HAL
open science

Scintillateurs cryogéniques pour la détection d'événements rares, dans les expériences EDELWEISS et EURECA

Marc-Antoine Verdier

▶ **To cite this version:**

Marc-Antoine Verdier. Scintillateurs cryogéniques pour la détection d'événements rares, dans les expériences EDELWEISS et EURECA. Autre [cond-mat.other]. Université Claude Bernard - Lyon I, 2010. Français. NNT : 2010LYO10173 . tel-00556620v2

HAL Id: tel-00556620

https://theses.hal.science/tel-00556620v2

Submitted on 4 Feb 2011

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 173-2010
LYCEN – T 2010-15

Thèse

présentée devant

l'Université Claude Bernard Lyon-I

École Doctorale de Physique et d'Astrophysique

pour l'obtention du

DIPLÔME de DOCTORAT
Spécialité : Physique des Particules

(arrêté du 7 août 2006)

par

Marc-Antoine VERDIER

Scintillateurs cryogéniques pour la détection d'évènements rares, dans les expériences EDELWEISS et EURECA

Soutenue le 8 octobre 2010
devant la Commission d'Examen

Jury :	Mme	E.	Auffray Hillemanns	Rapporteur
	Mme	C.	Brofferio	Rapporteur
	M.	P.	Di Stefano	Co-directeur
	M.	J.	Gascon	Directeur de thèse
	M.	C.	Dujardin	Président du jury
	M.	D.	Thers	Examinateur
	M.	H.	Krauss	Examinateur

Remerciements

Je tiens en premier lieu à remercier en toute sincérité mes directeurs de thèse, car oui j'ai eu le loisir d'en épuiser deux.
Je vais donc tout d'abord remercier Philippe "Sensei" Di Stefano pour sa sympathie, mais surtout pour m'avoir donné ma chance, puis sa confiance. Je tiens également à le remercier pour sa patience, son dévouement et sa disponibilité malgré la distance.
Je tiens ensuite à remercier Jules Gascon qui m'a d'une part accueilli dans son équipe, mais surtout pour sa précieuse aide et nos très longues discussions, notamment pendant cette dernière année, qui furent à la fois agréables et redoutablement efficaces.
Je tiens également à les remercier tous deux d'avoir accepté de participer à mon jury de thèse.

Je voudrais aussi à remercier mes rapporteurs : mesdames Etiennette Auffray Hillemanns et Chiara Brofferio pour avoir relu en détails ce manuscrit et avoir permit de l'améliorer.
Je remercie également Christophe Dujardin d'une part pour avoir accepté de présider le jury, mais également pour ses nombreux conseils durant cette thèse ainsi que lors des nombreuses années où j'ai eu la chance de suivre ses enseignements.
Je tiens bien sûr à remercier également Dominique Thers, et Hans Kraus pour avoir accepter de participer à mon jury de thèse et pour leurs précieux commentaires.

Bien évidemment, je tiens à remercier toute l'équipe Manoir/Edelweiss pour leur accueil, leur sympathie et leur soutient pendant toutes ces années. Je remercie particulièrement Corinne Augier pour sa relecture et la correction complète de ce manuscrit, ce qui fut d'une très grande aide. Je remercie également Silvia Scorza et Luca Pattavina, mes deux italiens de collègues de bureau qui m'ont toujours égaillés (notamment avec leurs disputes en italien).

Je tiens également à remercier Bernard Ille, directeur du laboratoire, pour m'y avoir accueilli et encouragé.

Je tiens également à remercier l'ensemble des équipes techniques et de services du laboratoire, qui furent toujours d'une grande réactivité. Je tiens en particulier à remercier Sylvain Vanzetto dont la rapidité à résoudre n'importe quel problème technique fut une aide des plus précieuse. Mais je tiens également à remercier Guillaume Baulieu et Yoan Giraud pour le support informatique, ainsi que Franck Mounier et Alexis Eynard pour le support mécanique, qui ont toujours pu me fournir les pièces malgré des délais parfois courts.
Enfin je tiens à remercier Sylvie Flores pour sa sympathie et son support en documentation et pour l'école doctorale.

Je tiens également à remercier l'ensembles des thésard, post-doc et étudiants et chercheurs que j'ai eu l'occasion de côtoyer et de croiser au cours de ces années et notamment tous les habitués de la pause café de 13h et 16h, en vrac : Fabrice, Nicolas, Laurie, Cyril, Myriam, Pierre, Julie, Johann, Antoine, tous les italiens et tous les autres que j'ai du oublier.

Enfin je tiens à remercier toute ma famille et mes amis pour leur soutient et en particulier Anne pour la relecture et la correction des (nombreuses) fôtes dortografe (et en plus sans en comprendre le moins du monde la signification).

Voilà à tous je dis merci, sincèrement merci...

Table des matières

Remerciements **v**

Introduction **1**

1 La Matière Sombre dans l'Univers **3**
1.1 Aux différentes échelles de l'Univers 3
1.1.1 À l'échelle galactique 3
1.1.2 À l'échelle des amas de galaxies 4
1.1.2.1 Vitesses des galaxies 5
1.1.2.2 Rayonnement X des gaz 5
1.1.2.3 Lentilles gravitationnelles 6
1.1.3 À l'échelle cosmologique 6
1.2 Les candidats à la matière sombre 8
1.2.1 Matière sombre baryonique 8
1.2.2 Matière sombre non baryonique 8
1.2.3 Le WIMP 9
1.2.3.1 Densité relique 9
1.2.3.2 Un candidat supersymétrique 10
1.3 Détection de la matière sombre 11
1.3.1 Dans les collisionneurs 11
1.3.2 La détection indirecte 11
1.3.2.1 Antimatière 12
1.3.2.2 Neutrinos 12
1.3.2.3 Rayons Gamma 12
1.3.3 La détection directe 13
1.3.3.1 Détecteurs cryogéniques 13
1.3.3.2 Détecteurs à gaz nobles 14
1.3.3.3 Autres types d'expériences 15
1.3.3.4 Le cas DAMA 16

2 Intérêt des Cibles Multiples pour la Détection Directe 19
2.1 Modèle théorique d'interaction du WIMP avec la matière . . . 19
2.1.1 Fonction spectrale 20
2.1.2 Facteur de forme et section efficace d'interaction 21
2.1.2.1 Interaction SI 22
2.1.2.2 Interaction SD 23
2.2 Intérêt des cibles multiples 23
2.2.1 Spectres de recul 23
2.2.2 Interaction des neutrons 25

3 Les Expériences EDELWEISS et EURECA 29
3.1 Expérience et principe de détection 29
3.1.1 Laboratoire souterrain de Modane 29
3.1.2 Principe de détection 29
3.2 Première phase : EDELWEISS I 32
3.3 Second phase : EDELWEISS II 35
3.3.1 Dispositif expérimental 35
3.3.2 Bolomètres InterDigit 36
3.3.3 Résultats actuels 38
3.4 Futur : EURECA 38

4 Méthode Expérimentale pour l'Étude de Scintillateurs 41
4.1 Processus de scintillation des cristaux inorganiques 41
4.1.1 Interaction particules/matière 42
4.1.1.1 Les neutrons 42
4.1.1.2 Les électrons 43
4.1.1.3 Les particules lourdes chargées 43
4.1.1.4 Les photons γ 43
Absorption photoélectrique : 43
Diffusion Compton : 43
Création de paire e^+-e^- : 44
4.1.2 Mécanismes de scintillation 44
Conversion de l'énergie 45
Thermalisation 45
Localisation 45
Recombinaison 45
4.1.3 Caractéristiques générales des scintillateurs inorganiques 46
4.1.3.1 Rendement lumineux 46
4.1.3.2 Constante(s) de temps de scintillation 47
4.1.3.3 Effet de la température 47
4.2 Dispositif expérimental 48

4.2.1 Le cryostat SciCryo 48
4.2.1.1 Intérêt du cryostat optique 48
4.2.1.2 Caractéristiques 50
4.2.1.3 Efficacité optique 51
4.2.2 Chaîne d'acquisition 53
4.2.2.1 Photomultiplicateurs 53
Photoémission : 54
Émission d'électrons secondaires : 56
Émission spontanée d'électrons 57
Afterpulse 57
PMTs utilisés : 57
4.2.2.2 Chaîne d'acquisition électronique 59
4.2.2.3 Numérisation 61
Numériseur PXI : 61
TDC multistop : 63
4.2.2.4 Modes de coïncidence(s) 64
Mode simple coïncidence 64
Mode multicoïncidences 65
4.2.2.5 Conditions de déclenchement 66
Simple coïncidence 68
Multicoïncidences 68
4.2.2.6 Fenêtre de coïncidence 71
4.3 Analyse des données 71
4.3.1 Réduction des données brutes 72
4.3.2 Coupures 74
4.3.2.1 Temps moyen d'arrivée des photons 75
Effet de l'empilement d'évènements : 80
4.3.2.2 Premier photon 80
4.3.2.3 Nombre de photons 82
4.3.3 Reconstruction des histogrammes 83
4.3.3.1 Distribution du nombre de photons 83
4.3.3.2 Évènement moyen 86

5 Scintillation Cryogénique de Cristaux sous Radiation γ 89
5.1 Germanate de Bismuth ($Bi_4Ge_3O_{12}$) 89
5.1.1 Dispositif expérimental 90
5.1.2 Résultats 91
5.1.2.1 Constantes de temps de scintillation 92
5.1.2.2 Rendement lumineux 94
5.2 Fluorure de Baryum (BaF_2) 97
5.2.1 Dispositif expérimental 99

5.2.2 Résultats 99
5.2.2.1 Constantes de temps de scintillation 99
5.2.2.2 Rendement lumineux 102

6 Étude Spectroscopique du Saphir Dopé au Titane 107
6.1 État de l'art 108
6.2 Dispositif expérimental 109
6.2.1 Superlumi 109
6.2.2 Cristaux 110
6.3 Résultats 111
6.3.1 Spectres d'Émission 111
6.3.2 Rendement lumineux 113
6.3.3 Spectres d'Excitation 117

Conclusion 119

Bibliographie 121

Introduction

Indéniablement, la matière sombre fait partie des grands mystères de l'Univers, qui motivent et confrontent les scientifiques du monde entier. Observable uniquement par ses effets gravitationnels agissants à toutes les échelles, nombre d'expériences se sont lancées le défi d'en comprendre la véritable nature. Un des candidats privilégiés pour incarner la matière sombre est le WIMP (acronyme de Weakly Interacting Massive Particle), particule hypothétique massive interagissant faiblement avec la matière. Parmi les différentes méthodes employées pour tenter de le révéler, la détection directe, qui consiste à mesurer son dépôt d'énergie dans un détecteur cible, offre des possibilités remarquables. La principale difficulté revient à identifier ce signal parmi le fond radioactif et cosmique présent sur Terre. Bien qu'il soit réduit de manière considérable, grâce à l'utilisation de laboratoires souterrains et de blindages adéquats, il est nécessaire d'utiliser des détecteurs performants. Ceux-ci doivent, en effet, être capables de mesurer un dépôt d'énergie extrêmement faible, de quelques keV, mais aussi pouvoir identifier et discriminer les particules provenant du fond résiduel, notamment les neutrons qui, de part leur nature, peuvent imiter le signal d'un WIMP.
Une solution consiste à multiplier les types de cibles faisant office de détecteurs. En ce sens, les cristaux scintillants pourraient fournir des matériaux intéressants, car proposant une palette de cibles considérable, aussi bien "légères" que "lourdes". L'expérience EDELWEISS, ainsi que la future expérience EURECA qui lui succédera, utilisent des détecteurs cryogéniques à double mesure ionisation-chaleur et dont la mesure de l'ionisation peut être effectuée par la mesure de la lumière provenant de cristaux scintillants. Ceux-ci pourraient ainsi faire office de détecteurs complémentaires aux détecteurs semi-conducteurs, comme ceux en germanium actuellement utilisés par EDELWEISS et fournissant d'excellents résultats, mais limités à un faible choix de cibles.
Cette thèse a donc pour but de mesurer certaines propriétés de scintillation et de luminescence de cristaux refroidis à basses températures, qui pourraient faire office de cibles potentielles pour les détecteurs d'évènements rares, tels

que ceux utilisées pour la détection de matière sombre.

Le premier chapitre de cette thèse dresse une rapide description de la matière sombre, de son influence dans l'Univers et des différentes technologies mises en place pour détecter son principale candidat : le WIMP.

Le second chapitre est consacré à démontrer l'utilité de l'emploi de cibles multiples, aussi bien pour la détection du WIMP, mais également pour l'identification et le rejet du fond résiduel, obstacle principal pour ces expériences.

Le troisième chapitre, quant à lui, décrit les expériences EDELWEISS et EURECA et les moyens qu'elles mettent en œuvre dans leurs tentatives de prouver l'existence du WIMP.

Le quatrième chapitre rentre dans le vif du sujet des études effectuées durant cette thèse. Après une brève description du processus de scintillation, il s'attèle à décrire le dispositif expérimental mis en place et dédié à l'étude de certaines propriétés de scintillation de cristaux refroidis jusqu'à 3 K, telles que l'évolution du rendement lumineux et des constantes de temps de scintillation avec la température. Il décrit également en détail la méthode de comptage de photons individuels utilisée et le traitement statistique des données.

Le cinquième chapitre donne les résultats obtenus à basse température, avec ce dispositif, sur deux types de cristaux intéressants pour la détection d'évènements rares : le BGO ($Bi_4Ge_3O_{12}$) et le BaF_2.

Enfin le sixième et dernier chapitre, expose les résultats de mesures de spectroscopie obtenues sur un autre type de cristal présentant également de l'intérêt pour la détection d'évènements rares : le saphir dopé au titane. Ces mesures ont pour but de mieux comprendre l'effet du titane sur la luminescence et ont été effectuées sous excitation VUV à Hasylab sur l'expérience Superlumi.

Chapitre 1

La Matière Sombre dans l'Univers

Le premier constat de l'existence d'une masse manquante dans l'Univers remonte aux années 1930. L'astrophysicien Fritz Zwicky mesurant la distribution des vitesses des galaxies dans l'amas de Coma (Chevelure de Bérénice) a conclu que la seule matière visible ne permettait pas d'expliquer les distributions de vitesse [1]. Il a fallu ensuite attendre de nombreuses années avant que la question ne soit étudiée. Depuis, sa présence a été détectée à toutes les échelles de l'Univers, tel qu'il sera décrit par la suite.

1.1 Aux différentes échelles de l'Univers

1.1.1 À l'échelle galactique

Le début des années 1970 a vu apparaître de nouvelles observations sur les galaxies. Ainsi, l'étude des courbes de rotation des galaxies, c'est à dire la vitesse de déplacement des étoiles en fonction de leur position par rapport au centre galactique, ont montré que leur seule masse visible ne suffisait pas à les décrire correctement [2]. En effet, les vitesses de rotation des étoiles devraient suivre la loi :

$$v(r) = \sqrt{\frac{GM(r)}{r}} \tag{1.1.1}$$

où G est la constante universelle de gravitation et M la densité de masse totale présente à l'intérieur du rayon r. Si la masse totale des galaxies n'était due qu'à la masse de la matière visible, loin du centre, la vitesse de rotation devrait diminuer en $1/\sqrt{r}$. Pourtant la Figure 1.1, qui est un exemple typique

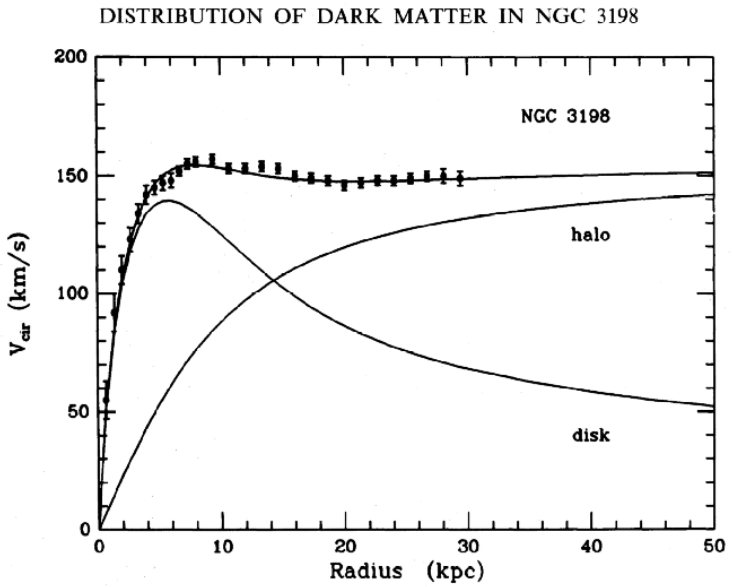

Figure 1.1 – *Courbe de rotation de la galaxie NGC 3198 [4]. La courbe attendue par la seule présence de matière lumineuse décroit pour des rayons supérieurs à 8 kpc. L'ajustement des données expérimentales doit tenir compte de la présence d'un halo de matière sombre.*

des observations sur les galaxies spirales, montre que la vitesse reste à peu près constante à partir d'une certaine valeur du rayon de l'ordre de 8 kpc. La prise en compte d'un halo sphérique de matière sombre, s'étendant bien au-delà du disque visible, permet l'ajustement des données expérimentales. Notre galaxie, étant également un galaxie spirale, elle ne fait pas exception et serait donc également entourée d'un halo de matière sombre.
Toutefois cette théorie n'est pas unanimement acceptée par la communauté. Milgrom a notamment proposé une théorie qui tente d'expliquer les courbes de rotation des galaxies par une modification des lois de Newton [3].
Cependant d'autres effets, qui seront décrit par la suite, font état de la présence de matière sombre à des échelles plus importantes.

1.1.2 À l'échelle des amas de galaxies

C'est à l'échelle des amas de galaxies qu'ont été faits les premiers constats de masse manquante [1]. Il existe plusieurs méthodes permettant d'estimer la masse d'un amas de galaxie.

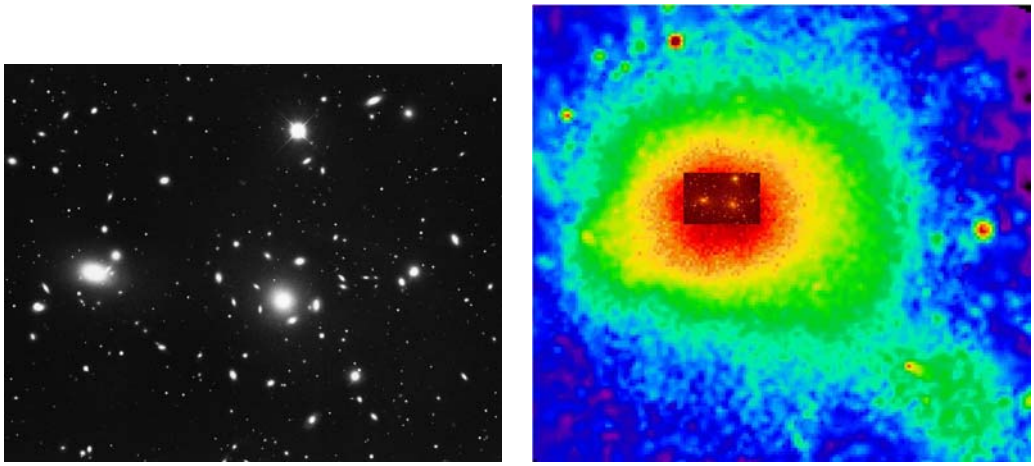

Figure 1.2 – *Gauche : image de l'amas de Coma dans le visible montrant les différentes galaxies qui le compose. Droite : imagerie X de l'amas de Coma à une plus large échelle. Le carré central est la zone de l'image dans le visible. La plupart de l'amas est composé de gaz chaud. Images tirées de* http://www.nasa.gov.

1.1.2.1 Vitesses des galaxies

Le théorème du viriel, si l'on suppose un état d'équilibre dynamique, permet de relier l'énergie cinétique E_c et l'énergie potentielle E_p moyennées dans le temps par la relation :

$$\langle E_c \rangle = -\frac{1}{2} \langle E_p \rangle \tag{1.1.2}$$

Il est ainsi possible de déduire de la mesure des vitesses de déplacement des galaxies la masse totale de l'amas. Connaissant la masse de matière visible, il est possible de calculer le rapport masse/lumière et d'en déduire ainsi la proportion de matière sombre. C'est d'ailleurs la méthode qu'avait utilisé Zwicky à l'époque.

1.1.2.2 Rayonnement X des gaz

Les amas de galaxies sont composés pour une grande part de gaz chauds et de faible densité, dans lesquels les galaxies baignent (Figure 1.2). Ce gaz en équilibre hydrostatique va émettre des photons dans la gamme des rayonnements X. Il est possible à partir de la distribution spectrale de ce rayonnement de mesurer la température, tandis que son intensité permet de mesurer la densité du gaz. Il est ainsi possible de connaître la répartition en masse de l'amas et donc la proportion de matière sombre.

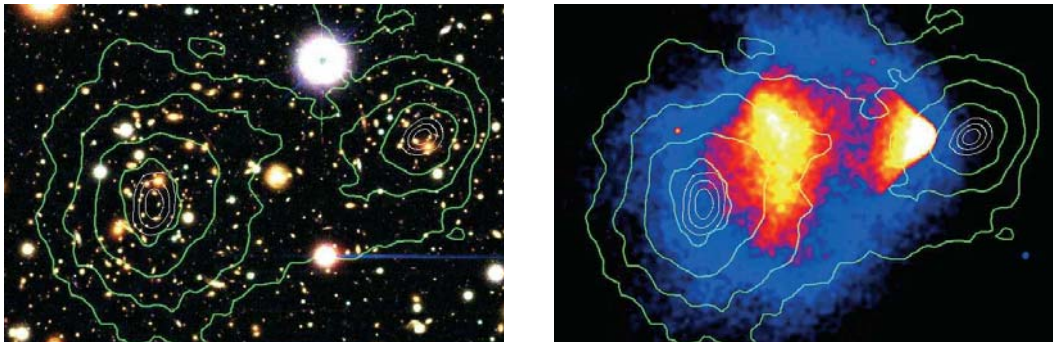

Figure 1.3 – *Gauche : image de l'amas 1E 0657-558 dans le visible. Les courbes vertes montrent la reconstruction de la masse. Droite : imagerie X de l'amas. La matière visible (essentiellement le gaz) a fortement interagi et reste "piégée" au centre de l'interaction. La plus grande partie de la masse n'a pas interagi puisque constituée essentiellement de matière sombre [5].*

1.1.2.3 Lentilles gravitationnelles

Un autre phénomène observable, lié à la gravitation et à la relativité générale, est celui de lentille gravitationnelle. Il consiste en la déformation de l'image d'un objet par la présence d'une masse importante. Ainsi une galaxie lointaine va apparaître distordue pour son observateur si un amas de galaxie se situe entre eux. En effet le champ gravitationnel de l'amas va déformer l'espace et les photons qui suivent des géodésiques, emprunteront une trajectoire courbe entraînant la déformation de l'image. La mesure de cette déformation permet de remonter jusqu'à la masse de l'amas.

Finalement, toutes ces méthodes ont permis d'arriver à la même conclusion, à savoir que la masse lumineuse ne correspond en fait qu'à ∼10 % de la masse totale des amas, le reste étant constitué de matière sombre.
De plus en 2006, D. Clowe [5] a publié une autre mise en évidence de la présence de matière sombre au niveau des amas de galaxies par une quatrième méthode. La collision de deux amas de galaxies a entrainé la séparation de la matière sombre (qui interagit peu) et la matière visible (essentiellement du gaz qui interagit beaucoup) qui reste piégée au centre de la collision (voir Figure 1.3).

1.1.3 À l'échelle cosmologique

En 2003 l'étude du fond diffus cosmologique CMB (pour Cosmic Microwave Background) par le satellite WMAP (Wilkinson Microwave Anisotropy

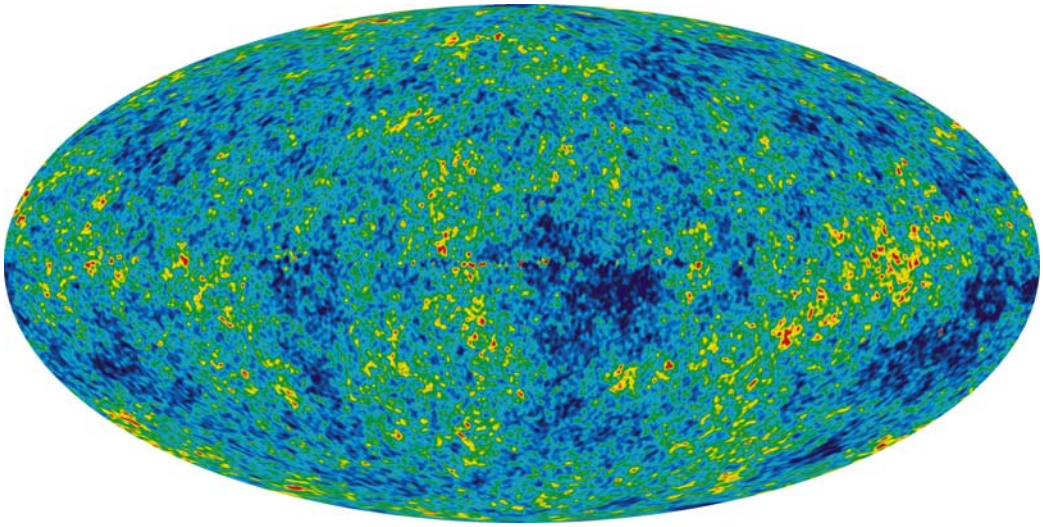

Figure 1.4 – *Anisotropie du CMB après soustraction du fond lumineux de la galaxie observée par le satellite WMAP [7]. Les anisotropies sont liées à des inhomogénéités de densité de matière ayant conduit à la formation des grandes structures de l'Univers.*

Probe) a permis de définir le rapport des différentes composantes de l'Univers.
Le CMB est le rayonnement correspondant au découplage entre les photons et la matière, 380 000 ans après le Big Bang. Avant cette époque l'Univers était encore très dense et chaud et les photons étaient continuellement absorbés et réémis. À partir de cette date, l'Univers s'étant suffisamment dilaté, ils ont pu s'échapper formant un fond à une température de ∼3000 K. Avec l'expansion de l'Univers, ce rayonnement s'est refroidi pour atteindre la température actuelle de ∼2.7 K.
Les anisotropies du CMB [6] (Figure 1.4) sont liées à des fluctuations de densité de matière, ayant conduit à la formation des grandes structures de l'Univers. L'étude de ces anisotropies a contribué à déterminer les paramètres cosmologiques. Ainsi la matière visible ne correspond qu'à 0.5 % du contenu énergétique de l'Univers, la matière baryonique elle même n'en représentant que 4 %. Quant au reste, 23 % serait constitué de matière sombre non baryonique (voir 1.2) et les 73 % restant seraient constitués d'une mystérieuse énergie noire responsable de l'accélération de l'expansion de l'Univers.

1.2 Les candidats à la matière sombre

Comme dit précédemment, la matière visible ne représente qu'environ 0.5 % du contenu énergétique de l'Univers, c'est-à-dire quelques pourcents de sa masse. Dans la suite seront présentés les candidats succeptibles de former la matière sombre. Ceux-ci pouvant être de nature baryonique ou plus exotique comme le WIMP, actuellement privilégié.

1.2.1 Matière sombre baryonique

Une fraction de la matière sombre peut provenir de la matière baryonique n'émettant pas de lumière, comme par exemple les objets astrophysiques tels que les planètes, les naines brunes, les trous noirs ou encore les étoiles à neutrons. Tous ces objets sont regroupés sous l'appellation de MACHOs (pour MAssive Compact Halo Objects) et sont détectables par leurs effets gravitationnels. Un effet de microlentille gravitationnelle va amplifier la lumière d'une étoile lorsqu'un de ces objets massifs s'interpose entre elle et l'observateur, le rendant repérable. En 2000, les résultats des expériences européenne EROS [8] et américaine MACHO [9] ont montré que cette matière sombre baryonique ne pouvait pas représenter plus de 25 % du halo de notre galaxie. De plus la densité de matière baryonique est déjà parfaitement contrainte par, entre autres, les mesure de WMAP (1.1.3).

1.2.2 Matière sombre non baryonique

Finalement, la majeure partie de la matière sombre serait d'origine non baryonique. Sa nature précise étant encore inconnue, de nombreuses particules font office de candidat.
Le candidat le plus naturel semblait être le neutrino, présent en très grande quantité dans l'Univers, mais sa faible masse et sa vitesse relativiste l'excluent. En effet, les simulations de formation des structures avec des particules relativistes (HDM pour Hot Dark Matter) conduisent à des scénarii de type "top-down", c'est-à-dire où les grandes structures sont d'abord formées pour ensuite donner des structures plus petites. Les observations semblent plutôt montrer un scénario de formation des structures de type "bottom-up" où les petites structures se forment en premier avant de se regrouper en structures plus vastes[10]. D'après les simulations, de tels scenarii nécessitent l'utilisation de matière noire froide (CDM pour Cold Dark Matter), c'est-à-dire formée de particules non relativistes.
Il existe une foule de candidats pour la CDM, allant des neutrinos massifs à des particules plus exotiques telles que les axions ou les particules de Kalusa-

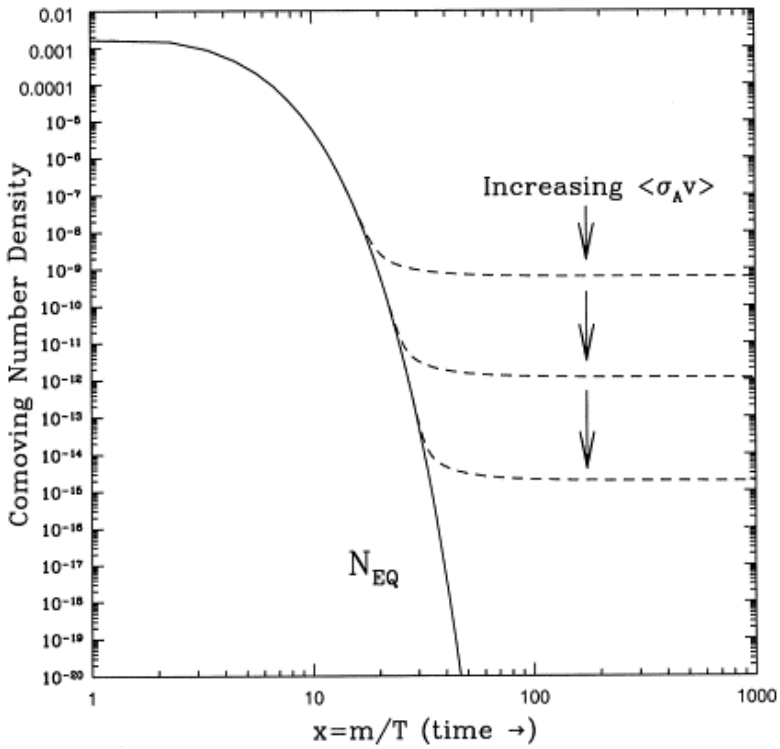

Figure 1.5 – *Variation de la densité comobile de WIMP en fonction du rapport masse/température. La ligne pleine montre la diminution de la densité de WIMP avec l'expansion de l'Univers. La ligne pointillée montre la stagnation de cette densité "freeze out" pour différentes valeurs de section efficace d'interaction du WIMP (image tirée de [11]).*

Klein. La plupart de ces particules sont réunies sous le terme générique de WIMP.

1.2.3 Le WIMP

WIMP est l'acronyme de Weakly Interacting Massive Particle c'est à dire une particule massive interagissant faiblement avec la matière. Le WIMP doit en plus être non relativiste (voir 1.2.2), ne pas interagir (ou extrêmement faiblement) par interaction électromagnétique ou forte.

1.2.3.1 Densité relique

Au tout début de l'Univers, alors que la température était extrêmement chaude, supérieure à la masse du WIMP (noté W), la réaction de création et d'annihilation de ces derniers pouvait avoir lieu : $W\overline{W} \longleftrightarrow l\bar{l}$ où $l\bar{l}$ peut être

une paire particule anti-particule de leptons, de quarks ou même de bosons de jauge si la masse du WIMP le permet.
Lorsque l'Univers est devenu assez étendu et que sa température a suffisamment décru, le processus de création de WIMPs a été stoppé, ne laissant place qu'à leur annihilation. Enfin, lorsque l'univers est devenu assez vaste pour que la probabilité d'annihilation de deux WIMPs devienne elle aussi trop faible leur nombre s'est quasiment figé (freeze out), donnant la densité relique encore présente de nos jours (voir Figure 1.5).

1.2.3.2 Un candidat supersymétrique

La nature du WIMP est encore actuellement inconnue mais la supersymétrie (SuSy) prévoit un candidat pour le WIMP : le neutralino.
La SuSy est une théorie créée pour pallier certains défauts du Modèle Standard. Elle permet la stabilité de la masse des bosons de Higgs ainsi que l'unification des couplages des interactions fortes et électrofaibles à l'échelle de la théorie de grande Unification (GUT) pour une énergie de $\sim 10^{16}$ GeV. Elle réalise ceci en associant aux particules du Modèle Standard un partenaire supersymétrique de spin décalé d'un demi-entier. Ainsi les fermions (de spin demi-entier) se voient associer un super-partenaire de spin entier dont le nom sera celui de la particule affublé du préfixe "s" (comme squark par exemple). Les bosons (de spin entier donc) se voient attribuer un super-partenaire de spin demi-entier dont le nom prendra le suffixe "ino" (comme le photino). À ce jour aucune particule supersymétrique n'a encore été découverte mais des recherches actives ont lieu, notamment depuis le démarrage fin 2009 du LHC (Large Hadron Collider), au CERN, qui devrait permettre d'atteindre les énergies requises pour créer des particules supersymétriques, si elles existent. D'autre part, la SuSy prédit que le proton ne se désintègre pas, ce qui semble vérifié expérimentalement pour le moment. Elle définit donc un nouveau nombre quantique, appelée R-parité, tel que :

$$R = (-1)^{3(B-L)+2S} \tag{1.2.1}$$

où B, L et S sont respectivement les nombres baryonique, leptonique et le spin des particules. Ainsi les particules du modèle standard ont une R-parité R=1 et les particules supersymétriques R=-1. Cette R-parité implique que la particule SuSy la plus légère (LSP pour Lightest Supersymetric Particle) ne peut se désintégrer : elle est donc stable.
Le MSSM (Modèle Standard Supersymétrique Minimal), qui est le modèle supersymetrique ayant le minimum de paramètres libres, prévoit l'existence d'une LSP, combinaison linéaire du photino, du higgsino et du zino (partenaires supersymétriques respectivement du photon, du Higgs et du Z^0),

appelée neutralino. Ce dernier est ainsi une particule stable, massive, interagissant faiblement avec la matière. Elle fait ainsi office de candidat privilégié pour le WIMP. Par la suite, on ne s'intéressera plus qu'au WIMP-neutralino.

1.3 Détection de la matière sombre

De nombreuses expériences tentent, de par le monde, de détecter les WIMPs. Pour ce faire de nombreuses méthodes et technologies, toutes complémentaires, ont été créées. Il s'agit d'une part de la détection du neutralino dans les collisionneurs de particules, puis d'autre part de la détection, indirecte ou directe, d'un WIMP du halo galactique.

1.3.1 Dans les collisionneurs

Les collisionneurs permettent l'accélération de particules telles que des protons, électrons ou même des noyaux plus lourds, pour les faire entrer en collision à très haute vitesse, donc très haute énergie. Les énergies engendrées permettent la recherche de nouvelles particules, telles que le boson de Higgs ou des particules supersymétriques comme le neutralino. Le LHC est un collisionneur proton-proton construit au CERN et opérationnel depuis l'automne 2009. Son énergie maximale accessible de 14 TeV dans le centre de masse devrait permettre la création du neutralino [12] et d'autres particules supersymétriques, permettant ainsi de confirmer ou d'infirmer cette théorie (dans la limite des énergies accessibles). Toutefois, la mise en évidence du neutralino se fera par l'observation d'une masse manquante et aucune conclusion ne pourra être tirée sur sa stabilité à l'échelle de temps de l'Univers, ni sur la possibilité qu'il existe en densité relique suffisante pour former la matière sombre.

1.3.2 La détection indirecte

La détection indirecte consiste en la mesure des produits de l'annihilation de deux WIMPs. La difficulté de ce type de détection est que ces produits d'annihilation sont à chercher en excès parmi le fond du rayonnement cosmique usuel. Cet excès est très dépendant du taux d'annihilation de WIMPs qui varie comme le carré de la densité. Aussi les recherches sont effectuées préférentiellement dans les régions à plus forte probabilité de densité de WIMPs : centre des galaxies, du Soleil ou de la Terre.

1.3.2.1 Antimatière

Les anti-protons, anti-deutons et positrons sont des signatures intéressantes d'annihilation de WIMPs dans le centre de la galaxie, là où la densité de WIMPs est importante. L'expérience **PAMELA** [13], embarquée sur un satellite, a par exemple mesuré un excès de positrons d'énergie supérieure à 10 GeV. L'expérience **AMS-02** [14], quant à elle, sera installée sur la station spatiale internationale et mesurera les rayons cosmiques chargés (ainsi que des photons de haute énergie).

1.3.2.2 Neutrinos

D'intenses recherches sont également menées sur les neutrinos. En effet, l'annihilation de deux WIMPs pourrait engendrer des neutrinos de haute énergie (plusieurs dizaines de GeV). Le centre du Soleil ou de la Terre sont des endroits privilégiés d'observation car les WIMPs, piégés gravitationnellement, pourraient y être présents à plus haute densité. De plus, les neutrinos usuels provenant de ces sources sont de plus basse énergie. Contrairement aux particules chargées des rayons cosmiques, dont la trajectoire peut être modifiée par les champs magnétiques des objets astrophysiques, les neutrinos conservent leur trajectoire. Aussi lorsqu'ils interagissent avec la matière ils produisent un lepton chargé qui conservera la plupart de l'impulsion et qui pourra être lui même détecté par effet Cerenkov.
Parmi les différentes expériences qui cherchent à détecter ces neutrinos, on peut citer **IceCube** [15] située en Antarctique et qui utilise un détecteur de glace d'environ 1 km^3. Leurs récents résultats n'ont montré aucun excès et ont permis d'instaurer une limite supérieure sur la section efficace d'annihilation du neutralino. L'expérience **ANTARES** [16], qui commence à présenter des résultats [17], est, elle, située en mer méditerranée et utilise ainsi l'eau en phase liquide comme détecteur.

1.3.2.3 Rayons Gamma

Une autre indication possible de l'existence de WIMPs pourrait se trouver dans les γ de haute énergie. Tout comme les neutrinos, ils gardent une trajectoire constante car non déviée par les champs magnétiques. Les détecteurs peuvent être soit des télescopes Cerenkov basés au sol (**HESS** [18], **MAGIC** [19]), qui n'ont pas vu d'excès de γ, ou bien embarqués dans l'espace (**GLAST** [20]). Ils ont comme lieu d'observation privilégié le centre de la galaxie. Ces différentes expériences permettent de couvrir le champ de recherche en énergie pour des γ allant du MeV au GeV.

1.3.3 La détection directe

Enfin, il existe une troisième manière de détecter un WIMP, il s'agit de sa détection directe. Malgré sa très faible probabilité d'interaction, il est envisageable qu'un WIMP puisse fournir un dépôt d'énergie par collision élastique avec un noyau dans un détecteur cible et avec un taux d'interaction dépendant de sa masse atomique comme A^2, pour les interactions indépendantes du spin (voir 2.1.2.1). La difficulté de ce type de détection est que le signal d'un WIMP est à chercher parmi le fond de la radioactivité naturelle et du rayonnement cosmique, supérieur de plusieurs ordres de grandeur. En effet, le taux d'interaction d'un WIMP est très inférieur à 1 évènement par kilogramme de détecteur par jour alors que la radioactivité naturelle du corps humain, par exemple, est d'environ 100 Bq/kg. Aussi les différentes expériences sont installées dans des laboratoires souterrains ce qui permet de diminuer de plusieurs ordres de grandeur le taux de rayons cosmiques (notamment des muons). Elles utilisent également souvent des blindages de plomb et de polyéthylène ou d'eau autour des détecteurs afin de réduire respectivement le taux de γ et de neutrons provenant de la radioactivité naturelle. Il est également nécessaire de pouvoir identifier et discriminer les particules interagissant dans le détecteur, telles que les α, β, γ ou neutrons, afin de pouvoir repérer le signal associé à un WIMP. À cette fin, de nombreuses expériences sont en cours et ont développé différentes technologies. Il est possible de les diviser en deux grandes catégories, avec d'une part les technologies à base de détecteurs cryogéniques à cibles solides et d'autre part celles à base de gaz nobles. De plus, il existe quelques autres types d'expériences utilisant des détecteurs directionnels, des chambres à bulles, ou encore cherchant à mesurer une variation du taux d'évènement WIMP plutôt que la nature des interactions.

1.3.3.1 Détecteurs cryogéniques

Les détecteurs cryogéniques consistent en l'utilisation de cristaux refroidis à quelques dizaines de mK et qui offrent la possibilité de mesurer deux types de signaux (bolomètres à double voies). Lorsqu'une particule interagit dans le détecteur, elle va engendrer d'une part une légère élévation de température dans le cristal, dont la mesure sera un signal de chaleur sur un senseur thermique qui peut être soit un Ge-NTD (pour Neutron Transmutation Doped Germanium) soit un TES (pour Transition Edge Sensor). D'autre part, la particule va engendrer une ionisation du détecteur qui pourra également être mesurée. Si le cristal est un semi-conducteur, la mesure de l'ionisation se fait directement par la lecture de la charge électrique sur une électrode. Dans le

cas d'un cristal scintillant, en revanche, elle se fera indirectement par la mesure de la lumière provenant de la scintillation induite par l'ionisation. Cette scintillation est lue par un second bolomètre qui produira ainsi un signal de chaleur (voir 3.1.2). La mesure de ces deux signaux simultanément permet ainsi d'identifier et de discriminer les différentes particules interagissant dans le détecteur suivant que l'interaction ait eu lieu avec le noyau (WIMPs, neutrons) ou avec les électrons (α, β, γ). L'avantage de cette technologie est sa très bonne capacité de rejet du fond, mais elle permet plus difficilement d'augmenter la masse de détecteurs (notamment pour des raisons de coût) et nécessite une cryogénie permettant d'atteindre la gamme des dizaines de millikelvins.
Parmi les expériences qui utilisent cette technologie, **CDMS** [21] possède actuellement une des meilleures sensibilités, avec une section efficace d'interaction du WIMP de 3.8×10^{-8} pb (voir Figure 1.6). Elle utilise des bolomètres double-voies semi-conducteurs de Ge et Si. Elle est installée dans la mine de Soudan dans le Minnesota.
EDELWEISS [22] utilise également des bolomètres en Ge et est située dans le tunnel du Fréjus en France. Bien qu'elle ne possède pas la meilleure limite mondiale, elle fait partie des expériences les plus sensibles, notamment pour des masses de WIMP élevées, avec une section efficace de 5.10^{-8} pb pour un WIMP de 80 GeV (données préliminaires) (voir 3.3.3).
Enfin, les expériences **CRESST** [23] et **ROSEBUD** [24] utilisent quant à elles des bolomètres scintillants de $CaWO_4$ et $ZnWO_4$ pour la première et BGO ($Bi_4Ge_3O_{12}$), Al_2O_3 et LiF entre autres pour la seconde. Elles sont installées respectivement dans les laboratoires du Gran Sasso (LNGS, Italie) et Canfranc (Espagne).

1.3.3.2 Détecteurs à gaz nobles

Les détecteurs à gaz noble utilisent des cibles de xénon, argon (éventuellement néon) pour la détection des WIMPs. La cible peut être soit mono-phase (liquide) ou double-phase (liquide et gazeux). Lorsqu'une particule interagit dans la phase liquide elle engendre une ionisation du milieu qui va être convertie en scintillation ultra-violette. Dans le cas d'un détecteur double phase, cette ionisation va aussi engendrer une dérive d'électrons jusque dans la phase gazeuse, grâce à l'application d'un champ électrique. Leur accélération engendrera également une ionisation du milieu. Cette nouvelle ionisation est mesurée soit directement par la collecte de charge dans une TPC (Time Projection Chamber) soit de nouveau par la lecture de la scintillation engendrée par des photomultiplicateurs (PMTs) par exemple. La discrimination des particules se fait ainsi par la lecture de ces deux signaux d'ionisation. Dans le cas

d'un détecteur simple phase, elle se fait par une discrimination sur la forme de l'impulsion (pulse shape discrimination : PSD) ainsi qu'un volume fiduciel (c'est-à-dire un volume efficace) réduit, le reste du volume servant à réaliser un l'auto-blindage. Le xénon a l'avantage d'avoir une masse atomique élevée (voir 2.1.2.1) et de ne pas avoir d'isotope radioactif. L'argon quant a lui, malgré ses propriétés de scintillation intéressantes pour la PSD, possède un isotope radioactif : le ^{39}Ar. Le principal avantage des détecteurs à gaz noble est leur possibilité d'être déployés en grand volumes (plusieurs tonnes), avec une cryogénie plus aisée (azote liquide) que pour les bolomètres. De plus, en tant que gaz, ils peuvent être purifiés en continu et ils sont chimiquement inerte.
Les expériences les plus significatives utilisant ces détecteurs à gaz nobles sont **XENON** [25], **ZEPLIN** [26] et **LUX** [27] pour les détecteurs à xénon double-phase. **XENON** possède d'ailleurs la meilleure limite actuelle avec une section efficace de $3.4.10^{-8}$ pb pour un WIMP de 55 GeV [28].
L'expérience **XMASS** [29] utilise, quant à elle, un détecteur à xénon mono-phase.
Pour l'argon les expériences **ArDM** [30] et **WArP** [31] utilisent des détecteurs double-phase. Enfin l'expérience **DEAP/CLEAN** [32] utilise un détecteur argon mono-phase.

1.3.3.3 Autres types d'expériences

Il existe également d'autres types de technologies qui peuvent avoir un grand intérêt pour la détection directe des WIMPs.
Il s'agit d'une part des expériences utilisant des détecteurs gazeux à faible pression, qui permettent une reconstruction en trois dimensions de la direction des WIMPs avec une TPC. **DRIFT** [33] et **MIMAC** [34] sont deux expériences mettant à profit cette technologie.
La collaboration **CoGeNT** [35] a également mis au point un nouveau type de détecteur, basé sur du germanium type-P avec un seuil de détection très bas lui permettant d'explorer la région des WIMPs de faibles masses. Leurs derniers résultats montrent une population de candidats WIMPs potentiels, de masse $\sim$10 GeV. Enfin les expériences **COUPP** [36], **SIMPLE** [37] et **PICASSO** [38] utilisent des détecteurs de type chambre à bulles, où des gouttelettes de fréon dans un état surchauffé sont en suspension dans un gel. Leur explosion lors de l'interaction d'une particule peut être mesurée. Cette technologie limite les mesures à des interactions de WIMPs dépendantes du spin (voir 2.1.2.2).

1.3.3.4 Le cas DAMA

DAMA (DArk MAtter) est une expérience installée au LNGS (Laboratori Nazionali del Gran Sasso, Italie) depuis 1996. Elle utilise des cristaux scintillants de Tl:NaI. Seule la scintillation est mesurée avec des photomultiplicateurs (PMTs). Cette technique a l'avantage d'être bien connue et aisée à mettre en œuvre. Les interactions de WIMPs se font principalement sur les noyaux d'Iode qui possèdent une masse atomique élevée. **DAMA** vise à mesurer la modulation annuelle du taux d'interaction de WIMPs dans le détecteur. Cette modulation provient de la variation de la vitesse de la Terre dans le halo (due à la rotation de la Terre autour du Soleil et à la vitesse du soleil dans le disque galactique) et donc de la variation relative de la vitesse des WIMPs du halo (on considère aussi une distribution de vitesse Maxwellienne des WIMPs du halo, voir 2.1.1). La vitesse de la Terre étant maximale en juin, le taux d'évènement WIMPs devrait l'être également, au contraire de décembre, où elle est minimale. Dès 1998, après deux ans de prises de données, **DAMA** a affirmé observer une modulation annuelle du taux d'évènements mesurés, pour des énergies inférieures à 6 keV. Ceci a été confirmé par la suite, notamment avec l'amélioration nommée **LIBRA** de leur expérience, avec au total sept ans de prise de données [39]. Leur limite sur le WIMP, a tout d'abord été exclue par **EDELWEISS** en 2005 puis par plusieurs autres expériences. Finalement, ils proposèrent un effet de canalisation dans leur détecteur permettant la détection d'un candidat léger ($\sim$10 GeV) pour la matière sombre, compatibles avec les données de **CoGeNT** [35]. Ces résultats sont toutefois exclus par les derniers résultats de **XENON** [28] (eux même soumis à controverses et discussions [40, 41]). L'expérience **KIMS** [42] qui utilise une technologie comparable, devrait permettre de confirmer ou d'infirmer les résultats de **DAMA/LIBRA**. Cette expérience est basée sur des cristaux de Tl:CsI pltôt que de Tl:NaI.

Finalement la question de l'existence et de l'identité de la matière sombre est encore très ouverte et la complémentarité entre les différents types de détection et/ou technologies sera nécessaire pour résoudre cette énigme.
La suite de cette thèse sera consacrée plus particulièrement à la détection directe et le prochain chapitre décrit plus en détail l'interaction du WIMP dans les détecteurs et l'intérêt qu'il en résulte d'utiliser différentes cibles.

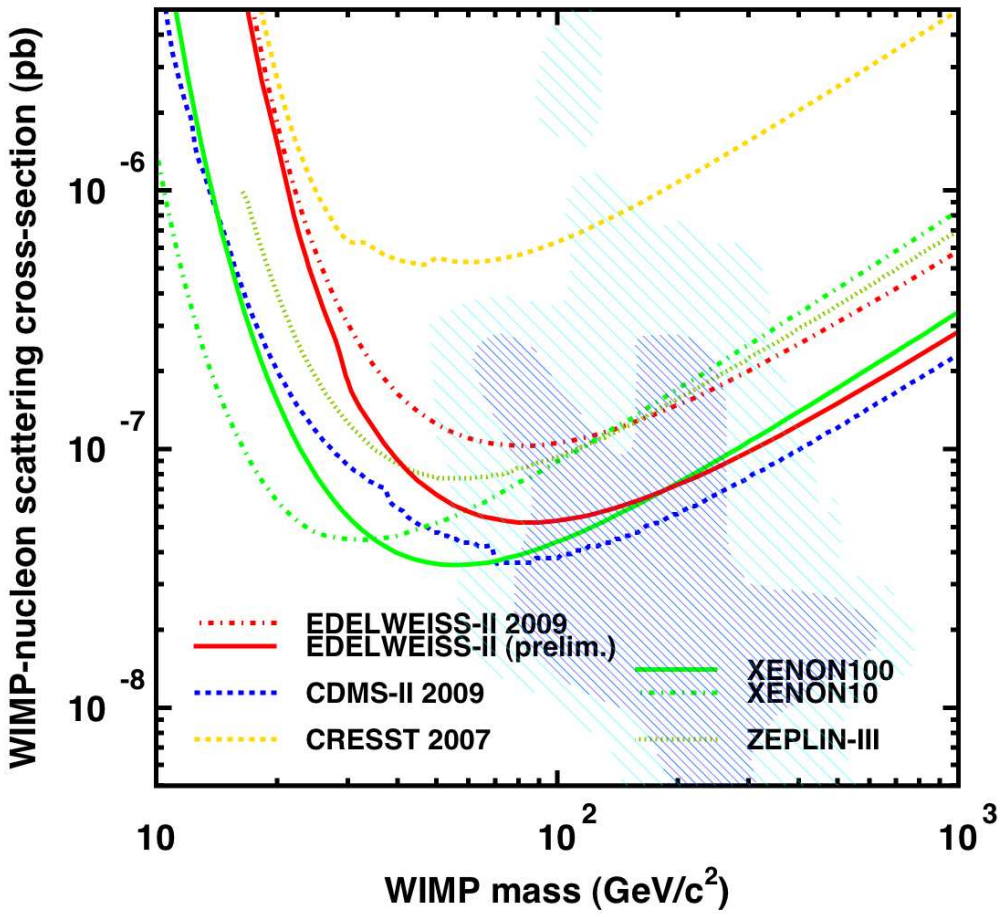

Figure 1.6 – *Limites actuelles des différentes expériences, pour la section efficace d'interaction WIMP-nucléon en fonction de sa masse et pour des interactions indépendantes du spin. Les zones hachurées sont les prédictions théoriques.*

Chapitre 2

Intérêt des Cibles Multiples pour la Détection Directe

Ce second chapitre a pour objectif de démontrer l'intérêt d'utiliser plusieurs types de cibles pour la détection de matière sombre. Cet intérêt est double : d'une part la diversité des cibles de masses atomiques élevées permettra la confirmation du signal WIMP. D'autre part l'utilisation de cibles avec une masse atomique plus faible pourrait permettre une meilleure compréhension et réjection du fond résiduel neutron. La future expérience EURECA prévoit l'utilisation de différents types de cristaux pour ses détecteurs.

2.1 Modèle théorique d'interaction du WIMP avec la matière

En 1996, J. D. Lewin et P. F. Smith ont formalisé un modèle décrivant l'interaction élastique d'un WIMP avec la matière [43]. Ce modèle, bien que basé sur certaines hypothèse sur le WIMP, permet une comparaison directe de toutes les expériences de détection directe (voir 1.3.3).
Le cas de figure le plus simple permet de considérer un détecteur de masse M_A, stationnaire dans la galaxie. Un WIMP de masse M_W va interagir par collision élastique avec un noyau cible du détecteur, entraînant un spectre différentiel de recul de la forme :

$$\frac{dR}{dE_R} = \frac{R_0}{E_0 r} e^{-E_R/E_0 r} \tag{2.1.1}$$

où E_R et E_0 sont respectivement l'énergie de recul et l'énergie cinétique incidente la plus probable d'un WIMP du halo galactique :

$$E_0 = \frac{1}{2} M_W v_0^2. \tag{2.1.2}$$

R_0 est le taux d'évènements total et r est un facteur cinématique défini comme :

$$r = \frac{4 M_W M_A}{(M_W + M_A)^2} \tag{2.1.3}$$

En réalité, le détecteur n'est jamais immobile dans la galaxie, puisque la Terre est en orbite autour du soleil, lui même en mouvement dans la galaxie. Il faut également tenir compte d'un facteur de forme, en raison de la taille finie du noyau. Enfin, suivant le type de noyau cible, l'interaction peut se faire indépendamment de son spin SI (pour Spin-Independent) ou en dépendance avec celui-ci SD (pour Spin-Dependent). Ainsi on peut redéfinir le spectre de recul comme :

$$\frac{dR}{dE_R} = R_0 S(E) F^2(E) \tag{2.1.4}$$

avec $S(E)$ et $F^2(E)$ respectivement les termes correspondant à la fonction spectrale modifiée par le mouvement du détecteur et au facteur de forme nucléaire.

2.1.1 Fonction spectrale

La fonction spectrale doit tenir compte du déplacement du détecteur (donc de la Terre) dans la galaxie mais aussi de la densité et de la distribution de vitesse des WIMPs du halo galactique. La densité différentielle de matière sombre s'écrit :

$$dn = \frac{n_0}{k} f(v, v_E) d^3 v \tag{2.1.5}$$

où $f(v, v_E)$ est la distribution de vitesse des WIMPs et k un facteur de normalisation par rapport à la vitesse d'échappement v_{esc} des WIMPs tel que :

$$\int_0^{v_{esc}} dn \equiv n_0 \equiv \frac{\rho_W}{M_W} \tag{2.1.6}$$

et ρ_W est la densité moyenne de WIMPs. Quant à v et v_E, ce sont respectivement la vitesse de WIMPs et la vitesse de la cible (donc de la Terre) dans la galaxie. On doit aussi avoir une vitesse v des WIMPs inférieure à leur vitesse d'échappement v_{esc} pour que les WIMPs restent liés gravitationnellement au halo de matière sombre.

Dans l'hypothèse où la distribution de vitesses des WIMPs est Maxwellienne de vitesse moyenne v_0 :

$$f(v, v_E) = e^{-(v+v_E)^2/v_0^2} \tag{2.1.7}$$

Si $v_{esc} \to \infty$ alors le facteur de normalisation est k_0 tel que :

$$k = k_0 = (\pi v_0)^{3/2} \tag{2.1.8}$$

alors que la même distribution, tronquée à $|v + vE| = v_{esc}$, donnerait un facteur de normalisation tel que :

$$k = k_1 = k_0 \left[erf\left(\frac{v_{esc}}{v_0}\right) - \frac{2}{\sqrt{\pi}} \frac{v_{esc}}{v_0} e^{-(vesc/v_0)^2} \right] \tag{2.1.9}$$

la fonction erf étant la fonction d'erreur de Gauss définie comme :

$$erf(z) = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \int_0^z e^{-t^2} dt. \tag{2.1.10}$$

Le taux d'évènements différentiel peut finalement être défini comme :

$$dR = R_0 \frac{k_0}{k} \frac{1}{2\pi v_0^4} v f(v, v_E) \tag{2.1.11}$$

et le spectre de recul différentiel associé comme :

$$\frac{dR(v_E, v_{esc})}{dE_R} = \frac{k_0}{k_1} \left[\frac{dR(v_E, \infty)}{dE_R} - \frac{R_0}{E_0 r} e^{-(v_{esc}/v_0)^2} \right] \tag{2.1.12}$$

où

$$\frac{dR(v_E, \infty)}{dE_R} = \frac{R_0}{E_0 r} \frac{\sqrt{\pi}}{4} \frac{v_0}{v_E} \left[erf\left(\frac{v_{min} + v_E}{v_0}\right) - erf\left(\frac{v_{min} - v_E}{v_0}\right) \right]. \tag{2.1.13}$$

2.1.2 Facteur de forme et section efficace d'interaction

En raison de la taille finie des noyaux, un facteur de forme nucléaire est à prendre en compte. Soit q le moment de transfert tel que :

$$q = \sqrt{2 M_E E_R}. \tag{2.1.14}$$

Lorsque sa valeur est telle que h/q n'est plus grande comparée au rayon du noyau, la section efficace effective décroit comme l'inverse de q. Il est ainsi nécessaire de prendre en compte un facteur de forme $F(E)$, qui sera

en réalité défini comme $F(qr_n)$, où r_n est le rayon effectif du noyau. Dans l'approximation de Born (onde plane), le facteur de forme est la transformée de Fourier de $\rho(r)$, la distribution de densité des centres diffuseurs :

$$F(q) = \frac{4\pi}{q}\int_0^\infty rsin(qr)\rho(r)dr \tag{2.1.15}$$

D'autre part il est intéressant d'exprimer le taux d'évènements en fonction de l'interaction WIMP-proton plutôt que par rapport à l'ensemble des nucléons du noyau. Cela permet de normaliser les spectres de reculs pour les différents noyaux. On définit alors le taux d'évènements total R_0 comme :

$$R_0 = \frac{2}{\sqrt{\pi}}\frac{N_A}{A}\frac{\rho_W}{M_W}v_0\sigma_{W-A} \tag{2.1.16}$$

où N_A est le nombre d'Avogadro. R_0 est conventionnellement normalisé pour être exprimé en kg^{-1}.jour^{-1}, avec comme facteurs de normalisation :

$$R_0 = \left(\frac{540}{AM_W}\right)\left(\frac{\rho_W}{0.4GeVc^{-2}cm^{-3}}\right)\left(\frac{v_0}{230km.s^{-1}}\right)\left(\frac{\sigma_{W-A}}{1pb}\right) \tag{2.1.17}$$

En réalité, le facteur de forme $F(qr_n)$ aussi bien que la section efficace d'interaction du WIMP σ_{W-A} vont dépendre du type d'interaction du WIMP avec le noyau : soit indépendante de spin (SI) soit dépendante du spin (SD).

2.1.2.1 Interaction SI

Dans le cas d'une interaction indépendante du spin (scalaire), c'est-à-dire lorsque le spin du noyau est nul, le facteur de forme sera défini comme la transformée de Fourier d'une sphère solide approximant l'interaction SI avec tout le noyau [44] :

$$F(qr_n) = 3\left[\frac{sin(qr_n) - qr_n cos(qr_n)}{(qr_n)^3}\right]e^{-(qs)^2/2} \tag{2.1.18}$$

et r_n est, quant à lui, défini par :

$$r_n^2 = c^2 + \frac{7}{3}(\pi a)^2 - 5s^2 \tag{2.1.19}$$

avec les valeurs c=1.23$A^{1/3}$-0.60 fm, a=0.52 fm et s=0.9 fm.
Toujours dans le cas SI, la section efficace d'interaction du WIMP avec le noyau peut être exprimée directement en fonction de la section efficace d'interaction du WIMPs avec un proton [45] :

$$\sigma_{W-A} = \left(\frac{\mu_A}{\mu_p}\right)^2\left[Z + (A-Z)\frac{f_n}{f_p}\right]^2\sigma_{W-P}^{SI}, \tag{2.1.20}$$

Z étant la charge du noyau, f_n et f_p les couplages WIMP-neutron et WIMP-proton et μ_A, μ_p les masses réduites telles que :

$$\mu_x = \frac{M_W M_x}{M_W + M_x}. \tag{2.1.21}$$

Dans le cadre du MSSM, $f_n/f_p \simeq 1$ [11] ce qui donne ainsi une section efficace proportionnelle à A^2. Cela permet ainsi de calculer la section efficace d'interaction σ^{SI}_{W-A} pour différents noyaux cibles, qui dépend ainsi de A et de σ^{SI}_{W-p}.

2.1.2.2 Interaction SD

Dans le cas dépendant du spin, la situation est un peu plus compliquée. Le facteur de forme ne peut être défini par une fonction que sur une certaine gamme [46]. Seuls deux cas de figure sont envisageables :

$$F^2(qr_n) = \begin{cases} j_0(qr_n) & (qr_n < 2.55, qr_n > 4.5) \\ \simeq 0.047 & (2.55 < qr_n < 4.5) \end{cases} \tag{2.1.22}$$

où $j_0(qr_n) = sin(qr_n)/qr_n$ est la fonction de Bessel sphérique.
La section efficace d'interaction WIMP-noyau va quant à elle dépendre du spin du noyau J. Dans [45], elle est définie en fonction de la section efficace d'interaction WIMP-proton comme :

$$\sigma^{SD}_{W-A} = \left(\frac{\mu_A}{\mu_p}\right)^2 \frac{4(J+1)}{3J} \left[\langle S_p \rangle + \langle S_n \rangle \frac{a_n}{a_p}\right]^2 \sigma^{SD}_{W-p} \tag{2.1.23}$$

avec $\langle S_p \rangle$ ($\langle S_n \rangle$) et a_p (a_n) respectivement le spin moyen du proton (neutron) dans le noyau et le couplage SD WIMP-proton (WIMP-neutron).

2.2 Intérêt des cibles multiples

2.2.1 Spectres de recul

Connaissant le taux d'évènements différentiel, défini par rapport à σ_{W-p}, il est possible de tracer les spectres théoriques en énergie de recul pour différents noyaux cibles. Ils sont définis pour un certain choix de paramètres du WIMP qui seront fixés comme suit : ρ_W=0.3 GeV.cm^{-3}, v_0=220 km.s^{-1}, v_E=235 km.s^{-1}, v_{esc}=650 km.s^{-1}, qui sont les valeurs généralement utilisées, et une section efficace σ^{SI}_{W-p}=10^{-8} pb et enfin la masse du proton M_p=0.938 GeV. De plus, aucun seuil en énergie de recul lié aux détecteurs n'est appliqué. La Figure 2.1 présente le spectre de recul théorique d'un WIMP de

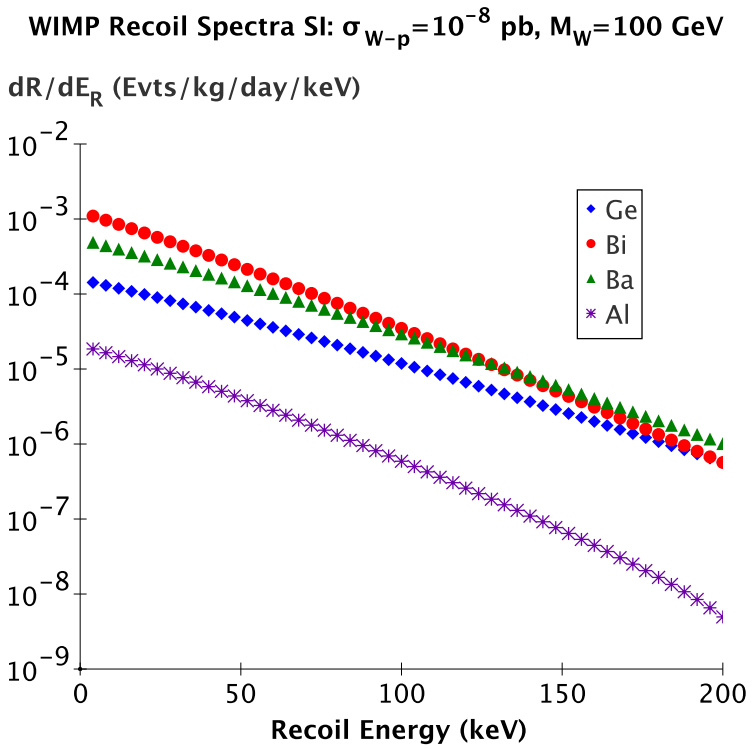

Figure 2.1 – *Spectres de recul des WIMPs sur différentes cibles, pour un WIMP de 100 GeV. Les cibles lourdes donnent un taux d'interactions plus élevé.*

100 GeV sur des noyaux de germanium (A=74), bismuth (A=209), baryum (A=138) et aluminium (A=27) pour une interaction SI. Le taux d'évènements est clairement supérieur dans les cibles lourdes (dépendance en A^2) mais cet écart a tendance à diminuer pour des énergies de reculs plus élevées. La figure 2.2 montre les mêmes spectres de reculs pour les même noyaux et les mêmes paramètres, mais pour un WIMP léger ayant M_W=10 GeV. Dans ce cas les cibles légères, telles que l'aluminium (ou l'oxygène non présenté ici), offrent un meilleur taux d'évènements pour des énergies de reculs d'une dizaine de keV.

Le ^{209}Bi, le ^{133}Ba et le ^{27}Al sont des éléments constituants du BGO ($Bi_4Ge_3O_{12}$), du BaF_2 et du saphir Al_2O_3. Ces trois composés sont des cristaux scintillants pouvant être utilisés comme bolomètres. Aussi l'utilisation de bolomètres composés de différents noyaux cibles pourrait permettre une meilleure identification d'une signature WIMP par corrélation des taux d'interactions. En effet, si le WIMP possède une masse élevée, les cristaux lourds comme le BGO ou le BaF_2 conduisent à un taux d'évènements plus élevé

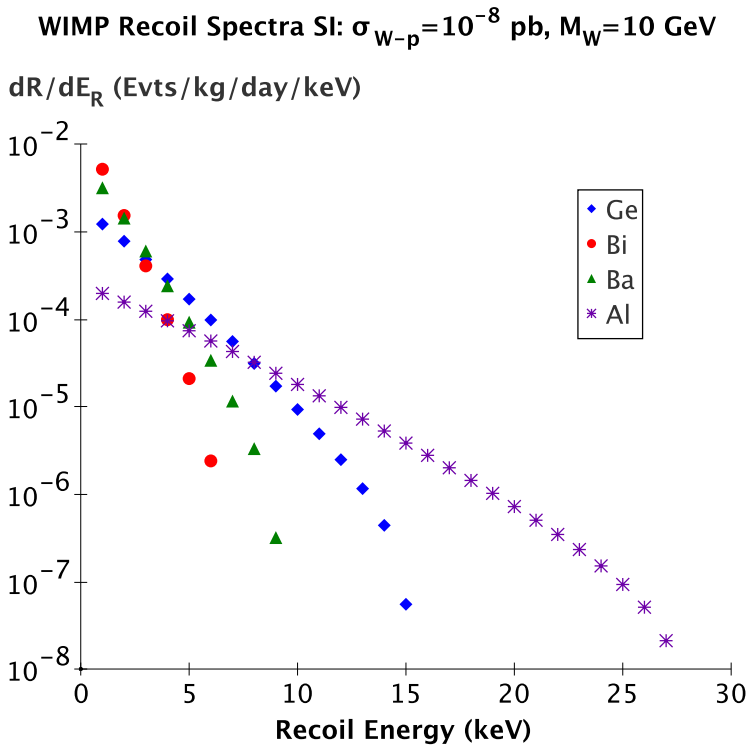

Figure 2.2 – *Spectres de recul des WIMPs sur différentes cibles, pour un WIMP de 10 GeV. Les cibles légères donnent un taux d'interactions plus élevé.*

que le germanium par unité de masse, pour un WIMP de 100 GeV et des énergies de recul inférieures à 200 keV. Par exemple : pour une énergie de recul de 20 keV, le taux dans le bismuth est 6.6 fois supérieur à celui du germanium, tandis que celui du baryum lui est 3.2 fois supérieur. En revanche, dans le cas d'un WIMP léger, le saphir serait un très bon complément aux expériences utilisant du germanium. En réalité il serait bien sur nécessaire de tenir compte des seuils en énergie de recul des détecteurs (∼350 eV pour le saphir [47]) qui permettraient dans ce cas difficilement de mesurer un WIMP de basse masse.

2.2.2 Interaction des neutrons

Un autre intérêt de l'utilisation de cibles multiples pour la détection directe de matière sombre serait pour la discrimination du fond neutron, qui sera le fond ultime. Les neutrons étant massifs et non chargés électriquement, ils interagissent comme les WIMPs, c'est à dire en effectuant des reculs nucléaires plutôt qu'électroniques.

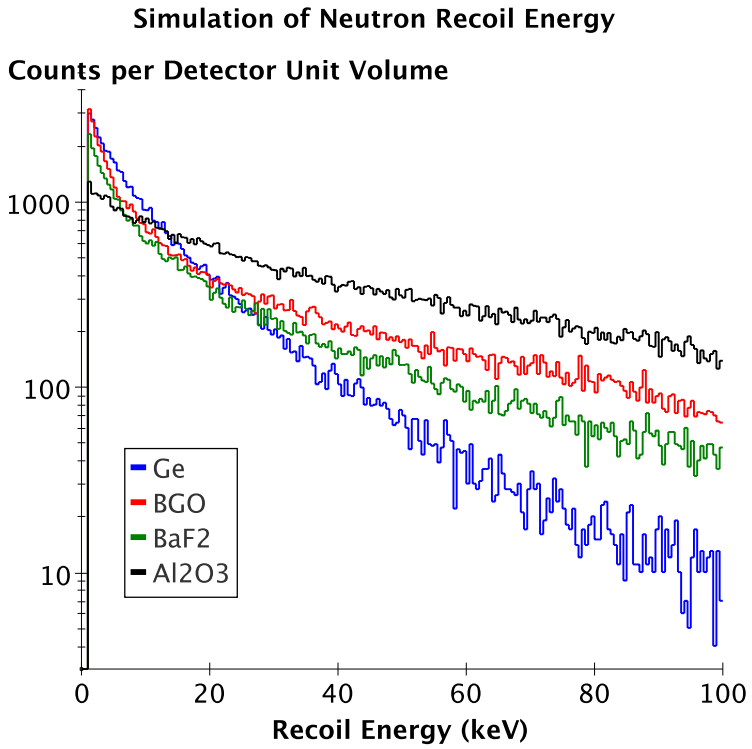

Figure 2.3 – *Spectres en énergie de recul de neutrons obtenus pour différents cristaux cibles par simulations Monte-Carlo produite avec Geant 4 et reproduisant la géométrie et l'environnement de l'expérience EDELWEISS II. Les cristaux ont le même volume et une source d'Am-Be est utilisée. Un seuil en énergie de recul de 1 keV est appliqué.*

Au laboratoire souterrain de Modane (LSM) où est installée l'expérience EDELWEISS, les principales sources de neutrons sont la radioactivité naturelle de la roche et l'interaction des muons dans la roche ou le plomb [48].
Dans le germanium un neutron de 0.5 MeV donne une énergie de recul du même ordre de grandeur qu'un WIMP de 100 GeV [48] les rendant impossibles à distinguer. L'énergie de recul étant proportionnelle à $1/A$, dû au seuil des détecteurs, ces mêmes neutrons auront un taux d'interaction bien plus élevé dans une cible légère comme le saphir que dans le germanium.
La Figure 2.3 montre les spectres en énergie de reculs de neutron dans différents détecteurs cibles de germanium, BGO ($Bi_4Ge_3O_{12}$), BaF_2 et saphir de volumes identiques. Ces spectres ont été obtenus par simulation Monte-Carlo produite avec le code Geant 4. Un seuil en énergie de recul à 1 keV a été appliqué. La source est une source de neutrons d'Am-Be et l'environnement et la géométrie sont ceux d'EDELWEISS II (voir chapitre 3). Les

spectres montrent, au dessus d'une énergie de recul d'environ 20 keV, que le saphir, étant "léger", produit un taux d'évènements bien supérieur (jusqu'à plus d'un ordre de grandeur pour une énergie de recul de 100 keV) à celui du germanium. Toutefois les deux autres cristaux "lourds" que sont le BGO et le BaF_2 ont également un taux d'interaction élevé, au dessus d'une énergie de recul de 20 keV, grâce aux éléments légers qui les composent (oxygène et fluor).
Ceci montre l'intérêt d'utiliser des cibles légères en complément des cristaux plus "lourds", tel que le germanium. Cela pourrait permettre d'une part de mieux connaitre le fond neutron de l'expérience, mais aussi de pouvoir effectuer des coïncidences afin de mieux discriminer le fond neutron. En effet, il est extrêmement improbable qu'un WIMP produise une coïncidence en interagissant dans deux détecteurs successivement, tandis que les neutrons ont tendance à interagir plusieurs fois, surtout dans les cibles légères telles que le saphir (leur libre parcours moyen à ces énergies est de l'ordre de quelques centimètres).

Ce chapitre a démontré l'intérêt de multiplier les différentes cibles afin de détecter les WIMPs. En effet, d'une part l'emploi de plusieurs cibles "lourdes" permettrait de confirmer ou infirmer un éventuel signal provoqué par un WIMP, par comparaison des taux d'interaction. D'autre part, l'emploi de cibles "légères" en complément des cibles "lourdes" permettrait une meilleure identification et discrimination du fond neutron.
Le chapitre suivant décrit l'expérience EDELWEISS qui utilise des détecteurs en germanium, mais aussi la future expérience EURECA qui vise à employer différentes cibles.

Chapitre 3

Les Expériences EDELWEISS et EURECA

EDELWEISS (acronyme pour Experience pour Détecter les WIMPs En Site Souterrain) est une expérience de détection directe des WIMPs. La collaboration, initialement française est maintenant internationale, regroupant en tout une cinquantaine de personnes. Elle possède des équipes de recherche en France (Orsay, Saclay, Lyon et Grenoble), mais aussi en Allemagne (Karlsruhe), en Russie (Dubna) et en Angleterre (Oxford).

3.1 Expérience et principe de détection

3.1.1 Laboratoire souterrain de Modane

EDELWEISS est installée au laboratoire souterrain de Modane (LSM), dans le tunnel routier du Fréjus entre la France et l'Italie, dans les Alpes. Le LSM a l'avantage d'être l'un des plus profonds sites souterrains du monde : il est situé sous le mont Fréjus, sous 1700 m de roche soit ∼4800 mwe (mètres équivalent en eau). Cette profondeur permet de réduire le taux de muons à 4 μ/m^2/jour soit une réduction d'un facteur 10^6 par rapport à la surface (voir Figure 3.1). L'expérience est installée dans une salle propre de classe 10000 et baigne dans un flux d'air déradonisé.

3.1.2 Principe de détection

La technologie d'EDELWEISS est basée sur des détecteurs cryogéniques (bolomètres) à double voie charge-chaleur, utilisant des cristaux de germanium refroidis à environ 20 mK (voir schéma de fonctionnement Figure 3.2).

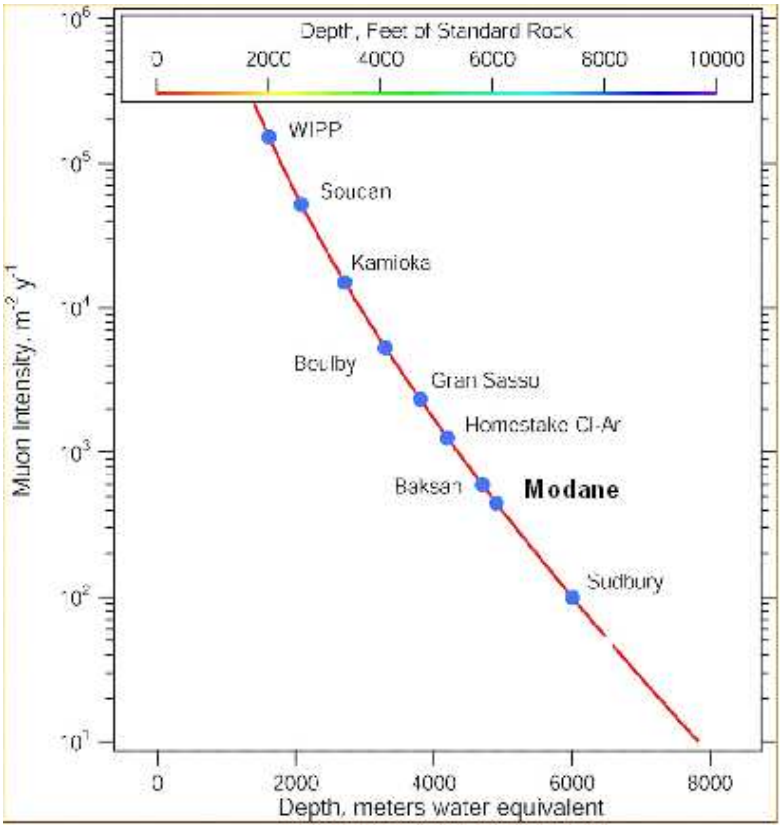

Figure 3.1 – *Flux de muons en fonction de la profondeur pour les différents laboratoires souterrains. Le LSM est le second plus profond après SNOLAB à Sudbury.*

Le germanium a l'avantage d'avoir une masse atomique assez élevée (A = 74), idéale pour la détection de WIMPs (voir 2.1.2.1) et de pouvoir être hautement purifié. Lorsqu'une particule interagit dans le cristal absorbeur le dépôt d'énergie ΔE qu'elle produit entraine une légère augmentation de la température ΔT du cristal donnée par :

$$\Delta T = \frac{\Delta E}{C(T)} \tag{3.1.1}$$

où $C(T)$ est la capacité calorifique du bolomètre. Un senseur thermique constitué de germanium irradié sous flux de neutrons entraînant un grand nombre d'impuretés et appelé NTD (pour Neutron Transmutation Doped) sert à mesurer cette variation de température. La mesure se fait par la collecte des phonons thermalisés qui va engendrer une variation de la résistance R du capteur qui évolue comme :

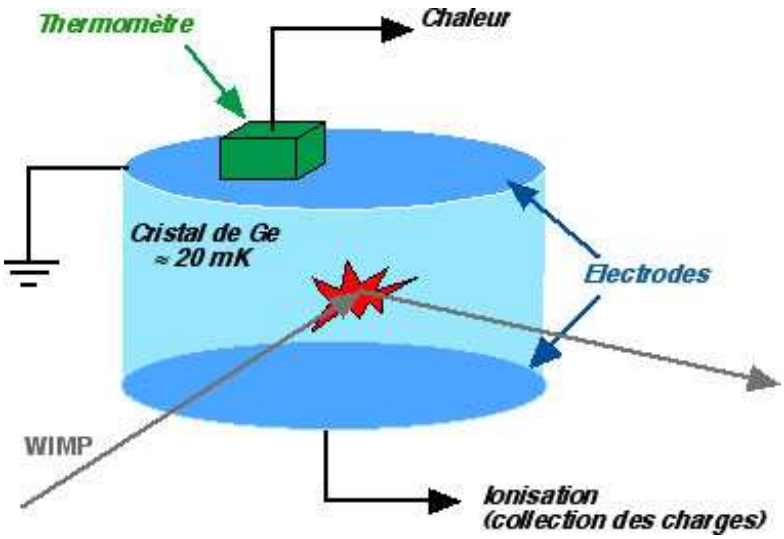

Figure 3.2 – *Schéma d'un bolomètre double voie ionisation-chaleur en germanium. Lors de l'interaction d'une particule dans le cristal, les deux signaux sont créés. Un senseur thermique Ge-NTD collecte les phonons, tandis qu'une électrode collecte la charge électrique.*

$$R(T) = R_0.exp\left(\sqrt{\frac{T_0}{T}}\right) \tag{3.1.2}$$

avec T_0 et R_0 des paramètres caractéristiques du senseur, R_0 étant de l'ordre du MΩ à 20 mK. Le dépôt d'énergie va d'autre part provoquer de l'ionisation dans le cristal. Le germanium étant semi-conducteur ses niveaux d'énergie forment des bandes. La bande de valence et la bande de conduction sont séparées par un gap de 0.7 eV. À basse température, la bande de conduction est quasiment vide, mais lors de l'interaction d'une particule, l'énergie déposée par celle-ci pourra entraîner la migration d'électrons de la bande de valence jusque dans la bande de conduction, laissant ainsi une population de trous chargés positivement. Il y a ainsi formation de paires électron-trou et l'application d'un champ électrique entre les électrodes permet de collecter ces charges. L'amplitude du signal d'ionisation est proportionnelle au nombre de paires électron-trou collectées N, mesuré comme :

$$N_\gamma = \frac{E_R}{\epsilon_\gamma} \tag{3.1.3}$$

avec E_R, l'énergie de recul induite par la particule et ϵ_γ l'énergie requise pour créer une paire électron-trou, qui vaut environ 3 eV dans le germanium aux températures cryogéniques.

Suivant que la particule ait interagi avec les électrons, produisant un recul électronique (α, β, γ), ou bien avec un noyau de germanium, produisant un recul nucléaire (neutron, WIMPs), les énergies d'ionisation seront différentes. On a ainsi l'énergie de recul :

$$E_R = (1 + \frac{|V|}{\epsilon_\gamma})E_C - \frac{|V|}{\epsilon_\gamma}E_I \tag{3.1.4}$$

avec E_C défini, L'énergie de chaleur, comme :

$$E_C = \frac{E_{total}}{1 + |V|/\epsilon_\gamma} = E_R \frac{1 + Q\,|V|/\epsilon_\gamma}{1 + |V|/\epsilon_\gamma} \tag{3.1.5}$$

et E_I et E_{total} sont respectivement les énergies d'ionisation et totale et V, la tension appliquée. La différence entre l'ionisation et la chaleur pour les reculs électroniques ou nucléaires permet de définir aussi le facteur de quenching Q, tel que :

$$Q = \frac{E_I}{E_R} \tag{3.1.6}$$

Pour les reculs électroniques, il sera normalisé à Q=1 et vaudra Q$\simeq$0.3 pour les reculs nucléaires dans le germanium. La Figure 3.3 montre le facteur de quenching en fonction de l'énergie de recul lors d'une calibration γ/n. On distingue clairement deux populations, les γ sont dans la bande de reculs électroniques, correspondant à Q=1 (région d'acceptance de 90 %) et les neutrons dans la bande de reculs nucléaires, correspondant à Q$\simeq$0.3 (région d'acceptance de 90 %).
Cette méthode permet ainsi de discriminer les interactions des particules provenant du fond radioactif (α, β, γ) des WIMPs et des neutrons. Les neutrons constituent ainsi le fond ultime puisqu'ils interagissent comme les WIMPs. Il peuvent cependant être identifiés s'ils font des interactions multiples.

3.2 Première phase : EDELWEISS I

La première phase de l'expérience correspond à une prise de données entre 2000 et 2003. Elle était composée de 3 bolomètres en germanium avec senseur thermique NTD de 320 g chacun, opérant à 17 mK. Pour ce type de détecteur, deux électrodes sur les faces supérieures et inférieures (commun) permet la collecte des charges tandis qu'une électrode supplémentaire sur le pourtour (anneau de garde) sert à rejeter les évènements hors volume fiduciel, c'est-à-dire le volume efficace (bulk) ne représente que 57 % du volume du cristal. Le cryostat utilisé dans EDELWEISS I était entouré d'un blindage

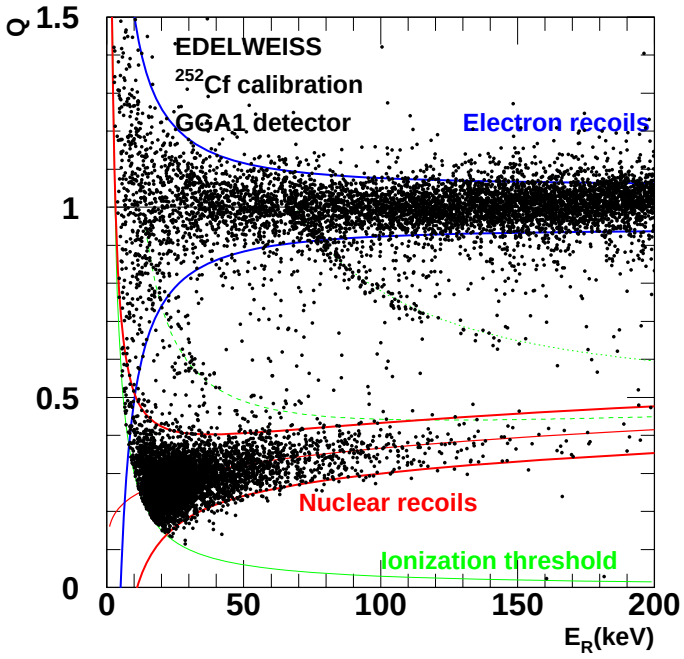

Figure 3.3 – *QPlot montrant le facteur de quenching en fonction des énergies de recul dans un bolomètre germanium, lors d'une calibration γ/n avec l'expérience EDELWEISS I. Les bandes de reculs électroniques et nucléaires sont pour des valeurs respectivement de Q=1 et Q=0.3.*

de 30 cm de paraffine permettant de réduire le flux de neutrons d'un facteur 100 pour des neutrons de moins de 10 MeV.
La totalité des données a produit 62 kg.j (kilogrammes × jours) fiduciel avec un seuil en énergie de recul à 15 keV. 59 évènements ont été mesurés dans la bande de recul nucléaire, la plupart avec une énergie de recul inférieure à 30 keV. La Figure 3.4 montre que ces données ne reproduisent pas le spectre théorique de recul associé à un WIMPs, pour des masses entre 20 et 500 GeV. Bien que ces données aient permis d'établir la limite sur la section efficace d'interaction WIMP-nucléon WIMPs de 1.5×10^{-6} pb pour un WIMP de 80 GeV, qui était la meilleure limite jusqu'en 2005, des études menées sur les évènements présents dans la bande de recul nucléaire ont prouvé l'existence d'un fond radioactif limitant [49].

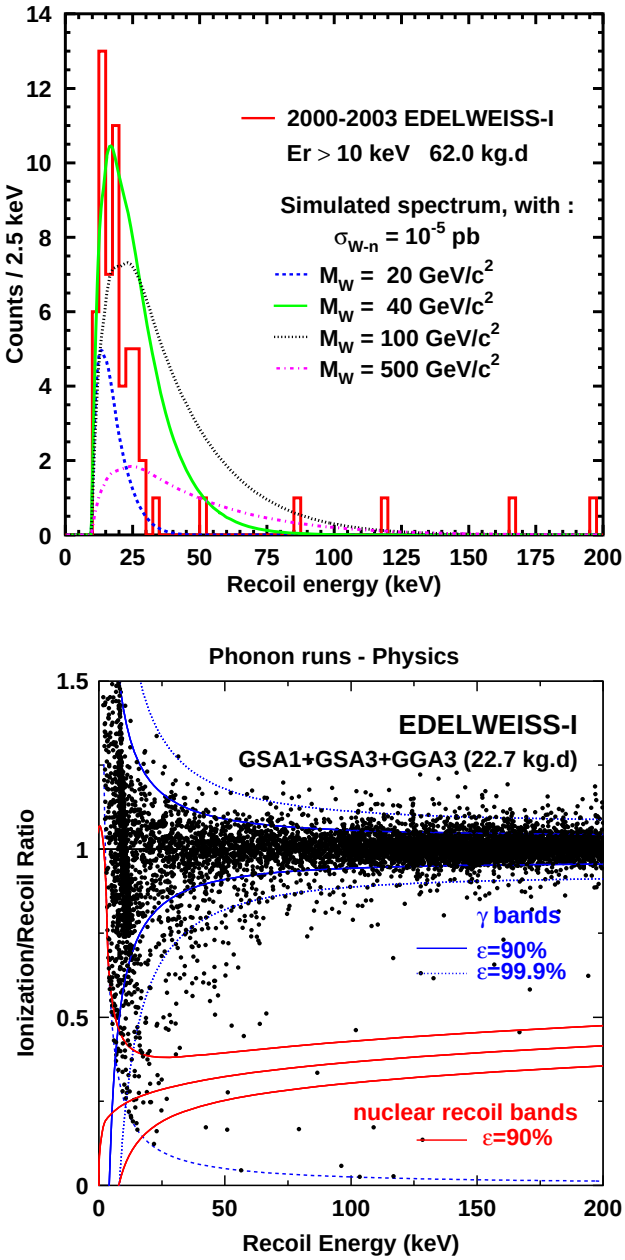

Figure 3.4 – *Haut : Spectre de l'énergie de recul pour les données d'EDELWEISS I comparé à des simulations de spectres de WIMPs pour différentes masses. Bas : Données expérimentales d'EDELWEISS I pour 22.7 kg.j.*

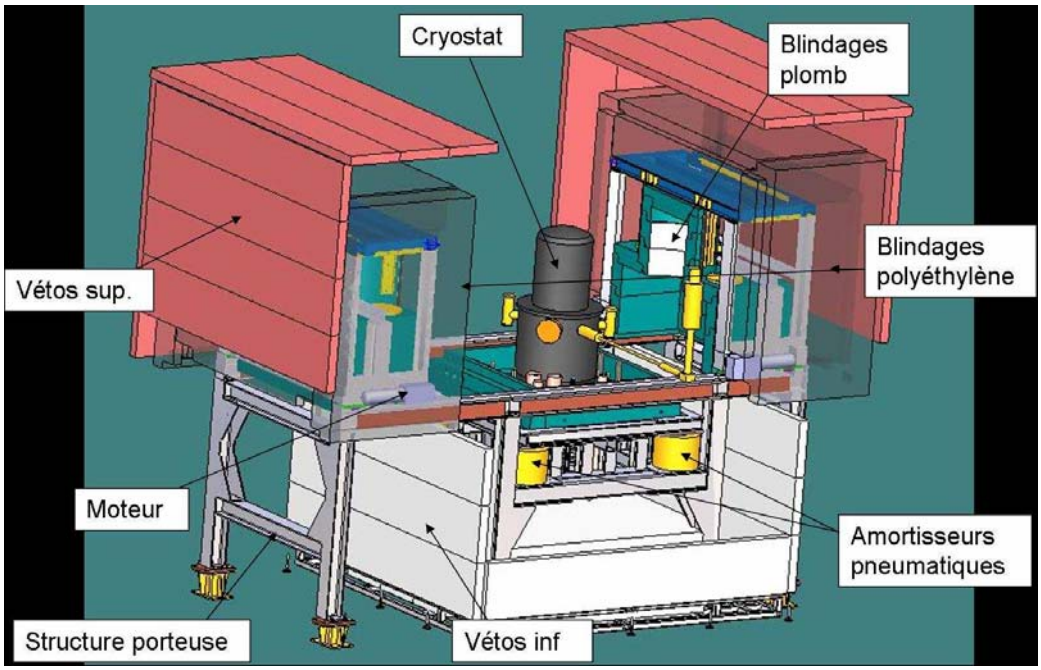

Figure 3.5 – *Schéma du setup d'EDELWEISS II. Le cryostat au milieu est entouré d'un blindage de plomb, de polyéthylène et d'un veto muons.*

3.3 Second phase : EDELWEISS II

3.3.1 Dispositif expérimental

À partir de 2005, la seconde phase d'EDELWEISS, dont l'ensemble du dispositif est présenté Figure 3.5, a été lancée. Toujours installée au LSM, l'expérience s'est doté d'un nouveau cryostat renversé avec un volume de 50 l, pouvant accueillir jusqu'à 120 cristaux. Il est installé dans une salle blanche de classe 10000 construite pour l'occasion et est placé sous un flux d'air déradonisé lors du montage/démontage des détecteurs. L'expérience s'est également doté d'un nouveau blindage de 40 t de plomb d'épaisseur 20 cm (dont les 2 cm les plus internes en plomb archéologique) contre le flux de γ et 40 t de polyéthylène d'épaisseur 50 cm contre les neutrons. Un véto muons couvrant 99 % de l'expérience sert à identifier les muons cosmiques pouvant produire des neutrons. De plus, les matériaux ont été choisis pour leur faible radioactivité.
Des runs de commissioning en 2007 puis un premier run de physique en 2008 incluant jusqu'à 19 bolomètres Ge-NTD de type EDELWEISS I, ont confirmé les limitations de ce type de détecteur. 93.5 kg.j de données ont permis d'améliorer la limite d'EDELWEISS I d'un facteur 3, avec une sen-

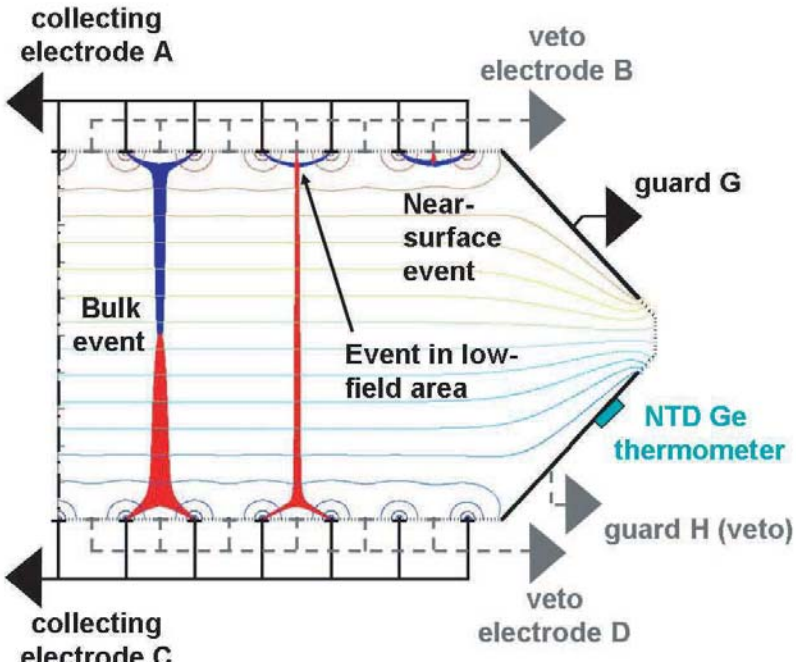

Figure 3.6 – *Schéma de principe d'un détecteur InterDigit. Les évènements fiduciels (bulk) sont lus par les électrodes de collecte tandis que les évènements de surface sont lus par les électrodes de véto et peuvent ainsi être rejetés. Le senseur thermique est un NTD.*

sibilité sur la section efficace de 5×10^{-7} pb pour une masse de WIMP de 80 GeV. La sensibilité a été limitée par la présence de 3 évènements dans la bande de reculs nucléaires, compatibles avec une contamination en ^{210}Pb. Les évènements provenant d'interaction à la surface des détecteurs (par des β) entrainent une mauvaise collecte de charge, ce qui diminue leur facteur de quenching, les faisant passer de la bande de reculs électroniques à la bande de reculs nucléaires, simulant ainsi des évènements WIMPs [50].

3.3.2 Bolomètres InterDigit

Afin de palier au problème de ces bolomètres qui ne permettent pas d'effectuer de discrimination sur les évènements de surface suffisante, une nouvelle génération de bolomètres a été développée [51]. Ces bolomètres, nommés InterDigit (ID), sont également basés sur un absorbeur en germanium et la chaleur est collectée par un senseur thermique NTD identique à celui des détecteurs de l'ancienne génération. La différence intervient au niveau des électrodes, qui ne sont plus pleines mais constituées de plusieurs électrodes

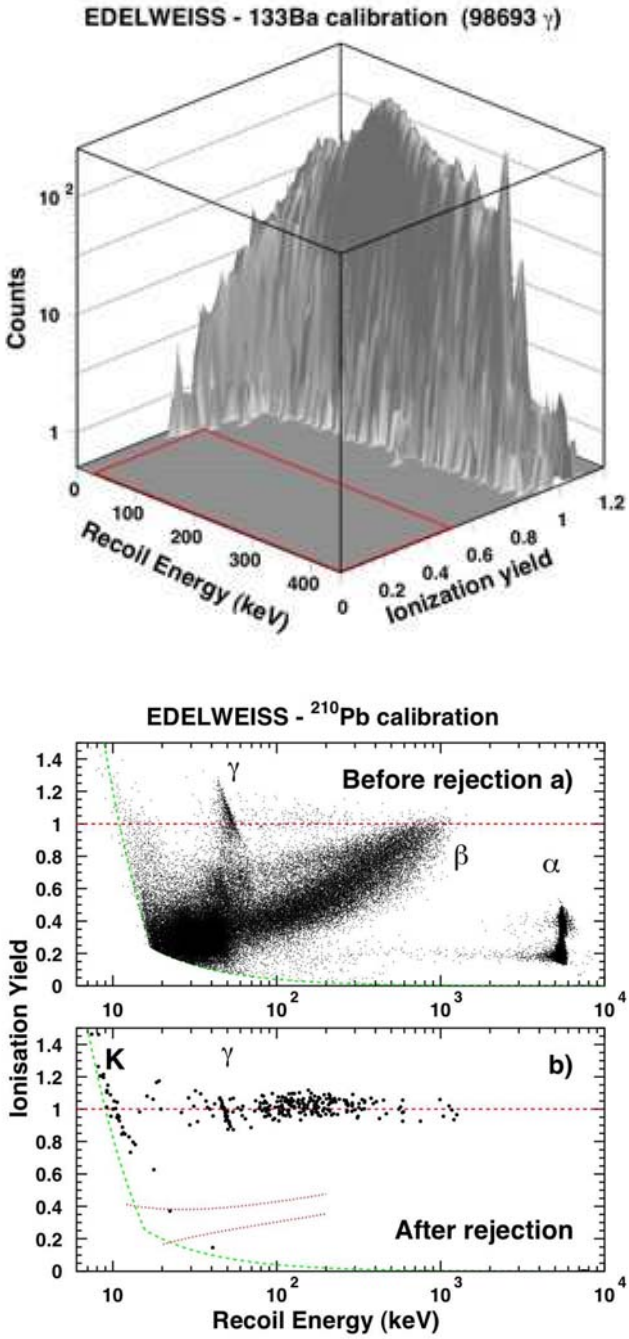

Figure 3.7 – *Calibration des bolomètres ID. Haut : avec une source γ de ^{133}Ba montrant une réjection équivalent à $\sim 10^3$ kg.j. Bas : avec une source α, β, γ, de ^{210}Pb montrant une réjection correspondant à $\sim 3.10^4$ kg.j.*

concentriques, symétriquement sur chaque face. En plus des électrodes de garde sur les surfaces latérales, les électrodes sont alternativement une électrode de collecte de charge, dont le champ électrique est présent entre les deux faces du cristal, et une électrode de véto. Ceci permet d'instaurer un champ électrique entre deux électrodes de véto successives (voir Figure 3.6). Cette technologie permet de discriminer les évènements ayant lieu en surface du détecteur dont, la charge est collectée par une électrode véto et une électrode collectrice, des évènements fiduciels, dont les charges sont lues par les électrodes de collecte. Enfin, des évènements à champ faible, ayant lieu à la limite entre la zone fiducielle et la surface sont collectés par plus de deux électrodes et sont rejetés tout comme les évènements mesurés sur l'électrode de garde.
Une calibration par une source γ de ^{133}Ba équivalent à $\sim 10^3$ kg.j et une calibration α, β, γ de ^{210}Pb équivalent à $\sim 3.10^4$ kg.j a montré l'efficacité du rejet actif des évènements de surface par ces détecteurs ID permettant d'atteindre théoriquement une sensibilité sur la section efficace d'interaction WIMP-nucléon de 10^{-9}pb.

3.3.3 Résultats actuels

La prise de données la plus récente d'EDELWEISS II (douzième refroidissement) a eu lieu entre mars 2009 et avril 2010. Six mois d'acquisition avec 10 détecteurs ID de 400 g ont produit 144 kg.j de données avec un seuil en énergie de recul à 20 keV. Un unique évènement dans la bande de reculs nucléaires, juste au dessus de 20 keV a permis d'établir une limite de 1×10^{-7} pb pour un WIMP de 80 GeV [22]. L'ensemble des données produisent quant à elles comme résultats préliminaires 322 kg.j et une limite de section efficace WIMP-nucléon de 5.10−8 pb pour un WIMP de 80 GeV. Cette sensibilité permet à EDELWEISS d'être dans le peloton de tête des expériences de recherche directe de matière sombre (voir Figure 1.6).

3.4 Futur : EURECA

Le projet européen EURECA (pour European Underground Rare Event Calorimeter Array) prévoit le regroupement des expériences EDELWEISS, CRESST et ROSEBUD ainsi qu'une collaboration du CERN pour former une nouvelle expérience de plus grande envergure. Les avancées technologiques produites par ces dernières faisant office de R&D [52]. Afin d'atteindre une sensibilité sur la section efficace d'interaction du WIMP allant de 10^{-8} à 10^{-10} pb, actuellement privilégiée par la théorie [53], les expériences de

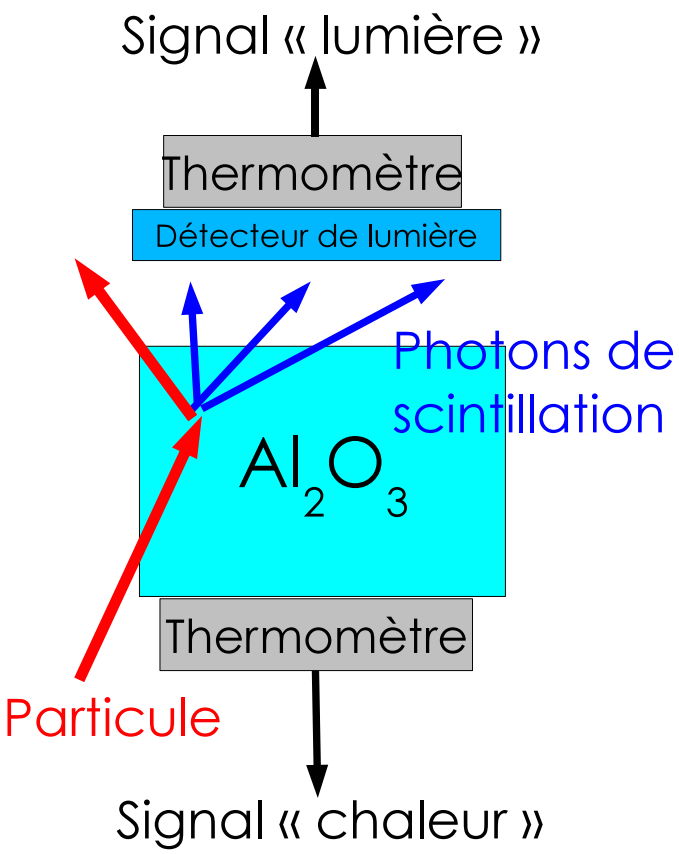

Figure 3.8 – *Schéma d'un bolomètre à double voie scintillation-chaleur. Lors de l'interaction d'une particule dans le cristal (ici du saphir), les deux signaux sont créés. Un senseur thermique collecte les phonons, tandis qu'un second cristal permet de collecter les photons et produit à son tour des phonons, qui seront mesurés par un autre senseur thermique.*

détection directe doivent augmenter leur masse de détecteur pour atteindre plusieurs centaines de kg. Ainsi EURECA a pour but d'utiliser jusqu'à 1 t de détecteurs de différentes technologies, avec d'une part les détecteurs charge-chaleur en germanium utilisés par EDELWEISS et d'autre part des détecteurs scintillation-chaleur (bolomètres scintillants) utilisés par les expériences CRESST et ROSEBUD (voir Figure 3.8). Ainsi, le large choix de cibles pouvant être utilisés permettra une meilleure compréhension d'un éven-

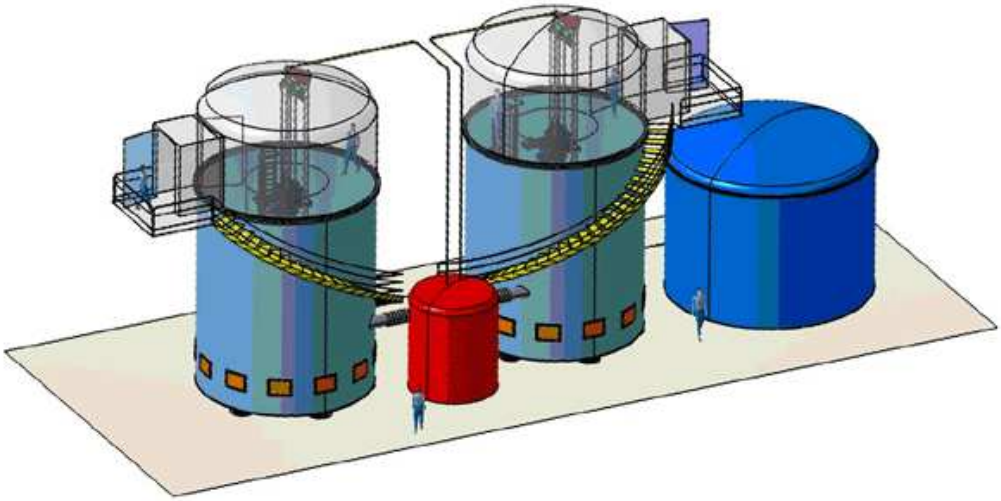

Figure 3.9 – *Schéma préliminaire de l'expérience EURECA. 2 réservoirs d'eau contenant un cryostat de 8 m de diamètre feront office de blindage.*

tuel signal induit par un WIMP mais également une meilleur compréhension et un meilleur rejet du fond neutron. L'expérience devrait être installée dans l'extension du LSM : ULISSE (pour Underground Large Infrastructure for Super Shielded Experiment) qui devrait être prochainement construit, lors du percement d'une galerie de sécurité du tunnel du Fréjus. Un "design" préliminaire de l'expérience prévoit la présence de 2 cryostats, chacun placé dans une cuve de 8 m de diamètre remplie d'eau servant de blindage (voir Figure 3.9).

Finalement, EDELWEISS a pu développer une nouvelle génération de détecteurs lui permettant d'obtenir une sensibilité nécessaire pour atteindre la zone d'intérêt, grâce au rejet actif des évènements de surface. La future expérience EURECA prévoit d'utiliser de multiples technologies, les bolomètres germanium cohabiterons avec des bolomètres scintillants. Ces derniers ont un intérêt tout particulier en offrant notamment un large choix de cibles. Ils pourront ainsi faire office de détecteurs complémentaires aux germaniums.
C'est dans cette optique, que le programme de R&D SciCryo à été initié avec pour but d'étudier des cristaux pouvant faire office de cibles pour les détecteurs. Le chapitre suivant concerne ainsi le dispositif expérimental mis en place dans ce cadre afin d'étudier les propriétés de scintillation de cristaux refroidis jusqu'à 2.8 K.

Chapitre 4

Méthode Expérimentale pour l'Étude de Scintillateurs

Afin d'augmenter la gamme de cibles pouvant servir de bolomètres scintillants, le projet SciCryo a été mis en place au sein de l'IPNL. Il a pour vocation d'établir une collaboration entre différents laboratoires ayant des capacités de recherche complémentaires sur les cristaux scintillants. Le projet s'articule à l'IPNL essentiellement autour d'un cryostat optique permettant d'effectuer de la caractérisation de cristaux scintillants refroidis jusqu'à 2.8 K.
J'exposerai dans ce chapitre, après un bref rappel sur les processus de scintillation, le montage expérimental qui a été mis en place au laboratoire et qui est l'instrument central de mon travail de thèse.

4.1 Processus de scintillation des cristaux inorganiques

Les premières traces d'emploi de scintillateurs remontent à la fin du XIXème siècle. Le $CaWO_4$, utilisé actuellement pour la détection de matière sombre par l'expérience CRESST [23] a été employé dès la découverte des rayons X par Röntgen [54]. Nombres de cristaux scintillants ont été découverts par la suite, au cours du XXème siècle. Les années 1940 ont vu la création des premiers photomultiplicateurs (PMTs) et la découverte du Tl:NaI [55], scintillateur encore très largement utilisé aujourd'hui comme dans l'expérience DAMA [39].
La scintillation peut être décrite comme étant le processus d'émission de photons visibles, ultraviolets ou infrarouges par un milieu ionisé lors du passage d'une particule. Il serait, en fait, incorrect de s'en tenir à cette définition, qui

inclurait également le rayonnement Cerenkov [56]. En réalité, il faut tenir également compte des mécanismes de transfert et de conversion de l'énergie en lumière [57]. Une autre source de confusion, provenant généralement d'abus de langage, est le phénomène de luminescence (aussi appelé photoluminescence), exploité dans les lampes fluorescentes ou dans les lasers (on parle dans ce cas de luminophores). La luminescence est la relaxation radiative d'un ion actif du milieu, d'un état excité par une décharge électrostatique ou une impulsion de lumière, vers son état fondamental.
Le milieu scintillant peut être liquide ou gazeux comme dans les expériences de détection directe de matière sombre utilisant des gaz nobles (voir 1.3.3.2). Il peut également être solide, auquel cas il faudra différencier les scintillateurs organiques des scintillateurs inorganiques, ces derniers étant ceux qui nous intéresseront ici.

4.1.1 Interaction particules/matière

Suivant la nature de la particule interagissant dans un milieu et son énergie, les modes de transfert d'énergie peuvent être très variés [58]. Comme expliqué au chapitre 3, les expériences de détection directe de matière sombre différencient en premier lieu les particules interagissant avec les noyaux (reculs nucléaires) comme les neutrons ou les hypothétiques WIMPs, qui engendrent une ionisation plus faible (donc moins de scintillation), de celles interagissant avec les électrons (reculs électroniques). Là encore, suivant la nature de la particule, le recul électronique n'engendrera pas la même réponse de scintillation. C'est ce phénomène qui permet, par exemple, d'effectuer une discrimination sur la forme des impulsions PSD (pour Pulse Shape Discrimination).

4.1.1.1 Les neutrons

Les neutrons, étant dénués de charge électrique et massifs, interagissent avec les noyaux plutôt qu'avec les électrons des atomes. Les collisions peuvent être élastiques ou inélastiques suivant l'énergie des neutrons. Dans le premier cas le neutron cède peu d'énergie lors de chaque collision, alors que dans le second cas il cède une grande partie de son énergie, ce qui peut entraîner l'excitation du noyau qui émettra alors un γ pour revenir à son niveau fondamental.

4.1.1.2 Les électrons

Les électrons étant des particules chargées, ils perdent de l'énergie par interaction coulombienne. Leur trajectoire dans le milieu peut être erratique. Dans le cas d'électrons très énergétiques, il peut également y avoir perte d'énergie par bremsstrahlung, c'est-à-dire par l'émission d'un rayonnement de freinage.

4.1.1.3 Les particules lourdes chargées

Les particules lourdes chargées comme les α vont, comme les électrons, déposer de l'énergie par interaction Coulombienne avec les électrons. Elles vont interagir avec beaucoup d'électrons atomiques à la fois dès leur entrée dans le milieu entrainant soit leur excitation, soit de l'ionisation, s'ils sont arrachés de leur atome. Leur dépôt maximal d'énergie a lieu en fin de parcours (pic de Bragg), entrainant une densité d'énergie locale élevée, ce qui influence la scintillation (voir 5.1.2.2).

4.1.1.4 Les photons γ

Les γ peuvent interagir de trois façons différentes, qui seront très dépendantes de leur énergie mais aussi du numéro atomique des atomes et de la densité du milieu :

Absorption photoélectrique :
L'absorption photoélectrique est l'effet dominant à basse énergie (jusqu'à environ 100 keV). Le γ est absorbé par un électron, lui cédant toute son énergie $h\nu$ et entrainant l'émission d'un photoélectron d'énergie :

$$E_{e^-} = h\nu - E_b \tag{4.1.1}$$

E_b étant l'énergie de liaison de l'électron dans l'atome considéré. Le photoélectron est arraché généralement aux couches les moins énergétiques de l'atome.

Diffusion Compton :
La diffusion compton est l'effet dominant pour des γ d'énergie supérieure à environ 100 keV. Dans ce cas, le γ ne cède qu'une partie de son énergie à un électron, avant d'être diffusé avec une énergie $h\nu'$:

$$h\nu' = \frac{h\nu}{1 + \frac{h\nu}{m_0c^2}(1 - cos\theta)} \tag{4.1.2}$$

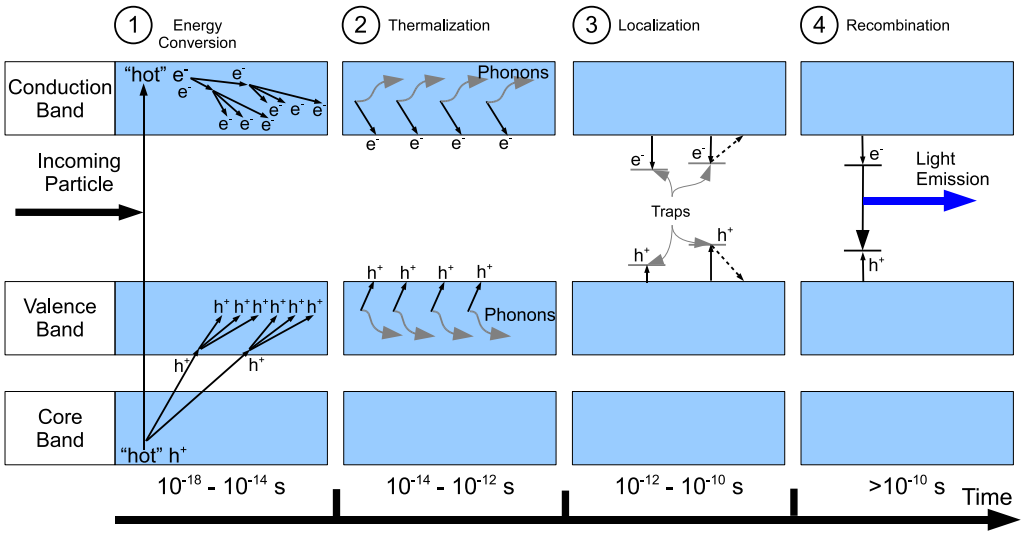

Figure 4.1 – *Schéma général du mécanisme de la scintillation dans un cristal isolant inorganique. Le processus est divisé en quatre étapes et s'étal sur une période allant de 10^{-18} s à plus de 10^{-8} s.*

où m_0c^2=511 keV est l'énergie de masse de l'électron au repos et θ l'angle de diffusion du γ. Seule une fraction de l'énergie du γ incident est ainsi transmise à l'électron. Le γ résultant peut par la suite éventuellement interagir de nouveau dans le milieu par diffusions Compton successives ou absorption photoélectrique, déposant finalement toute son énergie.

Création de paire e^+-e^- :
La création de paires e^+-e^- ne peut avoir lieu que pour des γ d'énergie supérieure à 1022 keV, c'est-à-dire la somme des masses de l'électron et du positron. Le surplus d'énergie est converti en énergie cinétique de la paire e^+-e^-. Le positron s'annihilera par la suite avec un autre électron du milieu, entrainant la création de deux γ de 511 keV, émis avec un angle de 180° entre eux.

4.1.2 Mécanismes de scintillation

Le processus de scintillation n'est pas seulement la désexcitation radiative d'un cristal ionisé, il faut aussi tenir compte des mécanismes qui conduisent à l'émission de lumière dans le cristal. Pour un cristal inorganique, ces mécanismes peuvent se diviser en quatre étapes chronologiques, allant de l'ionisation du milieu par une particule incidente, jusqu'à l'émission de lumière. La figure 4.1 montre le schéma général du mécanisme de scintillation le plus

simple. Seule une bande de cœur (niveaux de plus basse énergie) est montrée. Les bandes de valence et de conduction sont séparées par une bande interdite, d'énergie E_g, dans laquelle se situent les centres luminescents (centres qui peuvent conduire à une désexcitation radiative). Ces centres peuvent être intrinsèques au cristal (luminescence excitonique) ou extrinsèques (défauts, ions activateurs).

Conversion de l'énergie
Lorsqu'une particule interagit dans le cristal, elle va créer une excitation primaire et ioniser le milieu en excitant un ou plusieurs électrons e^- de la bande de cœur jusque dans la bande de conduction, laissant un trou h^+. Ces électrons "chauds", très énergétiques, vont engendrer des excitations secondaires via des collisions inélastiques. Les trous provenant des couches profondes vont également engendrer des trous dans la bande de valence via des processus Auger (remplissage d'un trou d'une couche interne par un électron d'une couche de plus haute énergie). Tous ces processus se déroulent pendant un temps allant de 10^{-18} à 10^{-14} s. À la fin de cette phase, tous les électrons présents dans la bande de conduction ont une énergie inférieure à $2E_g$ (seuil de diffusion e^--e^-).

Thermalisation
La seconde phase est la thermalisation des électrons et des trous, qui perdent de l'énergie par la production de phonons. Cette phase a lieu entre 10^{-14} et 10^{-12} s et se termine avec les électrons et les trous à la limite, respectivement, des bandes de conduction et de valence.

Localisation
L'étape suivante est le déplacement des excitations vers les défauts ou impuretés du matériau. Les électrons et les trous peuvent être piégés, ou encore se lier (par force de Coulomb) pour former des excitons (paire électron-trou liée), qui peuvent également être piégés (STE pour Self-Trapped Excitons). Ces processus peuvent être accompagnés d'émission de phonons ainsi que de déplacement d'atomes. Cette étape prend place entre 10^{-12} et 10^{-10} s.

Recombinaison
La dernière étape correspond à la migration des excitations vers les centres luminescents et leur relaxation. Cette dernière peut être aussi bien non-radiative que radiative si elle se fait par l'excitation d'un centre émetteur, qui se désexcitera ensuite en émettant un photon lumineux. L'interaction des excitations entre elles peut entraîner une diminution de leur nombre et

donc de la luminescence. Ces processus ont lieu pour des temps supérieurs à 10^{-10} s.

Il est cependant à noter que ce schéma correspond au mécanisme de scintillation d'un cristal ionique avec une structure simple. Suivant la nature du cristal, ce mécanisme peut être beaucoup plus compliqué. C'est par exemple le cas du BaF_2, qui possède une émission de lumière due à de la luminescence croisée (voir 5.2).

4.1.3 Caractéristiques générales des scintillateurs inorganiques

De par le vaste choix de cristaux inorganiques scintillants, il est possible d'en trouver avec des propriétés très variées. Celles-ci peuvent aussi bien être des propriétés mécaniques telles que la dureté ou la rugosité par exemple, que chimiques ou optiques. Nous nous intéresserons ici plus spécifiquement aux propriétés de scintillations telles que le rendement lumineux, les constantes de temps de scintillation et leur dépendance à la température.

4.1.3.1 Rendement lumineux

Le rendement lumineux LY (pour light yield) correspond à l'efficacité du cristal à convertir un rayonnement ionisant en photons lumineux. On peut définir ainsi le nombre de photons émis LY par unité d'énergie déposée dans le cristal :

$$LY = \frac{1}{\beta.E_g} S.Q \tag{4.1.3}$$

Le terme $1/\beta.E_g$ correspond aux étapes 1 et 2 du mécanisme de scintillation (section 4.1.2), c'est-à-dire la production des électrons et leur thermalisation. Le terme $\beta.E_g$ est l'énergie moyenne nécessaire pour la formation d'une paire électron-trou thermalisée dans un cristal, dont le gap d'énergie de la bande interdite est E_g et β est un cœfficient numérique ($\beta \simeq$1.5-2 pour un cristal ionique). S est le rendement de formation de centres radiatifs défini par l'efficacité du transfert d'énergie des paires électron-trou thermalisées vers les centres luminescents. Enfin, Q est le rendement quantique des centres luminescents (probabilité de désexcitation radiative des centres luminescents).
On peut voir ainsi que la quantité de lumière émise par le cristal dépendra bien évidemment de l'énergie déposée par la particule, mais également des propriétés intrinsèques du cristal, comme la largeur de sa bande interdite et sa capacité à convertir l'énergie en lumière.

4.1.3.2 Constante(s) de temps de scintillation

L'émission de la lumière de scintillation dépend d'une cinétique propre au cristal. Dans le cas le plus simple ce sera une décroissance exponentielle avec une constante de temps de scintillation τ. Ainsi, pour un évènement de scintillation obtenu par un dépôt d'énergie E_γ, l'intensité $I(t)$, proportionnelle au rendement lumineux, pourra être définie comme :

$$I(t) = \frac{N}{\tau} e^{-t/\tau} \tag{4.1.4}$$

où

$$N = \int_0^\infty I(t)dt = E_\gamma LY \tag{4.1.5}$$

est le nombre total de photons émis.
En réalité, en raison de la complexité des mécanismes de transfert de l'énergie, la cinétique sera souvent plus compliquée. Il peut ainsi apparaître plusieurs constantes de temps ne correspondant pas forcément toutes à un centre luminescent [57]. Il peut également y avoir un temps de montée, que nous négligerons ici, notre dispositif (voir ci-dessous) n'étant pas adapté pour le mesurer. Pour un cristal montrant n constantes de temps de scintillation, le nombre total de photons émis est décrit par :

$$N = \int_0^\infty \sum_{i=0}^{n} \frac{N_i}{\tau_i} e^{-t/\tau_i} dt = \sum_{i=0}^{n} \int_0^\infty \frac{N_i}{\tau_i} e^{-t/\tau_i} dt = \sum_{i=0}^{n} N_i \tag{4.1.6}$$

4.1.3.3 Effet de la température

Le rendement lumineux, et donc le nombre de photon émis, ainsi que les constantes de temps de scintillation sont très dépendantes de la température du cristal. L'efficacité quantique Q est déterminée par la variation thermique de la probabilité de transition non radiative p_{nr}. Elle est proportionnelle au facteur de Boltzmann $exp(-E_q/k_bT)$, où E_q est l'énergie de quenching. La probabilité de transition radiative p_r est, quant à elle, indépendante de la température. L'efficacité quantique peut ainsi être écrite comme [59] :

$$Q(T) = \frac{p_r}{p_r + p_{nr}} = \frac{1}{1 + Cexp\left(-\frac{E_q}{k_bT}\right)} \tag{4.1.7}$$

où C est une constante de quenching. À basse température, $k_bT \ll E_q$ et l'efficacité quantique est dominée par les transitions radiatives. Lorsque T augmente, les transitions non radiatives deviennent importantes et la luminescence est "quenchée", entrainant une diminution du rendement lumineux

mais aussi des constantes de temps. Les cristaux dopés présentent également souvent une dépendance en température de l'efficacité du transfert d'énergie S en raison de la participation des pièges, qui induit une diminution du rendement lumineux à basse température.

4.2 Dispositif expérimental

L'utilisation de bolomètres scintillants pour la détection directe de matière sombre, nous conduit à rechercher des cristaux présentant un fort rendement lumineux à basse température. C'est dans cette optique que nous avons développé un dispositif expérimental permettant de mesurer les propriétés de scintillation de cristaux refroidis jusqu'à 3 K, sous radiation γ. Ce montage dispose ainsi d'un cryostat optique dédié et d'une technique de mesure statistique par photons individuels. Ceci permet de mesurer l'évolution des rendements lumineux et des constantes de temps de scintillation des cristaux avec la température, ces dernières pouvant couvrir une plage de valeurs allant de la nanoseconde à la milliseconde. Les données utilisées afin d'illustrer le dispositif expérimental et la méthode d'analyse sont celles obtenues avec un cristal de BGO ($Bi_4Ge_3O_{12}$), dont l'étude détaillée est donnée au chapitre 5.

4.2.1 Le cryostat SciCryo

Le cryostat SciCryo est un cryostat optique à circuit fermé, avec une température de base de 2.8 K et une géométrie compacte pour le comptage de photons individuels. La large ouverture numérique, de l'ordre de 0.79 depuis le centre optique jusqu'à chacune des deux fenêtres, correspond à près de 40 % de l'angle solide total et permet un gain de lumière significatif dans l'efficacité de collection de la lumière par rapport aux cryostats classiques. Ce gain, ainsi que la relative grande taille des échantillons qui peuvent être utilisés (de l'ordre du cm^3) facilitent l'étude des scintillateurs sous radiation γ. Ces caractéristiques sont un atout pour des techniques de comptage de photons multiples aux basses températures.

4.2.1.1 Intérêt du cryostat optique

L'étude de la scintillation dans les solides à très basses températures, en dessous de 4 K, a été récemment encouragée par la recherche d'évènements rares, tels que les interactions de la matière sombre [60] ou la double désintégration β sans émission de neutrinos [61]. Le but est de trouver des

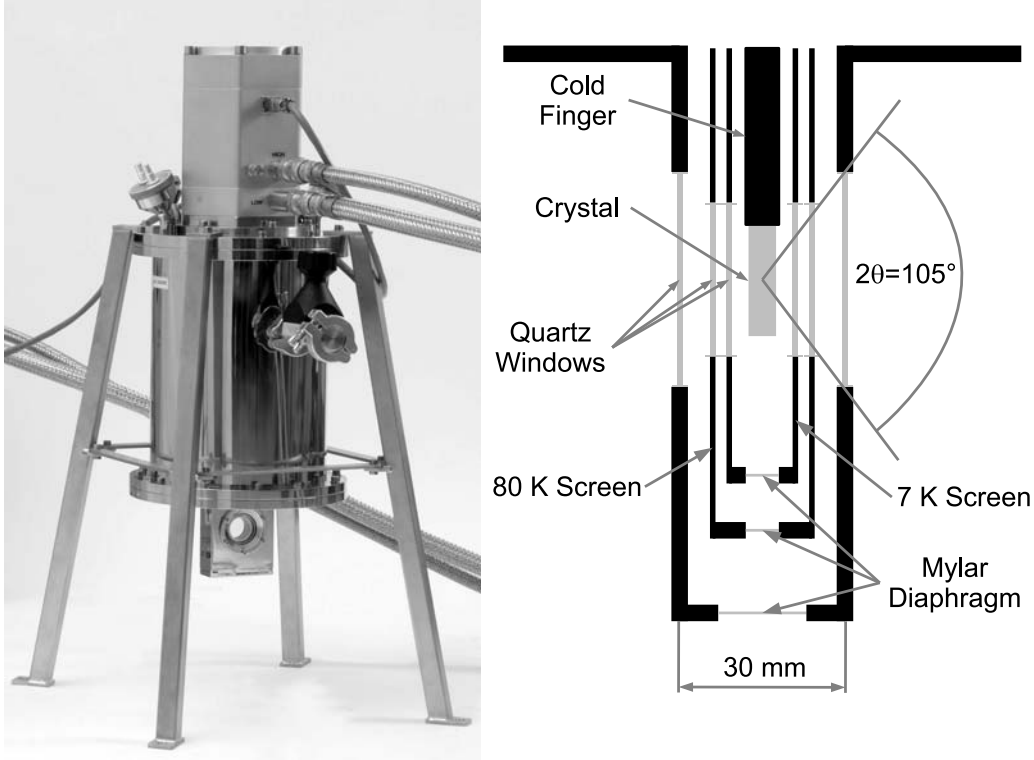

Figure 4.2 – *Gauche : vue d'ensemble du cryostat. Droite : géométrie optique dans le plan vertical perpendiculaire aux fenêtres circulaires (pas à l'échelle). La distance entre le centre du cryostat et les fenêtres extérieures a été réduite à 15 mm pour augmenter l'efficacité de la collecte de lumière. Dans cette géométrie "see-through", le centre optique voit chaque fenêtre avec une fraction de l'angle solide total de 20 %.*

matériaux adéquats pour réaliser des détecteurs cryogéniques scintillation-chaleur à des températures d'environ 10 mK [62]. Néanmoins, les premières études sur la scintillation peuvent être effectuées sur des cryostats 4 K, qui sont plus aisés à utiliser que les cryostats à dilution (bien qu'il puisse toujours y avoir une variation de la scintillation entre 4 K et les plus basses températures), spécialement avec le développement de systèmes sans fluide cryogénique. Les systèmes optiques 4 K ont également comme avantage que les détecteurs de lumières standards, tels que les PMTs, peuvent être installés à température ambiante et donc avec un gain constant lorsque l'échantillon est refroidi. La contrepartie est que ces PMTs à température ambiante sont ainsi placés relativement loin de l'échantillon. Cette distance supplémentaire implique une diminution de la lumière collectée provenant de l'échantillon, déjà réduite par la présence d'écrans et de fenêtres (qui ne sont pas nécessaires pour le refroidissement jusqu'à 100 K [63]). Dans le cadre du projet

SciCryo sur la scintillation cryogénique [64], nous avons développé un cryostat optique avec une géométrie compacte, qui permet ainsi de réduire la distance entre l'échantillon et les PMTs. La collecte de lumière est ainsi augmentée. Associée à la relative grande taille des échantillons qui peuvent être utilisés, ce système permet l'observation des photopics des sources γ dans les cristaux avec une section efficace photoélectrique suffisante. Ce cryostat peut être utilisé avec la technique de comptage de photons multiples [65], développée pour les constantes de temps de scintillation lentes, fréquentes à basse température, pour étudier de nouveaux cristaux. Cela facilite aussi l'emploi de cette technique pour les études de scintillation sous excitations γ, plutôt qu'α, généralement plus difficiles à effectuer en raison des plus faibles énergies utilisées et donc du plus faible nombre de photons disponibles.

4.2.1.2 Caractéristiques

Le cryostat a été conçu et construit en collaboration avec Air Liquid Advanced Technologies [66]. Il est centré autour d'un tube pulsé CRYOMECH PT403 délivrant une puissance de refroidissement de 250 mW à 4 K. Le tube pulsé est couplé à un compresseur refroidi à l'eau. Le cryostat possède une unique chambre à vide dans laquelle se situe un premier écran thermalisé à ∼80 K. Un second écran est thermalisé à 7 K (Air Liquide US Patent 6 915 642). La chambre externe est en acier inoxydable et les écrans internes en cuivre CUC1. Toutes les surfaces internes sont recouvertes d'une couche d'argent qui agit comme un réflecteur diffusant pour augmenter la collection de lumière. Le porte-échantillon est connecté au point froid du tube pulsé par un doigt froid en cuivre. L'espace entre les écrans a été réduit à 2 mm pour minimiser la distance entre l'échantillon et les détecteurs de lumière. Pour assurer l'alignement des écrans et éviter les courts-circuits thermiques, la position relative des écrans est maintenue par des entretoises collées ayant une conductivité thermique faible. Le porte-échantillon standard peut accueillir des échantillons d'une taille de $20\times10\times5$ mm^3, la plus grande dimension étant verticale. Le dessous de la chambre à vide et des écrans sont équipés d'une ouverture (de 1.6 cm de diamètre pour la chambre à vide), comblé par un diaphragme de Mylar d'épaisseur 100 μm. Cela réduit la quantité de matière entre l'échantillon et la source radioactive externe placée sous le cryostat, de manière à être face à la plus grande épaisseur du cristal.
Les températures du cryostat sont mesurées par des diodes de silicium, une sur le point froid du tube pulsé (Scientific Instrument SI-410) et l'autre sur le doigt froid (Lakeshore DT-470). Il y a également une thermistance PT-100 sur la zone 80 K du cryostat. Les senseurs sont monitorés par un régulateur BT500 Air Liquide. Cette unité contrôle également la température de

l'échantillon, grâce à une résistance utilisée pour chauffer le point froid. La mise en opération de l'équipement est simple : après pompage de la chambre à vide jusqu'à 5×10^{-4} mbar, le compresseur pour le tube pulsé est démarré, et la température minimale de 2.8 K est atteinte en trois heures sans autre intervention. Le BT500 permet la stabilisation de la température de l'échantillon avec une précision meilleure que 0.1 K jusqu'à 40 K. Il est à noter que la limite supérieure de la gamme de stabilisation de la température pourrait être augmentée, probablement jusqu'à température ambiante, en diminuant le lien thermique entre le porte échantillon et le doigt froid, au prix d'une augmentation du temps nécessaire au refroidissement. L'appareil a opéré à basses températures de manière stable pendant des périodes de plusieurs semaines sans maintenance cryogénique.

4.2.1.3 Efficacité optique

Dans le but de permettre des études de scintillateurs en coïncidence, nous avons choisi une géométrie optique "see-through" avec des fenêtres de part et d'autre, comme illustré sur la Figure 4.2. Les PMTs sont co-axiaux, se faisant face, avec l'échantillon scintillant entre eux. Tous les écrans internes (respectivement externes) ont été équipés avec des fenêtres en verre silice Spectrosil 2000 (resp. GE214 verre de quartz) avec une transmittance supérieure à 90 % sur la plage de longueurs d'onde 190-2000 nm (resp. 280-3000). Cet agencement, ainsi que le faible espace atteint entre les écrans, a permis une géométrie optique compacte, avec une distance minimale L de 15 mm entre le centre optique et l'extérieur. Comparée aux géométries optiques à "angle", celle compacte choisie ici a l'avantage d'une large ouverture numérique, au prix d'un certain manque de flexibilité pour l'utilisation éventuelle de sources radioactives internes en raison du plus faible espace disponible. Le centre optique du cryostat voit chacune des deux fenêtres externes avec un cône de demi-angle θ=52.5°, ce qui fournit une ouverture numérique NA, pour chaque fenêtre, de $NA = sin\theta = 0.79$. En terme d'angle solide, le cône depuis le centre optique jusqu'à chaque fenêtre externe couvre une fraction de l'angle solide total de $\frac{\Omega}{\Omega_{tot}} = \frac{1-cos\theta}{2} = 20$ %. En tenant compte de l'étendue spatiale de l'échantillon, une simple simulation numérique de "ligne de vue" montre que cette fraction devient 17±2 % pour une fenêtre unique, et 34±2 % pour les deux fenêtres (toutes les fluctuations données sont RMS). Pour une photocathode de diamètre d=25 mm à une distance L'=16 mm depuis le centre optique (somme de L et de l'épaisseur de la fenêtre du PMT), la fraction de l'angle solide total devient $\epsilon = \frac{1}{2}\left(1 - cos\left[arctan\frac{d/2}{L'}\right]\right)$=11 %. L'étendue spatiale du cristal ajuste ce nombre à 10±2% pour un seul PMT, et 19±2% pour les deux PMTs. En pratique [65] ces nombres sont réduits

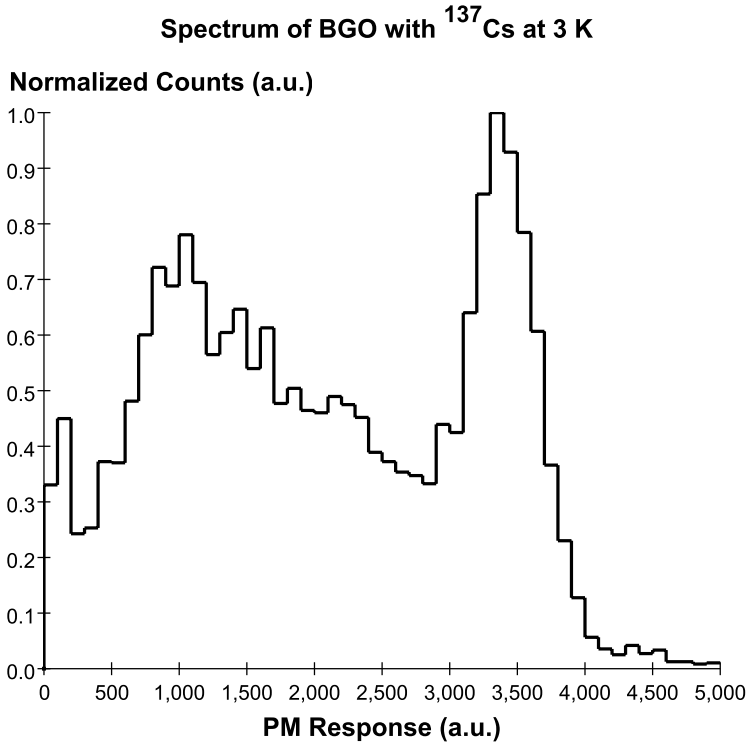

Figure 4.3 – *Spectre obtenu avec une source de ^{137}Cs irradiant un cristal de BGO dans le cryostat optique à 3 K. Le photopic (662 keV) est clairement visible autour de 3500 a.u.. Cela démontre l'efficacité de la géométrie optique et la faisabilité d'utiliser ce dispositif pour étudier les cristaux sous excitation γ.*

par les réflexions sur les fenêtres. L'efficacité associée aux fenêtres, incluant celle du PMT qui collecte la lumière d'une source ponctuelle, vaut :

$$\eta \approx (1-r)^{2N}\epsilon \approx 0.07, \tag{4.2.1}$$

où N=4 fenêtres (celles du cryostat et du PMT), chacune avec un coefficient de réflexion r=0.05 (en admettant une incidence quasi-normale), entre la source et le PMT.

Pour nos mesures, les photons de scintillation sont lus par deux PMTs utilisés en mode coïncidence grâce à des modules NIM standards et un numériseur PXI ou un convertisseur temps-numérique (TDC pour Time to Digital Convertor). Des détails plus approfondis sur l'acquisition des données sont présentés en section 4.2.2. Les premiers tests de scintillation ont été fait avec un cristal de BGO ($Bi_4Ge_3O_{12}$) de dimension 20×10×5 mm^3, matériau bien connu en tant que détecteur de particules à température ambiante [58]. Le

BGO à basse température devient également intéressant [62], ayant été utilisé pour montrer l'instabilité du ^{209}Bi [67], et systématiquement étudié sous irradiation α jusqu'à 6 K [68]. Grâce à la relative grande taille du cristal et sa bonne section efficace photoélectrique, le photopic d'une source de ^{137}Cs est clairement visible sur la Figure 4.3 obtenue à 3 K. À température ambiante, le photopic correspond à environ 60 photoélectrons sommés sur les 2 PMTs. En multipliant la valeur de l'efficacité des 2 PMTs donnée par l'équation 4.2.1 (η_{2PMTs}=0.13±0.01) par l'efficacité quantique (QE) des PMTs bialcalin pondérée par le spectre d'émission du BGO (QE=14 % [69]), par le rendement lumineux du BGO (LY=8200 photons par MeV est la valeur couramment donnée [70]), et l'énergie des γ du ^{137}Cs (E=662 keV), donne un total de photoélectrons du photopic sur la somme des deux PMTs, attendus, de $\eta_{2PMT} \times QE \times LY \times E \approx 100$. Ce nombre est réduit par l'indice de réfraction élevé du BGO (n=2.15 [58]) qui peut entraîner un piégeage significatif de la lumière dans le cristal en raison des réflexions internes [71]. En admettant une efficacité de 100 % des réflexions spéculaires, la fraction de lumière s'échappant de tout le cristal est $3\left(1-\sqrt{1-\frac{1}{n^2}}\right) = 34$ %, conduisant à quelques trente photoélectrons qui devraient être vus. D'autres effets pourraient expliquer pourquoi plus de photoélectrons sont en fait observés, comme la couche reflectrice sur les écrans qui fournit aux photons ne s'échappant pas du cryostat immédiatement d'autres opportunités de le faire. Il est à noter qu'un faible mais significatif gain de lumière pourrait être obtenu en couplant optiquement les PMTs aux fenêtres. Une étude plus détaillée des données de BGO refroidis jusqu'à 3 K est présentée au chapitre 5.

Le cryostat a ainsi démontré une bonne efficacité optique, et un caractère approprié pour des mesures avec des sources γ. La suite du chapitre se focalisera sur la chaîne d'acquisition et le traitement des données expérimentales obtenues avec ce dispositif.

4.2.2 Chaîne d'acquisition

Les mesures de lumière du montage SciCryo sont effectuées avec des PMTs et une chaîne d'acquisition permettant de détecter les photons individuels. Cette section a pour but de décrire plus avant cette chaîne d'acquisition.

4.2.2.1 Photomultiplicateurs

Les tubes photomultiplicateurs PMTs convertissent un signal lumineux en signal électrique proportionnel. Leur fonctionnement s'appuie d'une part sur le processus de photoémission par la photocathode semi-conductrice, et

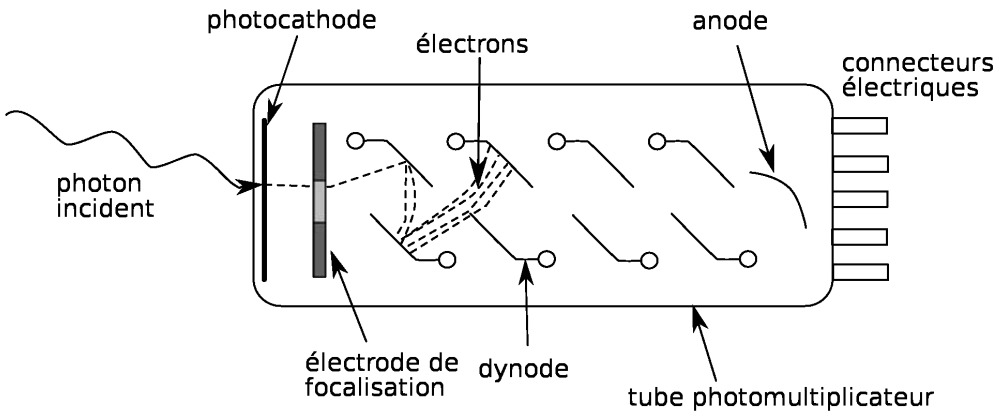

Figure 4.4 – *Schéma de fonctionnement d'un PMT. Lorsqu'un photon lumineux est absorbé par la photocathode, il peut y avoir éjection d'un photoélectron qui sera accéléré par le champ électrique entre l'anode et la photocathode. Chaque collision avec les dynodes multipliera le nombre d'électrons dont le signal de sortie sera proportionnel au nombre de photons incidents.*

d'autre part sur l'émission secondaire d'électrons par les dynodes (voir le schéma du principe de fonctionnement sur la Figure 4.4).

Photoémission : La conversion de photons lumineux en électrons, par la photocathode, se fait en trois étapes [58] :

- l'absorption d'un photon incident par la photocathode et le transfert de son énergie à un électron. L'énergie transférée dépend de l'énergie $h\nu$ du photon incident, qui doit être supérieure à l'énergie du gap de la bande interdite E_g.
- la migration de cet électron à la surface de la photocathode. Une partie de l'énergie sera perdue lors des collisions électron-électron.
- l'échappement de l'électron de la surface de la photocathode. Il est nécessaire que l'électron ait encore assez d'énergie afin de franchir la barrière de potentiel qui existe entre la photocathode et le vide du tube. Cette barrière de potentiel vaut environ 1.5-2 eV pour un semi-conducteur adapté.

Une des principales caractéristiques d'un PMT, qui détermine sa sensibilité, est son efficacité quantique QE définie comme :

$$QE = \frac{Nombre\ de\ photoélectrons\ émis}{Nombre\ de\ photons\ incidents} \tag{4.2.2}$$

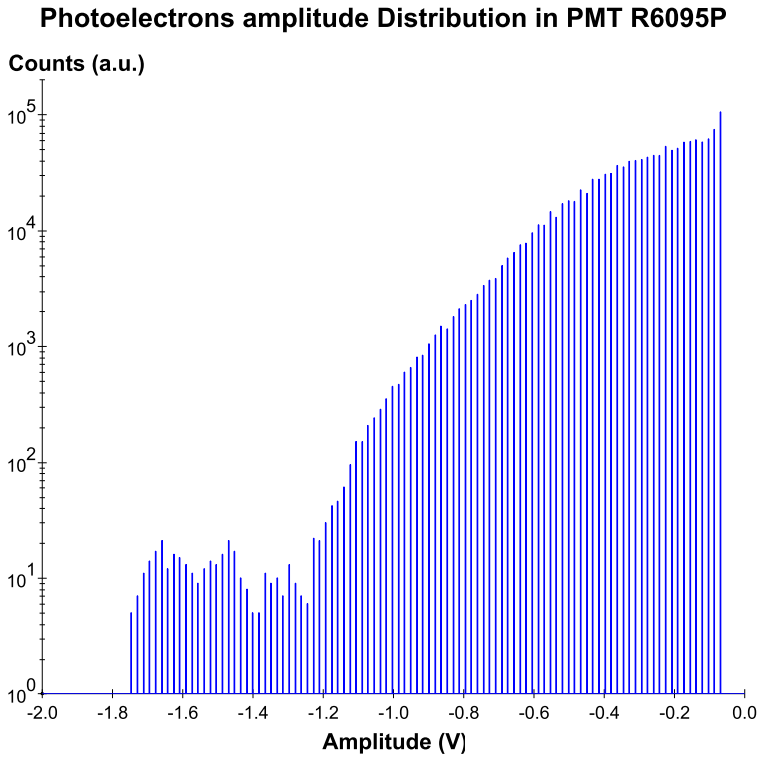

Figure 4.5 – *Spectre de la distribution des amplitudes des photoélectrons individuels dans un PMT Hamamatsu R6095P monté sur une embase E990-501 et polarisé sous une tension de 1050 V. La numérisation est effectuée sur 8 bits et la gamme verticale est de ±2 V. Le grand nombre de photoélectrons de basse amplitude (en valeur absolue) est dû à des rebonds électroniques.*

Dans un cas idéal, on voudrait QE aussi grand que possible, mais en raison des limitations mentionnées précédemment elle vaut au maximum entre 20 % et 30 %. L'efficacité quantique dépend pour beaucoup de la longueur d'onde (et donc de l'énergie) des photons incidents. Les photons rouges ayant moins d'énergie que les photons bleus, les photocathodes standard (bialcaline) ont une valeur de QE plus élevée dans le bleu que dans le rouge, à plus haute longueur d'onde. Il existe cependant d'autres types de photocathodes permettant d'obtenir une efficacité quantique élevée dans le rouge et l'infrarouge (IR). En ce qui concerne l'ultraviolet (UV), la limitation se fait au niveau du verre (la fenêtre) du PMT qui absorbe généralement dans l'UV. Mais il est aussi possible de trouver des PMTs ayant des verres adaptés à l'UV.

Émission d'électrons secondaires : Les électrons, une fois échappés de la surface de la photocathode, sont accélérés et percutent une électrode appelée dynode. Par un processus semblable à ce qui se passe pour la photocathode, l'électron énergétique incident crée des électrons secondaires. De nouveau, une partie de ces électrons de basse énergie peuvent atteindre la surface de la dynode et éventuellement s'en échapper à leur tour.
Le rendement de l'émission d'électrons secondaires dépend de l'énergie de l'électron incident. Le photoélectron initial quitte la photocathode avec une énergie de l'ordre de 1 eV ou moins. La dynode étant maintenue à un potentiel positif de plusieurs centaines de volts, cela détermine l'énergie cinétique de l'électron et par extension le nombre d'électrons secondaires produits dans la dynode. On définit ainsi le facteur de multiplication pour une dynode comme :

$$\delta = \frac{\textit{nombre d'électrons secondaires émis}}{\textit{nombre d'électrons incidents primaires}} \tag{4.2.3}$$

Pour une dynode standard ayant un potentiel interdynodes de quelques centaines de volts, on aura généralement $\delta \simeq 5$.
Les PMTs standards se composent d'une succession de dynodes (voir Figure 4.4), généralement 10 ou 11, entre la photocathode et l'anode. À chaque étage, l'émission secondaire d'électrons multiplie leur nombre. Après N étages, le gain total sera $G = \alpha\delta^N$, où α est la fraction de tous les photoélectrons collectés, proche de l'unité pour les PMTs standards. Pour dix étages, le gain total sera ainsi de l'ordre de 10^7. Si δ était constant, chaque photoélectron serait soumis au même facteur multiplicateur et les impulsions mesurées auraient une amplitude constante. En réalité δ est soumis à des fluctuations statistiques. Le spectre des amplitudes des photoélectrons uniques dans un PMT va ainsi varier, suivant une loi de Poisson (dans le modèle le plus simple). Pour un photoélectron unique incident sur la première dynode, le nombre d'électrons secondaires a une valeur moyenne δ et une déviation $\sigma = \sqrt{\delta}$. La variance relative, définie comme $(\sigma/\delta)^2$ est ainsi égale à $1/\delta$. Pour N étages dans le PMT, le nombre moyen d'électrons collectés à l'anode (et donc l'amplitude) est donné par δ^N. La variance relative de cette valeur vaut alors :

$$\frac{1}{\delta} + \frac{1}{\delta^2} + \frac{1}{\delta^3} + \cdots + \frac{1}{\delta^N} \simeq \frac{1}{\delta - 1} \tag{4.2.4}$$

La variance relative de la dispersion de l'amplitude des impulsions est donc dominée par la fluctuation du rendement sur la première dynode, par laquelle le nombre total d'électrons est le plus faible.
La Figure 4.5 montre la distribution des amplitudes des photoélectrons individuels que nous avons obtenus avec un PMT Hamamatsu R6095P, avec une numérisation sur 8 bits et une gamme verticale de ± 2 V. La valeur limite à

basse amplitude (en valeur absolue) correspond au seuil de la ligne de base du numériseur. La distribution ne correspond pas clairement à une distribution de Poisson et le grand nombre de photoélectrons de basse amplitude (en valeur absolue) est probablement dû à des rebonds électroniques qui n'auraient pas été éliminés par l'analyse (voir section 4.3.1). Toutefois leur présence n'a pas d'effet significatif sur nos mesures.

Émission spontanée d'électrons À température ambiante, les électrons possèdent une certaine énergie cinétique provenant de l'agitation thermique. Bien que sa valeur moyenne soit d'environ 25 meV, la dispersion des valeurs fait que certains électrons ont assez d'énergie pour franchir la barrière de potentiel de la photocathode, s'ils se trouvent à sa surface. Dans ce cas, ils peuvent s'échapper et donner ainsi lieu à une émission spontanée d'électron. Ces photoélectrons de "bruit thermique" entraînent aussi une production d'électrons secondaires dans les dynodes, donnant naissance à un "courant sombre" et donc à des "coups sombres" que notre dispositif peut mesurer. Leur taux peut être de l'ordre de 10^6-10^8 /m^2/s [58].

Afterpulse Une autre source de production d'impulsions fortuites est la création d'afterpulses dans le PMTs. Ils correspondent à la formation d'une nouvelle impulsion à la suite d'une impulsion primaire. Leur origine peut être liée à deux mécanismes : soit de la lumière peut être produite sur une dynode puis interagir dans la photocathode, soit ces afterpulses peuvent être causés par un mauvais vide dans le PMT. Dans ce cas, s'il reste des trace de gaz, des électrons peuvent le ioniser, les ions remontant alors vers la photocathode et produisant de nouveaux photoélectrons.
Nous avons testé notre PMT Hamamatsu R6095 (voir ci-après) avec des impulsions lumineuses provenant d'une LED et contrôlées, d'une durée de 10 ns et avec un taux de 100 Hz. L'évènement moyen obtenu ne montre pas d'afterpulse, comme le montre la Figure 4.6.

PMTs utilisés : Dans les mesures standards de scintillation, le flux de lumière est tel que la mesure ne se fait pas photoélectron par photoélectron, mais par une impulsion unique composée de plusieurs centaines d'entre eux. Pour nos mesures dans le cryostat, le flux de lumière est suffisament faible pour que l'on distingue les photoélectrons (et donc les photons) individuels. À cette fin, nous utilisons des PMTs adaptés pour le comptage de photons. Nos mesures de scintillation dans le cryostat ont été effectuées avec deux modèles de PMTs différents, adaptés en fonction des spectres d'émission des cristaux mesurés. Ces 2 modèles de PMT ont pour points communs d'avoir une pho-

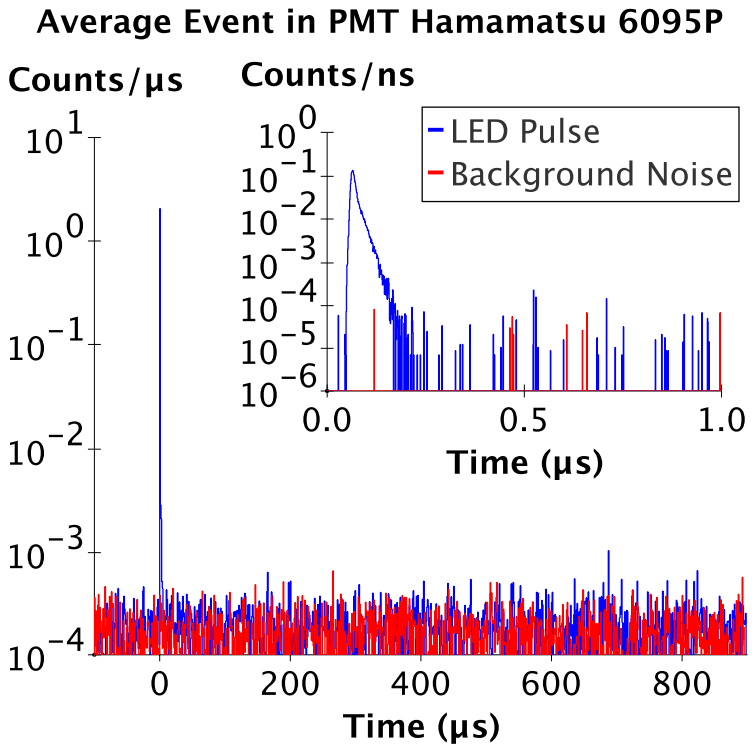

Figure 4.6 – *Évènement moyen obtenu dans un PMT hamamatsu R6095P : Bleu - avec une LED contrôlée par des impulsions de 10 ns avec un taux de 100 Hz. Rouge - Coups sombres.*

tocathode de 25 mm de diamètre, d'être adaptés au comptage de photons individuel avec un faible taux de coups sombres, d'une valeur nominale de 100 Hz.

- Hamamatsu R6095P : PMT à faible taux de coup sombre. Photocathode bialcaline, avec une QE maximale à 420 nm. Il possède 11 étages de dynodes et un gain nominal de 2.1×10^6. Il a été monté sur des embases Hamamatsu E990-501 et utilisé sous une tension de polarisation de 1050 V.
- Electron Tubes 9125QB : Également adapté pour le comptage de photons, il possède une photocathode bialcaline, mais le verre permet une transmission des photons dans l'UV. Il possède 11 étages de dynodes et son gain nominal est de 3×10^6. Deux d'entre eux ont été utilisés, montés également sur des embases Hamamatsu E990-501 et alimentés par des tensions de polarisation de respectivement 850 V et 925 V.

Par la suite, pour des raisons pratiques, j'emploierai le terme *photon* pour parler des photoélectrons, collectés à la photocathode et provenant de l'ab-

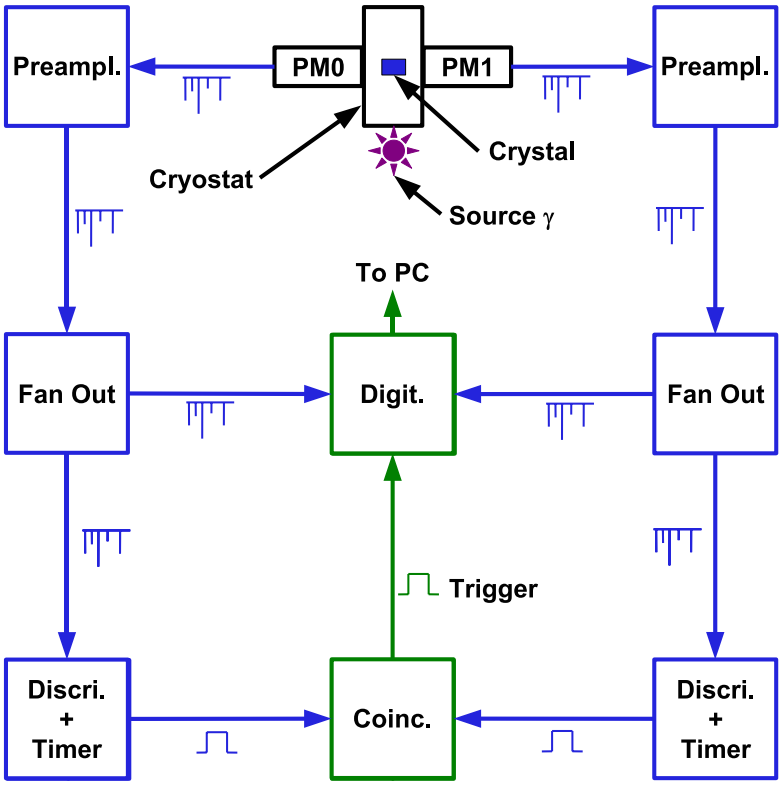

Figure 4.7 – *Schéma de la chaîne d'acquisition électronique avec une coïncidence entre les 2 PMTs. Le signal est tout d'abord préamplifié avant d'être dupliqué par un module Fan In/Fan Out. Un signal logique créé par un module de discrimination permet enfin d'effectuer une coïncidence sur une fenêtre de temps ajustable, qui va servir de déclenchement pour l'acquisition des signaux.*

sorption d'un photon de lumière, puis multipliés dans les dynodes, puisque ce sont eux que nous cherchons à mesurer. J'utiliserai en revanche le terme de *coups sombres* pour évoquer les photoélectrons provenant d'émission spontanée de la photocathode.

4.2.2.2 Chaîne d'acquisition électronique

Notre dispositif vise à mesurer les évènements de scintillation de cristaux obtenus sous excitation γ. Il consistent en l'enregistrement de signaux électriques de PMTs pouvant aller jusqu'à -2 V et sur des fenêtres de temps d'acquisition données. Malgré la compacité géométrique du cryostat, permettant d'obtenir une collecte de lumière supérieure à celle des cryostats usuels, la faible quantité de lumière mesurable nous oblige à utiliser une méthode de comptage de photons individuels. Celle-ci est une adaptation de la méthode

MPCC [65] (Multiple Photon Counting Coincidence). Un des obstacles majeurs pour les méthodes de comptage de photons individuels est l'émission spontanée de coups sombres (voir § 4.2.2.1). Bien qu'il soit possible d'en éliminer une partie en utilisant un seuil de sélection en amplitude adapté (ils auront généralement une amplitude plus faible que les photons provenant de la lumière), la dispersion des amplitudes fait que certains pourront toujours être détectés. De plus, utiliser un seuil trop élevé supprimerait également une partie du signal. Notre chaîne d'acquisition est basée sur l'enregistrement d'évènements de scintillation déclenchés par la détection d'un photon, sur une fenêtre temporelle donnée. Ainsi, les coups sombres peuvent être source de bruit de fond de deux façons :

- Si ils sont confondus avec un photon et ainsi déclenchent l'acquisition de manière fortuite.
- Si ils apparaîssent à un temps aléatoire lors de l'acquisition d'un évènement de scintillation déclenché convenablement par un photon.

La méthode que nous appliquons pour éviter les déclenchements par des coups sombres utilise la géométrie "see-through" du cryostat, en imposant une coïncidence entre les deux PMTs faisant face au cristal. En effet, l'apparition de coups sombre dans un PMT étant aléatoire, la probabilité que les deux PMTs en émettent un dans une fenêtre de coïncidence donnée est :

$$P_{coinc} = \frac{T_{win}^2}{\tau_1 \tau_2} \tag{4.2.5}$$

où τ_1 et τ_2 sont les taux de coups sombres dans chacun des deux PMTs et T_{win} la durée de la fenêtre de coïncidence instaurée.

La coïncidence est effectuée avec des modules NIMs standards (voir Figure 4.7) :

- Le signal de chaque PMT est envoyé dans un préamplificateur ORTEC VT120C. Ce sont des amplificateurs rapides avec une bande passante de 350 MHz et un gain de 20. Il permettent d'amplifier le signal sans le déformer.
- Le signal préamplifié de chaque PMT est ensuite injecté dans un module Fan In/Fan Out, n'ayant pour fonction ici que de dupliquer le signal afin de pouvoir l'envoyer vers différents modules.
- Une des voies de sortie de chaque PMT sert pour la coïncidence. Elles sont transformées en signal logique NIM par un module de discrimination dont le seuil est fixé à -50 mV. La durée du signal logique, réglable, donne la durée de la fenêtre de coïncidence. La fenêtre maximale que peuvent atteindre ces modules est d'environ 160 ns. Ces modules déclenchent à chaque nouveau signal passant le seuil, réinitialisant le signal de sortie logique.

- Dans le cas où une fenêtre de coïncidence plus longue est requise, les sorties des modules de discrimination sont envoyés au préalable vers des modules Timer, qui produisent un signal logique NIM d'une durée réglable pouvant aller de la nanoseconde à la seconde. Ce signal logique quant à lui ne se redéclenche pas tant qu'il n'est pas revenu au niveau zéro.
- Finalement les sorties des modules de discrimination (ou des modules Timer) sont insérées dans un module de coïncidence qui envoie une porte logique NIM lorsque les deux signaux NIM en entrées sont au niveau logique 1. Le signal de coïncidence peut servir de déclenchement pour l'acquisition ou bien servir pour créer d'autres coïncidences (voir 4.2.2.4).
- Les autres sorties du module Fan In/Fan Out peuvent être envoyées à l'acquisition ou bien être monitorées par un oscilloscope.

4.2.2.3 Numérisation

La numérisation des données peut être effectuée par deux modules différents : un numériseur PXI ou un convertisseur temps-numérique multistop TDC, chacun ayant ses avantages et inconvénients.

Numériseur PXI : Pour chaque évènement de scintillation, le numériseur PXI-5152 de National Instrument enregistre le temps et l'amplitude du signal en entrée sur 8 bits, à un taux d'acquisition prédéfini et sur une durée également prédéfinie. L'acquisition peut se faire sur deux voies dont l'échelle verticale maximum est de ± 5 V. Une troisième voie peut servir de déclenchement. Le taux d'acquisition maximal de ce numériseur vaut un gigaéchantillon par seconde (1 GS/s soit 1 GHz). La durée maximale de la fenêtre d'acquisition utilisée est de 1 ms, ce qui combiné au taux d'acquisition de 1 GHz donne la numérisation d'un million de points par évènement de scintillation. Sa bande passante vaut quant à elle 350 MHz. En réalité, le numériseur supporte des fenêtres d'acquisition plus longues, mais la quantité de données engendrée devient problématique pour l'analyse avec des fenêtres d'acquisition supérieures à la milliseconde. Comme le montre la Figure 4.8, après un certain temps d'acquisition le PXI semble appliquer un décalage temporel dans la numérisation des évènements de scintillation. Ce décalage pourrait éventuellement être inhérent au logiciel d'acquisition ou bien au PC d'acquisition. Quelle qu'en soit la raison, il est nécessaire de compenser ce décalage lors de l'analyse. L'acquisition est pilotée par une application LabView permettant de choisir le taux d'acquisition, la durée de la fenêtre d'acquisition et le temps ou le nombre d'évènements de scintillation à enregistrer. Il

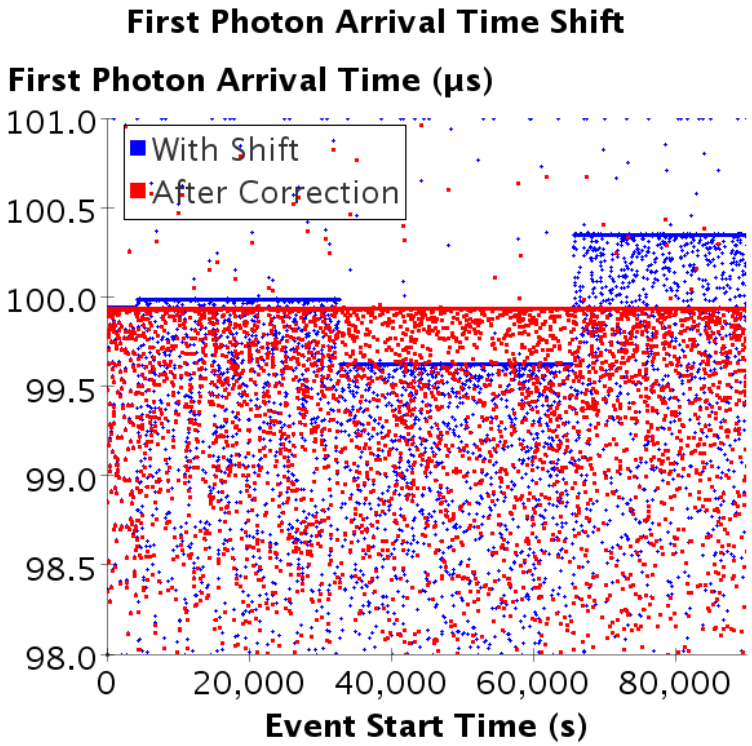

Figure 4.8 – *Exemple de décalage temporel dû au numériseur PXI-5152, avant (bleu) et après (rouge) recalage temporelle.*

est également possible de créer une durée de pré-déclenchement (pretrigger) également ajustable. Les avantages et les inconvénients de ce module sont les suivants :

Avantages

- Le taux d'acquisition de 1 GS/s permet d'avoir une bonne résolution sur les photons individuels dont la FWHM (Full Width at Half Maximum) vaut environ 5 ns (voir Figure 4.9).
- Permet d'avoir des informations sur les amplitudes des photons.
- Permet également de mesurer la ligne de base.
- Il est très important pour les coïncidences d'avoir une zone de pretrigger ajustable (voir 4.2.2.5).

Inconvénients

- Fenêtre d'acquisition limitée à environ 1 ms (pour un taux d'acquisition de 1 Gs/s).

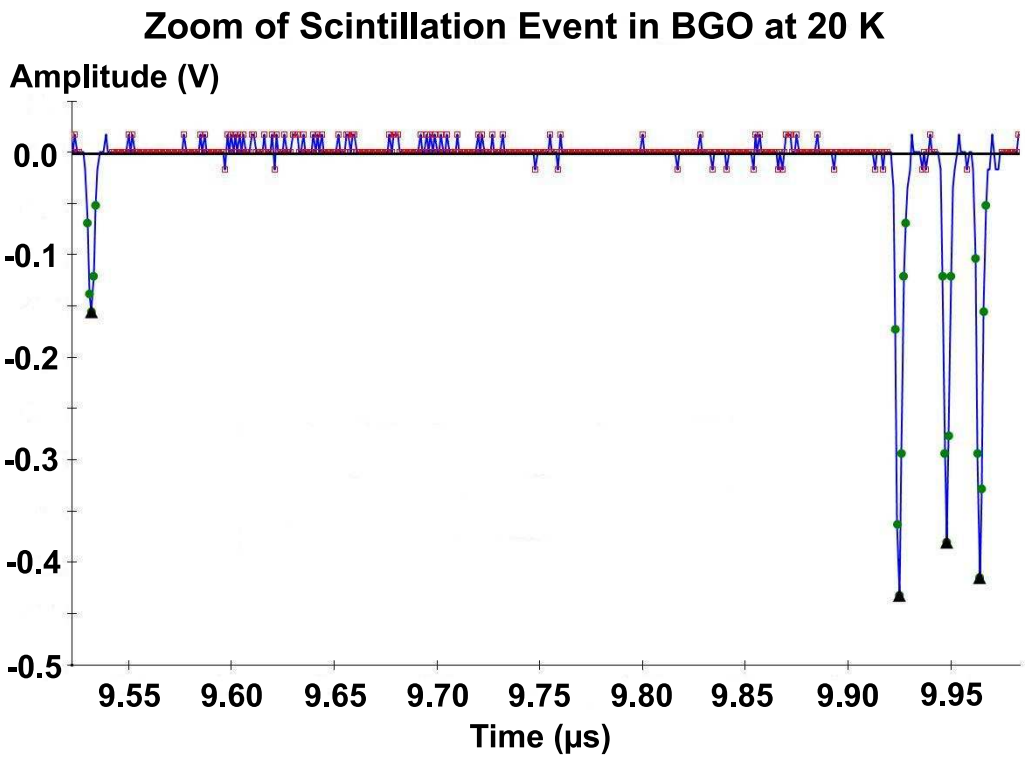

Figure 4.9 – *Exemple d'un évènement numérisé par le PXI-5152 à un taux d'acquisition de 1 GS/s. Les photons ont une largeur à mi-hauteur d'environ 5 ns ce qui permet de bien les résoudre et de les identifier. Noir-vert : photons. Rouge : ligne de base*

- Quantité de données à stocker et à traiter importante (environ 4 Mo par évènement de scintillation, numérisés à 1 GS/s et sur une fenêtre d'acquisition de 1 ms).
- Seulement 2 voies d'acquisition disponibles.
- Il peut apparaître des rebonds électroniques qui imitent des photons de basses amplitudes.

TDC multistop : Le convertisseur temps-numérique multistop Acquiris TC890 (Agilent U1051A) permet de mesurer la position temporelle de tous les "stops", c'est-à-dire les photons tous dont l'amplitude dépasse un seuil prédéfini, après qu'un "start" ait eu lieu, déclenché par l'acquisition. Pour chaque start, les stops peuvent être enregistrés sur une fenêtre maximale de 10.48 ms. La résolution en temps du module pour chaque stop est de 50 ps, mais il y a un temps mort de 15 ns entre chaque stop. Le module possède six voies d'acquisition, plus une voie pour le déclenchement et quatre autres

voies pour des entrées auxiliaires ou véto. Le TDC est piloté par un logiciel du même fabricant qui permet la sélection des seuils de déclenchement de chaque voie indépendamment ainsi que du nombre de starts à enregistrer. En revanche, il ne permet pas d'instaurer de zone de pretrigger. Tout comme le numériseur PXI, il possède ses avantages et inconvénients pour nos mesures :

Avantages
- Fenêtre d'acquisition de 10.48 ms.
- Quantité de données à stocker et à traiter faible (seul le temps d'arrivée des photons est enregistré).
- Jusqu'à six voies enregistrables.
- Précision sur les temps de 50 ps.

Inconvénients
- Temps mort de 15 ns entre chaque stop.
- Pas d'information sur les amplitudes des photons, Donc pas d'information sur les empilements de photons.
- Pas d'information sur la ligne de base.
- Pas de prétrigger logiciel. il faut donc retarder le signal de façon matérielle.

Au final, les deux appareils sont assez complémentaires. Grâce à sa bonne capacité à résoudre les photons en temps, le PXI sera plus efficace pour la mesures des faibles constantes de temps. Il ne permet pas en revanche les mesures sur des fenêtres de temps de plus de quelques millisecondes à son taux d'acquisition maximal. Le TDC quant à lui, permet d'effectuer facilement des mesures sur des fenêtres de 10 ms, le rendant efficace pour la mesure des constantes de temps longues, mais se voit limité pour les constantes courtes en raison de son temps mort de 15 ns.

4.2.2.4 Modes de coïncidence(s)

L'excitation des cristaux par des sources γ permet l'utilisation de cette chaîne d'acquisition dans deux modes de fonctionnement différents : d'une part un mode avec une unique coïncidence, effectuée entre les deux PMTs mesurant le cristal et fonctionnant avec toutes les sources γ et d'autre part, un mode en multicoïncidences, avec l'emploi d'un second cristal, ne fonctionnant qu'avec des sources de β^+.

Mode simple coïncidence C'est le mode de fonctionnement le plus simple et qui correspond à la chaîne d'acquisition décrite précédemment (Figure 4.7).

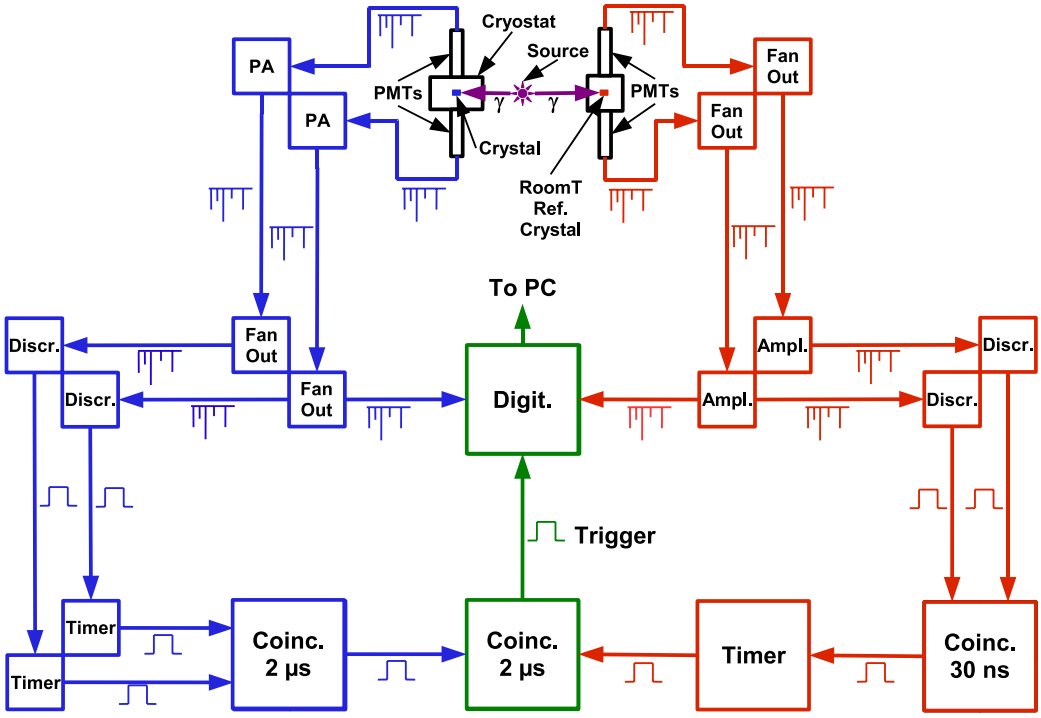

Figure 4.10 – *Schéma de la chaîne d'acquisition électronique avec des coïncidences multiples. Une seconde chaîne d'acquisition permet de mesurer la lumière dans un cristal en coïncidence avec celui dans le cryostat, grâce aux 2 γ de 511 keV provenant d'une source β^+. Une seule des voies de la chaîne d'acquisition du cryostat est enregistrée tandis que la seconde sert à l'acquisition d'une des voies du second montage à température ambiante et faisant office de référence des temps. Les durées des fenêtres de coïncidences indiquée sont celles utilisées pour l'étude du BGO (voir 5.1).*

Dans ce mode, les signaux des deux PMTs mesurant la scintillation du cristal dans le cryostat sont enregistrés. Ce mode a l'avantage d'être assez simple à mettre en œuvre et fonctionne avec toutes les sources γ. La contrepartie est qu'il n'y a pas de référence temporelle lors de la reconstruction des évènements moyens (voir § 4.3.3.2).

Mode multicoïncidences Il est également possible de faire l'acquisition des impulsions de scintillation en utilisant une chaîne d'acquisition comprenant plusieurs coïncidences. Pour ce faire, il est nécessaire d'utiliser une source émettant des rayonnements β^+ (nous utilisons une source de ^{22}Na). Les positrons vont s'annihiler avec les électrons et produire ainsi 2 γ de 511 keV émis avec un angle de 180°. Cela offre la possibilité d'utiliser un second

cristal placé dans un montage à température ambiante et dont la collecte de lumière est géométriquement optimisée, avec des PMTs au contact du cristal. Ce second montage, dont la chaîne d'acquisition est analogue à la première, permet de détecter un des γ de 511 keV tandis que le second γ interagit dans le cristal situé dans le cryostat et dont la lumière est collectée par la chaîne d'acquisition initiale. Les PMTs utilisés pour ce second montage sont des Hamamatsu R3550P dont les caractéristiques sont assez proches de celles des R6095P. Une coïncidence est également effectuée entre les deux chaînes d'acquisition. Trois coïncidences sont ainsi réalisées : une pour chacun des deux cristaux, entre les deux PMTs réalisant leur mesure, ce qui permet ainsi d'éviter de déclencher sur des coups sombres, la troisième coïncidence est réalisée entre les deux premières et déclenche l'acquisition. Dans ce mode, en utilisant le numériseur PXI, une seule voie de lumière du cristal dans le cryostat, sur les deux disponibles, est enregistrée, la seconde voie étant remplacée par une des voies du second montage à température ambiante (voir Figure 4.10).
Ce mode de fonctionnement présente deux principaux avantages par rapport au mode simple coïncidence.

- Il permet le rejet des évènements de scintillation induits par le fond cosmique et la radioactivité naturelle. Le déclenchement ne pouvant avoir lieu que dans le cas ou les 2 γ de 511 keV ont interagit dans chacun des cristaux, il est très peu probable que deux évènements de scintillation (un dans chaque cristal) induits par le fond aient lieu pendant la même fenêtre de coïncidence.
- Il permet d'avoir une référence des temps et donc de pouvoir résoudre temporellement les données. Pour une même énergie, le premier photon des évènements de scintillation sera mesuré en moyenne plus tôt dans les PMTs du second montage à température ambiante que dans les PMTs du cryostat (voir 4.3.3.2). Ainsi le second montage servira de référence des temps.

Il est cependant à noter que ce mode de fonctionnement limite les mesures à la seule énergie de 511 keV ce qui peut être problématique pour des cristaux dont la résolution en énergie ne permet pas de résoudre le pic du 511 keV.

4.2.2.5 Conditions de déclenchement

Si l'on admet que les évènements de scintillation suivent des décroissances exponentielles de la forme :

$$\sum_{i=0}^{n} \frac{N_i}{\tau_i} e^{-t/\tau_i} \tag{4.2.6}$$

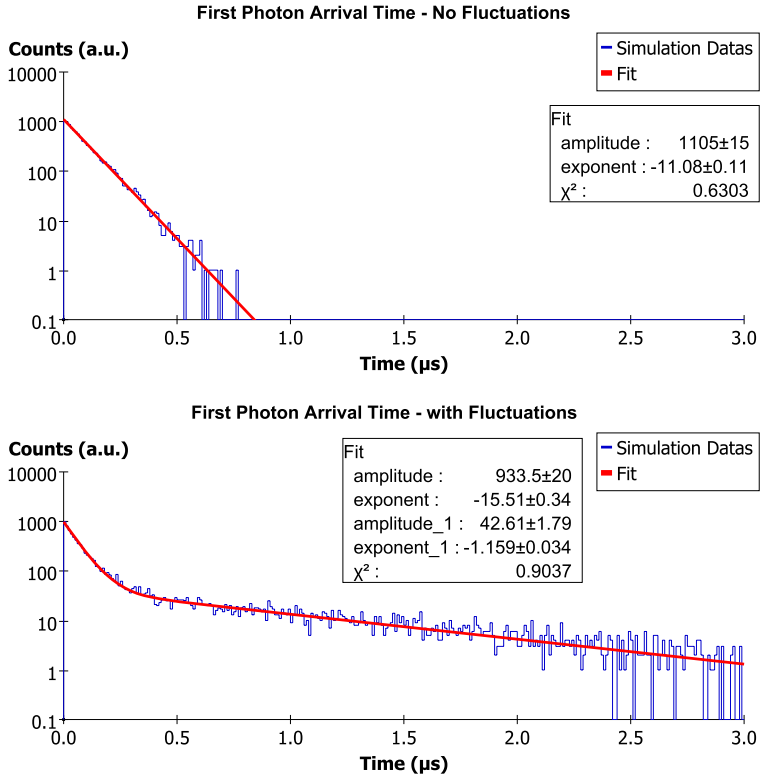

Figure 4.11 – *Exemple de simulation Monte-Carlo de la distribution du temps d'arrivée du premier photon pour une décroissance de scintillation à deux composantes : l'une de 0.1 µs ne comprenant qu'un seul photon et l'autre de 100 µs et comprenant 100 photons. Haut : distribution sans fluctuation sur le nombre de photons. Bas : prise en compte des fluctuations de Poisson sur le nombre de photons de chaque composante.*

Le nombre de photons mesurés dans chaque PMT étant fini, le premier photon arrivera dans chaque PMT en suivant également une décroissance exponentielle dont la valeur moyenne est, dans le cas d'une exponentielle simple :

$$\langle t_{first} \rangle = \frac{\tau}{N} \tag{4.2.7}$$

Pour une décroissance comprenant n constantes de temps, le premier photon suivra également une distribution exponentielle dont la valeur moyenne devient :

$$\langle t_{first} \rangle = \frac{1}{\sum_{i=0}^{n} N_i/\tau_i} \tag{4.2.8}$$

Ainsi pour des temps de décroissance grands et/ou un faible nombre de photons, le temps moyen d'arrivée du premier photon peut être grand (voir

Figure 4.11-haut). Ceci a une conséquence importante sur le déclenchement de l'acquisition.
Un autre paramètre est également à prendre en compte. Le nombre de photons mesurés est fini et potentiellement faible. De ce fait la distribution des photons est soumise à des fluctuations de Poisson. Dans le cas où le nombre de photon provenant d'une certaine constante est faible, il se peut que certain évènements ne possèdent aucun photon provenant de cette composante. Des simulations Monte-Carlo présentées sur la Figure 4.11 montrent un exemple pour un déclin à deux composantes, l'une de 0.1 μs ne comprenant qu'un seul photon et l'autre de 100 μs possédant 100 photons. S'il n'y a pas de fluctuations, un ajustement par une exponentielle de la distribution du temps d'arrivée du premier photon correspond bien à la valeur théorique attendue de $1/\tau = 1/0.1 + 100/100 = 11\ \mu\text{s}^{-1}$. Dans le cas ou l'on tient compte des fluctuations statistiques, on trouve une distribution du temps d'arrivée du premier photon avec deux composantes : l'une rapide correspondant aux évènements où des photons proviennent des deux constantes du déclin, et l'autre plus lente dans laquelle aucun photon ne provient de la constante de déclin rapide.

Simple coïncidence Dans ce mode, le déclenchement a lieu lorsque la coïncidence entre les deux PMTs mesurant le cristal situé dans le cryostat a lieu. Le premier photon de chaque voie arrivant sur le PMT lui correspond de manière indépendante et suivant la distribution décrite par l'équation 4.2.8. Le module de coïncidence ne prenant l'état logique 1, déclenchant ainsi l'acquisition, que lorsque la coïncidence est effective, c'est ainsi le premier photon le plus tardif (sur le PMT arrivant en second) qui en sera la cause. Dans l'approximation où les deux PMTs ont exactement la même efficacité (géométrique et électronique) le déclenchement est effectué aléatoirement par l'un ou l'autre avec la même probabilité.

Multicoïncidences Dans ce mode, le déclenchement a lieu après de multiples coïncidences. Il faut en premier lieu que chaque paire de PMTs mesurant un des cristaux ait validé une coïncidence, puis qu'une troisième coïncidence soit effectuée entre les deux premières, servant de déclenchement à l'acquisition (voir Figure 4.10). Le nombre de photons détectés ainsi que les constantes de temps, qui varient avec la température, sont différents entre le montage du cryostat et le second montage à température ambiante. Aussi, le temps d'arrivée des premiers photons sur les PMTs entre ces deux montages sera également différent. L'efficacité géométrique et la température ambiante induisant respectivement une meilleure collecte des photons et des constantes

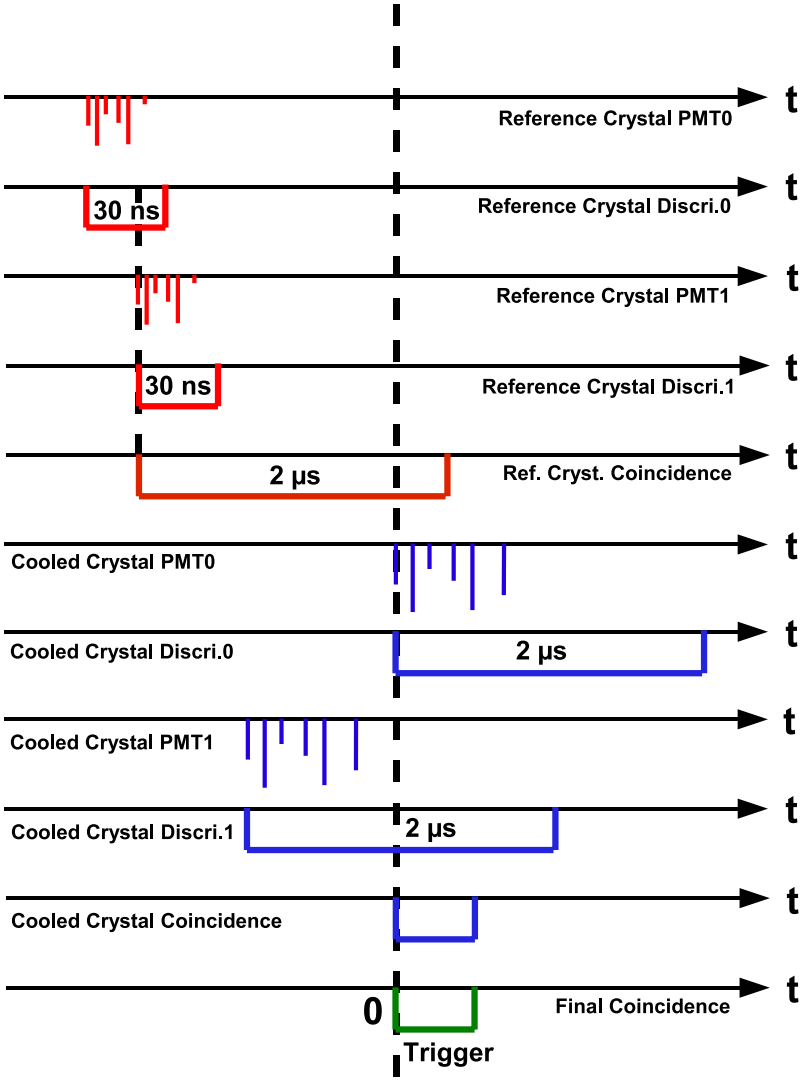

Figure 4.12 – *Chronogrammes du déclenchement de l'acquisition en mode multi-coïncidences. Une première coïncidence, avec une fenêtre de 30 ns, est effectuée entre les 2 PMTs mesurant le cristal de référence dont les premiers photons de scintillation arrivent statistiquement avant ceux du cristal dans le cryostat. Ensuite, une seconde coïncidence est requise entre les 2 PMTs mesurant le cristal dans le cryostat ,avec une fenêtre de 2 µs. Enfin, une troisième coïncidence est effectuée entre les deux premières avec une fenêtre de 2 µs, entraînant le déclenchement de l'acquisition. Les coïncidences requises entre les PMTs mesurant un même cristal permettent d'éviter de déclencher sur des coups sombres des PMTs. La durée des fenêtres de coïncidences indiquées sont celles utilisées pour l'étude du BGO (voir 5.1).*

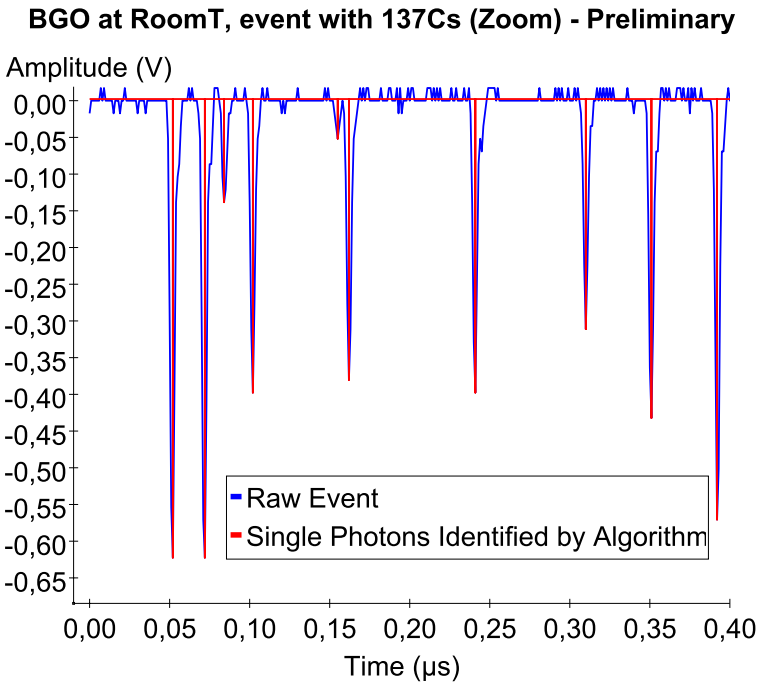

Figure 4.13 – *Exemple d'un évènement de scintillation du BGO ($Bi_4Ge_3O_{12}$) à température ambiante et avec une source de ^{137}Cs. L'évènement brut (bleu) montre les données numérisées par le PXI. Un algorithme est appliqué afin d'identifier la position en temps et l'amplitude de chaque photon (rouge).*

de temps plus rapides dans le second montage à température ambiante, les premiers photons arriveront donc en valeur moyenne plus tôt sur ces PMTs que sur ceux du cryostat. La Figure 4.12 montre les chronogrammes du déclenchement de l'acquisition en mode multicoïncidences.

Quel que soit le mode de coïncidences choisi, l'acquisition est en réalité toujours déclenchée au moment où le premier photon le plus tardif arrive (i.e. par le PMT voyant son premier photon en dernier). Afin de ne pas rater l'enregistrement de photons survenus trop longtemps avant le déclenchement, il est ainsi nécessaire d'instaurer un pretrigger ou un retard sur l'arrivée des photons par rapport au moment du déclenchement. Il doit avoir une durée au moins équivalente à la durée de la fenêtre de coïncidence. Ceci suppose néanmoins que la coïncidence est effectuée entre les premiers photons, ce qui est le cas le plus probable pour des décroissances exponentielles.

4.2.2.6 Fenêtre de coïncidence

Le choix de la durée de la fenêtre de coïncidence entre les deux PMTs montés sur le cryostat est capital afin de ne pas apposer de biais sur la mesure du rendement lumineux. Le nombre de photons collectés par chaque PMT étant fini et la scintillation suivant, dans le cas le plus simple, une décroissance avec une unique exponentielle de paramètre τ, la probabilité de coïncidence entre les deux PMTs mesurant le même cristal est, pour une fenêtre de coïncidence T_{win} :

$$P_{coinc} = 1 - e^{-NMT_{win}/\tau} \tag{4.2.9}$$

où N et M sont le nombre de photons arrivant respectivement dans chacun des PMTs. Pour un nombre de photons élevé et/ou une constante de temps de scintillation courte, la probabilité tend vers l'unité. En raison du nombre limité de photons mesurés dans notre cas, ainsi que des constantes de temps potentiellement longues à basse température, il est nécessaire d'ajuster la durée de la fenêtre de coïncidence en fonction des paramètres de scintillation du cristal étudié. Si cette fenêtre était trop courte, l'acquisition aurait tendance à déclencher sur des évènements ayant une probabilité de coïncidence plus élevée, c'est-à-dire ayant plus de photons, induisant ainsi un seuil sur les évènements à faible nombre de photons.
Dans le cas plus général d'un cristal ayant n constantes de temps, la probabilité de coïncidence devient :

$$P_{coinc} = 1 - \left(\sum_{i=0}^{n} \alpha_i^2 e^{-T_{win}/\tau_i} + 2 \sum_{i=0}^{n} \sum_{j \neq i}^{n} \alpha_i \alpha_j \frac{\tau_j}{\tau_i + \tau_j} e^{-T_{win}/\tau_j} \right)^{NM} \tag{4.2.10}$$

où les α_i sont les intensités relatives de chaque constante de temps. À contrario, une fenêtre de coïncidence trop longue augmente la probabilité de déclenchement sur des coups sombres entraînant un plus grand nombre d'évènements à rejeter.

Afin de pouvoir réaliser une étude complète des cristaux souhaités, il est nécessaire d'enregistrer plusieurs milliers d'évènements de scintillation pour chaque température. Cela permet une analyse des données par traitement statistique afin d'obtenir les informations souhaitées.

4.3 Analyse des données

Le processus d'analyse des données est réalisé en trois étapes. Tout d'abord, une réduction des données brutes est nécessaire. Dans un second temps, il

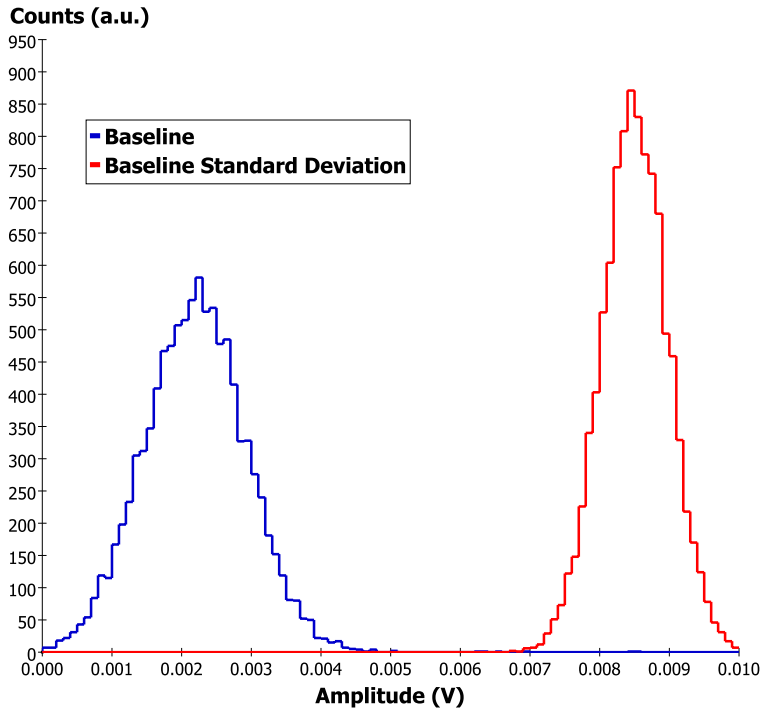

Figure 4.14 – *Exemple d'histogramme de la ligne de base (bleu) et de sa déviation standard (rouge), pour le BGO ($Bi_4Ge_3O_{12}$) à 3 K avec une source de ^{22}Na.*

y a application de coupures sur les données réduites et reconstruction des histogrammes souhaités pour chaque température. Ces histogrammes sont : le spectre d'énergie de la source dans le cristal, donnant une mesure du rendement lumineux et l'histogramme de l'évènement moyen, donnant les différentes constantes de temps de scintillation. Enfin, la troisième étape consiste en la synthèse de ces données à chaque température pour en déduire leur évolution en fonction de cette dernière.
L'analyse est basée sur la méthode d'analyse MPCC [65] adaptée à nos données.

4.3.1 Réduction des données brutes

Les données provenant du TDC fournissent déjà les positions temporelles de chaque photon pour chaque évènement de scintillation (les amplitudes n'étant pas mesurées, elle sont fixées arbitrairement à -1 V), tandis que les données numérisées par le PXI nécessitent un traitement préalable. Pour chaque évènement de scintillation et à chaque température, le PXI numé-

rise le temps et l'amplitude de tous les points pour un taux d'acquisition fixé et sur une fenêtre de temps préalablement définie. Il est donc nécessaire en premier lieu d'identifier, pour chaque évènement, la position temporelle et l'amplitude de chaque photon. Ceci est effectué par un code Java sur la grille de calcul de l'IPNL (voir Figure 4.13). Cet algorithme permet aussi de rejeter les photons considérés comme des rebonds électroniques car arrivant juste après un photon et d'amplitudes trop faibles par rapport à ce dernier. Il va aussi considérer les points ne faisant pas parties des pics de photons comme étant la ligne de base. Enfin l'algorithme permet de compenser des décalages temporels dus d'une part au numériseur (voir 4.2.2.3), et d'autre part à la différence des temps de traitements entre les signaux des deux voies par la chaîne d'acquisition (environ 10 ns).
Une fois les positions temporelles et les amplitudes de tous les photons de chaque évènement déterminées, un second algorithme va créer un tuple dans lequel chaque évènement de scintillation enregistré ajoutera une ligne. Bien que le TDC puisse accueillir plus de deux voies, l'algorithme n'est actuellement optimisé que pour deux uniquement. Les différentes colonnes du tuple sont :

- Le numéro de l'évènement.
- Le temps de départ de l'évènement par rapport au début de l'acquisition. Colonne uniquement valable pour les acquisitions avec le PXI.
- La valeur moyenne de la ligne de base (une colonne pour chaque voie), comme montré sur la Figure 4.14. Colonne uniquement valable pour les acquisitions avec le PXI.
- La valeur de la déviation standard de la ligne de base (une colonne pour chaque voie), voir Figure 4.14. Colonne uniquement valable pour les acquisitions avec le PXI.
- La valeur de l'intégrale (aire des pics de photons plus ligne de base) (une colonne pour chaque voie). Colonne uniquement valable pour les acquisitions avec le PXI.
- La valeur de l'intégrale négative, c'est à dire uniquement les valeurs dont les amplitudes sont négatives (une colonne pour chaque voie). Colonne uniquement valable pour les acquisitions avec le PXI.
- La valeur de l'intégrale moins la valeur de la ligne de base (une colonne pour chaque voie). Colonne uniquement valable pour les acquisitions avec le PXI.
- La valeur de l'intégrale négative moins la valeur de la ligne de base (une colonne pour chaque voie). Colonne uniquement valable pour les acquisitions avec le PXI.
- Le nombre total de photons (une colonne pour chaque voie).

- Le nombre total de photons sur une durée prédéfinie choisie (une colonne pour chaque voie).
- La somme du nombre de photons sur les 2 voies.
- La somme du nombre de photons sur les 2 voies sur une durée prédéfinie.
- La valeur de la somme des amplitudes de tous les photons (une colonne pour chaque voie). Colonne uniquement valable pour les acquisitions avec le PXI.
- La valeur de la somme des amplitudes de tous les photons sur une durée prédéfinie (une colonne pour chaque voie). Colonne uniquement valable pour les acquisitions avec le PXI.
- Le temps d'arrivée du premier photon (une colonne pour chaque voie).
- La différence des temps d'arrivée du premier photon sur chaque voie.
- Le temps moyen d'arrivée des photons de l'évènement par rapport au temps d'arrivée du premier photon (une colonne pour chaque voie).
- Le rapport des temps moyen d'arrivée des photons après le premier sur chaque voie.
- Le temps de la plus petite durée entre 2 photons (une colonne pour chaque voie).
- Le temps entre l'arrivée du premier et du second photon (une colonne pour chaque voie).
- Le rapport de la somme des amplitudes des 3 premiers photons sur celle des 3 derniers (une colonne pour chaque voie). Colonne uniquement valable pour les acquisitions avec le PXI.
- La valeur du test statistique qui consiste à comparer la durée moyenne de l'évènement par rapport à la durée moyenne de tous les évènements (une colonne pour chaque voie). Elle est obtenue après deux itérations de l'analyse.
- La valeur du test statistique qui consiste à comparer la durée moyenne de l'évènement par rapport à une durée de référence (une colonne pour chaque voie).
- Un tableau contenant les positions en temps et les amplitudes de tous les photons (une colonne pour chaque voie).

Une fois le tuple complété il est possible d'appliquer les coupures nécessaires au rejet des évènements fortuits, puis de construire les histogrammes souhaités.

4.3.2 Coupures

Afin de construire des histogrammes valables, il est nécessaire de supprimer tous les évènements fortuits dont la cause peut être variée. Les bons évènements de scintillation suivent une loi de décroissance exponentielle (ou

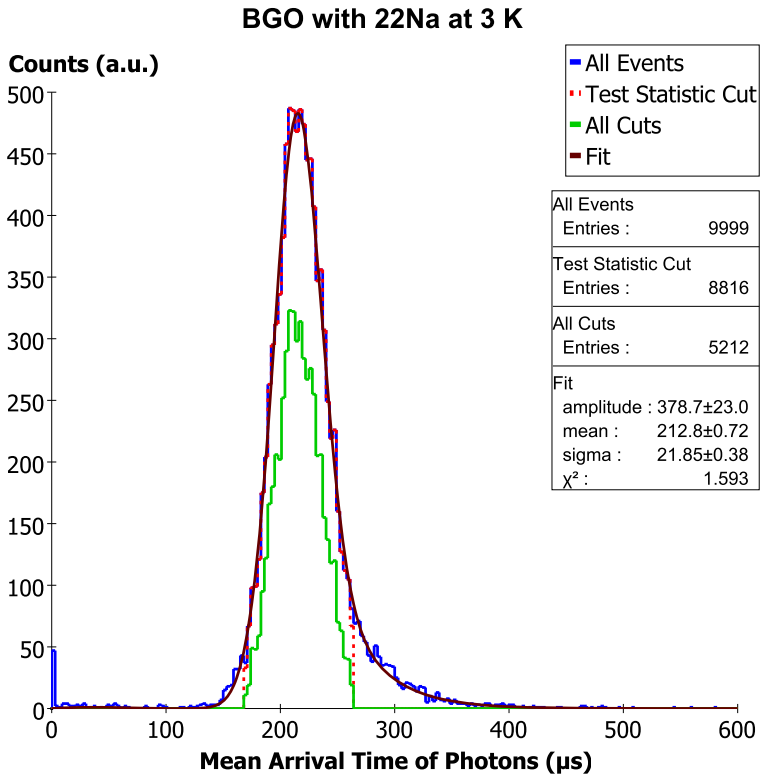

Figure 4.15 – *Distribution du temps moyen d'arrivée des photons après le premier photon dans du BGO ($Bi_4Ge_3O_{12}$) à 3 K. L'ajustement permet d'obtenir le temps moyen le plus probable, qui servira de temps de référence pour le test statistique. Bleu : Histogramme des tous les évènements. Rouge pointillé : Histogramme des évènements après la coupure sur le test statistique. Vert : Histogramme des évènements après toutes les coupures.*

plusieurs exponentielles). Ils devraient donc tous débuter (temps d'arrivée du premier photon) dans une plage de temps correspondant à la durée de la fenêtre de coïncidence, et un seul évènement de scintillation doit être présent sur la durée de la fenêtre d'acquisition (pas d'empilement d'évènements). Des coupures sur certaines colonnes du tuple permettent de rejeter les évènements ne correspondant pas à ces critères.

4.3.2.1 Temps moyen d'arrivée des photons

La première coupure à appliquer, qui est sans doute la plus importante, concerne le paramètre temporel de la scintillation. Dans l'hypothèse où la scintillation du cristal suit des décroissances exponentielles et si l'on se place

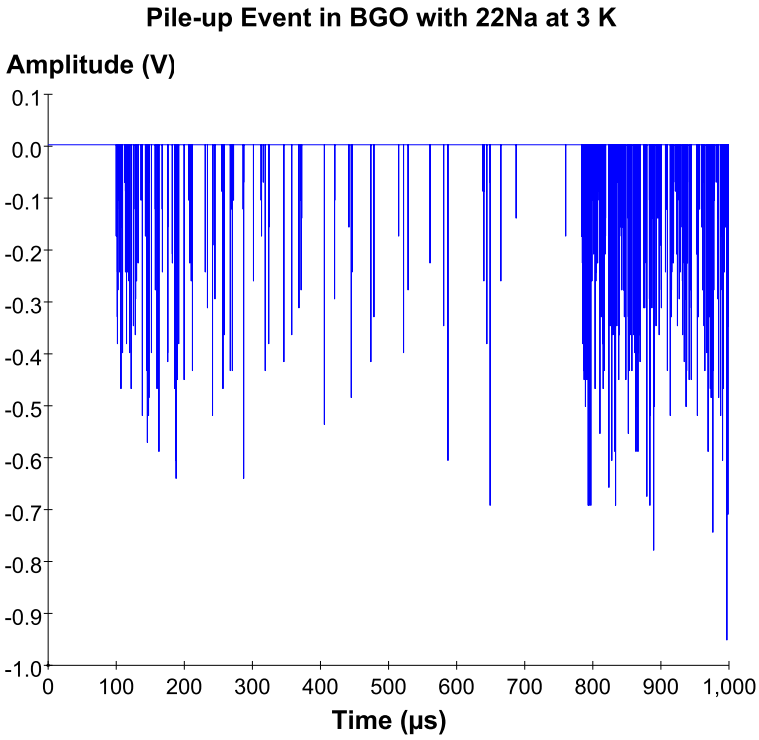

Figure 4.16 – *Exemple d'évènement numérisé pour lequel deux évènements de scintillation sont enregistrés (empilement d'évènements) Une coupure sur le temps moyen d'arrivée des photons permet de supprimer ces évènements.*

dans le cas le plus simple où il n'y a qu'une seule constante τ, le temps moyen d'arrivée des N photons est :

$$\langle t \rangle = \frac{1}{N} \int_0^\infty t \frac{N}{\tau} e^{-t/\tau} dt = \tau \tag{4.3.1}$$

Dans un cas plus général ou la scintillation se compose de n composantes le temps moyen d'arrivée des photons devient :

$$\langle t \rangle = \frac{\displaystyle\int_0^\infty t \sum_{i=0}^{n} \frac{N_i}{\tau_i} e^{-t/\tau_i} dt}{\displaystyle\sum_{i=0}^{n} N_i} = \frac{\displaystyle\sum_{i=0}^{n} \int_0^\infty t \frac{N_i}{\tau_i} e^{-t/\tau_i} dt}{\displaystyle\sum_{i=0}^{n} N_i} = \frac{\displaystyle\sum_{i=0}^{n} N_i \tau_i}{\displaystyle\sum_{i=0}^{n} N_i} \tag{4.3.2}$$

Il faut également tenir compte du fait que les mesures de chaque évènement de scintillation se font sur une fenêtre de temps finie de durée t_{max} donnant

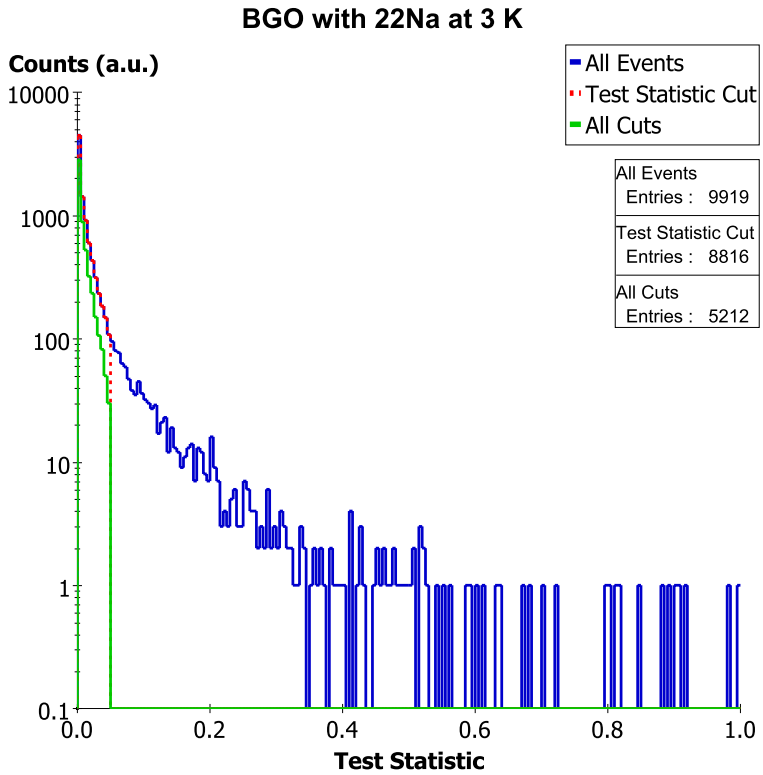

Figure 4.17 – *Distribution du test statistique. La valeur de référence est obtenue à partir de l'ajustement de la Figure 4.15. Bleu : Histogramme des tous les évènements. Rouge pointillé : Histogramme des évènements après la coupure sur le test statistique. Vert : Histogramme des évènements après toutes les coupures.*

ainsi comme temps moyen d'arrivée des photons :

$$\langle t \rangle = \frac{\displaystyle\int_0^{t_{max}} t \sum_{i=0}^{n} \frac{N_i}{\tau_i} e^{-t/\tau_i} dt}{\displaystyle\sum_{i=0}^{n} N_i} = \frac{\displaystyle\sum_{i=0}^{n} N_i \left(\tau_i - (\tau_i + t_{max})\, e^{-t_{max}/\tau_i}\right)}{\displaystyle\sum_{i=0}^{n} N_i} \tag{4.3.3}$$

avec :

$$\lim_{t_{max}\to\infty} (\tau_i + t_{max})\, e^{-t_{max}/\tau_i} = 0 \tag{4.3.4}$$

Les données nous permettent de construire la distribution du temps moyen d'arrivée des photons par rapport au temps d'arrivée du premier photon. Ce dernier arrivant avec un temps moyen suivant l'équation 4.2.8, le temps

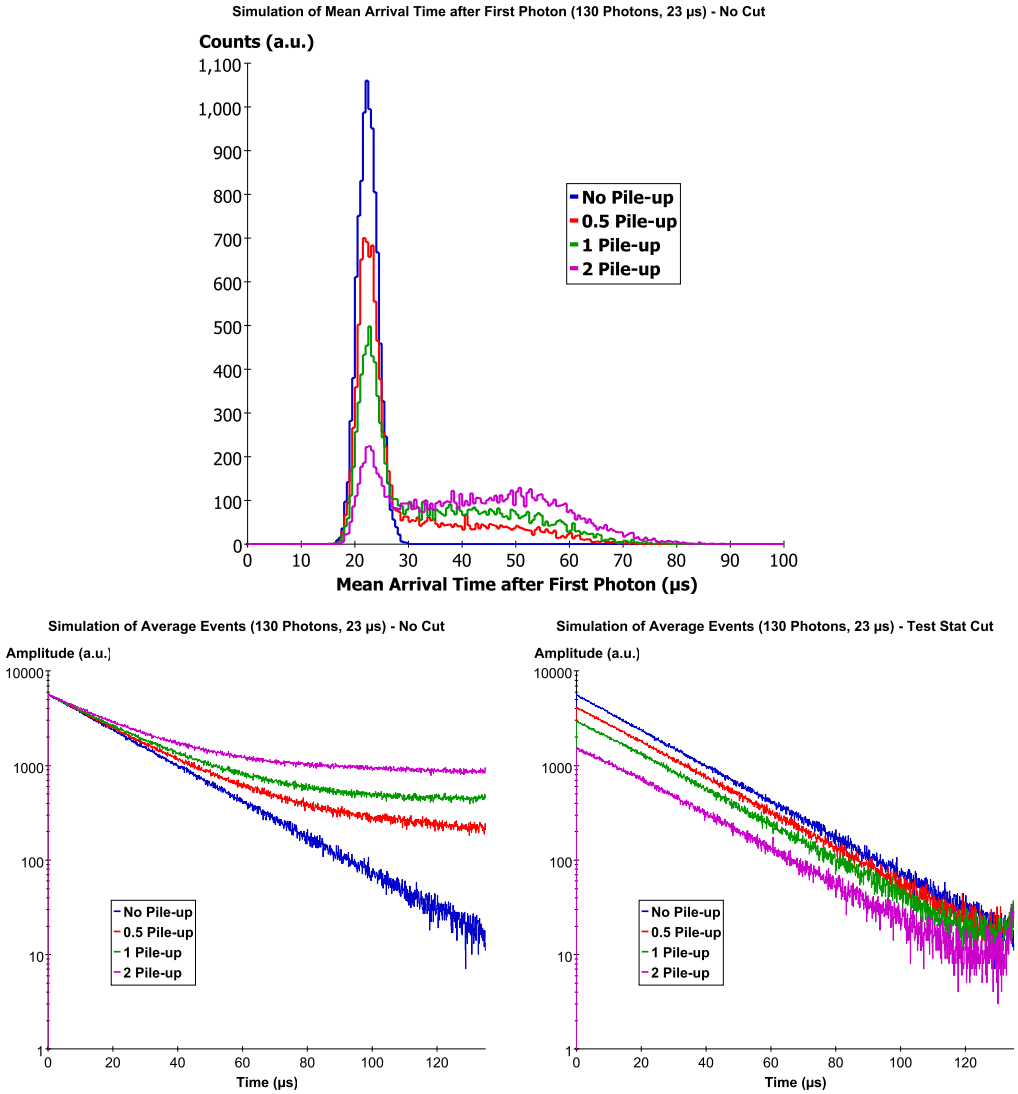

Figure 4.18 – *Simulations Monte-Carlo montrant des évènements de scintillation présentant une unique constante de 23 µs et une moyenne de 130 photons par évènement primaire, correspondant aux mesures du BGO à 30 K (voir Chapitre 5), et présentant de l'empilement d'évènements dont le nombre d'empilements est donné en valeur moyenne et suit des fluctuations de Poisson. Haut : distribution des temps moyens d'arrivée des photons dont la valeur moyenne permet d'appliquer la coupure sur le test statistique. Bas-gauche : avant coupures il y a apparition d'une constante de temps longue artéfact lorsqu'il y a de l'empilement. Bas-droite : la coupure sur le test statistique permet de supprimer les évènements présentant de l'empilements. Toutefois la coupure perd en efficacité plus y a d'empilements.*

moyen des photons dans les histogrammes sera en réalité :

$$\langle t\rangle - \langle t_{first}\rangle = \frac{\sum_{i=0}^{n} N_i \left(\tau_i - (\tau_i + t_{max})\, e^{-t_{max}/\tau_i}\right)}{\sum_{i=0}^{n} N_i} - \frac{1}{\sum_{i=0}^{n} N_i/\tau_i} \tag{4.3.5}$$

La Figure 4.15 montre un exemple de distribution du temps moyen d'arrivée des photons à partir du premier photon. Un ajustement est effectué par une fonction ad hoc de type :

$$A_m e^{-\frac{1}{2}\left(\frac{\langle T\rangle-\mu_m}{\sigma_m}+e^{-\frac{\langle T\rangle-\mu_m}{\sigma_m}}\right)} + A_g e^{-\frac{1}{2}\left(\frac{\langle T\rangle-\mu_g}{\sigma_g}\right)^2} \tag{4.3.6}$$

dont le second terme, gaussien, a comme paramètre μ_g, la valeur la plus probable du temps moyen d'arrivée des photons par rapport au premier. Le premier terme permet, quant à lui, d'ajuster l'asymétrie du pic. Éventuellement un exponentielle peut aussi agrémenter l'équation d'ajustement afin de mieux correspondre au fond, notamment aux temps faibles. Ainsi tous les "bons" évènements doivent avoir un temps moyen d'arrivée des photons proches du pic, au contraire des évènements fortuits. Ceux présentant de l'empilement d'évènements (voir Figure 4.16) auront un temps moyen d'arrivée des photons élevé tandis que ceux ne contenant qu'un unique coup sombre n'auront pas de temps moyen (deux photons au minimum étant nécessaires). Les évènements fortuits peuvent être éradiqués par une coupure sur ce temps moyen. La technique MPCC originelle calcule la valeur la plus probable de manière arithmétique sur l'ensemble des évènements τ_m. Ensuite le temps moyen τ de chaque évènement est comparé au temps de référence par un test statistique défini dans [65] comme :

$$W = -2\left[ln\left(\frac{\tau}{\tau_m}\right) + 1 - \frac{\tau}{\tau_m}\right] \xrightarrow[\tau\approx\tau_m]{} \left(\frac{\tau_m - \tau}{\tau_m}\right)^2 \tag{4.3.7}$$

Une coupure sur le test statistique W, dont la valeur doit être proche de zéro pour les bons évènements, permet ainsi de rejeter la plupart des mauvais évènements. Le défaut de la méthode originelle est que la valeur moyenne étant calculée à partir de l'ensemble des évènements, elle peut être biaisée dans le cas où beaucoup de ces évènements de scintillation présentent de l'empilement d'évènements. Aussi nous appliquons ce test, mais avec comme temps de référence la valeur moyenne obtenue par l'ajustement de la distribution du temps moyen d'arrivée des photons après le premier (voir Figures 4.15 et 4.17).

Effet de l'empilement d'évènements : Les évènements numérisés présentant de l'empilement d'évènements sont néfastes pour la reconstruction des évènements moyens (voir § 4.3.3.2). La présence d'un second évènement commençant à un temps aléatoire par rapport à l'évènement primaire entraîne l'apparition d'une constante longue artéfact dans les évènement moyens (voir Figure 4.18 (bas-gauche)). Cependant les simulations Monte-Carlo montrent que la détermination du temps moyen d'arrivée des photons reste possible (Figure 4.18 (haut)) et qu'ainsi la coupure sur le test statistique W permet de supprimer les évènements présentant de l'empilement d'évènements et de reconstruire le véritable évènement moyen. Toutefois, la Figure 4.18 (bas-droite) montre que l'efficacité du test statistique a tendance à diminuer lorsque le nombre moyen d'empilement augmente (le nombre d'empilement suit des fluctuation de Poisson). En effet les évènements moyens montrent des constantes de temps de plus en plus grandes malgré la coupure.

4.3.2.2 Premier photon

Les autres coupures à effectuer sont basées sur le temps d'arrivée du premier photon sur chaque voie. Ces derniers arrivent avec un certain retard, en raison de leur nombre fini, par rapport au moment d'émission des photons par le cristal. Pour les bons évènements de scintillation et si la fenêtre de coïncidence est bien choisie, ils devraient arriver sur une gamme de temps large comme la fenêtre de coïncidence et avec la durée du pretrigger comme borne supérieure. La Figure 4.19 montre les distributions des temps d'arrivée du premier photon avec une fenêtre de coïncidence de 2 μs. Certains évènements de scintillation montrent un premier photon arrivant pendant le pretrigger (voir Figure 4.20). Ils sont dus au fait que bien qu'ayant été déclenchés convenablement par la coïncidence, des photons provenant d'un évènement de scintillation précédent sont mesurés par le PMT dans la zone de pretrigger. Enfin d'autres évènements de scintillation commencent pendant le pretrigger et sont à rejeter sous peine d'avoir un décalage temporel de ces évènements pour la construction de l'évènement moyen (voir 4.3.3.2). Une coupure identique est appliquée sur la seconde voie.

Enfin une coupure peut être appliquée sur la différence des temps d'arrivée des photons entre les deux voies. Deux cas sont alors possibles selon le mode de coïncidences choisi.

- Dans le mode simple coïncidence, les deux voies enregistrées correspondent aux deux PMTs mesurant le cristal dans le cryostat. Dans le cas où les deux PMTs ont la même efficacité, le premier de tous les

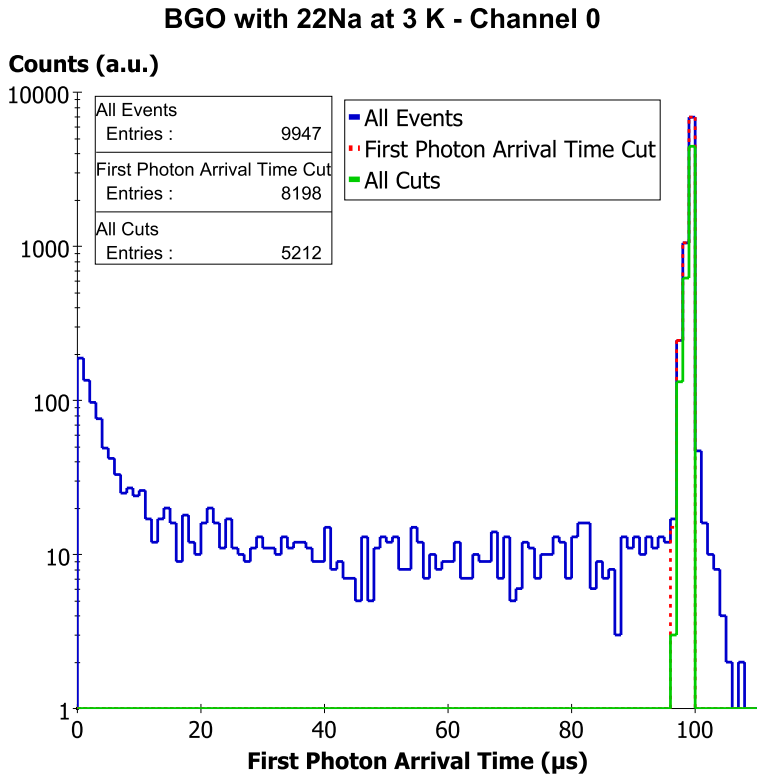

Figure 4.19 – *Distribution du temps d'arrivée du premier photon dans le BGO refroidi à 3 K, avec une source de ^{22}Na. Bleu : tous les évènements. Rouge pointillé : après la coupure sur le temps d'arrivée du premier photon. Vert : après toutes les coupures.*

photons, sera mesuré aléatoirement sur l'un ou l'autre PMT avec la même probabilité. Ainsi la distribution de la différence des temps d'arrivée des premiers photons sur chaque voie est un pic centré sur zéro et d'une largeur totale égale à deux fois la fenêtre de coïncidence (dans l'hypothèse où la coïncidence est effectuée entre les premiers photons de chaque voie).

– Dans le mode multicoïncidences, le premier de tous les photons arrivera avec une plus grande probabilité sur le PMT du cristal de référence plutôt que sur celui du cristal dans le cryostat. En effet, la quantité de photons collectés dans le cristal de référence et les constantes de temps de scintillation plus rapides dues au fait qu'il est à température ambiante entraîneront un retard moyen du premier photon très faible. Ceci est clairement visible sur la Figure 4.21 et permet d'utiliser le cristal de référence comme référence des temps pour la construction

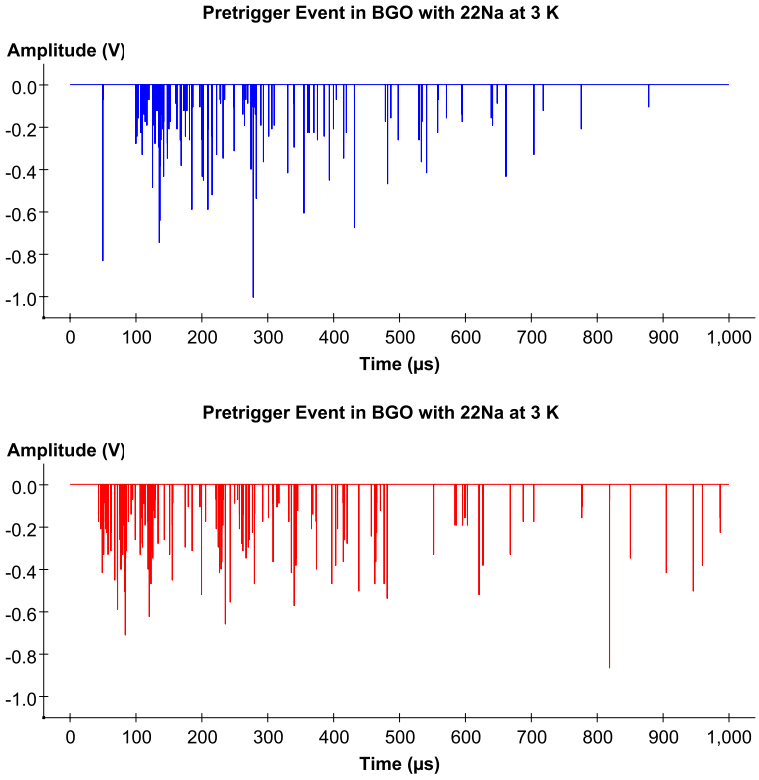

Figure 4.20 – *Exemple d'évènements de scintillation où un photoélectron est dans la zone de pretrigger (d'une durée de 100 µs) tandis que l'évènement de scintillation est à la bonne position (haut) et évènement de scintillation commençant pendant le pretrigger (bas). Une coupure sur le temps d'arrivée du premier photon permet de les éliminer.*

des évènements moyens (voir 4.3.3.2).

4.3.2.3 Nombre de photons

Enfin, une coupure optionnelle sur le nombre de photons par évènement de scintillation peut être effectuée afin de sélectionner uniquement ceux du photopic pour la mesure des constantes de temps de scintillation (voir section 4.3.3.1 et Figure 4.22). Bien qu'en théorie le nombre de photons par évènement soit décorrélé du temps moyen d'arrivée des photons et donc des constantes de temps de scintillation, sélectionner uniquement les évènements du photopic permet de s'assurer que des évènements fortuits n'ont pas échappé aux coupures précédentes.

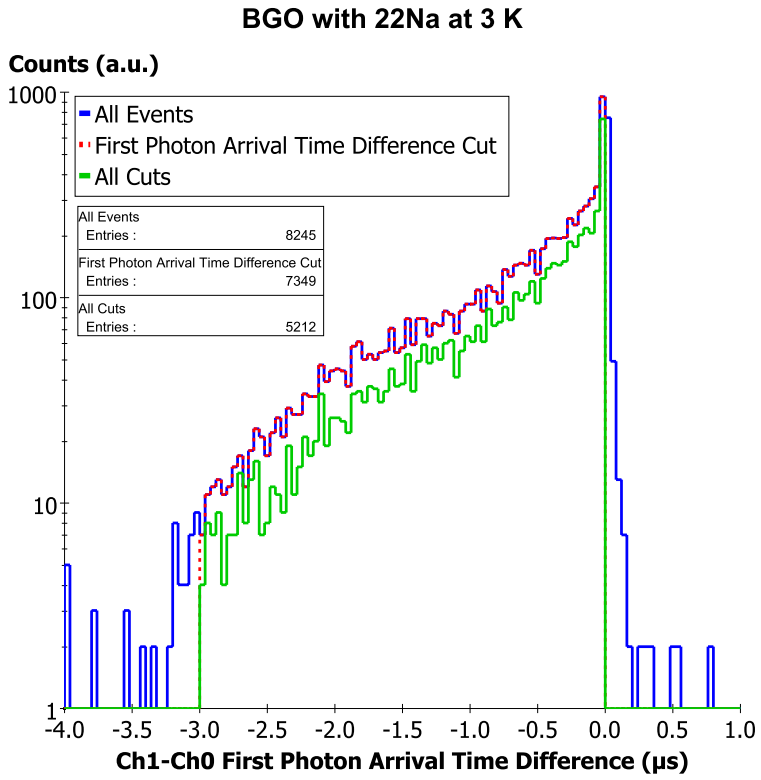

Figure 4.21 – *Distribution de la différence des temps d'arrivée des premiers photons entre le cristal de référence (Ch1) et le cristal dans le cryostat (Ch0). Bleu : tous les évènements. Rouge pointillé : après la coupure sur la différence des temps d'arrivée du premier photon. Vert : après toutes les coupures.*

4.3.3 Reconstruction des histogrammes

Une fois les mauvais évènements éliminés il est possible de construire les histogrammes intéressants. Ce sont l'histogramme du nombre de photons qui donne une valeur du rendement lumineux et l'histogramme de l'évènement moyen qui donne accès aux constantes de temps de scintillation des cristaux.

4.3.3.1 Distribution du nombre de photons

Le nombre de photons émis par le cristal et collectés par les PMTs est corrélé à l'énergie déposée dans le cristal par le γ incident. Aussi pour un γ d'énergie donnée, le rendement lumineux est donné par la position du photopic sur la distribution du nombre de photons. Il est donc possible d'étudier l'évolution relative du rendement lumineux du cristal en fonction de la tempé-

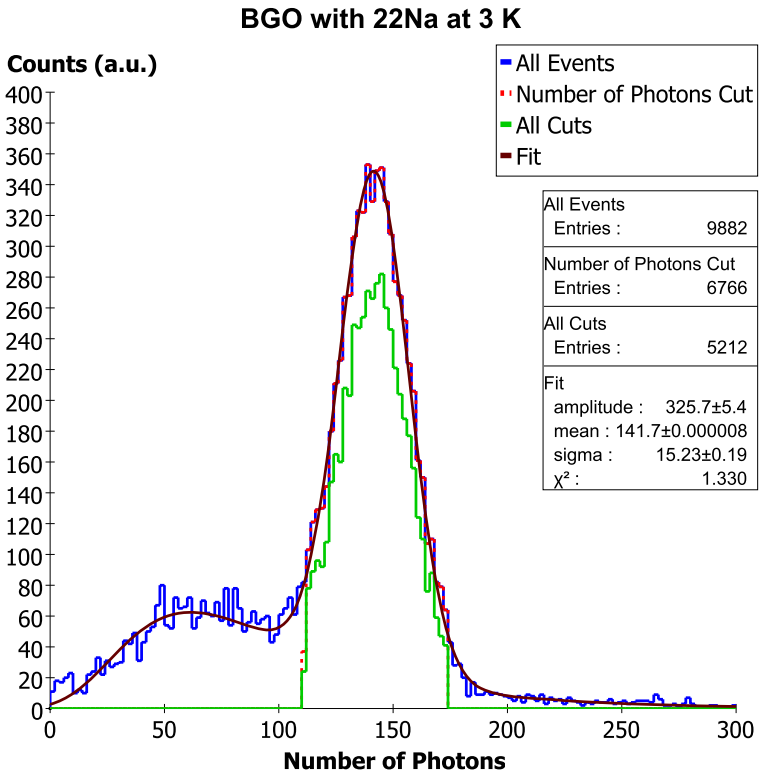

Figure 4.22 – *Spectre en énergie de γ de 511 keV d'une source de ^{22}Na dans un cristal de BGO ($Bi_4Ge_3O_{12}$) à 3 K obtenu en mode de déclenchement par multicoïncidences. La position du photopic est proportionnelle au rendement lumineux du cristal. Bleu : tous les évènements. Rouge pointillé : après la coupure sur le nombre de photons. Vert : après toutes les coupures.*

rature en mesurant le déplacement de la position du photopic. La Figure 4.22 montre un exemple de spectre obtenu dans un cristal de BGO ($Bi_4Ge_3O_{12}$) à 3 K et avec une source de ^{22}Na permettant l'utilisation du mode d'acquisition en multicoïncidences. L'ajustement est effectué avec une fonction ad hoc de type :

$$A_m e^{-\frac{1}{2}\left(\frac{N-\mu_m}{\sigma_m}+e^{-\frac{N-\mu_m}{\sigma_m}}\right)} + A_g e^{-\frac{1}{2}\left(\frac{N-\mu_g}{\sigma_g}\right)^2} \tag{4.3.8}$$

dont le second terme, gaussien, a comme paramètre μ_g, le nombre de photons du photopic. Le premier terme sert à ajuster le fond.
Il est toutefois important de s'assurer qu'un phénomène entraînant une valeur sous-estimée du nombre de photons du photopic n'apparaît pas. Il s'agit de l'empilement de photons (à ne pas confondre avec l'empilement d'évènements décrit au § 4.3.2.1), c'est-à-dire la superposition de deux photoélectrons. Cet

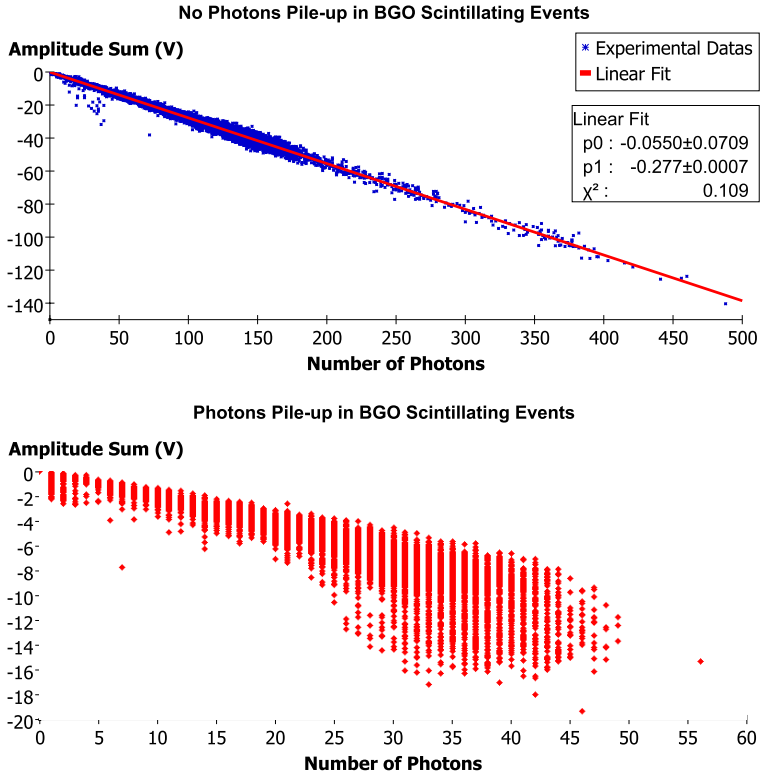

Figure 4.23 – *Exemples d'évènements de scintillation dans du BGO ($Bi_4Ge_3O_{12}$). Haut : Sans empilement de photons. La somme des amplitudes des photons de chaque évènement varie linéairement avec le nombre de photons (données provenant des mesures à 3 K avec une source ^{22}Na en mode de déclenchement en multicoïncidences). Bas : Avec des empilements de photons. moins de photons sont dénombrés lorsque la somme des amplitude augmente (mesures effectuées dans un montage indépendant à température ambiante).*

empilement est comptabilisé comme un unique photon dont l'amplitude est égale à la somme des deux. Le TDC ne fournissant aucune information sur les amplitudes, il ne permet pas d'identifier les empilements de photons. Le numériseur PXI permet, quant à lui, d'étudier la distribution des amplitudes des photoélectrons individuels, qui sont en moyenne deux fois plus élevées pour les empilements de deux photons. La Figure 4.23 montre deux exemples d'acquisitions, l'un présentant de l'empilement de photons et l'autre non. Dans le cas où de l'empilement de photons est avéré, le nombre de photons n'est plus une donnée utilisable pour la mesure du rendement lumineux. Il faut dans ce cas utiliser la distribution de la somme des amplitudes des photons de chaque évènement ou bien la distribution des intégrales des évènements

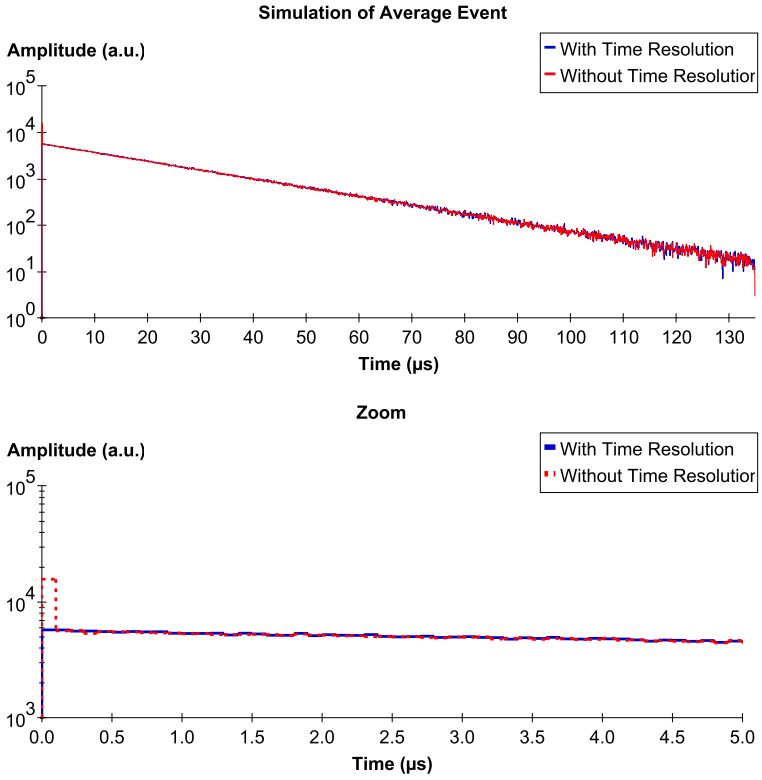

Figure 4.24 – *Simulation Monte Carlo montrant l'effet de la résolution temporelle sur la construction de l'évènement moyen. Le placement du premier photon dans le premier bin entraîne l'apparition d'une constante rapide artéfact mais n'a que peu d'effet sur les temps plus longues.*

de scintillation.
Il est également possible que des photons ne soient pas comptabilisés, donnant ainsi une valeur sous-estimée du rendement lumineux, s'il se trouvent dans la limite de résolution temporelle des systèmes d'acquisition qui sont d'environ 3 ns pour le numériseur PXI et de 15 ns pour le TDC, rendant ce dernier très peu efficace pour les cristaux montrant des constantes de temps très courtes. Toutefois il est possible d'estimer la proportion de photons non collectés par simulation Monte-Carlo.

4.3.3.2 Évènement moyen

Enfin, il est possible de construire un évènement de scintillation moyen. À cette fin, il est créé un histogramme dans lequel sont additionnés l'ensemble des photons des évènements de scintillation, acceptés par les coupures présentées précédemment et positionnés en temps (et éventuellement en tenant

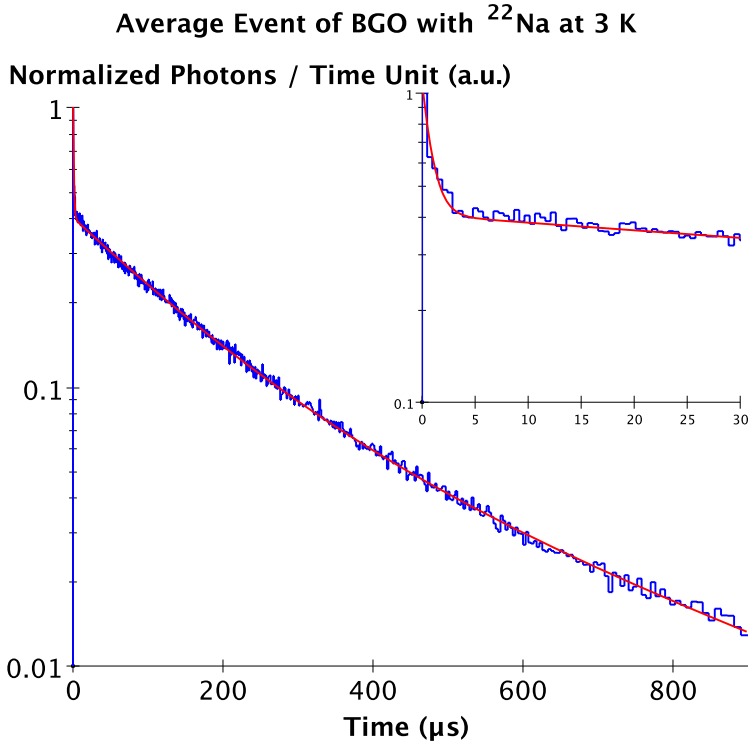

Figure 4.25 – *Évènement moyen de scintillation de BGO ($Bi_4Ge_3O_{12}$) à 3 K, résolu temporellement grâce à une source de ^{22}Na et un mode de déclenchement en multicoïncidences (binning irrégulier). L'ajustement par une somme de trois exponentielles permet d'obtenir les constantes de temps de scintillation de 889±49 ns, 145±3 µs et 434±16 µs. L'encart montre un zoom (mêmes unités).*

compte de leur amplitude).
Un point important concerne le positionnement temporel de chaque évènement. Dans le cas de la méthode MPCC originelle [65] qui utilise une source α, ou bien dans le cas du mode de déclenchement en simple coïncidence, l'acquisition n'est pas résolue temporellement, c'est-à-dire que le premier photon de chaque évènement arrive avec un certain retard par rapport à un temps d'origine inconnu. Dans ce cas, l'évènement moyen est construit en plaçant temporellement chaque évènement avec le premier photon au temps zéro. Bien que cela ait peu d'influence sur les constantes de temps longues, le fait que le premier photon de chaque évènement soit placé dans le premier bin, entraîne l'apparition d'une constante de temps artéfact très rapide (voir Figure 4.24). C'est dans ce cas que le mode d'acquisition en multicoïncidences prend tout son intérêt. Le cristal de référence à température ambiante sert de

référence des temps avec une incertitude d'environ 10 ns. Ainsi l'évènement moyen est construit avec chaque évènement placé temporellement grâce à la différence des temps d'arrivée du premier photon entre le cristal étudié et le cristal de référence (voir Figure 4.25).
Cet évènement de scintillation moyen peut ensuite être ajusté par une fonction du type :

$$\sum_{i=0}^{n} \frac{N_i}{\tau_i} e^{-t/\tau_i} \tag{4.3.9}$$

où les τ_i sont les n constantes de temps de scintillation et les N_i/τ_i les n amplitudes de l'évènement moyen. Il est ainsi possible d'étudier les variations des constantes de temps de scintillation et de leurs intensités relatives (les N_i en fonction de la température.

La méthode expérimentale présentée ici va donc nous permettre d'étudier l'évolution du rendement lumineux et des constantes de temps des cristaux refroidis jusqu'à 3 K. Le chapitre suivant présente les résultats obtenus avec des cristaux de BGO ($Bi_4Ge_3O_{12}$) et de BaF_2 grâce à ce dispositif expérimental et cette méthode d'analyse.

Chapitre 5

Scintillation Cryogénique de Cristaux sous Radiation γ

Parmi les propriétés de scintillation des cristaux, notre dispositif permet d'en mesurer essentiellement deux : les évolutions des constantes de temps de scintillation et du rendement lumineux avec la température. Ce chapitre propose de montrer l'évolution de ces deux caractéristiques entre 299 K et 3 K, sous radiations γ, pour le BGO ($Bi_4Ge_3O_{12}$), et le BaF_2. Les propriétés de scintillation de ces deux cristaux sont très bien connues à température ambiante, mais nous verrons que leur scintillation à basse température permettrait également de les utiliser comme bolomètres scintillants.

5.1 Germanate de Bismuth ($Bi_4Ge_3O_{12}$)

Le germanate de bismuth, de formule chimique $Bi_4Ge_3O_{12}$ et communément appelé BGO, est un cristal scintillant développé en tant que monocristal depuis au moins le milieu des années 1960 [72]. Il possède une large bande d'émission avec un pic à 480 nm et a un indice de réfraction élevé de 2.15. Son rendement lumineux à température ambiante vaut 8200 photons/MeV [58], soit 13 % de celui du Tl:NaI (avec un PMT bi-alcalin). De plus sa densité élevée de 7.13 g/cm^3 couplée à la masse atomique élevée du bismuth (A=209) ont entrainé son utilisation intensive à température ambiante. Il est notamment très utilisé pour la détection de rayonnement γ. Par exemple, en physique de hautes énergies, l'expérience L3 avait déployé quelques 12000 cristaux dans son calorimètre électromagnétique [73]. Il a également été largement étudié et employé pour les tomographes à émission de positrons [74]. Des cristaux de BGO ont aussi été utilisés en tant que bolomètres scintillants

dans l'expérience ROSEBUD [24], qui permirent également, en 2003, de démontrer l'instabilité du ^{209}Bi [67], connu jusque là pour être le noyau stable de numéro atomique le plus élevé. Finalement, malgré quelques mesures effectuées sous excitation γ dans [75], ses propriétés de scintillation à basses températures n'ont été étudiées que récemment, et uniquement sous rayonnement α [68]. La réponse du cristal entre les excitations γ et α est attendue comme étant différente. En premier lieu, le processus de scintillation lui même est différent. Il est par exemple connu qu'un facteur de quenching doit être appliqué entre ces deux types d'excitation. Ce quenching est différent suivant le numéro atomique des constituants du matériau [76]. De plus la région du matériau impliquée est très différente. On peut considérer que les γ peuvent interagir n'importe où dans le cristal tandis que les α n'impliquent que les premiers microns (16.79 μm pour un α de 5.5 MeV dans le BGO). Cela implique que la quantité de lumière dépend de la qualité de la surface dans le cas des α. Même l'évolution de la quantité de lumière émise en fonction de la température peut dépendre de la surface puisqu'elle contient naturellement des pièges variés, non présents dans le volume. Suivant leur profondeur cela peut perturber le rendement lumineux en général. Le facteur de quenching α/γ a été mesuré dans le BGO avec comme valeurs : $\sim$0.21 sur la gamme de température -20°C à +80°C (253-353 K) [77] et $\sim$0.17 à 20 mK [78].

5.1.1 Dispositif expérimental

Les mesures de scintillation du BGO refroidi jusqu'à 3 K ont été effectuées avec le dispositif expérimental décrit au chapitre 4. Le mode de déclenchement en multicoïncidences a été utilisé avec deux cristaux de BGO de dimensions $20 \times 10 \times 5$ mm^3 : l'un dans le cryostat, sur lequel ont porté les mesures (voie froide), l'autre dans le second montage à température ambiante et servant de référence des temps (voie chaude). Une paire de PMTs Hamamatsu R6095P étaient montés sur le cryostat et une paire de PMTs Hamamatsu R3550P étaient, quant à eux, utilisés sur le montage servant de référence des temps. L'acquisition a été effectuée par le numériseur PXI-5152 de National Instrument et ont été numérisés : le signal provenant d'un des PMTs montés sur le cryostat et celui d'un PMT du montage à température ambiante. La durée des fenêtres de coïncidences étaient de 2 μs, aussi bien entre les deux PMTs du cryostat que pour la coïncidence entre la voie froide et la voie chaude. Celle entre les deux PMTs du montage de référence des temps était de 30 ns (voir Figure 4.10 et 4.12).
Le mode déclenchement en multicoïncidences est rendu possible par l'utilisation d'une source de β^+. Ici l'excitation du cristal était effectuée par une source de ^{22}Na dont l'activité était d'environ 2 kBq et placée sous le cryostat

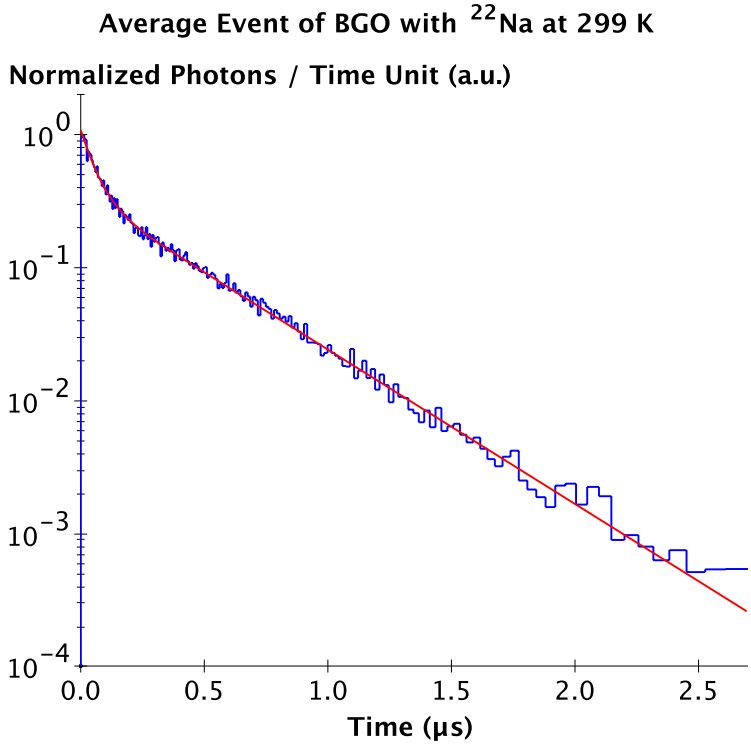

Figure 5.1 – *Évènement moyen de scintillation du BGO à 299 K sous radiation d'une source de ^{22}Na γ (511 keV) (binning irrégulier). Un ajustement par deux exponentielles nous donne des constantes de temps de scintillation de 55.1±1.7 ns et 373.8±2.8 ns.*

à environ 10 cm du crystal. Bien qu'un γ de 1.275 MeV soit émis par le ^{22}Na en plus du β^+ avec un rapport de branchement de 1 pour 0.9, notre mode de déclenchement permet de numériser presque exclusivement les évènements γ-γ de 511 keV provenant de l'annihilation des β^+ avec des électrons. Par ailleurs, la taille relativement importante des cristaux permet d'obtenir en majorité des évènements de scintillation correspondant à l'énergie totale des γ, que ce soit par absorption photoélectrique ou bien par diffusions Compton successives conduisant au dépôt total de l'énergie. Pour un γ de 511 keV, la longueur d'atténuation du BGO est d'environ 1 cm.

5.1.2 Résultats

La méthode d'analyse et les coupures appliquées pour les mesures du BGO sont celles ayant été utilisées comme exemples dans le Chapitre 4. Après nous être assuré que nos évènements ne présentaient pas d'empilements de pho-

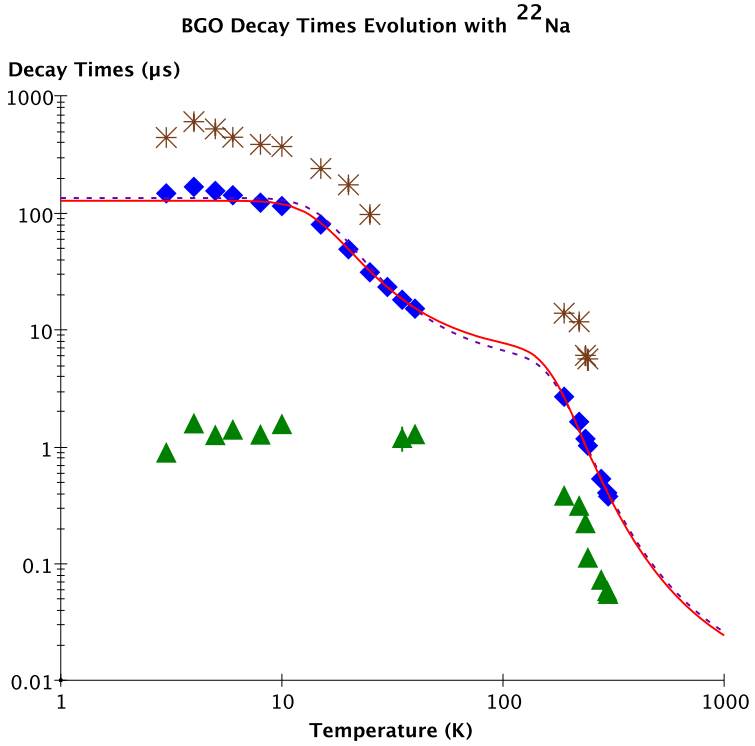

Figure 5.2 – *Évolution des constantes de temps de scintillation du BGO entre 299 K et 3 K. Diamants : Constante de temps "principale". Ligne pleine : Ajustement par un modèle à trois niveaux [79]. Ligne pointillée : ajustement obtenu avec des α dans [68]. Triangles : composante rapide. Étoiles : Composante lente.*

tons, nous avons appliqués des coupures sur : le temps d'arrivée du premier photon, le test statistique, le nombre de photons (uniquement pour la mesure des constantes de temps) et sur la différence des temps d'arrivées du premier photon de chaque voie. Une fois l'analyse effectuée à toutes les températures, il est possible d'en déduire l'évolution des constantes de temps de scintillation du cristal avec la température et celle de son rendement lumineux sous radiation γ.

5.1.2.1 Constantes de temps de scintillation

Les constantes de temps de scintillation du BGO à température ambiante sont généralement admises comme étant au nombre de deux et ayant comme durée 60 ns et 300 ns [80]. Toutefois ces valeurs sont contestées dans [81] où trois constantes de 32.6±5.2 ns, 232±45 ns et 462±40 ns ont été me-

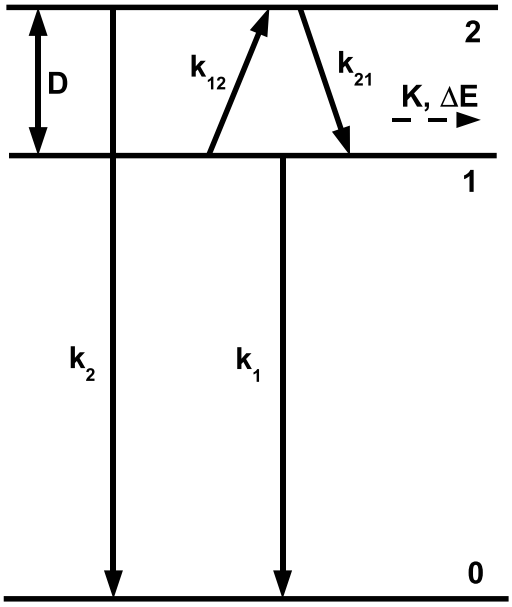

Figure 5.3 – *Schéma de luminescence à trois niveaux : un niveau métastable (0) et deux niveaux excités (1 et 2). k_1, k_2 et K sont respectivement les taux de transitions radiatives des deux niveaux excités et le taux de transition non radiative. Enfin D et ΔE sont la différence d'énergie entre les niveaux excités et la barrière d'énergie pour la transition non radiative.*

surées. Pour notre part, la mesure des constantes de temps de notre cristal à 299 K, après coupures, nous donne deux constantes de 55.1±1.7 ns et 373.8±2.8 ns (voir Figure 5.1). La Figure 5.2 montre, quant à elle, l'évolution des constantes de temps entre 299 K et 3 K. L'évènement moyen, donnant les constantes de temps à 3 K, est montré comme exemple Figure 4.25. La constante de temps principale, liée à la luminescence du Bi^{3+}, correspondant à la composante de 373.8 ns à 299 K, augmente pour atteindre 145±3 μs à 3 K, soit une augmentation d'environ un facteur 400. Cette augmentation est en adéquation avec les mesures de fluorescence obtenue dans [79] et avec les mesures obtenues sous α [68]. Ces références donnent un modèle à trois niveaux (Figure 5.3) donne la fonction d'évolution de cette constante de temps τ avec la température T :

$$\frac{1}{\tau} = \frac{k_1 + k_2 e^{-D/k_b T}}{1 + e^{-D/k_b T}} + K e^{-\Delta E/k_b T} \tag{5.1.1}$$

où k_1, k_2 et K sont respectivement les taux de transitions radiatives des deux niveaux excités et le taux de transition non radiative. D et ΔE sont la différence d'énergie entre les niveaux excités et la barrière d'énergie pour la

transition non radiative. Enfin k_b est la constante de Boltzmann. La courbe s'ajuste correctement sur les données expérimentales (Figure 5.2 : diamants) ainsi qu'avec celle obtenue sous α [68].
Deux autres constantes de temps sont également présentes. D'une part il y a une constante plus rapide dont la valeur à température ambiante est de 55.1 ns et qui augmente jusqu'à environ 889±49 ns à basse température, mais qui disparait complètement autour de 30 K, avant de réapparaitre à des températures inférieures. Bien que nous n'ayons pas d'explications évidentes pour la disparition de cette constante à 30 K, cela pourrait être corrélé à la présence d'un pic de thermoluminescence à cette valeur de température vu dans [82]. Par ailleurs, Rogemond a montré dans [83] qu'en dessous de 30 K, apparaît une bande d'émission rouge, imputée à la présence de plomb, et présentant une constante de temps d'environ 15 μs sous excitation UV. Même si nous trouvons une valeur très inférieure, il est légitime de penser que le rayonnement γ puisse exciter cette bande également.
En dessous de 300 K apparaît une constante de temps plus longue, probablement représentative de l'afterglow (scintillation rémanente) présente dans le BGO [84]. L'afterglow provient de la relaxation des pièges entraînant une transition qui peut éventuellement être radiative ou également un nouveau piégeage. À basses températures, les piégeages peuvent engendrer l'apparition de constantes de temps longues, ce que nous pouvons d'ailleurs observer sur le Figure 5.2 où cette dernière atteint une valeur de 434±16 μs à 3 K. Il faut noter toutefois l'absence de mesures de cette composante lente entre 30 K et 40 K, en raison d'une fenêtre d'acquisition trop faible utilisée à ces températures lors de la prise de données. Nous nous sommes également assurés que cette constantes de temps longue n'était pas due à de l'empilement d'évènements grâce à des simulations Monte-Carlo ainsi que par la mesure du taux d'interaction dans le cristal qui a été évalué à 15.5 Hz (interactions dues à la source et au rayonnement cosmique).

5.1.2.2 Rendement lumineux

Le comptage du nombre de photons de chaque évènement (plutôt que l'intégrale) donne le spectre de la source (uniquement le γ de 511 keV) dans le cristal et la position du photopic donne une mesure du rendement lumineux à chaque température (voir Figure 4.22). En raison du temps de comptage fini de chaque évènement de scintillation, la valeur moyenne du photopic est en fait sous-estimée à cause de la distribution exponentielle de leur temps d'arrivée (en fait une somme d'exponentielles). La connaissance des constantes de temps et de leurs amplitudes relatives (N_i/τ_i) à chaque température, peut ainsi être utilisée pour appliquer un facteur de correction sur le rendement

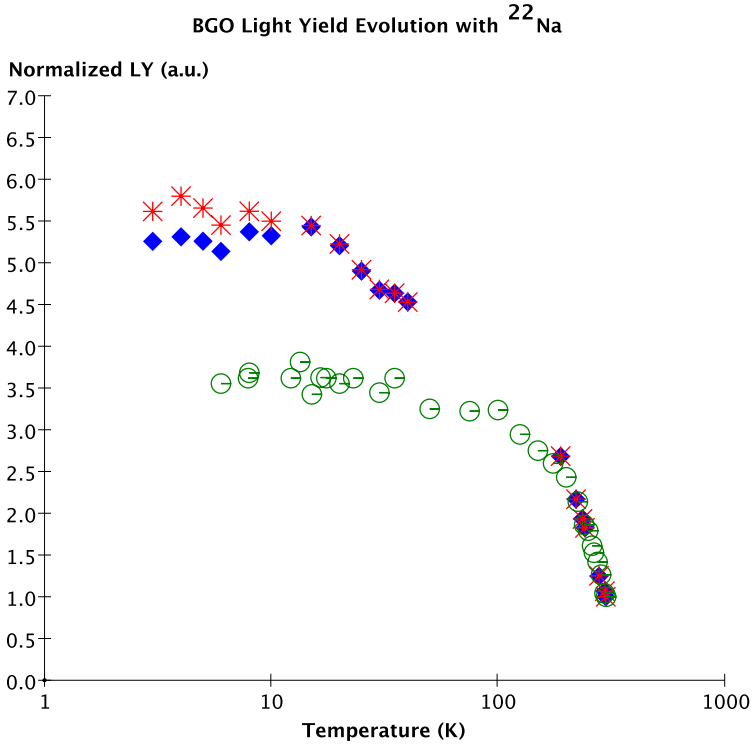

Figure 5.4 – *Évolution du rendement lumineux du BGO avec la température. Diamants : position du photopic normalisée. Étoiles : position du photopic normalisée et corrigée pour un temps d'intégration infini. Cercles : rendement lumineux normalisé obtenu sous radiation α par [68]. Le rendement lumineux augmente d'environ un facteur 5.5 sous γ et d'environ un facteur 3.5 sous α, entre 300 K et 3 K.*

lumineux défini comme :

$$LY_{corr} = LY_{exp} \times \frac{\sum_{i=1}^{n} N_i}{\sum_{i=1}^{n} N_i(1 - e^{-t_{win}/\tau_i})} \tag{5.1.2}$$

où t_{win} est la durée de la fenêtre d'acquisition.
La Figure 5.4 montre l'évolution du rendement lumineux avec la température entre 299 K et 3 K, normalisé à 1 pour 299 K, avec et sans facteur de correction. On peut voir une augmentation d'environ un facteur 5.5 alors que [68] a montré que l'augmentation n'était que d'environ un facteur 3.5 sous α (toutefois sans correction due à la durée de la fenêtre d'acquisition). Il est également notable qu'en dessous de 15 K la quantité de lumière provenant

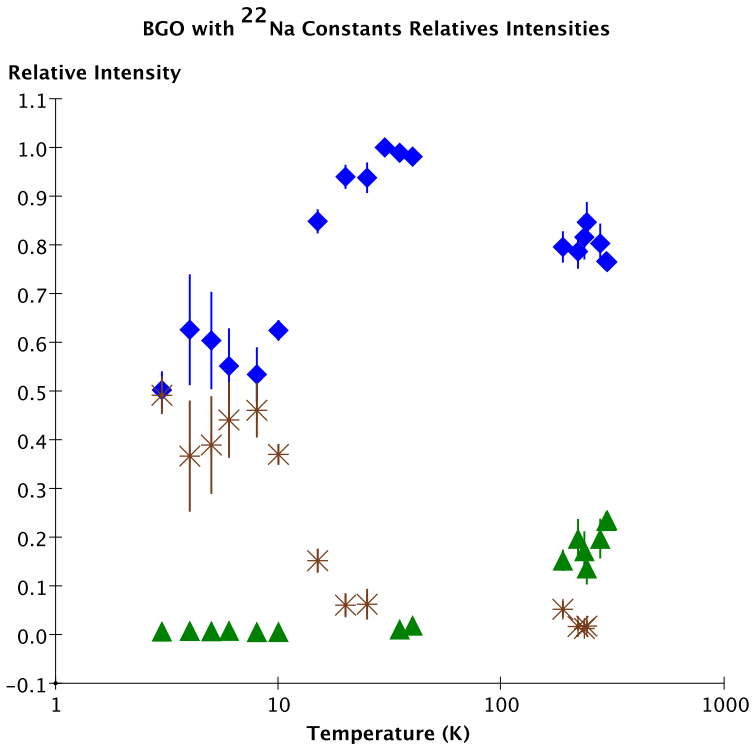

Figure 5.5 – *Contribution relative au rendement lumineux de chaque composante du déclin de scintillation. Triangles : composante rapide. Diamants : composante "principale". Étoiles : composante lente.*

de l'afterglow devient significative et contribue même pour environ 50 % du rendement lumineux à 3 K (voir Figures 5.4 et 5.5). La composante rapide, quant à elle, contribue pour 15 % du rendement lumineux au dessus de 100 K mais devient négligeable pour des températures inférieures. Il est toutefois à noter que notre dispositif expérimental n'est pas résolu en longueur d'ondes et l'évolution du rendement lumineux est ainsi soumis à caution en raison des variations des bandes d'émissions qui pourraient avoir lieu avec les changements de températures [83].

Ainsi le BGO présente un réel intérêt d'un point de vue scintillation à des températures cryogéniques avec une augmentation considérable de son rendement lumineux, sous rayonnement γ, d'un facteur 5.5. Toutefois, il est à prendre en compte l'importante augmentation de ses constantes de temps, d'un facteur 400 pour la constante principale, ainsi que de la présence d'afterglow qui représente jusqu'à 50% du rendement lumineux à 3 K. En effet, dans le cas de mesures sur des fenêtres de temps trop courtes, cela pourrait

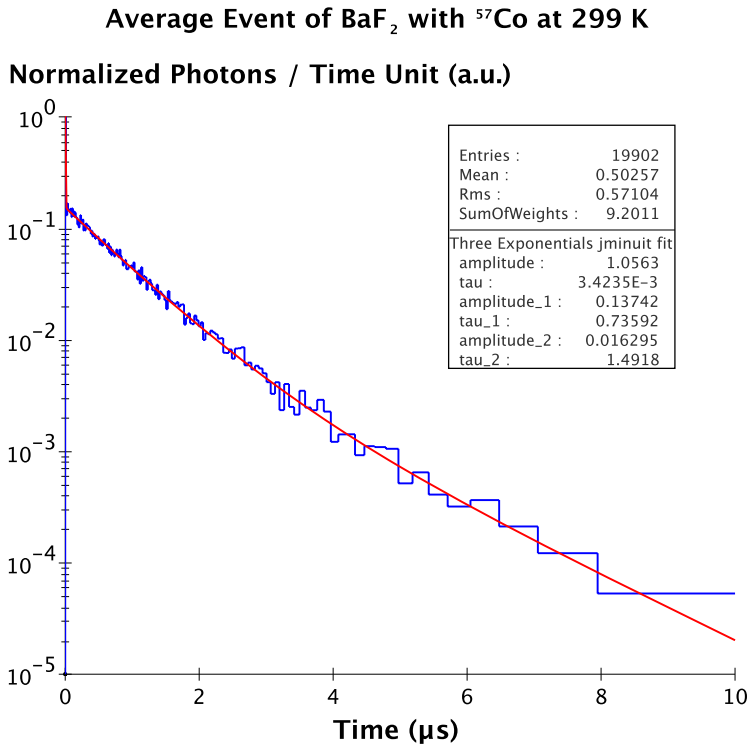

Figure 5.6 – *Évènement moyen de scintillation du BaF_2 à 299 K sous radiation d'une source γ de ^{57}Co (binning irrégulier). Un ajustement par trois exponentielles nous donne des constantes de temps de scintillation de 1.3 ns, 732 ns et 1479 ns.*

engendrer une perte de lumière.

5.2 Fluorure de Baryum (BaF_2)

Le fluorure de baryum de formule chimique BaF_2 est également un scintillateur très bien connu et largement utilisé à température ambiante. Sa densité de 4.88 g/cm^3 et le numéro atomique élevé du baryum font de lui, comme pour le BGO, un candidat intéressant pour la détection de rayonnement γ ou de WIMPs. Il n'est que très peu hygroscopique et possède un rendement lumineux légèrement plus élevé que le BGO, à température ambiante, soit environ 10900 photons/MeV [58] et avec 20% du rendement du Tl:NaI (pour un PMT bi-alcalin).
Il a notamment la particularité de posséder une constante de temps subnanoseconde, faisant de lui l'un des scintillateurs inorganiques connus les plus

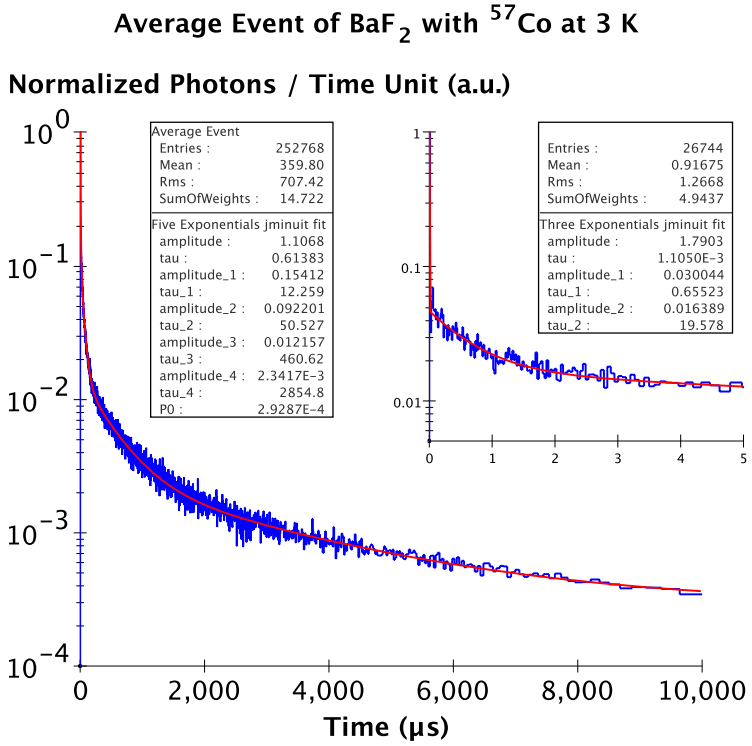

Figure 5.7 – *Évènement moyen de scintillation du BaF_2 à 3 K sous radiation d'une source γ de ^{57}Co (binning irrégulier). Un ajustement exponentiel agrémenté d'un polynôme d'ordre zéro, représentant les coups sombres dans les PMTs, donne six constantes de temps de scintillation allant de 1.1 ns à 2.85 ms.*

rapides. L'origine physique de cette composante rapide, appelée luminescence cœur-valence [85] (core-valence luminescence), luminescence croisée (cross-luminescence), ou encore Auger-free luminescence, provient d'une transition entre une bande de cœur et la bande de valence et présente deux bandes d'émissions dans l'UV à 195 nm et 220 nm, chacune ayant une constante de temps d'environ 800 ps [86, 87]. Par ailleurs cette transition semble être indépendante de la température aussi bien du point de vue temporel [88] que lumineux [89]. Toutefois la quantité de lumière provenant de cette transition ne représente qu'environ 13 % (1400 photons/MeV) du rendement lumineux absolu du BaF_2 à température ambiante et elle n'est pas activée sous particules α [90, 91].

À température ambiante, la majeure partie de la lumière provient d'une bande d'émission dont le pic d'émission est centré à 315 nm et présentant un rendement lumineux absolu de 9500 photons/MeV. La constante de temps

de cette émission est de ∼630 ns [58, 89].
C'est en fait cette émission qui va nous intéresser dans notre étude, puisque c'est elle qui produit la plus grande quantité de lumière et qui varie avec la température [89]. Toutefois bien que notre dispositif expérimental ne soit pas vraiment adapté à la mesure de constantes de temps inférieures à quelques nanosecondes, la présence de la luminescence croisée dans le BaF_2 est d'une utilité importante, comme décrit par la suite, pour la qualité de nos mesures.

5.2.1 Dispositif expérimental

Le cristal de BaF_2 était également de dimension $20 \times 10 \times 5$ mm^3. Contrairement aux mesures effectuées sur le BGO, celles sur le fluorure de baryum n'ont pas pu être effectuées en mode multicoïncidences avec la source de β^+. Malgré sa relativement haute densité et la masse atomique élevée du baryum, les spectres ne permettaient pas d'identifier clairement le photopic de 511 keV. Nous avons ainsi dû utiliser une source de plus basse énergie avec le double pic 122-136 keV du ^{57}Co dont l'activité était d'environ 2.6 kBq. L'acquisition a donc été utilisée en mode de déclenchement en simple coïncidence, comme décrit dans le chapitre 4, et avec des PMTs Electron Tubes 9125QB fonctionnant jusque dans l'UV, nous rendant sensible à la composante très rapide. Elle nous a permis de nous contenter d'une fenêtre de coïncidence de 50 ns et ainsi de faire l'acquisition des données avec le TDC, fournissant une fenêtre d'acquisition de 10 ms par évènement. De plus le mode de déclenchement en simple coïncidence permet la collecte de photons sur les deux PMTs, compensant ainsi en partie la plus faible quantité de photons obtenus en raison de la plus faible énergie de la source.

5.2.2 Résultats

Pour l'analyse des mesures obtenues avec le BaF_2, nous avons appliqué, comme pour le BGO, des coupures sur : le test statistique et le temps d'arrivée du premier photon ainsi que sur la différence des temps d'arrivées du premier photon de chaque voie et le nombre de photons.

5.2.2.1 Constantes de temps de scintillation

Pour une température de 299 K, nous trouvons trois constantes (voir Figure 5.6) : la première d'environ 3.4±0.7 ns, correspond à la transition core-valence. Ceci étant, malgré les PMTs utilisés, notre dispositif n'est pas du tout adapté pour mesurer des constantes plus faibles que quelques nanosecondes. Pour la constante plus longue, nous trouvons une valeur d'environ

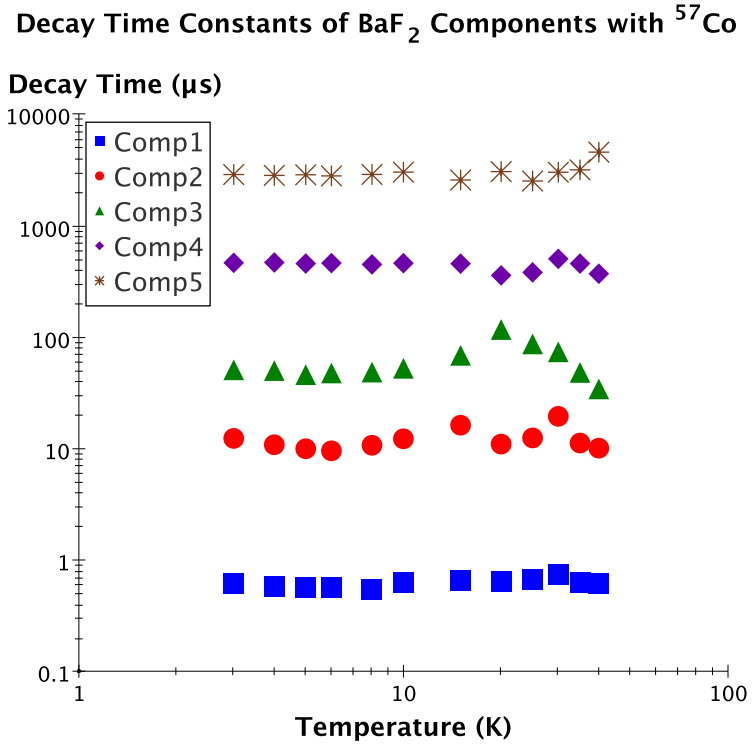

Figure 5.8 – *Évolution des constantes de temps dans le BaF_2 avec une source de ^{57}Co entre 3 K et 40 K.*

736±30 ns, ce qui est supérieur à la valeur généralement donnée de 630 ns. Le fait que les mesures soient effectuées avec le TDC, imposant un temps mort de 15 ns, engendre un biais sur les mesures de temps courts, pouvant expliquer cette différence. Nous observons aussi une composante plus longue d'environ 1482±159 ns, probablement signature de la présence d'afterglow.
À basse température le nombre de constantes de temps ainsi que leurs durées augmentent drastiquement. Un ajustement par une somme d'exponentielles permet de relever jusqu'à six constantes de temps, dont les valeurs sont à 3 K de 1.1±0.1 ns (core-valence luminescence), 655±46 ns, 12.3±1.1 μs, 50.5±2.3 μs, 461±15 μs et 2.85±0.13 ms (voir Figure 5.7). On constate ainsi la présence de constantes de temps longues, signe d'un d'afterglow conséquent à basses températures. Un polynôme d'ordre zéro a aussi été ajouté à l'ajustement pour refléter les coups sombres dans les PMTs dont l'effet est visible sur des fenêtres d'acquisition de 10 ms. La Figure 5.8 montre qu'entre 3 K et 40 K la variation des constantes de temps provenant des ajustements à cinq composantes est assez faible (la composante absente, qui est la plus rapide, est ainsi incluse dans la première). Le nombre et la durée des constantes

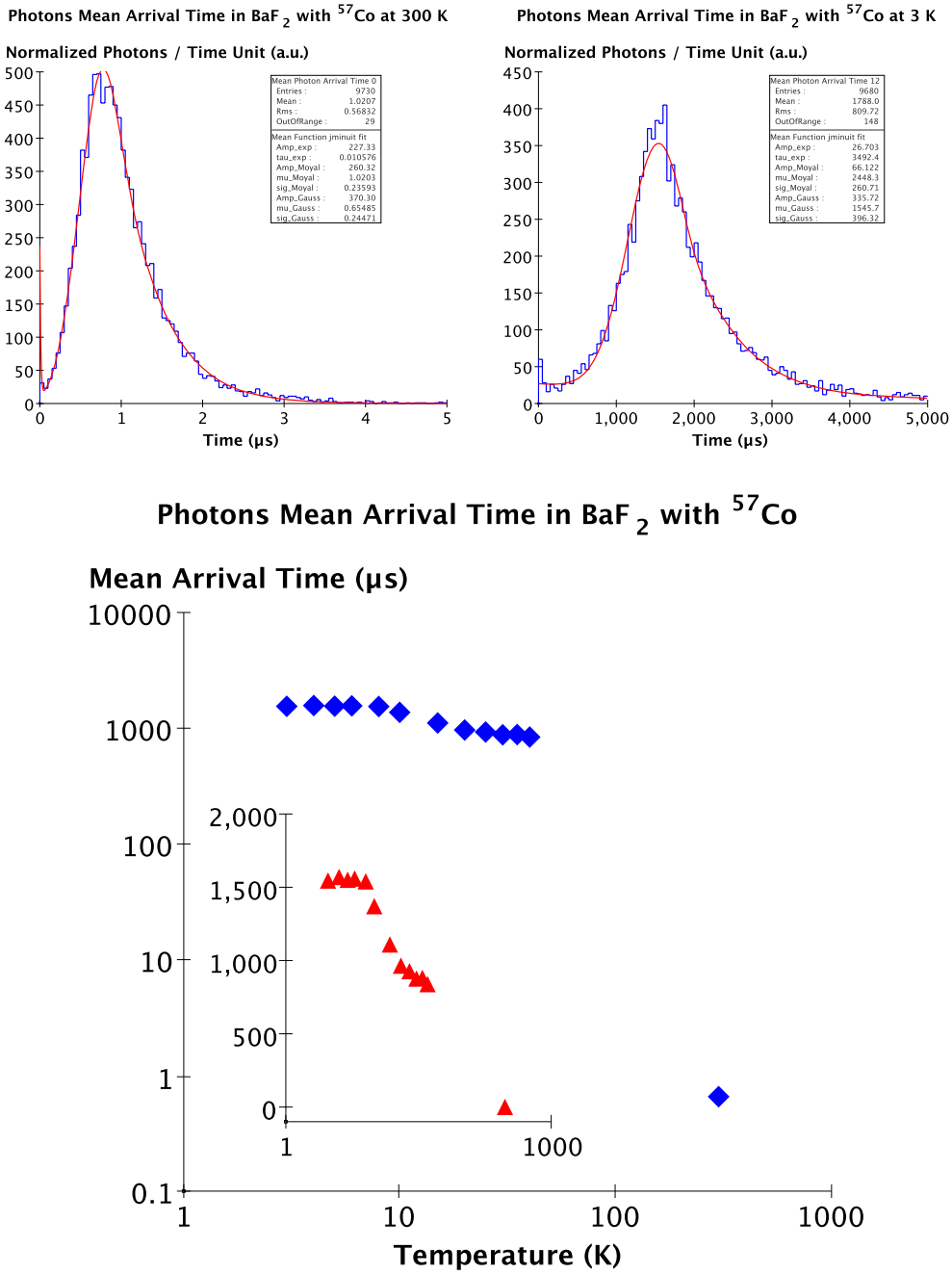

Figure 5.9 – *Haut : distribution du temps moyen d'arrivée des photons par rapport au premier, à 299 K (gauche) et 3 K (droite). Bas : évolution de la valeur moyenne du temps moyen d'arrivée des photons avec la température en échelle logarithmique et linéaire (encart).*

étant très différents entre la température ambiante et les basses températures, il n'est pas évident de les associer clairement. Il est du coup plus intéressant d'observer la variation du temps moyen d'arrivée des photons par rapport au premier. Cela revient en fait à considérer une constante de temps moyenne, qui n'a pas de sens physique à proprement parler, mais est corrélée à toutes les composantes (les constantes de temps et leurs intensités relatives) et reflète bien la variation des propriétés temporelles du cristal avec la température. Elle est obtenue par ajustement de la distribution des temps moyens d'arrivée des photons par rapport au premier (voir 4.3.2.1), tels que montrés Figure 5.9. On voit ainsi une très forte augmentation de plus de trois ordres de grandeurs entre la température ambiante où la constante de temps moyenne vaut environ 655 ns, et les basses températures, avec une stabilisation en dessous de 10 K et une valeur d'environ 1.55 ms à 3 K. Il ne nous a malheureusement pas été possible d'obtenir des résultats exploitables entre 40 K et la température ambiante lors du réchauffement, en raison de la présence de thermoluminescence parasitant fortement notre signal (flot de photons).

5.2.2.2 Rendement lumineux

Le rendement lumineux est obtenu par un ajustement sur le photopic de 122 keV du ^{57}Co. En réalité, il s'agit d'un double pic de 122 keV et 136 keV, mais la résolution de notre appareillage ne nous permet pas de les distinguer. En raison du temps mort de 15 ns du TDC, il nous est impossible d'être sensible à plus d'un photon UV provenant de la transition core-valence et ce aussi bien à température ambiante qu'à basses températures. Le rendement lumineux que nous présentons ici se fait ainsi presque exclusivement par rapport aux autres composantes de scintillation. Le spectre du ^{57}Co à 299 K (Figure 5.10 haut-gauche) montre un nombre moyen d'environ 18 photons. En fait, cette valeur est sous-estimée en raison (encore une fois) du temps mort de 15 ns du TDC. Cependant des simulations Monte-Carlo prévoient une perte seulement d'environ 2 % par rapport au nombre réel de photons qui devrait être mesuré.
Aux basses températures, le faible nombre de photons mesurés, couplé à la faible durée de la fenêtre de coïncidence entraîne un seuil sur l'efficacité de détection, comme décrit en 4.2.2.6 et dont la courbe d'efficacité pour les valeurs à 3 K est visible Figure 5.11. Ainsi il a fallu corriger les spectres (équation 4.2.10). Cependant une telle correction provoque un comportement du spectre assez incertain à basse énergie, induisant un ajustement avec une grande incertitude. Cet ajustement est d'ailleurs effectué avec un modèle simple d'une exponentielle plus une gaussienne, mais qui permet cependant

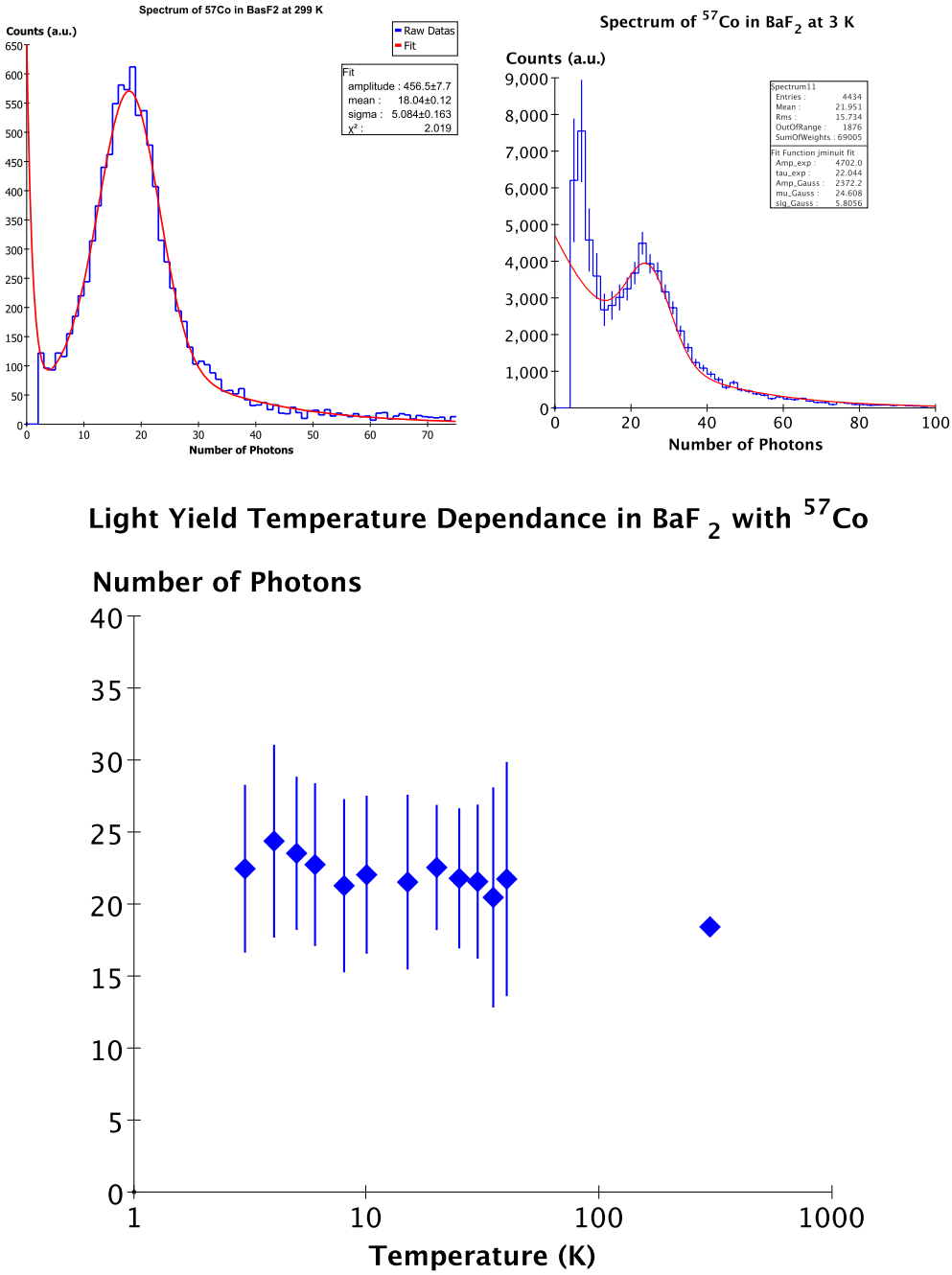

Figure 5.10 – *Haut : distribution du nombre de photons dans les deux PMTs à 299 K (gauche) et 3 K (droite). Bas : évolution du rendement lumineux entre 299 K et 3 K.*

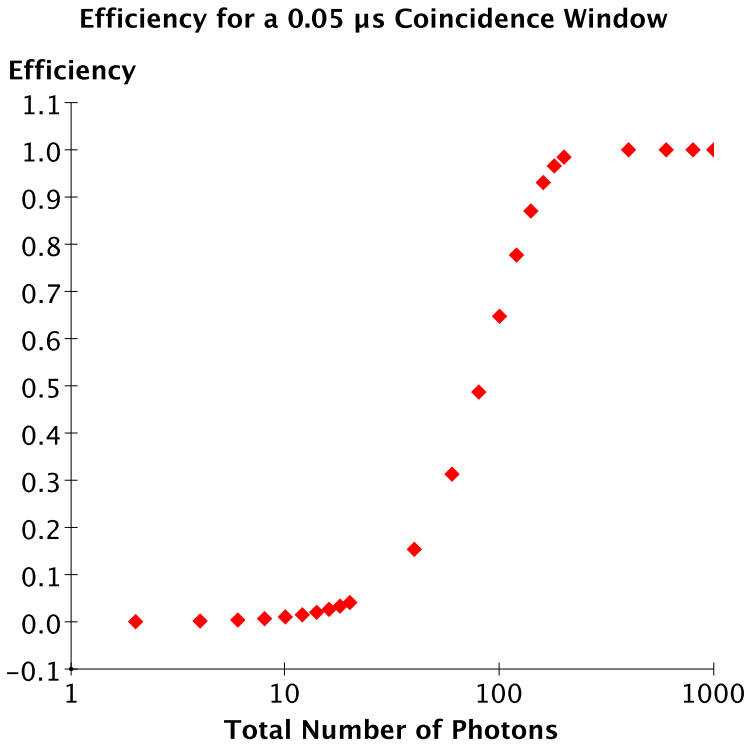

Figure 5.11 – *Efficacité de déclenchement pour les mesures du BaF_2 à 3 K avec une fenêtre de coïncidence de 50 ns en fonction du nombre total de photons (sommes des photons dans les 2 PMTs) en considérant un nombre égal de photons dans chaque PMT (voir équation 4.2.10).*

d'obtenir une estimation raisonnable de la position du photopic (Figure 5.10 haut-droit) avec environ 24.6 photons à 3 K. Il est également nécessaire de soustraire à cette valeur le nombre moyen de coups sombres obtenus sur les 2 PMTs et sur une durée de 10 ms. Les mesures à température ambiante, où les constantes de temps sont plus faibles, permet de déterminer une valeur de 2.16±0.40 coups sombres pour 10 ms. Finalement, après corrections le rendement lumineux entre 299 K et 3 K reste à peu près constant, à la précision de la mesure près (Figure 5.10 bas). De plus comme pour les constantes de temps, il nous a été impossible d'exploiter les données de scintillation entre 40 K et 299 K en raison de la présence de thermoluminescence venant parasiter nos mesures. Toutefois la référence [89] montre une augmentation du rendement lumineux du pic d'émission à 315 nm d'un facteur 3 entre la température ambiante et 160 K avec une excitation par des rayons X, ce qui peut laisser supposer une rediminution du rendement lumineux à plus basse température.

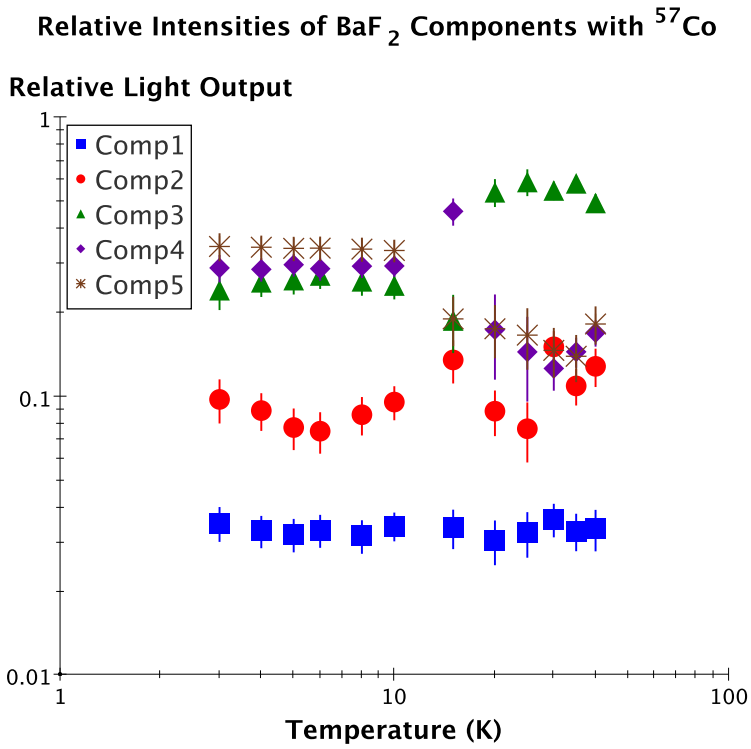

Figure 5.12 – *Contribution relative au rendement lumineux de chaque composante du déclin de scintillation du BaF_2 entre 40 K et 3 K.*

Enfin, la Figure 5.12 montre les contributions au rendement lumineux des différentes composantes, entre 3 K et 40 K. Bien qu'il y ait des variations au dessus de 10 K, expliquant la variation de la valeur moyenne du temps d'arrivée des photons (Figure 5.9), les constantes elles mêmes changent peu (Figure 5.8).

Tout comme le BGO, le fluorure de baryum, pourrait également faire office de bolomètre scintillant pour la détection de matière sombre (d'un point de vue purement lumineux). Cependant, tout en fournissant un rendement lumineux absolu correct, il ne semble pas exhiber une forte augmentation de son rendement lumineux à basse température. Ses constantes de temps, en revanche, semblent augmenter considérablement à base température, atteignant plusieurs millisecondes pour la plus lente, ce qui comme pour le BGO, est une caractéristique à prendre en compte pour les bolomètres (durée d'intégration du signal lumineux).

Ce chapitre avait pour vocation de présenter les premiers résultats obtenus avec ce montage expérimental. Les mesures sur des cristaux de BGO et de BaF_2, dont les propriétés de scintillation à température ambiante sont bien connues, refroidis jusqu'à 3 K et sous excitation γ. Tandis que le BGO montre une augmentation du rendement lumineux d'un facteur 5.5 entre la température ambiante et 3 K, le BaF_2 montre, quant à lui, un rendement lumineux à peu près constant. Au niveau des constantes de temps de scintillation les deux cristaux ont un comportement similaire dans le sens où ils montrent une augmentation des constantes de temps de plusieurs ordres de grandeurs, ainsi que l'apparition d'afterglow, dont la contribution au rendement lumineux est importante, lorsque la température diminue ; paramètre qu'il sera nécessaire de prendre en compte pour les bolomètres scintillants.
Le dernier chapitre s'attardera sur le cas d'un autre cristal très différent de ceux présentés ici. Il s'agit du saphir, dont les propriétés en font un bon candidat pour les expériences de détection de matière sombre, mais le rendent peu adapté pour des mesures avec ce dispositif expérimental. Les résultats proposés seront donc des mesures de spectroscopie obtenues sur faisceau de VUV.

Chapitre 6

Étude Spectroscopique du Saphir Dopé au Titane

Un autre cristal présentant un intérêt considérable pour la recherche de matière sombre, est le saphir. Sa faible masse atomique permettrait en effet d'avoir une meilleure identification et compréhension du fond neutron. Dans le but de pouvoir bénéficier de cristaux avec le plus haut rendement lumineux pour être utilisés en tant que bolomètres scintillants, des travaux avaient été initiés par M. Luca dans le cadre du projet SciCryo [92, 93]. Ils étaient basés sur de la spectroscopie sous rayons X de cristaux de saphir dopés au titane et à basse température. Le but principal de ces études était d'établir le lien existant entre la concentration en Ti et le rendement lumineux ainsi que sa dépendance à la température. Elles avaient conclu une augmentation d'environ d'un facteur deux du rendement lumineux, sous flux intense de rayons X et sans résolution temporelle, entre la température ambiante et 45 K sans toutefois dégager de hiérarchie entre les différentes concentrations.
Cette dernière étude s'inscrit dans la continuité des travaux effectués sous rayons X, par M. Luca dans le cadre du projet SciCryo et en collaboration avec le département de physique de l'université d'Oxford (UK). Contrairement aux travaux présentés précédemment dans cette thèse, cette étude emploie une approche spectroscopique, basée sur des mesures de luminescence de cristaux de Ti:Al_2O_3 sous VUV (ultraviolets du vide) et refroidis jusqu'à 8 K. Elle a pour but de tenter d'éclaircir certaines incertitudes concernant les bandes d'émissions du Ti:Al_2O_3 afin de mieux comprendre quelles sont les conditions de concentration menant à une augmentation de son rendement lumineux.

6.1 État de l'art

L'oxyde d'aluminium de formule chimique Al_2O_3, également appelé α-alumine ou corindon, mais plus généralement nommé saphir, est un cristal ionique présent sur Terre à l'état naturel. Bien que transparent lorsqu'il est pur, il est utilisé en tant que pierre précieuse en joaillerie, la présence d'ions dopants lui donnant différentes couleurs telles que le bleu, le jaune, le vert ou le rouge (appelé dans ce cas rubis si le dopant est du chrome). Ses propriétés mécaniques et optiques en font également un choix privilégié en sciences. Son domaine de transmission optique est large, allant de l'UV à l'IR, faisant donc de lui un matériau de choix pour la fabrication de fenêtres optiques. Sa dureté est de 9 sur l'échelle de Mohs, faisant de lui un des matériaux les plus durs et sa densité est de 3.97 g/cm^3. Il convient ainsi pour être utilisé dans des conditions difficiles (espace, températures élevées, etc).
Le Cr:Al_2O_3 est également à l'origine de la découverte des premiers lasers solides, au début des années 1960 [94]. Plus récemment les cristaux de Ti:Al_2O_3 ont permis d'obtenir des lasers utilisés en régime pulsé, fournissant des impulsions terawatts de quelques femtosecondes [95], utilisés pour la spectroscopie.
Le saphir a également un intérêt certain pour la recherche de matière sombre. Il a démontré ses capacités à être employé comme bolomètre scintillant dans les expériences CRESST [96] (voie chaleur uniquement) et ROSEBUD [78], avec notamment un rendement lumineux mesuré d'environ 12 % [97]. Comme détaillé au chapitre 2, ses faibles masse atomique et densité font de lui une cible intéressante pour la compréhension et l'identification du fond neutron, en complément des cibles "lourdes" (Ge, $CaWO_4$, etc). C'est dans cette optique que ses propriétés de scintillation à basse température ont commencé à être étudiées aussi bien du point de vue de la luminescence sous VUV, que de la scintillation sous rayons X [98, 92, 93, 64]. Il découle de ces études que le Ti:Al_2O_3 présente des propriétés de scintillation intéressantes à basse température, avec un rendement lumineux augmentant environ d'un facteur deux. Il y avait toutefois de grandes différences entre les résultats obtenus sous rayon X et sous α au niveau de l'influence de la concentration en Ti sur le rendement lumineux. Ces différences pourraient en partie être expliquées par les différentes techniques employées pour la mesure du rendement lumineux : spectroscopie, résolue en longueurs d'ondes mais pas en temps, pour les rayons X, et scintillation mesurée avec un PMT, résolue en temps mais pas en longueurs d'ondes, pour les α. Cependant les propriétés d'émission du saphir ne sont pas triviales, avec la présence de plusieurs pics d'émission allant de l'UV à l'IR. L'origine de ces émissions est variée, elles peuvent pro-

venir de défauts du cristal : les centres colorés F^+ et F, qui sont des vacances d'anions (O^{2-}) occupées par respectivement un ou deux électrons. Ce sont ces défauts qui sont à l'origine de la scintillation du saphir pur. Mais elles peuvent également provenir du Ti dopant, qui peut être soit sous forme de Ti^{3+} soit de Ti^{4+}. Certaines de ces émissions sont bien connues : ainsi le Ti^{3+} est responsable d'une bande large d'émission dans le proche IR, centré à 750 nm et dont l'intensité dépend de la concentration en Ti [98, 92, 93, 64]. Il est également connu que les centres F^+ sont responsables d'un pic d'émission à 320 nm [99]. En revanche, certains cristaux montrent un pic d'émission bleu à 420 nm dont la provenance n'est pas encore parfaitement tranchée. Il a été estimé que cette émission était l'œuvre de la présence de Ti^{4+} [100, 101, 102]. Cependant d'autres études imputent cette émission bleue aux centres colorés F plutôt qu'au Ti^{4+} [98, 92, 93, 99]. Ces mêmes études observent également la présence d'une bande d'émission à 290 nm, qui pourrait être la conséquence de localisation d'excitons sur des ions Ti^{3+}. C'est ainsi dans le but d'apporter des réponses supplémentaires quant à l'origine de ces différentes émissions que nous avons effectué des mesures de luminescences sur les bandes d'excitation, d'émission, ainsi que sur les constantes de temps de luminescence sous VUV. Ces mesures ont été effectuées pour différentes concentrations de Ti et températures. Elles ont également pour but de tenter de déterminer les caractéristiques des cristaux conduisant à un rendement lumineux plus élevé.

6.2 Dispositif expérimental

6.2.1 Superlumi

Les mesures ont été effectuées sur la station Superlumi [103] du faisceau synchrotron Doris à Hasylab (DESY Hambourg, Allemagne) en collaboration avec le département de physique de l'université d'Oxford (UK). Il s'agit d'un dispositif de spectroscopie permettant d'envoyer un faisceau de VUV, couvrant une plage d'énergie allant de 3.7 eV (335nm) à 40 eV (31 nm). La sélection en énergie du faisceau incident se fait à l'aide d'un monochromateur primaire 2 m, 15°, Mc Pherson Mount. Le faisceau incident passe ensuite dans la chambre du cryostat où les cristaux sont montés sur une canne mobile permettant de sélectionner le cristal voulu. La lumière produite par le cristal passe finalement par un monochromateur secondaire (ARC 0.3 m Czerny-Turner monochromator/spectrograph Spectra Pro 300i (f/4)). La détection se fait soit par un PMT HAMAMATSU R6358P, ayant une gamme spectrale de 200-800 nm, soit par un détecteur CCD refroidi à l'azote (Princeton Instruments) et couvrant la plage 200-1050 nm. Les spectres d'émission ont

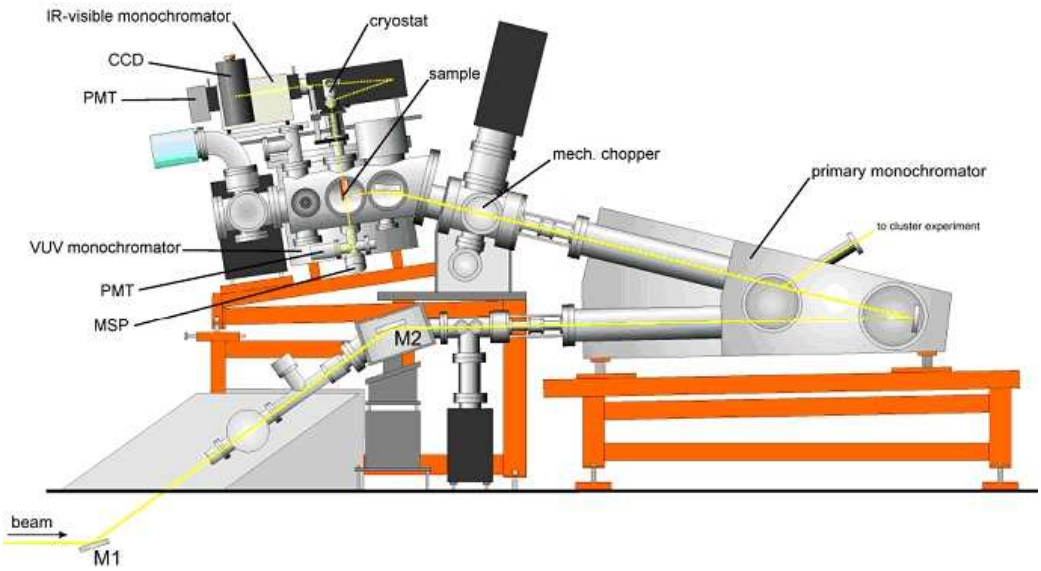

Figure 6.1 – *L'expérience Superlumi à Hasylab (Hambourg, Allemagne). Le faisceau VUV est sélectionnable en énergie par le monochromateur primaire. La luminescence des cristaux, placés dans un cryostat à hélium, est mesurée par un PMT ou un détecteur CCD, après sélection par un monochromateur secondaire.*

été obtenus via le détecteur CCD (plus adaptée pour la gamme de longueurs d'ondes des spectres d'émission) tandis que les spectres d'excitation ont été obtenus avec le PMT.
Le rayonnement synchrotron est constitué d'impulsions de 130 ps arrivant à une fréquence d'environ 4 MHz. Cela permet de mesurer des déclins de luminescence sur des durées d'environ 200 ns, enregistrés avec une période d'échantillonnage de 0.2 ns.
Ainsi ce dispositif nous a permis de mesurer, en plus des déclins, les spectres d'émission de nos cristaux : le monochromateur secondaire balaie la plage de longueurs d'ondes souhaitée pour une valeur fixe du monochromateur primaire. Mais il nous a également permis d'enregistrer leurs spectres d'excitation : le monochromateur primaire balaie alors la plage souhaitée pour une valeur fixée du monochromateur secondaire.

6.2.2 Cristaux

Nous disposions d'une gamme de cristaux de saphirs venants de l'Institut of Single Crystals (Ukraine). Ils avaient pour dimension $5\times5\times1$ mm^3 et étaient orientés selon le plan C (perpendiculaire à l'axe optique). Ce sont

des cristaux appartenant au même ensemble que ceux étudiés précédemment dans [92, 93, 64]. Ils diffèrent entre eux par leur concentrations en Ti, qui sont nominalement de 10, 50, 100, 500 et 1000 ppm. En réalité, une étude par laser ablation-masse spectrométrie a montré que les concentrations étaient en fait plus proches des valeurs respectives suivantes : 15, 30, 86, 472 et 712 ppm [92, 93]. Ces cristaux ont été tirés dans une atmosphère (-230 kJ/mol) leur garantissant une proportion de Ti^{3+} de 98-100 %. Nous avions aussi à l'étude un cristal avec un nombre élevé de vacances d'anion (cristal nommé F^+) mais nominalement sans présence de dopant.

6.3 Résultats

6.3.1 Spectres d'Émission

La Figure 6.2 montre les spectres d'émission de notre gamme de cristaux, obtenus à 300 K et 8 K et pour deux valeurs d'excitation : 175 nm (7.1 eV) et 210 nm (5.9 eV). Les spectres ne sont pas corrigés pour la réponse spectrale du système de détection. Ils ont par contre subi un traitement permettant de supprimer les éventuels pics fortuits, provenant de l'interaction de rayons cosmiques avec le détecteur CCD. Ils ont également été lissés dans un souci de clarté. Voyons maintenant les différentes bandes d'émission :

- L'ensemble des cristaux de $Ti:Al_2O_3$ montrent la bande d'émission due au Ti^{3+} centrée à 750 nm. Cette bande est absente du cristal F^+ qui montre en revanche une structure dominée par un pic à 693 nm, caractéristique de la présence d'une contamination de Cr^{3+} [104].
- La bande d'émission bien connue des centres F^+ à 320 nm est effectivement présente sur l'ensemble des spectres ainsi que pour toutes les énergies et températures.
- La bande d'émission à 290 nm, imputée à la localisation des excitons sur les ions Ti^{3+}, n'est présente que sur les $Ti:Al_2O_3$ et uniquement pour une excitation à 175 nm (7.1 eV). Son absence sur le cristal F^+ (sans Ti) semble corroborer l'hypothèse qu'elle est due à la localisation des excitons sur les Ti^{3+} [98]. La mesure à 300 K des constantes de temps de scintillation de ces deux bandes à 290 nm et 320 nm qui se recouvrent montre des durées de respectivement 62 ns et 2 ns. À 8 K la première augmente de manière suffisante pour que le système ne puisse plus la mesurer tandis que celle des centre F^+ reste de 2 ns.
- La bande bleue à 420 nm, quant à elle, apparaît principalement pour les cristaux avec une faible concentration en Ti (10 ppm et 50 ppm) et surtout pour une excitation à 210 nm (5.9 eV). Elle est de plus

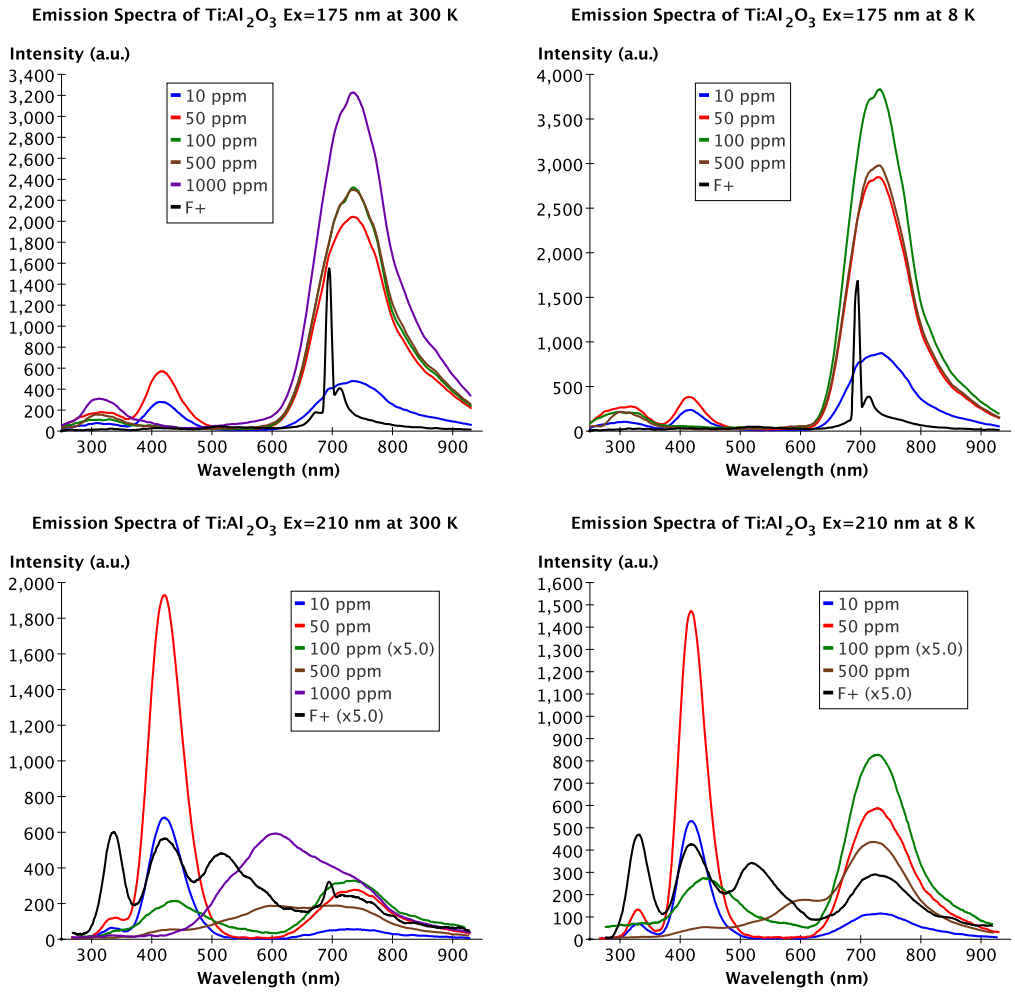

Figure 6.2 – *Spectres d'émissions du Ti:Al_2O_3 et F^+:Al_2O_3 à 300 K (gauche) et 8 K (droite) pour deux longueurs d'onde d'excitation : (haut) 175 nm (7.1 eV) et (bas) 210 nm (5.9 eV). Les spectres ne sont pas corrigés pour la réponse du détecteur et ont été lissés pour la clarté.*

clairement présente dans le cristal F^+, confirmant son origine due aux centres F plutôt qu'au Ti^{4+}. Nous avons également testé ces cristaux sous rayons X à température ambiante, sur un dispositif semblable à celui utilisé dans [92, 93]. Les cristaux avec une concentration de 10 et 50 ppm montrent clairement la présence de la bande d'émission bleue à 420 nm. En revanche, d'autre cristaux avec la même concentration de Ti mais tirés dans une autre atmosphère (-30 kJ/mol), leur donnant une proportion de 20 % de Ti^{4+}, n'ont pas cette émission bleue, malgré la plus grande quantité de Ti^{4+}. Une nouvelle fois ceci permet d'imputer

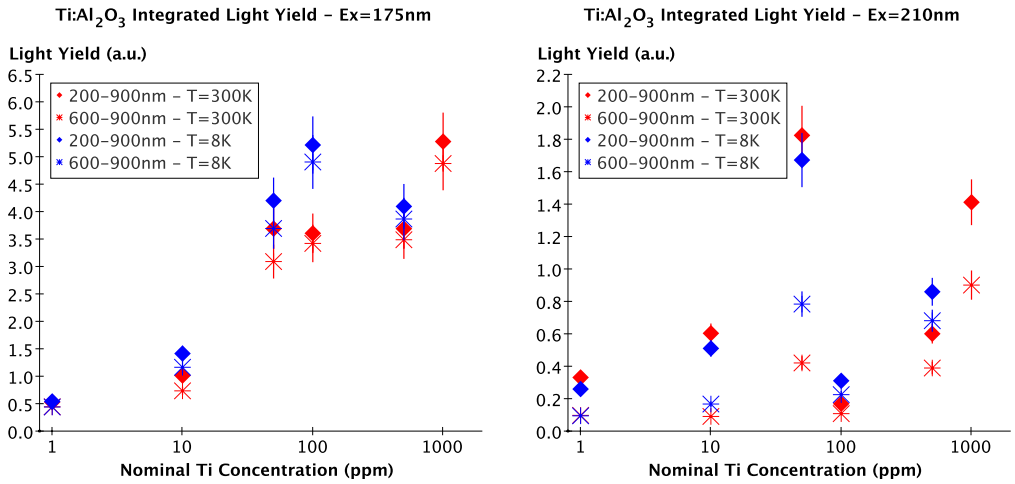

Figure 6.3 – *Spectres d'émission intégrés pour les différentes concentrations en Ti, sur les plages 200-900 nm et 600-900 nm à 300 K et 8 K pour deux excitations : (gauche) 175 nm (7.1 eV) et (droite) 210 nm (5.9 eV). Les points à 1 ppm représentent le cristal F^+, mais ne reflètent en rien sa concentration en Ti.*

cette émission aux centres F plutôt qu'au Ti^{4+}.

– Le cristal F^+ montre aussi un pic d'émission à environ 515 nm pour une excitation à 210 nm (5.9 eV), qui a tenté d'être attribué aux centres interstitiels de Al^+ [105].

6.3.2 Rendement lumineux

Si l'on observe l'effet de la température sur les spectres, les variations se font essentiellement sur les intensités des différentes bandes d'émission. La Figure 6.3 montre le rendement lumineux pour les différentes concentrations en Ti. Il est obtenu par intégration des spectres d'émission sur les plages 200-900 nm et 600-900 nm, à 300 K et 8 K, et pour les deux valeurs d'excitation : 175 nm (7.1 eV) et 210 nm (5.9 eV). Les incertitudes dues à la non correction des spectres ainsi qu'aux variations de positionnement des cristaux ont été estimées à 10 %. Les points à 1 ppm correspondent au rendement lumineux du cristal F^+, mais ne reflètent en rien sa concentration en Ti.
Pour une excitation à 175 nm, la majorité de la lumière provient du pic du Ti^{3+} (ou Cr^{3+} pour le cristal F^+). On constate une légère augmentation du rendement lumineux à basse température avec le plus haut rendement lumineux et la plus forte augmentation (environ 50 %), pour le cristal à 100 ppm (si l'on ne tient pas compte du 1000 ppm dont nous n'avons pas les mesures

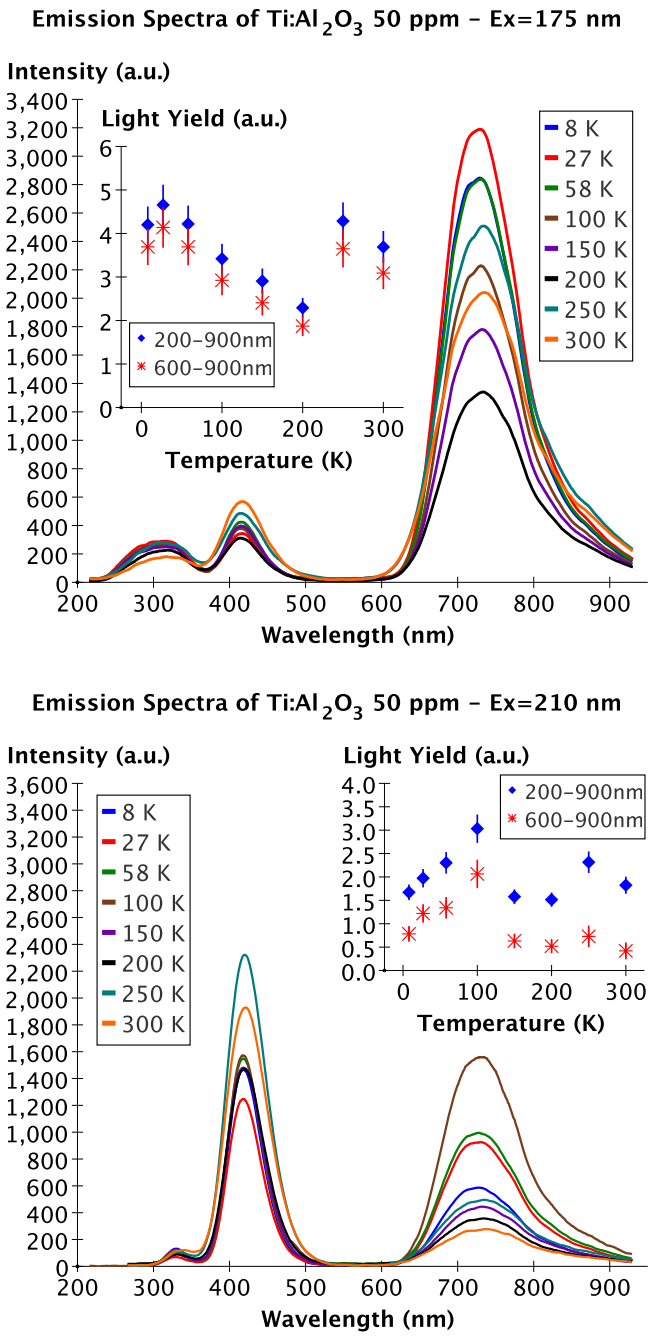

Figure 6.4 – *Évolution des spectres d'émission du Ti:Al_2O_3 50 ppm en fonction de la température pour différentes valeurs d'excitation : (haut) 175 nm (7.1 eV) et (bas) 210 nm (5.9 eV). Les spectres ne sont pas corrigés pour la réponse du détecteur et ont été lissés pour la clarté. Encarts : intensités intégrées en fonction de la température.*

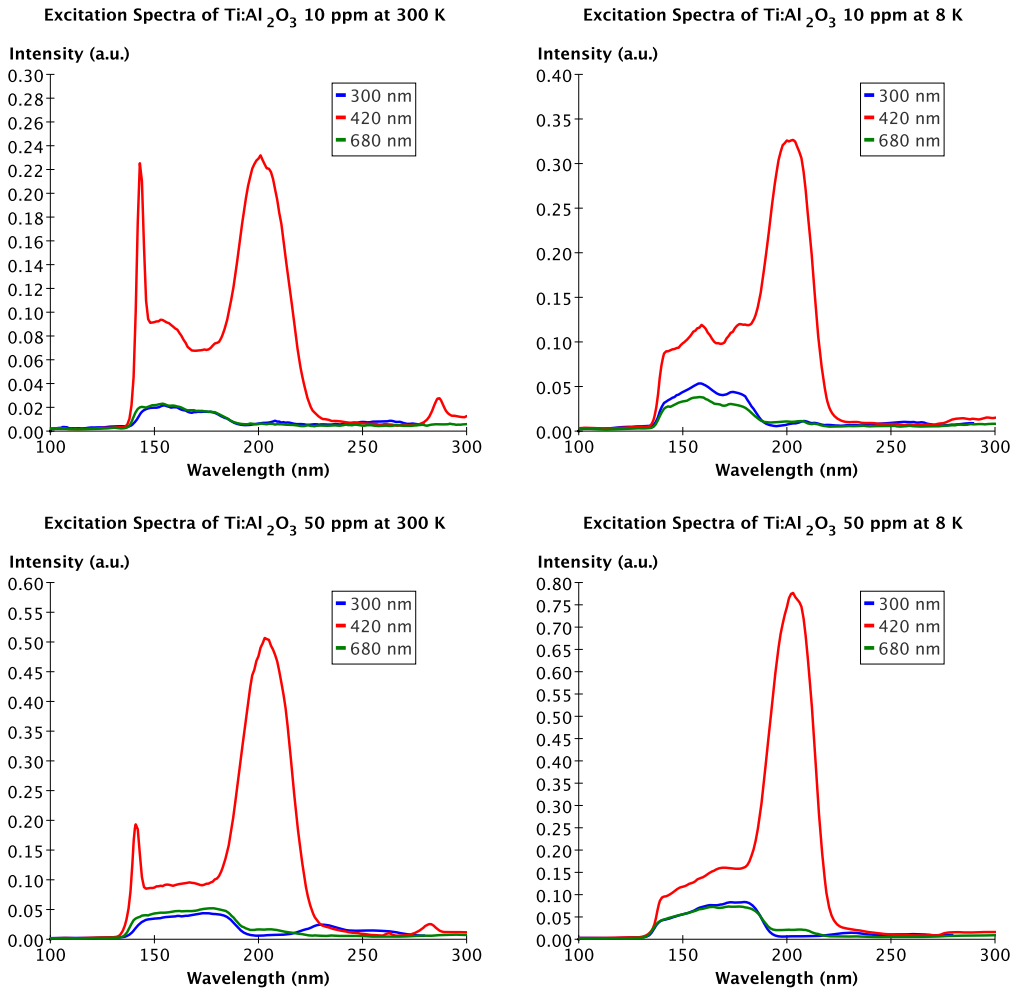

Figure 6.5 – *Spectres d'excitation du Ti:Al_2O_3 à 10 ppm (haut) et 50 ppm (bas), pour deux températures : 300 K (gauche) et 8 K (droite) et différentes longueurs d'onde d'émissions : 300 nm, 420 nm et 680 nm. Les spectres ont été lissés pour la clarté.*

à basse température). Pour une excitation à 210 nm, le cristal présentant le plus haut rendement lumineux est le 50 ppm. Son rendement lumineux est ici dominé par le pic d'émission bleu à 420 nm. La basse température n'affecte que très peu l'intensité de cette émission. Le pic du Ti^{3+} lui augmente jusqu'à un facteur 2 toujours pour le cristal ayant 50 ppm de Ti.
La figure 6.4 montre l'évolution du spectre d'émission du Ti:Al_2O_3 avec 50 ppm de Ti entre 8 K et 300 K pour des excitations à 175 (7.1 eV) nm et 210 nm (5.9 eV), ainsi que l'évolution de son rendement lumineux intégré sur les gammes 200-900 nm et 600-900 nm. Encore une fois les variations ne

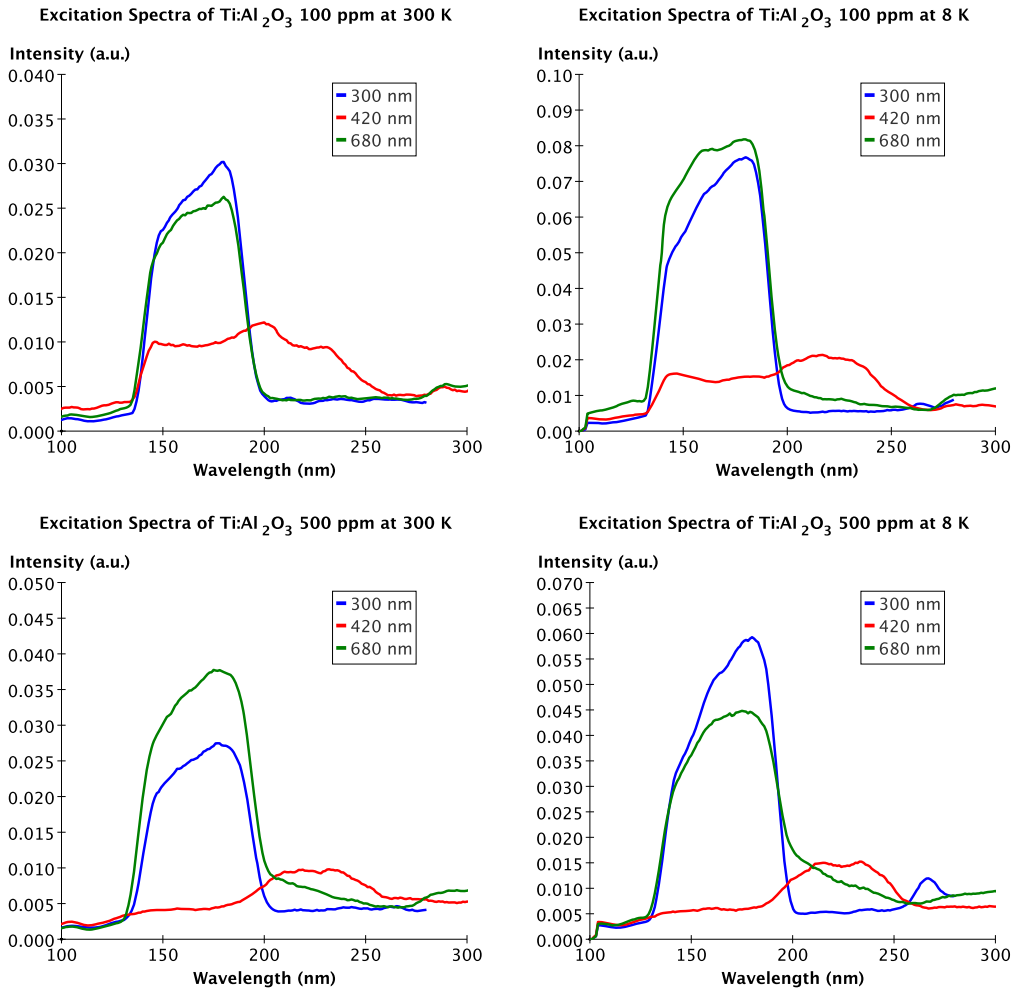

Figure 6.6 – *Spectres d'excitation du Ti:Al_2O_3 à 100 ppm (haut) et 500 ppm (bas) pour deux températures : 300 K (gauche) et 8 K (droite) et différentes longueurs d'onde d'émissions : 300 nm, 420 nm et 680 nm. Les spectres ont été lissés pour la clarté.*

se font que sur les intensités des différentes bandes d'émission (il n'y a pas apparition ou disparition de bandes d'émission).
De manière générale, il est difficile de comparer directement les rendements lumineux obtenus sous rayons X [92, 93] où les énergies mises en jeu entrainent de l'ionisation dans le cristal puis de la scintillation, et ceux-ci obtenus sous excitations VUV pour une unique énergie. Ainsi ces mesures de rendements lumineux obtenus dans cette étude n'apportent pas une réponse satisfaisante tant leur production est différente des processus de scintillation liés à la détection de particules ionisantes.

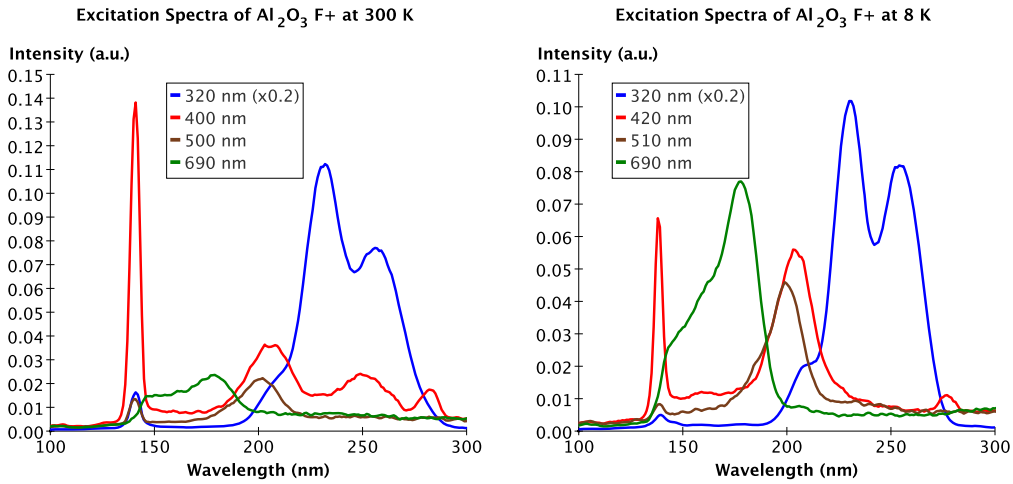

Figure 6.7 – *Spectres d'excitation du F^+:Al_2O_3 pour deux températures : 300 K (gauche) et 8 K (droite) et différentes longueurs d'ondes d'émission : 320 nm, 400 (420) nm, 500 (510) et 690 nm. Les spectres ont été lissés pour la clarté.*

6.3.3 Spectres d'Excitation

Les Figures 6.5, 6.6 et 6.7 présentent les spectres d'excitation obtenus à 300 K et 8 K respectivement pour les cristaux à 10 et 50 ppm, 100 et 500 ppm et pour le cristal F^+, à différentes longueurs d'ondes d'émission. Les spectres on été corrigés et normalisés par un spectre obtenu par irradiation d'un échantillon de sodium salicylate par le faisceau.
L'observation la plus remarquable concerne l'excitation de la bande d'émission bleue à 420 nm. En effet pour les cristaux à forte concentration de Ti (100 et 500 ppm), l'excitation se compose d'une large structure couvrant la plage 138-260 nm (9-4.7 eV) avec une bande plus intense entre 260 nm (4.7 eV) et 190 nm (6.5 eV). Lorsque la concentration en Ti est plus faible (10 et 50 ppm), cette dernière bande est décalée à plus haute énergie avec un pic centré à 210 nm (5.9 eV). Cet effet se voit, d'ailleurs, également pour le cristal F+, semblant encore une fois confirmer le fait que la bande d'émission bleue n'est pas liée au Ti. Les cristaux à 10 et 50 ppm, comme le cristal F^+, présentent également un pic d'excitation de grande intensité à 140 nm (8.8 eV) à température ambiante ainsi qu'à 8 K pour le cristal F^+.
Les émissions à 750 nm, mesurées ici à 680 nm ou 690 nm pour le cristal F^+ (la différence devrait être négligeable), et 290 nm sont dues à une excitation dans une large plage partant d'environ 200 nm (6.2 eV) et disparaissant au dessous de 138 nm (9 eV), énergie correspondant au gap du saphir (9.4

eV). Ces spectres présentent tout de même une différence remarquable car l'excitation de l'émission à 750 nm présente un recouvrement avec l'émission bleue, preuve d'un transfert entre ces deux centres d'émission [98].

Finalement, il semble que les cristaux avec une concentration assez faible en Ti (moins de 100 ppm) ont le net avantage de présenter à la fois une émission importante provenant du Ti^{3+} à 750 nm, et une augmentation du rendement lumineux à basse température. Mais ils présentent également une émission bleue à 420 nm, due aux centres colorés F et dont l'intensité est importante. Ces travaux font l'objet d'un papier soumis à *Journal of Applied Physics*. Le saphir a déjà démontré sa capacité à pouvoir être utilisé en tant que bolomètre pour les expérience de détection de matière sombre. Cependant il sera nécessaire de continuer les études, notamment sous rayonnement α, X ou γ où d'importantes différences ont été observées [92, 93, 64]. Il faut cependant souligner les difficultés liées à l'étude du saphir avec un dispositif comme celui présenté dans les chapitres précédents. En effet le spectre d'émission du titane-saphir imposent l'utilisation de photodétecteurs sensibles dans le rouge et le proche infrarouge impliquant un taux de coups sombre plus élevé, qu'il est cependant possible de réduire par refroidissement des photodétecteurs. Il faut également souligner le fait que la faible masse atomique du saphir rend plus difficile son étude sous rayonnement γ. Il serait également souhaitable d'obtenir les études temporelles, les constantes de temps variables d'une bande d'émission à l'autre pouvant être à l'origine de ces différences.

Conclusion

Finalement, les études menées durant cette thèse ont démontré l'intérêt de l'utilisation de cristaux scintillants en tant que bolomètres pour les expériences de détection d'évènements rares, telles que la recherche directe de matière sombre. La multiplicité des cibles, notamment l'utilisation de cristaux "légers" en complément de cristaux plus "lourds", comme le germanium, permettrait une meilleure compréhension et un meilleur rejet du fond résiduel. Les neutrons, en particulier, sont les ultimes obstacles, leur signal pouvant imiter celui d'un WIMP. L'emploi de différents types de cibles "lourdes" permettrait également de confirmer ou d'infirmer un éventuel signal WIMP par la mesure des taux d'interactions.

Afin de pouvoir caractériser la scintillation de cristaux à basses températures, nous avons mis en place un dispositif expérimental dans le cadre du projet SciCryo. Il est articulé autour d'un cryostat optique dont la compacité de la partie optique offre une bonne collecte de lumière. Elle est suffisante pour l'emploi de sources γ, les détecteurs de lumière étant placés à l'extérieur du cryostat, à température ambiante, donc avec un gain constant lorsque la température du cristal change.
Les mesures des rendements lumineux et des constantes de temps à basses températures imposent de composer avec des temps longs de plusieurs millisecondes et peu de photons. Aussi, l'utilisation d'une méthode de comptage de photons individuels couplée à un traitement statistique des données permet au final d'obtenir les mesures souhaitées, avec par ailleurs une bonne résolution temporelle grâce à l'utilisation de source de rayonnement β^+.
Nous avons au final un dispositif capable de mesurer des constantes de temps de scintillation sur six ordres de grandeur à la fois, allant de quelques nanosecondes à quelques millisecondes, avec seulement quelques dizaines de photons collectés par évènement de scintillation.

Grâce à ce dispositif, des mesures ont pu être effectuées à 3 K et sous excitation γ, sur des cristaux déjà bien connus à température ambiante, que

sont le BGO et le BaF_2. Le BGO montre, à 3 K, une augmentation d'un facteur 5.5 de son rendement lumineux par rapport à la température ambiante. Ses constantes de temps augmentent considérablement, environ d'un facteur 400 pour la constante de déclin des ions Bi^{3+}. On note de plus la présence d'une constante lente de 430 μs, que nous attribuons à de l'afterglow. Ainsi le BGO, malgré des constantes de temps de scintillation assez lentes, est un cristal présentant un réel intérêt pour la détection d'évènements rares, grâce à une masse atomique élevée et un rendement lumineux élevé à basse température.
Le BaF_2, quant à lui, ne montre pas de réelle augmentation du rendement lumineux entre la température ambiante et 3 K. Comme pour le BGO, la durée de ses constantes de temps augmentent prodigieusement. Il présente de plus jusqu'à six composantes à basse température, la plus lente allant jusqu'à plus de 2 ms. La constante de temps moyenne augmente d'environ un facteur 2300. Tout comme le BGO, le BaF_2 est un cristal intéressant du point de vue de la scintillation à basse température et ce malgré ses constantes de temps très lentes et son rendement lumineux moyen.

Enfin, les résultats de spectroscopie du saphir dopé au titane sous VUV, et refroidi jusqu'à 8 K sont présentés. Cette étude démontre, entre autre, que l'émission bleue du saphir est due aux centres colorés F et non à la présence de Ti^{4+}, question ouverte qui a donné cours à de nombreuses publications depuis des dizaines d'années.

Bibliographie

[1] F. Zwicky, "Die Rotverschiebung von extragalaktischen Nebeln," *Helvetica Physica Acta*, vol. 6, pp. 110–127, 1933.

[2] J. P. Ostriker, P. J. E. Peebles, and A. Yahil, "The size and mass of galaxies, and the mass of the universe," *The Astrophysical Journal*, vol. 193, p. L1, 1974.

[3] M. Milgrom, "A modification of the newtonian dynamics as a possible alternative to the hidden mass hypothesis," *The Astrophysical Journal*, vol. 270, pp. 365–370, 1983.

[4] T. S. van Albada, J. N. Bahcall, K. Begeman, and R. Sancisi, "THE DISTRIBUTION OF DARK MATTER IN THE SPIRAL GALAXY NGC- 3198," *Astrophys. J.*, vol. 295, pp. 305–313, 1985.

[5] D. Clowe *et al.*, "A direct empirical proof of the existence of dark matter," *Astrophys. J.*, vol. 648, pp. L109–L113, 2006.

[6] E. Komatsu *et al.*, "Five-Year Wilkinson Microwave Anisotropy Probe (WMAP) Observations :Cosmological Interpretation," *Astrophys. J. Suppl.*, vol. 180, pp. 330–376, 2009.

[7] G. Hinshaw *et al.*, "Five-Year Wilkinson Microwave Anisotropy Probe (WMAP) Observations :Data Processing, Sky Maps, & Basic Results," *Astrophys. J. Suppl.*, vol. 180, pp. 225–245, 2009.

[8] T. Lasserre, "Not enough stellar Mass Machos in the Galactic Halo," *Astron. Astrophys.*, vol. 355, pp. L39–L42, 2000.

[9] C. Alcock *et al.*, "The MACHO project : Microlensing results from 5.7 years of LMC observations," *Astrophys. J.*, vol. 542, pp. 281–307, 2000.

[10] G. Blumenthal, S. Faber, J. Primack, and M. Rees, "Formation of galaxies and large-scale structure with cold dark matter," *Nature*, vol. 311, no. 5986, pp. 517–525, 1984.

[11] G. Jungman, M. Kamionkowski, and K. Griest, "Supersymmetric dark matter," *Phys. Rept.*, vol. 267, pp. 195–373, 1996.

[12] D. Hooper and E. A. Baltz, "Strategies for determining the nature of dark matter," *Annual Review of Nuclear and Particle Science*, vol. 58, no. 1, pp. 293–314, 2008.

[13] O. Adriani *et al.*, "An anomalous positron abundance in cosmic rays with energies 1.5-100[thinsp]GeV," *Nature*, vol. 458, pp. 607–609, Apr. 2009.

[14] F. M. Cardano, "Dark matter search with the AMS-02 experiment," *Nucl. Instrum. Meth.*, vol. A588, pp. 239–242, 2008.

[15] R. Abbasi *et al.*, "Limits on a muon flux from neutralino annihilations in the sun with the icecube 22-string detector," *Phys. Rev. Lett.*, vol. 102, p. 201302, May 2009.

[16] J. D. Zornoza, "First results of the ANTARES neutrino telescope," *J. Phys. Conf. Ser.*, vol. 203, p. 012122, 2010.

[17] P. Vernin, "High-energy neutrino astronomy with the ANTARES telescope," *Int. J. Mod. Phys.*, vol. D19, pp. 1285–1292, 2010.

[18] P. Brun, J. Glicenstein, E. Moulin, and M. Vivier, "Dark matter searches with HESS," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 2010.

[19] E. Aliu, H. Anderhub, L. Antonelli, P. Antoranz, M. Backes, C. Baixeras, S. Balestra, J. Barrio, H. Bartko, D. Bastieri, *et al.*, "Upper limits on the vhe gamma-ray emission from the willman 1 satellite galaxy with the magic telescope," *The Astrophysical Journal*, vol. 697, p. 1299, 2009.

[20] A. Moiseev, "Gamma-ray Large Area Space Telescope : Mission overview," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, vol. 588, no. 1-2, pp. 41–47, 2008.

[21] T. C. I. Collaboration, "Dark Matter Search Results from the CDMS II Experiment," *Science*, p. science.1186112, 2010.

[22] E. Armengaud *et al.*, "First results of the EDELWEISS-II WIMP search using Ge cryogenic detectors with interleaved electrodes," *Phys. Lett.*, vol. B687, pp. 294–298, 2010.

[23] R. F. Lang, "The CRESST-II Experiment," *ArXiv e-prints*, May 2008.

[24] N. Coron, E. García, J. Gironnet, J. Leblanc, P. de Marcillac, M. Martínez, Y. Ortigoza, A. Ortiz de Solórzano, C. Pobes, J. Puimedón, T. Redon, M. L. Sarsa, L. Torres, and J. A. Villar, "Sapphire, bgo and lif scintillating bolometers developed for dark matter experiments," *Proceeding of Science*, vol. IDM 2008 Conference, 2008.

[25] J. Angle *et al.*, "First Results from the XENON10 Dark Matter Experiment at the Gran Sasso National Laboratory," *Phys. Rev. Lett.*, vol. 100, p. 021303, 2008.

[26] V. N. Lebedenko *et al.*, "Results from the first science run of the zeplin-iii dark matter search experiment," *Phys. Rev. D*, vol. 80, p. 052010, Sep 2009.

[27] L. W. Kastens, S. B. Cahn, A. Manzur, and D. N. McKinsey, "Calibration of a liquid xenon detector with $kr83m$," *Phys. Rev. C*, vol. 80, p. 045809, Oct 2009.

[28] E. Aprile, K. Arisaka, F. Arneodo, A. Askin, L. Baudis, A. Behrens, E. Brown, J. Cardoso, B. Choi, D. Cline, *et al.*, "First Dark Matter Results from the XENON100 Experiment," *Arxiv preprint arXiv :1005.0380*, 2010.

[29] K. A. X. collaboration, "The xmass experiment," vol. 1182, pp. 268–271, AIP, 2009.

[30] M. Laffranchi, A. Rubbia, and A. collaboration), "The ardm project : a liquid argon tpc for dark matter detection," *Journal of Physics : Conference Series*, vol. 65, no. 1, p. 012014, 2007.

[31] P. Benetti *et al.*, "First results from a dark matter search with liquid argon at 87 k in the gran sasso underground laboratory," *Astroparticle Physics*, vol. 28, no. 6, pp. 495 – 507, 2008.

[32] M. G. Boulay *et al.*, "Measurement of the scintillation time spectra and pulse-shape discrimination of low-energy beta and nuclear recoils in liquid argon with DEAP-1," *ArXiv e-prints*, Apr. 2009.

[33] N. J. C. Spooner and P. Majewski, "The DRIFT Directional Dark Matter Detector and First Studies of the Head-Tail Effect," 2007.

[34] E. Moulin *et al.*, "An analysis method for time ordered data processing of dark matter experiments," *Astron. Astrophys.*, vol. 453, pp. 761–768, 2006.

[35] C. E. Aalseth *et al.*, "Results from a Search for Light-Mass Dark Matter with a P-type Point Contact Germanium Detector," 2010.

[36] E. Behnke *et al.*, "Improved Spin-Dependent WIMP Limits from a Bubble Chamber," *Science*, vol. 319, pp. 933–936, 2008.

[37] T. Morlat *et al.*, "First results from a prototype CF-3_I SIMPLE dark matter search detector," 2007.

[38] B. Beltran, "Dark matter spin-dependent limits for WIMP interactions on F-19 by PICASSO," *J. Phys. Conf. Ser.*, vol. 203, p. 012032, 2010.

[39] R. Bernabei *et al.*, "First results from DAMA/LIBRA and the combined results with DAMA/NaI," *Eur. Phys. J.*, vol. C56, pp. 333–355, 2008.

[40] J. Collar and D. McKinsey, "Comments on" First Dark Matter Results from the XENON100 Experiment"," *Arxiv preprint arXiv :1005.0838*, 2010.

[41] D. Hooper, J. I. Collar, J. Hall, and D. McKinsey, "A Consistent Dark Matter Interpretation For CoGeNT and DAMA/LIBRA," 2010.

[42] H. S. Lee *et al.*, "Limits on WIMP-nucleon cross section with CsI(Tl) crystal detectors," *Phys. Rev. Lett.*, vol. 99, p. 091301, 2007.

[43] J. D. Lewin and P. F. Smith, "Review of mathematics, numerical factors, and corrections for dark matter experiments based on elastic nuclear recoil," *Astropart. Phys.*, vol. 6, pp. 87–112, 1996.

[44] R. H. Helm, "Inelastic and elastic scattering of 187-mev electrons from selected even-even nuclei," *Phys. Rev.*, vol. 104, pp. 1466–1475, Dec 1956.

[45] A. Kurylov and M. Kamionkowski, "Generalized analysis of the direct weakly interacting massive particle searches," *Phys. Rev. D*, vol. 69, p. 063503, Mar 2004.

[46] J. Engel, S. Pittel, and P. Vogel, "Nuclear physics of dark matter detection," *Int. J. Mod. Phys. E*, vol. 1, no. 1, pp. 1–37, 1992.

[47] M. Sisti, O. Meier, M. Bühler, S. Cooper, V. Jörgens, M. Loidl, U. Nagel, F. Pröbst, W. Seidel, A. Stolovits, *et al.*, "Massive cryogenic particle detectors with low energy threshold," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A*, vol. 466, no. 3, pp. 499–508, 2001.

[48] L. Chabert, *Etude du bruit de fond neutron induit par les muons dans l'expérience EDELWEISS-II.* PhD thesis, Université Claude Bernard Lyon-1, 2004.

[49] V. Sanglard *et al.*, "Final results of the edelweiss-i dark matter search with cryogenic heat-and-ionization ge detectors," *Phys. Rev. D*, vol. 71, p. 122002, Jun 2005.

[50] S. Scorza, "Ph.D Thesis : EDELWEISS-II, direct Dark Matter search experiment : first data analysis and results.," 2009.

[51] A. Broniatowski *et al.*, "A new high-background-rejection dark matter Ge cryogenic detector," *Phys. Lett.*, vol. B681, pp. 305–309, 2009.

[52] H. Kraus *et al.*, "EURECA : The European future of dark matter searches with cryogenic detectors," *Nucl. Phys. Proc. Suppl.*, vol. 173, pp. 168–171, 2007.

[53] J. Ellis, K. A. Olive, Y. Santoso, and V. C. Spanos, "Update on the direct detection of supersymmetric dark matter," *Phys. Rev. D*, vol. 71, p. 095007, May 2005.

[54] W. Röntgen, "Über eine neue Art von Strahlen (Vorlänfige Mitteilung). Sitzungsber," *Physik Med Ges Würzburg*, pp. 132–141, 1895.

[55] R. Hofstadter, "The Detection of Gamma-Rays with Thallium-Activated Sodium Iodide Crystals," *Physical Review*, vol. 75, no. 5, pp. 796–810, 1949.

[56] P. Cherenkov, "Visible Emission of Clean Liquids by Action of Radiation," in *Dokl. Akad. Nauk SSSR*, vol. 2, p. 451, 1934.

[57] P. Lecoq, A. Annenkov, A. Gektin, M. Korzhik, and C. Pedrini, *Inorganic scintillators for detector systems : physical principles and crystal engineering.* Springer Verlag, 2006.

[58] G. F. Knoll, *Radiation Detection and Measurement.* Wiley, 3 ed., 2000.

[59] P. Rodnyi, *Physical processes in inorganic scintillators.* CRC, 1997.

[60] G. Angloher *et al.*, "Limits on WIMP dark matter using scintillating CaWO4 cryogenic detectors with active background suppression," *Astroparticle Physics*, vol. 23, pp. 325–339, Apr. 2005.

[61] L. Gironi, C. Arnaboldi, S. Capelli, O. Cremonesi, G. Pessina, S. Pirro, and M. Pavan, "CdWO4 bolometers for double beta decay search," *Optical Materials*, vol. 31, pp. 1388–1392, Aug. 2009.

[62] P. Meunier, M. Bravin, M. Bruckmayer, S. Giordano, M. Loidl, O. Meier, F. Pröbst, W. Seidel, M. Sisti, L. Stodolsky, *et al.*, "Discrimination between nuclear recoils and electron recoils by simultaneous detection of phonons and scintillation light," *Applied Physics Letters*, vol. 75, p. 1335, 1999.

[63] G. Bizarri, J. de Haas, P. Dorenbos, and C. van Eijk, "First time measurement of gamma-ray excited LaBr3 : 5% Ce3+ and LaCl3 : 10% Ce3+ temperature dependent properties," *physica status solidi (a)*, vol. 203, no. 5, pp. R41–R43, 2006.

[64] P. C. F. Di Stefano, N. Coron, P. De Marcillac, C. Dujardin, M. Luca, F. Petricca, F. Proebst, S. Vanzetto, and M.-A. Verdier, "The SciCryo project and cryogenic scintillation of Al2O3 for dark matter," *Journal of Low Temperature Physics*, vol. 151, no. 3-4, 2008.

[65] H. Kraus, V. B. Mikhailik, and D. Wahl, "Multiple photon counting coincidence (MPCC) technique for scintillator characterisation and its application to studies of CaWO4 and ZnWO4 scintillators," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A*, vol. 553, pp. 522–534, Nov. 2005.

[66] "Air Liquide Advanced Technologies, BP 15, 38360 Sassenage, France," *www.dta.airliquide.com.*

[67] P. de Marcillac, N. Coron, G. Dambier, J. Leblanc, and J. Moalic, "Experimental detection of α-particles from the radioactive decay of natural bismuth," *Nature*, vol. 422, no. 6934, pp. 876–878, 2003.

[68] J. Gironnet, V. B. Mikhailik, H. Kraus, P. de Marcillac, and N. Coron, "Scintillation studies of Bi4Ge3O12 (BGO) down to a temperature of 6 K," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A*, vol. 594, no. 3, pp. 358–361, 2008.

[69] Hamamatsu, "R6095 Photomultiplier Datasheet,"

[70] I. Holl, E. Lorenz, and G. Mageras, "A measurement of the light yield of common inorganic scintillators," *IEEE Transactions on Nuclear Science*, vol. 35, no. 1 Part 1, pp. 105–109, 1988.

[71] W. Shurcliff, "Trapping of fluorescent light produced within objects of high geometrical symmetry," *Journal of the Optical Society of America (1917-1983)*, vol. 39, p. 912, 1949.

[72] R. Nitsche, "Crystal growth and Electro-Optic effect of bismuth germanate, $bi_4(geo_4)_3$," *Journal of Applied Physics*, vol. 36, no. 8, pp. 2358–2360, 1965.

[73] R. Sumner, "The L3 BGO electromagnetic calorimeter," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, vol. 265, pp. 252–257, 1988.

[74] Z. H. Cho and M. R. Farukhi, "Bismuth germanate as a potential scintillation detector in positron cameras," *J Nucl Med*, vol. 18, pp. 840–844, Aug. 1977.

[75] Z. Cho, M. Petroff, and R. Bharat, "Scintillation of bismuth germanate at liquid helium temperatures," *IEEE Transactions on Nuclear Science*, vol. 38, no. 6 Part 1, pp. 1786–1788, 1991.

[76] L. Dinca, P. Dorenbos, J. de Haas, V. Bom, and C. Van Eijk, "Alpha-gamma pulse shape discrimination in CsI : Tl, CsI : Na and BaF2 scintillators," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, vol. 486, no. 1-2, pp. 141–145, 2002.

[77] E. Sysoeva, V. Tarasov, O. Zelenskaya, and V. Sulyga, "The study of [alpha]/[gamma] ratio for inorganic scintillation detectors," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A*, vol. 414, no. 2-3, pp. 274–278, 1998.

[78] N. Coron, G. Dambier, E. Leblanc, J. Leblanc, P. de Marcillac, and J. Moalic, "Scintillating and particle discrimination properties of selected crystals for low-temperature bolometers : from LiF to BGO," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A*, vol. 520, no. 1-3, pp. 159–162, 2004.

[79] R. Moncorgé, B. Jacquier, and G. Boulon, "Temperature dependent luminescence of Bi4Ge3O12 discussion of possible models," *Journal of Luminescence*, vol. 14, no. 5-6, pp. 337–348, 1976.

[80] M. Moszynski, C. Gresset, J. Vacher, and R. Odru, "Timing properties of bgo scintillator," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, vol. 188, no. 2, pp. 403 – 409, 1981.

[81] N. Tsuchida, M. Ikeda, T. Kamae, and M. Kokubun, "Temperature dependence of gamma-ray excited scintillation time profile and light yield of gso, yso, yap and bgo," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, vol. 385, no. 2, pp. 290 – 298, 1997.

[82] E. Dieguez, L. Arizmendi, and J. Cabrera, "X-ray induced luminescence, photoluminescence and thermoluminescence of Bi4Ge3O12," *Journal of Physics C : Solid State Physics*, vol. 18, pp. 4777–4783, 1985.

[83] F. Rogemond, C. Pedrini, B. Moine, and G. Boulon, "Fluorescence properties of bi4ge3o12(bgo) single crystals under laser excitation : Excited state dynamics and saturation effects," *Journal of Luminescence*, vol. 33, no. 4, pp. 455 – 486, 1985.

[84] A. Douraghy, D. Prout, R. Silverman, and A. Chatziioannou, "Evaluation of scintillator afterglow for use in a combined optical and PET imaging tomograph," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, vol. 569, no. 2, pp. 557–562, 2006.

[85] P. Rodnyi, "Core–valence luminescence in scintillators," *Radiation measurements*, vol. 38, no. 4-6, pp. 343–352, 2004.

[86] M. Laval, M. Moszyski, R. Allemand, E. Cormoreche, P. Guinet, R. Odru, and J. Vacher, "Barium fluoride–Inorganic scintillator for subnanosecond timing," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, vol. 206, no. 1-2, pp. 169–176, 1983.

[87] P. Schotanus, C. Van Eijk, R. Hollander, and J. Pijpelink, "Photoelectron production in BaF2-TMAE detectors," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, vol. 259, no. 3, pp. 586–588, 1987.

[88] M. Itoh, M. Kamada, and N. Ohno, "Temperature dependence of Auger-free luminescence in alkali and alkaline-earth halides," *Journal of the Physical Society of Japan*, vol. 66, no. 8, pp. 2502–2512, 1997.

[89] P. Schotanus, C. Van Eijk, R. Hollander, and J. Pijpelink, "Temperature dependence of BaF2 scintillation light yield," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, vol. 238, no. 2-3, pp. 564–565, 1985.

[90] K. Wisshak and F. Käppeler, "Large barium fluoride detectors," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, vol. 227, no. 1, pp. 91–96, 1984.

[91] S. Kubota, M. Suzuki, R. Jian-Zhi, F. Shiraishi, and Y. Takami, "Variation of luminescence decay in BaF2 crystal excited by electrons, alpha particles and fission fragments," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, vol. 242, no. 2, pp. 291–294, 1986.

[92] M. Luca, "Ph.D Thesis : Sapphire scintillation tests for cryogenic detectors in the EDELWEISS dark matter search," 2007.

[93] M. Luca, N. Coron, C. Dujardin, H. Kraus, V. Mikhailik, M. Verdier, and P. Di Stefano, "Scintillating and optical spectroscopy of Al2O3 : Ti for dark matter searches," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A*, vol. 606, no. 3, pp. 545–551, 2009.

[94] T. Maiman, "Stimulated optical radiation in ruby," 1960.

[95] P. Moulton, "Spectroscopic and laser characteristics of Ti : Al_2O_3," *Journal of the Optical Society of America B*, vol. 3, no. 1, pp. 125–133, 1986.

[96] F. Pröbst, G. Angloher, M. Bruckmayer, C. Bucci, S. Cooper, P. Di Stefano, F. Von Feilitzsch, T. Frank, D. Hauff, T. Jagemann, *et al.*, "Results of CRESST phase I," *Nuclear Physics B-Proceedings Supplements*, vol. 110, pp. 67–69, 2002.

[97] J. Amare *et al.*, "Light yield of undoped sapphire at low temperature under particle excitation," *Applied Physics Letters*, vol. 87, no. 26, p. 264102, 2005.

[98] V. Mikhailik, H. Kraus, M. Balcerzyk, W. Czarnacki, M. Moszynski, M. Mykhaylyk, and D. Wahl, "Low-temperature spectroscopic and scintillation characterisation of Ti-doped Al2O3," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A*, vol. 546, no. 3, pp. 523–534, 2005.

[99] A. Surdo, V. Kortov, and V. Pustovarov, "Luminescence of F and F+ centers in corundum upon excitation in the interval from 4 to 40 eV," *Radiation measurements*, vol. 33, no. 5, pp. 587–591, 2001.

[100] W. Wong, D. McClure, S. Basun, and M. Kokta, "Charge-exchange processes in titanium-doped sapphire crystals. I. Charge-exchange energies and titanium-bound excitons," *Physical Review B*, vol. 51, no. 9, pp. 5682–5692, 1995.

[101] G. Blasse and J. Verweij, "The luminescence of titanium in sapphire laser material," *Materials Chemistry and Physics*, vol. 26, no. 2, pp. 131–137, 1990.

[102] R. Powell, G. VENIKOUAS, L. XI, J. TYMINSKI, and M. KOKTA, "Thermal effects on the optical spectra of Al 2 O 3 : Ti (3+)," *Journal of Chemical Physics,*, vol. 84, pp. 662–665, 1986.

[103] G. Zimmerer, "Status report on luminescence investigations with synchrotron radiation at HASYLAB," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A*, vol. 308, no. 1-2, pp. 178–186, 1991.

[104] D. Nelson and M. Sturge, "Relation between absorption and emission in the region of the R lines of ruby," *Phys. Rev*, vol. 137, pp. 1117–1130, 1965.

[105] A. Surdo, V. Pustovarov, V. Kortov, A. Kishka, and E. Zinin, "Luminescence in anion-defective [alpha]-Al2O3 crystals over the nano-, micro-and millisecond intervals," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A*, vol. 543, no. 1, pp. 234–238, 2005.

NOM : VERDIER (avec précision du nom de jeune fille, le cas échéant) Prénoms : Marc Antoine	DATE de SOUTENANCE 8 octobre 2010

TITRE : Scintillateurs cryogéniques pour la détection d'événements rares, dans les expériences EDELWEISS et EURECA

Numéro d'ordre : 173-2010

DIPLOME DE DOCT.	DOCTEUR-INGENIEUR	DOCTORAT D'ETAT	DOCTORAT DE 3e CYCLE	Spécialité : Physique des Particules
X	☐	☐	☐	

Cote B.I.U. - Lyon : T 50/210/19 / et bis	CLASSE :

RESUME :

Une solution au problème astrophysique de la matière sombre pourrait être apportée par la détection de WIMPs, particules prédites par la supersymétrie. Sa détection directe nécessite de grandes masses de détecteurs capables d'identifier le signal d'un WIMP parmi le fond radioactif et cosmique environnant. Cette thèse se déroule dans le cadre de l'expérience EDELWEISS et la future expérience EURECA qui lui succédera. Ces expériences utilisent une technologie basée sur des détecteurs cryogéniques (bolomètres) à double voies, fonctionnant à quelques dizaines de mK. Ils sont constitués de cristaux qui sont le siège des interactions des particules, dont les dépôts d'énergie vont entraîner une élévation de température ainsi que l'ionisation du cristal, pouvant entraîner des charges ou des photons selon sa nature. Afin d'augmenter la palette de cibles pouvant faire office de bolomètres scintillants, nous avons mis en place un dispositif expérimental permettant d'étudier la scintillation de cristaux refroidis jusqu'à 3 K. Il est basé sur un cryostat à géométrie optique compacte permettant une collecte de lumière améliorée. Une méthode de comptage de photons individuels ainsi qu'un traitement statistique des données permettent de mesurer l'évolution du rendement lumineux et des constantes de temps de scintillation de cristaux entre la température ambiante et 3K. Cette thèse présente ainsi les résultats obtenus à 3 K avec ce dispositif expérimental sur deux cristaux, bien connus à température ambiante: le BGO ($Bi_4Ge_3O_{12}$) et le BaF_2. Nous présentons également les résultats sur la luminescence du saphir dopé au titane ($Ti:Al_2O_3$), sous VUV et refroidi à 8 K.

MOTS-CLES : Matière Noire – Scintillation – Basse température – Détection directe – BGO – BaF_2 – Al_2O_3

Directeurs de recherches : Jules Gascon et Philippe Di Stefano

Composition du jury : C. Dujardin - E. Auffray-Hillemanns - C. Brofferio - D. Thers - H. Kraus	127 pages