



Comprendre le monde,
construire l'avenir®



UNIVERSITÉ PARIS-SUD

ÉCOLE DOCTORALE 534 :
MODÉLISATION ET INSTRUMENTATION EN PHYSIQUE, ÉNERGIES, GÉOSCIENCES
ET ENVIRONNEMENT

Laboratoire :

*Centre de Sciences Nucléaires et de Sciences de la Matière (Orsay, France)
Département de la Physique des Leptons - Institut de Recherche Nucléaire NASU (Kiev,
Ukraine)*

THÈSE DE DOCTORAT

PHYSIQUE

par

Dmitry CHERNYAK (Dmytro CHERNIAK)

DÉVELOPPEMENT DE DETECTEURS CRYOGENIQUES A FAIBLE
BRUIT DE FOND COMPOSÉS DE CRISTAUX SCINTILLATEURS
ENRICHIS EN MOLYBDATE DE ZINC POUR LA RECHERCHE DE LA
DOUBLE DESINTEGRATION BETA SANS NEUTRINOS DU ^{100}Mo

Date de soutenance : 08/07/2015

Composition du jury :

Directeur de thèse :
Co-directeur de thèse :

Andrea GIULIANI
Fedor DANEVICH

DR1 (CSNSM)
Professeur (Institute for Nuclear Research)

Rapporteurs :

Corinne AUGIER
Alessandra TONAZZO
David LUNNEY
Oleg PONKRATENKO

Professeur (UCBL Lyon 1 et IPNL)
Directeur-adjoint du laboratoire (Laboratoire APC)
DR1 (CSNSM)
Professeur (Institute for Nuclear Research)

Examineurs :

**Institut de recherche nucléaire
Académie nationale des sciences d'Ukraine
Ph.D. co-tutelle thèse à l'Université Paris Sud 11**

**DÉVELOPPEMENT DE DETECTEURS CRYOGENIQUES A FAIBLE BRUIT DE
FOND COMPOSÉS DE CRISTAUX SCINTILLATEURS ENRICHIS EN MOLYBDATE
DE ZINC POUR LA RECHERCHE-DE LA DOUBLE DESINTEGRATION BETA SANS
NEUTRINOS DU ^{100}Mo**

Thèse présentée pour l'obtention d'un
DOCTORAT en PHYSIQUE
par
Dmitry CHERNYAK (Dmytro CHERNIAK)

Laboratoires d'accueil:
Département de la Physique des Leptons - Institut de Recherche Nucléaire NASU (Kiev,
Ukraine)
Centre de Sciences Nucléaires et de Sciences de la Matière (Orsay, France)

*Superviseur en France: Pr. A. Giuliani
Superviseur en Ukraine: Dr. F. Danevich*

RÉSUMÉ

La double désintégration bêta (2β) est une transition nucléaire rare qui change la charge nucléaire Z de deux unités. Il existe 69 noyaux naturels pair-pair pour lesquels un tel processus est possible et il y a, en particulier, 35 isotopes $2\beta^-$ parmi eux. Tandis que la transition impliquant deux électrons et deux (anti)neutrinos ($2\nu 2\beta$) est autorisée par le Modèle Standard (MS) et a déjà été observée pour 11 isotopes, il n'en est pas de même pour la double désintégration bêta sans neutrino ($0\nu 2\beta$), qui ne peut se produire que si le neutrino est une particule massive de Majorana. Les observations des oscillations de neutrinos donnent une preuve claire que le neutrino est une particule massive. Toutefois, seule la mesure de la décroissance $0\nu 2\beta$ pourrait établir la nature de Majorana du neutrino, aider à résoudre le problème de la hiérarchie des neutrinos, mesurer la masse effective de Majorana et tester la conservation de nombre de lepton [1, 2, 3]. En outre, ce processus pourrait clarifier la présence de courants de chiralité droite dans l'interaction faible et prouver l'existence de Majorons. La désintégration $0\nu 2\beta$ est hypothétiquement possible en dehors du Modèle Standard. Tenant compte de l'incertitude des estimations théoriques de la probabilité de désintégration $0\nu 2\beta$, le développement de méthodes expérimentales pour différents isotopes 2β est fortement demandé.

L'isotope ^{100}Mo est l'un des plus prometteurs parmi les noyaux candidats 2β , en raison de sa grande énergie de transition $Q_{2\beta} = 3034.40$ (17) keV [4] et une abondance isotopique naturelle considérable $\delta = 9.8\%$. Du point de vue expérimental, une valeur grande de $Q_{2\beta}$ simplifie le problème de la réduction du bruit de fond induit par la radioactivité naturelle et l'activation cosmogénique.

Actuellement, la meilleure sensibilité à la désintégration $0\nu 2\beta$ du ^{100}Mo a été atteinte par la collaboration NEMO-3 avec ≈ 7 kg du ^{100}Mo enrichi. L'expérience a fixé une limite de demi-vie $T_{1/2}^{0\nu 2\beta} > 1.1 \times 10^{24}$ ans avec un niveau de confiance de 90% (N.C.). Malgré ce résultat précieux, la technique de NEMO présente deux inconvénients qui limitent sa sensibilité: une faible efficacité de détection aux événements $0\nu 2\beta$ ($\approx 14\%$) et une résolution en énergie plutôt basse ($\approx 10\%$ à l'énergie du $Q_{2\beta}$ du ^{100}Mo). L'efficacité de détection peut être améliorée jusqu'à 80%–90% dans l'approche soi-disant "source=détecteur" utilisant un détecteur contenant du molybdène. Seuls les bolomètres cryogéniques et semi-conducteurs en germanium hyperpure (HPGe) peuvent fournir une résolution en énergie suffisamment élevée (quelques keV à $Q_{2\beta}$). Cependant, la région d'énergie au-dessus de 2615 keV (ligne gamma la plus élevée de la radioactivité naturelle) est dominée par des particules alpha qui fournissent un fond significatif. Néanmoins, la détection simultanée des signaux de phonons et de scintillation par des bolomètres à scintillation cryogéniques permet une discrimination efficace des particules interagissant, ce qui est importante pour rejeter le bruit de fond provoqué par les particules α . Par conséquent, les bolomètres à scintillation cryogéniques sont des détecteurs très prometteurs pour rechercher la double désintégration bêta sans neutrinos dans les expériences de la prochaine génération.

Il existe plusieurs scintillateurs inorganiques contenant du molybdène. Les plus prometteurs d'entre eux sont les molybdates de Calcium (CaMoO_4), Cadmium (CdMoO_4), Plomb (PbMoO_4), Strontium (SrMoO_4), Lithium (Li_2MoO_4) et Zinc (ZnMoO_4). Cependant le CaMoO_4 contient l'isotope actif $2\nu 2\beta$ du ^{48}Ca qui crée un bruit de fond autour de l'énergie d'intérêt pour le ^{100}Mo . Le CdMoO_4 contient le nuclide β -actif ^{113}Cd ($T_{1/2}^{0\nu 2\beta} = 8.04 \times 10^{15}$ ans, $\delta = 12.22\%$)

qui, en plus d'être bêta actif, a une section efficace très élevée pour la capture des neutrons thermiques. Un inconvénient potentiel du PbMoO_4 est que le ^{100}Mo ne serait que 27% de la masse totale. Les possibilités actuelles de production du SrMoO_4 sont loin de la masse et de la qualité des cristaux nécessaires; en outre, ce composé présente une contamination possible par le ^{90}Sr anthropogénique. Les avantages importants de Li_2MoO_4 sont ses plus fortes concentrations de molybdène que les autres scintillateurs parmi les cristaux de molybdate (55.2% en poids), l'absence d'isotopes radioactifs de longue durée de vie et le processus de croissance cristalline relativement facile [5]. Cependant, le rendement de scintillation du Li_2MoO_4 est le plus bas parmi tous les cristaux de molybdate mentionnés. La prérogative importante des cristaux en ZnMoO_4 est l'absence des éléments lourds et sa haute concentration en molybdène (43% en poids).

La recherche de la décroissance du ^{100}Mo demande le développement de scintillateurs en molybdate de zinc enrichi en grand volume, avec faibles niveaux de contaminations radioactives, bonnes propriétés bolométriques, efficacité de scintillation et bonnes qualités optiques. Des progrès récents dans la production du ZnMoO_4 ont vu le développement d'une technique de purification du molybdène en deux phases : sublimation double avec addition de molybdate de zinc et recristallisation à partir d'une solution aqueuse de para-molybdate d'ammonium [6]. Cette méthode de purification, combinée avec la technique Czochralski à bas gradient thermique, a mené à une amélioration significative de la qualité des cristaux ZnMoO_4 . On a produit deux cristaux de ZnMoO_4 naturels avec une masse d'environ 0.3 kg et deux cristaux de $\text{Zn}^{100}\text{MoO}_4$ enrichis en ^{100}Mo jusqu'à 99.5% avec une masse de 59 g et 63 g. Le rendement des boules cristallines était environ 84%; les pertes irrécupérables de molybdène enrichi ne dépassent pas le 4%, grâce à la technique de cristallisation de Czochralski à faible gradient thermique. Récemment, un boule cristalline de molybdate de zinc enrichi en ^{100}Mo avec une masse de ~ 1.4 kg a été synthétisée par cette méthode.

L'étude des propriétés optiques et de luminescence des cristaux en ZnMoO_4 , produits à partir du molybdène extrêmement purifié, a confirmé la meilleure qualité des détecteurs [6, 7]. Des tests à températures cryogéniques ont été conduits sur un cristal de ZnMoO_4 de 313 g (précurseur de ceux obtenus avec la technique de purification à deux phases décrite ci-dessus) et deux $\text{Zn}^{100}\text{MoO}_4$ enrichis (masses de 59.2 g et 62.9 g), dans une installation en surface au Centre de Sciences Nucléaires et de Sciences de la Matière (CSNSM, Orsay, France) [8]. Dans l'installation EDELWEISS au Laboratoire Souterrain de Modane on a également mené dans le cadre de cette thèse. Des mesures à faible fond radioactif sur trois échantillons en ZnMoO_4 naturel (le précurseur de 313 g et deux cristaux avancés de 336 g et 334 g développés avec la double purification) et sur les deux détecteurs enrichis mentionnés ci-dessus. Ces tests bolométriques ont démontré les caractéristiques excellentes des cristaux développés. Les techniques de purification adoptées ont amélioré considérablement le niveau de contamination radioactive en ^{232}Th et ^{238}U jusqu'à ≤ 0.005 mBq/kg.

Afin d'optimiser l'efficacité de collecte de lumière dans les bolomètres scintillants en ZnMoO_4 , on a effectué une simulation Monte Carlo, en utilisant le paquet GEANT4, en étudiant la collecte des photons de scintillation dans un module de détecteurs avec différentes géométries. La simulation a démontré les avantages d'une géométrie hexagonale (octaédrique) des cristaux par rapport à une forme cylindrique. En outre, l'efficacité et l'uniformité de collecte de lumière sont meilleures si la surface du cristal scintillant est diffusée [7]. La réponse à la désintégration du ^{100}Mo a été simulée pour un détecteurs en $\text{Zn}^{100}\text{MoO}_4$ enrichi en différentes configurations (hexagonale, octaédrique et cylindrique) et masses (59.2 g et 495 g), pour étudier la

dépendance du spectre de décroissance $2\nu 2\beta$ par rapport à la géométrie du cristal. La simulation Monte Carlo n'a démontré aucune dépendance significative du spectre obtenu en fonction de la forme du cristal.

On a effectué une simulation Monte Carlo d'un ensemble de 48 bolomètres scintillants en $\text{Zn}^{100}\text{MoO}_4$ (masse 495 g et taille $\varnothing 60 \times 40$ mm) dans l'installation d'EDELWEISS. On a simulé la contamination due aux noyaux fils des chaînes du ^{232}Th et de ^{238}U et aux noyaux cosmogéniques dans les cristaux et les matériaux aux alentours (holder en cuivre, pattes de PTFE et feuille réfléchissante BoPET). Le fond total dans la région énergétique d'intérêt est estimé être 4.1×10^{-4} coups/(keV·kg·an).

Vu la modeste résolution temporelle des bolomètres cryogéniques, les coïncidences aléatoires des événements, en particulier de la désintégration $2\nu 2\beta$, peuvent constituer une des majeures sources de bruit dans la région énergétique d'intérêt [9, 10]. Le fond généré par les coïncidences aléatoires des signaux $2\nu 2\beta$ est une contribution irréductible, comme c'est liée à la présence de l'isotope d'intérêt dans le composé chimique du scintillateur. Néanmoins, sa contribution peut être réduite de ≈ 0.02 coups/(keV·kg·an) au niveau de $\approx 10^{-4}$ coups/(keV·kg·an) dans la région de la $Q_{2\beta}$ -valeur, en employant les méthodes de discrimination en forme du signal développées au cours de ces travaux de thèse. Il faut souligner que le rapport signal-bruit est une des propriétés les plus importantes pour rejeter les coïncidences aléatoires. Des algorithmes précis pour reconstruire l'origine temporelle des signaux sont aussi fondamentales. D'ailleurs, il faut que la fréquence d'échantillonnage pendant l'acquisition des données soit assez haute pour que la discrimination des coïncidences aléatoires soit efficace. Toutes les méthodes de discrimination en forme, n'importe lesquelles, doivent être optimisées en tenant en compte certaines performances du détecteur.

Le taux total du bruit du fond des bolomètres scintillants en $\text{Zn}^{100}\text{MoO}_4$ peut être estimé environ $\approx 5 \times 10^{-4}$ coups/(keV·kg·an) à la $Q_{2\beta}$ -valeur, y compris $\approx 4 \times 10^{-4}$ coups/(keV·kg·an) de la contamination radioactive du détecteur et du set-up expérimental et $\approx 10^{-4}$ coups/(keV·kg·an) des événements en coïncidence aléatoire.

Le progrès actuel de la production des cristaux en molybdate de zinc, les mesures cryogéniques effectuées et les simulations Monte Carlo des bolomètres scintillants permettent de conclure que les bolomètres scintillants développés avec des cristaux en $\text{Zn}^{100}\text{MoO}_4$ sont des excellents détecteurs pour une expérience de prochaine génération à grande envergure orientée à la recherche de la double décroissance bêta sans neutrinos, ayant pour but l'exploration de la région de la hiérarchie inversée des masses du neutrino.

-
1. F.T. Avignone III, S.R. Elliott, J. Engel, *Double beta decay, Majorana neutrinos, and neutrino mass*. Rev. Mod. Phys. 80 (2008) 481.
 2. W. Rodejohann, *Neutrino-less Double Beta Decay and Particle Physics*. Int. J. Mod. Phys. 20 (2011) 1833.
 3. A. Giuliani and A. Poves, *Neutrinoless Double-Beta Decay*. Advances in High Energy Physics 2012 (2012) 857016.
 4. S. Rahaman et al., *Q values of the ^{76}Ge and ^{100}Mo double-beta decays*. Physics Letters B 662 (2008) 111–116.

-
5. T.B. Bekker et al., *Aboveground test of an advanced Li_2MoO_4 scintillating bolometer to search for neutrinoless double beta decay of ^{100}Mo* . arXiv:1410.6933v2.
 6. L. Berge et al., *Purification of molybdenum, growth and characterization of medium volume ZnMoO_4 crystals for the LUMINEU program*. JINST 9 (2014) P06004.
 7. D.M. Chernyak et al., *Optical, luminescence and thermal properties of radiopure ZnMoO_4 crystals used in scintillating bolometers for double beta decay search*. Nucl. Instrum. Meth. A 729 (2013) 856.
 8. A.S. Barabash et al., *Enriched $\text{Zn}^{100}\text{MoO}_4$ scintillating bolometers to search for $0\nu 2\beta$ decay of ^{100}Mo with the LUMINEU experiment*. Eur. Phys. J. C 74 (2014) 3133.
 9. D.M. Chernyak et al., *Random coincidence of $2\nu 2\beta$ decay events as a background source in bolometric $0\nu 2\beta$ decay experiments*. Eur. Phys. J. C 72 (2012) 1989.
 10. D.M. Chernyak et al., *Rejection of randomly coinciding events in ZnMoO_4 scintillating bolometers*. Eur. Phys. J. C 74 (2014) 2913.