coaxial de 400 cm^3 au Laboratoire Souterrain de Modane et de 100 cm^3 au CENBG.

Le tableau 3.1 donne les activités en mBq des isotopes ^{226}Ra, ^{228}Th et ^{40}K pour une photodiode dans son support en céramique, pour une céramique seule et pour le joint d'étanchéité.

Echantillon	Masse (g)	^{226}Ra (mBq)	^{228}Th (mBq)	^{40}K (mBq)
Photodiode*	4	140 ± 2	36 ± 2	900 ± 2
Céramique (PIN)	3,5	250 ± 6	36 ± 7	1150 ± 60
Joint	54,7	< 2	< 1	270 ± 20

TAB. 3.1 – Activités en mBq de la photodiode, de la céramique et du joint d'étanchéité.

** Valeur moyenne sur 5 photodiodes mesurées en même temps.*

On constate effectivement que la céramique, comme beaucoup d'autres céramiques, contient bien du ^{226}Ra [33,34,6]. L'écart entre les activités céramique seule et photodiode seule reflète probablement une variation de l'activité du radium d'une photodiode à l'autre. Ce résultat peut expliquer au moins partiellement les variations de bruit de fond d'un détecteur à l'autre. En effet, si l'on adopte une activité ^{226}Ra de 140 mBq, un facteur d'émanation de 0,6 % [6], et une efficacité de détection des particules alpha d'environ 30 % [30], on calcule un taux de comptage sur le pic alpha de 7,7 MeV d'environ 20 coups/j, ce qui est supérieur mais pas très éloigné du bruit de fond mesuré.

Notons que l'épaisseur du silicium est de 1,2 mm. Pour une polarisation de 15 V, la zone sensible est inférieure à 500 µm en face avant [31]. Autrement dit, la face arrière ne peut détecter les particules alpha émises à partir des radiums et de leurs descendants, leurs parcours étant d'environ 50 µm dans le silicium.

La dernière ligne du tableau 3.1 donne les activités pour le joint d'étanchéité. Seules des valeurs limites ont été obtenues, ce qui rend peu probable une éventuelle contribution de ce joint au bruit de fond du détecteur.

Enfin, le tableau 3.2 donne les activités mesurées pour trois échantillons d'acier utilisés dans la fabrication des cuves.

Echantillon	Dimension (mm)	Masse (g)	Activité (mBq/kg)			
			^{238}U	^{226}Ra	^{228}Th	^{40}K
Acier 1	60x60x5	135,4	< 40	< 5	30 ± 3	< 30
Acier 2	60x60x0,5	14,1	< 280	< 33	< 17	< 300
Acier 3	60x60x1	27,6	< 150	< 17	< 12	< 150

TAB. 3.2 – Activités des échantillons d'acier de la cuve.

Il est très difficile d'estimer la contribution de cet acier au bruit de fond pour plusieurs raisons : 1) les activités ^{226}Ra sont en valeurs limites, 2) le facteur d'émanation de l'acier n'est pas connu, 3) l'émanation est très dépendante de l'état de surface. Mais nos mesures ont montré qu'il y contribue.

3.4 – Calibration du détecteur

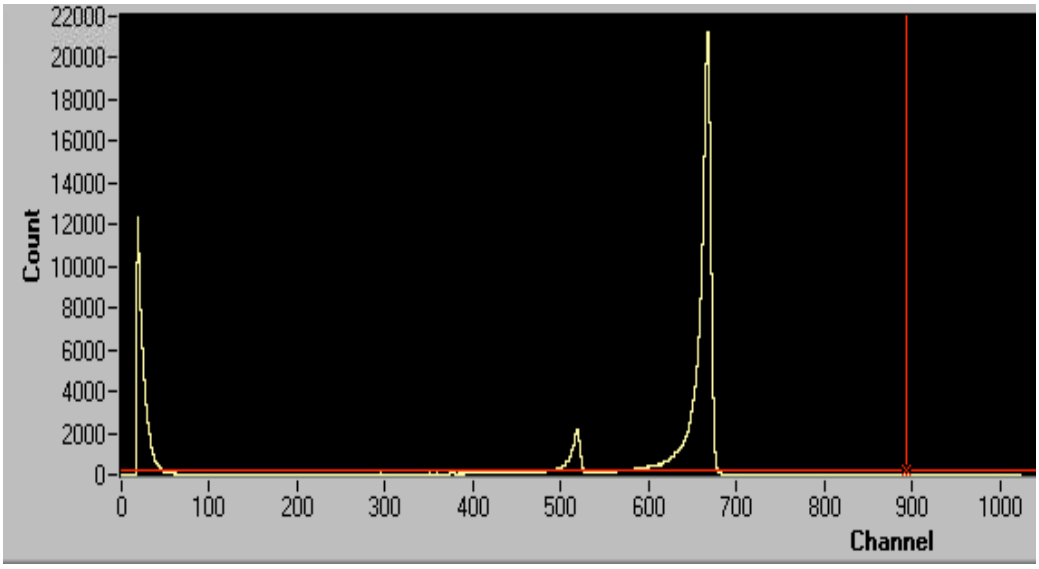
Jusqu'à présent, toutes les valeurs de radon mesurées par ce type de détecteur sont basées sur le facteur de calibration donné par le constructeur, soit pour le pic alpha de 7,7 MeV environ 1 coup/j = 1 mBq/m^3. Toutefois, ce facteur de calibration a été obtenu dans des conditions bien définies, c'est-à-dire dans une circulation de gaz fermée, un flux de 3 l/mn et une humidité absolue supérieur à 2 mg/m^3, qui sont loin des conditions de l'expérience NEMO pour laquelle le circuit est ouvert, le débit entre 2 et 5 l/mn et un taux d'alcool de 4,3 % et d'eau de 0,1 %. Ce facteur de calibration n'est défini que pour le radon.

Dans le chapitre suivant concernant uniquement le radon, nous étudierons l'influence des différents paramètres tels que le flux du gaz porteur, le taux d'humidité, la valeur du champ électrique, etc. Rappelons que pour le détecteur de radon actuellement utilisé au LSM, le bruit de fond est de l'ordre de 1 coup/j, ce qui normalement permet de mesurer un niveau de radon autour de quelques mBq/m^3.

Le dernier chapitre portera sur le thoron qui a été, à notre connaissance, très peu étudié jusqu'à présent.

Chapitre 4

Etudes du radon au CENBG



Photographie de l'écran du PC d'acquisition compte tenant un spectre alpha des descendants du radon.

L'expérience NEMO dispose au LSM de deux détecteurs de radon chargés de contrôler la sortie de l'usine anti-radon et l'intérieur de la tente. Pendant les prises de données, un de ces détecteurs a été parfois utilisé pour contrôler le niveau du radon dans le gaz à l'entrée et à la sortie de NEMO3. Les activités mesurées ont toutes été évaluées avec le même facteur de calibration donné par le constructeur, soit 1 mBq/m^3 = 1 coup/j enregistré dans la raie alpha de 7,7 MeV [14]. Toutefois, nous avons déjà vu que ce facteur de calibration a été déterminé dans des conditions différentes de celles de NEMO3. En effet, il a été mesuré avec un système fermé de circulation d'air de taux d'humidité supérieur à 10 % et un débit de 3 l/mn. Par contre, dans NEMO3, la circulation du gaz est ouverte avec un débit variable entre 2 et 5 l/mn. La nature du gaz est un mélange de 94,4 % d'hélium, 4,3 % d'alcool, 1,3 % d'argon et 0,1 % de vapeur d'eau.

Il est apparu ainsi nécessaire d'étudier le processus de détection du radon dans les gaz en fonction de toute une série de paramètres expérimentaux tels que la température, l'humidité et la nature du gaz porteur, la tension de collection, etc.

4.1 – Vue d'ensemble du dispositif expérimental

En général, une mesure est effectuée avec une source de radium à l'entrée du détecteur. Le radon exhalé est entraîné par un gaz porteur à l'intérieur de la cuve à l'aide d'une pompe dont le débit d'alimentation est réglable. Ce système a pour but de créer un circuit d'alimentation proche de celui actuellement utilisé dans NEMO3. La figure 4.1 en présente le schéma de principe.

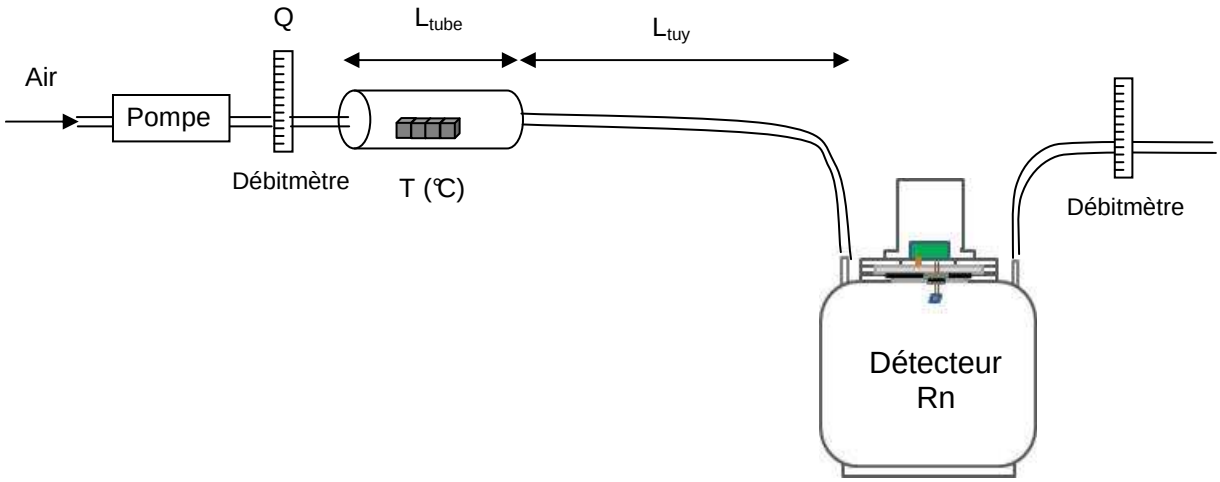


FIG. 4.1 – Schéma de principe des mesures sur le radon.

La source de radon est formée des grains solides de pechblende contenus dans quatre boîtes de dimension 10x10x10 mm^3. La masse de pechblende est de 20 g par boîte, son activité en ^{226}Ra est de 700 ± 22 Bq/g. Les boîtes source sont placées dans un tube en plastique de 4,6 cm de diamètre et 20 cm de longueur. Le radon exhalé est ensuite transporté dans le volume de détection par un gaz porteur à travers un tuyau de plastique transparent de 0,7 cm de diamètre interne. Pour toutes les mesures présentées dans ce chapitre, le gaz porteur était l'air ambiant avec un débit contrôlé par un ou deux débitmètres suivant les cas. Deux distances source-détecteur ont été utilisées, l'une très petite avec un tuyau de 50 cm de longueur (volume de 0,019 litre) et l'autre très grande avec un tuyau de 25 m (volume de 1 litre) pour se rapprocher des conditions de NEMO3.

Pour chaque mesure, la réponse du détecteur est donnée par l'aire des pics alpha caractéristiques du radon : E_α = 6,0 MeV pour le ^{218}Po et E_α = 7,7 MeV pour le ^{214}Po. Les spectres en énergie des particules alpha sont enregistrés automatiquement toutes les 4 h. Si besoin, cet enregistrement automatique des spectres peut être effectué par tranches de 6 h ou 12 h.

La figure 4.2 montre l'évolution des taux de comptage des raies alpha en fonction du temps pour un débit d'air de 0,2 l/mn. Dans cet exemple, l'intérieur de la cuve a été au préalable purgé par un flux d'azote. L'ordonnée est le nombre d'événements détectés par tranche de 4 h, l'abscisse est le temps en heures.

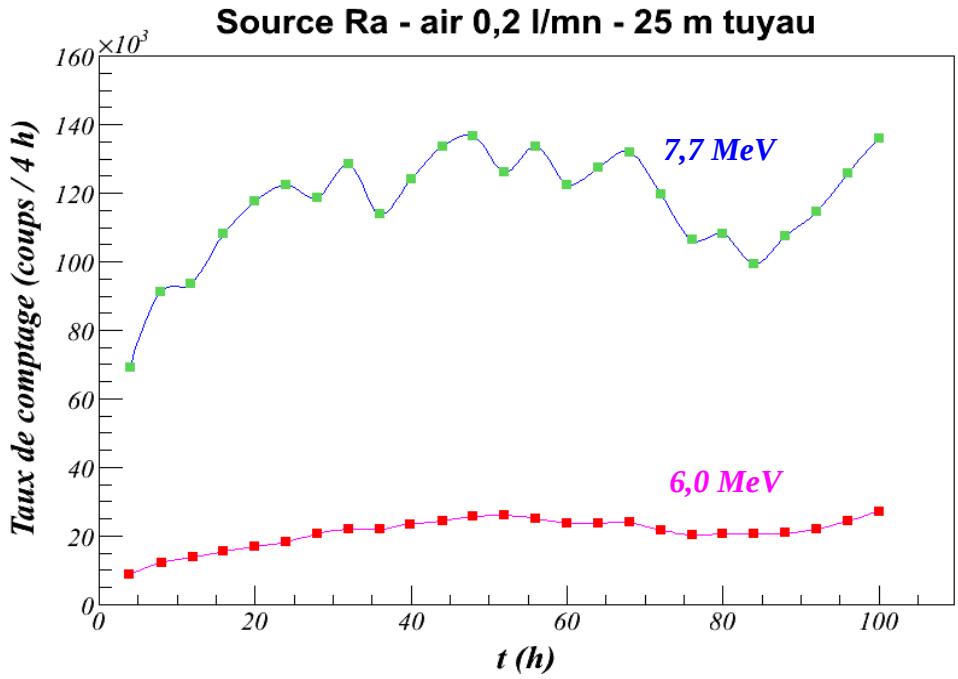


FIG. 4.2 – Evolution du taux de comptage des raies alpha de 7,7 MeV et 6,0 MeV en fonction du temps. Le gaz porteur est de l'air.

On voit que le taux de comptage augmente régulièrement pendant environ 30 h puis se stabilise. Le temps nécessaire pour atteindre l'état d'équilibre dépend du débit, plus le débit est grand, plus vite cet équilibre est établi. Le taux de comptage de la raie alpha de 6,0 MeV est nettement plus faible que celui de la raie alpha de 7,7 MeV. Ceci est une conséquence du taux d'humidité dans l'air qui a tendance à neutraliser rapidement les ions polonium. Sur la courbe correspondant à la raie alpha de 7,7 MeV, les oscillations correspondent à un effet bien connu jour-nuit [35]. Les baisses de comptage vers 80 h correspondent à une légère variation du débit. L'activité radon est calculée en prenant la valeur moyenne obtenue à l'équilibre.

En général, le taux de comptage à 7,7 MeV sera pris comme grandeur de référence pour étudier l'influence des paramètres expérimentaux sur la réponse du détecteur.

4.2 – Influence des paramètres expérimentaux sur la détection du radon

4.2.1 – Influence de la haute tension

La tension de collection électrostatique entre la cuve et la photodiode recommandée par le constructeur est de 1500 V [14]. Pour étudier l'influence de cette haute tension sur l'efficacité de collection, nous avons mesuré le taux de comptage de la raie alpha de 7,7 MeV avec la source de radium, l'air ambiant comme gaz porteur et un débit de 2 l/mn. Dans ces conditions, la figure 4.3 montre la courbe obtenue avec 9 valeurs différentes de tension entre 300 V et 3500 V.

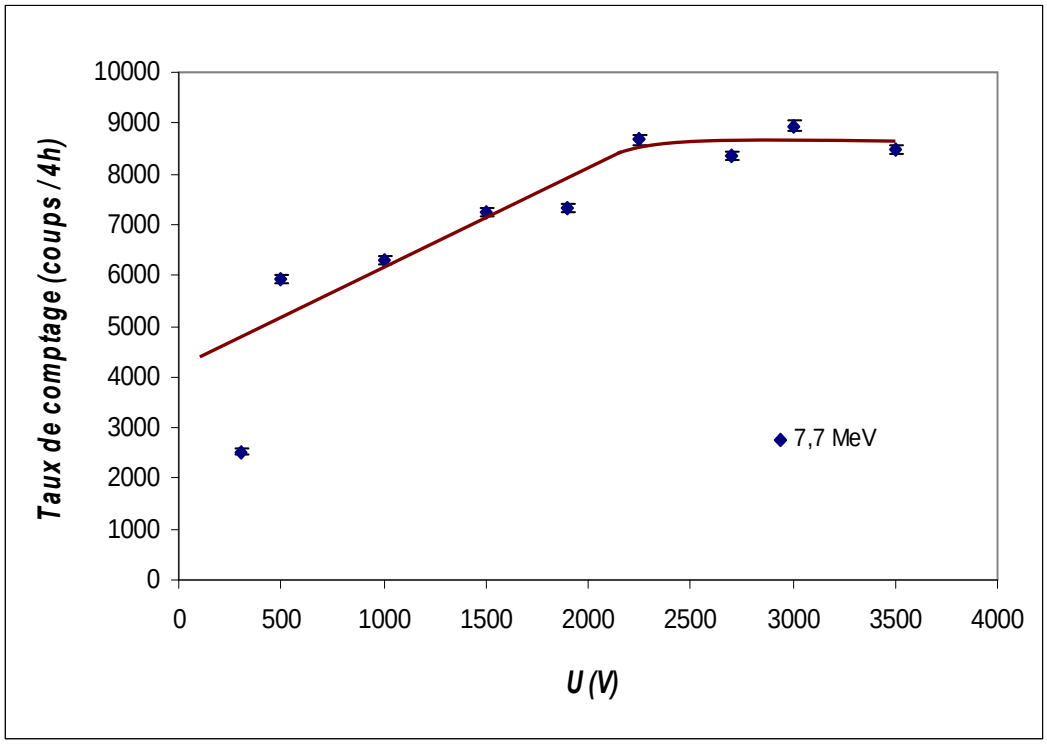


FIG. 4.3 - Dépendance du taux de comptage en fonction de la haute tension de collection. Débit de 2 l/mn.

Nous pouvons observer que l'efficacité de collection augmente presque linéairement jusqu'à 2000 V et semble être saturée au-delà. Comme la différence des taux de comptage entre 1500 V et 2000 V n'est que d'environ 10 %, nous avons choisi de respecter la consigne des constructeurs et de faire toutes les mesures à 1500 V.

4.2.2 – Influence de la température de la source

Il est bien connu que le processus d'émanation est fortement dépendant de la température du matériau contenant le ^{226}Ra. Pour étudier cet effet, nous avons repris le dispositif précédent en enroulant un cordon chauffant autour de la source. La température est contrôlée en plaçant simplement un thermomètre à l'intérieur du tube source.

La figure 4.4 ci-dessous montre la variation en taux de comptage entre 20 °C et 50 °C. Cette variation semble être quasiment linéaire, ce qui est en d'accord avec les études précédentes [36].

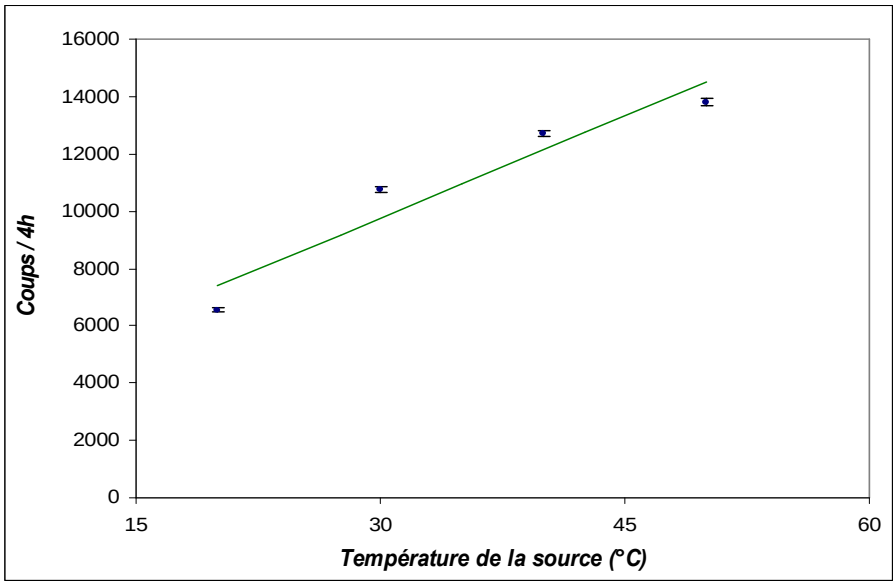


FIG. 4.4 – Dépendance de l'émanation en fonction de la température de la source.

Rappelons que cet effet de température a une influence sur l'expérience NEMO puisqu'il a fallu installer un film plastique pour séparer le détecteur NEMO3 de son électronique d'acquisition.

Cet effet de température sur la source a été également observé lors d'une mesure effectuée au cours du mois de février. Pendant les 15 jours de prise de données, le chauffage de la pièce était arrêté la nuit et mis en route le matin, d'où un écart entre le jour et la nuit d'environ 15 °C. La figure 4.5 montre l'influence surtout pour la raie alpha de 7,7 MeV. Les maxima sont atteints dans l'après-midi vers 14 h, les minima au milieu de la nuit.

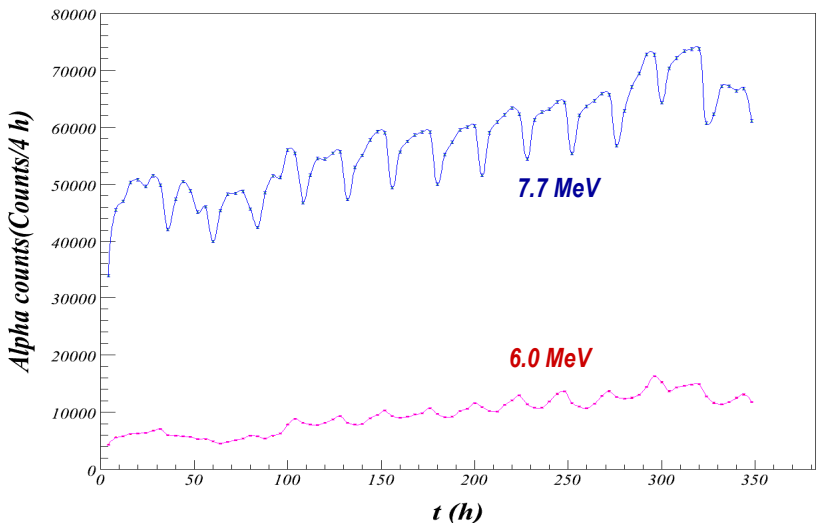


FIG. 4.5 – Effet jour-nuit de l'émanation du radon observée par le détecteur de radon.

4.2.3 – Influence de l'humidité.

Après la décroissance α du ^{222}Rn, le ^{218}Po se retrouve dans un état multichargé [6]. Sa période de 3,05 mn lui laisse largement le temps de migrer vers la diode. Si l'efficacité de collection électrostatique du ^{218}Po est de 100 %, les intensités des raies alpha de 6,0 MeV et 7,7 MeV doivent être identiques. En effet, un spectre montrant des intensités voisines des ces deux raies ont été observées lors d'une mesure effectuée avec un air séché (H < 10%), comme présenté dans la figure 4.6.

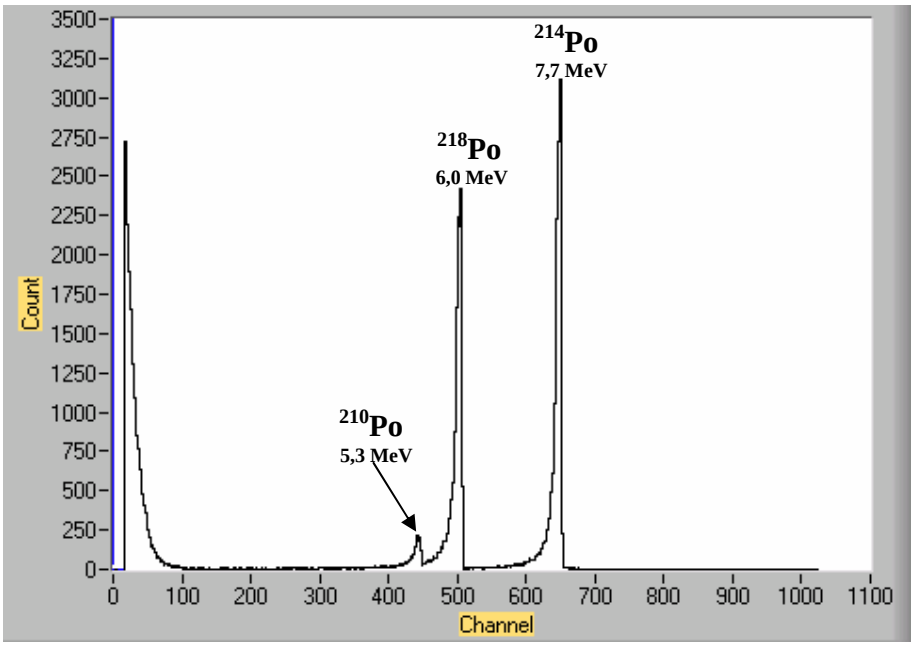


FIG. 4.6 – Spectre en énergie des particules alpha obtenu lors d'une mesure avec un air séché. On y observe des intensités voisines des deux raies alpha à 6,0 MeV et 7,7 MeV.

Pourtant, les expériences effectuées jusqu'à présent avec l'air ambiant comme gaz porteur ont montré que ceci était loin d'être le cas. Un exemple récent est illustré sur la figure 4.5 où nous observons un facteur 5 entre les intensités des deux raies. Cet effet est dû à la présence d'humidité dans l'air qui favorise le processus de neutralisation essentiellement par capture électronique des radicaux OH^-.

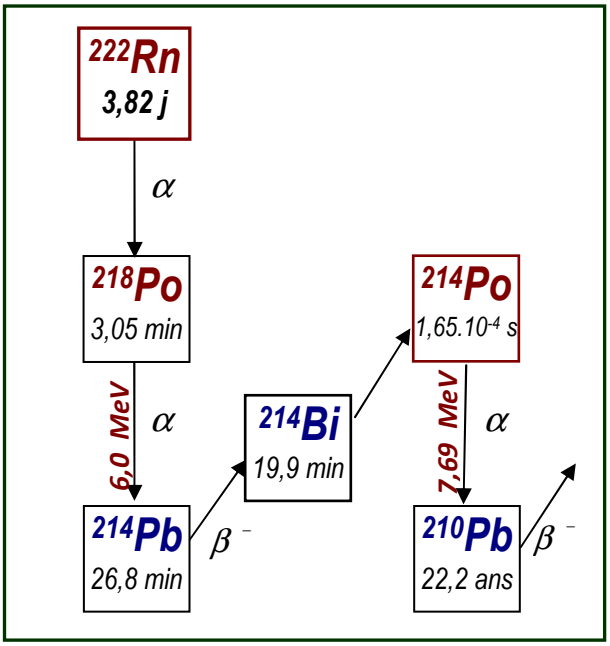


FIG. 4.7 – Schéma partiel de la décroissance du radon.

Si le taux d'humidité dans l'air a une forte influence sur l'intensité du pic alpha de 6,0 MeV, qu'en est-il pour celle du pic alpha de 7,7 MeV ? Pour le vérifier, nous avons effectué trois mesures à température ambiante ~20 °C et dans des conditions d'humidité extrêmes : d'abord, en faisant barboter l'air ambiant dans de l'eau (taux d'humidité proche de 100 %), en utilisant l'air du laboratoire (taux d'humidité ~ 60 %), et enfin en plaçant un dessiccateur (taux d'humidité ~ 30 %) comme présenté figure 4.8.

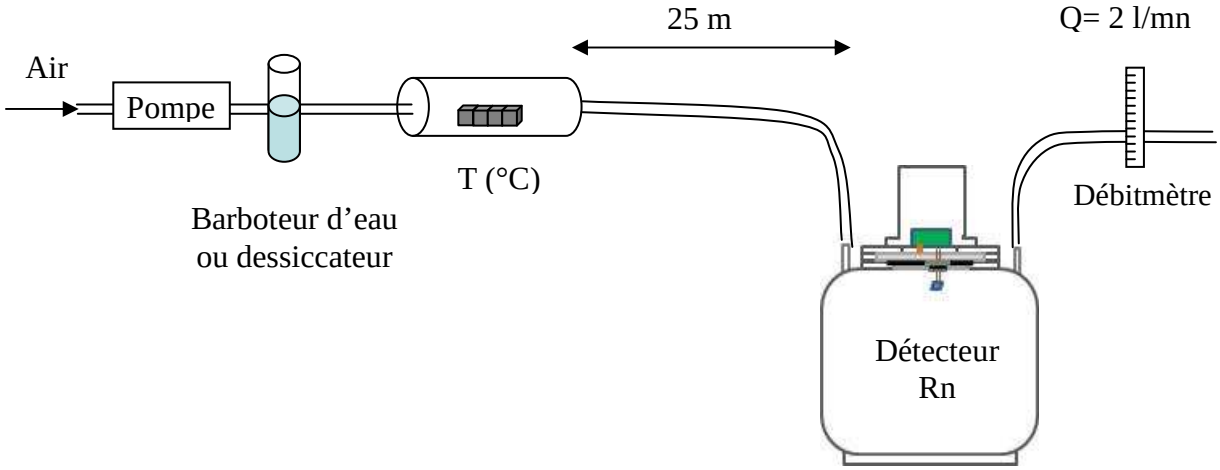


FIG. 4.8 – Dispositif expérimental utilisé pour étudier l'influence de l'humidité de l'air. Le débit d'air est de 2 l/mn.

Les taux de comptage de deux raies alpha sont reportés dans le tableau 4.1 ci-dessous.

Raie alpha	Air humide (H% ~ 100 %)	Air normal (H% ~ 60 %)	Air séché (H% ~ 30%)
6,0 MeV	920 ± 30	890 ± 30	5330 ± 70
7,7 MeV	7110 ± 80	6540 ± 80	8040 ± 90

TAB. 4.1 – Taux de comptage des raies alpha (coups/4 h) observés dans l'air humide, l'air normal et l'air sec. Le débit était de 2 l/mn.

On constate donc un effet très important sur le pic alpha de 6,0 MeV du ^{218}Po : entre l'air normal et un air saturé en humidité, les taux de comptage sont très voisins. Par contre, dès que l'air est séché, le taux de comptage augmente très fortement. Cependant, les taux de comptage de la raie alpha de 7,7 MeV sont peu influencés par le taux d'humidité. Cet effet a été observé par Y.Takeuchi et al. sur le même type de détecteur [14] où on constate une bonne stabilité de la réponse du détecteur au pic alpha de 7,7 MeV pour des taux d'humidité absolue supérieurs à 2 g/m^3, correspondant à ~ 10 % d'humidité relative à ~ 20°C (voir figure 4.9).

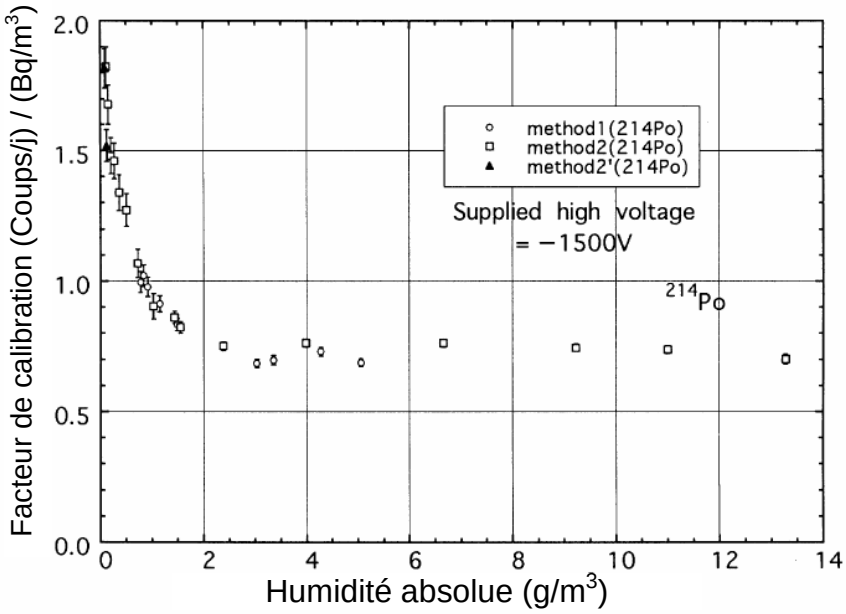


FIG. 4.9 – Influence de l'humidité absolue du gaz sur la réponse du pic alpha de 7,7 MeV [14].

Notons qu'en dessous de 2 g/m^3, c'est-à-dire pour un gaz porteur très sec, le taux de comptage du pic alpha de 7,7 MeV augmente jusqu'à un facteur 2,2 en l'absence totale d'humidité.

En présence d'humidité, le ^{218}Po se neutralise très rapidement et n'est plus collecté, ce qui explique la forte diminution du taux de comptage de la raie alpha de 6,0 MeV. Par contre, pour la raie alpha de 7,7 MeV du ^{214}Po, il existe deux chances supplémentaires pour cet atome d'être collecté par le $^{214}Pb^{q+}$ et le $^{214}Bi^{+}$, éléments chimiquement beaucoup moins actifs. Cela explique pourquoi cette raie de 7,7 MeV est toujours utilisée dans les mesures de radon par méthode spectroscopique.

Cette influence du taux d'humidité du gaz porteur a des conséquences sur les mesures de radon dans le gaz du détecteur NEMO3. En effet, nous avons déjà vu que le gaz de NEMO3 est un mélange d'hélium, d'alcool, d'argon et d'eau. La présence d'alcool et d'eau neutralise très rapidement l'ion du ^{218}Po et par conséquent le pic alpha de 6,0 MeV n'est jamais observé dans le gaz à la sortie de NEMO3 (voir figure 2.11). Par contre, vu les faibles proportions d'alcool (~ 4 %) et d'eau (0,1 %), on ne s'attend pas à une forte dégradation de l'efficacité de collection du $^{214}Pb^{q+}$ et du ^{214}Bi. Mais ceci demanderait à être vérifié expérimentalement en utilisant le mélange de gaz NEMO3 comme gaz porteur.

4.2.4 – Influence du débit du gaz porteur

Comme on l'a vu dans la section 4.1 (figure 4.2), les taux de comptage des deux raies alpha évoluent en fonction du temps jusqu'à atteindre un niveau d'équilibre. La figure 4.2 a été obtenue pour un débit faible de 0,2 l/mn. Pour étudier l'influence du débit, nous avons repris notre dispositif expérimental en l'équipant d'une vanne et d'un débitmètre permettant de régler le débit de l'air ambiant à travers la source de radium. La figure 4.10 ci-dessous montre les taux de comptage de la raie alpha de 7,7 MeV à la saturation pour des valeurs de débit de 0,2 l/mn à 4 l/mn.

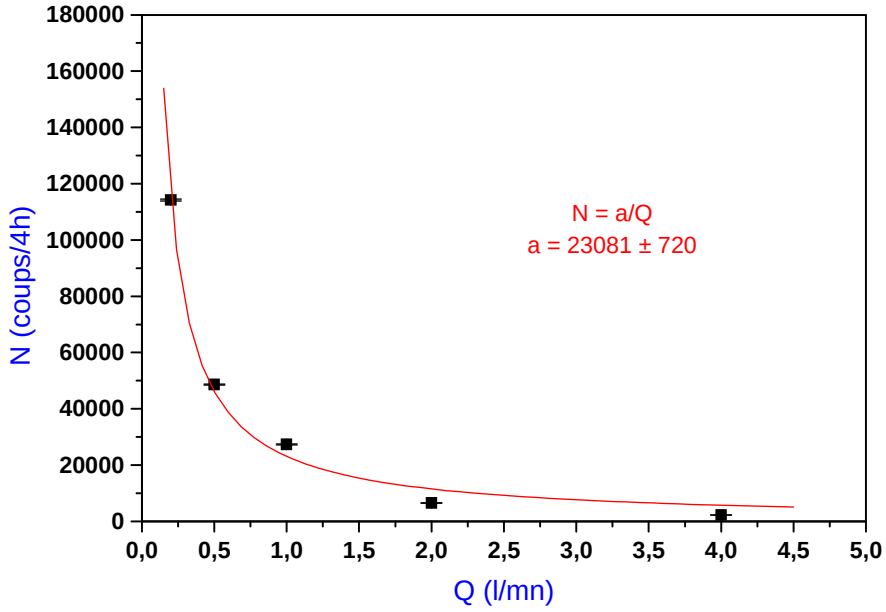


FIG. 4.10 – Dépendance du taux de comptage à la saturation de la raie alpha de 7,7 MeV en fonction du débit. La courbe continue correspond à un ajustement en a/Q, où Q est le débit en l/mn.

Il est évident que plus le débit est élevé, plus le taux de comptage de la raie de 7,7 MeV est faible, ce qui se comprend très simplement puisque le temps moyen de résidence du radon dans la cuve décroît. On peut remarquer ainsi qu'il vaut mieux faire les mesures de radon à des débits faibles pour augmenter la sensibilité de détection.

Pour calculer l'influence du débit, on peut établir l'équation différentielle suivante :

$$\frac{dN}{dt} = N_{em} - \lambda N - \frac{Q}{V_{total}} N \tag{4.1}$$

où N est le nombre de noyaux radon présents dans la cuve,

N_{em} (noyaux/mn) l'activité d'émanation du radon à partir de la source radium,

λ (mn^{-1}) la constante de désintégration du radon,

Q (l/mn) le débit du gaz porteur,

et V_{total} (l) le volume total du dispositif (source + tuyau + cuve).

Le dernier terme tient compte du nombre de noyaux du radon qui sortent de la cuve avant de se désintégrer, à cause du flux du gaz porteur injecté.

La solution de l'équation différentielle (4.1) est la suivante :

$$N(t) = \frac{N_{em}}{\lambda + \frac{Q}{V_{total}}} \left[1 - e^{-(\lambda + \frac{Q}{V_{total}})\, t} \right] \tag{4.2}$$

Si ε est l'efficacité de détection des particules alpha, le taux de comptage, correspondant au nombre de désintégrations du radon dans la cuve, est alors :

$$N_{\det}(t) = \lambda \varepsilon\, N(t) \tag{4.3}$$

La figure 4.11 donne à titre d'exemple l'évolution du taux de comptage pour les deux débits de 0,2 l/mn et de 1 l/mn.

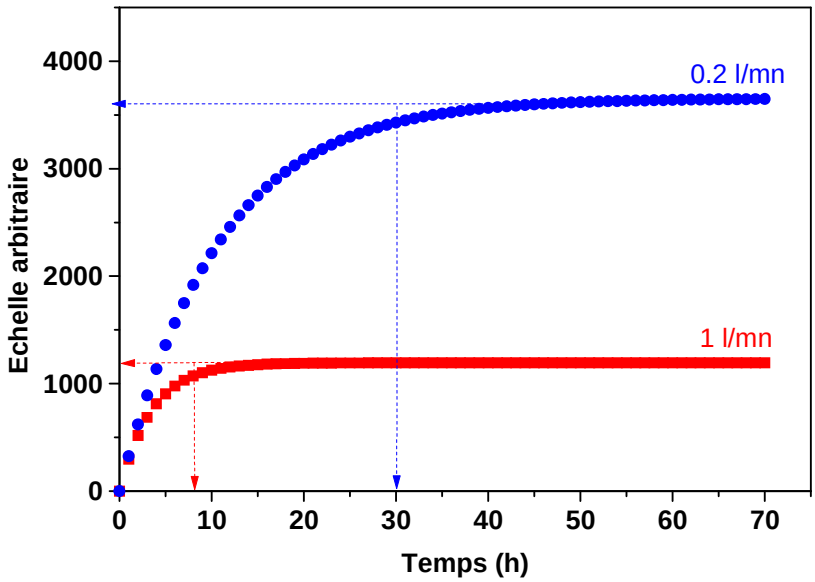


FIG. 4.11 – Evolution du taux de comptage d'une raie alpha en fonction du temps pour deux valeurs du débit de gaz porteur.

Au départ des prises des données, pour des temps très courts, les taux de comptage sont donnés par le produit $\lambda\,\varepsilon\,N_{em}$, c'est à dire indépendamment du débit. Pour des temps très longs, les valeurs de saturation sont données par l'expression suivante : $\lambda\,\varepsilon\,N_{em}/(\lambda+\frac{Q}{V_{total}})$. Dans nos conditions habituelles, λ est de l'ordre de 10^{-4} mn^{-1} tandis que le terme $\frac{Q}{V_{total}}$ varie de 10^{-3} à 10^{-2} mn^{-1} pour la gamme des débits choisis, ce qui nous permet en pratique de négliger λ pour Q ≥ 0,5 l/mn et de montrer que la valeur de saturation est bien inversement proportionnelle au débit. La figure 4.10 montre l'ajustement des données expérimentales obtenues pour les différents débits avec la fonction :

$$f(Q)=\frac{a}{Q} \tag{4.4}$$

où la constante a représente le produit $\lambda\,\varepsilon\,N_{em}\,V_{total}$.

Notons que le temps nécessaire pour arriver à la saturation est lui-même dépendant du débit. Mais pour observer cet effet, il faut s'assurer qu'au départ de la mesure il n'y a plus aucune trace de radon dans la cuve. Cette condition est rarement satisfaite, sauf si la cuve est au préalable purgée avec de l'azote et si on attend plusieurs heures pour la décroissance complète des descendants du radon préalablement fixés sur la diode avant le démarrage d'une mesure.

4.2.5 – Etude de la distance source-détecteur

Dans le cadre de l'expérience NEMO, le détecteur de radon est placé à une dizaine de mètre du détecteur NEMO3. Afin de vérifier une éventuelle influence de la distance entre la source et le détecteur de radon, nous avons repris le même dispositif expérimental habituel mais en plaçant la source de radon à deux distances du détecteur , l'une proche à 0,5 m et l'autre éloignée à 25 m. Les résultats obtenus ne montrent aucune différence considérable sur les taux de comptage de deux raies alpha à l'équilibre (voir figure 4.12), ce qui se comprend facilement compte tenu de la période longue du radon. La probabilité de décroissance du radon pendant le temps de transit est négligeable.

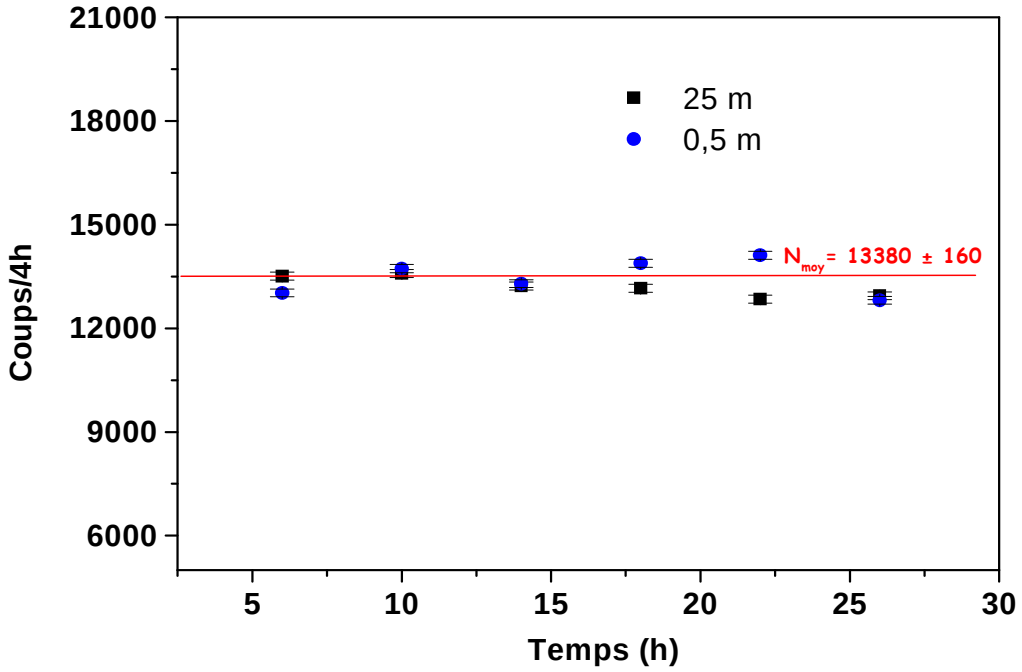


FIG 4.12 – Comparaison du taux de comptage obtenu à la saturation dans la raie alpha de 7,7 MeV pour deux mesures avec à 0,5 m et 25 m de distance source-détecteur. Le débit était de 2 l/mn et la température source de 40°C. Notons que pour ce débit, la saturation est atteinte au bout d'environ 10 h.

Afin de vérifier si les descendants peuvent éventuellement se fixer sur le tuyau en plastique, nous avons effectué une mesure de radon émané à partir de la source en utilisant l'air du laboratoire comme gaz porteur et un tuyau de 25 m de longueur. Le balayage a duré pendant 24 h et à la fin, un échantillon de tuyau de 60 cm de longueur coupé à l'extrémité a été mesuré par spectrométrie gamma. La figure 4.13 présente le spectre en énergie des rayonnements gamma enregistré en 3 heures, c'est-à-dire environ 6 fois la période de ^{214}Pb. Aucune raie caractéristique du ^{214}Pb ou du ^{214}Bi n'est présente sur le spectre, ce qui indique une absence de dépôt. Ici encore cela se comprend facilement, la probabilité de désintégration du radon pendant son trajet dans le tuyau est très faible.

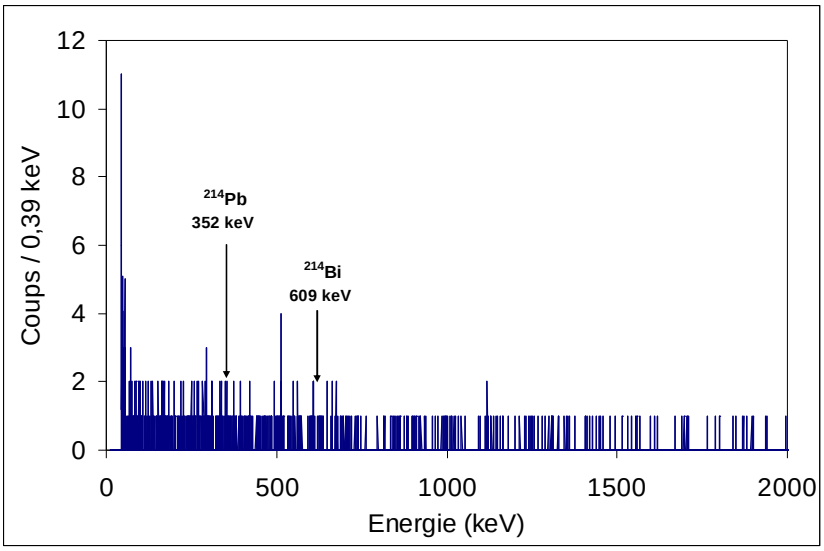


FIG. 4.13 – Spectre en énergie des rayonnements gamma enregistré en 3 h pour les derniers 60 cm de tuyau après 24 h de dépôt.

Nous verrons plus tard que dans le cadre du thoron, la situation est complètement différente.

4.3 – Calibration du détecteur en radon

La calibration du détecteur en radon a été effectuée par Y. Takeuchi [13]. Cet étalonnage a été réalisé en circuit fermé avec un débit de gaz porteur de 3 l/mn. En circuit fermé, compte tenu du fait que le volume principal du circuit est composé de la cuve, cet étalonnage est peu dépendant du débit. Par la suite, pour toutes les mesures effectuées sur le gaz de NEMO, nous avons utilisé le même facteur de calibration, c'est-à-dire 1 coup/j dans la raie alpha de 7,7 MeV équivaut à 1 mBq/m^3 de radon dans le gaz. Or nos mesures ont toutes été réalisées en circuit ouvert et avec des débits différents. Il devenait donc nécessaire de vérifier la relation entre coup/j et mBq/m^3 dans diverses conditions.

La première vérification a été de comparer notre détecteur de radon avec un autre détecteur appelé Radim 2P, développé et étalonné en radon par le constructeur tchèque [37]. Le Radim 2P est une chambre de 0,7 l de volume qui fonctionne sur le même principe de collection électrostatique des descendants du radon vers la surface d'un semi-conducteur grâce à une haute tension de 2000 V. Sa sensibilité est de l'ordre du Bq/m^3. La comparaison a été faite en plaçant le Radim 2P et notre détecteur dans la même pièce et en mesurant simultanément la teneur en radon de l'air. Pour notre détecteur, le débit d'air a été réglé à 1 l/mn et la mesure a été effectuée dans les conditions normales, une température de 20°C et un taux d'humidité d'environ 70 %. Le dispositif expérimental est présenté dans la figure 4.14.

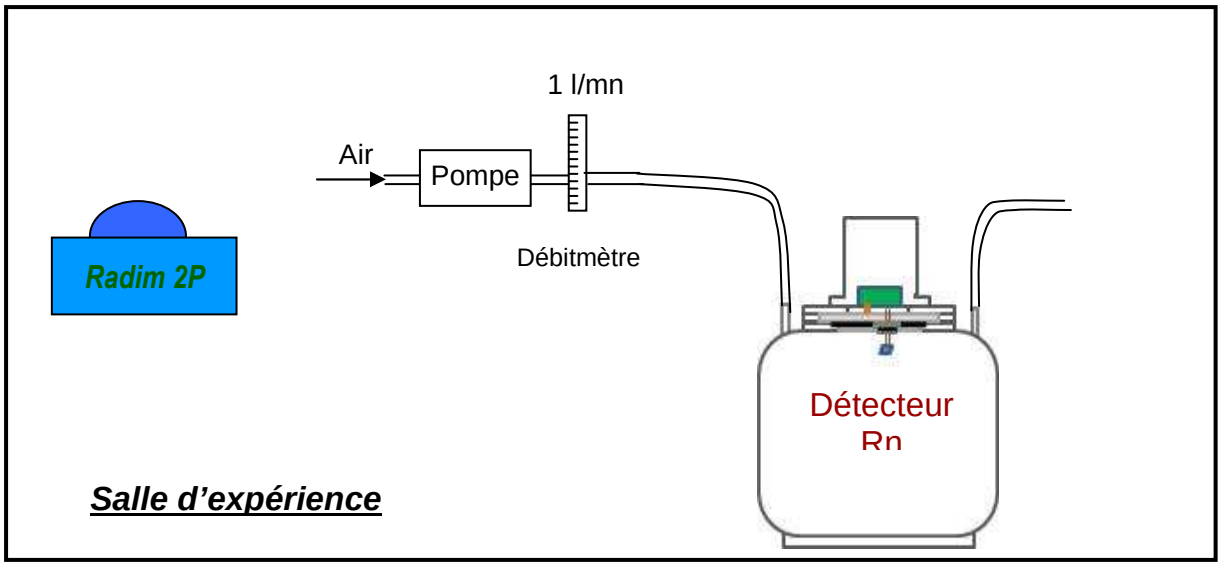


FIG. 4.14 – Dispositif expérimental pour une comparaison entre notre détecteur et le détecteur Radim 2P.

L'activité du radon mesurée par le Radim 2P était de 37 Bq/m^3. Le taux de comptage à l'équilibre pour la raie alpha de 7,7 MeV enregistré par notre détecteur de radon était de 35500 coups/j. Le facteur de calibration ainsi calculé est de 0.96 (coups/j)/(mBq/m^3).

Nous avons déjà vu dans le paragraphe 2.6 (figure 2.16) que le taux de comptage de la raie alpha de 7,7 MeV mesuré dans le gaz en sortie de NEMO3 était de 1,6 ± 0,1 coups/j. Cette mesure a été effectuée en circuit ouvert avec un débit ~ 3 l/mn. En appliquant la correction de débit (formule 4.4), on obtient pour le gaz à la sortie de NEMO3 une activité voisine de 5 mBq/m^3. Si on admet que le temps moyen de résidence du gaz dans le volume de 28 m^3 de NEMO3 est de l'ordre d'une période du radon, on peut en déduire que le niveau moyen du radon à l'intérieur du détecteur NEMO3 est d'environ 10 mBq/m^3. Rappelons que les résultats des analyses des événements de NEMO3 ont conduit à une activité déposée en ^{214}Bi de 6,46 ± 0,02 mBq/m^3 [20].

Récemment, nous avons essayé de mettre au point une autre méthode de calibration en couplant en série le détecteur de radon avec un détecteur Germanium bas bruit de fond. L'idée de départ était de voir s'il était possible de calibrer le détecteur de radon dans les mêmes conditions que celles de NEMO, c'est-à-dire avec le même mélange de gaz porteur. Le dispositif expérimental est présenté dans la figure 4.15. Il comprend la source de radium, une pompe de débit réglable et environ 4 m de tuyau plastique enroulé autour du capot du détecteur Germanium.

Un premier test a été réalisé en circuit ouvert, c'est-à-dire la sortie de la cuve libre, non-connectée à la pompe. Après plusieurs jours de fonctionnement, aucune raie gamma caractéristique des descendants n'a pu être observée dans le spectre gamma enregistré, ce qui se comprend facilement puisque la probabilité de décroissance du radon (~ 2.10^{-5}) devant le détecteur GeHP est extrêmement faible.

Afin d'augmenter la probabilité de décroissance, nous nous sommes placés dans le cas d'un circuit fermé, c'est-à-dire la sortie du détecteur de radon connectée à la pompe. La mesure a été effectuée à un débit de 1 l/mn.

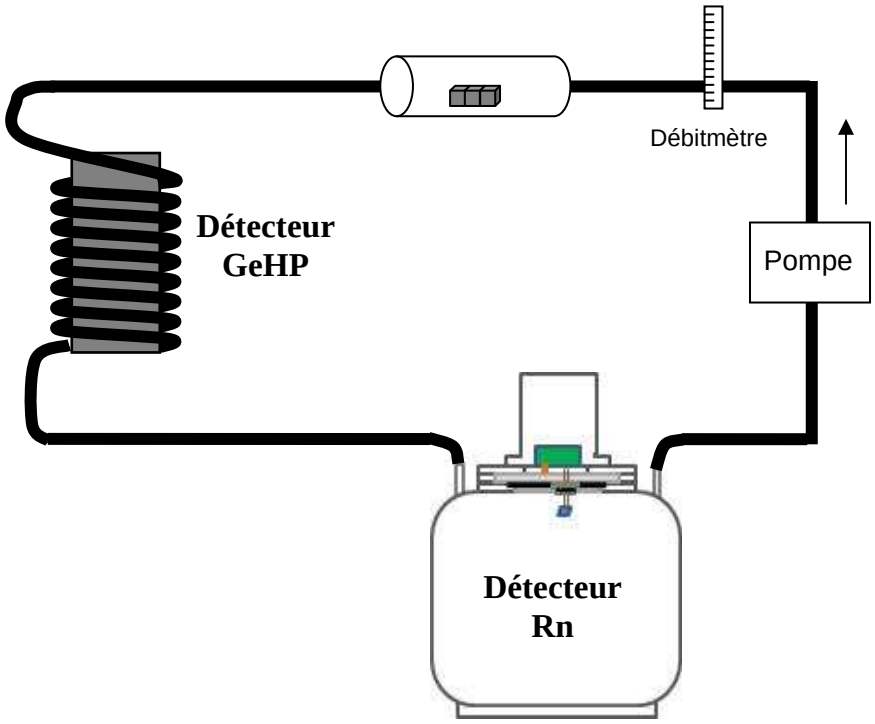


FIG. 4.15 – Dispositif expérimental pour la calibration du détecteur de radon.

Le volume du circuit extérieur au détecteur de radon est de 0,3 l. Comme le volume de la cuve est de 80 l, la décroissance du radon a lieu essentiellement à l'intérieur de la cuve avec une probabilité d'environ 1 %, les 99 % restants continuent à tourner dans le circuit. Son descendant direct, le ^{218}Po est soit collecté sur la diode, soit rapidement neutralisé suivant le taux d'humidité. Dans tous les cas, le ^{218}Po, de période de 3,05 mn, ne peut pas sortir de la cuve du détecteur de radon. Par contre, son descendant, le ^{214}Pb, de période de 26,8 mn, reste à l'intérieur de la cuve approximativement durant 3 fois sa période. Environ 12 % de ces noyaux ^{214}Pb peuvent sortir de la cuve pour se désintégrer au passage devant le détecteur GeHP. Dans ce cas, on peut observer sur le spectre en énergie des rayonnements gamma du détecteur GeHP la raie de 352 keV émise par le ^{214}Pb, comme montré sur la figure 4.16.

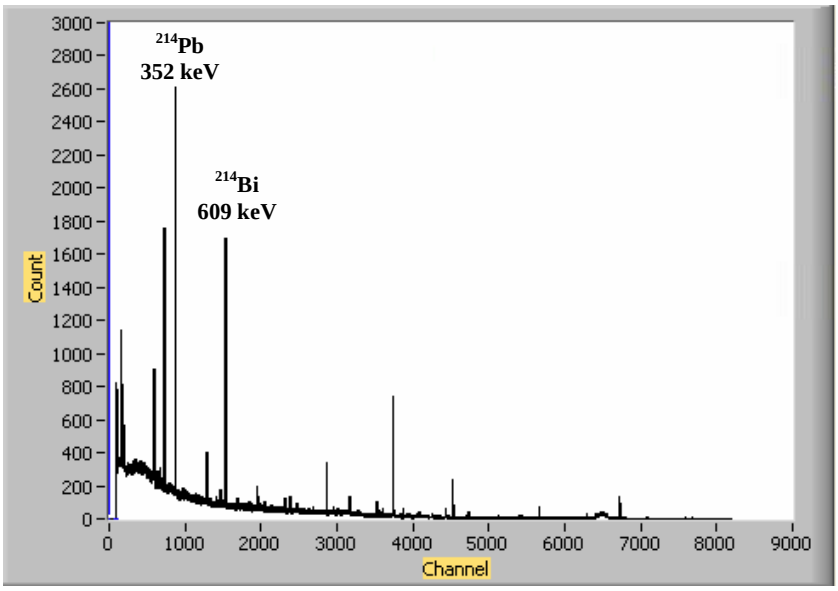


FIG. 4.16 – Spectre en énergie des rayonnements gamma obtenu après 9 jours de mesure en circuit fermé avec l'air ambiant comme gaz porteur et un débit de 1 l/mn. La source est composée de 3 boîtes de radium.

De plus, après désintégration, le ^{214}Pb donne naissance au ^{214}Bi qui, lui aussi, peut sortir de la cuve et venir se désintégrer au passage devant le détecteur GeHP. Dans ce cas, il émet un rayonnement γ de 609 keV, le plus intense de toutes les raies gamma émises. Ce mécanisme correspond à la partie libre des descendants.

En outre, même si la probabilité est faible, le radon peut décroître à l'extérieur de la cuve et ses descendants, surtout le ^{218}Po, peuvent se fixer sur le tuyau. Ce mécanisme correspond à la partie attachée des descendants.

La partie libre des descendants est détectée par le GeHP pendant un temps très court, le temps de passage des ions devant le GeHP, soit quelques secondes. Par contre, la partie attachée, beaucoup plus faible en probabilité de production, est mesurée par le GeHP pendant un temps très long, qui est le temps total de l'acquisition GeHP. La proportion entre partie libre et partie attachée est difficilement quantifiable.

Bien évidemment, la désintégration du radon dans la cuve (probabilité de 1% à chaque passage) conduit au spectre en énergie habituel des particules alpha, comme présenté sur la figure 4.17. Le taux de comptage de la raie alpha de 7,7 MeV atteint un état d'équilibre après environ 80 h (figure 4.18), beaucoup plus long que pour un circuit ouvert, pour lequel il est atteint au bout de 10 h avec un débit de 1 l/mn.

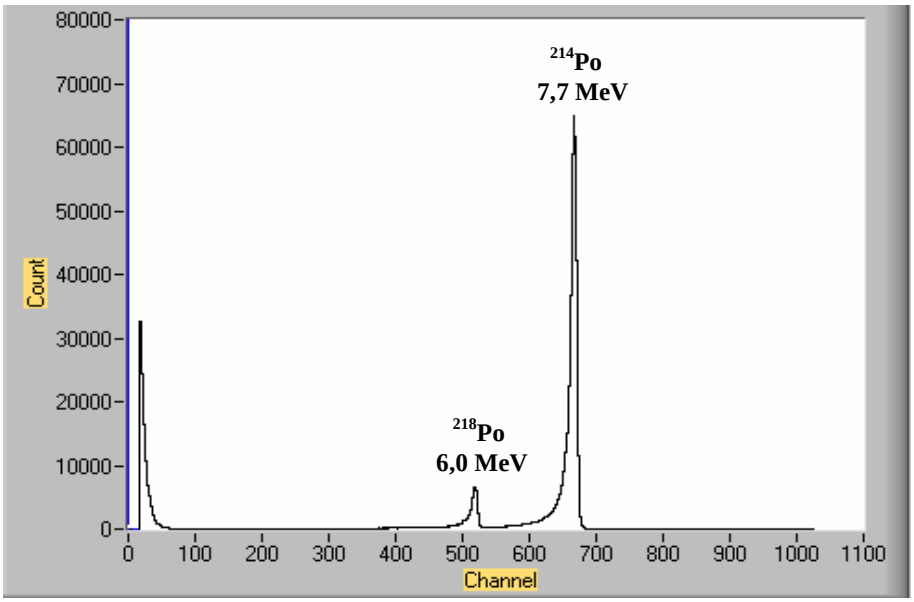


FIG. 4.17 – Spectre en énergie des particules alpha obtenu après 9 jours de mesure en circuit fermé avec l'air ambiant comme gaz porteur et un débit de 1 l/mn. La source est composée de 3 boîtes de radium.

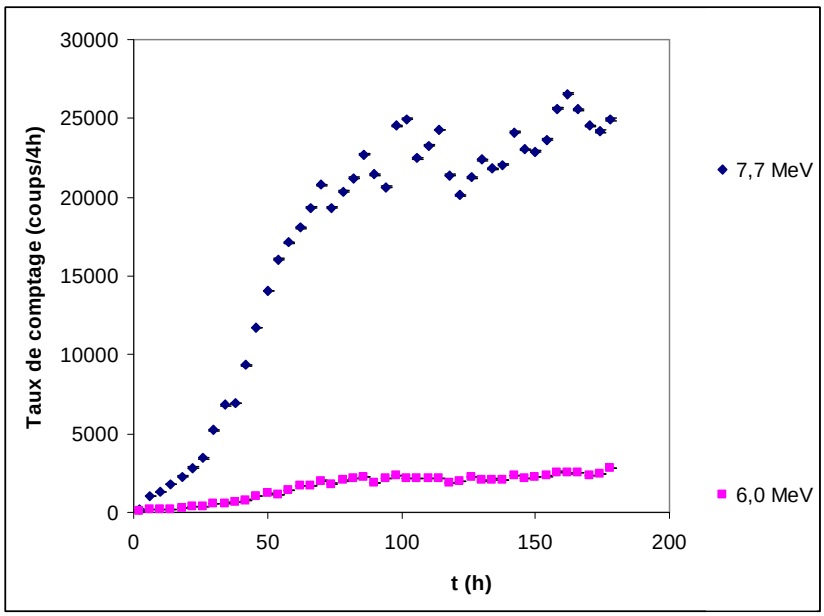
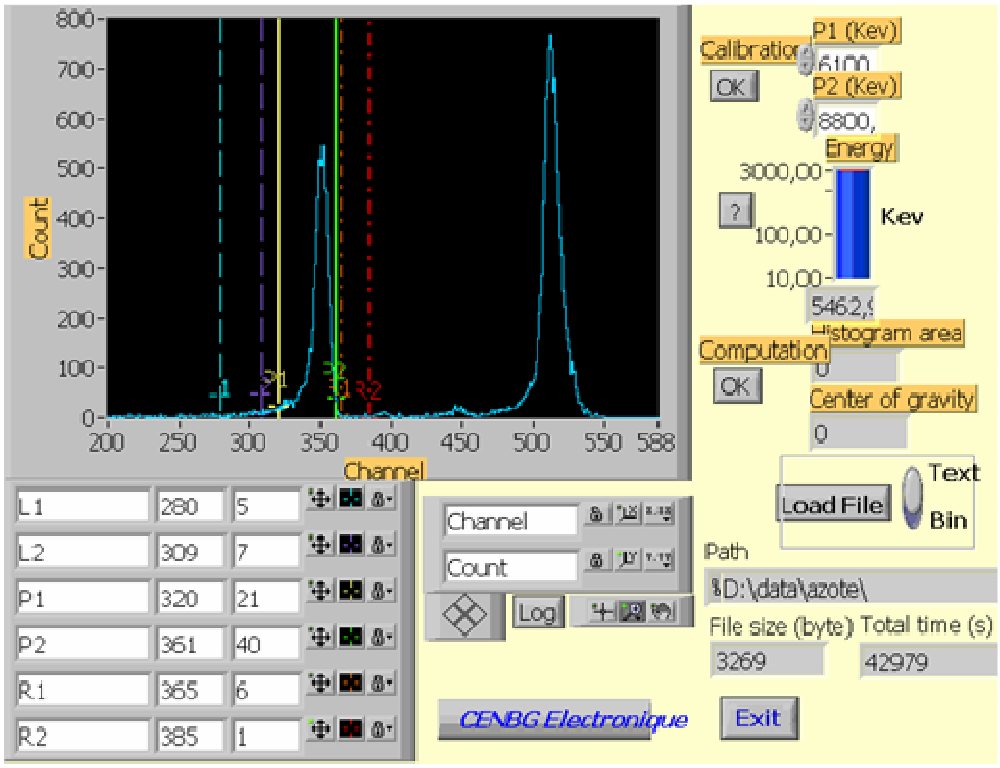


FIG. 4.18 – Taux de comptage des raies alpha de 6,0 MeV et 7,7 MeV en fonction du temps.

On voit donc qu'une corrélation quantitative entre le spectre en énergie des rayonnements gamma enregistré sur le GeHP et le spectre des particules alpha enregistré sur la photodiode dépend de multiples paramètres, tels que le facteur d'émanation en radon de la source, les parties libres et attachées, les efficacités de collection électrostatique, les probabilités de décroissance pour chacun des volumes, etc. Cette méthode demande ainsi une étude plus détaillée avec le développement d'une simulation Monte-Carlo.

Chapitre 5

Etudes du thoron au CENBG



Photographie de l'écran du PC de visualisation compte tenant un spectre alpha des descendants du thoron.

Dans la section 2.6 (figure 2.17), nous avons vu que la mesure du gaz à la sortie du détecteur NEMO3, à l'aide du détecteur de radon, a montré un taux de comptage d'environ (1,5 ± 0,1) coups/j dans la raie alpha de 8,8 MeV du ^{212}Po, après la soustraction du bruit de fond. Ceci semble impliquer une présence faible mais mesurable de thoron. Or, le facteur de calibration du détecteur en thoron n'a jamais été mesuré. L'initiative de ce travail était donc d'étudier la réponse au thoron du détecteur de radon aux différents paramètres expérimentaux puis d'essayer de le calibrer en thoron dans des conditions proches de NEMO3.

De suite, on peut remarquer que le comportement du thoron par rapport au radon sera très différent, à cause de sa période courte (55,6 s) ainsi que celle de son descendant direct le ^{216}Po (0,15 s). Ceci implique des conditions expérimentales plus difficiles et explique pourquoi il existe peu d'études du thoron dans la littérature.

5.1 – Vue d'ensemble du dispositif expérimental

Le schéma de principe pour une expérience de thoron est présenté sur la figure 5.1.

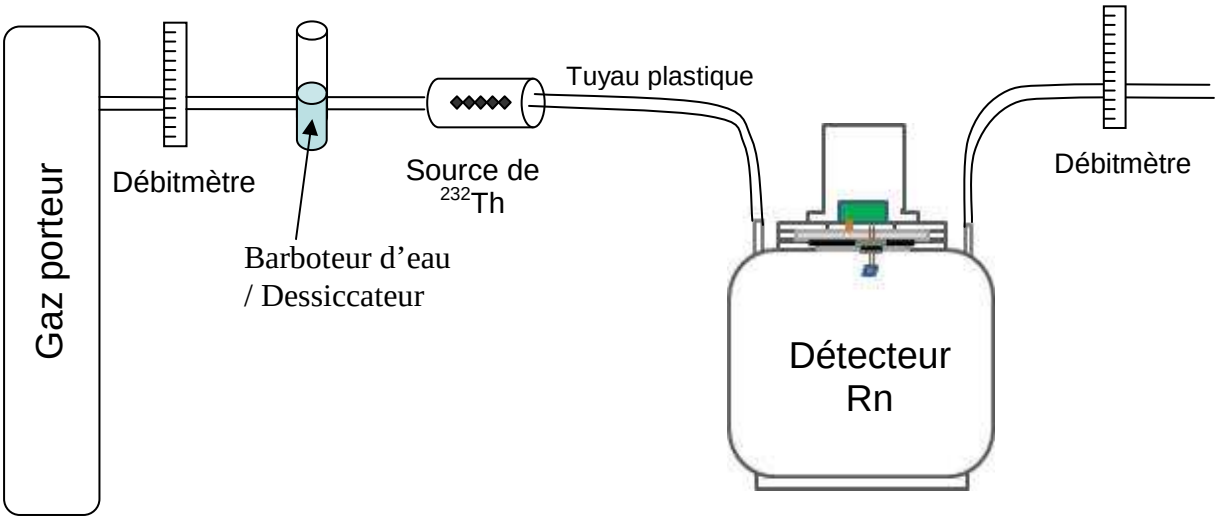


FIG. 5.1 – Schéma de principe d'une expérience sur le thoron. Le gaz porteur est soit de l'air ambiant soit une bouteille d'azote. La source est composée de plusieurs pastilles de thorium métallique.

Les sources sont formées par l'émanation de thoron à partir de plusieurs pastilles de thorium métallique de dimensions 10x10x1 mm^3. La masse d'une pastille est d'environ 1,16 g, ce qui correspond à une activité en ^{232}Th de 4700 Bq. Le facteur d'émanation n'est pas connu. Les pastilles source sont placées verticalement dans un tube en plastique de diamètre de 4,6 cm et de longueur 0,15 m (volume de 0,25 l). Les différentes connexions sont réalisées par un tuyau en plastique de 7 mm de diamètre intérieur. Le gaz porteur est soit de l'azote comprimé, soit de l'air ambiant avec un taux d'humidité variant de 30% à 90 %. Le débit est variable entre 0,5 l/mn et 4 l/mn et contrôlé par deux débitmètres en entrée et en sortie.

Pour chaque mesure, la réponse du détecteur est caractérisée par l'aire des pics alpha d'énergie E_α = 6,1 MeV pour le ^{212}Bi et E_α = 8,8 MeV pour le ^{212}Po (voir figure 5.2). Notons que le ^{212}Bi se désintègre par un embranchement de 64 % vers le ^{212}Po (E_α = 8,8 MeV) et un embranchement de 36 % vers le ^{208}Tl (E_α = 6,1 MeV). Le rapport des intensités de ces deux raies alpha doit donc être constant et égal à 1,81.

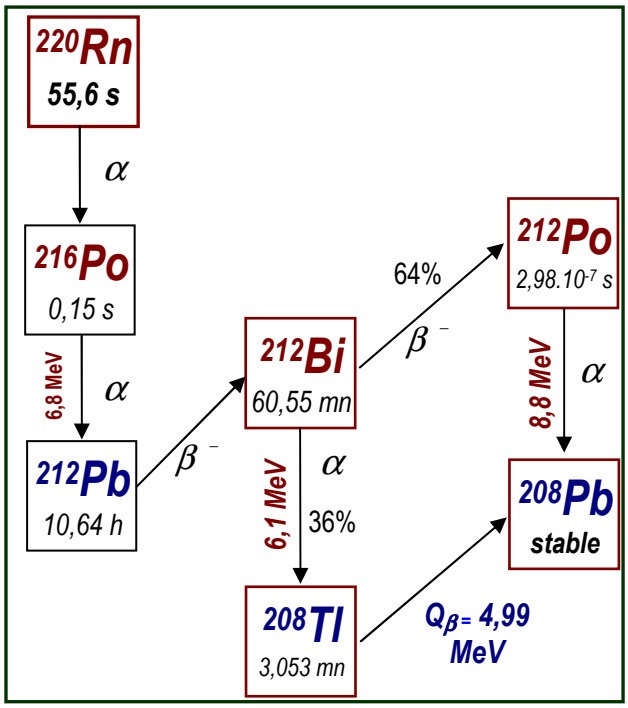


FIG. 5.2 – Schéma de décroissance du thoron (^{220}Rn).

La figure 5.3 montre l'évolution en fonction du temps des taux de comptage des deux raies alpha enregistrés pendant 80 h d'acquisition avec un débit de 0,5 l/mn d'azote.

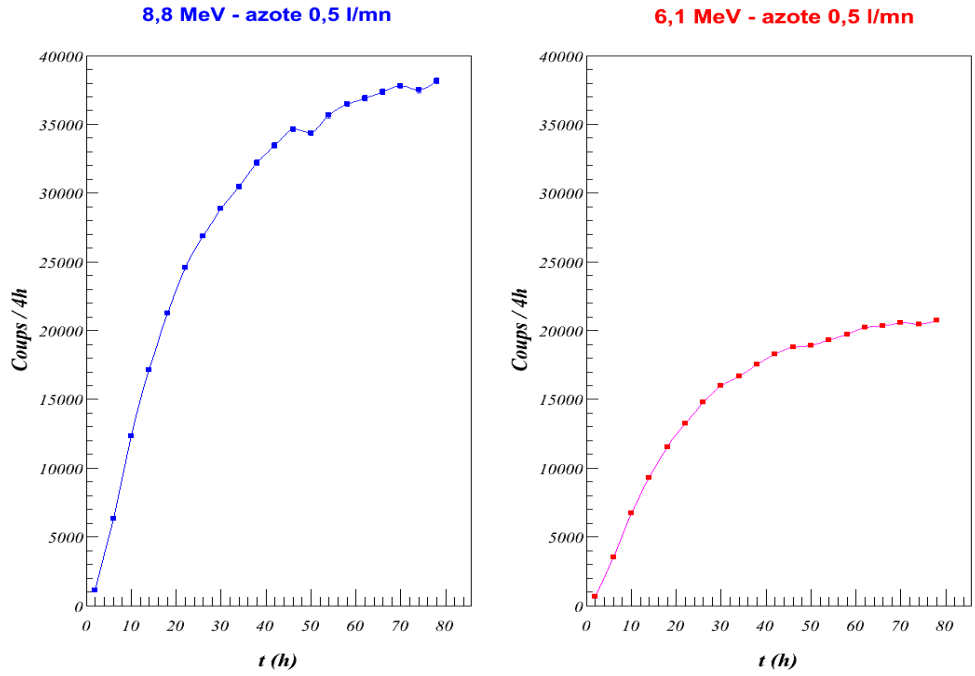


FIG. 5.3 – Evolution en fonction du temps des taux de comptage des deux raies alpha de 8,8 MeV et 6,1 MeV. La source est constituée de 5 pastilles de ^{232}Th métallique, la distance source-détecteur est de 0,15 m, le gaz porteur est de l'azote avec un débit de 0,5 l/mn.

On voit que le taux de comptage augmente régulièrement jusqu'à la saturation obtenue après environ 60 h, soit 5 fois la période $T_{1/2}$ = 10,64 h du ^{212}Pb, à laquelle il faut ajouter la période de 60,55 mn du ^{212}Bi. On peut vérifier aussi qu'à la saturation on trouve bien le facteur de 1,8 entre les deux taux de comptage.

Notons que le taux de comptage à l'équilibre de la raie alpha de 8,8 MeV sera pris comme grandeur de référence pour étudier l'influence des paramètres expérimentaux sur la réponse du détecteur.

5.2 – Influence des différents paramètres sur la réponse du détecteur

5.2.1 – Influence de l'humidité.

L'étude de l'effet de l'humidité sur la réponse en thoron du détecteur a été réalisée en utilisant l'air ambiant comme gaz porteur. Quatre différents taux d'humidité ont été obtenus respectivement 30 % avec un dessiccateur, 50 % avec le dessiccateur couplé à un barboteur d'eau, 70 % avec simplement l'air ambiant et enfin 90 % en faisant barboter l'air ambiant dans une colonne d'eau. Pour chaque mesure, un hygromètre est inséré à la sortie du détecteur pour contrôler le taux d'humidité. Pour ces mesures, la source est composée de 5 pastilles de thorium, le débit fixé à 2 l/mn, et la distance source-détecteur à 25 m.

La figure 5.4 présente les taux de comptage de la raie alpha de 8,8 MeV pour ces différents taux d'humidité.

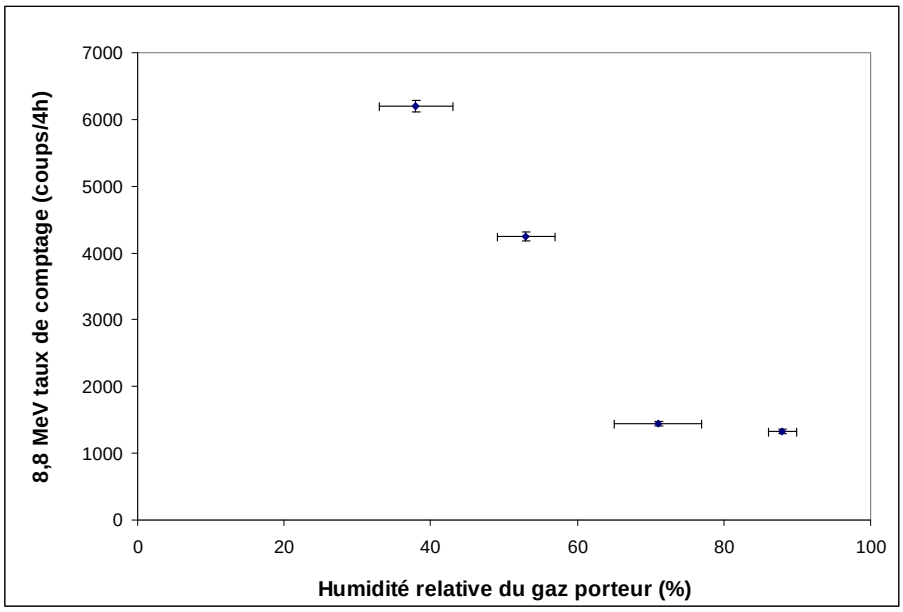


FIG. 5.4 – Dépendance du taux de comptage de la raie de 8,8 MeV en fonction de l'humidité de l'air.

Comme dans le cas du radon (section 4.2.3, figure 4.8), on observe une très forte décroissance de l'efficacité de collection suivant le taux d'humidité. Toutefois, si pour le radon le taux de comptage du 7,7 MeV devient constant à partir d'un taux d'humidité supérieur à 10 %, dans le cas de thoron celui du 8,8 MeV ne devient constant que pour un taux d'humidité supérieur à 60 %. Plus le gaz est sec, plus l'effet de neutralisation des ions positifs par interaction avec les radicaux OH^- est faible et plus on augmente l'efficacité de collection vers la photodiode.

Le tableau suivant montre une comparaison des taux de comptage de la raie alpha de 8,8 MeV entre l'air ambiant et l'azote (~ 0,02 % d'humidité). Pour cette mesure, la source contenait 11 pastilles de thorium et la distance source-détecteur était de 0,15 m. Les mesures ont été faites pour trois débits différents de 0,5 l/mn à 2 l/mn.

Débit (l/mn)	Taux de comptage à 8,8 MeV (coups/4h)		Rapport (azote/air)
	Air ambiant	Azote	
0,5	4530 ± 70	6280 ± 80	1,38
1	5830 ± 80	12150 ± 110	2,08
2	6320 ± 80	12430 ± 110	1,97

TAB. 5.1- Influence de la nature du gaz porteur sur le taux de comptage de la raie alpha de 8,8 MeV.

Cette étude montre encore l'influence de l'humidité sur le taux de comptage qui est de l'ordre d'un facteur 2 entre l'azote et l'air.

La figure 5.5 montre le spectre en énergie des particules alpha obtenu pour le gaz porteur d'azote et un débit de 1 l/mn. On peut noter la présence d'un pic de faible intensité à 6,8 MeV correspondant à la décroissance alpha du ^{216}Po. Sur cette figure, l'ordonnée est en échelle logarithmique pour une meilleure visualisation du pic alpha de 6,8 MeV.

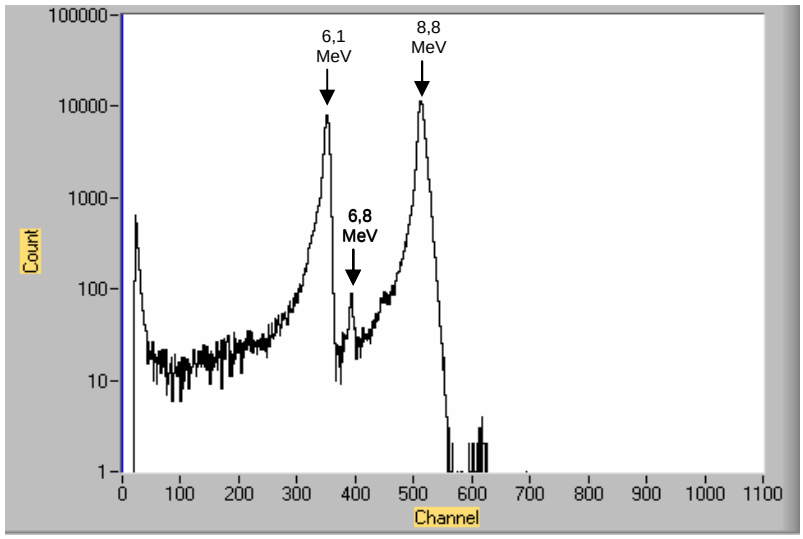


FIG. 5.5 – Spectre en énergie des particules alpha obtenu avec l'azote comme gaz porteur, un débit de 1 l/mn, une distance source-détecteur de 0,15 m et 11 pastilles de thorium.

La figure 5.6 montre le spectre enregistré dans les mêmes conditions expérimentales mais avec l'air ambiant comme gaz porteur. On notera la disparition du pic de 6,8 MeV et l'apparition du pic de 7,7 MeV correspondant au radon de l'air.

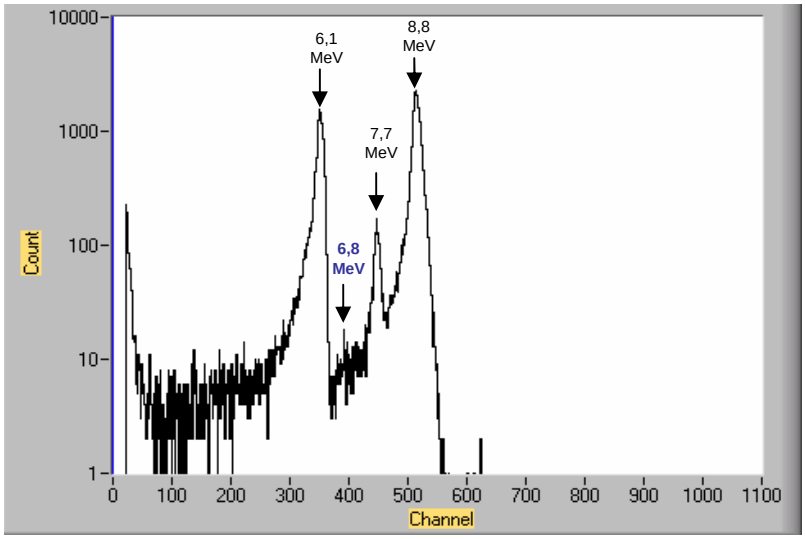


FIG. 5.6 – Spectre en énergie des particules alpha obtenu lors d'une mesure dans l'air ambiant avec une distance source-détecteur de 0,15 m. La source est composée de 11 pastilles de thorium.

La faible intensité du pic de 6,8 MeV est une conséquence de la période courte du ^{216}Po (0,15 s) et de sa faible mobilité dans le gaz porteur. Par exemple, la mobilité de cet ion dans l'air est de l'ordre de 1,04 $cm^2\ V^{-1}\ s^{-1}$ [38], ce qui implique un parcours de l'ordre de 5 cm pour une durée de l'ordre de $T_{1/2}$. Pour l'azote, la mobilité de cet ion n'est pas connue mais certainement plus grande puisque le pic alpha de 6,8 MeV devient visible.

5.2.2- Influence du débit du gaz porteur

Pour étudier l'influence du débit, nous avons repris le même dispositif expérimental en utilisant l'azote comme gaz porteur, une source de 11 pastilles de thorium métallique et une distance source-détecteur de 25 m.

La figure 5.7 ci-dessous présente le taux de comptage de la raie alpha de 8,8 MeV à la saturation pour 4 valeurs différentes du débit de 0,5 à 4 l/mn. Rappelons que la saturation est obtenue après environ 60 h de mesure.

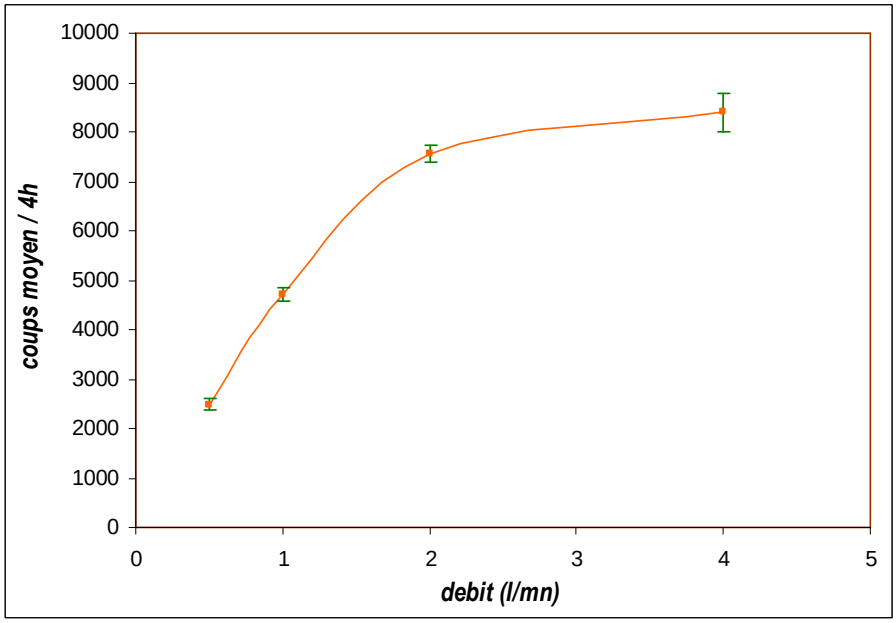


FIG. 5.7 – Taux de comptage de la raie alpha de 8,8 MeV à la saturation en fonction du débit du gaz porteur.

On observe ici une croissance en fonction du débit, qui est une conséquence du temps de transit des ions entre la source et le volume de détection. En effet, avec un tuyau de 25 m de longueur, le volume de transit est de l'ordre de 1 litre, ce qui implique qu'en moyenne avec un débit de 1 l/mn, le temps de transit est de l'ordre d'une période du thoron. Ainsi, à faible débit, 0,1 l/mn, le ^{220}Rn et le ^{216}Po décroissent pendant le temps de transit et le ^{212}Pb entre dans la cuve probablement dans un état de charge neutre. La conséquence est un faible taux de comptage de la raie alpha de 8,8 MeV. Au contraire, à fort débit, 4 l/mn, le temps de transit devient une faible proportion de la période, le ^{220}Rn et le ^{216}Po décroissent donc principalement dans la cuve et on tend vers une saturation.

Il est bien évident que cette étude en fonction du débit est très dépendante de la distance source-détecteur.

5.2.3- Influence de la distance source-détecteur

Pour étudier la réponse du détecteur aux différentes distances source-détecteur, nous avons repris le même dispositif expérimental (azote et 11 pastilles de thorium métallique) mais avec le minimum de longueur de tuyau, soit 0,15 m. Les taux de comptage obtenus pour trois débits de gaz sont donnés dans le tableau 5.2 ci-dessous et comparés avec ceux obtenus avec le tuyau de 25 m de longueur.

Débit (l/mn)	Taux de comptage du 8,8 MeV (coups/ 4h)	
	0,15 m	25 m
0,5	6280 ± 80	2490 ± 50
1	12150 ± 110	4710 ± 70
2	12430 ± 110	7570 ± 90

TAB. 5.2 – Taux de comptage de la raie alpha de 8,8 MeV pour deux distances source-détecteur : 0,15 m et 25 m. Le gaz porteur est l'azote et la source composée de 11 pastilles de thorium.

On voit tout de suite l'intérêt pour une mesure du thoron de minimiser la distance source-détecteur. Les taux de comptage sont plus élevés et la saturation est obtenue à un débit plus faible.

Rappelons que dans le cadre de l'expérience NEMO, le détecteur de radon est actuellement placé à une dizaine de mètre de la sortie du gaz de NEMO3, ce qui implique une perte importante de l'efficacité de détection du thoron.

5.3 – Etude du dépôt des descendants du thoron pendant le transit source-détecteur

Nous venons de voir que pendant son transport entre la source et le détecteur, le thoron pouvait avoir une probabilité importante de se désintégrer. Son descendant le ^{216}Po de charge positive, par effet électrostatique, peut s'attacher aux parois internes du tuyau plastique. Dans ce cas, son descendant le ^{212}Pb y reste également fixé. Comme sa période est suffisamment longue (10,64 h) et que sa désexcitation est accompagnée de rayonnements gamma caractéristiques, on peut vérifier le dépôt éventuel en réalisant une série de mesures par spectrométrie gamma.

Le dispositif expérimental est schématisé dans la figure 5.8. Le gaz porteur était de l'azote et la source était composée de 5 pastilles de thorium. Les mesures ont été effectuées à deux débits différents de 0,5 l/mn et de 1 l/mn. La longueur source-détecteur a été fixée à 25 m. Nous avons découpé sur le tuyau plastique trois sections de longueur 60 cm prises respectivement près de la source, au milieu et à la fin du tuyau près du détecteur de thoron.

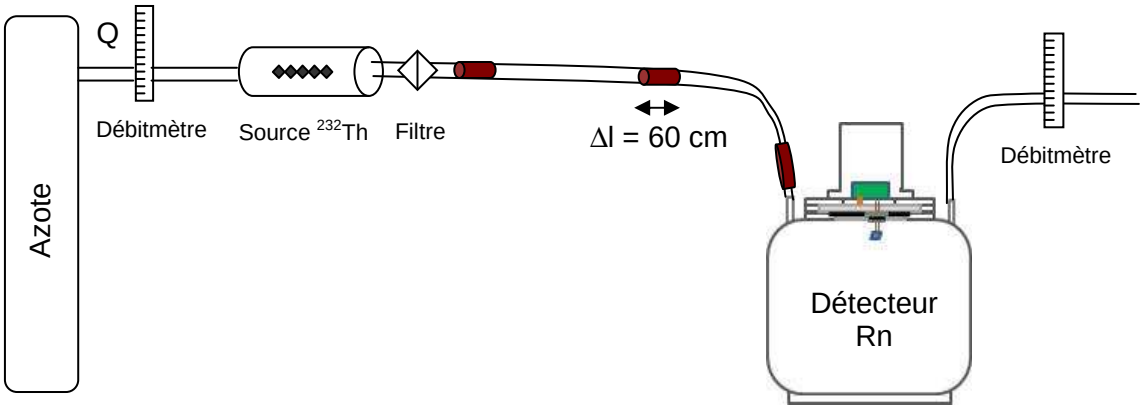


FIG. 5.8 – Schéma du dispositif expérimental permettant de vérifier un éventuel dépôt d'ions le long du tuyau source-détecteur.

Après environ 50 h de balayage de thoron pour atteindre l'équilibre, une portion de 60 cm de tuyau est enlevée, enroulée dans une boîte en plexiglas puis placée sur le capot d'un détecteur GeHP de 100 cm^3 de type coaxial (voir annexe 1).

La figure 5.9 présente le spectre partiel en énergie des rayonnements gamma obtenu avec la portion de tuyau proche de la source. Le temps de statistique est d'environ 50 h, soit un peu plus de 4 fois la période de décroissance du ^{212}Pb. On y observe nettement les deux pics gamma caractéristiques des descendants du thoron, le pic 238 keV du ^{212}Pb et celui de 583 keV du ^{208}Tl. La présence de ces deux raies gamma prouve bien qu'il y a eu un dépôt des descendants sur les parois du tuyau plastique au cours du transit source-détecteur de thoron.

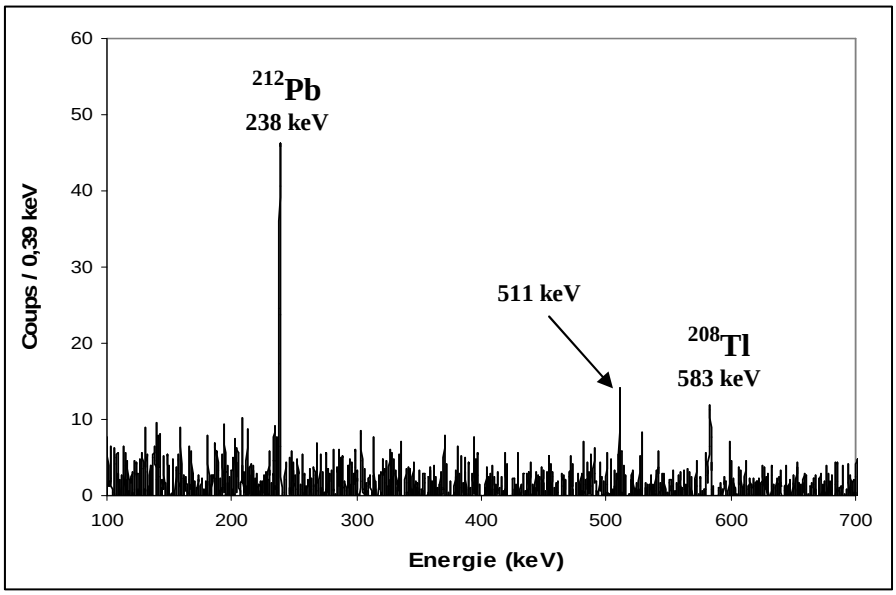


FIG. 5.9 – Spectre partiel en énergie des rayonnements gamma entre 100 keV et 700 keV de la portion de tuyau de 60 cm de longueur située près de la source. Le temps de statistique est d'environ 50 h.

Pour évaluer l'activité déposée, nous avons étudié l'aire du pic de 238 keV du ^{212}Pb en fonction du temps d'acquisition. La figure 5.10 présente cette variation pour un débit d'azote de 1 l/mn et la même portion de tuyau. On voit que l'allure de la courbe suit bien la loi exponentielle de décroissance du ^{212}Pb.

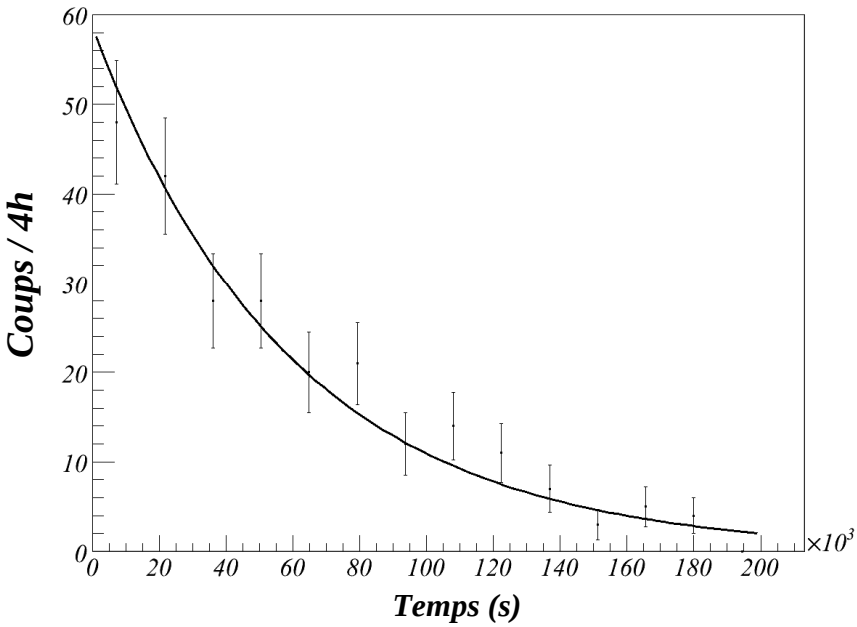


FIG. 5.10 – Taux de comptage de la raie gamma de 238 keV en fonction du temps. L'ajustement est fait suivant la décroissance du ^{212}Pb ($T_{1/2}$ = 10,64 h).

L'activité initiale du ^{212}Pb déposée sur cette portion de tuyau est donnée par l'expression :

$$A_{Pb} = \frac{N_{\text{int}}}{\varepsilon\, I_{\gamma}\, \Delta t} \tag{5.1}$$

où A_{Pb} est l'activité du ^{212}Pb déposée sur la portion de tuyau,

N_{int} le taux de comptage au temps t =0 de la raie gamma de 238 keV,

ε l'efficacité de détection du pic 238 keV, calculée par simulation GEANT3 (ε = 4,28 %),

I_{γ} l'intensité du 238 keV (I_{γ} = 43,3 %),

et Δt le temps (Δt = 4h).

Le tableau 5.2 présente l'activité du ^{212}Pb déposée sur les trois portions de tuyau et pour deux débits d'azote respectivement 0,5 l/mn et 1 l/mn.

Débit (l/mn)	Activité déposée (mBq)		
	Portion proche de la source	Portion au milieu du tuyau de 25 m	Portion proche du détecteur de thoron
0,5	170 ± 30	76 ± 14	26 ± 10
1	210 ± 20	138 ± 8	87 ± 15

TAB. 5.2 - Activité du ^{212}Pb aux trois positions pour les différents débits.

On constate d'abord que pour un débit donné, l'activité déposée décroît régulièrement de la source vers le détecteur du thoron. Ce comportement est celui attendu car l'activité déposée doit être proportionnelle au nombre de noyaux du ^{220}Rn désintégrés. Pour le vérifier, on peut calculer ce nombre de noyaux désintégrés par la formule suivante :

$$N_x = N_0 (1 - e^{-\lambda_{Rn} \frac{S\Delta l}{Q}}) e^{-\lambda_{Rn} \frac{Sx}{Q}} \tag{5.2}$$

où N_x est le nombre de noyaux du thoron désintégrés dans la portion x,

N_0 le nombre initial des noyaux du thoron,

λ_{Rn} la constante de décroissance du thoron,

S la section du tuyau,

x la position de la portion de 60 cm de tuyau par rapport à la source,

Δl la longueur de la portion, ici 60 cm

et Q le débit du gaz porteur (l/mn).

Cette formule peut se mettre dans une forme simplifiée en introduisant la demi-longueur de décroissance du thoron, c'est-à-dire la position où l'activité initiale est diminuée d'un facteur 2 :

$$l_{1/2} = \frac{Q\,T_{1/2}}{S} \tag{5.3}$$

D'où l'expression :

$$A_x = A_0 e^{-\frac{\ln 2}{l_{1/2}} x} \tag{5.4}$$

où x est la position de la portion du tuyau étudiée (cm),

A_x l'activité déposée sur la portion à la position x (mBq),

et A_0 l'activité initiale à la position x = 0 (mBq).

La figure 5.11 présente les activités ^{212}Pb déposées sur chacune des portions et l'ajustement obtenu suivant la formule (5.4) pour un débit de 0,5 l/mn.

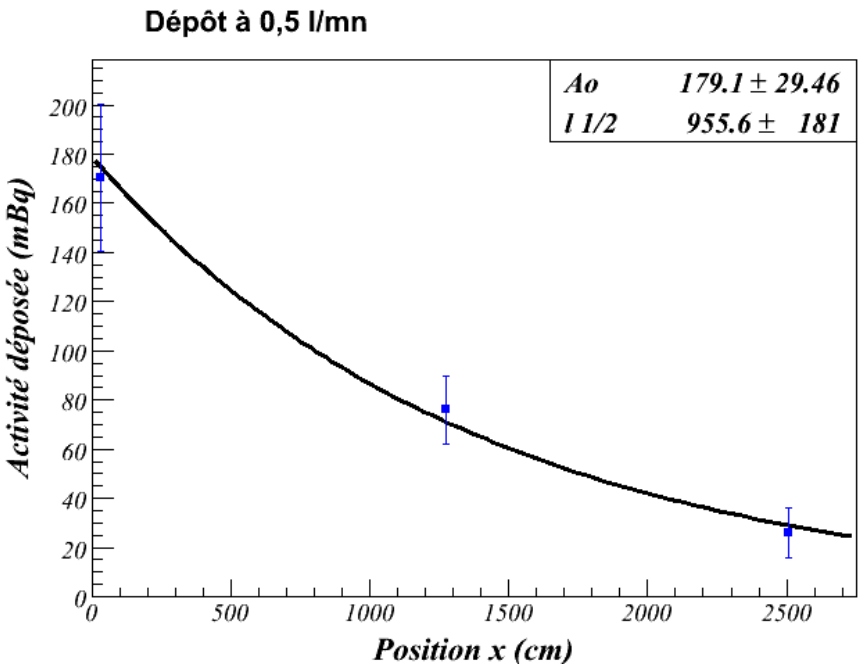


FIG. 5.11 - Activités déposées sur les trois portions de tuyau. Le gaz porteur est l'azote avec un débit de 0,5 l/mn. L'ajustement est réalisé suivant la formule (5.4) où A_0 est l'activité déposée à x = 0 et $l_{1/2}$ la demi-longueur de décroissance.

Le tableau 5.2 présente, pour les deux débits étudiés, la comparaison entre les demi-longueurs calculées suivant la formule (5.3) et les demi-longueurs obtenues par l'ajustement des points expérimentaux.

Débit	Demi-longueur de décroissance (cm)	
	Valeur calculée	Valeur mesurée
0,5 l/mn	***1204***	960 ± 180
1 l/mn	***2408***	2010 ± 400

TAB. 5.2 – Comparaison entre les demi-longueurs de décroissance calculées suivant la formule (5.3) et les valeurs après l'ajustement sur les points expérimentaux.

Le bon accord entre les demi-longueurs de décroissance calculées et mesurées montre bien que le dépôt le long du tuyau est lié à la décroissance du thoron. Nous discuterons de l'importance relative entre l'activité déposée et l'activité émanée dans la partie 5.4.

Par ailleurs, nous avons étudié l'effet du taux d'humidité sur le dépôt des descendants du thoron le long du tuyau. Pour cela, on a repris toujours le même dispositif expérimental (figure 5.1) en utilisant l'air ambiant comme gaz porteur, un dessiccateur pour l'air sec et un barboteur d'eau pour l'air humide. L'expérience a été réalisée avec une source composée de 5 pastilles de thorium et un débit de 2 l/mn. Les résultats obtenus pour le dépôt sur les premiers 60 cm de tuyau, c'est-à-dire pour la portion proche de la source, sont présentés sur la figure 5.12. On voit que le dépôt est indépendant du taux d'humidité dans l'air.

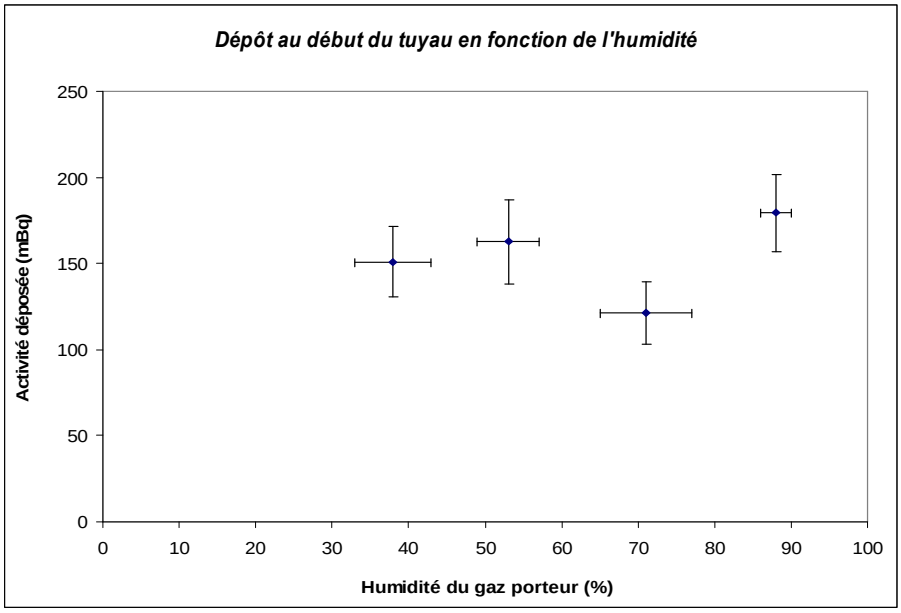


FIG. 5.12 – Variation de l'activité déposée sur les premiers 60 cm du tuyau en fonction du taux d'humidité.

5.4 – Calibration du détecteur pour le thoron

Les mesures effectuées dans les parties précédentes ont permis de mettre en évidence plusieurs paramètres intervenant dans l'efficacité de détection des descendants du thoron (débit, humidité du gaz et phénomène de dépôt des descendants du thoron). Ces mesures ont été qualitatives et non quantitatives à cause de l'activité inconnue du thoron émanée de la source de thorium. L'idée est alors venue de coupler le détecteur de thoron avec la technique de la spectrométrie gamma. Nous verrons que l'utilisation simultanée de ces deux techniques permet de déterminer le facteur d'émanation de la source, de calibrer le détecteur en thoron et enfin d'évaluer les différentes efficacités de détection.

5.4.1 – Mesure de l'émanation de la source de thorium à l'aide d'un spectromètre GeHP

Le dispositif expérimental utilisé est montré sur la figure 5.13. Il comprend un détecteur GeHP de 100 cm^3 coaxial en série avec le détecteur de thoron. L'expérience est réalisée en injectant l'air ambiant chargé en thoron à travers 4 m de tuyau enroulé autour du détecteur GeHP avant de l'envoyer sur le détecteur de thoron. La source est composée de 5 pastilles de thorium placées dans un petit volume de 0,01 litre. Deux débits d'air (1 l/mn et 4 l/mn) ont été utilisés. Les mesures ont été réalisées en circuit ouvert.

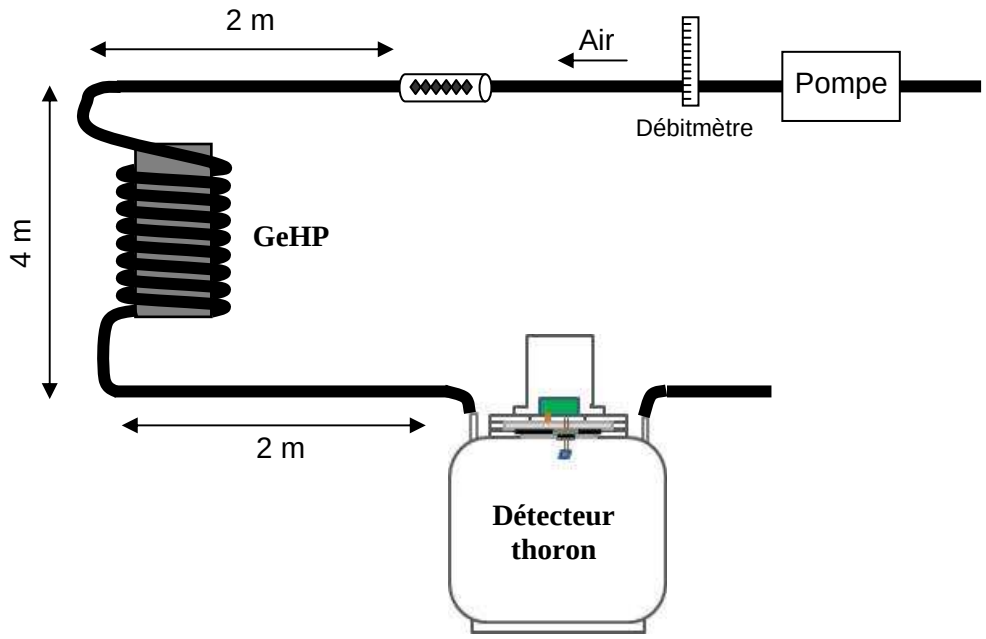


FIG. 5.13 – Dispositif expérimental pour l'étalonnage du détecteur de thoron.

Les mesures par spectrométrie gamma ont montré la présence des descendants du thoron dans le volume de tuyau qui entoure le détecteur GeHP. La figure 5.14 présente le spectre en énergie des raies gamma obtenu pour un débit de 1 l/mn et sur une période d'acquisition de 54 heures. Les raies les plus intenses sur le spectre en énergie sont le 238 keV du ^{212}Pb, le 583 keV et le 2614 keV du ^{208}Tl.

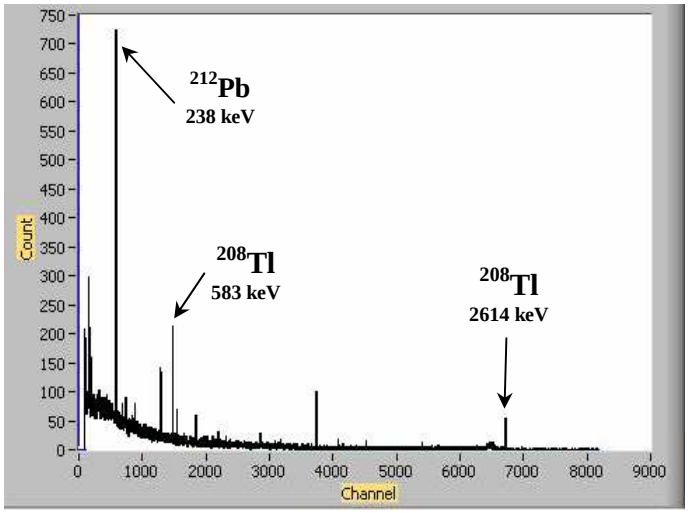


FIG. 5.14 – Spectre en énergie des rayonnements gamma du GeHP montrant les raies gamma caractéristiques des descendants du thoron. Ce spectre a été obtenu après 54 h de statistique pour un débit de 1 l/mn.

L'évolution du taux de comptage de la raie gamma 238 keV de décroissance du ^{212}Pb en fonction du temps d'acquisition est présentée sur la figure 5.15.

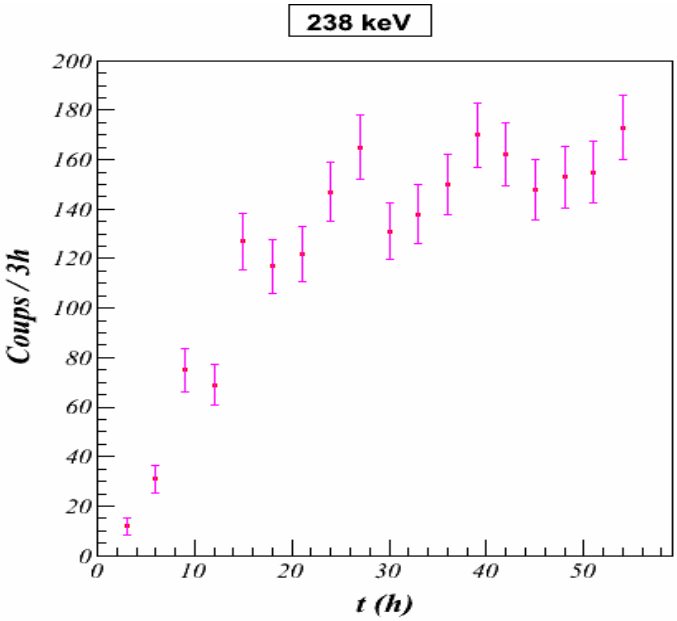


FIG. 5.15 – Evolution du taux de comptage de la raie gamma de 238 keV du ^{212}Pb en fonction du temps d'acquisition.

On constate que le taux de comptage augmente régulièrement pendant environ 30 h pour atteindre un niveau d'équilibre à environ 170 coups/3h pour le débit de 1 l/mn. Pour une deuxième mesure à 4 l/mn, le taux de comptage à l'équilibre se situe autour de 44 coups/3h.

Notons que les rayonnements gamma de 238 keV du ^{212}Pb détectés proviennent de deux sources : les noyaux de ^{212}Pb fixés sur les parois du tuyau enroulé autour du détecteur GeHP (fraction attachée) et ceux qui passent librement (fraction libre).

Soit P_{Rn}, P_{Po} et P_{Pb} les probabilités respectives pour que les noyaux ^{220}Rn, ^{216}Po et ^{212}Pb se désintègrent sur le trajet de 4 m de tuyau devant le détecteur GeHP. La fraction attachée par unité de temps N_a est donnée par l'expression suivante :

$$N_a = f_a \, N_{em} \, e^{-\lambda_{Rn} t_0} P_{Rn} \, P_{Po} \, \varepsilon_\gamma \, I_\gamma \tag{5.5}$$

où N_{em} est le nombre de noyaux thoron émanés par unité de temps,

f_a le facteur d'attachement du ^{212}Pb,

λ_{Rn} la constante de désintégration du thoron,

t_0 le temps d'arrivée du thoron de la source vers le détecteur GeHP,

ε_γ l'efficacité de détection du rayonnement gamma de 238 keV par GeHP (ε_γ = 3 %),

I_γ l'intensité de la raie gamma de 238 keV (I_γ = 43,3%).

De la même façon, la fraction libre N_l est donnée par l'expression suivante :

$$N_l = (1 - f_a) N_{em} \, e^{-\lambda_{Rn} t_0} \, P_{Rn} \, P_{Po} \, P_{Pb} \, \varepsilon_\gamma \, I_\gamma \tag{5.6}$$

Le nombre total des rayonnements gamma de 238 keV détectés par GeHP est la somme de ces deux composantes, c'est-à-dire :

$$N_{\det}^{GeHP} = N_a + N_l \tag{5.7}$$

Les probabilités pour que les noyaux ^{220}Rn, ^{216}Po et ^{212}Pb se désintègrent devant le GeHP sont déterminées par leurs demi-vies et par le temps de passage t_{vol} sur le trajet de 4 m (correspondant à un volume de 0,154 l) autour du GeHP. Elles s'écrivent :

$$P_X = \int_0^{t_{vol}} \lambda_X \, e^{-\lambda_X t} dt = 1 - e^{-\lambda_X t_{vol}} \tag{5.8}$$

avec λ_X la constante de désintégration du noyau X.

En appliquant les formules (5.5) et (5.6) et (5.8) à l'expression (5.7) pour deux débits de 1 l/mn et de 4 l/mn, on obtient le système d'équations suivant :

$$\begin{cases} 170 = 1{,}34 \times 10^{-3}\, f_a\, N_{em} + 2{,}24 \times 10^{-7}\, (1 - f_a)\, N_{em} \\ 44 = 3{,}64 \times 10^{-4}\, f_a\, N_{em} + 1{,}52 \times 10^{-8}\, (1 - f_a)\, N_{em} \end{cases} \tag{5.9}$$

Les solutions trouvées sont :

$$\begin{cases} N_{em} \approx 46{,}2 \times 10^{6}\ (noyaux\ /\ 3h) \approx 4300\ (noyaux\ /\ s) \\ f_a \approx 2{,}6 \times 10^{-3} \approx 0{,}26\ \% \end{cases} \tag{5.10}$$

Pour vérifier la cohérence de nos résultats, nous avons souhaité réutilisé ces 2 valeurs pour estimer l'activité en ^{212}Pb déposée sur le tuyau. En effet, lors d'une expérience précédente, nous avions mesuré par spectrométrie gamma une activité déposée sur 60cm au début du tuyau de 210 ± 20 mBq à 1 l/mn (voir tableau 5.2). Avec le nombre de noyaux émanés et le facteur d'attachement déterminés ci-dessus, nous obtenons une valeur d'activité déposée en ^{212}Pb de 190 mBq. Cette valeur est donc cohérente avec la mesure effectuée par spectrométrie gamma et nous conforte dans la validité de nos résultats.

L'activité du thoron émané par les 5 pastilles de thorium est ainsi :

$$A_{em} = \lambda_{Rn} N_{em} \approx 54\ (Bq\ /\ s) \tag{5.11}$$

Sachant que l'activité de ces pastilles est de 23,5 kBq, on peut en déduire le facteur d'émanation :

$$f_e = \frac{A_{em}}{A_s} \approx \frac{54}{23500} \approx 2{,}3 \times 10^{-3} \approx 0{,}23\ \% \tag{5.12}$$

Après cette estimation de l'activité émanée par la source, il nous est alors possible d'étalonner le détecteur de thoron.

5.4.2 – Calibration du détecteur de thoron

Le détecteur de thoron en série avec le GeHP (figure 5. 12) a enregistré un taux de comptage de la raie alpha de 8,8 MeV à l'équilibre de 400 coups/h, soit 9600 coups/j.

Rappelons que le volume du tube source est V_{source} = 0,01 litre et qu'il est renouvelé par un débit Q = 1 l/mn. L'air agissant comme gaz porteur est donc chargé d'une activité thoron de :

$$A_{^{220}Rn} = A_{em} \frac{V_{source}}{Q} \approx 37\ (Bq) \tag{5.13}$$

Rappelons encore que la longueur totale du tuyau plastique est de 8 m (2 m entre la source et le GeHP, 4 m autour du GeHP et 2 m entre le GeHP et l'entrée du détecteur de thoron), soit un temps de transit de 18 s correspondant à une perte de 20 %. On obtient donc à l'entrée du détecteur de thoron une activité de 30 Bq en thoron. Supposons que cette activité soit distribuée dans le volume de la cuve (80 l) d'une façon homogène, on obtient alors une activité volumique A_{cuve} = 363 Bq/m^3.

Le facteur de calibration du détecteur de thoron est alors donné par l'expression suivante :

$$f_c = \frac{N_{\det}^{DetRn}}{A_{cuve}} = \frac{9600 \quad (coups/j)}{363\times10^3\ (mBq/m^3)} = 0{,}026\ {}^{(coup/j)}\!\big/_{(mBq/m^3)} \tag{5 .14}$$

Ainsi, dans ces conditions expérimentales : circuit ouvert avec un débit de 1 l/mn, l'air ambiant (taux d'humidité de 65 %) comme gaz porteur et distance source-détecteur de 8 m, le facteur de calibration est 1 coup/j enregistré dans la raie alpha de 8,8 MeV équivalent à une activité volumique d'environ 38 mBq/m^3 en thoron.

1 coup/j (8,8 MeV) **~ 38 mBq/m^3**

5.4.3 – Efficacités de détection

Pendant le temps d'acquisition du spectre en énergie des particules alpha avec le détecteur de thoron, le descendant ^{212}Pb s'est accumulé sur la surface de la photodiode. On peut démonter rapidement cette photodiode et la placer sur le spectromètre germanium pour mesurer l'activité de ^{212}Pb déposé. Une fois encore, l'aire du pic gamma de 238 keV du ^{212}Pb a été utilisée pour l'analyse. L'évolution du taux de comptage enregistré dans ce pic pendant 28 h de statistique est présentée dans la figure 5.16. Ici, chaque point représente le nombre de coups détectés pendant un intervalle de 4 h.

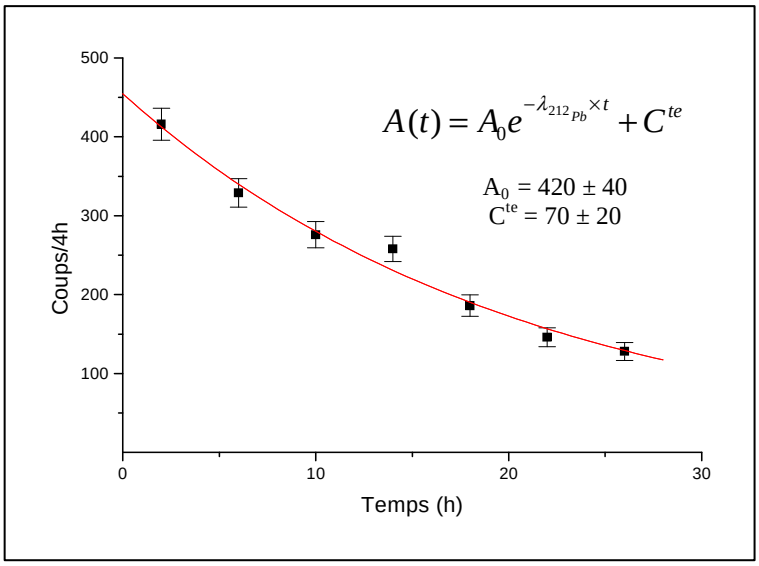


FIG. 5.16 – Taux de comptage de la raie gamma de 238 keV du ^{212}Pb déposé sur la surface de la photodiode en fonction du temps.

L'ajustement suivant la loi exponentielle avec une période de 10,64 h nous donne le taux de comptage du pic, pour t = 0, d'environ 420 coups/4h. Tenant compte du temps écoulé entre la sortie de la photodiode et sa mise en place sur le détecteur GeHP, le taux de comptage initial devient 480 coups/4h. Sachant que l'efficacité de détection des rayonnements gamma à 238 keV est de 6,7 % et que l'intensité de la raie gamma est de 43,3 %, on obtient une activité en ^{212}Pb déposé sur la diode de 1,14 Bq.

Notons que cette activité déposée est distribuée sur la surface de 2,5 x 2,5 cm^2, tandis que la surface sensible de la photodiode n'est que 1,8 x 1,8 cm^2. En tenant compte de la surface sensible, nous obtenons une activité déposée $A_{dépôt}$ sur la zone sensible de la photodiode de 0,6 Bq.

En comparant cette activité déposée avec le taux de comptage enregistré dans le pic de 8,8 MeV du détecteur radon, on obtient une efficacité de détection alpha intrinsèque de la photodiode de :

$$\varepsilon_{\text{int}} = \frac{N_{\text{det}}^{DetRn}}{A_{dépôt}\, I_{\alpha}} = \frac{\left(400 \big/ 3600 \right) \; coups/s}{0{,}6\,(Bq) \times 0{,}64} \approx 30\,\% \qquad (5.11)$$

avec I_α = 64 % le rapport d'embranchement correspondant à la raie alpha de 8,8 MeV (voir figure 5.2).

Remarquons que cette valeur est peut être surestimée car le GeHP mesure la décroissance du ^{212}Pb tandis que le détecteur de thoron mesure la décroissance du ^{212}Po, lequel peut être aussi alimenté par le ^{212}Bi.

Si l'on suppose l'équilibre séculaire entre le ^{212}Pb et le ^{220}Rn, l'efficacité de collection du ^{212}Pb est simplement le rapport entre l'activité déposée initialement sur la photodiode ($A_{dépôt}$) et l'activité du thoron dans la cuve (A_{cuve}) :

$$\varepsilon_{col(^{212}Pb)} = \frac{A_{dépôt}}{A_{cuve}} = \frac{0,6}{30} \approx 0,02 = 2\,\% \tag{5.13}$$

L'efficacité totale de détection des particules alpha est ainsi :

$$\varepsilon_{\text{det}} = \varepsilon_{\text{int}}\ \varepsilon_{col} = 0,3 \times 0,02 = 0,006 = 0,6\,\% \tag{5.14}$$

Les résultats obtenus de la mesure du thoron avec l'air comme gaz porteur sont résumés schématiquement dans la figure 5.17.

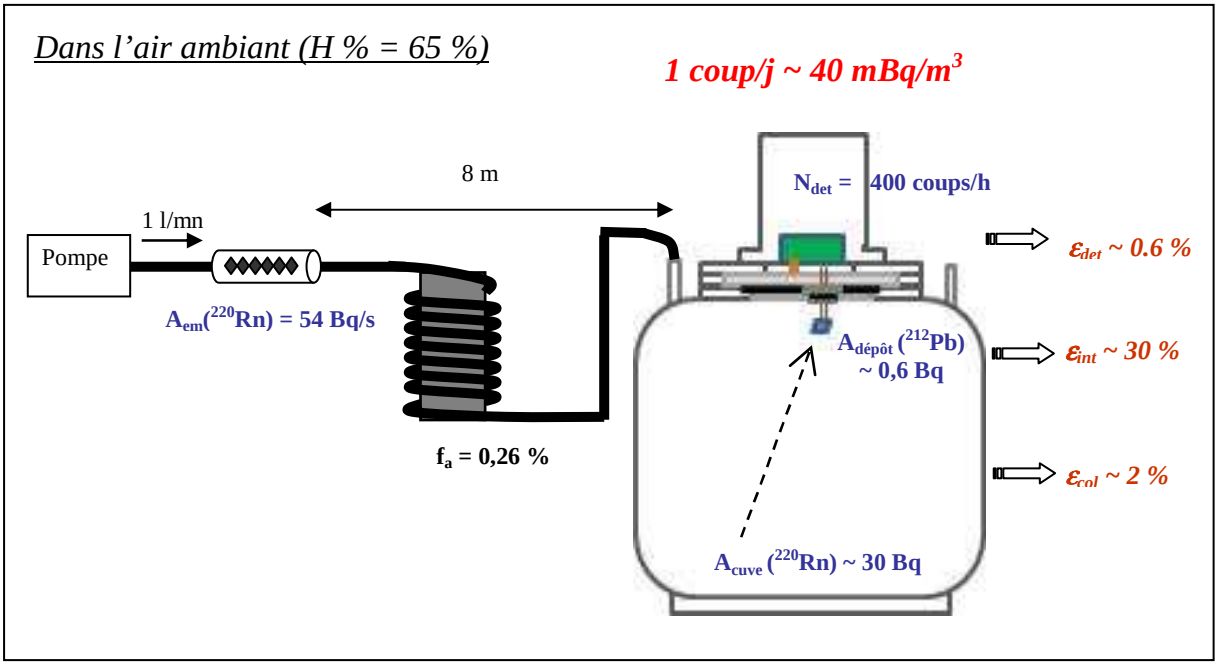


FIG. 5.17 – Bilan des résultats des mesures de la calibration du détecteur de thoron avec l'air ambiant comme gaz porteur.

On voit que l'activité d'émanation des 5 pastilles de thorium métallique est de 54 Bq/s, le facteur d'attachement sur les parois du tuyau plastique est négligeable (0,26 %), l'activité moyenne dans la cuve de 80 l est d'environ 30 Bq en thoron. L'efficacité de collection électrostatique du ^{212}Pb est de 2 %, ce qui induit une activité déposée de 0,6 Bq sur la surface silicium de la diode. L'efficacité intrinsèque de détection des particules alpha de la photodiode est d'environ 30 %, ce qui donne un taux de comptage de la raie alpha de 8,8 MeV de 0,11 coup/s, soit 400 coups/h. Finalement, dans ces conditions, le facteur de conversion est de 1 coup/j correspondant à 40 mBq/m^3.

Cette faible efficacité de détection est une conséquence du taux d'humidité du gaz porteur et du temps de transit relativement long entre la source et le détecteur de thoron. A titre d'exemple, une deuxième calibration a été réalisée en utilisant l'azote comme gaz porteur et en minimisant la distance source-détecteur avec un tuyau plastique de 0,15 m de longueur. La figure 5.18 montre le schéma du dispositif expérimental ainsi que les résultats obtenus.

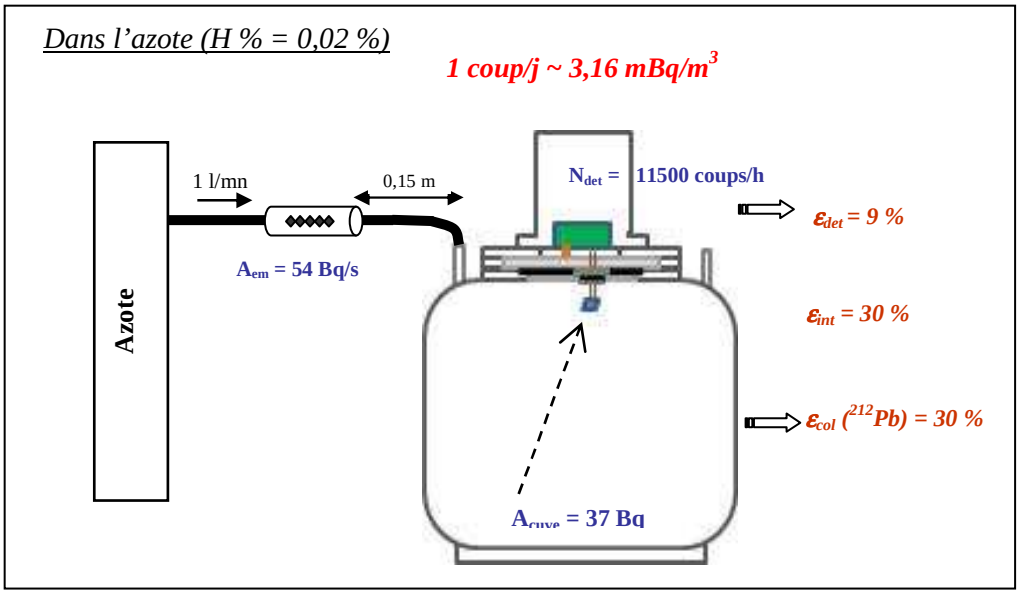


FIG. 5.18 – Schéma d'expérience et des résultats obtenus pour la mesure avec l'azote comme gaz porteur. La source était composée de 5 pastilles de thorium, le débit était de 1 l/mn et la distance source-détecteur était de 0,15 m.

Dans ces conditions, l'activité du thoron dans le volume de la cuve reste à peu près la même, mais par contre l'efficacité de collection électrostatique du ^{212}Pb est augmentée de plus d'un ordre de grandeur. Au total, l'efficacité de détection des particules alpha est de 9 %, ce qui se traduit par un facteur de conversion de 1 coup/j enregistré dans la raie alpha de 8,8 MeV équivalent à 3 mBq/m^3.

En conclusion, comme conséquence des périodes courtes du thoron et de ses descendants directs et des temps de transit comparables, les efficacités de détection des particules alpha de 8,8 MeV du ^{212}Po sont très faibles. Dans le cas d'un gaz porteur très sec comme l'azote, elle est de l'ordre de 9 % tandis que dans le cas d'un air humide, elle descend très rapidement en dessous du pourcent. Notons que la nature du gaz de NEMO est plus proche de l'air ambiant que de l'azote pur, et par conséquent, il apparaît impossible de pouvoir assurer le suivi du thoron à la sortie de NEMO3 et de SuperNEMO avec cette technique de détection par collection électrostatique.

Rappelons que le taux de comptage de la raie alpha de 8,8 MeV dans le bruit de fond propre du détecteur (vannes d'entrée et de sortie fermées) est de 1 coup/j. Or, la mesure du thoron dans le gaz à la sortie de NEMO3 a conduit à un taux de comptage de 2,5 coups/j. Pour le moment, cette différence reste inexpliquée. Nous pensons qu'il serait intéressant d'effectuer, avant le démontage de NEMO3, une nouvelle mesure du gaz à l'entrée du NEMO3 (voir figure 2.11) pendant un temps beaucoup plus long et de comparer le taux de comptage dans la raie de 8,8 MeV avec l'équivalent vannes fermées.

Conclusion

Le présent travail entre dans le cadre de l'expérience NEMO3 actuellement en fin de prise de données au LSM. Rappelons que cette expérience vise à observer un phénomène rare appelé désintégration double bêta sans émission du neutrino ($2\beta0\nu$). La détection d'un tel processus permettrait de mettre en évidence la nature Majorana du neutrino et conduirait à une valeur de sa masse effective. Jusqu'à présent, les analyses préliminaires effectuées sur différents isotopes candidats $2\beta0\nu$ (^{100}Mo, ^{82}Se) ont conduit à des limites supérieures sur les périodes et par conséquent sur la masse effective du neutrino. Actuellement, la collaboration NEMO est impliquée dans une expérience de nouvelle génération, appelée SuperNEMO, qui prévoit la construction d'un détecteur de même type mais dix fois plus grand. Un premier module de SuperNEMO est prévu pour être installé au LSM durant l'année 2013.

Comme dans toute expérience à très faible taux de comptage, le radon ($_{86}$Rn) s'est révélé être une composante importante du bruit de fond. Le contrôle du gaz à la sortie de NEMO3, à l'aide d'un détecteur basé sur la collection électrostatique des descendants du radon, a effectivement montré l'existence de traces de radon. Toutefois, l'évaluation des activités absolues a nécessité d'entreprendre des études sur la réponse du détecteur, en fonction de différents paramètres expérimentaux (humidité et débit du gaz porteur, température de la source, champ électrique et distance entre la source et le détecteur).

Il ressort de ces études que la technique de mesure du radon par la collection électrostatique de ses descendants est bien adaptée pour le suivi du radon (^{222}Rn) dans le gaz à la sortie de NEMO3. Ceci est une conséquence de sa période relativement longue (3,8 jours) du même ordre de grandeur que le temps de transit ou de résidence dans NEMO3. De plus, la période de son descendant direct, le ^{218}Po (3,05 mn), lui laisse suffisamment de temps pour pouvoir migrer vers la photodiode, sauf dans le cas d'une très forte d'humidité. En outre, les désintégrations du ^{214}Pb et du ^{214}Bi donnent des chances supplémentaires pour que finalement le ^{214}Po vienne se fixer sur la photodiode. Toutefois, l'étalonnage absolu du détecteur de radon reste une tâche très difficile. Une première tentative a été effectuée en comparant deux

détecteurs d'origines différentes et en utilisant l'air ambiant comme gaz porteur. Cependant, ces conditions sont très différentes du gaz de NEMO3 qui est un mélange d'hélium, d'alcool, d'argon et de vapeur d'eau. Dans ce but, une possibilité d'étalonnage absolue a été proposée en couplant le détecteur avec un détecteur GeHP. Les premiers essais ont montré qu'il fallait travailler en circuit fermé et qu'il était nécessaire de réaliser une étude beaucoup plus détaillée avec notamment l'aide de simulations Monte-Carlo.

Dans le cadre de projet SuperNEMO, il est indispensable d'améliorer encore, au moins d'un ordre de grandeur, la sensibilité des mesures radon. Ceci pourrait être réalisé en augmentant le volume de la cuve en acier (par exemple $1m^3$) et entreprendre une sélection rigoureuse des matériaux, surtout l'acier de la cuve et la céramique de la diode.

Dans le cas du thoron, l'étude de la détection par collection électrostatique a montré une faible efficacité à cause 1) de la courte demi-vie du thoron (55,6 s) par rapport au temps de transit et de résidence dans NEMO3, 2) de la période très courte du ^{216}Po (0,15 s) par rapport au temps de migration vers la photodiode, 3) de la période longue du ^{212}Pb (10,64 h) par rapport au temps de résidence du gaz dans la cuve. La conclusion est qu'il n'est pas possible d'envisager l'utilisation de cette technique pour le suivi du thoron. Ceci montre l'importance pour une expérience double bêta de pouvoir mesurer son propre bruit de fond.

La technique de collection électrostatique des descendants du radon et/ou du thoron, étudiée dans cette thèse, pourrait être appliquée pour les mesures de l'émanation des matériaux. Mais pour ceci, il faut d'abord effectuer une mesure préliminaire par spectrométrie gamma bas bruit de fond afin d'évaluer les activités en ^{226}Ra et/ou en ^{232}Th. Dans le cas du thoron, il faut minimiser les volumes de transit et un détecteur plus modeste de volume d'un litre devrait être suffisant.

Enfin, nous avons montré que pour la détection du thoron, le couplage avec un détecteur GeHP permettait un étalonnage absolu avec tout type de gaz porteur. Par contre, en radon, comme déjà dit ci-dessus, cet étalonnage reste encore à développer.

Annexe 1

Spectrométrie gamma bas bruit de fond

1 – Spécificité de la spectrométrie gamma bas bruit de fond

1.1 – Généralités du détecteur

Un détecteur GeHP est composé principalement d'un cristal germanium de haute pureté contenu dans un capot en aluminium maintenu sous vide pour éviter l'échange de chaleur avec l'environnement.

Il existe trois types du détecteur GeHP, classifiés suivant les géométries du cristal Ge : planaire, coaxiale ou puits, comme illustrées dans la figure A1.3 ci-dessous.

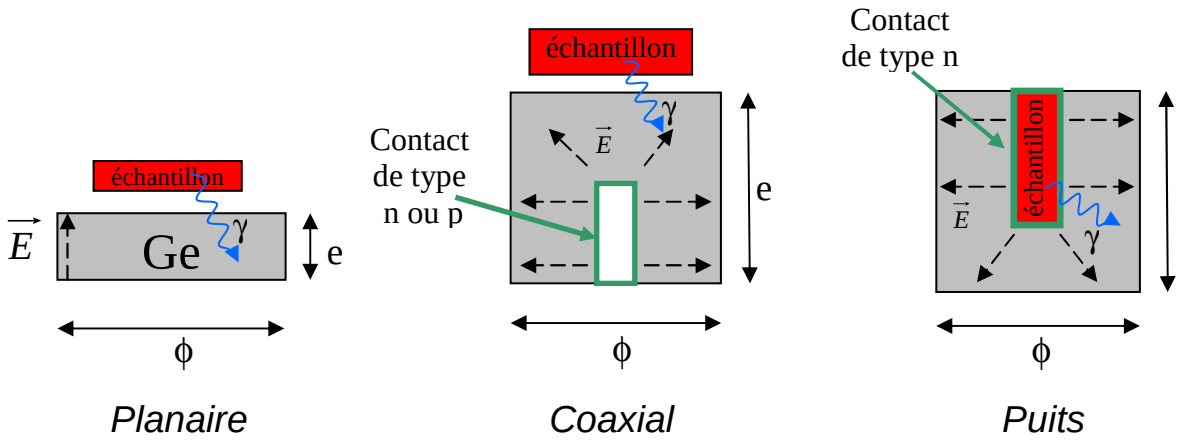


FIG. A1.1 – Différentes types du cristal GeHP et la géométrie échantillon - détecteur.

Le tableau A1.1 ci-dessous présente des différents paramètres caractéristiques pour la spectrométrie gamma de ces trois types du détecteur [39,40]. Vu leurs différentes gammes d'énergie, de masse et d'efficacité de détection, il est nécessaire de choisir le type le plus adapté à la nature et la géométrie de l'échantillon.

Type du détecteur	Taille du cristal		Gamme d'énergie d'utilisation (keV)	Résolution en énergie (keV)		Efficacité de détection (%)	Masse d'échantillon adaptée
	Diamètre ϕ (cm)	Epaisseur e (cm)		À 122 keV	À 1332 keV		
Planaire	5 – 8	0,5 – 3	qq – 1500	0,5	-	< 10	10 g – 100 g
Coaxial type p	5 – 8	4 – 8	80 – 3000	0,8	1,8	qq - 15	100 g - qq kg
Puits	5 – 8 (ϕ_{puits} = 1)	4 – 8 (e_{puits} = 4)	20 – 3000	-	2,2	10 – 80	1 g – 10 g

TAB. A1.1 – Caractéristiques de différents types du détecteur GeHP.

Le cristal GeHP est toujours refroidi à une température de 77 K pour éviter le bruit de fond intrinsèque dû aux excitations thermiques. Le refroidissement du cristal à cette température de fonctionnement est effectué soit par une bouteille d'azote liquide (Dewar), soit par un cryogénérateur. L'acquisition des données et la mise en forme du spectre gamma sont réalisées par un système électronique standard comprenant un préamplificateur, un amplificateur et un codeur couplé à un PC.

1.2 - Méthode d'analyse et exploitation des données

L'analyse par spectrométrie gamma comprend deux grandes étapes : l'identification des radionucléides associés aux pics gamma observés grâce à leurs énergies puis l'évaluation de l'activité correspondante.

Pour la première étape, il faut tout d'abord étalonner le spectre en énergie, ce qui en général est réalisé à l'aide des sources multigamma (^{137}Cs, ^{60}Co, ^{133}Ba). Pour la plupart des échantillons d'origine naturelle, un auto-étalonnage est possible à partir des raies caractéristiques des isotopes naturels (^{214}Bi, ^{214}Pb, ^{212}Bi, ^{212}Pb, ^{208}Tl, etc) présentées dans le tableau A1.2.

Isotopes	Énergies des gamma E_γ (keV)	Intensités des gamma I_γ (%)
^{226}Ra	186	3,59
^{214}Pb	352	37,6
	295	19,3
	242	7,43
^{214}Bi	609	46,1
	1764	15,4
	1120	15,1
^{228}Ac	911	25,8
	967	15,8
	338	11,27
^{224}Ra	241	4,10
^{212}Pb	238	43,3
	300	3,28
^{212}Bi	727	6,58
^{208}Tl	2614	99
	583	84,5
	861	12,42
^{235}U	186	57,2
	144	10,96
	163	5,08
	205	5,01
^{227}Th	236	12,3
	256	7,0
^{223}Ra	269	13,7
	154	5,62
	324	3,93
	144	3,22
	338	2,79
^{219}Rn	271	10,8
	402	6,37
^{211}Pb	405	3,78
	832	3,52
^{211}Bi	351	12,91
^{40}K	1460	11
^{137}Cs	662	85,1
^{60}Co	1173	99,97
	1332	99,99

TAB. A1.2 – Energies et intensités des rayonnements gamma émis par les principaux radionucléides dans le cadre de NEMO (^{40}K, ^{137}Cs, ^{60}Co et chaîne de ^{238}U, ^{232}Th et ^{235}U).

La figure A1.2 présente à titre d'exemple un spectre en énergie des rayonnements gamma après la calibration en énergie et l'identification des radionucléides.

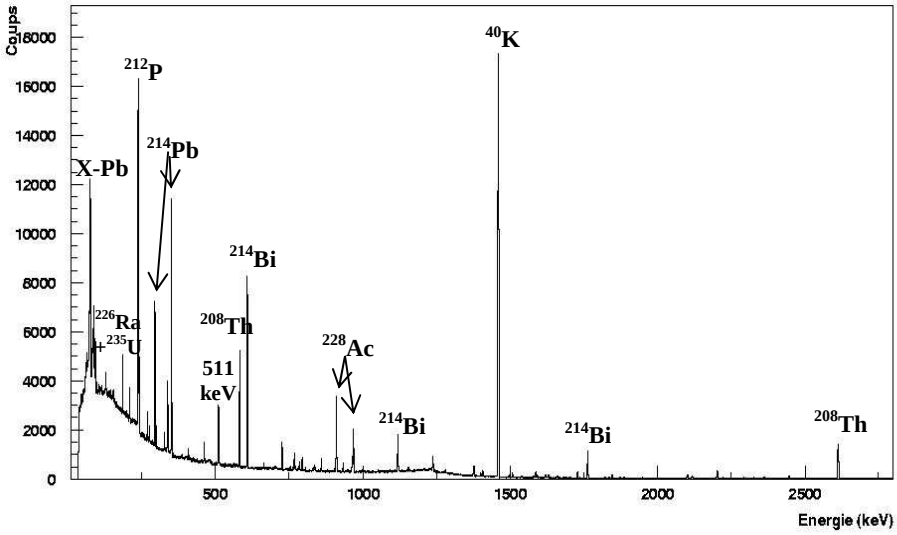


FIG. A1.2 – Spectre en énergie des rayonnements gamma obtenu pour la mesure d'un sédiment. Les radionucléides sont déterminés à partir de l'énergie des raies gamma caractéristiques.

Notons que dans le cadre de cette thèse, nous nous intéressons seulement aux rayonnements gamma émis par les descendants du radon (^{222}Rn) et du thoron (^{220}Rn), c'est-à-dire ceux du ^{214}Pb, ^{214}Bi, ^{212}Pb et ^{208}Tl.

La deuxième étape de l'analyse du spectre gamma est de calculer l'activité de chaque radionucléide :

$$A = \frac{S - B}{\varepsilon_\gamma \times I_\gamma \times t \times m} \qquad \text{(A1.1)}$$

où A est l'activité massique, exprimée en Bq/kg (ou Bq/g),

S aire de la raie gamma,

B bruit de fond pour la même raie gamma, mesuré en l'absence d'échantillon,

ε_γ efficacité de détection,

I_γ intensité gamma,

m masse de l'échantillon en kg (ou g)

et t temps de mesure en seconde.

L'efficacité de détection est dépendante de plusieurs paramètres : l'énergie du rayonnement gamma, la géométrie du cristal Ge, la géométrie et la nature de l'échantillon. Elle est évaluée soit à partir d'un standard étalonné en activité, soit à partir d'une simulation Monte-Carlo. L'avantage de la simulation Monte-Carlo est la possibilité de déterminer cette efficacité de détection dans diverses géométries complexes difficiles à reproduire expérimentalement. C'est cette méthode que nous avons utilisé dans le cadre de ce travail.

La figure A1.3 donne un exemple de courbe de l'efficacité de détection en fonction de l'énergie des rayonnements gamma émis pour un détecteur GeHP type coaxial de 100 cm^3 [41]. Le standard utilisé est un sédiment mis dans une boîte en plexiglas de 70 mm de diamètre et de 20 mm d'épaisseur.

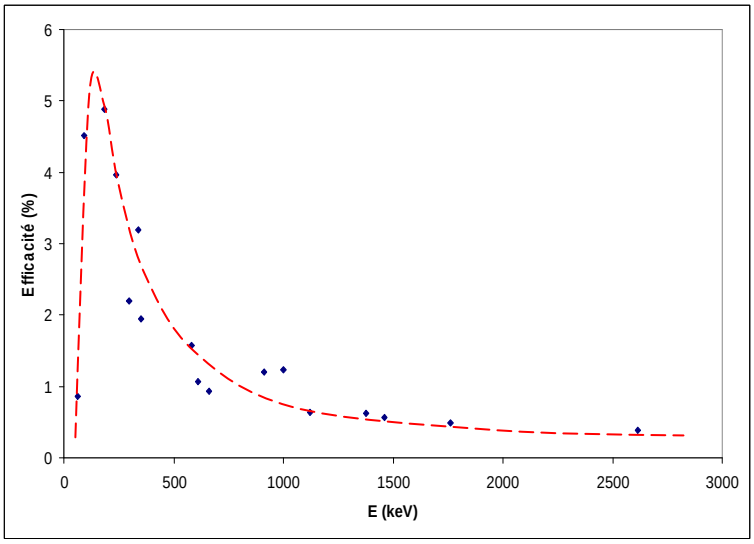


FIG. A1.3 – Exemple de courbe d'efficacité d'un détecteur GeHP type coaxial de 100 cm^3 en fonction de l'énergie des rayonnements gamma émis.

En cas d'absence du pic recherché dans le spectre gamma, on peut calculer une valeur limite de l'activité (à 95% de niveau de confiance) par l'expression suivante :

$$A < \frac{2{,}3 \times \sqrt{bdf}}{\varepsilon_\gamma \times I_\gamma \times t} \qquad \text{(A1.3)}$$

où bdf est le bruit de fond calculé à partir du spectre enregistré sans l'échantillon.

1.3 - Blindage et protection contre les radioactivités naturelles

La formule A1.3 nous montre que pour atteindre une bonne sensibilité de l'ordre du mBq/kg comme exigé pour le contrôle des matériaux du détecteur de radon, le bruit de fond du détecteur doit être minimisé. Ceci impose pour les spectromètres GeHP les trois conditions suivantes :

1 – Les matériaux du cryostat doivent être sélectionnés pour leur pureté radioactive (vis-à-vis à la radioactivité naturelle).

2- Le détecteur GeHP doit être entouré d'un blindage contre la radioactivité ambiante, généralement constitué de plomb, cuivre et polyéthylène borée contre les neutrons.

3 – Pour minimiser l'influence du rayonnement cosmique, le détecteur GeHP doit être installé dans un site souterrain.

Dans notre cas, pour les mesures concernant le détecteur de radon, nous avons utilisé soit les spectromètres gamma installés au Laboratoire Souterrain de Modane (couverture de 4800 m équivalent eau, sensibilité de l'ordre de 0,03 Bq/m^3), soit ceux installés dans la Plateforme PRISNA (couverture de 5 m équivalent eau, sensibilité de l'ordre de 10 Bq/m^3) du CENBG.

Annexe 2

Dépôt radioactif sur les surfaces

1 – Mesure du bruit de fond intrinsèque du détecteur de radon

Rappelons que dès son arrivée au CENBG en mars 2006, le bruit de fond du détecteur de radon utilisé pour ce travail de thèse a été mesuré autour de 9 coups/j, moyenne d'une durée de 18 jours (voir figure 3.6, section 3.2). En décembre 2008, nous avons décidé de vérifier le niveau du bruit de fond du même détecteur sur une période de 23 jours. Au départ, avant de fermer les vannes, une purge avec de l'azote comprimé a été effectuée. Le résultat de cette mesure est présenté dans la figure A2.1 avec la surprise d'un bruit de fond moyen à la saturation de 325 coups/j dans le pic à 7,7 MeV, soit 40 fois plus grand que ce qui était attendu.

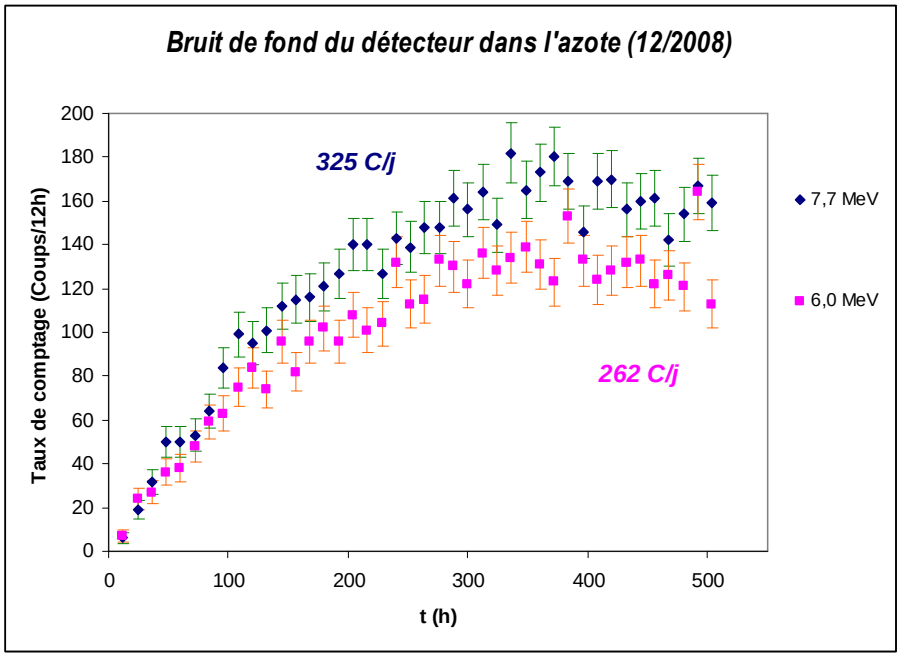


FIG. A2.1 – Bruit de fond du détecteur de radon mesuré en décembre 2008.

2 – Pollution de l'intérieur de la cuve en ^{226}Ra

Manifestement, entre les deux mesures, on ne peut que constater qu'il y a eu une pollution importante du détecteur.

La première hypothèse, envisagée sur l'origine de ce bruit de fond, pouvait résulter des fuites au niveau de vannes d'entrée-sortie ou du joint d'étanchéité. Cette hypothèse a été rapidement rejetée en enveloppant le détecteur par un sac en plastique étanche permettant de l'isoler de l'air ambiant. Comme le taux de comptage à 7,7 MeV n'a montré aucune différence, l'origine de cette pollution ne peut être qu'à l'intérieur du détecteur lui-même.

Pour vérifier cette deuxième hypothèse, nous avons tout d'abord refait une mesure du bruit de fond dans les mêmes conditions mais après avoir changé la diode par une nouvelle. Là encore, le taux de comptage à 7,7 MeV est resté inchangé.

L'origine de cette source du bruit de fond reste alors probablement la contamination des parois interne de la cuve par des poussières de radium amenées par le gaz-porteur au moment des études de divers paramètres, humidité, température... En effet, pour la réalisation de ces expériences, nous n'avons pas pris la précaution de mettre un filtre en amont du détecteur.

Pour montrer que cette pollution provient bien d'un dépôt sur la cuve en acier, nous avons recouvert la paroi interne d'un film plastique permettant d'arrêter la collection des descendants du radon. A la saturation, le taux de comptage à 7,7 MeV est bien redescendu à quelques coups/j.

3 – Essais de dépollution de la surface interne de la cuve

Bien évidemment, nous avons entrepris de nettoyer l'intérieur de la cuve. Ce travail a été réalisé en trois étapes : tout d'abord un premier nettoyage léger à l'alcool, ensuite un deuxième nettoyage à l'alcool beaucoup plus prononcé et enfin un brossage énergique suivi d'un nettoyage à l'alcool. Le bilan des résultats obtenus est rapporté dans le tableau A2.1 ci-dessous.

	Taux de comptage à 7,7 MeV (coups/j)
Avant nettoyage	325
1er nettoyage (léger à l'alcool)	170
2ème nettoyage (plus prononcé à l'alcool)	220
3ème nettoyage (brossage à l'alcool)	170
Nouvelle cuve	10

TAB. A2.1 – Bilan des résultats des différentes tentatives de nettoyage effectuées dans le but d'enlever la pollution de radium sur la surface interne de la cuve. La dernière ligne donne le résultat après le changement de la cuve par une nouvelle.

Malgré tous nos efforts, les taux de comptage n'ont montré au mieux qu'un gain d'un facteur deux. La solution définitive a été de changer la cuve pour laquelle nous avons retrouvé un bruit de fond interne d'environ 10 coups/j sur la raie alpha de 7,7 MeV.

4 – Conclusions

Cette étude a révélé qu'il était relativement facile de polluer une surface en radium et qu'il était aussi très difficile d'effectuer la décontamination de cette surface. Depuis cet incident, toutes les mesures de radon et de thoron ont été réalisées en introduisant un filtre entre la source et le détecteur.

Dans le cadre des expériences $2\beta0\nu$ pour lesquelles les taux d'événements recherchés sont extrêmement faibles, toute pollution de surface peut induire un bruit de fond non négligeable. Par exemple, après réalisation et nettoyage d'une pièce mécanique, celle-ci peut encore être polluée par les poussières de l'atmosphère ambiante et par les dépôts des descendants du radon de l'air, notamment le ^{210}Pb (22 ans). Pour le projet SuperNEMO, pour éviter tout travail fastidieux de nettoyage, il serait sage de stocker toutes les pièces mécaniques sous emballage plastique avant le montage définitif dans le site souterrain.

Bibliographie

[1] Note de P.Curie et M.P.Curie – Comptes rendus des Académies des Sciences – C.R T.129 (1899) 714-716 – *«Sur la radioactivité provoquée par les rayons de Becquerel»*.

[2] E.Rutherford – The London, Edinburgh, and Dublin Philosophical Magazine and Journal of Science 49 (1900) 161-192.

[3] Note de A.Debierne – Comptes rendus des Académies des Sciences C.R T.129 (1899) 593-595 – *« Sur une nouvelle matière radio-active»*.

[4] H. Métivier, M-C. Robé - Institut de Protection et de sureté nucléaire – *«Le Radon de l'environnement à l'Homme»*.

[5] A. Nachab - Thèse à l'Université Louis Pasteur de Strasbourg (2003) – *«Etudes expérimentales et modélisations Monte Carlo de l'auto-absorption gamma et de la dosimétrie active par capteurs CMOS»*.

[6] P. Bossew – Applied Radiation and Isotopes 59 (2003) 389-392 – *"The radon emanation power of building materials, soils and rocks"*

[7] J. Somlai et al – Radiation measurements 43 (2008) 72-76 – *«Connection between radon emanation and some structural properties of coal-slag as building material»*.

[8] R. Abou-Khalil - Thèse à l'Université Louis Pasteur de Strasbourg (2008) – *«Caractéristiques de la charge électrique d'un aérosol radioactif naturel»*.

[9] K.P.Eappen et al. – Radiation Measurements (2008) 91-97 – *"Simultaneous measurement of radon and thoron usung Lucas scintillation cell"*.

[10] R.L.Fleischer – Encyclopedia of Materials : Science and Technology (2001) 8737 – 8745 – *"Solid-state Nuclear Track Detectors : Applications"* .

[11] M.A.Misdaq – Applied Radiation and Isotopes 59 (2003) 273-280 – *"Radon, thoron and their progenies measured in different dwelling rooms and reference atmospheres by using CR-39 and LR-115 SSNTD"*.

[12] User Manual – Portable Radon Monitor AlphaGUARD – Genitron Instruments, Germany (1998).

[13] G. I.Gudjonsson et P. Theodorsson – Applied Radiation and Isotopes 53 (2000) 377-380 – *«A compact automatic low-level liquid scintillation system for radon-in water measurement by pulse pair counting»*.

[14] Y.Takeuchi et al. – NIM A 421 (1999) 334-341 – *«Development of high sensitivity radon detectors»*.

[15] Takeshi Iimoto et al. – Journal of Environmental Radioactivity XX (2007) 1-9 – *«Development of a technique for the measurement of the radon exhalation rate using an activated charcoal collector»*.

[16] K. N. YU, Z. J. GUAN et al. – Applied Radiattion and Isotopes Vol.49, No.12 (1998) 1691-1694 – *"Active measurements of indoor concentrations of radon and thoron gas using charcoal canisters"*.

[17] Y. Lemière - Thèse de Doctorat de l'Université de Caen/Basse-Normandie (2008) - *«Recherche de la violation de conservation du nombre leptonique total par le processus de double désintégration bêta du 82Se et du 150Nd dans l'expérience NEMO3. Étude du processus Bi-Po de la chaîne du thoron»*.

[18] R. Arnold et al. – NIM A 536 (2005) 79-12 – *«Technical design and performance of the NEMO3 detector»*.

[19] C. Augier - Habilitation de Direction de Recherche (2005) – *«Expérience NEMO3 – Avantages et limitations – Prospective pour la physique double bêta»*.

[20] J. Argyriades et al. – NIM A 606 (2009) 449-465 – *«Measurement of the background in the NEMO 3 double beta decay experiment»*.

[21] G.Broudin – Thèse de Doctorat de l'Université de Bordeaux 1 CENBG (2007), numéro d'ordre 3376 – *«Recherche de la double décroissance bêta sans émissions de neutrino du ^{82}Se. Analyse de données et modélisation du bruit de fond du détecteur NEMO3»*.

[22] V.I. Tretyak – contributions to NEMO Collaboration Meeting Juin 2010 – "*Use of the laser energy survey in 0ν search*".

[23] V.Kolavenko – contributions to NEMO Collaboration Meeting, Strasbourg Octobre 2007 – "*The ^{220}Rn (^{208}Tl) measurements inside the tracking chamber*".

[24] Ph. Hubert - contributions to NEMO Collaboration Meeting, Aussois Décembre 2002, 191-202 – "*Recent measurements of the rate of Radon inside the LSM*".

[25] A. Nachab, P. Hubert – Topical Workshop on Low Radioactivity Techniques: LRT 2006, Aussois, France, 1-4 October 2006 - 2nd Topical Workshop in Low Radioactivity Techniques, France (2006) – "*Radon reduction facility and Radon measurements at the Modane Underground Laboratory*".

[26] R. Arnold et al. – NIM A 503 (2003) 649 – 657 – "*Possible background reductions in double beta decay experiments*".

[27] Ph. Hubert - contributions to NEMO Collaboration Meeting, Caen Avril 2005, 53-70 – "*Radon detector*".

[28] V.I. Tretyak - contributions to NEMO Collaboration Meeting, Manchester Juillet 2007 – "*NEMO-3 external background model*".

[29] V.Kolavenko – contributions to NEMO Collaboration Meeting, Dubna Octobre 2010 – "*Update of the background study for future excited states analysis*".

[30] E. Choi et al. – NIM A 459 (2001) 177-181 - «*Highly sensitive radon monitor and radon emanation rates for detector components*».

[31] http://sales.hamamatsu.com/index.php?id=13183080&language=1&undefined

[32] M. Wojcik, G. Zuzel – NIM A 539 (2005) 427-432 - "*Low -^{222}Rn nitrogen gaz generator for ultra-low background systems*".

[33] J. Chen et al. – Journal of Environmental Radioactivity 101 (2010) 317-322 – "*Radon exhalation from building materials for decoration use*".

[34] N. Lavi et al. – Radiation Measurements 44 (2009) 396-400 – "*Measurements of radon emanation in construction materials*".

[35] L.Sesana et al. - Journal of Environnemental Radioactivity 65 (2003) 147-160 – «*Long period study of outdoor radon concentration in Milan and correlation between its temporal variations and dispersion properties of atmosphere* ».

[36] D. Iskandar et al. – Applied Radiation and Isotopes 60 (2004) 971-973 – «*Quantification of the dependency of radon emanation power on soil temperature*».

[37] Instruction Manual - *Radon Monitor RADIM 2PF* - Jiri Plch M.Eng. SMM, Czech Republic.

[38] M. Fila and C. R. Phillips - The Science of The Total Environment Volume 133, Issue 3, 18 June 1993, 221-232 **–** **"***Polonium-216 mobility measurements using a differential mobility analyzer"*.

[39] G. Gilmore and J. Hemingway – John Wiley & sons (1995) – *«Practical gamma-ray spectrometry»*.

[40] G. Le Petit et G. Granier – Editions TEC&DOC Lavoisier (2002) – *«Spectrométrie gamma appliquée aux échantillons de l'environnement»*.

[41] B.Lauriane – Rapport de stage au CENBG 2010 – *«Etudes de basse radioactivités par spectrométrie gamma bas bruits de fond»*.

[42] R.Gurriaran – Thèse à l'Université de Bordeaux 1 (1996) – *« Développement de la spectrométrie gamma ultra bas bruit de fond au Laboratoire Souterrain de Modane. Application aux décroissances double bêta »*.

Résumé

Ce travail s'insère dans le cadre de l'expérience NEMO cherchant à mettre en évidence une radioactivité extrêmement rare : la double désintégration bêta sans émission de neutrino et par suite d'obtenir des informations sur la nature Dirac-Majorana et sur la masse du neutrino. La particularité de cette expérience actuellement en fin de prise de données au Laboratoire Souterrain de Modane est l'extrême rareté du signal recherché ($T_{1/2} > 10^{24}$ ans, quelques événements par an). Il s'ensuit donc des conditions très contraignantes sur toutes les composantes du bruit de fond, et parmi celles-ci sur les niveaux de radon et de thoron.

Après quelques rappels sur les propriétés du radon et du thoron et leur influence sur les données de l'expérience NEMO, ce travail de thèse a porté sur la détection de ces gaz radioactifs par la technique de collection électrostatique des descendants sur la surface d'une diode silicium et la détection des alpha émis. Nous avons montré que les rendements de détection sont fortement influencés par les conditions expérimentales et que le niveau de radon pouvait être contrôlé actuellement au niveau du mBq/m^3. Une série des mesures de spectrométrie gamma nous a permis de comprendre l'origine du bruit de fond du détecteur de radon, et ainsi d'envisager dans l'avenir un gain en sensibilité en augmentant le volume de détection et en effectuant une sélection très poussée des matériaux non radioactifs. Par contre, pour le thoron, qui n'avait jamais été étudié jusqu'à présent, les efficacités de détection sont très faibles à cause des périodes courtes mises en jeu. Un monitorage continu du thoron dans le gaz de NEMO est donc exclu, ce qui souligne l'importance pour l'expérience NEMO que le dispositif expérimental puisse contrôler son propre bruit de fond.

Mots-clés : Radon, thoron, NEMO, bruit de fond, gamma spectrométrie, collection électrostatique.

Abstract

This work is part of the NEMO (Neutrino Ettore Majorana Observatory) experiment that is looking for an extremely rare radioactivity: the double beta decay without neutrino emission. Such process could prove the Majorana nature of the neutrino and could give an estimation of its absolute mass. The particularity of this experiment, currently running in the Modane underground laboratory (LSM), is the extreme weak signal (for $T_{1/2} \sim 10^{24}$ years, a few events per year). It requires therefore very stringent conditions on all components of the background among which the level of radon and thoron activity.

After a reminding of the general properties of radon and thoron as well as their influence on the NEMO data, this thesis focuses on the detection of these radioactive gases using the technique of electrostatic collection. The radon and/or the thoron daughters are collected by an electrostatic field on the surface of a silicon diode, where their characteristic alphas are detected. We have shown that the detection efficiencies are strongly influenced by the experimental conditions and that sensitivity around 1 mBq/m^3 can be achieved for the radon in a gas. A series of measures through low background gamma spectrometer allowed us to understand the origin of the radon background, and thus showing that better sensitivity could be obtained by increasing the detection volume and by carrying out a strict selection of non-radioactive materials. For the thoron gas, which had never been studied before, the detection efficiencies have been found very low as a consequence of the short periods involved. Therefore, a continuous monitoring of the level of thoron in the NEMO gas is excluded, which underlines the importance for the NEMO experimental device to be able to control its own background.

Keywords: Radon, thoron, NEMO, background, gamma spectrometry, electrostatic collection

Tóm tắt

Nghiên cứu này nằm trong khuôn khổ thí nghiệm NEMO, hiện đang trong những bước lấy số liệu cuối cùng tại phòng thí nghiệm ngầm Modane, nhằm ghi nhận phân rã bêta kép không kèm theo phát xạ neutrino, để từ đó chứng minh bản chất Majorana của hạt neutrino và cho phép ước lượng khối lượng tuyệt đối của hạt này. Phân rã này, nếu thật sự tồn tại, là loại phân rã cực hiếm ($T_{1/2} > 10^{24}$ năm, tương đương với vài tín hiệu ghi nhận được mỗi năm). Vì thế, nó đòi hỏi những điều kiện rất gắt gao đối với mọi thành phần cấu thành nên phông nền bức xạ, trong đó bao gồm hoạt độ của radon và thoron.

Sau khi nhắc lại những tính chất cơ bản của radon và thoron, cũng như ảnh hưởng của chúng tới số liệu của NEMO, bản luận văn tập trung vào việc đo hoạt độ của hai khí phóng xạ này bằng cách thu nhận các hạt nhân con của chúng thông qua trường tĩnh điện, tiếp đó ghi nhận các hạt alpha phát ra tại bề mặt một đi-ốt silic. Nghiên cứu này đã chỉ ra rằng hiệu suất đo phụ thuộc vào nhiều điều kiện thực nghiệm, và thiết bị này cho phép kiểm soát khí radon ở mức mBq/m^3. Một lọat các phép đo với phổ kế gamma đã giúp chúng tôi hiểu được căn nguyên phông nền bức xạ của thiết bị, và từ đó dự kiến có thể cải thiện độ nhạy của thiết bị bằng cách tăng thể tích đo và chọn lọc các loại vật liệu có độ phóng xạ thấp. Tuy nhiên, với khí thoron, vốn vẫn chưa được nghiên cứu kỹ cho tới nay, hiệu suất đo được của thiết bị là rất nhỏ do chu kỳ bán rã quá ngắn của các hạt nhân liên quan. Vì vậy, việc theo dõi thoron trong khí ga của NEMO đã bị loại trừ, đồng nghĩa với việc khẳng định tầm quan trọng của việc kiểm soát phông nền bức xạ thoron của chính thiết bị ghi nhận bêta kép trong thí nghiệm NEMO.

Từ khóa : Radon, thoron, NEMO, phông nền bức xạ, phổ kế gamma, phổ kế alpha.