



**HAL**  
open science

# Détermination des intensités absolues d'émission XL d'actinides à l'aide d'un calorimètre métallique magnétique de haute résolution

Riham Mariam

► **To cite this version:**

Riham Mariam. Détermination des intensités absolues d'émission XL d'actinides à l'aide d'un calorimètre métallique magnétique de haute résolution. Instrumentations et Détecteurs [physics.ins-det]. Université Paris-Saclay, 2019. Français. NNT : 2019SACLS091 . tel-02168031

**HAL Id: tel-02168031**

**<https://theses.hal.science/tel-02168031>**

Submitted on 28 Jun 2019

**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.

# Détermination des intensités absolues d'émission XL d'actinides à l'aide d'un calorimètre métallique magnétique de haute résolution

Thèse de doctorat de l'Université Paris-Saclay  
préparée à l'Université Paris Sud

Ecole doctorale n°576 : particules hadrons énergie et noyau :  
instrumentation, imagerie, cosmos et simulation (Pheniics)  
Spécialité de doctorat : Aval du cycle nucléaire, radioprotection et radiochimie

Thèse présentée et soutenue à Saclay, le 12 avril 2019, par

**RIHAM MARIAM**

Composition du Jury :

**M. Pierre De Marcillac**

Chercheur, Université Paris Sud (CNRS-CSNSM)

Président

**M. Jules Gascon**

Enseignant Chercheur, Université Claude Bernard (Institut  
de Physique Nucléaire de Lyon)

Rapporteur

**M. Philippe Jonnard**

Directeur de recherche, Sorbonne université (Laboratoire de  
Chimie Physique - Matière et Rayonnement)

Rapporteur

**M. Martin Loidl**

Directeur de recherche, CEA-Paris Saclay (LNHB)

Directeur de thèse

**M. Matias Rodrigues**

Ingénieur de recherche, CEA-Paris Saclay (LNHB)

Encadrant invité

## REMERCIEMENTS

À l'issu de la rédaction de cette thèse, je suis convaincue que ce travail n'aurait pu être mené sans l'aide précieuse de nombreuses personnes que je tiens à remercier.

J'aimerais d'abord remercier grandement mon directeur de thèse Martin Loidl de m'avoir fait confiance pour travailler sur ce projet. Travailler en sa compagnie était un grand plaisir car, outre son appui scientifique et ses conseils avisés, il a toujours été là pour me motiver.

Je remercie également fortement Matias Rodrigues de m'avoir encadré tout au long de ma thèse. Je lui suis reconnaissante pour tout le temps qu'il m'a consacré, toutes les connaissances qu'il a partagées avec moi, sa sympathie et sa franchise.

Mes remerciements vont également au Pr. Jules Gascon et au Pr. Phillippe Jonnard pour l'honneur qu'ils m'ont fait d'avoir accepté de rapporter cette thèse, ainsi qu'au Dr. Pierre De Marcillac et Dr. Eduardo Gracia-Toraño d'avoir bien voulu examiner mon travail de thèse.

Je désire remercier Loïc De Carlan, Thierry Branger et Mark Kellet de m'avoir accueillie au sein du laboratoire LNHB et le département DM2I du CEA d'avoir financé ce projet.

Je tiens à exprimer ma gratitude à Carole Fréchou pour sa relecture méticuleuse de mon manuscrit de thèse, pour ses suggestions toujours avisées ainsi que pour son soutien moral durant ces années et pour son aide pour franchir la phase délicate de la rédaction. Je tiens à te remercier fortement pour ta présence à mes côtés jusqu'au dernier moment pour m'aider et absorber complètement mon stress. Je n'oublierai jamais mes passages dans ton bureau pour me motiver et de me faire apprendre qu'à un moment il faut regarder la moitié pleine du verre.

J'adresse mes remerciements à tous les membres du LNHB : Sylvie, Laurine, Christophe D., Marie-Christine, Yves, Philippe, Valérie, Sophie, Margot, Jacques, Christophe B., Cheikh, Xa-

vier, Jean, Isabelle, Benoît.

Un grand merci également à Vanessa qui a toujours été à mes côtés avec ses mots d'encouragement très précieux.

Je tiens à remercier mes amis et mes collègues Mikaël, Abhilasha, Jonathan, Mohsen et Mehdi pour leur magnifique accompagnement.

Un merci très spécial à Maya qui m'a accompagnée le long de notre séjour en France. Merci pour son soutien indéfectible et son enthousiasme contagieux à l'égard de mes travaux comme de la vie en général.

Je tiens à remercier aussi mes amis, Iman, Sabine, Issaad et Sara pour leur soutien.

Ma grande reconnaissance très chaleureuse va enfin à ma famille : mon père, ma mère, mes frères Bader et Moustafa et ma sœur Sara. Sans leur soutien affectif je n'aurais jamais abouti à la fin.





<b>1</b>	<b>Physique des émissions photoniques des actinides et instrumentation de détection</b>	<b>10</b>
1.1	Les actinides dans l'environnement et l'industrie . . . . .	10
1.2	Analyse et quantification des actinides . . . . .	13
1.2.1	Analyse destructive : AD . . . . .	13
1.2.2	Analyse non-destructive : AND . . . . .	14
1.3	Intensités et probabilités d'émissions photoniques par les actinides . . . . .	18
1.3.1	Désintégration radioactive et émission $\gamma$ . . . . .	18
1.3.1.1	Désintégration $\alpha$ et $\beta$ . . . . .	19
1.3.1.2	Emission $\gamma$ . . . . .	20
1.3.1.3	Conversion interne . . . . .	21
1.3.2	Réarrangements électroniques . . . . .	22
1.3.2.1	Les couches électroniques . . . . .	22
1.3.2.2	Transitions radiatives et non radiatives . . . . .	23
1.3.2.3	Les largeurs naturelles des raies . . . . .	26
1.3.2.4	Calculs et incertitudes des probabilités d'émissions XL . . . . .	28
1.4	Spectrométrie de photons et mesure des intensités d'émission XL . . . . .	31
1.4.1	Interaction rayonnement-matière . . . . .	32
1.4.1.1	Coefficient d'atténuation . . . . .	32
1.4.1.2	Effet photoélectrique . . . . .	34
1.4.1.3	Diffusion Compton . . . . .	35
1.4.1.4	Spectre en énergie . . . . .	36
1.4.2	Spectromètres . . . . .	39
1.4.2.1	Détecteur à semi-conducteur . . . . .	40
1.4.2.1.1	Principe de fonctionnement . . . . .	40

1.4.2.1.2	Résolution en énergie . . . . .	41
1.4.2.1.3	Rendement de détection . . . . .	42
1.4.2.1.4	Limite de fonctionnement . . . . .	43
1.4.2.1.5	Évaluation des intensités XL émises par $^{241}\text{Am}$ . . . . .	44
1.5	Détecteurs cryogéniques . . . . .	45
1.5.1	Physique de fonctionnement . . . . .	45
1.5.2	Types des senseurs . . . . .	47
1.5.2.1	Thermistance . . . . .	47
1.5.2.2	Transition Edge Sensor : TES . . . . .	48
1.5.2.3	Senseur paramagnétique . . . . .	49
1.5.2.4	Choix de l'absorbeur en fonction du senseur . . . . .	50
1.5.2.4.1	Les diélectriques . . . . .	51
1.5.2.4.2	Les métaux supraconducteurs . . . . .	51
1.5.2.4.3	Les métaux . . . . .	52
1.5.2.4.4	Les semi-métaux . . . . .	52
1.5.3	Les calorimètres métalliques magnétiques : MMC . . . . .	53
1.5.3.1	Principe de détection d'un MMC . . . . .	53
1.5.3.1.1	Absorbeur . . . . .	54
1.5.3.1.2	Senseur paramagnétique . . . . .	54
1.5.3.2	Lecture du signal par un SQUID-DC . . . . .	57
1.5.3.3	Bruit . . . . .	60
1.5.3.3.1	Fluctuation thermodynamique de l'énergie . . . . .	60
1.5.3.3.2	Bruit Johnson magnétique . . . . .	61
1.5.3.3.3	Bruit $\frac{1}{f}$ . . . . .	61
1.5.3.3.4	Bruit du SQUID . . . . .	62
1.5.3.4	Optimisation du rapport signal sur bruit et résolution en énergie . . . . .	62
<b>2</b>	<b>Dispositif expérimental et traitement du signal</b>	<b>64</b>
2.1	Principe du fonctionnement du détecteur SMX3 . . . . .	65
2.1.1	Le transformateur de flux magnétique . . . . .	65
2.1.2	Conception et optimisation du détecteur SMX3 . . . . .	68
2.1.2.1	Rendement intrinsèque . . . . .	68
2.1.2.2	Taux de comptage . . . . .	70
2.1.2.3	Résolution en énergie . . . . .	72
2.1.2.4	Fabrication et montage du détecteur SMX3 . . . . .	73
2.2	Mise en œuvre expérimentale . . . . .	74
2.2.1	Préparation des sources radioactives . . . . .	74

2.2.2	Angle Solide Défini (ASD)	76
2.2.3	Mise à basse température et acquisition de données	77
2.3	Traitement et analyse du signal	80
2.3.1	Détection des positions des impulsions	80
2.3.2	Temps mort et temps actif	81
2.3.3	Amplitude de l'impulsion	83
2.3.3.1	Domaine temporel	83
2.3.3.2	Domaine fréquentiel	84
2.3.4	Obtention du spectre	88
2.3.4.1	Correction des fluctuations d'amplitude	88
2.3.4.1.1	Méthode des amplitudes	88
2.3.4.1.2	Méthode de la ligne de base	90
2.3.4.2	Rejet d'impulsions	91
2.3.4.3	Linéarisation de l'énergie	93
2.3.4.4	Égalisation de la résolution	94
2.4	Validation du traitement hors ligne	95
<b>3</b>	<b>Étalonnage en rendement de SMX3</b>	<b>99</b>
3.1	Introduction	99
3.2	Détermination du rendement d'absorption totale	101
3.3	Obtention du spectre de $^{241}\text{Am}$	104
3.3.1	Analyse du spectre de $^{241}\text{Am}$	106
3.3.1.1	Analyse des raies $\gamma$ et XL	108
3.3.1.2	Analyses des pics $\text{XL}_3$	112
3.4	Simulation du rendement d'absorption totale	115
3.4.1	Position du collimateur sur les axes X, Y et Z	116
3.4.2	Épaisseurs des absorbeurs	118
3.4.3	Simulation Monte Carlo du rendement d'absorption totale	120
<b>4</b>	<b>Mesures des intensités d'émission XL des actinides</b>	<b>125</b>
4.1	Les photons émis par le Plutonium-238	126
4.1.1	Mesure à l'aide de SMX3	127
4.1.2	Mesures des intensités absolues	132
4.2	Les photons émis par le Curium-244	138
4.2.1	Mesure à l'aide de SMX3	139
4.2.2	Mesure des intensités absolues	146
4.3	Les photons émis par le Plutonium-239	151
4.3.1	Mesure à l'aide de SMX3	152

---

4.3.2	Mesure des intensités relatives . . . . .	156
4.4	Conclusion sur les mesures d'intensités par SMX3 . . . . .	159
<b>5</b>	<b>Conclusion</b>	<b>162</b>

Dans les activités nucléaires, civiles aussi bien que militaires, nombreuses sont les applications et situations dans lesquelles des actinides jouent un rôle important. Aussi nombreuses sont les demandes de quantification ou d'analyse isotopique des actinides. Celles-ci sont nécessaires dans le cycle du combustible, pour le contrôle du traité de non-prolifération d'armes nucléaires ou encore pour la surveillance environnementale. Elles peuvent, par exemple, renseigner sur la finalité de l'utilisation d'un combustible dans un réacteur, sur la production d'énergie uniquement ou sur la production de matières fissiles pour l'armement. Sur un autre plan, les accidents de réacteurs et les essais d'armes nucléaires ont causé un rejet parfois importante d'actinides majeurs et mineurs dans l'environnement. Les pourcentages des actinides qui se retrouvent dans l'environnement suite à un de ces événements dépendent de l'application pour laquelle la matière nucléaire a été utilisée. Par exemple, un essai d'arme nucléaire entraîne essentiellement les rejets de  $^{239}\text{Pu}$ . En revanche, un accident d'un réacteur nucléaire utilisé pour la production d'énergie électrique cause des rejets différents en  $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{240}\text{Pu}$  ainsi que d'autres actinides. Donc, pour préciser l'origine d'une contamination il est impératif d'analyser un échantillon afin de déterminer les rapports entre les isotopes.

La désintégration de la plupart des actinides est suivie par des émissions de photons dont les énergies et les probabilités sont caractéristiques du nucléide. La mesure des rapports isotopiques peut être effectuée, entre autres, par des techniques d'analyse non-destructives de l'échantillon telles que la spectrométrie de photons. Cette dernière consiste à identifier la présence d'un actinide et quantifier sa fraction dans un échantillon en se basant sur la mesure des intensités des émissions. La précision de ces analyses peut être limitée par la performance du détecteur utilisé mais aussi par les incertitudes associées aux intensités disponibles dans les tables de données nucléaires.

La désintégration d'un actinide est suivie par d'intenses émissions photoniques sur la

---

gamme d'énergie inférieure à 100 keV qui pourraient avantageusement être utilisées pour préciser les rapports isotopiques. Malgré la richesse des données de décroissance disponibles dans les tables, la connaissance des intensités des émissions sur la gamme d'énergie inférieure à 100 keV (photons X et  $\gamma$  de basse énergie) reste limitée, voire inaccessibles dans le cas des raies individuelles XL des actinides, à cause de la limitation en termes de résolution en énergie des détecteurs à semi-conducteur habituellement utilisés en spectrométrie des photons.

Une des missions du Laboratoire National Henri Becquerel (LNHB) est de fournir des données de désintégration avec les plus faibles incertitudes possibles. C'est pourquoi le LNHB a développé un détecteur cryogénique de très haute résolution en énergie et offrant un rendement de détection proche de 100% pour des énergies inférieures à 25 keV, la gamme d'énergie des rayons XL des actinides, afin de déterminer des données de décroissance d'actinides.

La mesure des intensités des photons X et  $\gamma$  émis à des énergies inférieures à 100 keV suite à la désintégration des actinides est l'objectif de cette thèse.

Le premier chapitre décrit les techniques utilisées communément pour l'analyse isotopique des actinides ainsi que leurs limites d'utilisation. Ces limites sont liées, d'une part aux principes de fonctionnement des techniques en question et d'autre part, aux interférences spectrales qui rendent la séparation de certaines émissions impossibles. Cette thèse s'intéresse en particulier à la spectrométrie des émissions photoniques des actinides. Des processus atomiques et nucléaires sont à l'origine de ces émissions. La suite du premier chapitre fournit des éléments de compréhension de ces processus ainsi que des paramètres fondamentaux liés. Il présente une méthodologie de calcul des intensités des émissions X *via* les paramètres fondamentaux. Par ailleurs, il détaille le principe de fonctionnement, les performances et limites des détecteurs à semi-conducteur utilisés pour mesurer les intensités des émissions X et  $\gamma$ . Les intensités calculées sont affectées par des grandes incertitudes associées aux paramètres fondamentaux. Quant à la mesure des intensités, les améliorations possibles au niveau de la résolution en énergie et du rendement de détection des détecteurs conventionnels sont très limitées, car les limites théoriques de performance sont quasiment atteintes. Pour s'affranchir de ces limites, le choix de l'utilisation d'un détecteur cryogénique qui fonctionne à très basse température ( $\sim 10$  mK) a été fait. Cela permet de bénéficier d'une excellente résolution en énergie et ouvre la possibilité de séparer des émissions proches en énergie inaccessibles avec un détecteur conventionnel.

L'interaction du photon avec le détecteur conduit à une élévation de température dans un absorbeur mesurée à l'aide d'un thermomètre. L'ensemble absorbeur-thermomètre diffère entre les catégories des détecteurs cryogéniques. Le choix des éléments constitutifs avec le

---

système de détection n'est pas trivial, il dépend de l'application pour laquelle le détecteur va être utilisé. La dernière partie du premier chapitre expose succinctement les différents types de thermomètres et d'absorbeurs, les critères de choix du LNHB pour ses applications, et de façon plus détaillée le principe physique des senseurs paramagnétiques communément appelés calorimètres métalliques magnétiques (MMC) choisis pas le LNHB, ainsi que la lecture de leur signal à l'aide d'un SQUID.

Dans le domaine de la métrologie des rayonnements ionisants, la résolution en énergie ne constitue pas le seul critère important dans la conception d'un détecteur. Ce dernier doit obéir à d'autres critères, notamment sur le rendement de détection et le taux de comptage.

Le deuxième chapitre décrit la conception et la réalisation d'un détecteur, appelé SMX3, qui répond à ces critères. Ce détecteur comporte quatre pixels de calorimètres métalliques magnétiques avec des absorbeurs bicouche or-argent, couplés à deux voies de lecture et d'acquisition. Par ailleurs, ce chapitre présente la mise en fonctionnement du détecteur, le principe d'enregistrement des impulsions et les étapes de traitement du signal hors ligne afin d'obtenir un spectre en énergie avec la meilleure résolution possible. Ce traitement est construit à l'aide d'un ensemble des programmes codés sous Matlab et langage C. Il est validé avec des enregistrements simulés dans le but de prouver qu'il n'engendre pas de modification de l'information sur l'énergie et sur l'intensité. Pour pouvoir mesurer les intensités d'émission, une connaissance précise du rendement de SMX3 doit être établie. Cet étalonnage du rendement peut être effectué à l'aide de mesures de sources étalons ou via des simulations Monte Carlo.

La méthode d'étalonnage présentée dans le troisième chapitre consiste à mesurer une seule source étalon de  $^{241}\text{Am}$ , en combinaison avec des simulations Monte Carlo afin de construire une courbe de rendement "étalonnée" sur la gamme d'énergie  $\sim 5$  keV à 100 keV. Ce chapitre décrit une procédure permettant de construire une géométrie de détection dans le code PENELOPE 2014, un code de simulation Monte Carlo du transport des électrons et des photons dans la matière. En se référant à l'étalonnage du rendement par la source étalon, les dimensions de la géométrie simulée sont adaptées pour fournir finalement une courbe de rendement continue qui interpole le rendement étalonné à l'aide la source de  $^{241}\text{Am}$ . Ceci permet de tenir correctement compte de l'existence des discontinuités dues à des effets d'échappement dans les constituants du détecteur.

Le quatrième chapitre présente les mesures quantitatives des émissions XL des actinides  $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{244}\text{Cm}$  et  $^{239}\text{Pu}$ . Les désintégrations de ces nucléides sont suivies d'émissions X de la série L d'intensités respectivement de 10,63, 8,92 et 4,66 photons pour 100 désintégrations [12].

---

Cependant, les intensités référencées dans la base de données éditée par le LNHB aussi bien que dans toutes les bases de données disponibles, sont limitées aux groupes  $L\alpha$ ,  $L\beta$ ,  $L\eta$ ,  $L\iota$ . Ces émissions ont été mesurées à l'aide de SMX3 afin de déterminer, pour la première fois, les intensités des raies XL individuelles, et ainsi de pouvoir élargir la connaissance des intensités des émissions XL des actinides. Si la géométrie d'une source relative au détecteur est différente par rapport à la mesure de la source étalon (par exemple le diamètre, le positionnement, *etc.*), l'introduction de ce changement dans la géométrie de simulation permet d'effectuer un transfert de rendement qui sert à établir le rendement avec la nouvelle géométrie. En effectuant un transfert de rendement pour les sources de  $^{238}\text{Pu}$  et de  $^{244}\text{Cm}$ , leurs intensités absolues des émissions  $L_i\text{-}Y_j$  ( $Y=\text{M,N,O,P}$   $i=1,2,3$  et  $1 < j < 7$ ) ont pu être mesurées à l'aide de SMX3. En revanche, pour le  $^{239}\text{Pu}$  seules des intensités relatives à la totalité de la région XL sont fournies. Ce chapitre présente aussi des comparaisons des intensités des différents groupes XL issues de la littérature avec celles obtenues à l'aide de SMX3.



# CHAPITRE 1

## PHYSIQUE DES ÉMISSIONS PHOTONIQUES DES ACTINIDES ET INSTRUMENTATION DE DÉTECTION

### 1.1 Les actinides dans l'environnement et l'industrie

Les actinides, ou transuraniens (plus lourds que l'uranium) constituent un sujet de préoccupation important. En effet, bien que certains existent à l'état naturel, une majeure partie d'entre eux sont produits artificiellement par des captures de neutrons qui ne sont pas suivies de fissions. Ainsi, les activités nucléaires, civiles et/ou militaires, utilisent et génèrent ces produits dont les périodes radioactives peuvent être longues, posant un problème de stockage long terme, et dont la toxicité est importante puisque ce sont des éléments lourds émetteurs alpha.

L'industrie civile nucléaire est consacrée à la production d'électricité avec des réacteurs à combustible UOX (enrichi en  $^{235}\text{U}$  à hauteur 3,5%) ou à combustible MOX issus des combustibles usés retraités et enrichi à hauteur de 7% en  $^{239}\text{Pu}$ . Les combustibles UOX peuvent être en partie recyclés afin de bénéficier des propriétés fissiles du  $^{239}\text{Pu}$  dans le combustible de type MOX. La composition des combustibles nucléaires est modifiée durant l'irradiation par la formation d'actinides majeurs (isotopes de U et de Pu) et des actinides mineurs (isotopes de Am, Cm, Np, produits en moindre quantité) et de produits de fission (tableau 1.1). La composition va dépendre, du type de combustible utilisé, du type de réacteur et du taux de combustion (tableau 1.2). Par exemple, le rapport  $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  varie entre 0,06 et 0,65 dans le combustible en fonction de la condition d'irradiation du combustible.

# CHAPITRE 1. PHYSIQUE DES ÉMISSIONS PHOTONIQUES DES ACTINIDES ET INSTRUMENTATION DE DÉTECTION

Tableau 1.1 – Composition des principaux isotopes du combustible avant et après irradiation de combustible UOX (enrichi en  $^{235}\text{U}$  à 3,5%) dans un réacteur REP de 900 MWe, pour un taux de combustion (burn-up) de 33 GWj/t [1].

Isotope	Période $T_{1/2}$	Chargement		Déchargement	
	(ans)	(kg/TWhe)	(kg/an)	(kg/TWhe)	(kg/an)
Actinides majeurs					
$^{235}\text{U}$	$7,04 (1) \cdot 10^8$	136	751	40	221
$^{236}\text{U}$	$2,343 (6) \cdot 10^7$			16	88
$^{238}\text{U}$	$4,468 (5) \cdot 10^9$	3757	20734	3661	20204
$^{238}\text{Pu}$	87,74 (3)			0,6	
$^{239}\text{Pu}$	$2,44100 (11) \cdot 10^4$			22,3	
$^{240}\text{Pu}$	6,561 (7)			8,6	
$^{241}\text{Pu}$	14,33 (4)			4,6	
$^{242}\text{Pu}$	$3,73 (3) \cdot 10^5$			1,9	
Actinides mineurs					
$^{237}\text{Np}$	$2,14 \cdot 10^6$			1,6	8,8
$^{241}\text{Am}$	432,6 (6)			0,8	
$^{243}\text{Am}$	7367 (23)			0,4	
$^{243}\text{Cm}$	28,9 (4)			0	0
$^{244}\text{Cm}$	18,11 (3)			0,09	0,5
$^{245}\text{Cm}$	8250 (70)			0,01	0,06
Produits de Fission					
$^{90}\text{Sr}$	28,80 (7)			1,9	10,5
$^{137}\text{Cs}$	30			4,4	24,3
$^{93}\text{Zr}$	$1,61 (6) \cdot 10^6$			2,8	15,5
$^{99}\text{Tc}$	$2,115 (11) \cdot 10^5$			3,2	17,7
$^{129}\text{I}$	$1,61 (7) \cdot 10^7$			0,7	3,9

Tableau 1.2 – Composition en Pu dans des combustibles de type MOX en fonction du type de réacteur [2].

Type de réacteur	Taux de combustion (MWj/kg)	Composition en Pu (wt%)				
		$^{238}\text{Pu}$	$^{239}\text{Pu}$	$^{240}\text{Pu}$	$^{241}\text{Pu}$	$^{242}\text{Pu}$
Magnox ( <i>Magnesium Non OXidizing</i> )	3,0	0,1	80,0	16,9	2,7	0,3
	5,0		68,5	25,0	5,3	1,2
	33,0	1,3	56,6	32,2	13,9	4,7
REP	43,0	2,0	52,5	24,1	14,7	6,2
	53,0	2,7	50,4	24,1	15,2	7,1
Arme nucléaire		0	95	5	0	0

Les étapes allant de l'extraction du minerai d'uranium, en passant par l'enrichissement jusqu'au retraitement des déchets appartiennent au cycle du combustible. Le contrôle et la caractérisation des actinides lors des multiples étapes de ce cycle présentent donc des enjeux

financiers considérables pour les industriels de la filière nucléaire.

En premier lieu, les mesures de composition du combustible permettent de vérifier les codes de neutroniques, eux-mêmes utilisés pour optimiser la combustion au sein du réacteur ou pour concevoir les futurs réacteurs. Par ailleurs, de ces analyses vont également dépendre les quantités de déchets nucléaires à retraiter et à stocker selon leur dangerosité, et donc le dimensionnement des étapes de stockage et de traitement des combustibles usés.

Enfin, cela représente également un enjeu environnemental majeur puisque ces mêmes industriels doivent prouver que leurs activités ont un impact admissible sur l'environnement. En effet, du fait de l'extrême radiotoxicité des actinides émetteurs de particules alpha, en particulier les isotopes de plutonium, des enjeux environnementaux sont très rapidement apparus, d'autant plus que des matières nucléaires ont été dispersées dans la biosphère, via les 543 essais nucléaires atmosphériques entre 1945 et 1980 (6,52 PBq de Plutonium), l'accident de Thulé, ou via les accidents de centrales nucléaires comme Tchernobyl (6,1 PBq de plutonium), et Fukushima. Alors que près de 85% de l'activité issue des essais nucléaires atmosphériques s'est rejetée globalement dans l'hémisphère nord, l'accident de Fukushima a contaminé l'environnement essentiellement localement [3].

La surveillance de l'environnement utilise l'analyse d'actinides et leur isotopie pour, d'une part, différencier dans l'environnement la radioactivité des chaînes naturelles de celle issue des activités humaines, et d'autre part de déterminer l'origine d'une pollution (retombées des essais atmosphériques, rejets d'effluents ou accidents d'une centrale nucléaire).

Enfin, dans le domaine militaire, les armes nucléaires à fission utilisent des matières hautement enrichies en  $^{239}\text{Pu}$  (>93%) ou en  $^{235}\text{U}$  (>90%) ou dans une moindre mesure de  $^{233}\text{U}$  ou  $^{237}\text{Np}$  (tableau 1.2). Suite à l'application du traité de non-prolifération (TNP), des contrôles, effectués sous l'égide de l'AIEA, permettent de vérifier le non détournement des matières et installations nucléaires à des fins militaires. Dans ce cas, l'analyse isotopique est l'un des outils fondamentaux de la criminalistique nucléaire (« nuclear forensics »). La proportion de  $^{239}\text{Pu}$  ou de  $^{235}\text{U}$  est une signature indéniable d'un type d'usage prohibé et donc, d'activités clandestines. Dans ce cas également, des mesures précises sont requises pour satisfaire les exigences de l'AIEA pour l'inventaire des matières nucléaire fissiles. En France, le Code de la défense impose une déclaration des matières de  $^{235}\text{U}$ ,  $^{239}\text{Pu}$  et  $^{233}\text{U}$  supérieure au gramme.

Les techniques d'analyse de compositions en actinides et l'analyse isotopique des matières nucléaires sont donc indispensables dans l'industrie nucléaire, la surveillance de la non-

prolifération et dans la surveillance de l'environnement. Les analyses permettent de connaître, l'origine, la destination, l'âge, l'usage d'un échantillon.

## 1.2 Analyse et quantification des actinides

Du fait de l'intérêt des analyses des actinides pour ces différents champs d'applications, de nombreuses méthodes de quantification ont été développées. Il existe deux types d'analyses : les analyses destructives (AD) et non-destructives (AND). Parmi ces analyses, trois familles de techniques sont à distinguer.

La première représente les techniques radiométriques, c'est-à-dire la spectrométrie en énergie des rayonnements émis par les radionucléides lors de leur désintégration. Cette famille concerne la spectrométrie de photons X et gamma (AND) et la spectrométrie alpha (AD). La seconde famille est la spectrométrie de masse (AD) représentée par les techniques TIMS (Thermal Ionization Mass Spectrometry), et ICP-MS (Multicollector-Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometer).

Et la troisième famille est l'analyse des rayons X émis par l'échantillon excité soit par des photons générés par rayonnement synchrotron ou par un tube X (AND), soit par des particules chargées (proton ou alpha). Toutefois, cette dernière technique ne permet pas de distinguer les isotopes et ne sera pas abordée.

### 1.2.1 Analyse destructive : AD

La plupart des actinides se désintègrent en émettant des particules  $\alpha$ , un atome de  ${}^4_2\text{He}$ , avec des énergies discrètes dépendant de l'actinide. Donc, la détection de ces énergies par spectrométrie  $\alpha$  permet d'identifier et de quantifier un actinide dans l'échantillon. Cependant, il est possible que les énergies des particules  $\alpha$  soient trop proches, par exemple pour le  ${}^{239}\text{Pu}$  et  ${}^{240}\text{Pu}$  (respectivement 5,15 MeV and 5,16 MeV) pour qu'ils soient distingués à cause de la résolution en énergie des détecteurs utilisés. Par ailleurs, certains actinides, comme le  ${}^{241}\text{Pu}$ , émetteur  $\beta$ , ne peuvent pas être mesurés par cette technique. De plus, l'utilisation de cette technique exige une purification chimique de l'échantillon pour limiter les interférences spectrales entre isotopes différents. Elle consiste à concentrer et à isoler les actinides dans l'échantillon par chromatographies successives, ce qui peut prendre jusqu'à des jours de préparation. La spectrométrie alpha permet de quantifier les actinides avec une précision de l'ordre de quelques pour mille au mieux.

La mesure des rapports isotopiques peut être effectuée par spectrométrie de masse qui permet de séparer les éléments de l'échantillon en fonction du rapport masse sur charge. Les techniques de spectrométrie de masse généralement utilisées sont l'ICP-MS et le TIMS qui diffèrent par le principe d'ionisation de l'échantillon [4–7]. Les ions générés sont acheminés par

une interface vers l'entrée d'un analyseur dont le rôle est de séparer les ions en fonction de leur rapport masse sur charge.

Les problèmes majeurs de cette technique résident dans des interférences spectrales par exemple :

- Les interférences isobariques quand les actinides ont la même masse atomique (  $^{238}\text{Pu}^+$  interfère avec  $^{238}\text{U}^+$  ).
- Les interférences poly-atomiques : des réactions chimiques peuvent créer des éléments de même masse d'un actinide d'intérêt (  $^{239}\text{Pu}^+$  interfère avec  $^{238}\text{UH}^+$  ).

Cette technique exige de réaliser des traitements chimiques et radiochimiques de l'échantillon avant son analyse pour séparer les différents éléments présents et limiter les interférences. Néanmoins elle est de loin la plus précise de toute, elle permet de quantifier quelques dizaines de fg ( $10^{-15}$  g) d'uranium par exemple.

D'une manière générale, les techniques d'analyse destructives nécessitent des étapes de radiochimie séparative relativement longues et coûteuses en temps, elles restent néanmoins les techniques d'analyses isotopiques les plus précises.

### 1.2.2 Analyse non-destructive : AND

Pour s'affranchir du traitement chimique des échantillons, des techniques d'analyses isotopiques non-destructives ont été introduites. Les radiations induites ou émises spontanément par l'actinide sont mesurées sans modification de l'état physique ou chimique de l'élément. Elle peuvent être opérées sur place, ce qui permet d'éliminer les risques et les contraintes imposés par les transports de matières et d'accéder à des sites à l'accès restreint.

La spectrométrie de photons est une méthode d'analyse permettant de quantifier l'activité des radionucléides présents par la mesure des énergies des photons émis dans un histogramme ou spectre en énergie. Le dispositif instrumental est relativement simple, puisqu'il s'agit de positionner la source face à un collimateur et au spectromètre. La détermination de l'activité des radionucléides présents dans une source se fait suite à l'analyse du spectre en énergie (mesure de la surface des pics aux énergies  $E$  caractéristiques du radionucléide) et à partir de l'équation 1.1.

$$A = \frac{N(E)}{\Delta t \cdot I(E) \cdot \epsilon(E)_{abs}} \quad (1.1)$$

$A$  : l'activité du radionucléide [Bq],

$N$  : le nombre d'événements enregistrés dans le pic d'absorption totale<sup>1</sup> à une énergie  $E$ ,

$\epsilon_{abs}$  : le rendement d'absorption totale soit la probabilité qu'un photon émis par la source ait déposé toute son énergie dans le détecteur.

Ce dernier peut se décliner en deux facteurs :

$$\epsilon_{abs}(E) = f \cdot \epsilon_{int}(E) \quad (1.2)$$

avec,

$f = \frac{\Omega}{4\pi}$  : le facteur de géométrie,

$\Omega$  : angle solide d'émission vu par le détecteur,

$\epsilon_{int}$  : le rendement intrinsèque soit la probabilité qu'un photon incident sur le détecteur y cède toute son énergie.

La mesure de rapports isotopiques massiques  $M$  entre deux isotopes  $i$  et  $k$  est dérivée de l'équation 1.1 et est donnée par :

$$\frac{M_i}{M_k} = \frac{N_i(E_j)}{N_k} \cdot \frac{T_k}{T_i} \cdot \frac{I_k(E_m)}{I_i(E_j)} \cdot \frac{\epsilon(E_m)_{rel}}{\epsilon(E_k)_{rel}} \quad (1.3)$$

Où  $E_j$  et  $E_m$  désignent les énergies d'émission des photons émis par les isotopes  $i$  et  $k$ ,

$I$  : les intensités d'émission des raies mesurées,

$\epsilon_{rel}$  : le rendement relatif aux énergies des photons,

$T$  : la période radioactive.

Généralement l'analyse d'actinides se fait dans le spectre en énergie sur une région autour de 100-200 keV car la plupart des actinides y émettent des photons  $\gamma$  et XK avec des intensités d'émission parmi les plus intenses du spectre [8]. Néanmoins, elles restent faibles, au mieux, elles sont de 0,01 pour 100 désintégrations comme le montre le tableau 1.3. Une région alternative est la région de 40 à 60 keV, où les  $\gamma$  sont plus intenses qu'à 100-200 keV mais les désavantages de cette région résident dans la forte auto-absorption des  $\gamma$  pour des échantillons volumineux et la possible présence du 60 keV de l'<sup>241</sup>Am qui, de par son intensité, masque les autres actinides.

Enfin, il existe une région du spectre qui a été peu utilisée et peu explorée jusqu'ici, alors que c'est de loin la région où se trouvent les intensités les plus fortes : cette région correspond aux raies XL émises entre 10 et 25 keV. Comme le montre le tableau 1.3, elles ont des intensités de quelques pourcents à quelques dizaines de pourcents, soit plus d'un ordre de grandeur plus

---

1. Pic correspondant aux photons ayant déposés toute leur énergie dans le détecteur.

# CHAPITRE 1. PHYSIQUE DES ÉMISSIONS PHOTONNIQUES DES ACTINIDES ET INSTRUMENTATION DE DÉTECTION

intenses que les raies gamma pour la plupart des actinides. La spectrométrie X doit être alors couplée à d'autres techniques pour permettre l'analyse isotopique [9–11].

Tableau 1.3 – Une liste de certains actinides avec les intensités des émissions  $\gamma$  et de leurs région XL [12].

Nucléide/Descendant	Emission $\gamma$		Emission XL		
	Energie (keV)	Intensité / 100 dés.	Photons XL Intensité /100 dés.	Méthode / nombre d'études	Accord mesure/calcul
U-233/Th-229	42,4349 (2)	0,072 (4)	5,2 (11)		
	97,1346 (3)	0,0203 (10)			
U-235/Th-231	42,01 (6)	0,056 (9)	40 (22)	calcul	
	143,767 (3)	10,94 (6)			
U-236/Th-232	49,46 (10)	0,081 (12)	9,4 (10)	calcul	
	112,79 (10)	0,0195 (31)			
U-237/Np-237	59,54091 (10)	34,1 (9)	59 (21)	calcul	
U-238/Th-234	49,55 (6)	0,0697 (26)	7,94 (28)	calcul	
	113,5 (1)	0,0174 (47)			
Pu-238/U-234	43,498 (1)	0,0397 (8)	10,63 (8)	mesure /4	accord
	99,852 (3)	0,00735 (8)			
Pu-239/U-235	51,624 (1)	0,02694 (26)	4,66 (5)	mesure/4	désaccord
	129,296 (1)	0,00631 (4)			
Pu-240/U-236	45,244 (2)	0,0462 (9)	10,34 (15)	mesure /6	accord
	104,233 (5)	0,00714 (7)			
Pu-242/U-238	44,915 (13)	0,0384 (8)	8,71 (21)	calcul	
	103,50 (4)	0,00253 (12)			
Am-241/Np-237	59,5409 (1)	35,92 (17)	37,66 (17)	mesure /9	désaccord
	98,97 (2)	0,0203 (4)			
Am-242/Cm-242	42,13 (5)	0,040 (2)	10,8 (5)	calcul	
Am-243/Np-239	43,53 (2)	5,89 (10)	18,9 (7)	calcul	
	117,60 (15)	0,57 (5)			
Cm-242/Pu-238	44,08 (3)	0,0330 (7)	9,92 (23)	calcul/2	désaccord
	101,92 (4)	0,00251 (14)			
Cm-243/Pu-239	44,663 (5)	0,131 (16)	52,1 (16)	calcul	
	106,125 (2)	0,296 (25)			
Cm-244/Pu-240	42,824 (8)	0,0258 (7)	8,92 (23)	calcul	
	98,860 (13)	0,00136 (9)			

En outre, cette région peut être utilisée pour détecter de très faibles quantités de matières sous forme de traces ou de poussières.

Quelles que soient les régions, l'analyse des spectres en énergie des actinides est rendue complexe par la multitude de photons émis sur des régions étroites en énergie qui ne sont pas totalement résolues avec des détecteurs conventionnels. Les interférences spectrales sont alors une source

non négligeable d'incertitudes à la quantification des actinides.

Dès lors, les incertitudes associées aux mesures d'activités ou de rapports isotopiques se déclinent sous deux formes :

- la première forme concerne les incertitudes sur le nombre de photons détectés dans une raie ( $N(E)$ ) et sur le rendement ( $R$ ) et sont relatives aux limites instrumentales (résolution en énergie, rendement de détection, statistique de comptage).
- la seconde forme est donnée par les incertitudes liées aux données de décroissance et aux paramètres fondamentaux nucléaires et atomiques (qui seront détaillés dans la suite du chapitre), soit dans ce cas sur les intensités d'émission, les énergies des photons et les périodes des actinides. Donc pour améliorer les mesures quantitatives d'actinides par spectrométrie de photons deux stratégies sont possibles : améliorer l'instrumentation et/ou améliorer les données de décroissance.

Plusieurs équipes américaines du NIST (National Institute of Standards and Technology), LANL (Los Alamos National Lab) ou le LLNL (Lawrence Livermore National Laboratory) ont investi dans le développement de spectromètres très haute résolution pour l'analyse isotopique de Pu par spectrométrie. Le LANL au terme de plus de dix ans de recherche et développement, a pu obtenir des incertitudes plus faibles sur les rapports isotopiques avec des spectromètres ayant des résolutions en énergie d'un ordre de grandeur meilleure que celles des détecteurs conventionnels dans la région 100-200 keV [13–16].

Les incertitudes sur la composition isotopique pourraient être jusqu'à 5 fois plus faibles selon les isotopes, si on ne tient compte que des incertitudes statistiques et instrumentales, mais dès lors qu'ils introduisent dans le bilan d'incertitudes les contributions issues des paramètres fondamentaux, les performances obtenues avec leur instrumentation sont comparables à celles des techniques conventionnelles du fait des incertitudes sur les intensités d'émission photoniques [17].

En effet, les incertitudes sur les intensités d'émission  $\gamma$  sont de l'ordre de 5% et peuvent descendre jusqu'à 0,6% pour le  $^{239}\text{Pu}$ , actinide stratégique pour la non-prolifération, ou 0,5% pour  $^{241}\text{Am}$ , fréquemment utilisé comme source étalon. Pour les raies XL, bien qu'elles soient intenses, le tableau 1.3 montre aussi que les incertitudes associées aux intensités sont très variables, allant de 1% pour les isotopes de Pu à près de 21% pour l' $^{233}\text{U}$ .

L'évaluation des intensités d'émission X est décrite par la suite, d'une part la méthode de calcul sera détaillée, ce qui amène à décrire les processus physiques de la désintégration radioactive et de la désexcitation atomique générant les X émis par les actinides, d'autre part, la mesure des intensités par les techniques conventionnelles sera expliquée. Les limites des calculs et des mesures seront discutées. Afin de surmonter ces limites expérimentales associées à la mesure d'intensités, des techniques alternatives de détection de ces photons seront présentées, dont celle mise en œuvre dans cette thèse pour améliorer les données de décroissance des actinides, et spécifiquement les intensités d'émission XL.

## 1.3 Intensités et probabilités d'émissions photoniques par les actinides

### 1.3.1 Désintégration radioactive et émission $\gamma$

Les phénomènes nucléaires et atomiques à l'origine de l'émission des photons X et  $\gamma$  par un radionucléide seront discutés dans cette partie. La désintégration radioactive est un processus lié à la structure du noyau qui se désintègre en libérant sous forme de particules et de photons une énergie  $Q$  dite énergie totale de désintégration. C'est un phénomène aléatoire durant lequel les événements sont indépendants les uns des autres. Il existe différents types de désintégration :  $\alpha$ ,  $\beta^{+/-}$ , capture électronique et fission spontanée. Elles obéissent à la loi de décroissance qui traduit la réduction du nombre des noyaux radioactifs dans un échantillon.

$$N_{\text{noyau}}(t) = N_0 e^{\frac{-t \ln 2}{T_{1/2}}} \quad (1.4)$$

$N_{noyau}(t)$  : le nombre des noyaux dans l'échantillon à un instant  $t$ ,

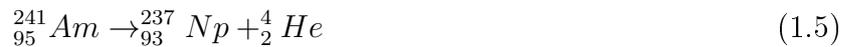
$N_0$  : le nombre des noyaux initial (à  $t=0$ ),

$T_{1/2}=\ln 2 \cdot \lambda$  : la période radioactive, le temps au bout duquel le nombre des noyaux au départ a chuté de 50%.

### 1.3.1.1 Désintégration $\alpha$ et $\beta$

Les actinides se désintègrent par différents mode de désintégration. Dans cette partie, seules les désintégrations qui sont suivies d'une intense émission de photons X et  $\gamma$  en dessous de 100 keV seront présentées. Dans ce cas, les photons sont émis suite à la désintégration des actinides par émission  $\alpha$  et  $\beta$ . Ces derniers, sont décrits en se basant sur des exemples des radionucléides,  $^{241}_{95}\text{Am}$  et  $^{233}_{91}\text{Pa}$ , puisque la désintégration de ces derniers est suivie par d'intenses photons XL comme le montre le tableau 1.3.

Le  $^{241}_{95}\text{Am}$ , décroît à 100 % vers le  $^{237}_{93}\text{Np}$  par émission d'une particule  $\alpha$  qui correspond à un noyau de  $^4_2\text{He}$  (équation 1.5) avec une période de 432,6(6)a [12].



La figure 1.1 illustre un schéma simplifié de la désintégration  $\alpha$  à l'aide d'un exemple d'actinide.

Concernant la désintégration  $\beta$ , le noyau du  $^{233}_{91}\text{Pa}$  décroît vers le  $^{233}_{92}\text{U}$  (équation 1.6) avec une période de 26,98(2) jours [12]. Il expulse un électron, avec la transformation d'un neutron en proton. L'émission de l'électron  $\beta$  est accompagné de l'émission d'un anti-neutrino.



Le noyau fils occupe souvent un état excité suite à une désintégration ( $\alpha$  ou  $\beta$ ). Il retourne à son état fondamental soit par émission d'un photon  $\gamma$  (comme le montre les exemples dans la figure 1.1) soit par conversion interne. Cette dernière consiste à transmettre l'énergie de la transition  $\gamma$  au cortège électronique qui éjecte un électron. Ensuite, le cortège électronique se réarrange accompagné d'émissions non radiatives (électron Auger) ou par des émissions radiatives, les rayons X.

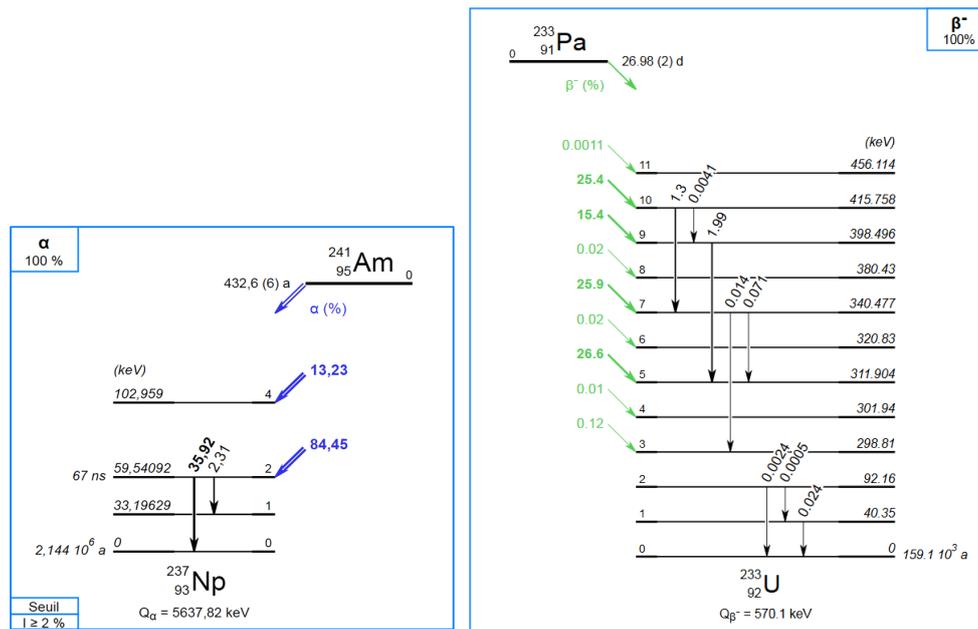


FIGURE 1.1 – Schéma simplifié de désintégration de  $^{241}\text{Am}$  et du  $^{233}\text{Pa}$  montrant les émissions des photons  $\gamma$  d'énergie inférieure à 100 keV [12]

### 1.3.1.2 Emission $\gamma$

La désexcitation d'un noyau fils dans un état excité vers son état fondamental s'effectue *via* une cascade de transitions  $\gamma$  à travers les différents niveaux de l'énergie du noyau ayant une probabilité de transition  $P_t$ . Chaque transition est accompagnée de l'émission de rayonnements  $\gamma$  et/ou d'un électron de conversion interne.

L'état nucléaire est caractérisé par :

- le moment angulaire  $J$  : spin nucléaire
- la parité  $\pi = \pm 1$  qui traduit la symétrie de la fonction d'onde dans l'espace.

La transition  $\gamma$  est caractérisée par son ordre multipolaire  $l$  ( $l=1$  dipole,  $l=2$  quadripole) et son type ( $E$  pour électrique ou  $M$  pour magnétique). Les ordres de multipolarité sont établis respectivement par la conservation du moment angulaire et la conservation de la parité. Une transition est électrique dans le cas de l'oscillation des charges électriques (protons, neutrons) et d'un changement de parité  $(-1)^l$ . Par contre, la transition est magnétique dans le cas où le spin nucléaire est modifié suite à la transition avec un changement de parité de  $(-1)^{l+1}$ .

Il est possible que la transition  $\gamma$  soit un mélange entre deux types de polarité sous la forme de  $x E_l + y M_l$  par exemple le cas de l'état excité du noyau de  $^{241}\text{Am}$  à 33,19 keV : il a une multipolarité  $M_1 + 1,66\% E_2$  [12]. Les photons  $\gamma$  sont émis à des énergies discrètes qui dépendent de l'état final et initial de la transition  $\gamma$  ayant une probabilité d'émission,  $P_\gamma$ .

### 1.3.1.3 Conversion interne

La désexcitation du noyau peut se faire par le transfert de l'énergie de la transition  $\gamma$  au cortège électronique. Cette voie est en compétition avec l'émission du photon  $\gamma$  avec une probabilité définie par un coefficient dit de conversion interne. L'énergie de la transition gamma est cédée à une couche atomique en éjectant un électron lié avec une énergie  $E_e$  tel que :

$$E_e = E_\gamma - E_i^e \quad (1.7)$$

$E_e$  : énergie cinétique de l'électron de conversion interne,

$E_i^e$  : énergie de liaison de l'électron à la couche électronique  $i$ ,

$E_\gamma$  : énergie de la transition  $\gamma$ .

L'électron éjecté est dit électron de conversion. Le coefficient de conversion interne partiel  $\alpha_i$  traduit la probabilité qu'un noyau se désexcite vers un état de plus basse énergie en éjectant un électron de la couche  $i$  donné par :

$$\alpha_i = \frac{P_{ce}^i}{P_\gamma} \quad (1.8)$$

$P_{ce}^i$  : la probabilité qu'un électron est éjecté de la couche  $i$ ,

$P_\gamma$  : la probabilité de l'émission  $\gamma$ .

La conversion interne est une interaction électromagnétique entre le noyau et le cortège électronique, l'énergie de la transition et sa multipolarité permettent de remonter au coefficient de conversion interne. L'équation 1.8 définit le coefficient de conversion interne partiel.

Donc, le coefficient de conversion interne total est la somme de tous les coefficients partiels :

$$\alpha_T = \sum \alpha_i \quad (1.9)$$

$\alpha_T$  : coefficient de conversion interne total,

$\alpha_i$  : coefficient de conversion interne partiel de la couche  $i$  ( $i=K,L,M\dots$ ).

La probabilité d'une transition  $\gamma$ ,  $P_t$ , est la somme des probabilités d'émission  $\gamma$  ( $P_\gamma$ ) et de conversion interne  $P_{ce}$ . Donc,  $P_t$  s'exprime par :

$$P_t = P_\gamma + P_{ce} = P_\gamma \left(1 + \frac{P_{ce}}{P_\gamma}\right) = P_\gamma (1 + \alpha_T) \quad (1.10)$$

La table des radionucléides éditée par le DDEP (Decay Data Evaluation Project [18, 19]) regroupe les probabilités des transitions  $\gamma$ , leurs multipolarités, les énergies des photons et leurs

intensités ainsi que les coefficients de conversion interne et d'autres paramètres [12].

Tableau 1.4 – Données de décroissance de l'Am-241 qui concernent les émissions des photons  $\gamma$  et les coefficients de conversion interne [12].

Energie (keV)	Intensité $\gamma/100$ désintégrations	Probabilité de la transition	Multipolarité	$\alpha_L$	$\alpha_M$
26,3446(2)	2,31(8)	21 (5)	$E_1$ Anomalie	6 (2)	1.6(2)
33,1963(3)	0,1215(28)	21,3 (30)	$M_1 + 1, 6\%E_2$	131 (17)	33(5)
43,420(3)	0,0669(29)	12,1 (16)	$M_1 + 16, 6\%E_2$	132 (17)	35(5)
59,5409(1)	35,92(17)	77,6 (25)	$E_1$ Anomalie	0,84 (6)	0,226(7)

Le tableau 1.4 présente une partie des données du schéma de désintégration de  $^{241}\text{Am}$  issue des données recommandées par le DDEP [12]. Généralement, les actinides ont des transitions  $\gamma$  importantes à basse énergie ( $< 100$  keV). Cela se traduit soit par d'intenses émissions de photons  $\gamma$ , soit par de fortes probabilités de conversion exprimées par les coefficients de conversion interne élevés. Par exemple, comme le montre le tableau 1.4, l'émission  $\gamma$  de 59,54 keV est très intense (35 pour 100 désintégrations). Au contraire, la transition de 43 keV est fortement convertie pour éjecter des électrons de la couche  $L$  ou  $M$  du noyau fils  $^{237}\text{Np}$  comme l'indique les coefficients de conversion interne partiel  $\alpha_L$  et  $\alpha_M$ . À noter que  $\alpha_K$  est nul dans ce cas, car l'énergie de la transition est inférieure à l'énergie de liaison des électrons en couche  $K$ .

Certaines transitions  $\gamma$  présentent des anomalies dues à l'effet de pénétration de la fonction d'onde électronique dans la distribution de charge nucléaire (par exemple : la transition  $E_1$  - anomalie pour l'énergie de 59 keV).

La conversion interne éjecte un électron créant une lacune dans le cortège électronique, l'atome est à son tour dans un état excité. Il se désexcite par réarrangement électronique.

## 1.3.2 Réarrangements électroniques

### 1.3.2.1 Les couches électroniques

Les conversions internes engendrent une création de lacunes dans les couches internes du cortège électronique (atome dans un état ionisé). Le réarrangement électronique est une cascade de transitions atomiques associée à l'émission des photons  $X$  (transitions radiatives) et d'électrons Auger (transitions non-radiatives) pour combler les lacunes.

Les couches d'un atome sont représentées en fonction des nombres quantiques sous une nomenclature spectroscopique " $nl_j$ " (tableau 1.5).

-  $n = 1, 2, 3, 4, \dots$  est la quantification des niveaux énergétiques, elle correspond respectivement aux

couches  $K, L, M, N, \dots$

-  $l=0,1,2,3, \dots$  est le moment angulaire qui correspond au mouvement d'un électron sur une orbite autour du noyau, il correspond aux sous-couches  $s, p, d, f$  dont le nombre d'électrons qu'ils acceptent est respectivement 2,6,10 et 14.

-  $j$  est le moment angulaire total qui traduit le couplage entre l'orbite et le spin de l'électron qui est de type  $jj$  dans le cas des éléments lourds (numéro atomique  $Z$  élevé) [20, 21] : Couplage  $jj$  :  $l_1 + s_1 = j_1$  ,  $l_2 + s_2 = j_2$ ,  $j_1 + j_2 = J$

Tableau 1.5 – Notation spectroscopique des sous-couches atomiques [20].

$K$	$1s_{1/2}$	$M_4$	$3d_{3/2}$	$N_6$	$4f_{5/2}$
$L_1$	$2s_{1/2}$	$M_5$	$3d_{5/2}$	$N_7$	$4f_{7/2}$
$L_2$	$2p_{1/2}$	$N_1$	$4s_{1/2}$	$O_1$	$5s_{1/2}$
$L_3$	$2p_{3/2}$	$N_2$	$4p_{1/2}$	$O_2$	$5p_{1/2}$
$M_1$	$3s_{1/2}$	$N_3$	$4p_{3/2}$	$O_3$	$5p_{3/2}$
$M_2$	$3p_{1/2}$	$N_4$	$4d_{3/2}$	$O_4$	$5d_{3/2}$
$M_3$	$3p_{3/2}$	$N_5$	$4d_{5/2}$	$O_5$	$5d_{5/2}$

### 1.3.2.2 Transitions radiatives et non radiatives

La raie émise possède une largeur naturelle  $\Gamma$  déterminée par le principe d'incertitude de Heisenberg.

$$\Gamma \cdot \tau = \hbar \quad (1.11)$$

$\tau$  est la durée de vie d'une lacune dans une couche dont la probabilité par unité de temps de la transition pour combler cette lacune est définie par :

$$P = \frac{1}{\tau} = \frac{\Gamma}{\hbar} \quad (1.12)$$

$P$  : probabilité par unité de temps [ $s^{-1}$ ],

$\Omega$  : largeur naturelle de la transition [eV],

$\hbar$  : constante de Planck réduit [eV.s],

$\tau$  : durée de vie.

Une transition non-radiative intervient dans le cas où la relaxation atomique se fait en éjectant un électron des couches supérieures : un électron Auger avec une énergie cinétique  $E_{Auger}$ . Le processus est illustré dans la figure 1.2, sa probabilité est définie par :

$$a = \frac{\Gamma_{Auger}}{\Gamma} \quad (1.13)$$

$\Gamma_{Auger}$  : largeur naturelle de la transition Auger.

$\Gamma = \Gamma_{radiative} + \Gamma_{non-radiative}$  : la somme des largeurs des transitions radiatives et non radiatives.

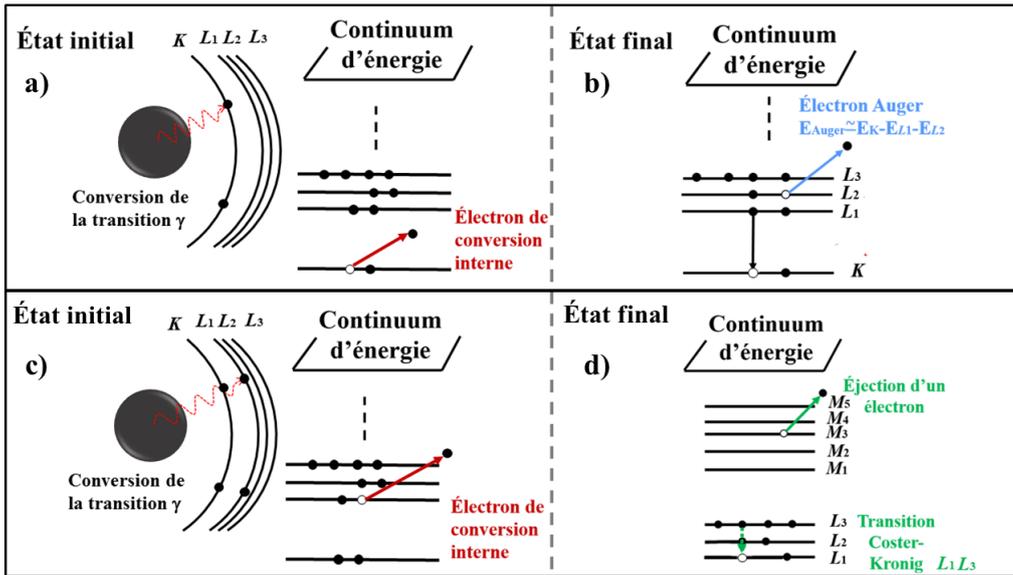


FIGURE 1.2 – Types des transitions non-radiatives suite à la désintégration d'un actinide

La figure 1.2.b montre un électron Auger éjecté par la transition  $KL_1-L_2$  suite à la conversion interne.

Ainsi, la figure 1.2.d montre un cas particulier de la transition Auger dit Coster-Kronig "CK". Dans ce cas, une lacune créée par conversion interne dans la couche  $X_i$  est excitée à un niveau d'énergie moins lié  $X_j$  de même nombre quantique  $n$  (la transition CK a lieu entre les couches  $L_1-L_3$ ) accompagnée d'une éjection d'un électron d'une couche  $Y$  de différent nombre quantique  $n$  (par exemple la couche  $M_3$ ). Une transition  $X_i-X_j Y (L_1-L_3M_3)$  a eu lieu. La probabilité d'avoir une transition CK par rapport à la relaxation du noyau fils est définie par le paramètre  $f_{ij}$  qui traduit la probabilité de la transition entre les couches  $X_i-X_j$  donnée par l'équation 1.14. Suite à une transition non-radiative, l'atome possède une lacune supplémentaire par rapport à l'état initial.

$$f_{ij} = \frac{\Gamma_{CK}}{\Gamma} \quad (1.14)$$

$f_{ij}$  : probabilité de transition CK,

$\Gamma_{CK}$  : largeur naturelle de la transition CK  $X_i-X_jY$ .

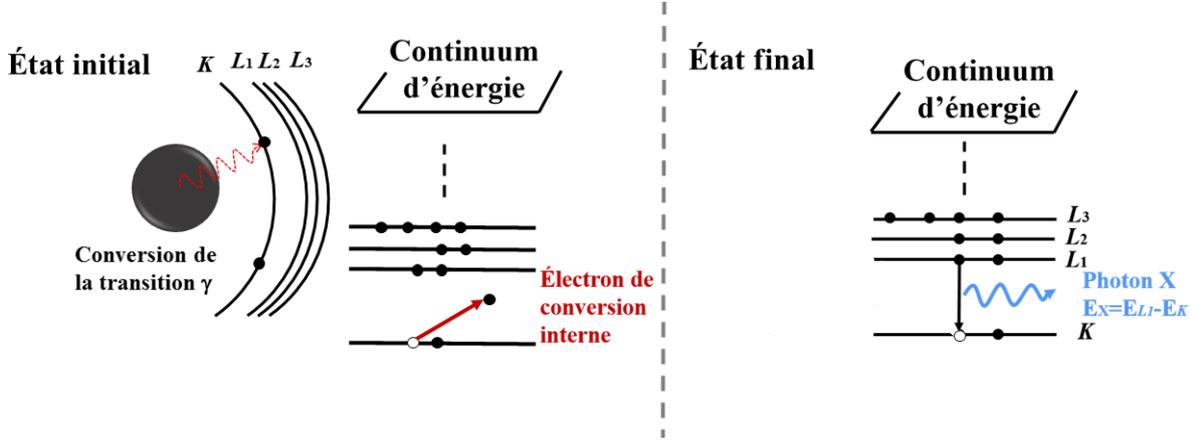


FIGURE 1.3 – Emission d'un photon X caractéristique

Dans le cas où l'atome se désexcite en émettant un photon X avec une énergie égale à la différence des énergies des couches en jeu (figure1.3), la transition est radiative. La probabilité que la désexcitation de l'atome ait lieu par émission d'un photon est appelée  $\omega$  "rendement de fluorescence" et est donnée par :

$$\omega_{ij} = \frac{\Gamma_{ij}}{\Gamma} \quad (1.15)$$

$\omega_{ij}$  : rendement de fluorescence,

$\Gamma_{ij}$  : largeur naturelle de la raie X émise par une transition entre les couches  $i-j$ .

Les transitions radiatives entre les couches et les sous-couches atomiques auront lieu suivant des règles de sélection en fonction des nombres quantiques. Pour une transition multipôle électrique les règles de sélection sont :

$$\Delta l = \pm 1; \Delta j = 0, \pm 1 \quad (1.16)$$

$$\Delta l = 0, \pm 2; \Delta j = 0, \pm 1, \pm 2 \quad (1.17)$$

Pour une transition multipôle magnétique les règles de sélection sont :

$$\Delta l = 0, \pm 2; \Delta j = 0, \pm 1 \quad (1.18)$$

$$\Delta l = \pm 1; \Delta j = 0, \pm 1, \pm 2 \quad (1.19)$$

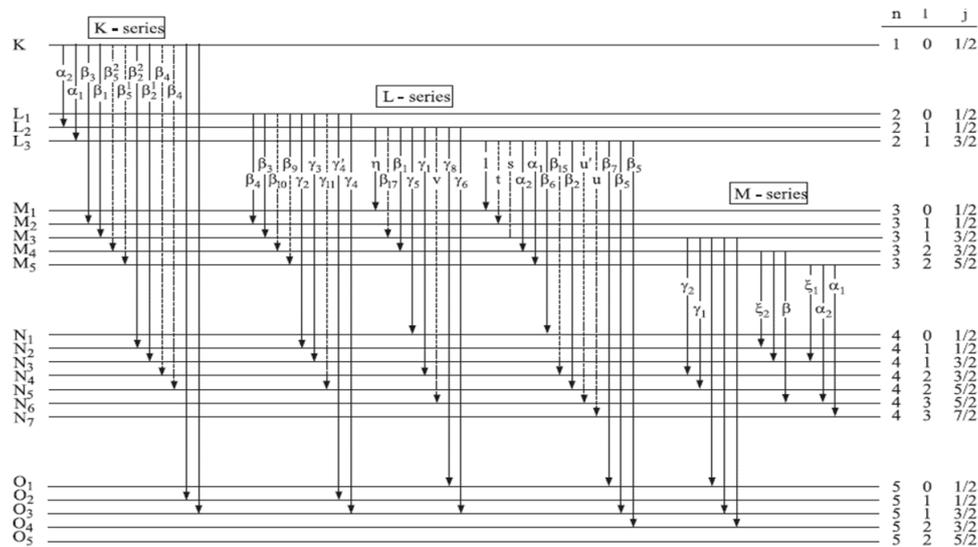


FIGURE 1.4 – Diagramme de Grotrian montrant les séries des raies X-K X-L et X-M

La figure 1.4 représente les transitions possibles suivant les règles de sélection présentées précédemment, elle illustre les séries des transitions X-K , X-L et X-M dans un diagramme de Grotrian. Ces transitions sont décrites par une combinaison de sous-couches en jeu, par exemple "L<sub>1</sub>-M<sub>4</sub>" ce type de nomenclature est connue sous le nom "IUPAC".

Elle donne l'information sur la position de la lacune créée par conversion interne, ainsi que la couche où l'électron vient combler cette lacune. En revanche, cette nomenclature ne permet pas d'avoir une information sur l'intensité d'émission. Une autre nomenclature empirique, connue par le sous nom "Siegbahn", utilise le nom de la couche sur laquelle la lacune est créée, combinée à une lettre grecque qui traduit l'existence des multiplets de raie dans le spectre. Par exemple, la transition K-L<sub>3</sub> : Kα<sub>1</sub> et la transition K-L<sub>2</sub> : Kα<sub>2</sub>, à partir de l'indice de ce symbol "α", Kα<sub>1</sub> est plus intense que Kα<sub>2</sub>, et les raies Kβ sont des raies dans une région en énergie distincte. Lorsqu'une lacune d'une couche X<sub>i</sub> est comblée avec émission radiative, les taux d'émission R<sub>X<sub>i</sub>-Y<sub>j</sub></sub> donnent la probabilité que la transition ait lieu, à savoir quel électron Y<sub>j</sub> vient combler la lacune et quel photon est émis.

### 1.3.2.3 Les largeurs naturelles des raies

L'énergie de la transition radiative possède une incertitude (dite largeur naturelle) déterminée par le principe d'incertitude de Heisenberg. Pour une transition radiative L<sub>3</sub>-M<sub>3</sub>, sa largeur naturelle en énergie à mi-hauteur est la somme des largeurs de chaque couche.

La largeur naturelle n'est pas un paramètre fondamental nécessaire dans le calcul des probabilités d'émission XL. Toutefois elle est utilisée lors de l'analyse des spectres expérimentaux. La largeur des pics dans le spectre est donnée par la largeur naturelle de la transition et la résolution en énergie du détecteur.

Donc, il est important de prendre en compte ces largeurs dans l'ajustement du spectre mesuré. Cette partie présente une discussion sur l'évaluation des largeurs naturelles mesurées et calculées dans le cadre des travaux de Campbell et Papp en 2001 [22]. Les largeurs sont mesurées par des méthodes spectroscopiques, par exemple la spectroscopie de photoélectron (XPS) qui peut fournir les largeurs des niveaux. La spectroscopie d'émission X (XES [23, 24]) qui fournit la largeur naturelle de la transition combinée à la spectroscopie d'électron Auger (AES) qui fournit les largeurs naturelles des états ionisés initiaux et finaux. Dans ce cas, la largeur est déterminée pour certaines couches suivie d'une extrapolation des largeurs des autres niveaux.

Les calculs des largeurs dans l'évaluation de Campbell ont été pris de la librairie des données atomiques EADL qui évalue différentes méthodes de calculs [25]. Par exemple, le calcul qui se base sur le modèle des particules indépendantes qui combine la théorie relativiste Dirac-Hartree-Slater (DHS), le calcul des probabilités des transitions radiatives effectué par Scofield [26, 27] et le calcul des probabilités des transitions non-radiatives effectué par Chen à l'aide de la théorie Dirac-Fock (DF) [28, 29].

L'évaluation des largeurs des sous couches  $L_1$ ,  $L_2$  et  $L_3$  sera discutée pour quelques éléments lourds comme exemple car, en plus des émissions X et Auger, il peut y avoir des CK dont la connaissance de la probabilité  $f_{ij}$  affecte les données.

Concernant le niveau  $L_1$ , les largeurs pour les actinides thorium et uranium ont été mesurées par XES et XPS, par exemple, *via* les transitions  $L_1$ - $M_4$ ,  $L_1$ - $M_5$ ,  $L_1$ - $N_2$  et  $L_1$ - $N_3$  [23, 24]. Campbell, dans son évaluation, a connecté ces mesures à des données plus anciennes issues d'une interpolation *via* des mesures CK et de rendement de fluorescence sur la gamme  $62 < Z < 79$ . Pour comparer ces mesures aux largeurs calculées, Campbell a converti les probabilités issues de l'évaluation EADL en largeurs (équation 1.12).

Concernant la largeur du niveau  $L_2$ , les valeurs théoriques de Chen *et al.* montrent une différence de 1 à 3% au-dessus de celles issues de l'EADL [25, 30].

Par exemple, pour  $Z = 90$ , l'incertitude sur la probabilité de la transition CK  $f_{23}$  limite la

détermination d'une largeur naturelle du niveau  $L_2$  par les calculs de Chen [30]. Si la probabilité  $f_{23}$  est de 0,1 la largeur  $L_2$  calculée est de 7,73 eV, par contre la largeur issue de la mesure XES est de 8,5 eV [24]. Si  $f_{23}$  est de 0,15 la largeur calculée du niveau  $L_2$  sera 8,2 eV. Donc, Campbell recommande de choisir les largeurs des niveaux  $L_2$  et  $L_3$  issues des mesures XES (par exemple les mesure de Raboud en 1999 [24]) dans le cas des éléments lourds. Donc dans ce travail les largeurs utilisées dans l'ajustement des spectres sont celles recommandées dans l'évaluation de Campbell [22].

### 1.3.2.4 Calculs et incertitudes des probabilités d'émissions XL

L'utilisation des paramètres fondamentaux atomiques (rendement de fluorescence  $\omega_i$ , probabilité de transitions Coster Kronig  $f_{ij}$ , *etc.*) et nucléaires (coefficient de conversion interne  $a$ , probabilité de transition  $\gamma$ ,  $P_t$ , *etc.*) permettent de calculer les probabilités des émissions X des radionucléides et d'évaluer ces probabilités dans les tables de données de décroissance, lorsqu'il n'y a pas de mesures d'intensités (voir tableau 1.3). Par la suite, chaque sous couche, ( $L_1$ ,  $L_2$ ,  $L_3$ ) possède son rendement de fluorescence  $\omega_1$ ,  $\omega_2$  et  $\omega_3$  respectivement, et les probabilités de transitions CK,  $L_1$ - $L_2$ Y,  $L_1$ - $L_3$ Y et  $L_2$ - $L_3$ Y, sont dénommées par  $f_{12}$   $f_{13}$  et  $f_{23}$  respectivement (Y=M,N,O,...).

Le nombre des lacunes primaires dans les couches  $L_1$ ,  $L_2$  et  $L_3$  et par désintégration, définies comme les lacunes créées dans le cortège électronique par les conversions internes, se détermine selon l'équation 1.10 et sont données respectivement par les équations [21] :

$$N_p(L_1) = \sum_t P_t \frac{\alpha_1}{1 + \alpha_T} \quad (1.20)$$

$$N_p(L_2) = \sum_t P_t \frac{\alpha_2}{1 + \alpha_T} \quad (1.21)$$

$$N_p(L_3) = \sum_t P_t \frac{\alpha_3}{1 + \alpha_T} \quad (1.22)$$

avec,

$N_i$  : le nombre de lacunes primaires dans la  $i^{\text{ème}}$  couche où  $i=1,2,3$ ,

$P_t$  : probabilité de la transition  $\gamma$  dont l'énergie est convertie au cortège électronique,

$\alpha_i$  : coefficient de conversion interne partiel la  $i^{\text{ème}}$  couche où  $i = 1,2,3$ .

$\alpha_T$  : coefficient de conversion interne totale.

Les lacunes dans les couches  $L_2$  et  $L_3$  peuvent être créées par conversion interne et par transition CK  $L_1$ - $L_2$ Y et  $L_1$ - $L_3$ Y. Elles se retrouvent en  $L_2$  ou  $L_3$  via des transitions CK  $L_2$ - $L_3$ Y.

Donc après réarrangement CK, les distributions des lacunes dans les sous-couches deviennent :

$$V_p(L_1) = N_p(L_1) \quad (1.23)$$

$$V_p(L_2) = N_p(L_2) + f_{12}N_p(L_1) \quad (1.24)$$

$$V_p(L_3) = N_p(L_3 + f_{23}N_p(L_2) + (f_{13} + f_{12}f_{23})N_p(L_1) \quad (1.25)$$

avec,

$V_i$  : la distribution des lacunes par désintégration dans la  $i^{me}$  couche où  $i=1,2,3$ .

Ensuite, la probabilité de transition radiative  $P_{L_i}^{radiative}$  est donnée par :

$$P_{L_i}^{radiative} = \omega_i \cdot V_i \quad (1.26)$$

La probabilité d'émission d'une raie X  $L_i-L_y$  est donnée par :

$$P_{L_i-Y_j}^{radiative} = R_{Y_j L_i} I_{L_i}^{radiative} \quad (1.27)$$

$R_{Y_j L_i}$  est le taux d'émission pour une transition radiative  $L_i-Y_j$  [26].

Les taux d'émission ont été calculés par Scofield [26]. Il considère un électron dans une sous-couche atomique (K ,  $L_{1,2,3}, M_{1,\dots,5}$ ) dont la fonction d'onde est calculée par la méthode relativiste Hartree-Slater. La probabilité est estimée ensuite par la théorie de perturbation du premier ordre. Même si les règles de sélection interdisent une transition, cette dernière peut quand même avoir lieu mais avec une très faible probabilité [26, 29, 31, 32].

L'incertitude sur les probabilités d'émission X calculées va découler de la propagation des incertitudes issues des différents paramètres fondamentaux atomiques et nucléaires nécessaires et énumérés dans la section précédente. Les paramètres fondamentaux peuvent être obtenus par mesure, calcul théorique ou par une évaluation des deux. Nous allons donner des incertitudes sur ces paramètres fondamentaux, cependant elles ne sont pas toujours disponibles, en particulier pour les calculs théoriques, les incertitudes sont aussi très variables selon les radionucléides, en particulier pour les paramètres nucléaires mesurés.

Les probabilités des transitions gamma  $P_i$ , sont généralement obtenues à partir des intensités d'émission gamma mesurées. Quant aux coefficients de conversion interne, ils sont calculés relativement précisément par le code BrIcc avec une incertitude relative de 1,4%, à condition de connaître la multipolarité des transitions gamma en particulier pour les mélanges de multipolarité d'ordres élevés. Enfin, il existe des transitions gamma dites anormales, comme pour  $^{241}\text{Am}$ , dans ce cas les coefficients de conversion sont difficilement calculables théoriquement et

doivent être déterminées expérimentalement [33,34].

La principale source d'incertitude provient des paramètres atomiques. Pour pouvoir calculer les probabilités des transitions radiatives par désintégration, les paramètres fondamentaux  $(\omega_i, f_{ij})$  utilisés par les évaluateurs et leur code EMISSION sont issues de données compilées par S. Puri [35–37].

Une autre évaluation de paramètres fondamentaux reconnues est celle de Campbell en 2003 [38]. Campbell recommande les valeurs  $\omega_2$  et  $\omega_3$  issues des calculs par la théorie DHS établis par Chen [39] vu leur accord avec les valeurs expérimentales. Le rapport des valeurs calculées/mesurées de la probabilité  $f_{23}$  pour les  $Z > 90$  est de 1,0(16)%. Bien que cet accord puisse être fortuit, Campbell recommande les valeurs de  $f_{23}$  calculées par la théorie DHS avec une incertitude de 5%. Il suggère que ce calcul soit remplacé par la théorie DF parce que le mouvement des électrons durant la transition CK peut changer les résultats. D'ailleurs, l'ajustement des raies  $L\alpha$  ( $L_3M_4$  et  $L_3M_5$ ) est une source d'incertitude importante car les largeurs naturelles des raies ne sont pas prises en compte.

Les valeurs de  $\omega_2$  issues de la théorie DHS ont été calculées en se basant sur les valeurs  $\omega_3$  recommandées précédemment et celle de  $f_{23}$  suivant l'équation  $\omega'_2 = \omega_2 + \omega_3 f_{23}$  avec un rapport calcul/mesure de 0,993 (12). Les incertitudes des valeurs expérimentales du  $\omega_2$  et  $\omega_3$  ont été estimées respectivement à 6,5% et 5,9%. Par contre, Campbell donne une incertitude de ces valeurs calculés de 5%.

Tableau 1.6 – Comparaison des valeurs des rendements de fluorescence et des probabilités des transitions CK recommandées par Campbell et par Puri pour l'atome de Np, fils de  $^{241}\text{Am}$  [36,38]

Paramètre	Valeur recommandée Campbell	Incertitude relative(%)	Valeur recommandée Puri	Incertitude relative(%)
$\omega_1$	0,2	20	0,157	1,9
$\omega_2$	0,519	5	0,519	1,7
$\omega_3$	0,454	5	0,454	2,0
$f_{12}$	0,03	50	0,0460	4,3
$f_{13}$	0,67	15	0,656	1,4
$f_{23}$	0,136	5	0,135	2,2

Le tableau 1.6 montre les valeurs recommandées par Campbell et Puri pour le Np accompagnées de leur incertitudes. Les valeurs et les incertitudes diffèrent énormément entre les deux compilations et les écarts ne sont pas couverts par les incertitudes pour les paramètres rela-

tifs à la couche  $L_1$ . Néanmoins, il faut noter que ces paramètres fondamentaux sont fortement corrélés entre eux, et que ces écarts se compensent en partie lors du calcul des probabilités d'émission, c'est pourquoi il faut toujours utiliser des paramètres fondamentaux issus d'une même évaluation. En utilisant ces paramètres atomiques et nucléaires, le code EMISSION calcule les probabilités d'émission XL pour la base de données recommandées.

Le tableau 1.7 présente les groupes XL pour  $^{241}\text{Am}$ ,  $^{244}\text{Cm}$  et  $^{238}\text{Pu}$ . Pour  $^{241}\text{Am}$ , les incertitudes sont de l'ordre de 6 à 10%, ce cas est problématique car il existe, pour  $^{241}\text{Am}$  des transitions  $\gamma$  anormales dont les coefficients de conversion internes ne peuvent pas être calculés. Ils ont donc d'importantes incertitudes, qui dominent l'incertitude sur les émission XL. Les  $^{244}\text{Cm}$  et  $^{238}\text{Pu}$  ont des incertitudes plus faibles, autour de 3%, dominées par les contributions des paramètres fondamentaux atomiques.

Par ailleurs, comme toute valeur basée sur des paramètres calculés théoriquement (comme les taux d'émission), les biais sur ces paramètres sont difficilement quantifiables, par conséquent il existe des biais qui ne sont pas inclus dans le bilan d'incertitudes.

Tableau 1.7 – Calculs des probabilités des transitions radiatives suite à la désintégration du  $^{241}\text{Am}$ ,  $^{238}\text{Pu}$  et  $^{244}\text{Cm}$ .

Région	$^{241}\text{Am}$	$^{238}\text{Pu}$	$^{244}\text{Cm}$
	Probabilité		
$XL\iota$	0,71 (5)	0,232 (8)	0,219 (8)
$XL\alpha$	11,2 (7)	3,73 (12)	3,42 (11)
$XL\eta$	0,39 (4)	0,118 (5)	0,092 (4)
$XL\beta$	19,4 (15)	5,23 (16)	4,21 (14)
$XL\gamma$	5,0 (4)	1,23 (4)	0,97 (4)
XL	36,8 (21)	10,55 (25)	8,92 (23)

## 1.4 Spectrométrie de photons et mesure des intensités d'émission XL

Les intensités des photons XL sont mesurées par spectrométrie de photon en utilisant des détecteurs à semi-conducteur (HPGe, Si(Li)). En connaissant le rendement d'absorption totale établi par un étalonnage, les intensités sont déterminées à l'aide de l'équation 1.28 après avoir analysé le spectre obtenu [40–42].

$$I(E) = \frac{N(E)}{\Delta t \cdot A \cdot \epsilon_{abs}(E)} \quad (1.28)$$

avec,

$I(E)$  : intensité d'émission de photon à une énergie  $E$  [photon/désintégration],

$N(E)$  : nombre d'événement enregistré par le détecteur à l'énergie  $E$ ,

$A$  : activité de l'échantillon [Bq],

$\Delta t$  : temps d'acquisition [s],

$\epsilon_{abs}$  : rendement d'absorption totale.

Afin d'identifier les limites des mesures d'intensités photoniques avec les techniques conventionnelles, nous allons dans un premier temps présenter les différents processus d'interaction rayonnement matière rencontrés en spectrométrie au dessus de 100 keV, et dans un second temps nous allons expliquer les principes de fonctionnement des détecteurs conventionnels à semi-conducteur et leur limite pour la mesure d'intensités d'émission photoniques.

## 1.4.1 Interaction rayonnement-matière

### 1.4.1.1 Coefficient d'atténuation

Les processus d'interaction rayonnement-matière des photons avec le matériau du détecteur et les matériaux environnants auront deux conséquences en spectrométrie de photons. Ils permettent de décrire et de comprendre les différentes structures du spectre en énergie mais aussi, de rendre compte de la dépendance du rendement de détection intrinsèque du détecteur en fonction de l'énergie des photons. Cette partie détaillera les principaux types d'interactions que les photons d'énergie  $E$  en dessous de 100 keV subissent avec un élément lourd : effet photo-électrique, diffusion Compton et diffusion Thomson. La création de paire ne sera pas détaillée, car elle concerne les photons au dessus de 1,2 MeV, qui sont extrêmement peu probables pour les actinides majeurs et mineurs.

La probabilité  $P_{BL}$  d'interaction d'un photon d'énergie  $E$  arrivant perpendiculairement à la surface du matériau dérive de la loi de Beer-Lambert (équation 1.29).

$$P_{BL} = 1 - e^{-\mu(E)\rho x} \quad (1.29)$$

avec,

$$\mu = \mu_{photoelectrique} + \mu_{Compton} + \mu_{Thomson}$$

le coefficient d'atténuation qui dépend uniquement de la nature du matériau utilisé et de l'énergie du photon.

$\mu_{photoelectrique}$  : le coefficient d'atténuation d'un photon par effet photo-électrique [g/cm<sup>2</sup>],

$\mu_{Compton}$  : le coefficient d'atténuation d'un photon par diffusion inélastique [g/cm<sup>2</sup>],

$\mu_{Thomson}$  : le coefficient d'atténuation d'un photon par diffusion élastique [g/cm<sup>2</sup>].

# CHAPITRE 1. PHYSIQUE DES ÉMISSIONS PHOTONIQUES DES ACTINIDES ET INSTRUMENTATION DE DÉTECTION

Les coefficients  $\mu_{photoelectrique}$  et  $\mu_{Compton}$  contribuent à la forme du spectre ainsi qu'au rendement intrinsèque du détecteur.

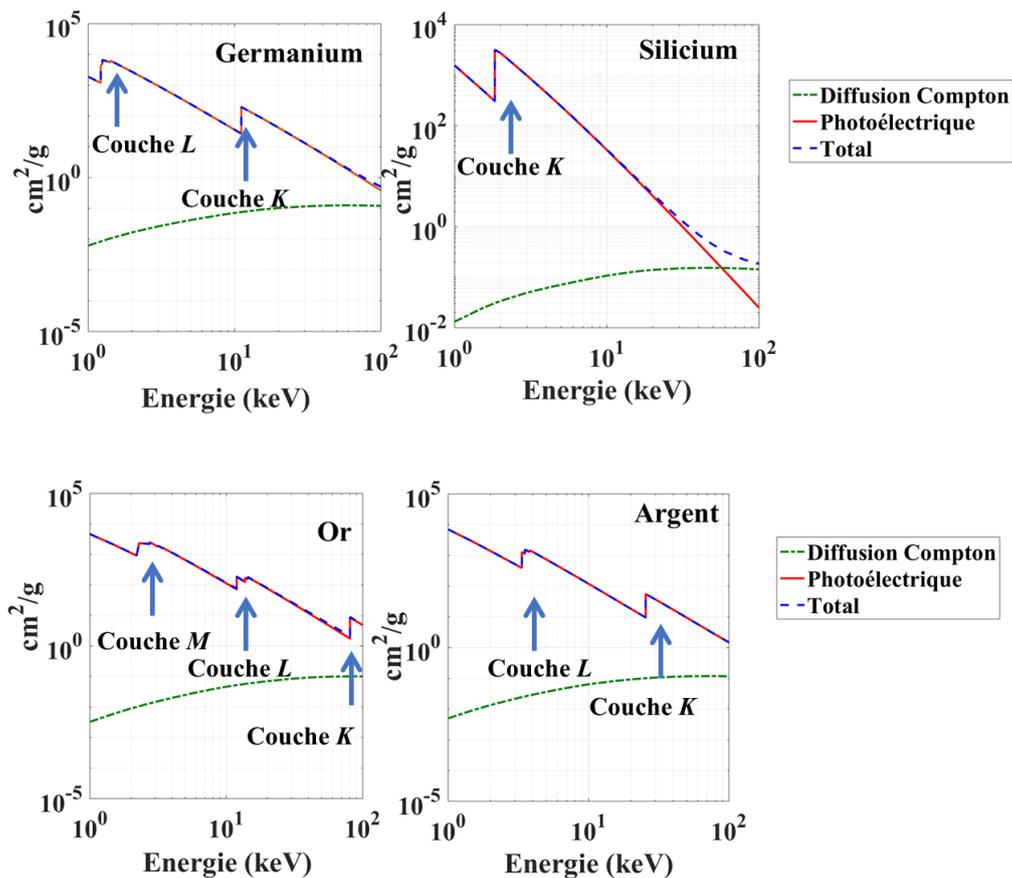


FIGURE 1.5 – Coefficients d'atténuation du germanium, du silicium, de l'or et de l'argent en fonction de l'énergie inférieure à 100 keV issue de la base de données XCOM [43].

La figure 1.5 montre les coefficients d'atténuation massique du Ge, Si, Au et Ag pour des énergies en dessous de 100 keV. Sur cet intervalle d'énergie, il est clair que l'effet photo-électrique est prédominant pour les quatre matériaux.

### 1.4.1.2 Effet photoélectrique

L'absorption d'un photon par effet photo-électrique aura lieu dans le cas où le photon cède entièrement son énergie à un électron lié du cortège électronique. Cet électron est éjecté avec une énergie cinétique  $E_e$  donnée par l'équation 1.30.

$$E_e = E_{\text{photon}} - W \quad (1.30)$$

avec,

$W$  : énergie de liaison de l'électron éjecté.

L'atome est alors ionisé et excité. Il se désexcite par réarrangement électronique et l'émission de particules secondaires : électrons Auger et Coster Kronig et photons X caractéristiques de l'élément.

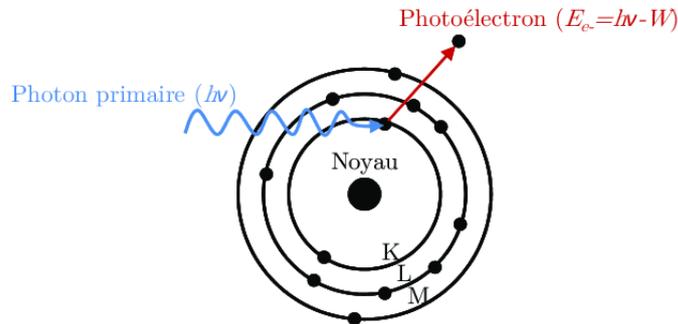


FIGURE 1.6 – Interactions des photons par effet photo-électrique

La figure 1.6 illustre l'interaction par effet photo-électrique. La probabilité d'interaction du rayonnement avec un matériau par effet photo-électrique est exprimée par une section efficace,  $\sigma_{ph}$ . Elle donne la probabilité d'interaction en fonction du numéro atomique  $Z$  et de l'énergie du photon absorbé  $E_\gamma$  (équation 1.31) [44].

$$\sigma_{ph} \cong \text{constante} \cdot \frac{Z^n}{E_\gamma^{3.5}} \quad (1.31)$$

$\sigma_{ph}$  : section efficace,

$Z$  : numéro atomique,

$E$  : énergie du photon [eV],

$n$  : varie entre 4 et 5 selon l'énergie  $E_\gamma$ .

La section efficace décroît rapidement avec l'énergie. Un matériau de  $Z$  élevé permet d'augmenter la section efficace par effet photoélectrique. Comme le montre la figure 1.5, le coefficient d'absorption présente des discontinuités aux énergies de liaison des électrons de l'atome. Ces discontinuités proviennent du fait que lorsque le photon incident a une énergie supérieure ou égale à l'énergie de liaison d'une couche, le photon interagit très probablement avec un électron de cette couche. La section efficace d'interaction et le coefficient d'absorption augmentent alors brutalement.

### 1.4.1.3 Diffusion Compton

Dans ce cas, le photon incident communique une partie de son énergie par diffusion inélastique à un électron non-lié (ou faiblement lié) qu'il éjecte (Figure 1.7). Le photon diffuse avec un angle  $\theta$  par rapport à la trajectoire initiale avec une énergie  $E'$  (équation 1.32). Plus l'angle de diffusion est grand plus l'énergie du photon diffusé est faible.

$$E' = \frac{h\nu}{1 + \frac{h\nu}{m_0 c^2} (1 - \cos\theta)} \quad (1.32)$$

$\theta$  : angle de diffusion,

$m_0 c^2$  : la masse de l'électron,

$h$  : constante de Planck.

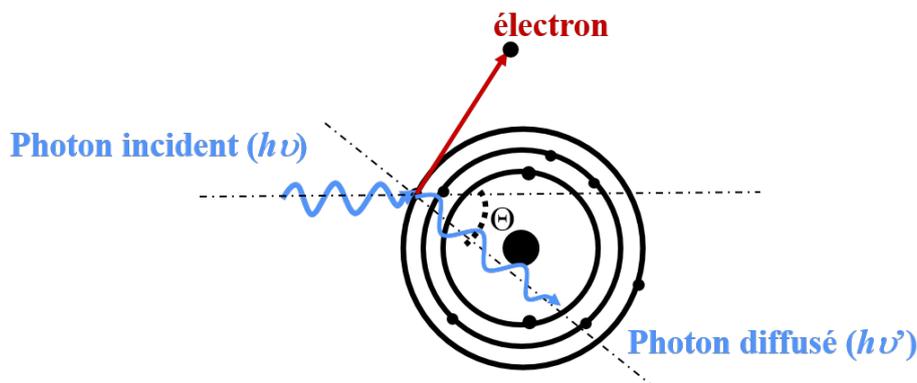


FIGURE 1.7 – Principe de la diffusion Compton

La section efficace différentielle  $\frac{d\sigma}{d\Omega}$  de la diffusion Compton est donnée par l'équation de Klein-Nishina montrant la dépendance linéaire avec le numéro atomique  $Z$  et inversement proportionnelle à l'énergie du photon incident  $E_{\text{photon}}$  (équation 1.33) [44].

$$\begin{aligned} \frac{d\sigma}{d\Omega} = & Zr_0^2 \cdot \left(\frac{1 + \cos^2\theta}{2}\right)^2 \cdot \left(\frac{1}{\frac{E_{\text{photon}}}{m_0c^2}(1 - \cos\theta)}\right)^2 \\ & \cdot \left(1 + \frac{\left(\frac{E_{\text{photon}}}{m_0c^2}\right)^2(1 - \cos\theta)^2}{(1 + \cos^2\theta)\left(1 + \frac{E_{\text{photon}}}{m_0c^2}(1 - \cos\theta)\right)}\right) \end{aligned} \quad (1.33)$$

$\theta$  : angle de diffusion

$E_{\text{photon}}$  : énergie du photon incident

$r_0$  : rayon de l'électron

$m_0 c^2 = 511 \text{ keV}$ .

La diffusion Thomson est un cas particulier de la diffusion Compton. Le photon incident sur un électron non lié interagit par diffusion Thomson tant que son énergie est très faible devant l'énergie  $m_0c^2$ . Dans ce cas, le photon garde son énergie initiale mais il change de direction.

#### 1.4.1.4 Spectre en énergie

Le détecteur fournit le spectre des énergies absorbées dans le détecteur. Outre le fait que des photons peuvent être transmis à travers le détecteur sans interagir, d'autres y interagissent mais n'y déposent pas nécessairement toute leur énergie. Selon le type d'interaction, une fraction de l'énergie peut être non absorbée à cause de l'échappement de particules secondaires hors du détecteur. L'énergie mesurée sera alors inférieure à l'énergie du photon et va se traduire dans le spectre en énergie par différentes contributions selon le type d'interaction. La figure 1.8 montre un schéma d'un spectre en énergie obtenu par un détecteur pour des photons mono-énergétiques d'énergie  $E_\gamma$ . Ce spectre est aussi appelé la réponse spectrale du détecteur, et illustre les quatre principales contributions liées aux interactions par effet photoélectrique et par diffusion Compton : pic d'absorption totale, pics d'échappement, pics de fluorescence, et fond Compton.

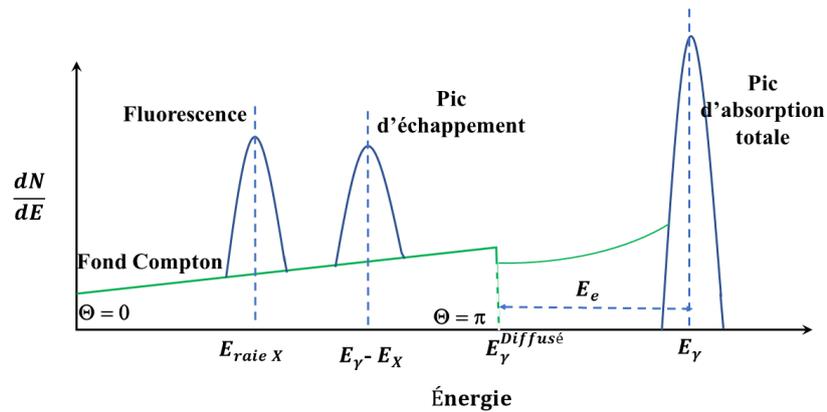


FIGURE 1.8 – Schéma du spectre en énergie suite à l'interaction de photons mono-énergétiques d'énergie  $E_\gamma$ .

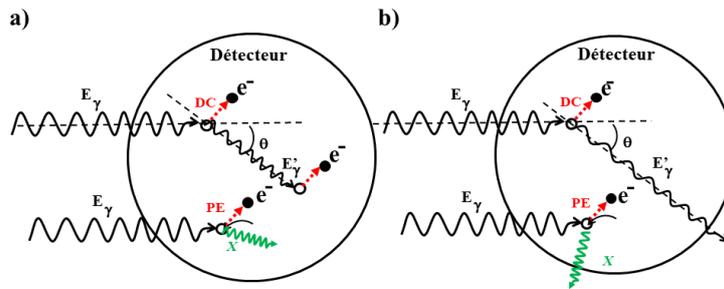


FIGURE 1.9 – Interaction des photons avec le détecteur par effet photo-électrique (PE) et diffusion Compton (DC). (a) Toute l'énergie du photon incident est détectée. (b) Une partie de l'énergie du photon s'échappe du détecteur.

### Pic d'absorption totale

Le pic d'absorption totale correspond aux photons ayant cédés toute leur énergie au détecteur comme le montre la figure 1.9.a. Il est majoritairement constitué par des photons interagissant par effet photoélectrique du fait que les particules secondaires (photo-électrons, électrons Auger et photons de fluorescence X) sont très probablement réabsorbés. Cela n'empêche pas que le photon peut céder toute son énergie suite à une interaction Compton, également représentée en figure 1.9.a, mais ce cas est moins probable car le photon diffusé, a une énergie relativement importante et peut s'échapper plus probablement. Le nombre de photons  $N(E)$  des équations 1.1 et 1.3 est donné par la surface du pic d'absorption totale. On a donc tout intérêt à favoriser l'effet photo-électrique pour augmenter la surface de ce pic par rapport aux autres contributions spectrales.

### Pic de fluorescence

Les photons incidents interagissent aussi dans l'environnement du détecteur par effet photo-électrique, ionisent les atomes des matériaux et émettent des photons X de fluorescence caractéristiques du matériau ionisé. Si ces photons s'échappent du matériau et interagissent dans le détecteur, ils produisent des pics de fluorescence aux énergies caractéristiques (figure 1.8).

### Pic d'échappement

Dans ce cas, un atome du détecteur est dans un état ionisé suite à l'interaction du photon par effet photo-électrique. Le réarrangement du cortège électronique se fait en émettant des particules secondaires, photons X, électrons Auger. Les électrons émis ont un parcours de l'ordre du  $\mu\text{m}$  dans la matière et sont facilement absorbés. En revanche les photons X ont une probabilité non négligeable de s'échapper du détecteur. Les énergies  $E_X$  des photons X émis par l'atome étant discrètes, un pic d'échappement apparaîtra dans le spectre à une énergie  $E_\gamma - E_X$ , comme le montrent les figures 1.8 et 1.9.b. Ces photons s'échappent plus probablement lorsque le photon incident interagit proche de la surface du détecteur.

### Fond Compton

Le fond Compton est formé lorsque le photon interagit par diffusion Compton et que le photon diffusé s'échappe du détecteur emportant l'énergie  $E_\gamma^{Diffusé}$  comme le montre la figure 1.9.b. La distribution de l'énergie  $E_\gamma^{Diffusé}$  étant continue en fonction de l'angle de diffusion  $\theta$ , ces échappements engendrent la formation d'un fond continu entre 0 (échappement d'un photon diffusé avec un angle de diffusion proche de  $0^\circ$ ) et l'énergie du photon diffusé avec  $180^\circ$ . De plus, il est possible que le photon incident diffuse par interaction Compton dans l'environnement avant qu'il interagisse avec le détecteur. Ceci se traduit par un fond Compton entre l'énergie du photon diffusé à  $180^\circ$  et le pic d'absorption totale (figure 1.8).

### Forme des pics

La forme des pics en énergie a un profil de Voigt, qui est la convolution d'une fonction lorentzienne et d'une fonction gaussienne. La lorentzienne est le profil en énergie des photons  $\gamma$  émis par le noyau ou des photons X émis par l'atome avec une largeur à mi-hauteur égale à la largeur naturelle de la raie. La fonction gaussienne, d'écart-type  $\sigma$  est la contribution de la résolution en énergie du détecteur.

Pour les émissions  $\gamma$ , la largeur naturelle est si étroite par rapport à la résolution du détecteur, que les pics sont approximés à des gaussiennes. Pour les pics X, les largeurs naturelles ne sont pas négligeables, mais elles diffèrent énormément selon la transition X et le numéro atomique. Pour les XL des actinides les largeurs naturelles sont de quelques eV jusqu'à la trentaine d'eV. Pour les XK des actinides les largeurs sont autour de la centaines d'eV. L'intérêt est d'avoir la résolution en énergie du détecteur la meilleure qui soit pour limiter au maximum les interférences spectrales entre les pics proches en énergie, issus de la source ou de pics d'échappement. Une largeur instrumentale plus faible que les largeurs naturelles étant l'idéal, mais ce cas est techniquement très difficile à obtenir. L'avantage d'une meilleure résolution est aussi d'abaisser les limites de détection en présence d'un fond, fond Compton par exemple. La limite de détection LD exprimée en  $s^{-1}$  est donnée par l'équation 1.34 [45].

$$LD = \frac{8,76}{t} \sqrt{B \cdot 2,35\sigma(E)} \quad (1.34)$$

où,

$t$  : la durée de la mesure,

$B$  : le nombre moyen du fond par canal,

$2,35\sigma(E)$  : la largeur à mi-hauteur du pic.

### 1.4.2 Spectromètres

La fonction du détecteur est de convertir un dépôt d'énergie dans l'absorbeur en un signal mesurable pour fournir les spectres des énergies absorbées, cet ensemble forme un spectromètre. Indépendamment du schéma de détection, un spectromètre doit satisfaire aux mieux les critères suivants :

- (a) un rendement intrinsèque le plus proche de l'unité et le plus constant possible avec l'énergie, en favorisant notamment l'interaction par effet photoélectrique,
- (b) une grande surface de détection et un grand angle solide,
- (c) la meilleure résolution en énergie,
- (d) une temps de réponse courte pour ne pas limiter le taux de comptage,
- (e) une stabilité durant le fonctionnement.

Le schéma de conversion de l'énergie d'un photon en signal électrique est défini par le type du détecteur choisi. Dans tous les cas, le photon dépose son énergie  $E$  qui se distribue sur un nombre  $N_{exc}$  d'états excités à condition que l'énergie du photon soit plus grande que l'énergie minimale d'ionisation. Le détecteur traduit le nombre des états excités, créés suite à l'ionisation, en un signal électrique sous forme d'une impulsion. Donc, le nombre d'états excités induits par

l'interaction du photon est défini par l'équation 1.35.

$$N_{exc} = \frac{E}{E_{excitation}} \quad (1.35)$$

avec,

$E_{excitation}$  : énergie moyenne pour créer un état excité.

Comme déjà discuté précédemment la distribution est de type gaussienne avec une largeur  $\sigma$  donnée par l'écart-type (équation 1.36) .

$$\sigma = \sqrt{N_{exc}} \quad (1.36)$$

La première contribution à la résolution en énergie est donnée par les fluctuations statistiques avec une incertitude relation  $\sqrt{N_{exc}}$ . L'intérêt est de maximiser  $N_{exc}$  en minimisant  $E_{excitation}$ .

### 1.4.2.1 Détecteur à semi-conducteur

Dans le cadre de la spectrométrie de photon X et  $\gamma$  les détecteurs à semi-conducteur sont les plus couramment utilisés, spécifiquement le germanium et le silicium dopé par le lithium. Ces détecteurs seront discutés suivant leur rendement de détection, et la résolution en énergie.

#### 1.4.2.1.1 Principe de fonctionnement

Lorsqu'un photon interagit et dépose son énergie  $E$  dans un matériau semi-conducteur (SC), l'électron lié est éjecté. Lui et l'atome ionisé vont générer une cascade d'électrons secondaires par ionisation, passant de la bande de valence à la bande de conduction du semi-conducteur, bandes séparées par un gap d'énergie  $E_g$  (0,67 eV et 1,12 eV respectivement pour le Ge et le Si). Cela va conduire à la création de  $N_{exc}$  paires électron-trous, à condition que l'énergie initiale déposée soit plus grande que le seuil d'ionisation d'environ  $3/2 E_g$ . L'énergie moyenne de création d'une paire électron-trou est de 3 eV et 3,6 eV respectivement pour le Ge et le Si, elle est supérieure à l'énergie du gap car une partie de l'énergie se dissipe dans le matériau sous d'autres formes (en chaleur et en phonon) [44].

Les paires électron-trou sont collectées grâce à une différence de potentiel de plusieurs kV appliquée au semi-conducteur par des électrodes de surface vers lesquelles les électrons et les trous migrent. Les charges ne seront collectées que lorsqu'elles sont créées dans la zone dite de déplétion dont la largeur est définie par :

$$d_p = \left( \frac{2\epsilon V}{eN_{dopant}} \right)^{1/2} \quad (1.37)$$

$d_p$  : largeur de la zone de déplétion,

$\epsilon$  : énergie d'ionisation [eV],

$N_{dopant}$  : concentration du matériau dopant le SC,

$V$  : potentiel appliqué au SC [V],

$e$  : charge de l'électron [C].

Donc, il est important de choisir un semi-conducteur avec une zone de déplétion large, pour augmenter le rendement et réduire les problèmes de collections incomplètes de charges. Cela est facilité en diminuant la concentration  $N_{dopant}$  du matériau dopant, en d'autres termes en améliorant la pureté du semi-conducteur. La largeur de la zone de déplétion varie en fonction du semi-conducteur utilisé. Le besoin de la diminution de  $N_{dopant}$  a abouti à la naissance à des détecteurs basés sur du Ge ultra-pur connus par l'abréviation HPGe (en anglais High Purity Germanium). L'utilisation d'un semi-conducteur en Ge exige un fonctionnement du détecteur à basse température (77 K, température de l'azote liquide) pour réduire le bruit d'origine thermique, contrairement aux détecteurs Si qui peuvent fonctionner à température ambiante. La tension induite par les charges sur les électrodes est préamplifiée et mise en forme par un amplificateur qui impose le taux de comptage jusqu'à environ  $10^5$ - $10^6$  s<sup>-1</sup> selon le temps de mise en forme autour de la  $\mu$ s généralement [44].

#### 1.4.2.1.2 Résolution en énergie

La résolution en énergie exprimée comme la largeur à mi-hauteur des pics dans le spectre en énergie (FWHM en anglais, *full width at the half maximum*) est 2,35 fois l'écart-type  $\sigma$  de la gaussienne du pic et est une combinaison de différentes contributions [44] :

$$\sigma^2 = \sigma_{N_{exc}}^2 + \sigma_X^2 + \sigma_{\text{électronique}}^2 \quad (1.38)$$

$\sigma_N$  : la fluctuation statistique sur le nombre des porteurs de charge définie dans l'équation 1.36,

$\sigma_{\text{électronique}}$  : les effets de l'électronique utilisée pour l'enregistrement des signaux,

$\sigma_X$  : la détection incomplète des charges, elle est plus importante pour des détecteurs larges.

Du fait de la partition de l'énergie incidente entre divers types d'état excités (paire électron-trou et phonons), la variance  $\sigma_{N_{exc}}^2$  doit être corrigée par le facteur de Fano  $F$  qui traduit l'écart de la distribution observée par rapport à une distribution de Poisson (équation 1.39).

$$\sigma_{N_{exc}}^2 = F \frac{E}{E_{excitation}} \quad (1.39)$$

$E_{excitation}$  : énergie moyenne pour créer des paires électrons-trou,

$F$  : facteur de Fano.

Pour le Si et le Ge, le facteur de Fano est d'environ 0,1, ce qui permet d'améliorer la résolution. La contribution statistique sur la résolution  $\sigma_{N_{exc}}$  est la limite fondamentale des semi-conducteur. Car elle est directement liée à l'énergie moyenne de création de paires et au gap du semi-conducteur. La relation 1.39 permet de constater que lorsque cette limite est atteinte, la résolution à mi-hauteur d'un semi-conducteur augmente avec  $E^{1/2}$ .

Les résolutions en énergie, pour les meilleurs détecteurs à semi-conducteur adaptés aux basses énergies, sont de 120-130 eV à 6 keV (Si(Li) et HPGe) et de 500-550 eV à 122 keV (HPGe).

### 1.4.2.1.3 Rendement de détection

La connaissance du rendement de détection pour réaliser des mesures précises est indispensable que ce soit pour les mesures d'actinides, de composition d'actinides ou de mesures d'intensités d'émission photoniques. Le rendement est d'autant mieux caractérisé lorsque le rendement intrinsèque  $\epsilon_{int}$  est proche de 1 et constant avec l'énergie, c'est-à-dire que tous les photons arrivant sur le détecteur déposent toute leur énergie et se retrouvent dans le pic d'absorption totale. La figure 1.10 montre la courbe du rendement intrinsèque en fonction de l'énergie d'un détecteur HPGe comparé à celle d'un détecteur Si(Li).

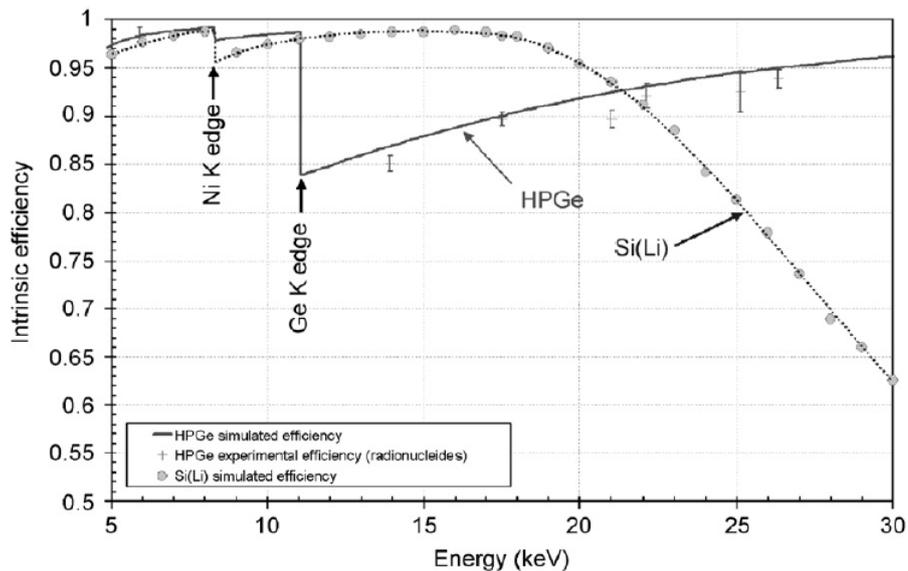


FIGURE 1.10 – Rendement intrinsèque des détecteurs HPGe et Si(Li) en dessous de 30 keV [40].

Le coefficient d'atténuation du Ge présenté dans la figure 1.5 montre une discontinuité à une énergie de 11 keV. Cela se traduit par une forte discontinuité dans la courbe de rendement d'un détecteur HPGe. Si l'énergie du photon incident est supérieure ou égale à l'énergie de liaison d'un électron de la couche K du Ge, il engendre une émission de photons XK (ou d'électrons Auger) qui peut s'échapper par la surface du détecteur et conduire à une discontinuité sur la courbe de rendement. Au delà de la discontinuité, les photons pénètrent plus profondément dans le cristal de Ge. De ce fait, la probabilité d'échappement par la surface diminue et le rendement augmente.

De même pour la courbe de rendement du Si(Li), elle présente une discontinuité, mais dans ce cas la discontinuité vient de l'électrode en Ni utilisée pour collecter les charges. Bien que le rendement du Si(Li) ait une faible discontinuité par rapport à celle du HPGe, il y a une diminution importante du rendement au-delà de 20 keV à cause de la transmission des photons à travers l'absorbeur. Dans ce cas, en se référant à la loi de Beer-Lambert (équation 1.29), l'absorption des photons s'améliore avec l'épaississement de la zone active du détecteur Si(Li) mais cela engendre une dégradation de la résolution à cause d'une moins bonne collection de charges.

### 1.4.2.1.4 Limite de fonctionnement

Les critères essentiels de choix du détecteur pour la mesure d'intensités sont un rendement précisément connu et une excellente résolution en énergie. Dans la région en énergie XL des actinides 10 à 25 keV, le rendement varie de près de 15%, ce qui rend son étalonnage plus imprécis, d'autant plus qu'il existe peu de sources étalons dans cette gamme d'énergie. De plus, la présence des électrodes en surface du semi-conducteur apporte une zone morte (hors la zone de déplétion) où la collection des charges est partielle, cette zone apporte des traînes aux pics d'absorption totale, la définition de rendement d'absorption totale est alors plus ambiguë, surtout pour les HPGe juste au-dessus de la discontinuité K du rendement où les photons interagissent en surface et plus probablement dans la zone morte.

La résolution en énergie expérimentale des détecteurs HPGe s'approche de sa limite physique donnée par les fluctuations statistiques sur le nombre d'états excités (paires électron-trou), donc aucune amélioration n'est possible à ce niveau. La figure 1.11 montre un spectre d'émission de photons d'une source de  $^{241}\text{Am}$  mesuré à l'aide d'un détecteur HPGe comparé au spectre théorique d'émission XL. Il est clair que la résolution d'un détecteur HPGe n'est pas suffisante pour séparer toutes les raies émises. Donc, pour améliorer la résolution, il est nécessaire d'introduire des détecteurs basés sur un principe de fonctionnement différent.

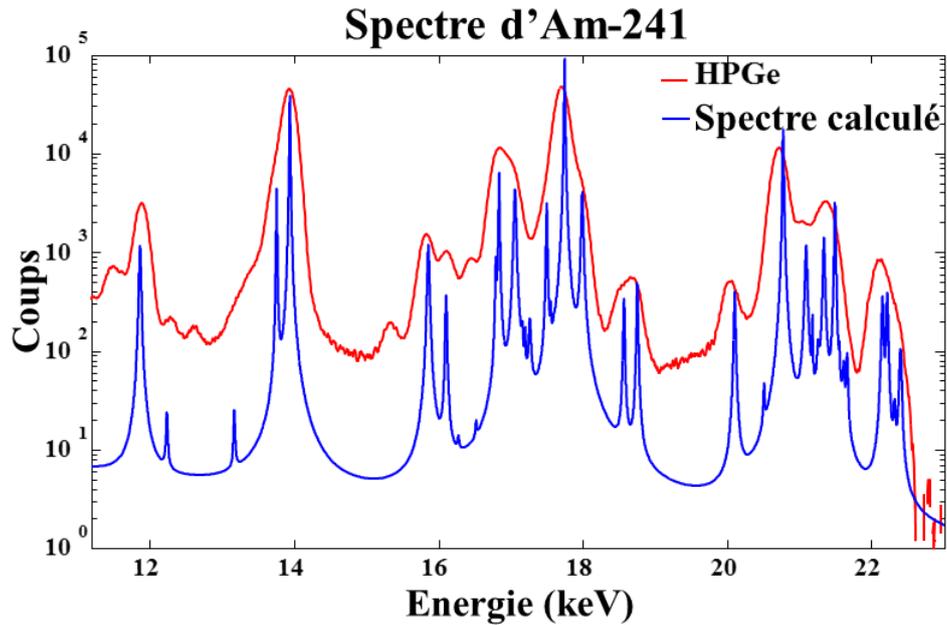


FIGURE 1.11 – Spectre de photons XL émis par l'Am-241 mesuré à l'aide d'un détecteur HPGe (en rouge) comparé au spectre calculé (en bleu).

#### 1.4.2.1.5 Évaluation des intensités XL émises par $^{241}\text{Am}$

Les mesures des intensités sont regroupés dans la table des radionucléides éditée par le DDEP [12]. Dans cette table les intensités des photons XL émis suite à la désintégration de  $^{241}\text{Am}$  ont été évaluées par Chechev en 2010 [46]. Le choix de  $^{241}\text{Am}$  comme exemple d'évaluation a été effectué car cet actinide sera utilisé comme source étalon, cela est détaillé dans le chapitre 3. L'évaluation présentée dans cette partie concerne uniquement les émissions des photons XL.

Pour évaluer les intensités des groupes XL ( $L\iota$ ,  $L\alpha$ ,  $L\eta$ ,  $L\beta$  et  $L\gamma$ ), les valeurs issues de chaque mesure ont été normalisées permettant de corriger d'éventuels biais issus de l'étalonnage en rendement ou de la mesure d'activité de la source. Les valeurs recommandées des groupes XL correspondent à la moyenne pondérée des valeurs de groupes XL. Le tableau 1.8 est un extrait du projet d'évaluation et montre quelques mesures et les valeurs recommandées [12, 46]. Il est indispensable d'utiliser une autre technique de détection qui franchisse les limites imposées par un détecteur à semi-conducteur et par l'ancienneté de certains paramètres fondamentaux et leurs grandes incertitudes. D'où, l'utilisation d'une nouvelle technique de détection basée sur la mesure de l'énergie sous forme d'une élévation de température qui permet de franchir les limites imposées sur la résolution.

Tableau 1.8 – Probabilités mesurées et recommandées des émissions XL pour 100 désintégrations de  $^{241}\text{Am}$  [12].

Group	Campbell [42]	Cohen [47]	Lépy et al. [48]	Lépy et al. [40]	Recommandé
L $\iota$	0,86 (2)	0,83 (3)	0,864 (12)	0,837 (9)	0,844 (9)
L $\alpha$	13,20 (50)	12,7(4)	13,03 (13)	13,00 (12)	13,02 (10)
L $\eta$	19,25 (40)	0,368 (5)	0,369 (12)	0,404 (5)	0,384 (20)
L $\beta$		18,3 (6)	18,39 (19)	18,65 (13)	18,58 (13)
L $\gamma$	4,85 (15)	4,8 (2)	4,74 (8)	4,84 (3)	4,83 (3)

## 1.5 Détecteurs cryogéniques

Les parties précédentes ont montré que les actinides ont d'importantes intensités d'émission XL mais dont la connaissance demeure partielle et lacunaire du fait des incertitudes des paramètres fondamentaux nécessaires à leur calcul et du fait de la résolution en énergie insuffisante des détecteurs utilisés pour leur mesure.

Dans le but de mesurer précisément les intensités d'émission, il est essentiel de constituer un détecteur basé sur un autre principe physique afin de franchir les limites imposées par les détecteurs à semi-conducteur. Les détecteurs cryogéniques ont été identifiés comme candidats potentiels pour mesurer les intensités des photons XL avec une excellente résolution en énergie. Ces détecteurs sont basés sur la conversion de l'énergie déposée par un photon en une élévation de température. Ils atteignent des résolutions allant parfois jusqu'à plus d'un ordre de grandeur meilleur que celle des détecteurs à semi-conducteur (résolution à mi-hauteur de 1,8 eV à 6 keV [49] et 22 eV à 97 keV [32]).

Le seuil et la résolution en énergie obtenus par les détecteurs cryogéniques permettent de détecter les émissions de basse énergie [14, 15, 50]. Le principe physique et le fonctionnement de ces détecteurs seront discutés en détaillant leurs différents types.

### 1.5.1 Physique de fonctionnement

Un photon d'énergie  $E$ , émis par un échantillon, dépose son énergie dans un absorbeur dans lequel une augmentation de la température aura lieu. Grâce à un thermomètre (senseur), fortement couplé thermiquement à l'absorbeur, la variation de température  $\Delta T$  est convertie en une autre grandeur physique  $\Delta X$  mesurable (équation 1.40).

$$\Delta X \propto \Delta T = \frac{E}{C} \quad (1.40)$$

avec

$\Delta T$  : augmentation de la température [K],

$E$  : énergie du photon [eV],

$C$  : capacité thermique de l'absorbeur et du senseur [J/K].

Une électronique de lecture adaptée est couplée au thermomètre (senseur), elle convertit et pré-amplifie  $\Delta X$  en une variation de tension. Le retour du détecteur à sa température d'équilibre se fait grâce à un lien thermique de conductance thermique  $G$  vers un bain thermique avec une constante de temps  $\tau_d$  (équation 1.41).

$$\tau_d = \frac{C}{G} \quad (1.41)$$

avec

$\tau_d$  : constante de temps du retour du détecteur à la température du bain thermique,

$G$  : conductance thermique du lien entre le détecteur et le bain,

$C$  : capacité thermique, égale à la somme des capacités thermiques de l'absorbeur et du senseur.

Indépendamment du type de senseur utilisé et du lien thermique, l'échange statistique d'énergie thermique entre l'absorbeur et le bain thermique à travers le lien thermique engendre un type de bruit commun à tous les détecteurs thermiques. Les fluctuations thermodynamiques de l'énergie interne  $U$  du calorimètre avec le bain sont données par l'écart-type (équation 1.42).

$$\sigma_U^2 = k_B T^2 C \quad (1.42)$$

$k_B$  : constante de Boltzmann,

$T$  : température du bain,

$C$  : capacité thermique.

Ces fluctuations thermodynamiques sont la limite fondamentale des détecteurs thermiques sur l'incertitude d'une énergie  $E$  mesurée, et donc sur la résolution en énergie. Cette source de bruit diminue avec la température ainsi qu'avec la capacité thermique du système  $C(T)$ . Donc, pour maximiser le rapport signal ( $\Delta T$ ) sur bruit ( $\sigma_U^2$ ) l'utilisation de ce type de détecteur à très basse température s'impose [51]. La figure 1.12 illustre un calorimètre idéal accompagné de la forme du signal mesuré. Pour obtenir une excellente résolution pour la spectrométrie de photons  $X/\gamma$  le choix d'un absorbeur de petites dimensions pour avoir une faible capacité thermique  $C(T)$  est préférable, mais cela va diminuer le rendement de détection  $\epsilon_{abs}$ .

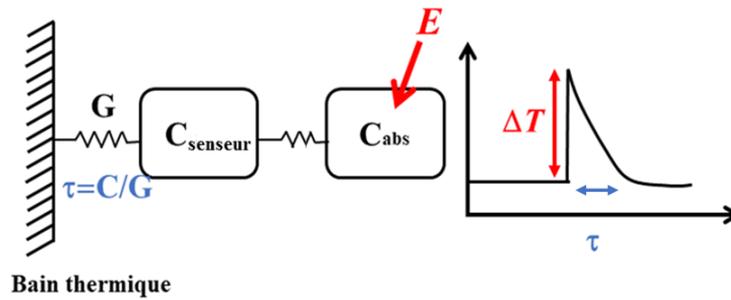


FIGURE 1.12 – Un calorimètre idéal

## 1.5.2 Types des senseurs

Il y a principalement trois types de senseurs de détecteurs cryogéniques utilisés pour la spectrométrie de photons : thermistance, senseur à transition supraconductrice connue par *Transition Edge Sensor* (TES) et senseur paramagnétique.

### 1.5.2.1 Thermistance

Pour une densité de dopage critique, la résistivité d'un semi-conducteur (SC) augmente de façon exponentielle vers les basses températures (équation 1.43). Cette dépendance est caractéristique de la transition métal-isolant. Ce type de SC est utilisé comme senseur pour mesurer l'énergie du photon sous forme d'une variation de résistance (figure 1.13).

$$R(T) = R_0 \exp\left(\frac{T_0}{T}\right)^{1/4} \quad (1.43)$$

avec,

$R$  : résistance mesurée à une température  $T$ ,

$R_0$  et  $T_0$  sont des constantes qui dépendent de la concentration du dopant et des dimensions du senseur [51].

La figure 1.13 montre que l'utilisation de ce type de senseur offre une gamme dynamique large. C'est à dire, que le senseur peut mesurer de très grandes variations de température, et donc de grands dépôts d'énergie. Pour la spectrométrie X de basse énergie ( $< 100$  keV), par exemple un senseur en Si dopé a été utilisé comme senseur couplé à un absorbeur en HgTe [51]. L'utilisation de ce type de détecteur offre une faible capacité thermique avec la possibilité de construire de larges absorbeurs (32 pixels de  $2 \times 2$  mm<sup>2</sup> [52]). Ce type de détecteur offre une

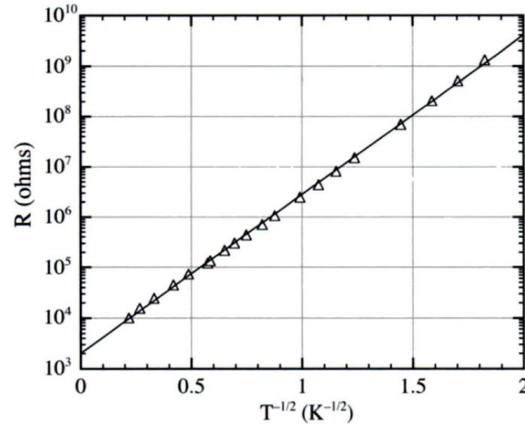


FIGURE 1.13 – Dépendance logarithmique de la résistance  $R$  mesurée sur un senseur en Si dopé en fonction de l'inverse de la racine carrée de la température  $T$  en K [51].

ultra haute résolution (6 eV sur la gamme d'énergie 0.3-12 keV) avec un rendement de l'ordre de 92% à 6 keV [53]. L'inconvénient majeur d'une thermistance est la forte résistance du thermomètre, entre  $M\Omega$  et  $G\Omega$ . Elle limite le courant de mesure à des faibles valeurs (nA), ce qui rend la mesure très sensible à des perturbations électromagnétiques et à des vibrations, surtout au niveau des câbles. La connexion entre le détecteur et le premier élément de l'électronique, un JFET (en anglais : Junction Field Effect Transistor) doit se faire à l'aide de câbles de faible capacité. La mise en place de ce type d'électronique est en soi une complexité à ajouter du fait que le JFET doit idéalement être mis à une température de l'ordre de 130 K et proche du détecteur, qui fonctionne lui à une température de l'ordre de quelques dizaines de mK, afin de minimiser l'effet de la microphonie.

### 1.5.2.2 Transition Edge Sensor : TES

Un senseur TES consiste en un film métallique supraconducteur utilisé en tant que thermomètre dans sa phase transitoire entre la phase supraconductrice et la phase normale. La résistance dans cette transition varie fortement avec la température du film comme le montre la figure 1.14. Dans un TES, le photon cède son énergie à l'absorbeur puis aux électrons de conduction, engendrant une élévation de la température et par conséquent une augmentation de la résistance du film. La température de fonctionnement  $T_c$  à laquelle le supraconducteur est dans sa phase transitoire dépend du matériau qui constitue le film. Comme il existe très peu de métaux dont la température critique convient à l'utilisation comme senseur de détecteurs cryogéniques, la construction d'un TES consiste le plus souvent à superposer une couche supraconductrice et une couche d'un métal normal ou à alterner des couches supra-normal (S-N) dans une multicouche pour adapter la température critique  $T_c$  en fonction des épaisseurs

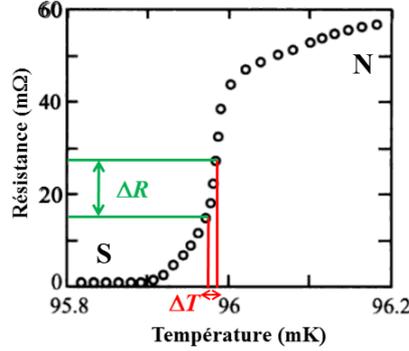


FIGURE 1.14 – Résistance d’un film mince supraconducteur dans la région de la transition normal-supra [51].

respectives des couches du TES [51]. Ce type de capteur possède l’avantage d’une forte sensibilité au changement de la température en comparaison avec une thermistance. C’est-à-dire que, pour un faible changement de la température  $\Delta T$ , un changement significatif de la résistance est observé. Le dépôt des couches du TES doit être effectué sur des substrats tout en essayant de garder une structure monocristalline du supraconducteur. Par exemple, l’épitaxie du film supraconducteur sur un substrat massif donne lieu à des structures cristallines, mais, cela limite le choix du matériau supraconducteur pour la déposition des couches TES. D’ailleurs, déposer le film supraconducteur sur une membrane en  $Si_xNi_{1-x}$ , avantageuse pour maîtriser la conductance thermique TES-bain thermique, donne généralement des structures polycristallines. Cela engendre des températures critiques locales dans le film. Par conséquent, la transition S-N sera non linéaire et plus large. A ce jour, la qualité de la transition S-N ne peut pas être évaluée à l’avance. La possibilité de créer des matrices de plus de 100 pixels en se basant sur ce type de capteur est un avantage majeur. Ils peuvent atteindre des résolutions à mi-hauteur de 1,6 eV à 6 keV [49] et 22 eV à 97 keV [32]. En revanche, la faible largeur de la transition de phase d’un TES se traduit en une gamme dynamique étroite, une forte contrainte pour la métrologie des rayonnements ionisants où l’on effectue souvent des mesures dans des gammes d’énergie larges. De plus, la transition de phase, et par conséquent, la réponse du détecteur en fonction de l’énergie, n’est pas nécessairement linéaire, comme on peut l’observer dans la figure 1.14. Ceci constitue une autre limite des TES pour des mesures de qualité métrologique.

### 1.5.2.3 Capteur paramagnétique

Un capteur paramagnétique mesure la variation de température de l’absorbeur sous forme d’un changement d’aimantation donné par l’équation 1.44.

$$\delta m = V \frac{\partial M}{\partial T} \frac{E}{C} \quad (1.44)$$

$V$  : volume du senseur magnétique,

$\frac{\partial M}{\partial T}$  décrit la dépendance de l'aimantation du senseur en fonction de la température ; elle obéit

en première approximation à un loi de Curie en  $\frac{1}{T}$ ,

$E$  : énergie déposée,

$C$  : capacité thermique de l'absorbeur et du senseur.

Le choix du matériau constituant le senseur n'est pas trivial. La sensibilité  $\frac{\partial M}{\partial T}$  et le temps de réponse, c'est-à-dire la vitesse de la thermalisation de l'énergie d'une particule, sont des critères essentiels. La dilution d'ions paramagnétiques dans un matériau diélectrique, qui a une chaleur spécifique très faible, permet d'atteindre une sensibilité très élevée. Cependant, dû au faible couplage phonon-spin, la réponse d'un tel senseur est trop lente (temps de montée de l'impulsion de plusieurs millisecondes) pour une utilisation pratique dans la détection de particules. Grâce à l'utilisation d'une matrice métallique dopée avec des ions paramagnétiques, un temps de réponse de l'ordre de la microseconde et un temps de retour à la température du bain thermique (temps de descente de l'impulsion) de l'ordre de la milliseconde peuvent être obtenus [51]. En raison de la nature métallique des senseurs paramagnétiques, ceux-ci sont généralement appelés calorimètres métalliques magnétiques (MMC, pour Metallic Magnetic Calorimeters en anglais). Comparées à celles d'un TES, les propriétés thermodynamiques d'un matériau paramagnétique sont mieux connues. La physique des senseurs paramagnétiques ainsi que la lecture de leur signal seront traités en détail dans la partie 1.5.3. En général, les senseurs magnétiques Au:Er sont couplés à des absorbeurs en or. Ils ont montré d'excellentes résolutions, par exemple 1,6 eV à 6 keV [54].

#### 1.5.2.4 Choix de l'absorbeur en fonction du senseur

Le choix du matériau d'un absorbeur doit répondre aux besoins de d'utilisation du détecteur. Dans le cas de la métrologie des rayonnements ionisants, la conception du détecteur est basée sur l'exigence d'un rendement élevé sans ou avec de faibles discontinuités, une excellente résolution en énergie et d'un taux de comptage élevé.

Pour tout type de senseur, un absorbeur doit avoir une capacité thermique faible, une conversion de l'énergie en chaleur (thermalisation) rapide et une bonne conductivité thermique. Une capacité thermique faible permet de maximiser le rapport signal sur bruit en maximisant l'élévation de température du détecteur et en minimisant les fluctuations thermodynamiques de l'énergie interne de l'absorbeur. Une thermalisation complète et rapide est nécessaire pour éviter de piéger de l'énergie sous forme d'états athermiques (paires électron-trous, quasiparticules...) qui ne contribuent alors pas à une élévation de température et donc entraînent une diminution de l'amplitude des impulsions. Par ailleurs, une thermalisation lente d'états athermiques de

durée de vie longue, mais finie, peut conduire à des variations des formes des impulsions et par conséquent à une dégradation supplémentaire de la résolution en énergie. Enfin, une bonne conductivité thermique évite également d'avoir des impulsions de formes différentes, selon le point d'interaction du photon dans l'absorbeur. Un autre point important est d'avoir un fort couplage thermique entre l'absorbeur et le senseur, pour ne pas limiter le taux de comptage du détecteur, et parce qu'un temps de montée rapide est avantageux pour la résolution en énergie, comme nous le verrons dans la section 1.5.3.3.1.

Il existe quatre types de matériau pour les absorbeurs.

#### 1.5.2.4.1 Les diélectriques

La chaleur spécifique d'un matériau diélectrique est donnée par les vibrations du réseau cristallin (les phonons) :

$$c_{ph} = \frac{12\pi^4}{5} k_B N_A \left( \frac{T}{\theta_D} \right)^3 \quad (1.45)$$

avec

$\theta_D$  : la température de Debye [K],

$N_A$  : le nombre d'Avogadro.

Leur chaleur spécifique décroît très rapidement avec la température, les absorbeurs diélectriques ont donc des capacités thermique parmi les plus faibles. En revanche, leur conductivité thermique est faible à basse température, et leur thermalisation est complexe, à travers différents états athermiques (phonons athermiques, paires électron-trous...), ce qui peut limiter les taux de comptage en raison de constantes de temps longues. Pour ces raisons, ce type de matériau est rarement utilisé pour la spectrométrie de photons.

#### 1.5.2.4.2 Les métaux supraconducteurs

Très en dessous de la température critique d'un supraconducteur, où les électrons de conduction sont, pour l'essentiel, liés en paires de Cooper, sa chaleur spécifique est dominée par les phonons et donc aussi donnée par l'équation 1.45. La thermalisation dans les supraconducteurs est complexe à travers des quasiparticules, dont la recombinaison en paires de Cooper est parfois longue et problématique pour leur utilisation en tant qu'absorbeur. Des absorbeurs en étain sont toutefois utilisés avec succès comme absorbeurs pour la spectrométrie de photons haute résolution avec des senseurs TES [16].

### 1.5.2.4.3 Les métaux

A très basse température, les métaux normaux (i. e. non supraconducteurs) ont une chaleur spécifique dominée par les électrons de conduction et donnée par :

$$c_{el} = \left( \frac{1}{2} \pi^2 k_B^2 N_A \frac{Z}{\epsilon_F} \right) T = \gamma T \quad (1.46)$$

où

$\epsilon_F$  : le niveau de Fermi du métal considéré,

$Z$  : le nombre d'électrons de conduction par atome,

$N_A$  : le nombre d'Avogadro,

$\gamma$  : le coefficient de Sommerfeld spécifique de chaque métal ( $7,29 \cdot 10^{-4}$  J/K<sup>2</sup>/mole pour l'or).

En dessous de 50 mK, les métaux normaux ont des chaleurs spécifiques supérieures de plusieurs ordres de grandeurs à celles des diélectriques ou des métaux supraconducteurs. Malgré ce gros désavantage, qui peut être modéré en choisissant des absorbeurs de faible volume, ils bénéficient d'une thermalisation simple et rapide ainsi que d'une excellente conductivité thermique. C'est pourquoi ils sont souvent utilisés comme absorbeur en spectrométrie de photons. Des absorbeurs en or sont particulièrement adaptés aux senseurs MMC en Au:Er ou Ag:Er et permettent d'atteindre des résolutions en énergie parmi les meilleures de tous les détecteurs cryogéniques.

### 1.5.2.4.4 Les semi-métaux

La chaleur spécifique des semi-métaux comprend à la fois une contribution des phonons (équation 1.45) et des électrons de conduction (équation 1.46), mais dont la densité est beaucoup plus faible que dans un métal normal. Leur chaleur spécifique est donc très faible par rapport à celle d'un métal normal. Ils peuvent offrir un bon compromis entre métal normal et métal supraconducteur. Le bismuth peut être utilisé comme absorbeur avec une capacité thermique faible, mais des impulsions non uniformes à cause de la faible conductivité thermique du bismuth dégradent la résolution [55]. Afin de pallier ce problème, plusieurs groupes ont développé des absorbeurs bi-couche, avec une fine couche en métal normal superposée à du bismuth pour améliorer la conductivité thermique latérale [49]. Des absorbeurs semi-métal en HgTe ont été utilisés en spectrométrie X de haute résolution avec des thermistances en Si fortement dopé [52, 53, 56].

### 1.5.3 Les calorimètres métalliques magnétiques : MMC

Pour compléter la connaissance des actinides par la mesure des intensités des photons X et  $\gamma$  émis en dessous de 100 keV, le LNHB a fait le choix d'utiliser un détecteur cryogénique basé sur un senseur paramagnétique car il présente, dans le contexte de la métrologie, une excellente combinaison de performances en termes de résolution en énergie, de rendement de détection et de linéarité. Grâce à une collaboration, les senseurs sont fabriqués dans l'Institut Kirchhoff de physique à l'université de Heidelberg. Cette partie décrit le principe de fonctionnement de ce type de détecteur de manière plus approfondie.

#### 1.5.3.1 Principe de détection d'un MMC

Suite à la désintégration d'un actinide, des photons sont émis à des énergies discrètes. Un photon dépose son énergie  $E$  dans un absorbeur de capacité thermique  $C_{abs}$ , cela engendre une élévation de la température  $\Delta T$  donnée par l'équation 1.40. L'absorbeur est thermiquement couplé au senseur qui, soumis à un champ magnétique local, convertit la variation  $\Delta T$  sous forme d'une variation d'aimantation  $\Delta M$ . Le senseur est magnétiquement connecté à un transformateur de flux magnétique qui va traduire la variation  $\Delta M$  en changement de flux  $\Delta\phi$ . Enfin, le transformateur de flux est couplé à un magnétomètre : un SQUID, *de l'anglais Superconducting QUantum Interference Device*. Le SQUID traduit la variation de flux en une variation de tension  $\Delta V$  (figure 1.15).

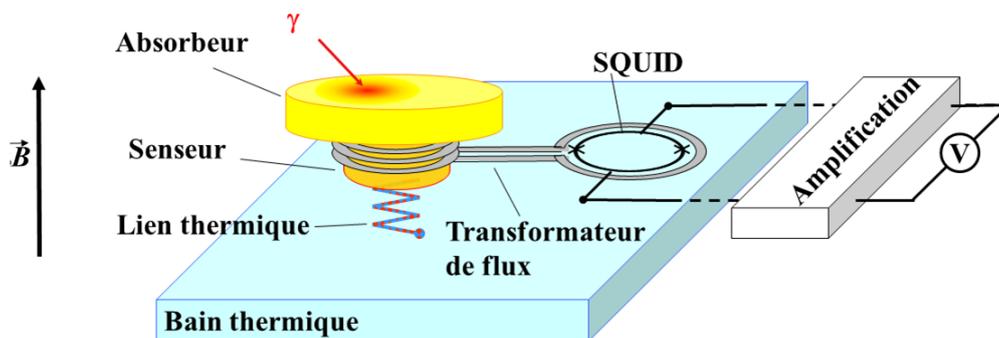


FIGURE 1.15 – Schéma des éléments constituant un MMC.

Dans la suite les questions suivantes seront discutées :

1. Comment le choix de l'absorbeur a été fait ? Quels sont les paramètres thermodynamiques importants à comprendre ?
2. Comment les matériaux qui constituent le senseur sont choisis ? Comment le senseur peut-il convertir un changement de température en un paramètre mesurable ?

3. Comment fonctionne l'ensemble transformateur de flux/SQUID ?

**1.5.3.1.1 Absorbeur**

La partie 1.5.2.4 a montré les critères selon lesquels le choix d'un absorbeur doit s'effectuer. La probabilité d'absorption d'un photon  $X$  dans un absorbeur contribue au rendement total du détecteur. Pour assurer une absorption quasi complète des photons, un absorbeur avec un numéro atomique  $Z$  et un coefficient d'atténuation élevés est préféré.

Il est important que l'absorbeur possède une conductivité thermique suffisante et il est essentiel d'avoir une capacité thermique faible. De plus, l'absorbeur doit être stable le long de l'utilisation et relativement facile à mettre en œuvre. Cela amène à utiliser un métal noble : spécifiquement l'or. Dans ce métal, l'absorption du photon par effet photo-électrique est dominante dans la gamme d'énergie inférieure à 100 keV (figure 1.5). Il s'en suit une thermalisation en moins de  $1\mu\text{s}$  par des collisions de type électron-électrons (inélastique ou élastique) ou par interaction avec le réseau cristallin (création des phonons), donc une réponse rapide du détecteur est obtenue [57].

Une haute résolution est obtenue dans le cas où la capacité thermique de l'ensemble absorbeur/senseur est faible. Pour un métal noble, la capacité thermique à basse température ( $\ll 1$  K) est dominée par le gaz d'électrons libres et est déterminée par le modèle de Sommerfeld :  $C_{abs} = \gamma T$  où le coefficient  $\gamma$  est spécifique de chaque métal. Elle diminue en fonction de la température, augmentant ainsi le signal  $\Delta T$ . Pour convertir le changement de la température en variation d'aimantation, l'absorbeur métallique doit être couplé thermiquement à un senseur paramagnétique. Le fonctionnement de ce dernier est discuté dans le paragraphe suivant.

**1.5.3.1.2 Senseur paramagnétique**

Dans les MMC, la sensibilité du senseur paramagnétique est maximum lorsque les moments magnétiques (ou spins) des ions paramagnétiques interagissent uniquement avec le champ magnétique par effet Zeeman. En réalité, ils interagissent aussi entre eux, et cela diminue la sensibilité du senseur aux variations de température. Les ions magnétiques sont dilués dans une matrice dont le choix est déterminé par le besoin d'une relaxation thermique rapide entre les spins localisés et les autres degrés de liberté thermodynamiques du système, et par une interaction faible des spins entre eux. Le choix d'une matrice métallique permet d'avoir une relaxation rapide des spins avec les électrons de conduction.

En revanche, dans une matrice métallique, il apparaît une interaction d'échange indirect RKKY (*Ruderman-Kittel-Kasuya-Yosida*) entre les moments magnétiques via les électrons de

conduction, qui diminue la sensibilité du senseur, mais c'est le prix à payer pour avoir une réponse rapide. L'interaction RKKY peut être diminuée en réduisant la concentration des moments magnétiques. Les senseurs des MMC sont constitués de quelques centaines de ppm d'ions paramagnétiques d'erbium dilués dans un métal noble (Au ou Ag).

Le couplage RKKY des spins *via* les électrons de conduction conduit à un état de verre de spins à très basse température (quelques mK), ce qui impose une température de fonctionnement de 10 mK. Cependant, la température de transition à l'état de verre de spins peut être diminuée également en réduisant la concentration des moments magnétiques.

Dans le réseau cristallin de l'or, les ions d' $Er^{3+}$  remplacent les atomes d'Au. Les propriétés magnétiques du matériau du senseur Au:Er ou Ag:Er proviennent de la couche 4f partiellement remplie de l'ion  $Er^{3+}$ . Les électrons 4f ont un moment total angulaire  $J = 15/2$  et donc un moment magnétique relié à celui-ci. Comme l'ion erbium est placé dans la matrice, les  $2J+1 = 16$  niveaux d'énergie de la couche 4f ne sont pas dégénérés dans un champ magnétique nul mais séparés en quelques multiplets par l'interaction avec le champ cristallin. Le multiplet de l'état fondamental est un doublet Kramers  $\Gamma_7$ . À une température en dessous de 1 K et dans un champ magnétique faible, le senseur (Au:Er) peut être approximé par un système à deux niveaux avec un spin effectif  $\tilde{S} = 1/2$  et un facteur de Landé  $\tilde{g} = 6,8$  [51, 58, 59].

Pour un système de spin  $\tilde{S} = 1/2$  l'énergie du niveau dans un champs magnétique  $B$  est décrit par l'effet Zeeman :

$$\partial E = \pm \frac{1}{2} \tilde{g} \mu_B B \quad (1.47)$$

$\partial E$  : énergie des niveaux dégénérés par l'existence d'un champ magnétique [eV],

$\mu_B$  : magnéton de Bohr [eV/T],

$\tilde{g}$  : facteur de Landé,

$B$  : champ magnétique [T].

La performance d'un MMC dépend fortement de la capacité thermique et de l'aimantation du senseur (prenons le cas d'un senseur Au:Er). Ces dernières sont dominées par la contribution des ions Er. La réponse d'un senseur est décrite par l'équation 1.44. Cette expression montre que la capacité thermique doit être la plus faible possible et que l'aimantation doit obéir à une forte dépendance avec la température (comme le montre la figure 1.16). La capacité thermique

d'un système de  $N_s$  spins n'interagissant pas entre eux est donnée par l'expression de Schottky :

$$C_{spin} = N_s k_B \left( \frac{E_m}{k_B T} \right)^2 \frac{e^{E_m/k_B T}}{(e^{E_m/k_B T} + 1)^2} \quad (1.48)$$

avec

$E_m$  : énergie des doublets de Kramers,

$N_s$  : nombre de spins.

L'aimantation d'un système paramagnétique est décrite par l'équation 1.49 :

$$M = \frac{N_s}{V} \tilde{g} \tilde{S} \mu_B \mathfrak{S}(h) \quad (1.49)$$

$$\mathfrak{S}(h) = \frac{2\tilde{S} + 1}{2\tilde{S}} \coth\left(\frac{(2\tilde{S} + 1)h}{2\tilde{S}}\right) - \frac{1}{2\tilde{S}} \coth\left(\frac{h}{2\tilde{S}}\right) \text{ avec } h = \tilde{g}\tilde{S}/k_B T$$

$\tilde{S}$  : spin effectif,

$V$  : volume du capteur.

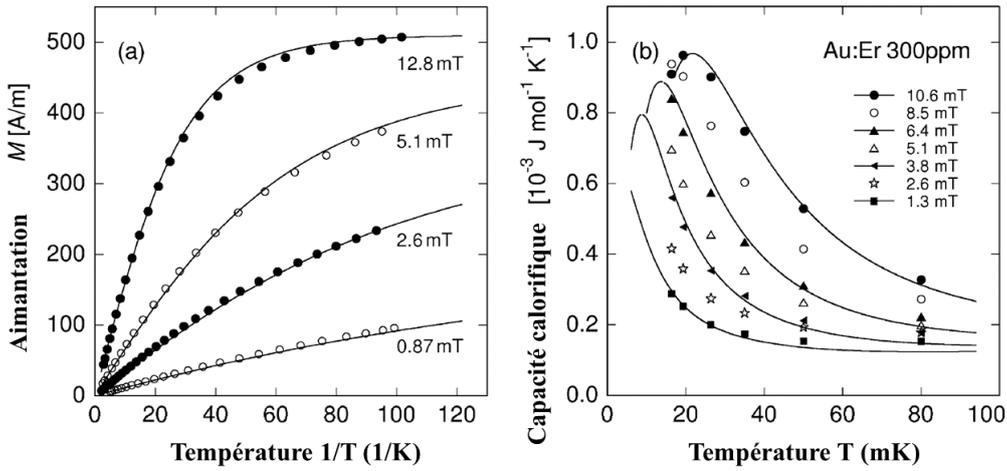


FIGURE 1.16 – Aimantation et chaleur spécifique d'un capteur Au:Er dont la concentration d'Er est de 300 ppm [51].

La figure 1.16 (droite) montre la capacité thermique d'un capteur Au:Er avec une concentration en erbium de 300 ppm en fonction de la température pour différents champs magnétiques. La température où la capacité thermique est maximum dépend du champ magnétique externe. À cette température l'énergie thermique  $k_B T$  correspond environ à la moitié de la séparation de l'énergie  $E_m$  (équation 1.50) dans le doublet de Kramers.

$$E_m = \tilde{g} \mu_B B \quad (1.50)$$

Cet effet, la présence d'un maximum dans la capacité thermique, est connu comme 'anomalie de Schottky. L'aimantation présentée dans la figure 1.16 (gauche) montre une dépendance en  $1/T$  vers les hautes températures puis une saturation vers les basses températures (saturation car tous les spins sont orientés par le champ magnétique).

L'énergie déposée par le photon entraîne une élévation de température qui va changer l'état d'un nombre  $N_s$  des spins. L'énergie des doublets de Kramers  $E_m$  permet de calculer l'énergie moyenne requise pour exciter un spin. Un dépôt d'énergie  $E$  engendre un nombre  $N_s = \frac{E}{E_m}$  de changements d'état de spin.

Pour un champ magnétique  $B$  de 3 mT, l'énergie moyenne requise pour changer l'état d'un spin est de  $1,2 \mu\text{eV}$ , contre 3 eV nécessaires pour créer une paire électron-trou dans un semi-conducteur HPGe. Pour un photon de 6 keV, les fluctuations statistiques sur le nombre d'états excités représentent moins de 1 eV. Cette contribution est négligeable dans la résolution en énergie des MMC. D'autres sources de bruit vont dominer. Elles seront traitées dans la partie 1.5.3.3.

### 1.5.3.2 Lecture du signal par un SQUID-DC

Comme déjà mentionné dans la partie 1.5.3.1, la variation de l'aimantation du senseur est lue par un magnétomètre dit SQUID. Les dimensions du senseur étant généralement plus grandes que celles typiques de la boucle sensible d'un SQUID (quelques dizaines de  $\mu\text{m}$ ), le couplage magnétique entre le senseur et le SQUID peut se faire *via* une bobine qui sert à lire la variation de l'aimantation du senseur, appelée "bobine de lecture", qui est quant à elle couplée à une bobine d'injection superposée au SQUID. Cet ensemble de bobines forme un circuit supraconducteur fermé appelé transformateur de flux. Le changement de flux généré dans la bobine de lecture par la variation de l'aimantation du senseur va ainsi être transféré à la boucle sensible du SQUID, qui va convertir ce changement de flux en une variation de tension. Si l'aimantation d'un senseur magnétique dans une bobine circulaire de rayon  $r$  change d'une valeur  $\partial m$ , le changement de flux généré dans la bobine change d'une valeur  $\partial\phi$  donnée par l'équation 1.51 [51, 58].

$$\partial\phi = \mu_0 \frac{G}{r} \partial m \quad (1.51)$$

$\mu_0$  : perméabilité du vide,

$G$  : une constante de couplage magnétique qui dépend de la géométrie du senseur et de la bobine,

$r$  : rayon de la bobine.

En pratique, on utilise plutôt des bobines de lecture planaires réalisées en films minces. La géométrie de ces bobines et les détails de leur réalisation ainsi que de l'utilisation du transformateur de flux seront discutés en détail dans le chapitre 2.

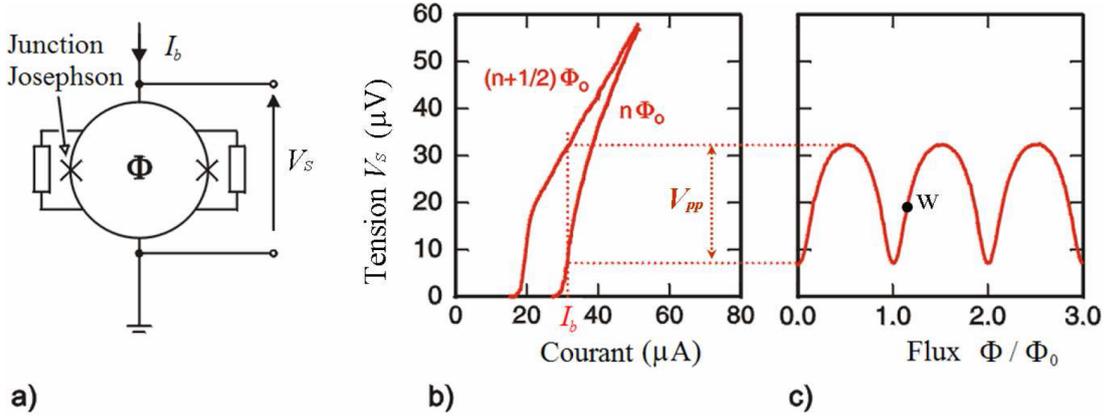


FIGURE 1.17 – (a) SQUID dc dans lequel le flux généré par la bobine d'injection est mesuré ; (b) Caractéristique I-V du SQUID ; (c) Caractéristique  $\phi$ -V du SQUID pour un courant  $I_b$

Un SQUID consiste en une boucle supraconductrice d'inductance  $L_s$  coupée à deux endroits par des isolants dits "jonctions Josephson" suffisamment fins pour que des paires de Cooper puissent passer par effet tunnel (figure 1.17.a). Si un courant inférieur à un courant critique de l'ordre de la dizaine de microampères est appliqué au SQUID, les paires de Cooper traversent les barrières de potentiel que représentent les jonctions Josephson sans causer une tension aux bornes de ces jonctions.

Si un courant de polarisation  $I_b$  juste au-dessus du courant critique est appliqué au SQUID, une tension apparaît aux bornes des jonctions. Le diagramme présenté dans la figure 1.17.b illustre la dépendance de la tension mesurée aux bornes des jonctions en fonction du courant  $I_b$ .

Le courant critique et l'apparition d'une tension pour des courants au-dessus de celui-ci varient avec le flux magnétique à travers la boucle du SQUID. Cette variation est périodique, avec une période égale au quantum de flux magnétique  $\phi_0 = \frac{h}{2e} \approx 2.07 \cdot 10^{-15} \text{ Tm}^2$ .

Les deux courbes tracées dans la figure 1.17.b correspondent aux extrêmes de cette variation, correspondant à des valeurs de flux égales à des multiples entiers de  $\phi_0$  respectivement des demi-entiers de  $\phi_0$ . Par conséquent, la tension du SQUID possède une caractéristique périodique avec le flux magnétique pour un courant  $I_b$  comme le montre la figure 1.17.c. Ce type

de SQUID, dit SQUID DC qui est le plus souvent utilisé comme magnétomètre pour un détecteur basé sur un MMC. On utilise le SQUID à un point de fonctionnement "w" (*Working point*). Le changement de flux importé par la bobine d'injection dans le SQUID tend à changer la position de w. Une électronique dite de contre-réaction est utilisée pour compenser le flux magnétique généré par la bobine d'injection en réinjectant un flux magnétique dans le SQUID au travers d'une deuxième bobine superposée au SQUID, dite bobine de contre-réaction. Cette contre-réaction permet de linéariser la réponse du SQUID et maintient la position du point de fonctionnement. La figure 1.18 illustre l'électronique de contre-réaction .

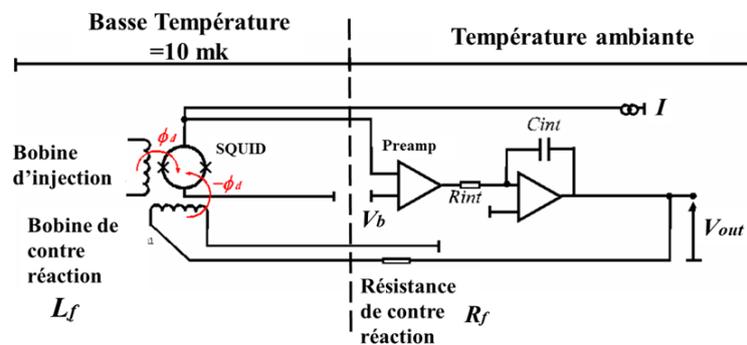


FIGURE 1.18 – Electronique de contre-réaction d'un SQUID

Cette électronique dédiée, illustrée dans la figure 1.18, permet de faire fonctionner le SQUID. Pour cela :

1. Un courant  $I_b$  est injecté dans le SQUID juste au-dessus du courant critique des jonctions Josephson.
2. La tension du point de fonctionnement "w" est fixé via le réglage de  $V_b$ .
3. Le flux magnétique  $\phi_d$  est injecté dans le SQUID par une bobine d'injection couplé à une bobine de lecture au niveau du senseur.
4. La tension aux bornes du SQUID est pré-amplifiée et intégrée.
5. La différence entre la tension mesurée aux bornes du SQUID et la tension du point de fonctionnement  $V_b$  est transformée en flux magnétique négatif " $-\phi_d$ " par l'ensemble de la résistance de contre-réaction  $R_f$  et la bobine de contre-réaction  $L_f$ . Cela va remettre le point de fonctionnement à sa position initiale.
6. La tension  $V_{out}$  correspond au flux magnétique  $\phi_d$  vue par le SQUID.

### 1.5.3.3 Bruit

La résolution du détecteur n'est pas limitée par le nombre d'états excités créés par l'énergie absorbée, comme c'est le cas pour les détecteurs à semi-conducteur. Des sources de bruit intrinsèques au détecteur ou liées à l'environnement du détecteur viennent dégrader la résolution. Dans la suite, l'origine de chaque type de bruit et la possibilité de les diminuer seront discutées pour maximiser le rapport signal-sur-bruit. Les principales sources de bruit sont les suivantes : les fluctuations thermodynamiques de l'énergie entre le détecteur et le bain thermique, le bruit magnétique Johnson causé par l'agitation thermique des électrons de conduction, et le bruit  $\frac{1}{f}$ .

#### 1.5.3.3.1 Fluctuation thermodynamique de l'énergie

La puissance spectrale de la fluctuation thermodynamique dans le senseur s'écrit par l'équation 1.52 [51] :

$$S_{e_{spin}}(f) = k_B C_{spin} T^2 \left( \alpha_0 \frac{4\tau_0}{1 + (2\pi f \tau_0)^2} + \alpha_1 \frac{4\tau_1}{1 + (2\pi f \tau_d)^2} \right) \quad (1.52)$$

$S_{e_{spin}}(f)$  : puissance de la fluctuation thermodynamique à une fréquence  $f$ .  
 $\tau_0$  et  $\tau_d$  sont respectivement le temps de montée et de descente du système.

En ne tenant compte que de la contribution des fluctuations thermodynamiques, et dans le cas où :  $\tau_0 \ll \tau_d$ ,  $0.1 < C_{spin}/C_{abs} < 10$  et  $\alpha_0 = 1 - \beta$ ,  $\alpha_1 = \beta$  ( $\beta = C_{spin}/(C_{spin} + C_{abs})$ ), ainsi en supposant que la conductance du lien thermique entre l'absorbeur et le senseur est un paramètre fixe, l'écart de la résolution en énergie d'un MMC peut être décrite par l'équation 1.53 :

$$\Delta E_{rms} = \sqrt{4k_B T^2 C_{abs}} \left( \frac{1}{\beta(1 - \beta)} \frac{\tau_0}{\tau_d} \right)^{1/4} \quad (1.53)$$

La résolution à mi-hauteur, ou FWHM (pour Full Width at Half-Maximum) correspond à  $2.35\Delta E_{rms}$ .

Cette équation montre que la résolution dépend du temps de montée  $\tau_0$  et du temps de descente  $\tau_d$  des impulsions.

Une limite inférieure à  $\tau_0$  est déterminée, pour une température  $T$  donnée, par le temps de relaxation entre les spins et les électrons  $\tau_K$  grâce à la relation de Korringa  $\tau_K = \kappa/T$ ; avec  $\kappa$  la constante de Korringa.  $\tau_K = 0,7\mu s$  pour un senseur Au:Er à une température de 10 mK. Il s'ajoute à cette valeur minimale de temps de montée du détecteur le temps de diffusion de la chaleur dans l'absorbeur et à travers l'interface absorbeur-senseur. Le temps de montée dépend

donc de la conductivité thermique de l'absorbeur, de ses dimensions, et de l'impédance thermique de l'interface. Comme, suivant l'équation 1.53,  $\tau_0$  doit être minimal pour une résolution maximale, ces trois paramètres doivent être optimisés dans la conception et la réalisation du détecteur.

Toujours dans le but d'obtenir la meilleure résolution, le temps de descente  $\tau_d$  doit être le plus long possible, tout en sachant qu'un choix arbitrairement long de ce temps induit une perte en taux de comptage.  $\tau_d$  peut assez facilement être choisi par la conductance du lien thermique entre le détecteur et le bain thermique. L'analyse de l'équation 1.53 montre par ailleurs que la haute résolution en énergie est obtenue quand le facteur  $\beta(1 - \beta)$  atteint son maximum, donc dans le cas où la capacité thermique du senseur  $C_{spin}$  est identique à celle de l'absorbeur  $C_{abs}$ .

### 1.5.3.3.2 Bruit Johnson magnétique

Le bruit magnétique Johnson est induit par le mouvement thermique aléatoire des électrons de conduction dans le senseur et l'absorbeur métalliques. Ce mouvement de charges génère un champs magnétique fluctuant, ou bruit magnétique [51, 60], qui peut être capté par la bobine de lecture. Pour un senseur de volume  $V$ , ce bruit est donné par l'équation 1.54 :

$$\sqrt{S_\phi} = \mu_0 \sqrt{\zeta_m \sigma_{condu} k_B T V} \quad (1.54)$$

$\zeta_m$  : constante numérique qui dépend de la bobine de lecture et du senseur,

$\sigma_{condu}$  : conductivité électrique.

Ce bruit peut être généré par l'absorbeur métallique, le senseur ou d'autres composantes métalliques dans l'environnement de la bobine de lecture. Il diminue avec une conductivité du métal faible, ce qui est le cas de l'alliage Au:Er ou Ag:Er du senseur, mais doit être évité pour l'absorbeur en vue d'une diffusion rapide de la chaleur. Cependant, la configuration de la bobine de lecture, détaillée dans la partie 2.1.1, rend cette dernière assez insensible au bruit Johnson magnétique provenant de l'absorbeur. Donc, un MMC du fait de son fonctionnement est susceptible d'avoir ce type de bruit. Il est important de le prendre en compte dans le développement d'un MMC de haute résolution.

### 1.5.3.3.3 Bruit $\frac{1}{f}$

Le bruit  $1/f$  (*flicker noise*) : l'origine de ce bruit n'est pas comprise, il est supposé être causé par les moments magnétiques du senseur, puisqu'il augmente avec leur concentration. Il est indépendant de la température [51, 60].

#### 1.5.3.3.4 Bruit du SQUID

L'origine du bruit intrinsèque au SQUID est un bruit de type Johnson lié à la résistance de shunt parallèle aux jonctions de Josephson, qui est donc un bruit blanc. De plus, il existe une composante de type  $\frac{1}{f^n}$  dont l'origine n'est pas encore bien comprise non plus.

#### 1.5.3.4 Optimisation du rapport signal sur bruit et résolution en énergie

Le développement d'un détecteur cryogénique basé sur un MMC doit satisfaire les conditions d'utilisation imposées par l'application. Dans le cas de la spectrométrie de photons, le rendement de détection, la résolution en énergie et le nombre de photons détectés par seconde (statistique dans le spectre) sont les critères déjà mentionnés dans la partie 1.4.2.

Les équations 1.40 et 1.53 montrent que le rapport signal sur bruit est maximum lorsque les capacités thermiques sont minimisées. Or, pour avoir un rendement intrinsèque et un facteur de géométrie (angle solide) élevés, des absorbeurs volumineux sont nécessaires. Ceci exige de faire un premier compromis, entre résolution et rendement. Par ailleurs, l'équation 1.53 montre que l'intérêt est d'avoir une constante de temps longue pour améliorer la résolution, mais cela entraîne une diminution du taux de comptage possible, car il faut éviter les empilements d'impulsions. Il faut alors faire un deuxième compromis entre taux de comptage et résolution. Ces deux compromis seront discutés dans le chapitre suivant, qui décrit la conception d'un MMC dédié à la spectrométrie X des actinides.

Pour obtenir une excellente résolution, il est indispensable d'atteindre de très basses températures : le signal est maximisé, les fluctuations thermodynamiques de l'énergie interne du détecteur, le bruit du SQUID et le bruit magnétique Johnson diminuent tous vers les basses températures. Pour cela, le LNHB dispose d'un réfrigérateur à dilution qui permet d'atteindre une température de 10 mK. Le chapitre suivant présente comment le MMC utilisé pour la spectrométrie des photons de basse énergie (en dessous de 100 keV) est construit en respectant les critères discutés.



## CHAPITRE 2

### DISPOSITIF EXPÉRIMENTAL ET TRAITEMENT DU SIGNAL

Le chapitre 1 a introduit la nécessité d'utiliser un détecteur haute résolution pour déterminer les intensités d'émission XL des actinides. Dans ce contexte, le LNHB a développé un détecteur cryogénique appelé SMX3 pour la spectrométrie X et  $\gamma$  en dessous de 100 keV, et basé sur des senseurs paramagnétiques. Les critères sur lesquels le détecteur appliqué à la métrologie a été construit, le rendement, la résolution en énergie et le taux de comptage, doivent faire l'objet d'un compromis. À la fois un rendement élevé, un fort taux de comptage et une très bonne résolution en énergie seraient souhaitables, mais ces trois critères ne peuvent pas être réunis en même temps et au même niveau de performance. En effet, un rendement élevé nécessite des absorbeurs volumineux qui ont une capacité thermique importante, diminuant le signal et dégradant la résolution. Un taux de comptage élevé demande une constante de temps thermique courte entre le détecteur et le bain thermique, ce qui dégrade également la résolution.

La conception de SMX3 a donc fait l'objet d'un compromis entre ces critères. Au vu des mesures précises des probabilités absolues visées, la priorité a été donnée à un rendement élevé et quasi-constant, c'est-à-dire relativement facile à caractériser, en dessous de 25 keV, la gamme d'énergie des émissions XL des actinides. La deuxième priorité est une résolution en énergie suffisamment élevée pour séparer la plupart des raies individuelles XL, au détriment du rendement au-dessus de 25 keV, où il est moins important pour l'application visée.

Ce chapitre détaillera la conception, à partir de ce compromis, et le fonctionnement du détecteur cryogénique SMX3. Par ailleurs, il présentera la mise en fonctionnement du détecteur, l'enregistrement des impulsions et les étapes de traitement du signal afin d'obtenir un spectre en énergie avec la meilleure résolution possible, et un traitement numérique du temps mort. Ces traitements seront validés avec des spectres simulés.

## 2.1 Principe du fonctionnement du détecteur SMX3

Dans la partie 1.5.3 du chapitre 1, le principe physique du fonctionnement d'un calorimètre métallique magnétique (MMC) a été détaillé. Pour résumer, un MMC est un ensemble constitué d'un absorbeur métallique couplé thermiquement à un senseur paramagnétique. Ce dernier est couplé magnétiquement à un transformateur de flux qui est connecté à un SQUID. Le dépôt d'énergie d'un photon dans l'absorbeur entraîne une élévation de température du détecteur, convertie en variation de flux magnétique dans le SQUID. Le SQUID est polarisé, linéarisé et pré-amplifié grâce à une électronique commerciale spécifique fournie par la société Magnicon<sup>1</sup>. Cette électronique est connectée à un système d'acquisition qui permet d'enregistrer la tension en sortie de l'électronique du SQUID.

### 2.1.1 Le transformateur de flux magnétique

Le transformateur de flux est un circuit supraconducteur fermé formé par une bobine de lecture (qui lit la variation d'aimantation du senseur paramagnétique) et une bobine, dite d'injection couplée magnétiquement au SQUID (figure 2.1). L'avantage du transformateur de flux est de pouvoir coupler la variation de flux d'un senseur de volume relativement important à un SQUID dont le diamètre ne mesure que quelques dizaines de micromètres.

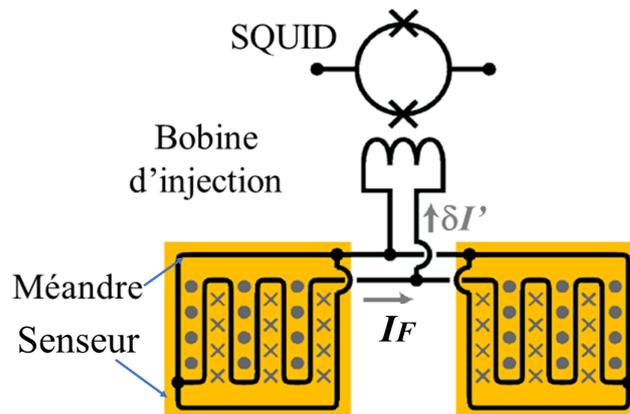


FIGURE 2.1 – Schéma du transformateur de flux magnétique formé par deux bobines de lecture en forme de méandre couplées aux senseurs en Au:Er et connectées à la bobine d'injection d'un SQUID [51]. Les points et les croix en gris dans les senseurs indiquent les directions du champ magnétique créé par le courant permanent  $I_F$ .

Comme le montre la figure 2.1, la bobine de lecture a une forme de méandre parcourant la surface du senseur magnétique, ce qui permet de maximiser le couplage magnétique entre la

1. Électronique Magnicon XXF-1 <http://www.magnicon.com/squid-electronics/xxf-1/>

bobine et le senseur car chaque moment magnétique est au plus près de la bobine. Le circuit des bobines de lecture est fabriqué par le KIP (Kirchhoff-Institut für Physik) de l'université de Heidelberg par photolithographie en niobium déposé en film mince sur un support en silicium ou saphir, et est supraconducteur en dessous de 9,2 K [61].

Le méandre permet de convertir la variation d'aimantation  $\Delta M$  dans le senseur en une variation de flux magnétique  $\Delta\phi$  produisant simultanément le champ magnétique nécessaire pour l'aimantation du senseur, puisqu'un courant permanent y circule créant un champ localement dans le senseur. Il faut toutefois éviter que ce courant ne circule dans la bobine d'injection du SQUID, car un champ magnétique permanent dans les jonctions Josephson dégrade le niveau de bruit du SQUID. C'est pourquoi deux bobines de lecture en forme de méandre sont connectées gradiométriquement en parallèle à la bobine de lecture. Donc un seul SQUID est utilisé pour convertir la variation de flux des deux senseurs en une variation de tension.

Du fait de la connexion gradiométrique en parallèle au SQUID, les dépôts d'énergie dans chacun des absorbeurs engendrent des impulsions en flux de polarités opposées dans le SQUID, ce qui permet d'identifier chaque absorbeur en fonction des polarités. De plus, ce circuit gradiométrique permet d'annuler les flux magnétiques produits par les aimantations synchrones des deux senseurs et ainsi d'annuler les fluctuations de température du bain sur la ligne de base<sup>2</sup> des impulsions sachant que la température n'est pas parfaitement stable lors d'une acquisition. Le courant permanent nécessaire à l'aimantation est gelé dans le circuit supraconducteur formé par les deux bobines de lecture à l'aide d'un interrupteur thermique qui consiste en une résistance électrique en alliage AuPd déposée sur une partie du circuit entre les deux méandres (figure 2.2.).

Pour geler le courant permanent, un courant  $I_F$  est injecté dans le circuit supraconducteur.  $I_F$  circule essentiellement dans la partie de faible inductance en dehors des méandres comme le montre la figure 2.2.a. Ensuite, un courant dit de chauffage  $I_H$  est appliqué dans la résistance qui chauffe localement le niobium au-dessus de sa température critique en un endroit de cette partie du circuit. L'apparition d'une résistance électrique dans le circuit oblige le courant à circuler dans le méandre de résistance nulle, comme montré dans la figure 2.2.b. L'ensemble du circuit redevient supraconducteur avec l'arrêt du courant de chauffage  $I_H$ . Ainsi, le champ magnétique est maintenu par le courant permanent circulant dans les méandres comme le montre la figure

---

2. La ligne de base est la portion de signal précédent une impulsion. Dans un circuit non gradiométrique, le niveau de la ligne de base correspond à la température du détecteur. Ce niveau de la ligne de base est une donnée souvent utilisée pour corriger la variation des amplitudes des impulsions avec les dérives de température du bain. Pour conserver cette information du niveau de ligne de base, le circuit gradiométrique utilisé au LNHB comporte une faible asymétrie ( $\sim 5\%$ ).

2.2.c. et le courant injecté de l'extérieur peut être arrêté.

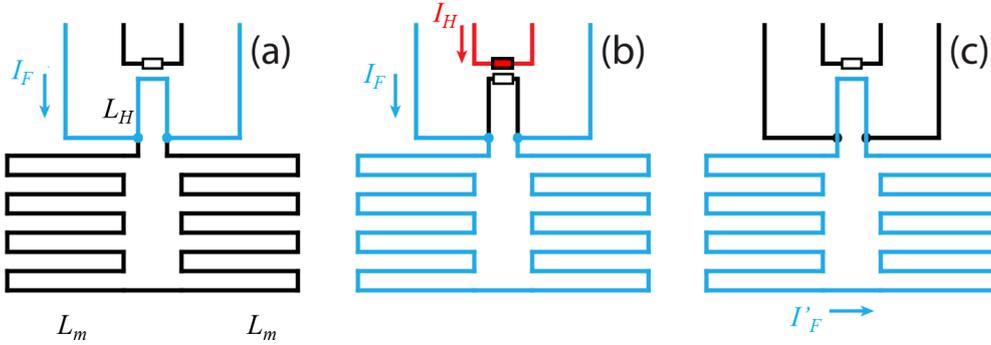


FIGURE 2.2 – Génération du courant permanent dans le circuit des méandres.

La géométrie de la bobine de lecture a fait l'objet de développements par l'institut KIP de Heidelberg avec lequel collabore le LNHB. Dans le cadre d'un contrat d'incitation du LNE, le KIP a produit des wafers d'environ une centaine de puces, chacune constituée de deux bobines de lecture en forme de méandre, de deux senseurs Au:Er, de l'interrupteur thermique et des points de contact nécessaires aux connections pour geler le courant et pour relier les bobines de lecture à la bobine d'injection du SQUID. Cette dernière et son SQUID sont fabriqués sur une autre puce. Le KIP fournit des puces de senseurs magnétiques de différentes tailles optimisées pour trois valeurs de la capacité thermique de l'absorbeur (tableau 2.1). Le LNHB choisit la taille de senseur la plus adéquate en fonction de l'absorbeur fabriqué.

Tableau 2.1 – Caractéristiques à 20 mK des différentes tailles de senseurs fournies par le KIP.

$C_a^{opt}$  est la capacité thermique de l'absorbeur à 20 mK pour laquelle les paramètres de la puce ont été optimisés pour maximiser le rapport signal sur bruit. Le paramètre  $w$  est la largeur d'une piste de niobium du méandre et  $p$  est la distance entre deux pistes.  $I_0^{opt}$  est le courant optimum à 20 mK avec un absorbeur de capacité  $C_a^{opt}$ . Les senseurs Au:Er ont une concentration en erbium de 320 ppm (enrichi en  $^{168}\text{Er}$  [51]).

Taille	Surface et épaisseur du senseur	$C_a^{opt}$ (pJ/K)	$w/p$ ( $\mu\text{m}$ )	$I_0^{opt}$ (mA)	Inductance d'un méandre (nH)
S (Small)	$237 \times 237 \mu\text{m}^2 \times 1,8 \mu\text{m}$	8	2,5/5	34	3,7
M (Medium)	$491 \times 491 \mu\text{m}^2 \times 3,5 \mu\text{m}$	28	5/10	52	8
L (Large)	$1292 \times 1292 \mu\text{m}^2 \times 3,5 \mu\text{m}$	400	5/10	68	46

## 2.1.2 Conception et optimisation du détecteur SMX3

Le détecteur SMX3 est conçu pour avoir un compromis entre la résolution en énergie ( $<50$  eV sur la gamme d'énergie en dessous de 100 keV), un rendement intrinsèque constant et proche de 100% sur la gamme d'énergie des photons XL des actinides (10-25 keV), et un taux de comptage suffisant d'environ  $\sim 10$  s<sup>-1</sup>, pour obtenir une statistique de comptage de quelques millions d'évènements sur un temps d'acquisition de 10 à 15 jours (temps jugé raisonnable pour l'installation).

### 2.1.2.1 Rendement intrinsèque

La mesure d'intensité d'émission nécessite de corriger la surface des pics d'absorption totale par le rendement du détecteur, il est donc indispensable de connaître son rendement. La caractérisation du rendement est d'autant plus facile lorsque le rendement intrinsèque est proche de 100 % et pratiquement constant avec l'énergie. Un rendement intrinsèque élevé, sans discontinuité et avec de faibles variations avec l'énergie des photons est donc recherché. Pour atteindre un rendement intrinsèque maximal sur la gamme d'énergies des photons XL des actinides (10 keV-25 keV) le matériau constituant l'absorbeur doit avoir une masse volumique élevée et un numéro atomique élevé pour favoriser l'interaction par effet photo-électrique comme le montre la partie 1.4.1.4 .

Parmi ces matériaux, l'idéal serait un matériau de faible capacité thermique (pour maximiser l'élévation de température), avec une thermalisation rapide de l'énergie et une bonne conductivité thermique (pour éviter des variations de formes d'impulsions), et offrant un bon contact thermique avec le senseur en Au:Er.

Néanmoins, ce matériau n'existe pas, et l'expérience a montré que bien que les métaux non supraconducteurs (en particulier l'or) soient fortement pénalisés par leur forte capacité thermique molaire, ils ont été parfois choisis pour bénéficier de leur thermalisation rapide, de leur grande conductivité thermique et du bon couplage thermique avec le senseur [49, 62, 63]. Aussi, la plupart des détecteurs avec des senseurs MMC utilisent des absorbeurs en or.

Parmi les métaux normaux autour de 10 mK et suffisamment nobles pour être stables dans le temps, seuls l'argent, l'or et le cuivre conviennent à l'utilisation comme absorbeur d'un détecteur cryogénique. Les métaux du groupe du platine (par exemple platine et rhodium) ont des chaleurs spécifiques beaucoup plus pénalisantes. Par ailleurs, le ruthénium, l'iridium et l'osmium sont supraconducteurs à la température de fonctionnement des MMC.

Dans le cadre des travaux du LNHB, un absorbeur en bi-couche en Au-Ag a été conçu pour offrir un rendement intrinsèque constant et proche de 100 % en dessous de 25 keV [64]. En effet, des simulations Monte-Carlo du rendement de détection ont été effectuées avec le code PENELOPE-2008 pour choisir le matériau de l'absorbeur et pour minimiser son épaisseur afin d'obtenir une capacité thermique faible et un rendement intrinsèque important. La figure 2.3 montre les rendements de détection intrinsèques pour des absorbeurs en or et en argent de 150  $\mu\text{m}$  d'épaisseur ainsi que d'un absorbeur bi-couche Au-Ag.

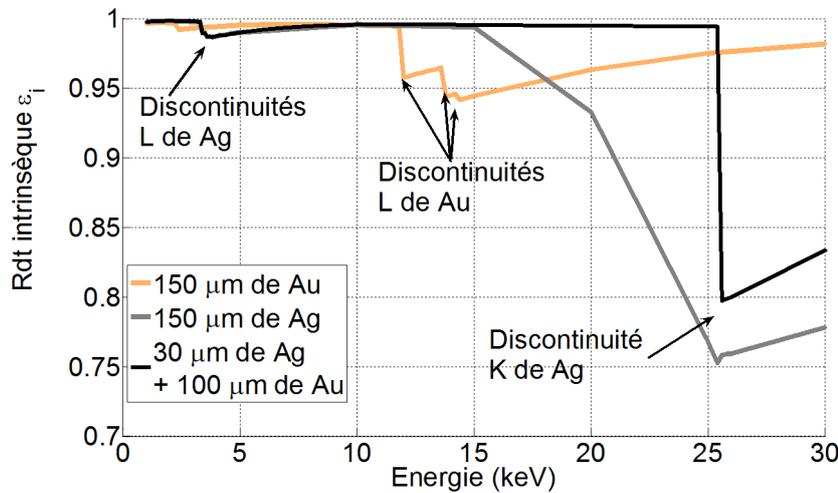


FIGURE 2.3 – Rendements de détection intrinsèques obtenus par simulation Monte Carlo pour des absorbeurs Ag, Au et bicouche Au-Ag.

L'utilisation de l'or apparaît *a priori* avantageuse puisqu'il associe à la fois une grande masse volumique, un numéro atomique élevés (favorisant le pouvoir d'absorption) et une constante de Sommerfeld  $\gamma$  modérée pour un métal normal (0,729 mJ/mol/K<sup>2</sup>), qui est avantageuse pour la chaleur spécifique. Cependant, la courbe de rendement pour un absorbeur en or présente trois discontinuités aux énergies des sous-couches L (11,92 ; 13,73 et 14,35 keV) à cause de l'interaction du photon incident avec un électron de ces sous-couches par effet photoélectrique, des discontinuités présentes sur les coefficients d'absorption massique montrés dans la figure 1.5 et des échappements des photons XL de l'or par la surface des absorbeurs. Les discontinuités L sont moins marquées qu'une discontinuité K (comme présentée en figure 2.3 pour l'argent) car le rendement de fluorescence des couches L est beaucoup plus faible que celui de la couche K. La présence de ces discontinuités est indépendante de l'épaisseur de l'absorbeur et rend la courbe de rendement difficile à caractériser à ces énergies comprises dans la région XL des actinides.

L'utilisation d'un absorbeur en argent est possible, il a une capacité thermique molaire

équivalente à celle de l'or ( $\gamma = 0,646 \text{ mJ/mol/K}^2$ ). Son coefficient d'atténuation massique ne présente pas de discontinuité entre 5 keV et 25 keV (figure 1.5). Par contre, avec un numéro atomique et une masse volumique beaucoup plus faibles que ceux de l'or, le pouvoir d'absorption de  $150 \mu\text{m}$  d'argent diminue au-dessus de 15 keV et se traduit par une chute du rendement du fait de la transmission des photons à travers l'absorbeur. Il est possible d'augmenter le rendement avec l'épaississement de l'absorbeur mais cela réduira la résolution en énergie à cause de l'augmentation de la capacité thermique du détecteur.

L'utilisation d'un absorbeur bi-couche en Au-Ag permet de s'affranchir des inconvénients des absorbeurs en or ou en argent et d'atteindre un rendement intrinsèque quasi constant proche de 100% sans discontinuité en dessous de 25 keV comme le montre la figure 2.3. Il permet de bénéficier à la fois des avantages de chaque matériau : pas de discontinuité pour l'argent et fort pouvoir d'absorption pour l'or. La couche en argent supprime la discontinuité L de l'or du fait qu'elle absorbe les photons de fluorescence qui s'échappent par la surface de l'or.

Une forte discontinuité K de la courbe de rendement employant une bi-couche Au-Ag est présente à 25,5 keV. Elle provient de l'échappement de photons de fluorescence suite à l'interaction par effet photoélectrique des photons avec la couche K de l'argent, mais elle est au-delà de l'énergie des XL émis par les actinides et est par ailleurs plus facilement caractérisable que les trois discontinuités L de l'or. Quant aux épaisseurs de chaque couche, elles ont été minimisées à partir des simulations Monte-Carlo pour réduire au maximum la capacité thermique de l'absorbeur. Pour atteindre un rendement intrinsèque proche de l'unité en dessous de 25 keV, il faut une couche d'argent de l'ordre de  $17 \mu\text{m}$  d'épaisseur pour absorber les photons d'échappement L de l'or, et une épaisseur de l'ordre de  $60 \mu\text{m}$  d'or pour limiter la transmission des photons. La surface de l'absorbeur est définie dans la section suivante en se fixant pour objectif un taux de comptage de  $10 \text{ s}^{-1}$ .

### 2.1.2.2 Taux de comptage

Pour répondre aux critères d'un détecteur conçu pour la métrologie, c'est-à-dire réaliser des mesures quantitatives "précises", il est essentiel de définir les paramètres permettant l'obtention d'un taux de comptage suffisant. Pour une incertitude statistique au moins de l'ordre du pourcent sur les intensités de la plupart des raies XL, qu'il convient d'acquérir dans un temps de mesure de l'ordre d'une dizaine de jours, plusieurs millions d'événements dans le spectre sont requis.

Les paramètres qui vont limiter le taux de comptage sont :

- (a) la constante de temps de descente,
- (b) l'angle solide source-détecteur (incluant la surface de détection),

(c) l'activité de la source.

La constante de temps va imposer la fenêtre de temps durant laquelle l'impulsion est analysée pour déterminer l'énergie déposée (voir partie 2.3 ) et la fenêtre de temps mort durant laquelle toute nouvelle impulsion ne peut être analysée correctement. Les puces des MMC sont conçues avec un lien thermique de constante de temps de descente ( $1/e$ ) de 3,5 ms (supposant la capacité thermique de l'absorbeur pour laquelle le MMC a été optimisé), ce qui signifie que le temps nécessaire pour que l'impulsion retourne en dessous de 1 % de son maximum est de 16 ms. À la durée de l'impulsion même, il faut ajouter autant de temps de ligne de base<sup>3</sup>. La fenêtre de temps d'analyse d'une impulsion est alors d'environ 32 ms. Si le temps mort correspond à 25 % du temps d'acquisition, il est considéré comme acceptable. Le taux de comptage maximum peut être calculé, en utilisant la loi de Poisson, tel que la probabilité de ne pas avoir d'impulsion sur 32 ms soit de 75 % (complémentaire du temps mort). Ce taux est de  $9 \text{ s}^{-1}$  pour les deux absorbeurs d'une puce.

Ensuite l'angle solide et l'activité de la source peuvent limiter le taux de comptage. Dans le cas d'une source ponctuelle, l'angle solide est défini par le diamètre du collimateur disposé en face du détecteur et par la distance source-collimateur. L'ouverture du collimateur est inférieure à la surface des absorbeurs pour éviter les interactions de photons avec l'environnement des absorbeurs (senseurs, liens thermiques, substrat, etc.). En faisant l'approximation de l'utilisation d'une source ponctuelle et avec un rendement intrinsèque de 100 %, le taux de comptage  $T_c$  peut s'exprimer par :

$$T_{comp} \simeq \frac{A \cdot I \cdot S_c}{4\pi \cdot d^2} \quad (2.1)$$

Où  $S_c$  : surface d'ouverture du collimateur [ $\text{mm}^2$ ] ,

$d$  : distance entre la source et le collimateur [mm],

$T_{comp}$  : taux de comptage [ $\text{s}^{-1}$ ],

$A$  : activité de la source [Bq].

$I$  (photon/désintégration) : intensité totale de l'émission de photons XL.

Du point de vue de la résolution en énergie, l'intérêt est de minimiser la surface des absorbeurs et d'adapter la distance  $d$  et l'activité  $A$  de sorte à avoir le taux de comptage souhaité. Toutefois, il y a d'autres contraintes :

- la distance  $d$  est de l'ordre de 10 mm,

---

<sup>3</sup>. Par défaut, le programme de traitement du signal impose un temps de ligne de base égal au temps de l'impulsion. Le temps de ligne de base pourrait être plus court.

- il est difficile d'avoir des sources avec des activités supérieures à 50 kBq (pour des raisons de radioprotection, de fabrication et de disponibilité de solutions mères assez actives),
- les intensités XL sont de l'ordre de 10% pour le cas des isotopes du Pu .

Dans ces conditions, pour obtenir le taux de comptage de l'ordre de  $10\text{ s}^{-1}$ , la surface  $S_c$  doit être de l'ordre de  $2,5\text{ mm}^2$ , soit un collimateur de 1,8 mm de diamètre. Comme dit précédemment la surface de l'absorbeur doit être plus grande que celle du collimateur. Plutôt que d'utiliser un seul absorbeur, le choix a été fait de construire une matrice de quatre absorbeurs de  $1\text{ mm}^2$  de surface en bi-couche Au-Ag, permettant de réduire la capacité thermique par absorbeur et par conséquent d'améliorer la résolution en énergie tout en ayant une surface de  $4\text{ mm}^2$ . Comme une puce permet de lire deux absorbeurs, SMX3 comporte donc deux puces lues par deux SQUID pour former une matrice de quatre pixels. Si l'activité de la source n'est pas limitante pour le taux de comptage, l'utilisation de deux puces permet de doubler le taux de comptage à environ  $18\text{ s}^{-1}$  ( $9\text{ s}^{-1}$ /puce) avec un temps mort d'environ 25 %.

### 2.1.2.3 Résolution en énergie

La résolution en énergie dépend de nombreux paramètres : capacité thermique de l'absorbeur, taille des méandres, constante de temps de descente, température et stabilité du bain thermique et SQUID de lecture. La constante de temps de descente a été définie à 3,5 ms, la température du bain peut être fixée à  $15\text{ mK}^4$ . Le choix du SQUID dépend de la taille du méandre et de l'offre commerciale de SQUID. Il faut adapter l'inductance de la bobine d'injection ( $L_i$ ) à celle du méandre de lecture ( $L_m$ ) de sorte que  $L_i \approx L_m/2$ .

À  $15\text{ mK}$ , un absorbeur Au-Ag de  $1\text{ mm}^2$  avec  $17\text{ }\mu\text{m}$  d'argent et  $60\text{ }\mu\text{m}$  d'or a une capacité thermique de  $83,3\text{ pJ/K}$ . La taille du méandre est choisie de façon à avoir une capacité thermique de l'absorbeur proche de celle du senseur. Il est montré dans [51] que la meilleure résolution est obtenue lorsque ces deux capacités thermiques sont égales. En comparant la capacité de l'absorbeur à  $20\text{ mK}$ ,  $111\text{ pJ/K}$ , à celles des senseurs du tableau 2.1, le choix va se porter entre les puces de taille « M » et « L ».

Pour choisir entre ces deux tailles, des calculs numériques de la résolution en énergie à  $15\text{ mK}$  ont été réalisés pour différents courants permanents  $I_F$ . Le courant  $I_F$  peut être changé pour ajuster la capacité thermique et la sensibilité du senseur (voir partie 1.5.3) par rapport aux conditions optimales. Les tailles « M » et « L » permettent d'obtenir des résolutions en énergie à mi-hauteur très proches de  $15,2\text{ eV}$  et  $14,5\text{ eV}$  respectivement. Sachant qu'expérimentalement, la résolution est environ deux fois moins bonne que celle calculée, on peut s'attendre à une

---

4. Le cryostat à dilution descend à une température entre 10 et 13 mK qui n'est pas reproductible.

résolution plutôt autour de 30 eV. Comme les tailles « M » et « L » donnent des résolutions équivalentes, nous avons opté pour la taille « M » en raison d'un meilleur approvisionnement des SQUID VCIA<sup>5</sup> (dont l'inductance  $L_i = 4,5$  nH est adapté aux puces « M ») que des SQUID C6XS116W<sup>6</sup> ( $L_i = 27$  nH pour les puces « L »).

#### 2.1.2.4 Fabrication et montage du détecteur SMX3

Les absorbeurs Au-Ag ont été fabriqués au LNHB par une méthode combinant l'électrodéposition<sup>7</sup> d'une fine couche d'or sur les 17  $\mu\text{m}$  d'argent et la soudure par diffusion d'une couche d'or (60  $\mu\text{m}$ ) sur la couche d'or électrodéposée.

Quatre absorbeurs d'une surface de 1 mm<sup>2</sup> ont ainsi été fabriqués. Les épaisseurs des couches diffèrent légèrement d'un absorbeur à l'autre car la couche d'or a tendance à s'écraser lorsqu'elle est soudée par diffusion contre la feuille d'argent, et la pression appliquée n'est pas parfaitement reproductible. Les absorbeurs sont ensuite collés sur leurs senseurs de taille « M » avec de l'époxy Stycast 1266 en chauffant à 60°C et en appliquant une force de 10 N pour favoriser la polymérisation de la colle, pour minimiser son épaisseur et avoir un fort contact thermique avec le senseur. Les liens thermiques initialement prévus et réalisés par microfabrication sur la puce n'avaient pas la conductance thermique souhaitée (conductance trop forte). Ils ont été remplacés chacun par un fil d'or de 25  $\mu\text{m}$  de diamètre et 4 mm de long entre le senseur et le bain thermique (support en laiton) figure 2.4.a, de sorte que la constante de temps de descente soit de 3,5 ms.

Un collimateur en tungstène de 1,8 mm de diamètre et de 1 mm d'épaisseur est disposé face au détecteur (figure 2.4.b). Une fenêtre de béryllium d'environ 40  $\mu\text{m}$  d'épaisseur est fixée sur le collimateur. Le béryllium offre le meilleur compromis pour arrêter les particules alpha jusqu'à 6,7 MeV et les électrons jusqu'à 100 keV, tout en atténuant peu les photons X (par exemple, transmission à 10 keV : 99,68 % ; à 3 keV : 90,57 %). La source (figure 2.4.c) est fixée à une distance de 12 mm du support du collimateur. L'ensemble est monté dans un cylindre de plomb (supraconducteur en dessous de 7,2 K) fermé sur une face pour blinder le détecteur contre les perturbations électromagnétiques et les champs magnétiques.

---

5. Les SQUID VC1A sont fournis par la société Supracon <http://www.supracon.com/en/sensors.html>

6. Les SQUID C6XS116W sont fournis par la société Magnicon <http://www.magnicon.com/squid-sensors/>

7. La soudure par diffusion des absorbeurs consiste à presser, l'une contre l'autre, les deux couches à une température de 400°C pendant 2h. Il a été impossible dans ces conditions de souder par diffusion directement la couche d'argent à l'or, c'est pourquoi une couche d'or a été au préalable électrodéposée sur l'argent.

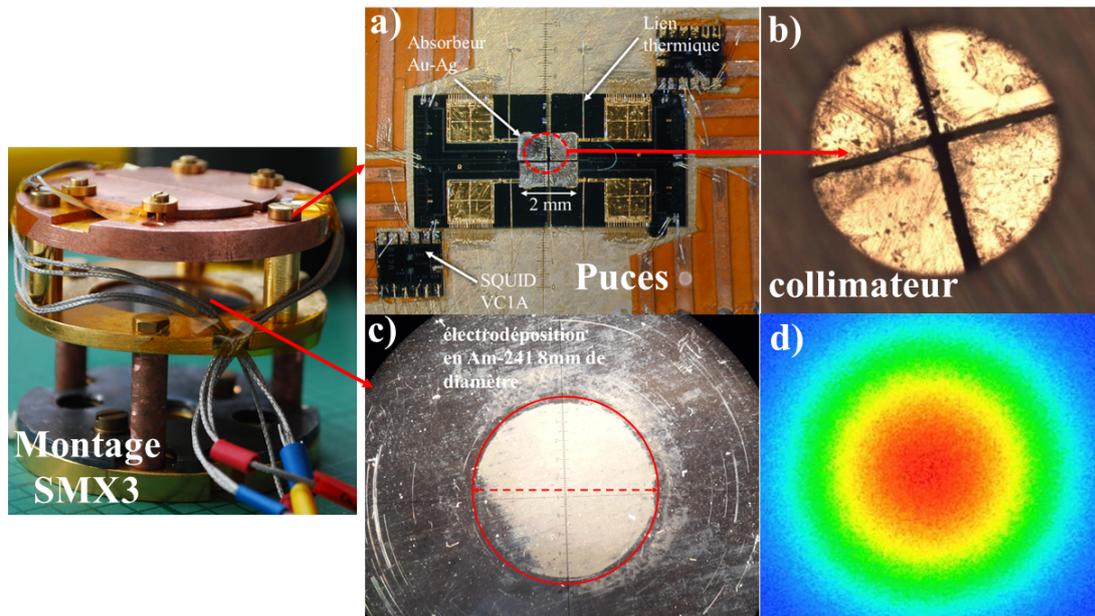


FIGURE 2.4 – a) Photo du détecteur SMX3 constitué de deux puces "M" et de quatre absorbeurs Au-Ag. b) Photo des quatre pixels à travers le trou du collimateur en tungstène. c) Photo d'une source électrodéposée sur un disque en acier inoxydable. d) Autoradiographie de la distribution de l'activité sur le support.

## 2.2 Mise en œuvre expérimentale

Cette partie détaillera la préparation et la mise en œuvre expérimentale des mesures de spectres de photons d'actinides par SMX3, ainsi que les différentes étapes d'analyse du signal qui mènent à l'obtention d'un spectre.

### 2.2.1 Préparation des sources radioactives

En spectrométrie de photons de basse énergie, l'utilisation de sources de faibles diamètres, homogènes et fines est préférable pour, d'une part, avoir un angle solide le plus proche possible de celui d'une source ponctuelle et d'autre part, pour minimiser l'auto-absorption dans la source.

Pour la spectrométrie de photons conventionnelle, les sources préparées au LNHB sont réalisées en déposant, au pycnomètre sur un film de Mylar, une goutte de la solution mère d'activité massique connue. Le dépôt est séché par simple évaporation, et enfermé avec un film adhésif pour éviter toute dissémination de particules radioactives. L'activité déposée est déterminée en pesant le pycnomètre avant et après dépôt. Le défaut de cette méthode est que le dépôt sèche de manière grossière, il est inhomogène et des cristaux de dimensions jusqu'à quelques  $\mu\text{m}$  se forment pouvant absorber les photons de faible énergie [65]. L'auto-absorption est difficilement

quantifiable à cause de la forme aléatoire du dépôt. De plus, les films de Mylar et d'adhésif se déforment et ondulent à basse température à cause de la contraction thermique. Par conséquent, la distance source-détecteur varie et n'est pas reproductible entre les différentes mesures.

Une méthode alternative est l'électrodéposition sur un disque métallique, qui est la méthode utilisée pour la préparation des sources destinées à la spectrométrie alpha ou de photons de basse énergie car elle permet l'obtention d'un dépôt radioactif homogène et fin<sup>8</sup> capital pour limiter l'auto-absorption des particules alpha ou des rayonnements de basse énergie (par exemple les photons XL). C'est pourquoi, cette méthode a été retenue pour la fabrication des sources mesurées au cours de cette thèse. Son principe est d'établir dans un récipient contenant la solution radioactive une différence de potentiel entre une électrode (anode) et un support en acier inoxydable (cathode) afin de recouvrir ce dernier d'une pellicule fine de l'élément à l'état métallique. Toutefois, le domaine d'électro-activité de l'eau ne permet pas de réduire les actinides à l'état métallique en solution aqueuse (milieu des solutions radioactives disponibles) car les potentiels d'oxydo-réduction correspondants pour les actinides sont tous très inférieurs à 0 V. Une adaptation de ce processus est donc réalisée dans le cas des actinides : "l'électroprécipitation". Sous l'action d'une différence de potentiel, les ions à déposer sont attirés vers le disque d'acier inoxydable. Au voisinage du disque, les ions atteignent une zone où l'eau est décomposée par hydrolyse et présente un pH élevé. Or, à pH élevé, les actinides forment des espèces hydrolysées neutres, insolubles et précipitent donc sous forme d'hydroxydes. À la fin du processus de dépôt, afin d'éviter que les hydroxydes précipités se dissolvent dans la solution, un ajout de solution basique concentrée est réalisé avant de couper le courant. Le disque est ensuite calciné au four (entre 200 et 400 °C) afin d'oxyder le dépôt pour favoriser son adhérence sur le disque lors des futures mesures sous vide. La figure 2.4.c montre une source de <sup>241</sup>Am électroprécipitée sur un support en acier inoxydable.

Pour vérifier que la distribution de l'activité est homogène sur le support, une autoradiographie des échantillons radioactifs est effectuée à l'aide d'un imageur disponible au LNHB. Il permet de visualiser la densité des interactions des particules et des photons avec un film en phosphore déposé face à l'échantillon. La figure 2.4.d montre la radiographie de la source d'<sup>241</sup>Am mise à 1 mm de l'imageur, elle fournit une information uniquement sur l'homogénéité de l'activité du fait que la mesure est relative par rapport au centre de la source.

---

8. L'épaisseur du dépôt dépend de la période radioactive du nucléide, de l'activité déposée et de l'aire du dépôt.

### 2.2.2 Angle Solide Défini (ASD)

Pour les actinides qui se désintègrent par émission  $\alpha$ , l'activité peut être mesurée au LNHB par la méthode primaire d'angle solide défini (ASD) en n'utilisant que les grandeurs d'un système d'unités temps et longueurs.

La source à étalonner est installée face à un détecteur en silicium monté dans une chambre mis sous vide comme le montre la figure 2.5. Pour garantir une définition précise de l'angle solide, un collimateur est installé entre la source et le détecteur; le diamètre  $a$  du collimateur ainsi que la distance  $z$  entre le support de source et le collimateur ont été étalonnés par un laboratoire accrédité de métrologie dimensionnelle. L'activité  $A$  est donnée par :

$$A = \frac{n \cdot 4 \cdot \pi}{t \cdot \Omega \cdot P_\alpha} \quad (2.2)$$

$$\Omega = G \cdot 4\pi \approx \frac{\pi a^2}{4z^2} \quad (2.3)$$

$n$  : comptage des particules  $\alpha$  détectées,

$t$  : durée de la mesure,

$G$  : facteur de géométrie,

$a$  : diamètre du collimateur,

$z$  : distance source-collimateur,

$\Omega$  : angle solide,

$P_\alpha$  : probabilité d'émission  $\alpha$ . La méthode ASD permet d'obtenir des activités avec un écart-type relatif de 0,1% à  $k=1$ .



FIGURE 2.5 – Chambre de mesure d'activité par spectrométrie  $\alpha$  avec la méthode d'angle solide défini.

### 2.2.3 Mise à basse température et acquisition de données

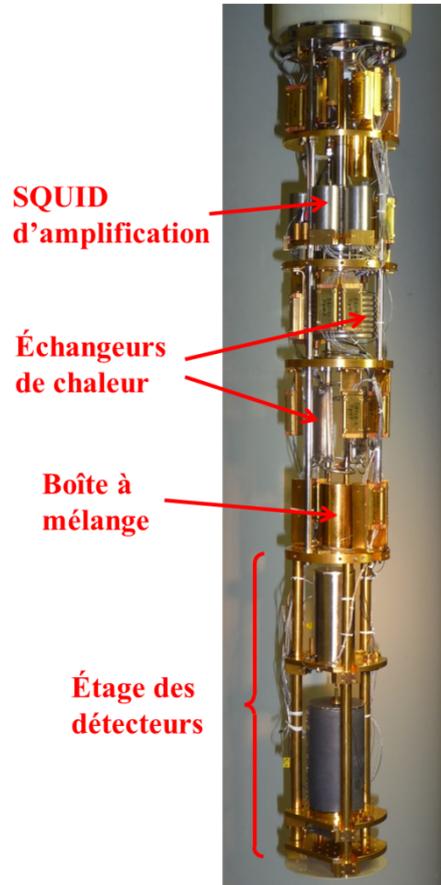


FIGURE 2.6 – Réfrigérateur à dilution utilisé pour refroidir le détecteur SMX3 à 10 mK.

SMX3 est un détecteur cryogénique dont l'excellente résolution ne peut-être obtenue qu'à très basse température. Le détecteur est refroidi grâce à un réfrigérateur à dilution employant un mélange  $^3\text{He}/^4\text{He}$  [66]. Une fois le détecteur installé, le cryostat est fermé par « l'IVC » (*Inner Vacuum Chamber*). L'IVC est ensuite introduit dans un dewar et mis sous vide secondaire durant quelques heures à une nuit. Le dewar est rempli d'azote liquide (77 K) pour démarrer le refroidissement de l'IVC, des différents étages du cryostat et du détecteur. Pour cela un gaz d'échange ( $^3\text{He}$ ) y est introduit, ce gaz crée un pont thermique entre la paroi froide de l'IVC, en contact avec le liquide cryogénique, et les éléments chauds dans l'IVC. Cette étape dure 4 à 5 heures. Puis l'azote liquide est remplacé par de l'hélium liquide (4,2 K) en 3 h. Lorsque tous les étages et le détecteur dans l'IVC sont à 4,2 K, le champ magnétique est gelé dans le circuit du méandre par un courant  $I_F = 60$  mA. Un courant de chauffage  $I_H$  de l'ordre de 4 mA est ensuite nécessaire pour ouvrir l'interrupteur thermique.

La difficulté de cette étape réside dans le fait qu'il n'y a aucun moyen de savoir si le

courant voulu  $I_F$  est effectivement gelé, il faut descendre sous les 100 mK pour le confirmer en mesurant l'amplitude des impulsions. Si le courant  $I_F$  semble inférieur à 60 mA ou même nul, il est possible de répéter cette étape à basse température mais au risque de chauffer le cryostat de quelques centaines de mK. Ensuite le gaz d'échange dans l'IVC est pompé pendant au minimum 3 h. Puis le mélange  $^3\text{He}/^4\text{He}$  est injecté et condensé dans la boîte à mélange, ce processus prend environ 10 h et le processus de dilution commence. Enfin, ce processus est accéléré par pompage sur le bouilleur avec une pompe turbo-moléculaire et par chauffage du bouilleur à 700 mK, 4 h sont nécessaires pour atteindre la température de base du cryostat (10 -13 mK).

La descente en froid dure donc au mieux environ 28 h, et en général plutôt deux jours.

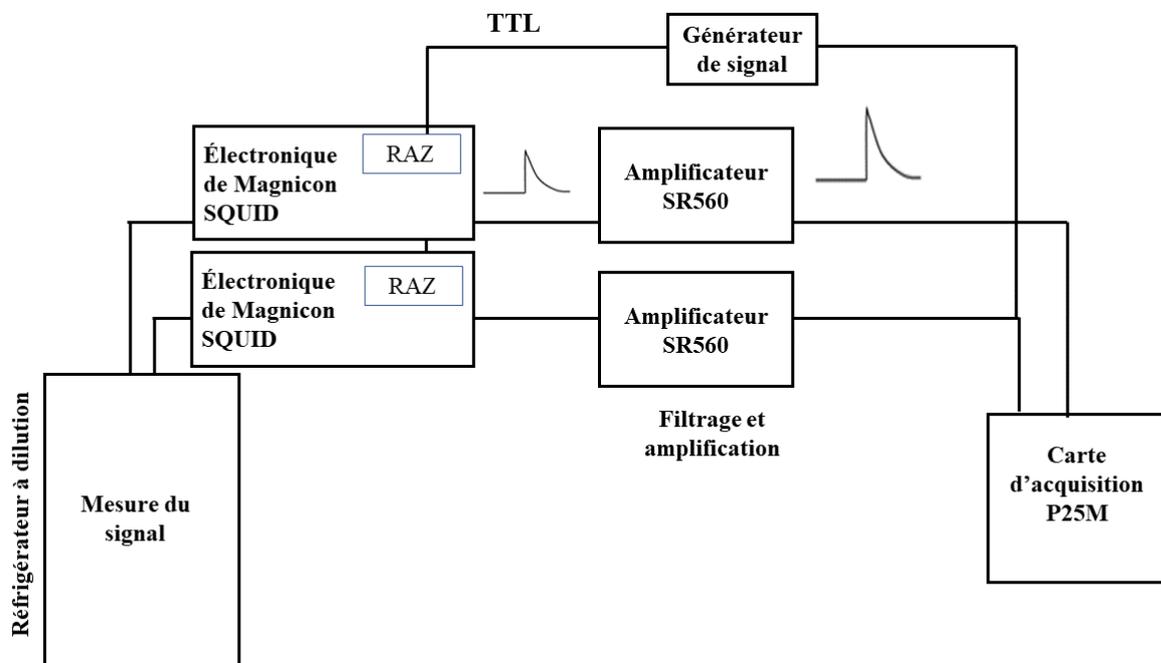


FIGURE 2.7 – Schéma de la chaîne d'acquisition disponible au LNHB.

L'obtention d'une statistique suffisante exige d'effectuer une acquisition durant deux semaines environ par source. La figure 2.7 présente un schéma simplifié de la chaîne d'acquisition utilisée. Les SQUID VC1A sont amplifiés avec deux électroniques Magnicon ; le réglage de leurs paramètres de fonctionnement (essentiellement courant de polarisation et résistance de contre-réaction) se fait par le logiciel fourni par Magnicon (codé sous Labview). Les signaux à la sortie de l'électronique à SQUID ont une amplitude de quelques centaines de mV. Deux amplificateurs de type Stanford Research Systems SR 560<sup>9</sup> connectés à la sortie de l'électronique à SQUID

9. Stanford Research Systems SRS560 <https://www.thinksrs.com/products/sr560.html>

permettent de filtrer avec un passe-haut, un passe-bas ou un passe-bande et d'amplifier le signal avant de le numériser par une carte d'acquisition (Innovative Integration modèle P25M<sup>10</sup>) pour enregistrer le signal en continu. Cette carte possède deux voies et numérise sur 16 bits jusqu'à une fréquence d'échantillonnage de 2,5 MHz. Pour les enregistrements continus de longue durée une fréquence d'échantillonnage  $f_e = 250$  kHz est choisie pour éviter d'avoir à stocker et analyser des volumes de données trop importants.

En effet, 10 jours de données à 250 kHz correspondent à 420 Go par voie, soit près d'un To au total. Le choix du gain d'amplification du SRS560 est effectué pour utiliser la plus grande gamme dynamique en tension de la carte d'acquisition ( $\pm 4$  V) tout en évitant sa saturation. Pour éviter le phénomène de repliement de spectre et respecter le théorème de Nyquist-Shannon, la fréquence de coupure du filtrage avec un passe-bas du SRS560 est fixée à moins de la moitié de la fréquence d'échantillonnage, soit 100 kHz. Afin de réduire les fluctuations de la ligne de base, le signal peut être filtré par un passe-haut. La fréquence de coupure de celui-ci est fixée d'une manière à éviter de filtrer le temps de descente de l'impulsion, ce qui peut causer une dégradation de la résolution et de forts « undershoots ».

Toutefois le but du passe-haut était de maintenir les fluctuations de ligne de base (produites par les variations de température) dans les gammes de tension acceptée par le SRS560 et la carte d'acquisition, pour éviter les saturations de l'enregistrement. Pour contourner ce problème et l'utilisation d'un passe-haut, une remise à zéro (RAZ) externe de l'électronique Magnicon peut être utilisée. La caractéristique  $V-\phi$  du SQUID étant périodique en fonction du flux magnétique, le point de fonctionnement établi par la contre-réaction du SQUID peut s'établir à différents points de la caractéristique  $V-\phi$ . Par conséquent, le niveau de la ligne de base est lui-même quantifié par nombre de  $\phi_0$ . Si le niveau de la ligne de base est à une valeur  $A$ , il peut aussi être établi à une valeur  $A + n\phi_0$  où  $n$  est un entier. La RAZ de l'électronique va imposer  $n = 0$ , et donc maintenir le niveau de ligne de base le plus proche de zéro et ainsi dans les gammes dynamiques du SRS560 et de la carte d'acquisition. La RAZ de l'électronique est actionnée périodiquement toutes les 10 s avec un générateur de porte TTL. En outre l'avantage de cette méthode est que le niveau de ligne de base  $A$  correspond à la température du détecteur, il est alors possible d'établir une corrélation entre  $A$  et l'amplitude des impulsions, puis de corriger les fluctuations de température en utilisant cette corrélation.

Pour prendre en compte, dans le traitement du signal, les spécificités de chaque mesure et les variabilités des conditions expérimentales, les données sont enregistrées en continu sur un disque dur. Cela permet, lors du traitement du signal hors ligne, d'optimiser les paramètres

---

10. Innovative integration <https://www.innovative-dsp.com/>

du traitement comme le type et les fréquences de filtrage, le niveau du seuil de déclenchement de signal ou la durée des fenêtres de temps mort. Dans la partie suivante, les étapes du traitement effectuées à l'aide d'un ensemble de programmes codés sous Matlab et le langage C sont détaillées.

### 2.3 Traitement et analyse du signal

Le signal mesuré par SMX3 enregistré en continu est analysé hors ligne pour adapter l'analyse aux conditions de l'expérience. Les 4 pixels sont enregistrés sur deux voies et sont traités de manière indépendante.

Les étapes du traitement du signal détaillées dans les paragraphes suivants sont :

1. Détection des positions des impulsions dans l'enregistrement.
2. Application d'un temps mort reconductible.
3. Construction d'une impulsion modèle et d'un bruit modèle.
4. Détermination de l'énergie des impulsions détectées.
5. Correction des fluctuations des amplitudes avec la température.
6. Rejet des empilements basée sur l'analyse de la forme des impulsions.
7. Correction de la non-linéarité en énergie.
8. Égalisation de la résolution en énergie des quatre pixels

#### 2.3.1 Détection des positions des impulsions

SMX3 est un détecteur comportant 4 pixels. Sur chacune des deux voies, l'utilisation d'un transformateur de flux comportant une paire de bobines de lecture couplées à deux senseurs-absorbeurs génère des variations de flux magnétique de sens opposés dans le SQUID. Donc, les impulsions mesurées seront positives ou négatives en fonction de l'absorbeur dans lequel les photons interagissent.

En premier lieu, les positions et les durées des impulsions doivent être déterminées grâce à la détection du dépassement d'un seuil de déclenchement (trigger en anglais). Le signal est fortement filtré par un passe-bande de type Butterworth au 1<sup>er</sup> ordre. La fréquence de coupure du passe-haut (300 Hz) permet de filtrer les possibles variations de ligne de base, de réduire la constante de temps des impulsions et d'appliquer un seuil de déclenchement constant. La fréquence de coupure du passe-bas (800 Hz) permet de filtrer le bruit haute fréquence, d'abaisser les seuils et de détecter des impulsions de faibles amplitudes, il convient de mentionner que ce filtrage sert uniquement au trigger.

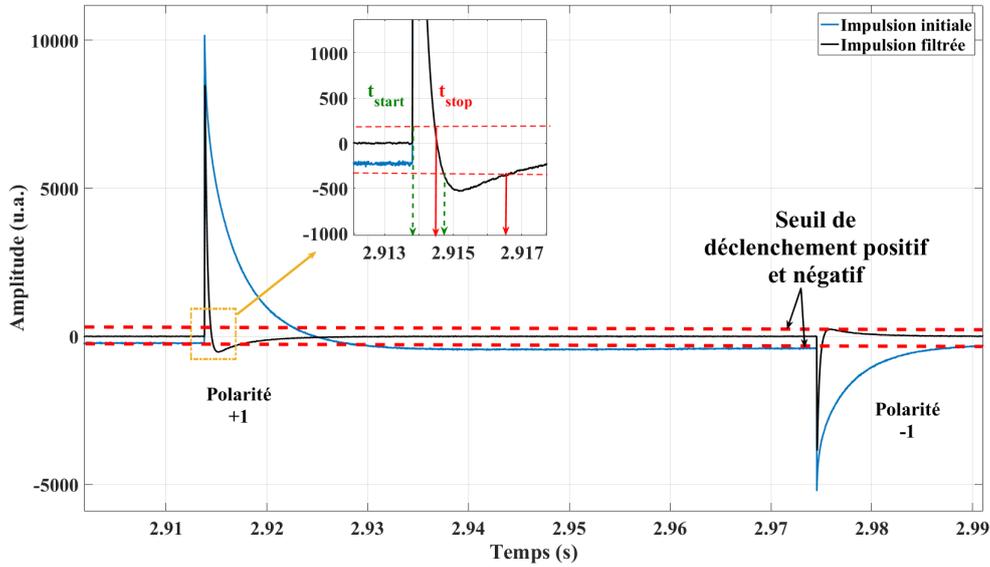


FIGURE 2.8 – Impulsions détectées dans deux absorbeurs sur la même voie d’acquisition.

Le filtrage utilisé pour la détermination de l’amplitude des impulsions fait l’objet de la partie 2.3.2. La figure 2.8 montre des impulsions filtrées et détectées sur une voie d’acquisition. Deux seuils de déclenchement, un positif et un négatif sont appliqués sur le signal. Lorsqu’une impulsion positive dépasse le seuil, un événement est détecté et son temps  $t_{start}$  est enregistré. Une fois que le signal descend en-dessous du seuil, un temps  $t_{stop}$  est enregistré. Si le signal détecté est positif (négatif) une polarité +1 (-1) est enregistrée pour préciser l’absorbeur dans lequel le photon a déposé son énergie. La durée d’une impulsion filtrée au-dessus du seuil ( $t_{stop} - t_{start}$ ) est beaucoup plus courte que celle de l’impulsion brute et cette durée est proportionnelle à l’amplitude de l’impulsion. De plus, le filtrage passe-haut engendre un « undershoot » (passage du signal en-dessous de zéro) qui redéclenche le « trigger » avec la polarité (figure 2.8). Cet artefact sera éliminé par l’application d’un temps mort reconductible.

### 2.3.2 Temps mort et temps actif

L’amplitude d’une impulsion détectée correspond à l’énergie du photon. Pour une détermination précise de l’amplitude, il est essentiel que la ligne de base des impulsions analysées ne soit pas perturbée par une impulsion précédente, c’est-à-dire qu’il n’y ait pas d’empilements sur la ligne de base. En effet, un temps minimum doit séparer deux impulsions, sinon l’empilement des impulsions comme celles montrées dans la figure 2.9 conduira à une détermination erronée des amplitudes. Le temps durant lequel le détecteur n’est pas capable de détecter un événement est dit temps mort. À l’opposé, le temps est dit actif si le détecteur peut détecter une impulsion, et il est indispensable de déterminer le temps actif pour mesurer des intensités d’émission

absolues (équation 1.28). À partir des positions  $t_{start}$  et  $t_{stop}$  des événements détectés, un algorithme basé sur le temps mort reconductible a été conçu pour supprimer les impulsions dont la ligne de base n'est pas constante<sup>11</sup> et de déterminer le temps actif [67]. L'algorithme est codé en combinant Matlab et le langage C pour accélérer le temps de traitement. La fonction applique, pour chaque impulsion détectée, soit à chaque  $t_{start}$ , une fenêtre de temps mort d'une durée proportionnelle à la durée de l'impulsion détectée :  $dt \cdot (t_{stop} - t_{start})$ . Comme l'impulsion détectée est filtrée et plus courte que l'impulsion enregistrée, un facteur  $dt$  est défini de sorte que la durée de la fenêtre de temps mort soit au moins égale à la durée de l'impulsion non-filtrée, et qu'ainsi l'impulsion à la fin de la fenêtre de temps mort soit bien retournée au niveau de la ligne de base. Si une impulsion est détectée durant la fenêtre de temps mort imposée par l'impulsion précédente, elle est supprimée (ce qui permet par la même occasion d'éliminer le déclenchement du seuil par « l'undershoot », figure 2.8) et la fenêtre initiale de temps mort est prolongée par la fenêtre de temps mort déclenchée par l'impulsion supprimée. Finalement, la fonction enregistre un temps mort déterminé par la somme des durées des fenêtres une fois reconduites comme le montre la figure 2.9.

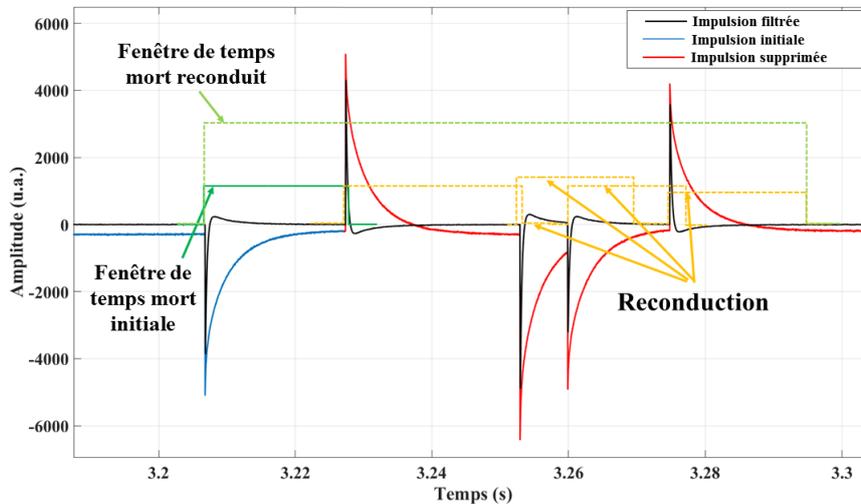


FIGURE 2.9 – Empilement de cinq impulsions détectées sur une voie d'acquisition et les fenêtres des temps mort.

La soustraction du temps mort et du temps total de l'acquisition donne le temps actif de l'acquisition. Les impulsions retenues à la sortie de la fonction de temps mort seront traitées dans la suite pour déterminer leurs amplitudes. Il est important de souligner que cette fonction supprime efficacement les empilements sur la ligne de base, mais elle ne peut pas supprimer les

11. La ligne de base n'est pas nécessairement à zéro si un passe-haut n'est pas appliqué en amont de la carte d'acquisition. Le niveau de la ligne de base dépend de la température du détecteur et du bain thermique.

empilements sur l'impulsion elle-même (constituée d'une montée et d'une descente). Ces empilements rapprochés seront, au moins partiellement, supprimés par les coupures sur la forme des impulsions détaillées dans la partie 2.3.4.2.

### 2.3.3 Amplitude de l'impulsion

Il existe différentes méthodes pour déterminer les amplitudes, l'objectif étant d'obtenir la meilleure résolution en énergie sur les pics du spectre, ceci en maximisant le rapport signal sur bruit. Pour les analyses des mesures avec SMX3, deux méthodes (couramment utilisées dans différentes applications utilisant les détecteurs cryogéniques [32, 68, 69]) ont été utilisées, donnant des résultats proches en termes de résolution en énergie avec SMX3. La première méthode consiste à ajuster, dans le domaine temporel (DT), une impulsion modèle à chaque impulsion détectée dans le temps actif. L'autre méthode est connue sous le nom de filtrage optimal ou adapté [70]. Elle est basée sur la construction, dans le domaine fréquentiel (DF) d'un filtre adapté à partir des densités spectrales du bruit et de l'impulsion modèle.

#### 2.3.3.1 Domaine temporel

Dans le domaine temporel, une impulsion modèle  $M(t)$  est construite en moyennant des événements de détection dans l'absorbeur sélectionné. Son amplitude est normalisée à 1. L'impulsion modèle comporte deux composantes : la ligne de base avant l'impulsion (de valeur moyenne nulle) et l'impulsion moyennée, incluant toute la montée et une partie de la descente, ces deux composantes ayant la même durée. L'impulsion modèle avec un nombre  $N_{DT}$  d'échantillons est ajustée linéairement à chaque impulsion détectée  $D(t)$  (figure 2.10) avec deux paramètres et en minimisant  $\chi^2$  de sorte que :

$$D(t) = A_{DT} \cdot M(t) + LdB \quad (2.4)$$

où,

$M(t)$  : impulsion modèle,

$D(t)$  : impulsion détectée,

$A_{DT}$  : amplitude de l'impulsion mesurée,

$LdB$  : niveau de ligne de base.

et  $\chi^2$  est donné par :

$$\chi^2 = \sum_{i=1}^{N_{DT}} \frac{(D_i - M_i \cdot A_{DT} + LdB)^2}{\sigma_i^2} \quad (2.5)$$

Où,

$D_i$  :  $i^{\text{ème}}$  échantillon de l'impulsion détectée,

$M_i$  :  $i^{\text{ème}}$  échantillon de l'impulsion modèle,

$\sigma_i^2$  : écart entre le  $i^{\text{ème}}$  échantillon de l'impulsion détectée et le  $i^{\text{ème}}$  échantillon de l'ajustement par l'impulsion modèle.

Le nombre d'échantillons  $N_{DT}$  est défini en fonction des constantes de temps des impulsions, des caractéristiques du bruit ainsi que du taux de comptage. Par exemple si le bruit est blanc, il convient d'utiliser un nombre  $N_{DT}$  de sorte que l'impulsion modèle inclue toute la descente, ce qui permet de réduire le  $\chi^2$  et de maximiser le rapport signal sur bruit. En revanche, s'il existe une contribution à basse fréquence dans le bruit, tel qu'un bruit  $1/f$ , une impulsion modèle plus courte offre une meilleure résolution car l'impact des fluctuations basse fréquence sur l'ajustement est réduit. En général, pour l'analyse dans le DT, préalablement à la construction de l'impulsion modèle et aux ajustements des impulsions mesurées, un filtre passe-bas (de fréquence de coupure de 5 à 10 kHz) est appliqué pour réduire le bruit haute fréquence et améliorer le rapport signal sur bruit.

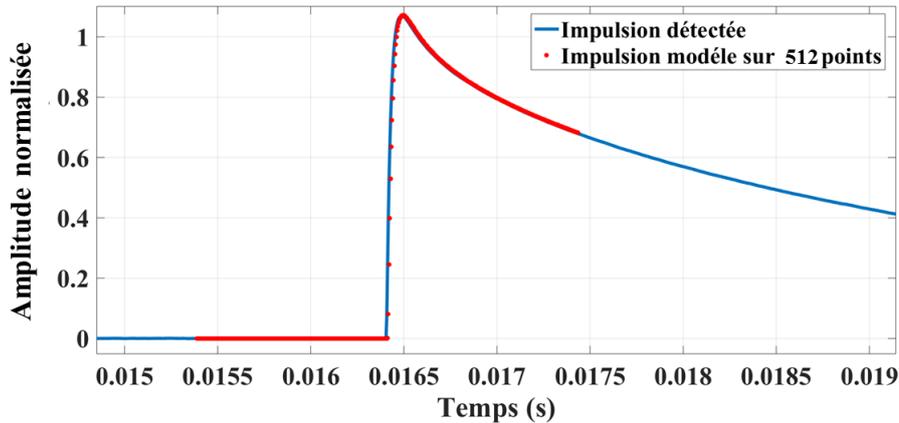


FIGURE 2.10 – Impulsion modèle avec un nombre  $N_{DT} = 512$  ajustée à une impulsion détectée.

Pour SMX3, une impulsion modèle construite sur  $N_{DT} = 512$  échantillons, soit 1,05 ms avec  $f_e = 250$  kHz, est l'optimum du point de vue du rapport signal sur bruit. Pour déterminer l'énergie dans le cas de la figure 2.10, l'impulsion modèle est construite sur 512 points avec une amplitude normalisée. En multipliant cette dernière par un facteur afin de l'ajuster à l'amplitude de l'impulsion détectée, finalement le facteur d'ajustement vaut l'amplitude de l'impulsion.

### 2.3.3.2 Domaine fréquentiel

La méthode de détermination de l'énergie dans le domaine fréquentiel est connue sous le nom "filtrage optimal" [70]. Dans le cas où les impulsions détectées possèdent la même forme,

l'impulsion détectée  $D(f)$ , dans le domaine fréquentiel peut s'exprimer par l'équation 2.6.

$$D(f) = A_{DF} \cdot M(f) + N(f) \quad (2.6)$$

$D(f)$  : impulsion détectée,

$M(f)$  : impulsion modèle construite sur  $2^n$ ,  $n$  est choisi de sorte que l'impulsion modèle contient toute l'impulsion y compris la ligne de base,

$A_{DF}$  : amplitude de l'impulsion,

$N(f)$  : composante du bruit à la fréquence  $f$ .

L'estimation de l'amplitude  $A_{DF}$  est optimale si elle minimise la différence entre l'impulsion modèle  $M(f)$  et l'impulsion détectée  $D(f)$  donnée par l'équation 2.7.

$$\chi^2 = \sum \frac{|D(f) - A_{DF} \cdot M(f)|}{b^2(f)} \quad (2.7)$$

où,  $b^2(f)$  est le spectre de bruit construit sur l'acquisition.

La condition de minimisation du  $\chi^2$  s'effectue en prenant la dérivée par rapport à l'amplitude :

$$\frac{d\chi^2}{dA_{DF}} = \frac{\sum D(f) \frac{M^*(f)}{|b(f)|^2}}{\sum \frac{|M(f)|^2}{|b(f)|^2}} \quad (2.8)$$

Au domaine temporel, l'amplitude optimale  $A$  de l'impulsion détectée est donnée par :

$$A_{DF} = \sum D(t) \cdot F(t) \quad (2.9)$$

$F(t)$  est le filtre optimal donné par l'inverse de la transformée de Fourier de  $S^*(f)/b^2(f)$  avec  $S^*(f)$  la transformée de Fourier de l'impulsion modèle.

Donc, pour construire un filtre optimal qui détermine l'énergie de l'impulsion, la construction d'un spectre de bruit et d'une impulsion modèle est nécessaire. À cet effet, des morceaux suffisamment longs de ligne de base exempts d'impulsions sont choisis. Pour chaque morceau de ligne de base un écart-type par rapport à la moyenne de toutes les lignes de base ainsi qu'une amplitude sont déterminés à l'aide d'un programme codé sous Matlab. L'amplitude signifie ici leur variation autour de zéro. Sur la distribution de ces paramètres, écart-type et amplitude, une sélection est effectuée dans le but de choisir les lignes de base qui ne présentent pas un

grand écart-type ou une grande amplitude. Ensuite, une transformée de Fourier de chaque ligne de base est calculée. Enfin, le spectre de bruit est la moyenne de toutes les transformées de Fourier. La figure 2.11 montre un spectre de bruit d'un pixel construit sur une acquisition effectuée sur SMX3. L'amplitude d'une impulsion est déterminée par filtrage optimal via un produit de convolution entre le filtre  $F(t)$  et l'impulsion détectée. Enfin, le maximum de l'impulsion détectée filtrée présentée dans la figure 2.12 correspond à l'amplitude de l'impulsion détectée.

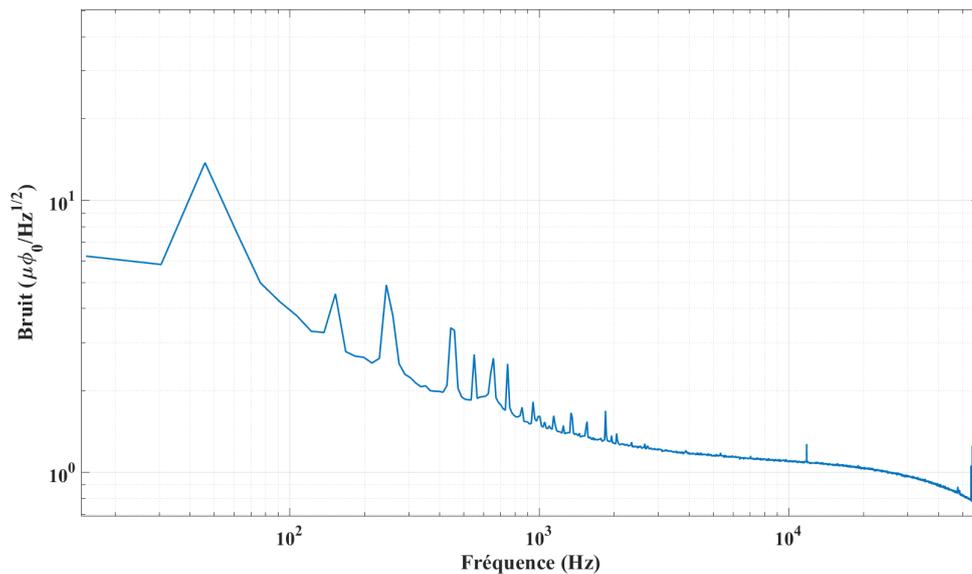


FIGURE 2.11 – Spectre de bruit construit sur un pixel de SMX3.

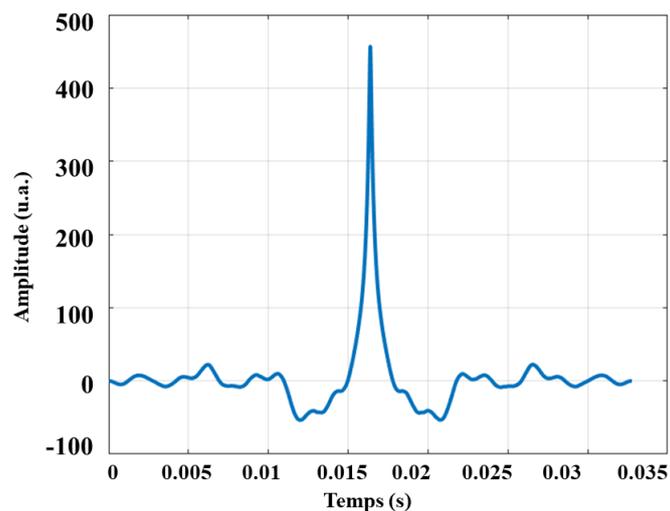


FIGURE 2.12 – Impulsion traitée par filtrage optimal.

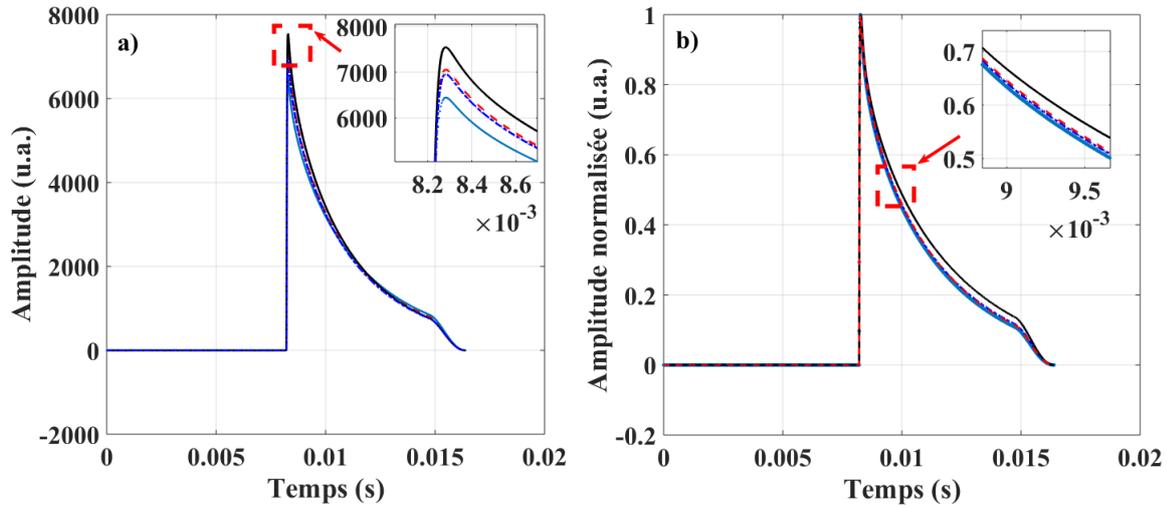


FIGURE 2.13 – (a) Impulsions modèles des quatre pixels de SMX3. (b) Impulsions modèles normalisées.

La figure 2.13.a montre les impulsions modèles construites pour chaque absorbeur. Ces impulsions présentent une différence entre les maximums. Les impulsions moyennées normalisées présentent aussi des différences entre les constantes de temps de descente comme le montre la figure 2.13.b. Ces différences sont dues aux différentes capacités thermiques des absorbeurs et aux différentes conductances des liens thermiques. Les pixels ne possèdent donc pas les mêmes sensibilités, ce qui exige un traitement du signal de chaque pixel afin d'obtenir un spectre par pixel. L'obtention d'un spectre total nécessite différentes étapes qui seront discutées dans la suite.

### 2.3.4 Obtention du spectre

Une fois les amplitudes des impulsions obtenues, les étapes suivantes sont nécessaires pour obtenir les spectres des quatre absorbeurs et le spectre final :

1. Correction des fluctuations d'amplitude
2. Rejet des empilements par coupure sur le  $\chi^2$
3. Linéarisation de la réponse en énergie
4. Égalisation de la résolution en énergie pour les quatre absorbeurs

#### 2.3.4.1 Correction des fluctuations d'amplitude

L'amplitude d'une impulsion dépend de la capacité thermique de l'absorbeur et de la sensibilité du senseur et donc de la température du bain thermique. Or, la température du réfrigérateur à dilution n'est pas régulée pour atteindre la température de base et maximiser le signal. Par conséquent, la température du réfrigérateur fluctue de quelques centaines de  $\mu\text{K}$  durant une acquisition. Ces fluctuations se répercutent sur l'amplitude des impulsions qu'il faut alors corriger sous peine de dégrader fortement la résolution. La correction des fluctuations peut se faire selon deux méthodes.

##### 2.3.4.1.1 Méthode des amplitudes

La première méthode consiste à définir une fonction des fluctuations des amplitudes des impulsions  $f_{Amp}(t)$  en fonction du temps  $t$ . Pour cela, il faut choisir des impulsions correspondant à une même énergie avec une statistique suffisante pour échantillonner les fluctuations, par exemple dans la figure 2.14, en haut à gauche, les amplitudes dans le rectangle rouge. De plus, il est préférable de choisir une énergie importante car les fluctuations d'amplitude  $\sigma_{Amp}$  sont proportionnelles aux fluctuations de température  $\sigma_T$  et à l'amplitude des impulsions :

$$\sigma_{Amp} = \frac{\sigma_T}{T} \cdot Amp \quad (2.10)$$

où,  $T_0$  : température du bain thermique,

$Amp$  : amplitude du signal.

La fonction  $f_{Amp}(t)$  est créée soit par interpolation par une fonction spline, soit à partir d'une moyenne glissante (ou d'une « médiane glissante ») (courbe rouge en figure 2.14, en haut à droite) appliquée sur les amplitudes en fonction du temps.

Ensuite toutes les amplitudes mesurées peuvent être corrigées des fluctuations en appliquant  $Amp_{corrig} = \frac{Amp}{f_{Amp}(t)}$  (figure 2.14, en bas). Cette correction est valable si l'amplitude des

impulsions est linéaire avec l'énergie des photons et si les fluctuations de température ne sont pas trop importantes, c'est-à-dire que les variations restent dans la limite des petits signaux.

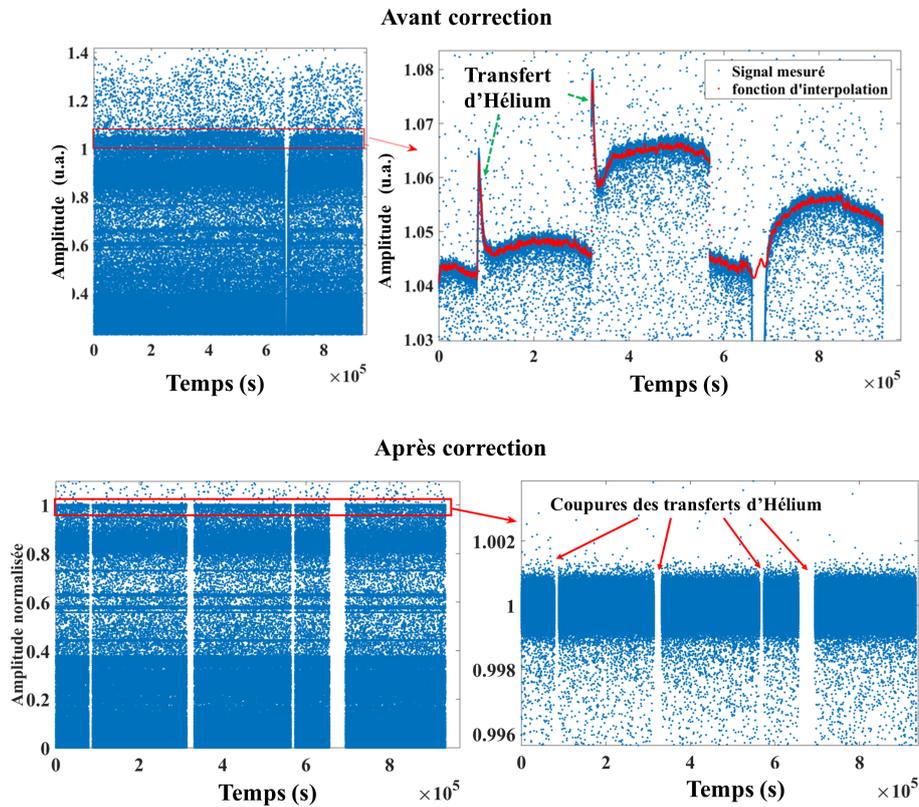


FIGURE 2.14 – Amplitudes des impulsions avant et après la correction.

En haut à gauche, les amplitudes des impulsions en fonction du temps (points bleus). Le rectangle rouge correspond aux amplitudes sélectionnées pour définir la fonction  $f_{Amp}(t)$ . À droite, les amplitudes sélectionnées en bleu et la fonction  $f_{Amp}(t)$  en rouge.

En bas, les amplitudes des impulsions corrigées par la fonction  $f_{Amp}(t)$  de la fluctuation de température et à droite le zoom. Les coupures correspondent aux rejets des impulsions durant les transferts d'hélium, où les dérives de température sont brutales et mal corrigées.

### 2.3.4.1.2 Méthode de la ligne de base

La deuxième méthode consiste à corriger les dérives de température en utilisant le niveau de la ligne de base, qui varie de façon linéaire avec la température du détecteur, et en utilisant la corrélation entre le niveau de la ligne de base et les amplitudes des impulsions. Cette méthode est possible seulement si le signal n'est pas filtré par un passe-haut en amont de la carte d'acquisition. La figure 2.15 montre l'effet des fluctuations de température sur la ligne de base durant l'acquisition.

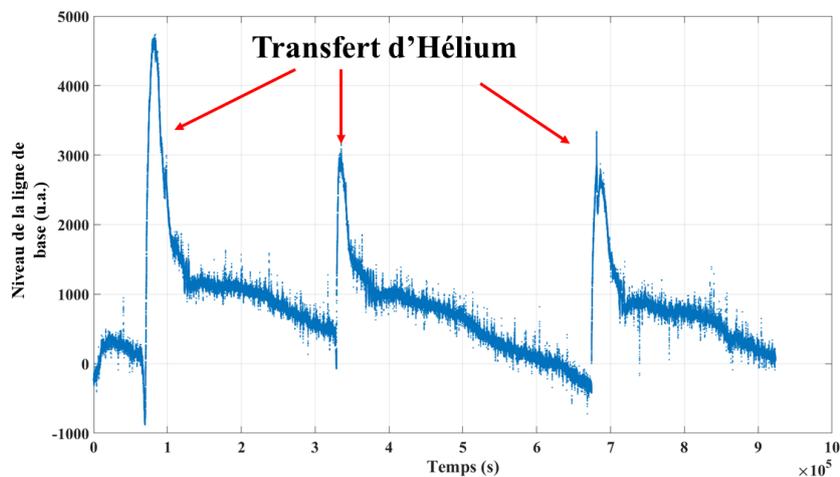


FIGURE 2.15 – Effet de la fluctuation de la température sur le niveau de la ligne de base en fonction du temps.

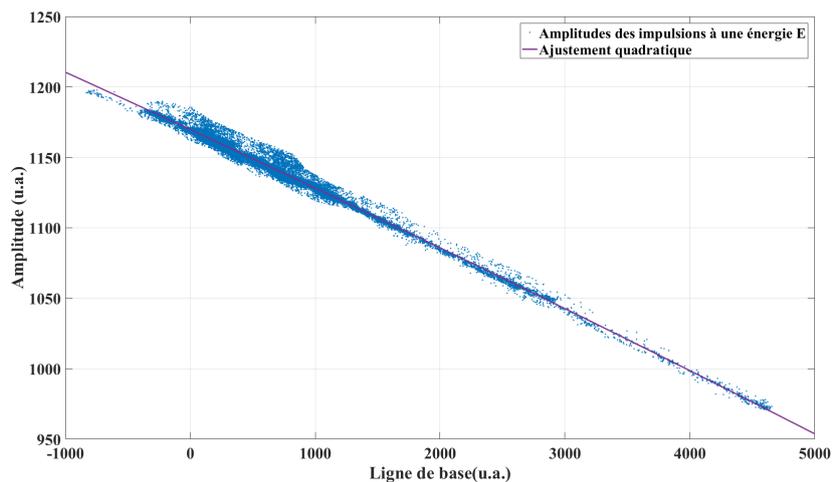


FIGURE 2.16 – Amplitude en fonction du niveau de la ligne de base pour des impulsions de la même énergie.

La corrélation entre les amplitudes  $Amp$  des impulsions d'une même énergie et de leurs niveaux de ligne de base  $LdB$  est montrée dans la figure 2.16. Cette dépendance est ajustée à l'aide d'une fonction linéaire ou d'un polynôme de second degré telle que  $Amp = g_{Amp}(LdB)$ . Cette fonction est ensuite utilisée pour corriger les fluctuations des amplitudes par leurs niveaux de la ligne de base  $Amp_{corrig} = \frac{Amp}{g_{Amp}(LdB)}$  (figure 2.17).

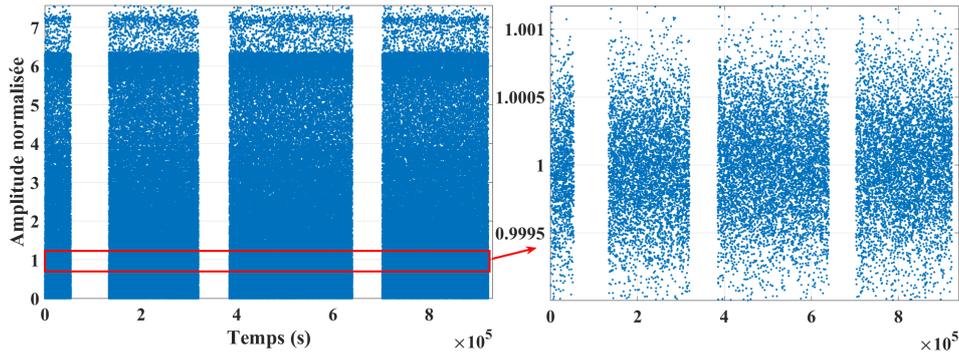


FIGURE 2.17 – Amplitudes des impulsions après la normalisation par le polynôme.

Les deux méthodes donnent des résultats similaires, c'est-à-dire que les résolutions en énergie obtenues, une fois les corrections de fluctuation effectuées, sont quasi identiques. La seconde méthode a un avantage sur la première : il n'est pas indispensable d'avoir des amplitudes à une énergie donnée avec une statistique suffisante pour « échantillonner » les fluctuations.

### 2.3.4.2 Rejet d'impulsions

Deux types de rejet d'impulsions (ou coupures) sont nécessaires. Le premier supprime les portions de l'acquisition durant les remplissages du réservoir d'hélium, ou transferts d'hélium. En effet, pour maintenir en fonctionnement le réfrigérateur à dilution, un transfert d'hélium doit être effectué tous les trois jours environ. Cela provoque une instabilité de la température, traduite par un changement brutal des amplitudes durant le transfert et dans l'heure qui suit (figure 2.14). Les impulsions détectées pendant le transfert sont supprimées de l'acquisition car la correction des fluctuations n'est pas suffisante pour ces changements de température rapides et les variations s'écartent de la limite des petits signaux. Ces coupures sont prises en compte dans le calcul temps actif car elles le réduisent.

Le second type de rejet concerne la suppression des empilements. En effet, la fonction du temps mort reproductible permet de supprimer les empilements sur la ligne de base de l'impulsion mais elle n'empêche pas d'avoir des empilements sur la montée ou la descente. Pour rejeter ces cas d'empilements, la forme des impulsions est analysée grâce au paramètre de  $\chi^2$  de l'équation

2.7 (DT) 2.8 (DF) obtenu par l'ajustement d'une impulsion modèle à l'impulsion détectée.

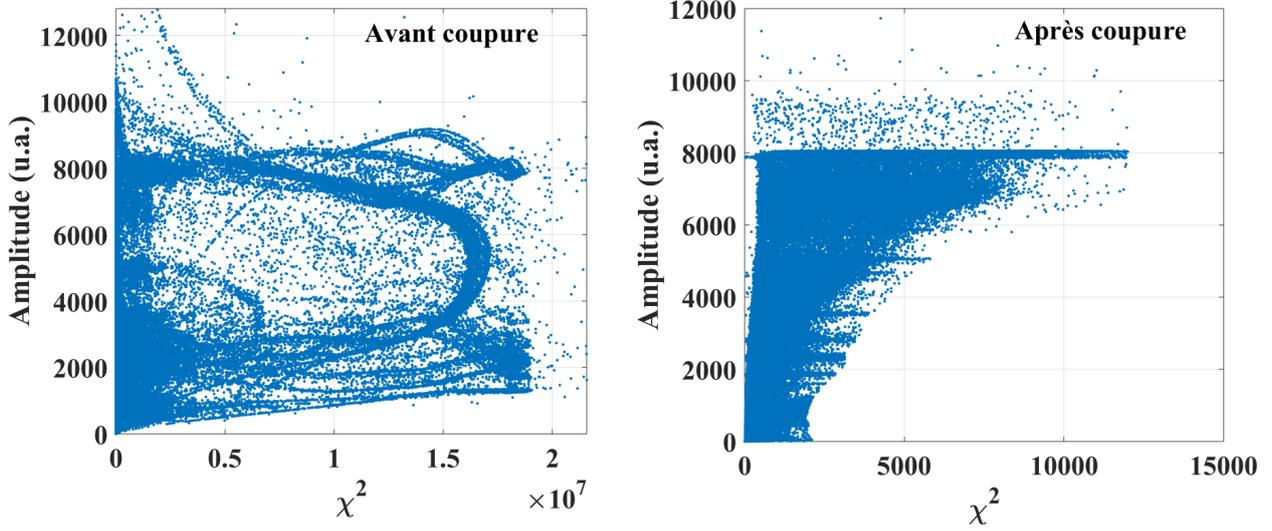


FIGURE 2.18 – Amplitude des impulsions en fonction du  $\chi^2$ .

Les impulsions dont la forme s'écarte de l'impulsion modèle ont un  $\chi^2$  élevé et correspondent majoritairement à des empilements. Les structures courbées dans le graphique (figure 2.18) représentent différents cas d'empilements. Chaque structure courbée représente les empilements de deux impulsions de deux énergies données mais pour lesquelles les temps séparant les deux impulsions diffèrent. Une coupure est effectuée sur le  $\chi^2$  afin de ne garder que les impulsions dont la forme correspond à une impulsion non-empilée et de rejeter les autres. De même que pour les coupures des impulsions durant les transferts, il faut considérer ces coupures sur le temps actif. Les impulsions empilées éliminées tombent dans le temps actif et sont donc valables.

Pour corriger le temps actif de cette coupure, le temps actif a été multiplié par la probabilité  $P_e(0)$  qu'il n'y ait pas d'empilement sur la durée de l'impulsion (temps de montée et de descente).

$$P_e(0) = e^{\frac{-1}{T_x t_{imp}}} \quad (2.11)$$

$T_x$  : taux de comptage sur la voie de mesure,

$t_{imp}$  : durée d'une impulsion. Pour l'analyse des impulsions dans le domaine temporel cette durée est égale à  $N_{DT}/2f_e$  et pour l'analyse dans le domaine fréquentiel  $t_{imp}$  est égale  $M/2f_e$ .

En suivant les étapes expliquées précédemment un spectre en énergie est obtenu pour

chaque absorbeur. À cause des différentes sensibilités des quatre pixels, les résolutions en énergie et les non-linéarités de l'amplitude des impulsions avec l'énergie (réponses en énergie) différent entre les absorbeurs. Le spectre total ne peut pas être obtenu en sommant simplement les quatre spectres. Il faut au préalable, d'une part, linéariser la réponse en énergie de chaque pixel et d'autre part, égaliser les résolutions entre les quatre pixels car la somme des gaussiennes de différents centroïdes et largeurs à mi-hauteur ne donne pas une gaussienne. Ces corrections sont illustrées à l'aide du spectre de  $^{241}\text{Am}$  (figure 2.19) dont la mesure est présentée dans le chapitre 3 .

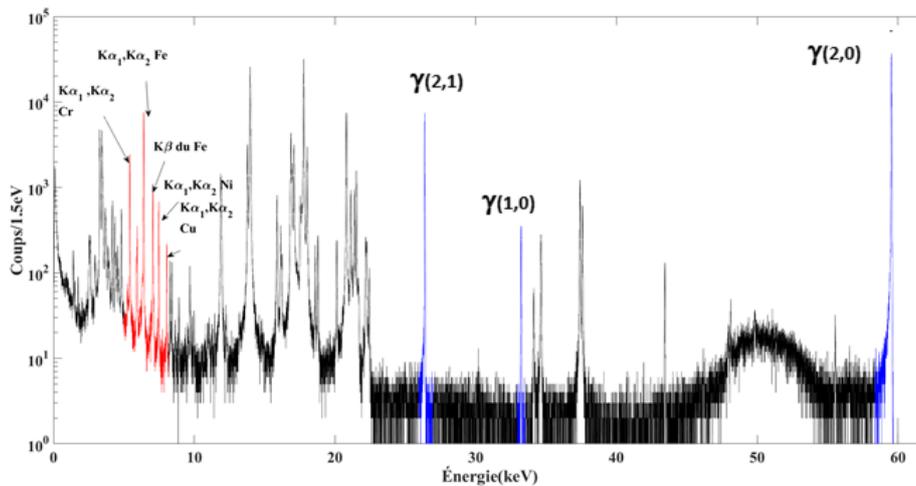


FIGURE 2.19 – Spectre d'émission photonique de  $^{241}\text{Am}$  mesuré à l'aide de SMX3.

### 2.3.4.3 Linéarisation de l'énergie

La linéarisation de l'amplitude des impulsions avec l'énergie consiste à corriger, pour chaque spectre, l'amplitude mesurée par un polynôme de second degré de sorte que la relation amplitude-énergie soit linéaire. En outre, cette étape permet d'étalonner l'échelle en énergie et d'avoir des centroïdes des raies identiques pour chaque spectre afin de les sommer. Les polynômes sont déterminés par un ajustement des énergies tabulées aux amplitudes mesurées  $Amp$ . Les matériaux constituant la géométrie du SMX3 (acier inoxydable, support en cuivre, etc.) engendrent l'apparition des raies XK caractéristiques correspondant aux Fe, Ni, Cr et Cu dans le spectre. Ainsi, les émissions  $\gamma$  de l'actinide évaluées dans la base des données éditée par le LNHB apparaissent aussi dans le spectre (figure 2.19) [12]. L'ajustement de ces raies permet de déterminer la dépendance des amplitudes en fonction de énergies tabulées. Le tableau 2.2 montre les énergies des émissions XK qui sont tabulées dans la littérature [71].

Tableau 2.2 – Énergies (en eV) et largeurs naturelles (en eV) des raies XK caractéristiques.

Raie	Énergie (eV)	largeur (eV)
$K\alpha_1$ Fe	6391,0264 (99)	1,60
$K\alpha_2$ Fe	6404,0062 (99)	2,33
$K\beta$ Fe	7058,175 (16)	2,42
$K\alpha_1$ Ni	7461,0343 (45)	1,92
$K\alpha_2$ Ni	7478,2521 (45)	2,37
$K\alpha_1$ Cu	8027,8416 (26)	2,10
$K\alpha_2$ Cu	8047,8227 (66)	2,53

La figure 2.20 montre les écarts entre les énergies mesurées et les énergies tabulées en utilisant la raie  $\gamma$  de 59,54 keV comme référence. Ces écarts ont été ajustés par un polynôme de second degré pour chaque pixel. Les coefficients des polynômes montrent que SMX3 est très linéaire.

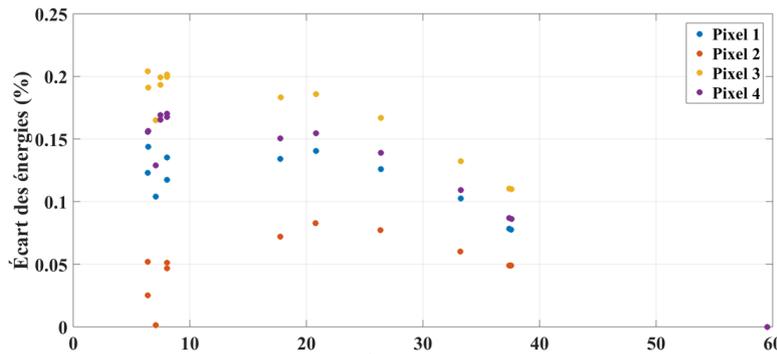


FIGURE 2.20 – Écart des énergies mesurées par rapport aux énergies tabulées.

$$\text{Pixel 1 : } E_{\text{tabulée}} = 4,1 \cdot 10^{-5} \cdot \text{Amp}^2 + 9,97 \cdot 10^{-1} \cdot \text{Amp} + 7,1 \cdot 10^{-3} \quad (2.12)$$

$$\text{Pixel 2 : } E_{\text{tabulée}} = 2,7 \cdot 10^{-5} \cdot \text{Amp}^2 + 9,98 \cdot 10^{-1} \cdot \text{Amp} + 8,6 \cdot 10^{-3} \quad (2.13)$$

$$\text{Pixel 3 : } E_{\text{tabulée}} = 5,3 \cdot 10^{-5} \cdot \text{Amp}^2 + 9,97 \cdot 10^{-1} \cdot \text{Amp} + 7,2 \cdot 10^{-3} \quad (2.14)$$

$$\text{Pixel 4 : } E_{\text{tabulée}} = 4,3 \cdot 10^{-5} \cdot \text{Amp}^2 + 9,97 \cdot 10^{-1} \cdot \text{Amp} + 5,5 \cdot 10^{-3} \quad (2.15)$$

#### 2.3.4.4 Égalisation de la résolution

Les résolutions en énergie obtenues à 26,33 keV lors de la mesure de  $^{241}\text{Am}$  sont de 29 eV, 30 eV, 34 eV et 35 eV sur chacun des spectres issus des quatre absorbeurs. Ces différences pro-

viennent, d'une part du fait que les capacités thermiques des absorbeurs diffèrent légèrement et d'autre part du bruit des SQUID qui diffère sur les deux voies également.

En plus d'être différentes entre absorbeurs, les résolutions augmentent avec l'énergie des photons. Théoriquement, la résolution en énergie est constante avec l'énergie et est égale à la résolution de la ligne de base, c'est-à-dire la résolution qui serait celle d'impulsions d'énergie zéro. Mais d'autres effets dégradent la résolution comme des dérives de température insuffisamment corrigées, la gigue sur l'arrivée des impulsions (« jitter » en anglais), ou le taux de comptage trop élevé.

Pour égaliser la résolution entre les quatre pixels, les résolutions des trois meilleurs absorbeurs sont dégradées vers celle du moins bon. Pour chaque absorbeur  $i$ , la résolution  $\sigma_i(E)$  est caractérisée sur certaines raies (les raies X du Tableau 2.2 et les raies  $\gamma$  à 26,33 keV et 59,54 keV) à différentes énergies  $E$ , puis une fonction linéaire (ou polynomiale de second degré) est ajustée pour déduire une relation  $\sigma_i(E) = y_i(E)$ . Puis la résolution en énergie  $E_{k,i}$  est dégradée en ajoutant à l'énergie mesurée  $E_{k,i}$  de chaque impulsion  $k$  de l'absorbeur  $i$  un terme  $\partial_{deg,i}(E)$  tel que l'énergie de l'impulsion  $k$  dans le spectre de résolution dégradée est donnée par :

$$E_{deg,k,i} = E_{k,i} + \partial_{deg,i}(E) \quad (2.16)$$

$\partial_{deg,i}(E)$  : est tiré aléatoirement selon une distribution gaussienne d'écart-type

$\sigma_{deg,i}^2(E) = y_j^2(E) - y_i^2(E)$ , où  $j$  est l'absorbeur de moins bonne résolution.

Une fois l'égalisation de la résolution et la correction de non-linéarité effectuées, la somme des quatre spectres est possible et permet d'obtenir le spectre total, étalonné en énergie et avec une résolution identique à celle du moins bon des quatre spectres.

## 2.4 Validation du traitement hors ligne

Le but de cette partie est de valider le traitement du signal et la fonction de temps mort reconductible présentés dans la partie 2.3. Cela revient à prouver que les traitements du signal et des données décrits ci-dessus n'introduisent pas de biais sur le résultat obtenu, en l'occurrence sur la mesure d'intensités d'émission. Pour cela, les traitements ont été appliqués à des enregistrements simulés.

Les paramètres utilisés pour générer les enregistrements sont choisis à partir de ceux mesurés sur SMX3 : taux de comptage, constantes de temps, sensibilité du détecteur, niveau et spectre de bruit, gain de la chaîne électronique, etc. Les fluctuations de température et les non-linéarités n'ont pas été introduits dans les données simulées car ils n'ont *a priori* pas de conséquence sur les résultats.

À partir d'énergies  $E_0$  et de probabilités  $P_0$  définies préalablement, des impulsions ont été générées aléatoirement à des temps d'arrivée  $t_0$  suivant la loi de Poisson et un taux de comptage de  $5 \text{ s}^{-1}$ . La forme des impulsions est décrite par la relation :

$$Amp(t) = G_{elec} \cdot E_0 \cdot (e^{-(t-t_0)/\tau_1} - e^{-(t-t_0)/\tau_0}) \quad (2.17)$$

$G_{elec}$  : facteur de conversion entre l'énergie déposée (eV) et l'amplitude du signal (V) enregistré, il inclut la sensibilité du détecteur et le gain de la chaîne électronique.

$\tau_0$  : temps de montée,

$\tau_1$  : temps de descente,

$E_0$  : l'énergie déposée dans le détecteur,

$t_0$  : l'instant d'arrivée de l'impulsion.

Une fois les impulsions générées, il faut ajouter le bruit qui est créé en tenant compte de la contribution du bruit blanc, du bruit  $1/f$  et du bruit causé par les fluctuations thermodynamiques. Le traitement sera validé si les probabilités d'émission  $P_s$  déterminées à partir du spectre issu du traitement sont en accord avec les probabilités  $P_0$  utilisées pour simuler l'enregistrement.

Tout d'abord, il a été vérifié que la fonction de temps mort supprime les empilements sur la ligne de base des impulsions, en vérifiant la distribution de valeurs moyennes quadratiques (RMS « root mean square ») des lignes de base avant et après application du temps mort (figure 2.21).

La figure 2.21.b montre qu'après l'application de la fonction de temps mort, la distribution est proche d'une gaussienne alors que sur la figure 2.21.a la distribution est perturbée par les empilements. La fonction de temps mort supprime donc efficacement les empilements des impulsions.

Dans le domaine temporel (DT) les impulsions ont été analysées sur une durée de 1,6 ms, ce qui apporte une correction de 0,3% sur le temps actif. Dans le domaine fréquentiel (DF) elles ont une durée de 26 ms, correspondant à une correction de 6,3% sur le temps actif.

Les résultats des deux types de traitement, domaine temporel et domaine fréquentiel, utilisés pour analyser le signal simulé sont présentés dans le tableau 2.3. Comme attendu, le filtrage optimal permet d'avoir la meilleure résolution de 18,25 eV. Néanmoins elle reste proche de la résolution obtenue dans le DT (21,6 eV). Les traitements ne dégradent pas les résolutions en fonction de l'énergie puisqu'elles sont identiques entre 4 keV et 100 keV. Il a été constaté également que les traitements n'entraînent pas de non-linéarité (tableau 2.3). Les énergies qui résultent du traitement correspondent aux énergies utilisées dans la simulation.

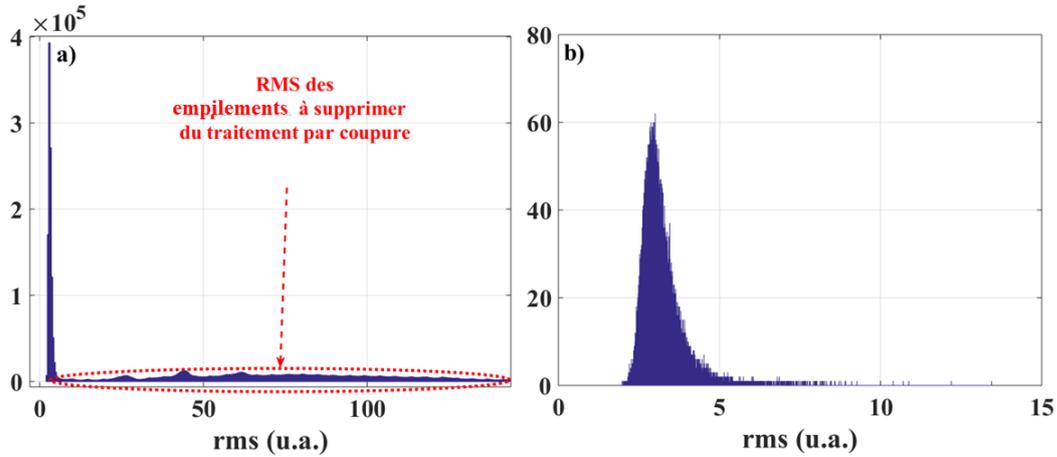


FIGURE 2.21 – Histogramme des moyennes quadratiques (a) Histogramme des moyennes quadratiques des lignes de base (RMS) sans application du temps mort. (b) Histogramme des moyennes quadratiques des lignes de base (RMS) avec une distribution proche d’une gaussienne après l’application du temps mort.

Tableau 2.3 – Tableau comparatif des énergies, et probabilités obtenues par le traitement hors ligne et celles attendues. Écart : écart entre la probabilité attendue et la probabilité obtenue par le traitement.

Énergie (eV)			Résolution (eV)		Probabilité			Écart (%)	
Attendu	DT	DF	DT	DF	Attendu	DT	DF	DT	DF
4000	3999,7	3999,8	21,62	18,36	0,25	0,2491(8)	0,2488(9)	0,36	0,48
15000	14999,9	14999,9	21,56	18,32	0,25	0,2492(8)	0,2492(9)	0,32	0,32
50000	49999,9	50000,0	21,53	18,25	0,25	0,2493(8)	0,2499(9)	0,28	0,08
100000	100000,0	100000,0	21,63	18,44	0,25	0,2498(8)	0,2506(9)	0,08	-0,24

Les probabilités issues des traitements DF et DT sont équivalentes et sont en accord aux incertitudes près avec celles utilisées pour simuler l’enregistrement. L’incertitude de 0,32% associée aux probabilités DT et DF provient seulement de l’incertitude statistique sur le nombre d’événements dans les pics. Donc, le traitement hors ligne utilisé ne distord pas le spectre en énergie, il supprime efficacement les empilements et il permet d’estimer le temps actif. Ce traitement peut être donc utilisé pour déterminer les intensités des émissions en dessous de 100 keV.



### 3.1 Introduction

Le but de cette thèse est de déterminer les intensités des photons X et  $\gamma$  des actinides dont l'énergie est en dessous de 100 keV. Pour cela, il faut connaître précisément le rendement d'absorption totale  $\epsilon_{abs}$  du détecteur, car intensité et rendement sont liés (équation 1.1). Il existe différentes méthodes pour connaître le rendement d'un détecteur :

- (a) Description du rendement par une formule analytique [72–75],
- (b) étalonnage du détecteur par la mesure de sources étalons [76–79],
- (c) étalonnage par la simulation Monte Carlo du détecteur avec des codes d'interaction rayonnement-matière [80–82].

La première méthode a l'avantage d'être simple, l'incertitude dépend de la caractérisation des dimensions de la géométrie de détection (source, collimateur, détecteur...) et des approximations pour mener le calcul analytique. Ces approximations portent sur le calcul de l'angle solide et sur le calcul de l'énergie déposée à partir des sections efficaces d'interaction. Mais, il est difficile de tenir compte précisément des interactions multiples contribuant à l'absorption totale de l'énergie ou des échappements de particules diminuant le rendement. Cette méthode est intéressante pour des détecteurs dont le volume correspond au volume actif de détection comme des scintillateurs solides ou des détecteurs thermiques cryogéniques, mais elle s'avère ardue pour des détecteurs semi-conducteurs pour lesquels les zones actives et la zone morte sont mal définies.

Pour le détecteur SMX3, l'utilisation d'un absorbeur bi-couche complique le calcul analytique, puisqu'il faut tenir compte et combiner les interactions dans deux matériaux différents.

En outre, la précision de la caractérisation de la géométrie de détection de SMX3 peut être impactée par les incertitudes relatives importantes sur les petites dimensions des absorbeurs.

La seconde méthode, la plus couramment utilisée en métrologie des rayonnements ionisants, consiste à mesurer des sources de photons dont les intensités sont bien connues : "sources étalons" [76]. Le rendement mesuré aux énergies des photons émis par la source est déterminé à partir de l'équation 3.1.

$$\epsilon_{abs} = \frac{N(E)}{I(E) \cdot \Delta t \cdot A} \quad (3.1)$$

où,  $\epsilon_{abs}$  : le rendement d'absorption totale,

$N(E)$  : nombre de photons absorbés dans le pic d'absorption totale,

$I(E)$  : intensité absolue de la raie émise à l'énergie  $E$  [photon/désintégration],

$\Delta t$  : temps actif de l'acquisition [s],

$A$  : activité de la source [Bq].

Le rendement étant déterminé à des énergies discrètes, une méthode d'interpolation doit être utilisée entre les points mesurés afin d'obtenir une courbe de rendement continue. L'incertitude va donc dépendre d'une part, des caractéristiques des sources étalons (incertitudes sur les activités et sur les intensités d'émission) et d'autre part, de l'interpolation entre les points. Plus le rendement possède de points d'étalonnage répartis, meilleure est l'interpolation, néanmoins cela dépend des sources étalons disponibles et des énergies d'émission des photons. Le rendement présente de brusques variations autour des discontinuités K ou L des matériaux, et le nombre de radionucléides disponibles pour des sources étalons est limité.

Donc, le rendement en dessous de 100 keV est difficile à caractériser. Cette méthode reste la plus fiable pour étalonner le rendement des détecteurs conventionnels (elle donne une incertitude de 1% à 2% entre 12 keV et 120 keV [76]).

La mise en œuvre de cette méthode pour étalonner le détecteur SMX3 s'avère coûteuse en temps et financièrement, car mesurer par exemple 6 sources étalons nécessiterait 39 semaines et près de 3900 L d'hélium liquide, à environ 10 euros le litre. De plus, la partie 2.1.2 du chapitre 2, montre que le rendement intrinsèque de SMX3 présente une discontinuité liée à la couche atomique K de l'argent de l'absorbeur, et une interpolation des points d'étalonnage expérimentaux ne peut pas correctement décrire cette discontinuité.

La troisième méthode consiste à déterminer le rendement de détection à l'aide de code de simulations Monte Carlo interaction rayonnement-matière. Comme pour la première méthode, celle-ci demande une connaissance précise des dimensions de la géométrie de détection, en outre l'incertitude dépend des paramètres fondamentaux atomiques liés aux sections efficaces d'inter-

action et aux processus de relaxation atomiques. Si les incertitudes sur la géométrie ne limitent pas le rendement simulé, cette méthode permet de reproduire fidèlement les variations du rendement et en particulier les discontinuités ; ce qui n'est pas le cas des autres méthodes.

Les dimensions de la géométrie de détection du SMX3 ont été caractérisées avec deux dispositifs de mesure :

- le premier, appelé colonne Roch, est une machine électro-mécanique de précision permettant de mesurer des distances avec une résolution de  $2 \mu\text{m}$ .
- le deuxième est une machine de mesure par analyse d'images (machine de vision : *Quick scope-Mitutoyo*).

La distance entre la source et le détecteur a été caractérisée à l'aide de la colonne Roch et est égale à  $16,059 (6) \text{ mm}$ . L'aire du trou de collimateur est caractérisée à l'aide de la machine de vision quick scope et est égale à  $2,60 \text{ mm}^2$ . L'épaisseur de la fenêtre en béryllium est de  $42,97 (7) \mu\text{m}$  en mesurant sa masse à l'aide d'un micro balance, en connaissant la densité volumique et l'aire mesurée à l'aide de la machine de vision.

La probabilité d'absorption peut être calculée avec la loi de Beer-Lambert ; une incertitude de  $1 \mu\text{m}$  sur les épaisseurs des couches or et argent engendre une incertitude de 5% sur la probabilité d'absorption. D'après ces incertitudes sur les dimensions, le rendement ne pourra pas être connu à mieux que 5% s'il est déterminé uniquement par simulation Monte Carlo. C'est pourquoi, pour étalonner le rendement de SMX3, il faut utiliser une autre méthodologie qui consiste à combiner la mesure d'une seule source étalon avec des simulations Monte Carlo. Le rendement mesuré permet d'avoir, aux énergies des photons émis par la source, une référence qui doit être reproduite par le rendement simulé en adaptant les dimensions de la géométrie de détection. Une fois la géométrie définie, une courbe de rendement pourra être établie sur toute la gamme en énergie en dessous de 100 keV par simulation Monte Carlo.

## 3.2 Détermination du rendement d'absorption totale

Le détecteur de SMX3 est étalonné expérimentalement en rendement avec une seule source étalon, il faut donc choisir la source la plus appropriée, ayant de faibles incertitudes sur les intensités d'émission et couvrant au mieux la gamme en dessous de 100 keV. Le tableau 3.1 montre les radionucléides classiquement utilisés pour étalonner les détecteurs à semi-conducteur sur cette gamme d'énergie.

Tableau 3.1 – Radionucléides et énergies disponibles pour la détermination des rendements [12].

Radionucléide	$E$ (keV)	Intensité pour 100 désintégrations
$^{241}\text{Am}$	11,89	0,844 (9)
$^{241}\text{Am}$	13,85	13,02 (10)
$^{57}\text{Co}$	14,410	9,18 (12)
$^{241}\text{Am}$	17,776	18,58 (13)
$^{241}\text{Am}$	21,010	4,83 (3)
$^{109}\text{Cd}$	22,163	55,1 (5)
$^{109}\text{Cd}$	25,456	2,65 (10)
$^{109}\text{Cd}$	25,512	
$^{241}\text{Am}$	26,344	2,31 (8)
$^{133}\text{Ba}$	30,973	62,4 (7)
$^{137}\text{Cs}$	32,193	3,59 (7)
$^{133}\text{Ba}$	34,919	
$^{133}\text{Ba}$	34,987	18,24 (29)
$^{133}\text{Ba}$	35,252	
$^{133}\text{Ba}$	35,822	
$^{133}\text{Ba}$	35,907	4,45 (12)
$^{133}\text{Ba}$	35,972	
$^{137}\text{Cs}$	36,304	
$^{137}\text{Cs}$	36,378	1,055 (22)
$^{137}\text{Cs}$	36,654	
$^{152}\text{Eu}$	39,654	20,8 (3)
$^{152}\text{Eu}$	40,118	37,7 (5)
$^{152}\text{Eu}$	45,413	11,79 (19)
$^{152}\text{Eu}$	46,705	3,04 (8)
$^{133}\text{Ba}$	53,162	2,14 (6)
$^{241}\text{Am}$	59,540	35,92 (17)
$^{133}\text{Ba}$	79,614	2,63 (19)
$^{133}\text{Ba}$	80,997	33,31 (30)
$^{109}\text{Cd}$	88,030	3,66 (5)

Les deux radionucléides intéressants sont  $^{241}\text{Am}$  et  $^{133}\text{Ba}$ , mais ce dernier ne possède pas de raies en dessous de 25 keV capables d'étalonner le rendement dans la région XL des actinides, alors que  $^{241}\text{Am}$  possède des intensités de groupes XL bien connues ainsi que des émissions  $\gamma$  inférieures à 100 keV [40, 42, 47, 72]. Le rendement du détecteur SMX3 a donc été étalonné par une source  $^{241}\text{Am}$ .

Le tableau 3.2 détaille les énergies et les intensités des photons XL et  $\gamma$  émis lors de la désintégration  $^{241}\text{Am}$  utilisées pour l'étalonnage ; son schéma de désintégration a été discuté dans le chapitre 1.

Tableau 3.2 – Intensités d’émission des groupes XL et des photons  $\gamma$  de  $^{241}\text{Am}$  [12]

	Énergie (keV)	Intensité /100 désintégrations
$L\iota$	11,89	0,844 (9)
$L\alpha$	13,76-13,944	13,02 (10)
$L\eta$	15,876	0,384 (20)
$L\beta$	16,13-17,79	18,58 (13)
$L\gamma$	20,12-22,2	4,83 (3)
$\gamma_{(2,1)}$	26,3446 (2)	2,31 (8)
$\gamma_{(1,0)}$	33,1963 (3)	0,1215 (28)
$\gamma_{(4,2)}$	43,420 (3)	0,0669 (29)
$\gamma_{(2,0)}$	59,5409 (1)	35,92 (17)

La source de  $^{241}\text{Am}$  a été préparée par électroprécipitation sur un support en acier inoxydable (figure 3.1), dont l’activité est déterminée par la méthode primaire d’Angle Solide Défini (ASD) : 32,471(41) kBq au 28/07/2016 à 12h:00 TU.

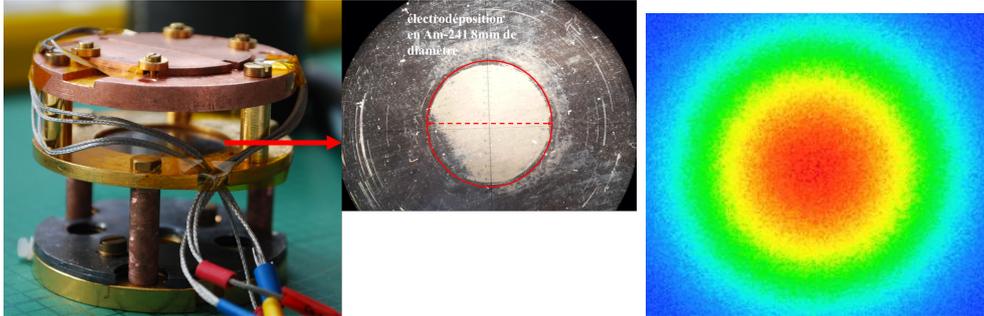


FIGURE 3.1 – Source étalon d’ $^{241}\text{Am}$  électroprécipitée et montage de la source installée face à SMX3. Radiographie de l’homogénéité de l’activité de la source de diamètre=8 mm  $A = 32,471(41)$  kBq

La source a été placée dans le support du détecteur face à SMX3 et son collimateur. Cet ensemble a été refroidi à une température de 11 mK à l’aide du réfrigérateur à dilution du LNHB. Avec un facteur de géométrie de  $\frac{\Omega}{4\pi} = 7,70 \cdot 10^{-4}$  calculé analytiquement, l’activité de la source et les intensités d’émission du tableau 3.2, le taux de comptage attendu est de 10 photons/s ( $\sim 2,5 \text{ s}^{-1}/\text{pixel}$ ). Les données ont été enregistrées pendant 10 jours pour atteindre une statistique de 8,5 millions de photons dans la gamme d’énergie des XL.

La fréquence d’échantillonnage est de 250 kHz avec un filtrage passe-bande de SRS SR560 entre 0,3 Hz et 100 kHz. Le filtre passe-haut est utilisé pour s’assurer que la ligne de base et les impulsions restent comprises entre les tensions limites de l’amplificateur SRS et de la carte d’acquisition, soit respectivement  $\pm 4$  V. Le filtre passe-bas est un filtre anti-repliement de

spectre.

### 3.3 Obtention du spectre de $^{241}\text{Am}$

Le traitement de l'acquisition va permettre de déterminer le temps actif  $\Delta t$  et les énergies des impulsions pour construire le spectre en énergie. Ce dernier est ensuite ajusté avec différentes fonctions pour extraire les surfaces des pics d'absorption totale qui correspondent au nombre des photons dans le pic d'absorption totale  $N(E)$ . Les différentes étapes de traitement des données enregistrées ont été décrites dans le chapitre 2. Ce traitement est adapté aux conditions particulières de l'acquisition pour obtenir la meilleure résolution et conserver une statistique de comptage importante dans le spectre. Dans le traitement évoqué dans le chapitre 2, l'énergie des impulsions peut être déterminée par l'ajustement par d'une impulsion modèle dans le domaine temporel DT ou après un filtrage optimal dans le domaine fréquentiel (DF). Les deux traitement donnent des résolutions similaires à 59,54 keV de 35,3 eV et 36,1 eV respectivement pour le DT et le DF.

Les pourcentages de temps mort sont de 15,9% et 23,9%. Le traitement dans le DT a été retenu, car à résolution équivalente, les impulsions ont été analysées sur une fenêtre de 256 échantillons soit 1,06 ms contre 4096 échantillons (16,3 ms) pour l'analyse en DF, par conséquent la probabilité d'empilement à rejeter est 7,8 % en DF contre seulement 0,5 % en DT.

La moins bonne résolution en énergie dans le DF peut s'expliquer par l'utilisation d'un passe-haut sur l'amplificateur SRS SR560. Bien que la fréquence de coupure soit faible par rapport à la constante de temps de descente, le passe-haut engendre des "undershoots"<sup>1</sup> notables sur les impulsions de 59,54 keV. Ces undershoots peuvent être vus comme des fluctuations de la ligne de base et comme une source de bruit basse fréquence non-stationnaire qui n'est pas prise en compte dans le spectre de bruit moyen utilisé pour créer le filtre optimal. Ce dernier n'est donc plus optimal pour certaines impulsions se présentant avec un undershoot.

Pour supprimer les empilements entre les impulsions et les undershoots, il faudrait une fenêtre de temps mort  $\sim 17$  fois plus longue que la durée d'une fenêtre imposée par l'impulsion sans undershoot, ce qui diminuerait la statistique de comptage pour gagner seulement quelques eV sur la résolution en énergie. Par conséquent, les acquisitions des mesures d'actinides qui ont suivies n'ont pas utilisé de filtrage passe-haut du SRS SR560.

La proportion de temps actif a été déterminée grâce à la fonction numérique du temps mort

---

1. Une partie de l'impulsion descend en dessous du niveau de la ligne de base avant qu'elle revien à zéro

reconductible appliquée sur les positions des impulsions dans l'acquisition comme le montre le chapitre 2. Les temps actifs des deux voies d'acquisition sont de  $6,88 \cdot 10^5$  s et  $6,99 \cdot 10^5$  s et le taux de comptage global est de  $12,75 \text{ s}^{-1}$ , soit  $3,16 \text{ s}^{-1}$ ;  $3,06 \text{ s}^{-1}$   $3,48 \text{ s}^{-1}$  et  $3,05 \text{ s}^{-1}$  pour chacun des pixels.

Ensuite, les empilements sur la descente des impulsions ont été supprimés et corrigés sur le temps actif. La méthode d'analyse de l'énergie étant basée sur une impulsion moyenne de 1,06 ms dans le domaine temporel, la probabilité d'empilement n'est que de 0,5%, ce qui revient à une correction du temps actif de 99,5 %. Pour obtenir le spectre total, la réponse en énergie de chacun des pixels a été linéarisée, et les résolutions des trois meilleurs pixels ont été adaptées à la moins bonne résolution dont la dépendance en énergie pour chaque voie est donnée par :

$$\text{Voie 1 : } FWHM = 2,35 \cdot (1,56 \cdot 10^{-9} \cdot E^2 + 1,72 \cdot 10^{-5} \cdot E + 13,99) \quad (3.2)$$

$$\text{Voie 2 : } FWHM = 2,35 \cdot (7,99 \cdot 10^{-11} \cdot E^2 + 5,05 \cdot 10^{-5} \cdot E + 11,86) \quad (3.3)$$

Comme le montre le chapitre 2, les raies utilisées pour la linéarisation et l'égalisation des résolutions des spectres des pixels sont les raies de fluorescences  $K\alpha_1$  et  $K\alpha_2$  du Fe,  $K\beta$  du Fe,  $K\alpha_1$  et  $K\alpha_2$  du Cu,  $K\alpha_1$  et  $K\alpha_2$  du Ni, les raies  $\gamma$  présentées dans le tableau 3.2 et les raies d'échappement à 37 keV.

La figure 3.2 montre le spectre final dont les différentes composantes sont les suivantes :

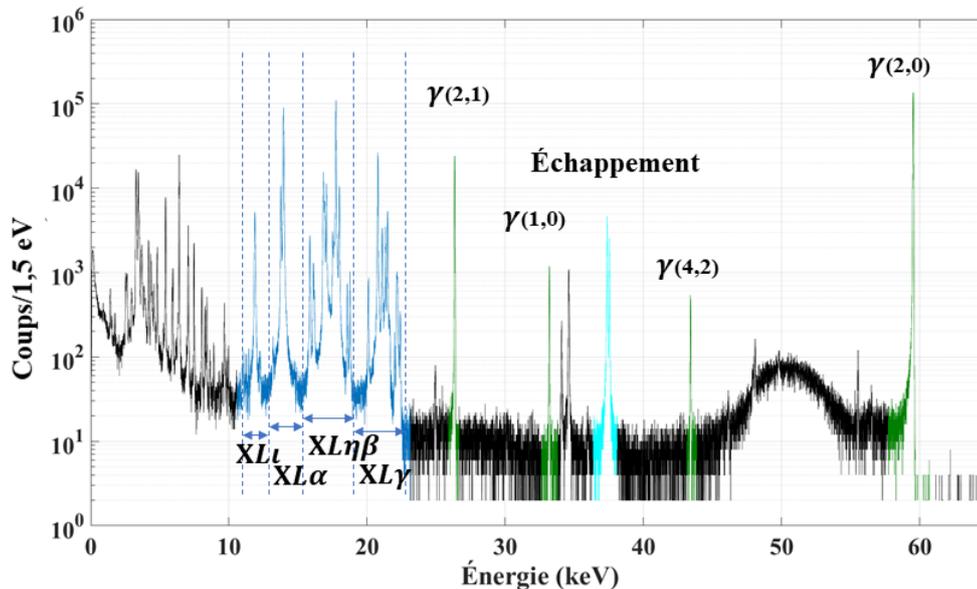


FIGURE 3.2 – Spectre en énergie des photons émis par la source étalon  $^{241}\text{Am}$  avec une résolution de 29,8 eV à 26,3 keV.

**Entre 3 keV et 5 keV** : raies XM émises par  $^{241}\text{Am}$ ,

**Entre 5,4 keV et 8 keV** : raies X émises par le support en acier inoxydable excité par les particules  $\alpha$ ,

**Entre 12 keV et 21 keV** : raies XL émises par  $^{241}\text{Am}$ ,

**Entre 26,3 keV et 59,54 keV** :

- la raies  $\gamma$  de  $^{241}\text{Am}$  (Tab.3.2),
- les raies d'échappement du 59,54 keV à 37,3 keV et 37,5 keV respectivement données par les échappements  $K\alpha_1$  et  $K\alpha_2$  de l'argent,
- Entre 45 keV et 55 keV, le fond Compton dû à la rétro-diffusion des photons de 59,54 keV dans le support en acier inoxydable.

Les différents pics identifiés ont été ajustées pour déduire les nombres de photons dans les pics d'absorption totale  $N(E)$  des régions XL et  $\gamma$  utilisés pour l'étalonnage.

### 3.3.1 Analyse du spectre de $^{241}\text{Am}$

Cette partie montre comment le spectre a été ajusté en utilisant le code Colegram [83] développé par le LNHB afin de déterminer la surface des pics. Les groupes XL ( $L\iota$ ,  $L\alpha$ ,  $L\eta\beta$ ,  $L\gamma$ ) et les émissions  $\gamma$  ont été ajustés indépendamment en différentes régions d'intérêt. L'analyse du spectre permet d'obtenir le nombre de photons absorbés dans ces régions afin d'étalonner le rendement à leurs énergies. Chaque voie d'acquisition a son propre temps actif, donc le nombre de photons issu de l'ajustement d'un spectre total en sommant les quatre spectres ne prend pas en compte le dénominateur de l'équation 3.1 qui diffère entre les voies. Donc, dans ce cas un spectre est obtenu par voie et est ajusté séparément.

Le chapitre 1 montre que naturellement les états excités des niveaux nucléaires possèdent une durée de vie plus longue que celle des états excités des niveaux du cortège électronique. Cela est traduit par des largeurs naturelles plus grandes dans le cas des émissions X par rapport aux émissions  $\gamma$ . Une fonction de Voigt  $V(E)$  (le produit de convolution d'une fonction de Lorentz et d'une fonction de Gauss) est utilisée pour ajuster une raie X et une fonction de Gauss dans le cas d'une émission  $\gamma$  (équations 3.4 et 3.5). La largeur à mi-hauteur de la lorentzienne  $\Gamma$  utilisée pour l'ajustement d'une raie X correspond à la largeur naturelle de la raie en question recommandée par Campbell en 2001 [22].

$$V(E) = \int_{-\infty}^{+\infty} L(E')G(E - E')dE' \quad (3.4)$$

où,

$G(E - E')$  est la fonction de Gauss (gaussienne)

$L(E')$  est la fonction lorentzienne donnée par :

$$L(E') = \frac{\Gamma/2\pi}{(E - E')^2 + (\Gamma/2)^2} \quad (3.5)$$

$\Gamma$  : la largeur de la lorentzienne de la raie à l'énergie  $E$  .

### 3.3.1.1 Analyse des raies $\gamma$ et XL

Les raies  $\gamma$  et groupes de raies XL du tableau 3.2 ont été utilisés pour l'étalonnage du rendement par ajustement à l'aide du logiciel Colegram [83]. Les raies  $\gamma$  de 26,334 et 59,54 keV ont été ajustées avec une gaussienne et une traîne à gauche. La surface de la traîne relative au pic diminue avec l'énergie des photons (figures 3.3 et 3.4). L'origine de cette traîne n'a pas pu être clairement identifiée. Une hypothèse étudiée est que la traîne serait causée par la diffusion Compton des photons incidents dans la fenêtre de Be vers le détecteur. Avec un angle de diffusion proche de  $0^\circ$ , l'énergie du photon diffusé est alors proche du photon incident engendrant une traîne comme observée dans le spectre.

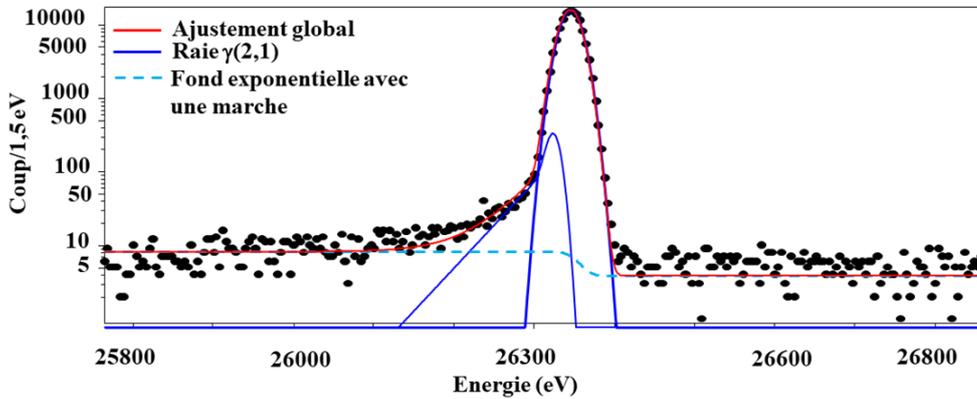


FIGURE 3.3 – Raie  $\gamma$  émise à 26,334 keV ajustée avec une gaussienne et une traîne à gauche.

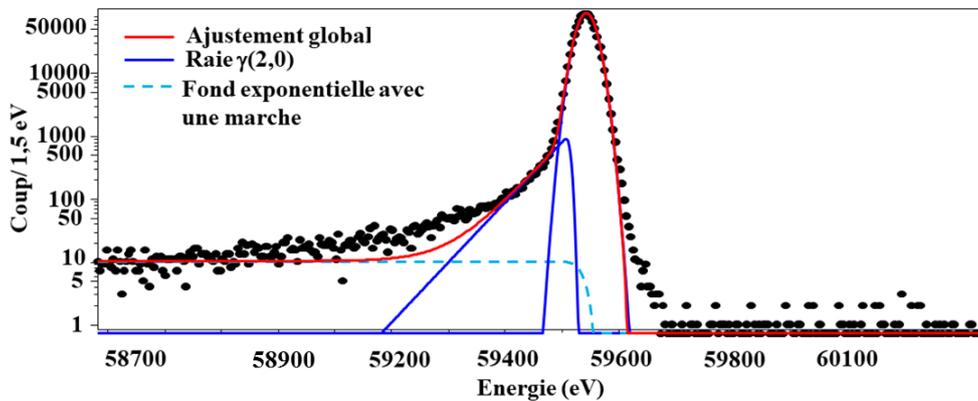


FIGURE 3.4 – Raie  $\gamma$  émise à 59,54 keV ajustée avec une gaussienne et une traîne à gauche.

Cette hypothèse serait confortée par le fait que la surface de la traîne augmente avec l'énergie des photons (elle correspond à 0,5 % de la surface de la gaussienne à 26,34 keV et à 1,4 % à 59,54 keV), ce qui correspond à la même tendance que celle des sections efficaces d'interaction, puisque le rapport entre les sections efficaces Compton et photoélectrique augmente avec l'énergie des photons. Néanmoins, des simulations Monte Carlo du pic  $\gamma$  de 59,54 keV ont montré que la surface de la traîne générée par diffusion Compton par rapport au pic d'absorption totale est très inférieure à celle mesurée. Une autre explication de la traîne attribue son origine à des interactions de photons dans le substrat en silicium sous le senseur [84]. Ce type d'événement ne présente pas d'anomalie sur la ligne de base des impulsions, c'est-à-dire qu'il n'est pas identifiable comme un empilement, mais il entraîne une élévation de température dans le substrat auquel est couplé le senseur, et par la même occasion modifie les conductances thermiques du système et la forme des impulsions. La traîne est moins visible à 26,3 keV, elle se trouve intégrée à la résolution instrumentale comme le montre la figure 3.3.

Afin de prendre en compte le fond Compton dans la présence d'une traîne à gauche, une fonction exponentielle est combinée avec une marche dont la largeur est fixée à la résolution de la raie  $\gamma$  (figures 3.3 et 3.4). La largeur de la marche se rétrécit en fonction de l'énergie, la traîne s'intègre dans la gaussienne. Dans les régions XL le fond Compton est ajusté à l'aide d'une fonction exponentielle (figures 3.5 et 3.6).

Les raies XL ont été ajustées par des fonctions de Voigt (équation 3.4), la traîne n'a pas été considérée dans l'ajustement (figures 3.5 et 3.6). Cette approximation semble être sans conséquence sur l'ajustement car les résidus, entre l'ajustement et le spectre, ne montrent pas de structures pouvant être attribuées aux traînes.

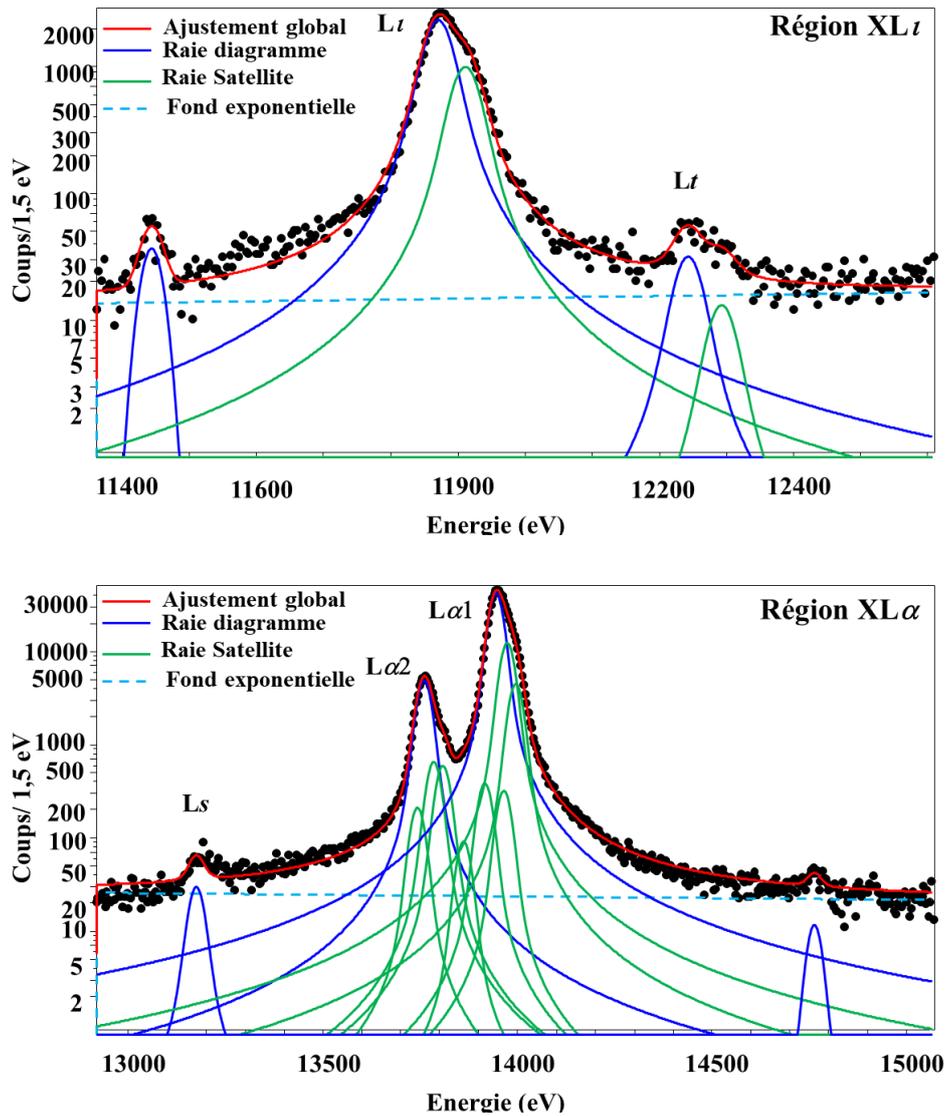


FIGURE 3.5 – Région des rayons  $XL_t, XL_\alpha$  émis suite à la désintégration de l'Am-241. (Bleu) Les transitions diagrammes sont ajustées par des fonctions de Voigt. (Vert) transition satellite.

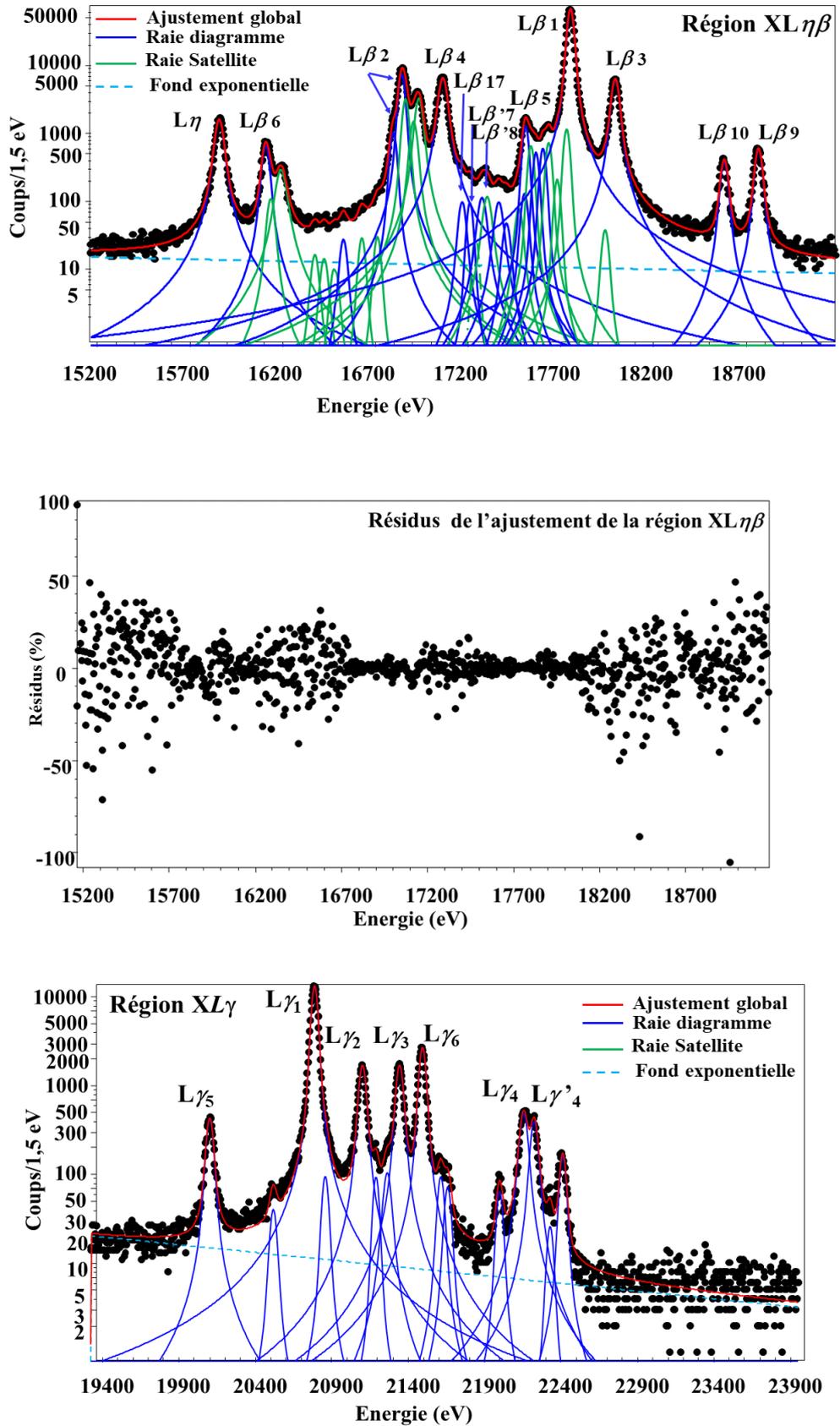


FIGURE 3.6 – Région des groupes XL $\eta\beta$  et XL $\gamma$  émis par le Np-237 suite à la désintégration de Am-241. (Bleu) Les transitions diagrammes sont ajustées par des fonction de Voigt. (Vert) structures satellites.

Les fonctions de Voigt étant plus larges que les gaussiennes, les traînes sont complètement intégrées aux fonctions de Voigt. En ce qui concerne les valeurs des largeurs des gaussiennes et des positions des pics, pour les raies les plus intenses et relativement isolées (par exemple les raies  $L\beta_1$  et  $L\eta$ ), elles ont été laissées libres ; pour les raies peu intenses ou intriquées, ces valeurs ont été fixées pour obtenir une convergence physiquement réaliste de l'ajustement. Les valeurs des largeurs des gaussiennes sont calculées et fixées à partir du polynôme décrit ci-dessus (équation 3.3). Les positions des pics sont fixées par les énergies de liaison des électrons [85].

### 3.3.1.2 Analyses des pics $XL_3$

L'ajustement des raies  $XL_3$  (les transitions  $L_3-Y_j$ ) n'est pas possible avec une seule fonction de Voigt par transition. Tous les pics  $XL_3$  montrent un épaulement (par exemple :  $L\alpha_1$  et  $L\alpha_2$  figure 3.5), et parfois un pic supplémentaire (par exemple  $L\beta_2$  et  $L\beta_6$  figure 3.6) à droite du pic diagramme. Ces structures ont été attribuées à des raies satellites car il ne peut pas s'agir d'un artefact de la réponse du détecteur n'apparaissant que sur les raies  $XL_3$ . Les raies satellites correspondent à l'émission de photons X par un atome multi-ionisé, c'est à dire possédant au moins deux lacune dont l'une est dite spectatrice au cours de la transition. Au regard du décalage en énergie entre la raie diagramme et les raies satellites, entre 53 eV pour  $L\alpha_1$  et 81 eV pour la  $L\beta_2$ , et d'après la référence [86], les lacunes spectatrices sont situées dans la sous-couche M. Suite à la création des lacunes primaires par la conversion interne, l'atome peut être de nouveau ionisé ou par des transitions non-radiatives Auger et Coster-Kronig, l'atome est alors ionisé deux fois.

Dans le cas où des processus de shake-off surviendraient après la conversion interne [87,88] ou la désintégration  $\alpha$  [89], les probabilités de ce processus sont très faibles. Elles sont au maximum de l'ordre du pourcent, et ceci quels que soient les radionucléides mentionnés et les sous-couches ionisées. Ces faibles probabilités ne peuvent pas expliquer l'importance des surfaces observées<sup>2</sup>, des structures satellites qui représentent près de 20% à 40% de la surface totale de la raie. De plus, la probabilité d'ionisation est pratiquement identique pour les sous-couches d'une même couche. Dans ce cas l'observation des satellites sur toutes les raies XL serait attendue et non seulement sur les raies  $XL_3$ . La production d'atomes multi-ionisés par shake-off est donc marginale et ne permet pas d'expliquer les structures satellites observées.

Pour que les transitions non-radiatives Auger produisent des atomes avec des lacunes multiples dont une en couche L, il faudrait des transitions Auger de type K-LY (avec  $Y=L,M,N,O,P$ ),

---

2. Il est très difficile de distinguer complètement les raies satellites de la raie diagramme car les décalages en énergie peuvent être très faibles par rapport à la largeur de la Voigt. En particulier les raies satellites en présence d'une lacune spectatrice située sur une sous-couche électronique moins liée, entraînent un faible décalage en énergie [86]

et donc que la lacune primaire soit produite en couche K. Or, les lacunes primaires en K sont de 0,004 pour 100 désintégrations contre environ 70 pour les lacunes primaires en L. Ce mode de production de lacunes multiples est donc également marginal.

Les transitions non-radiatives Coster-Kronig (CK) peuvent produire une lacune supplémentaire. En plus de la lacune primaire en L, via les transitions  $L_1-L_2Y$ ,  $L_1-L_3Y$ , et  $L_2-L_3Y$  ( $Y=M,N,O,P$ ). Par conséquent, les vacances multiples sont situées en  $L_2Y$  et  $L_3Y$ , il n'y a pas de vacances multiples situés  $L_1Y$  et donc il n'y a pas de raies satellites associées aux raies  $XL_1$ , ce qui est effectivement observé sur le spectre mesuré. À partir des probabilités de transitions  $\gamma$  [12], des coefficients de conversion internes (c.f. chapitre 1), et des probabilités de transitions CK ( $f_{12}=0,03$  (15),  $f_{13}=0,68$  (10),  $f_{23}=0,222$  (11)) la distribution des lacunes primaires  $N_p$  pour 100 désintégrations est la suivante :

$$N_p(L_1) = 24,1 \quad (3.6)$$

$$N_p(L_2) = 33,0 \quad (3.7)$$

$$N_p(L_3) = 12,8 \quad (3.8)$$

Suite aux transitions CK, la distribution des lacunes primaires devient :

$$V_p(L_1) = 28,0 \quad (3.9)$$

$$V_p(L_2) = 34,8 \quad (3.10)$$

$$V_p(L_3) = 36,3 \quad (3.11)$$

Il est facile de calculer la proportion d'atomes multi-ionisés par les transitions CK. Cette proportion pour  $L_2$  est de :

$$P_{L_2L_3} = \frac{f_{12} \cdot N_p(L_1)}{f_{12} \cdot N_p(L_1) + N_p(L_2)} = 2,1 \% \quad (3.12)$$

et pour  $L_3$  :

$$P_{L_iL_3} = \frac{f_{23} \cdot N_p(L_2) + (f_{13} + f_{12} \cdot f_{23}) \cdot N_p(L_1)}{N_p(L_3) + f_{23} \cdot N_p(L_2) + (f_{13} + f_{12} \cdot f_{23}) \cdot N_p(L_1)} = 61,9\%. \quad (3.13)$$

La proportion  $P_{L_iL_3}$  est plus grande que celle observée de 29,1 % sur la  $L\alpha_1$  et de 46,1% sur  $L\beta_6$ . Mais comme dit ci-dessus et d'après Parente [86], seule les raies satellites avec une lacune spectatrice en M sont clairement visibles. En utilisant les probabilités des transitions CK [90], il est possible d'estimer la proportion de vacances multiples de type  $L_3-M$ . Elle représente 27% de l'ensemble des lacunes M, ce qui est cohérent avec les proportions mesurées. Concer-

nant les raies satellites sur le spectre  $XL_2$ , elles sont difficilement visibles sur le spectre car les transitions  $L_1-L_2M$  ne sont pas permises et les lacunes spectatrices sont produites sur des couches externes à  $N_5$ , produisant des décalages en énergie inférieurs ou égaux à la dizaine d'eV.

Pour ajuster les pics  $XL_3$ , la raie diagramme (ou "pseudo-diagramme") a été ajustée avec une fonction de Voigt, et les structures associées aux transitions satellites ont été ajustées avec plusieurs fonctions de Voigt (de une à cinq Voigt). Les positions des fonctions de Voigt sont des paramètres libres, et la largeur de la gaussienne est fixée par la valeur donnée par l'équation 3.3. Le choix de la largeur des lorentziennes des satellites n'est pas trivial et peu documenté dans la littérature, elle devrait être supérieure à celle de la raie diagramme. En effet, un état multi-ionisé aura plusieurs possibilités de transition, donc une durée de vie de l'état de l'atome plus courte c'est-à-dire une largeur naturelle plus grande par le biais du principe d'incertitude de Heisenberg. D'après Richtmyer, la largeur de la lorentzienne est la somme des largeurs de niveau des lacunes initiale et finale plus deux fois la largeur du niveau de la lacune spectatrice [91]. En utilisant de telles largeurs pour les raies satellites, l'ajustement et les résidus n'étaient pas satisfaisants. Il est préférable d'ajuster les raies satellites avec la même largeur que la raie diagramme, ce qui revient à supposer que la durée de vie de la lacune spectatrice est infiniment longue.

### 3.4 Simulation du rendement d'absorption totale

La source étalon de  $^{241}\text{Am}$  a permis de déterminer expérimentalement le rendement de détection total mais seulement à des énergies discrètes. Des simulations Monte Carlo du rendement de détection total, à l'aide du code PENELOPE-2014 [92], vont permettre d'obtenir une courbe de rendement continue en dessous de 100 keV. Toutefois, comme il a été montré au début de ce chapitre, la caractérisation des dimensions de la géométrie est trop imprécise pour avoir un rendement simulé avec une incertitude suffisante, inférieure au pourcent. Les dimensions critiques de la géométrie vont être ajustées pour avoir un accord entre les rendements simulés et mesurés.

Le rendement d'absorption totale  $\epsilon_{abs}$  se compose de trois facteurs données par l'équation :

$$\epsilon_{abs} = \epsilon_{int} \cdot f \cdot G_{surf} = \epsilon_{int} \cdot \frac{\Omega}{4\pi} \cdot G_{surf} \quad (3.14)$$

où,  $f$  : facteur de géométrie,

$\Omega$  : angle solide,

$\epsilon_{int}$  : rendement intrinsèque,

$G_{surf}$  : pourcentage de la surface du collimateur couverte par les 4 pixels.

Trois dimensions, impactant ces facteurs, ont été identifiées comme critiques : la distance source-collimateur sur l'axe Z, l'épaisseur des couches des absorbeurs et le positionnement latéral du collimateur selon les axes X-Y. Elles ont respectivement chacune une influence indépendante sur trois grandeurs, l'angle solide, le rendement intrinsèque et le taux de comptage relatif par pixel  $\frac{T_{comp}^i}{T_{comp}^{tot}}$  où  $T_{comp}^i$  est le taux de comptage du  $i^{ème}$  pixel et  $T_{comp}^{tot}$  le taux de comptage total.

La figure 3.7 montre la géométrie de détection simulée avec les trois dimensions (paramètres d'entrée dans les simulations : (1) la distance entre la source et le collimateur, (2) position X-Y du collimateur, (3) les épaisseurs des absorbeurs) qui vont être adaptées en comparant les trois grandeurs simulées (paramètres de sortie des simulations : angle solide, taux de comptage et rendement intrinsèque) aux grandeurs mesurées à l'aide de la source étalon.

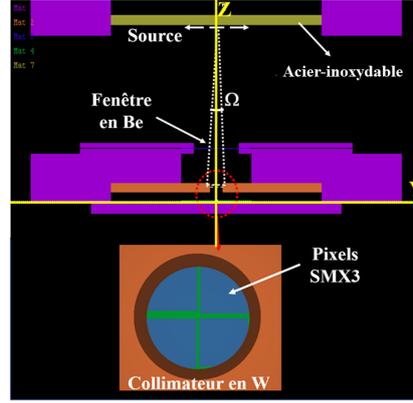


FIGURE 3.7 – Géométrie de détection simulée dans PENELOPE

### 3.4.1 Position du collimateur sur les axes X, Y et Z

Dans la gamme d'énergie entre 10 keV et 25 keV, le rendement intrinsèque est quasi constant et proche de 1, ainsi il est indépendant des épaisseurs des absorbeurs. Donc le rendement d'absorption totale est donné par les facteurs :

$$\epsilon_{abs} \approx f \cdot G_{surf} = \frac{\Omega}{4\pi} \cdot G_{surf} : \text{Si } 10 \text{ keV} < E < 25 \text{ keV} \quad (3.15)$$

Le rendement ne dépend donc que de l'angle solide défini par la position du collimateur. Entre une source ponctuelle et les absorbeurs,  $\Omega$  est défini par l'équation suivant :

$$\Omega = \int_0^{2\pi} d\phi \int_0^\alpha \sin\theta d\theta \quad (3.16)$$

$\alpha = \arctan\left(\frac{r_{col}}{R}\right)$   $r_{col}$  : le rayon du collimateur,

$R$  : distance entre la source et le collimateur,

$\phi$  : azimut,

$\theta$  : angle d'ouverture du cône.

Étant donné les précisions obtenues sur la mesure du diamètre de l'ouverture du collimateur 1,82 mm et sur la surface active des absorbeurs, celles-ci sont considérées suffisamment bien connue pour être utilisées dans la géométrie simulée. Donc, l'angle solide dépend de la position du collimateur qui reste à déterminer sur les axes X,Y et Z. Pour cela des simulations ont été effectuées à une énergie de 16 keV et comparées aux valeurs expérimentales obtenues sur le groupe  $XL\beta$  compris entre 16,13 keV et 17,79 keV où le rendement intrinsèque est proche de 1. Pour corriger la position du collimateur sur les axes X et Y, différentes positions (X,Y) du trou du collimateur ont été simulées. La meilleure position a été déterminée en comparant le nombre de coups relatif simulé  $\frac{T_{comp}^i}{T_{comp}^{tot}}$  de chaque  $i^{\text{ème}}$  pixel à celui mesuré sur la région  $XL\beta$ . La position

a été définie de sorte à ce que l'écart  $1 - \frac{N_s}{N_m}$ , où  $N_s$  est le nombre de photons absorbés simulés à 16 keV et  $N_m$  est le nombre de photons absorbés dans la région  $XL\beta$ , soit minimum. Ce dernier correspond donc à la meilleure estimation de la position du trou de collimateur comme le montre la figure 3.8.

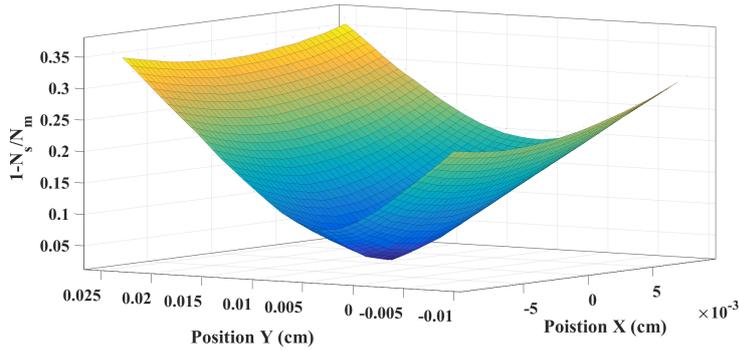


FIGURE 3.8 – Écart de la simulation du nombre de photons absorbés dans le détecteur par rapport au nombre de photons absorbés dans la région  $XL\beta$

Une fois que la position du collimateur sur les axes X et Y est définie, différentes positions de la source sur l'axe Z, soit différentes distances source-collimateur, ont été simulées. Cette distance a été déterminée en comparant le rendement d'absorption totale simulé à celui mesuré sur la région  $L\beta$ , donné par :

$$\epsilon_{L\beta} = \frac{N_{L\beta}}{A \cdot \Delta t I_{L\beta}} \quad (3.17)$$

$N_{L\beta}$  : nombre de photons absorbés dans la région  $L\beta$  issus de l'ajustement,

$I_{L\beta}$  : intensité de la région  $L\beta$ ,

$A$  : activité de la source,

$\Delta t$  : temps actif.

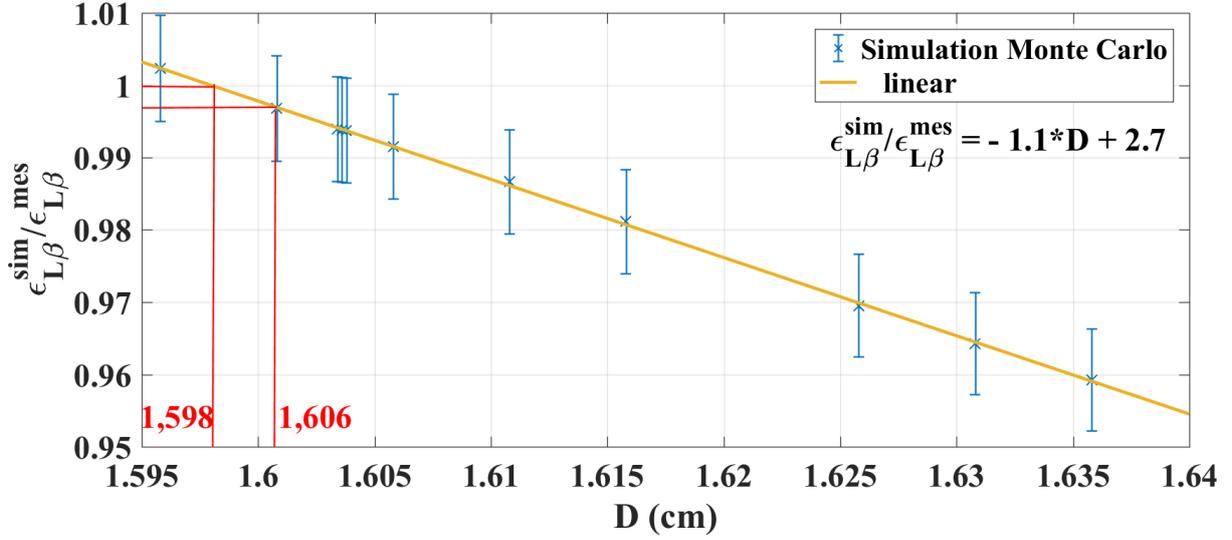


FIGURE 3.9 – (bleu) Rendement d’absorption totale simulé  $\epsilon_{L\beta}^{sim}$  à 16 keV pour différentes distances source-collimateur  $d$ , et normalisé par le rendement d’absorption totale mesuré  $\epsilon_{L\beta}^{mes}$

Grâce à l’ajustement linéaire présenté dans la figure 3.9, la distance entre la source et le détecteur adaptée par la simulation est de 1,598 (16) cm. Comme le montre la figure 3.9, la distance mesurée par la colonne Roch 1,6059 (6) cm permet d’obtenir dans la simulation le rendement d’absorption totale mesuré mais aux incertitudes près. Dans ces simulations le rendement intrinsèque est supposé égal à 100%. En réalité il existe des effets d’échappement des particules ou des photons par les surfaces des absorbeurs qui causent une diminution du rendement intrinsèque. De plus, l’incertitude sur la distance caractérisée par la colonne Roch est sûrement sous-estimée. Pour compenser ces effets, la source doit être rapprochée dans la géométrie simulée.

### 3.4.2 Épaisseurs des absorbeurs

En dessous de 25 keV le rendement est indépendant des épaisseurs. Les incertitudes sur les épaisseurs des absorbeurs vont donc essentiellement affecter le rendement intrinsèque mesuré ainsi que dans la simulation au-delà de 25 keV. Le complémentaire du rendement intrinsèque à 59,54 keV correspond à la transmission des photons à travers les absorbeurs. Donc, le rendement intrinsèque peut être relié analytiquement aux épaisseurs des absorbeurs à l’aide de la loi de Beer-Lambert :

$$\epsilon_{int,BL} = P_{Ag} + (1 - P_{Ag}) \cdot P_{Au} = 1 - e^{-e_{Ag}\rho_{Ag}\mu_{Ag}} e^{-e_{Au}\rho_{Au}\mu_{Au}} \quad (3.18)$$

$e_{Ag}$  : épaisseur d'absorbeur en argent,  $e_{Au}$  : épaisseur d'absorbeur en or,  $P_{Ag}$ ,  $P_{Au}$  : probabilités d'absorption dans les couches d'argent et d'or respectivement.

$\rho_{Ag}\rho_{Au}$  : densité des couches d'argent et d'or.

$\mu_{Ag}\mu_{Au}$  : coefficient d'atténuation dans les couches d'argent et d'or.

En utilisant les épaisseurs  $e_{Au} = 50 \mu\text{m}$  et  $e_{Ag} = 17 \mu\text{m}$ , à 59,54 keV, l'équation 3.18 donne  $\epsilon_{int,BL}(59,54) = 0,36$  (6), proche de la valeur simulée. En revanche, l'équation 3.18 n'est clairement plus valable pour les photons  $\gamma$  de 26,34 keV, puisque qu'elle donne  $\epsilon_{int,BL}(26,3) = 0,989$  alors que le rendement intrinsèque simulé est de 83%. Ceci s'explique par le fait que pratiquement 99% des photons de 26,33 keV sont absorbés mais que pour près de 20% d'entre eux, l'absorption est suivie d'un échappement.

Indépendamment de cela, l'équation 3.18 n'est pas suffisante pour déterminer les épaisseurs (une équation à deux inconnues). En effet, l'absorption de la raie de 59,54 keV est calculée à l'aide de l'équation 3.18 pour différentes combinaisons des épaisseurs  $e_{Au}$  et  $e_{Ag}$ , le rendement intrinsèque à 59,54 keV est simulé aussi pour ces combinaisons. Les valeurs du rendement obtenues pour chaque combinaison ont été normalisées au rendement mesuré à 59,54 keV. La figure 3.10 montre que le rendement simulé varie linéairement avec la probabilité d'absorption déterminée par l'équation 3.18.

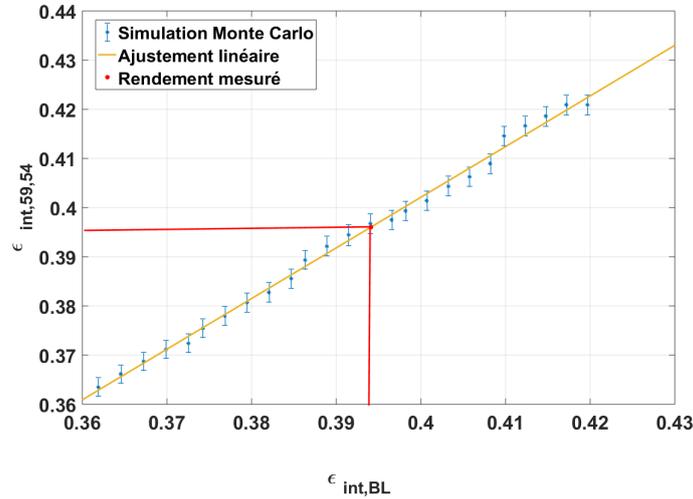


FIGURE 3.10 – Rendement intrinsèque à 59,54 keV simulé pour différentes épaisseurs en fonction de l'atténuation du photon dans des bicouches Au-Ag de différentes épaisseurs calculé avec l'équation 3.18. La droite en jaune l'ajustement qui donne l'équation 3.19 aux valeurs simulées.

Une autre équation est introduite pour relier le rapport entre la surface du pic d'échappement ( $N_{ech}(59,54)$ )  $K\alpha_1$  de l'argent de la raie 59,54 keV à 37,37 keV et celle du pic d'absorption totale à 59,54 keV ( $N_{PAT}(59,54)$ ). Par simulation Monte Carlo pour différentes épaisseurs or

et argent, le rapport  $(N_{ech}(59,54))/(N_{PAT}(59,54))$  varie linéairement avec le rapport des épaisseurs,  $e_{Ag}/e_{Au}$  (figure 3.11).

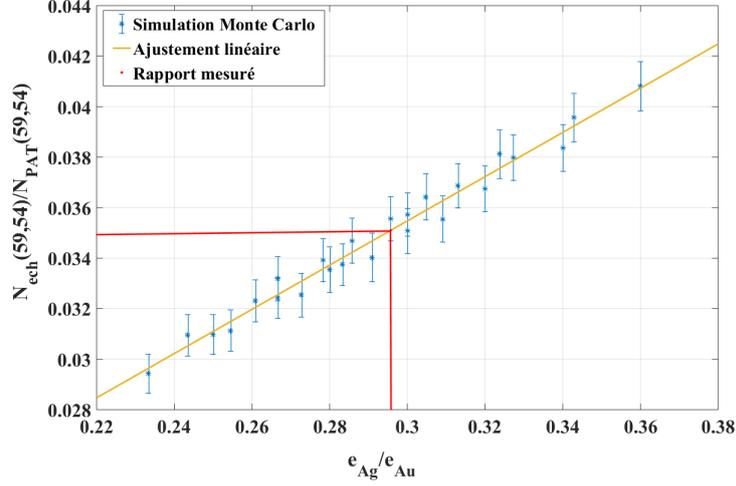


FIGURE 3.11 – Rapport du nombre de photons  $\gamma$  de 59,54 keV dont l’absorption est suivie de l’échappement d’un photon  $XK\alpha_1$  de l’argent sur le nombre de photons  $\gamma$  de 59,54 keV détectés dans le pic d’absorption totale en fonction du rapport des combinaisons des épaisseurs. La droite jaune est l’ajustement de l’équation 3.20 aux valeurs simulées.

À l’aide des ajustements présentés dans les figures 3.10 et 3.11 un système de deux équations à deux inconnues  $(e_{Ag}, e_{Au})$  est obtenu :

$$\epsilon_{int,59,54} = a \cdot \epsilon_{BL} + b \quad (3.19)$$

$$\rho_{echap}^{simul} = \frac{N_{ech}(59,54)}{N_{PAT}(59,54)} = c \cdot \frac{e_{Ag}}{e_{Au}} + d \quad (3.20)$$

Où  $a$ ,  $b$ ,  $c$  et  $d$  sont déduits des ajustements linéaires (figure 3.19 et 3.20).

La solution de ce système donne les épaisseurs à utiliser dans la simulation afin d’obtenir le rendement intrinsèque adapté.

$$e_{Au}=54,0 \text{ (9) } \mu\text{m et } e_{Ag}=16,00 \text{ (40) } \mu\text{m.}$$

### 3.4.3 Simulation Monte Carlo du rendement d’absorption totale

L’utilisation de ces dimensions corrigées dans la géométrie permet d’établir la courbe de rendement d’absorption totale en dessous de 100 keV en prenant en compte notamment les

effets des discontinuités. La figure 3.12 montre le rendement issu de la simulation par Monte Carlo dont la géométrie a été adaptée et le rendement étalonné par la mesure, respectivement pour adapter la distance source-collimateur et les épaisseurs des couches des absorbeurs. Le rendement simulé passe par les valeurs expérimentales obtenues pour le groupe  $L\beta$  et pour 59,54 keV car elles ont été utilisées comme références. La présence des discontinuités à 25,51 keV et à 80,72 keV correspond respectivement aux énergies de liaison des couches K de l'argent et de l'or.

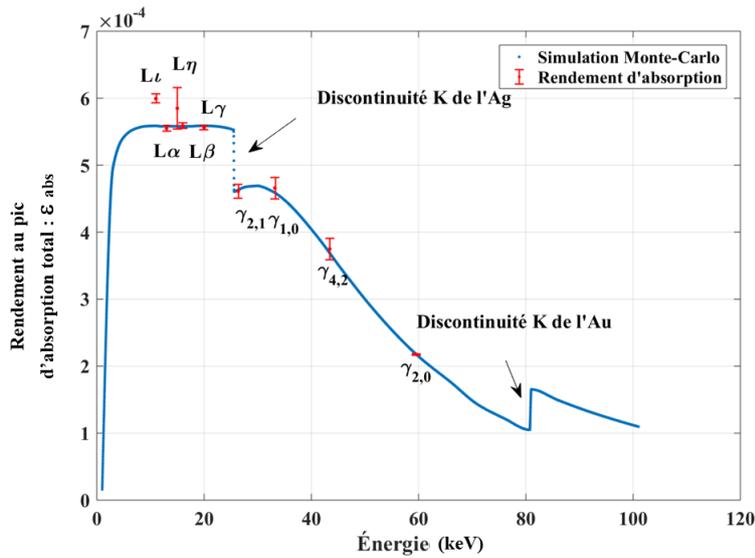


FIGURE 3.12 – Rendement d’absorption totale étalonné et le rendement issu de la simulation suite à la correction de la géométrie

Afin d’associer une incertitude à la courbe de rendement simulée, les variations de la courbe de rendement en fonction de l’énergie sur les régions suivantes sont utilisées :

### En dessous de 10 keV

Le rendement chute fortement vers les basses énergies à cause de l’absorption des photons dans la fenêtre de béryllium. Par rapport à la région 10-25 keV, il faut ajouter un terme d’incertitude en tenant compte de l’absorption de la fenêtre de Be. Ce terme tient compte de l’incertitude sur l’épaisseur du béryllium (42,97 (7)  $\mu\text{m}$ ) et de l’incertitude sur les différentes tables (EPDL<sup>3</sup>, NIST<sup>4</sup> et LNHB) qui fournissent des coefficients d’absorption massique. Pour tenir compte de l’incertitude sur les coefficients, l’écart-type de l’absorption du Be calculé à partir des données issues des différentes tables est utilisé. L’incertitude sur l’absorption dans la fenêtre en Be contribue de 4,08 % à 2 keV.

3. <https://www-nds.iaea.org/epdl97/za1to100.htm>

4. <https://physics.nist.gov/cgi-bin/Xcom/xcom>

$$\partial\epsilon_{Be} = \sqrt{\left(\frac{\partial\epsilon_{Be}}{\partial\mu_{Be}} \cdot \sigma_{\mu_{Be}}\right)^2 + \left(\frac{\partial\epsilon_{Be}}{\partial e_{Be}} \sigma_{e_{Be}}\right)^2 + \left(\frac{\partial\epsilon_{Be}}{\partial\epsilon_{XL\beta}} \sigma_{XL\beta}\right)^2} \quad (3.21)$$

Avec,

$\frac{\partial\epsilon_{Be}}{\partial\mu_{Be}}$  : propagation de l'incertitude du coefficient d'atténuation sur le rendement,  
 $\frac{\partial\epsilon_{Be}}{\partial e_{Be}}$  : propagation de l'incertitude sur l'épaisseur de la fenêtre en Be sur le rendement,  
 $\frac{\partial\epsilon_{Be}}{\partial\epsilon_{XL\beta}}$  : propagation de l'incertitude de l'intensité du groupe  $XL\beta$  sur le rendement.

### Entre 10 et 25 keV

Dans cette région le rendement ne dépend pas des épaisseurs des absorbeurs, mais uniquement de l'angle solide entre le détecteur et la source. La distance détecteur-source ayant été établie avec l'intensité du groupe  $L\beta$  de la source de  $^{241}\text{Am}$ , l'incertitude sur le rendement d'absorption totale dans cette région est donnée par :

$$\partial\epsilon_{L\beta} = \sqrt{\left(\frac{\partial\epsilon_{L\beta}}{\partial I} \sigma_I\right)^2 + \left(\frac{\partial\epsilon_{L\beta}}{\partial N} \sigma_N\right)^2 + \left(\frac{\partial\epsilon_{L\beta}}{\partial A} \sigma_A\right)^2} \quad (3.22)$$

Avec,

$\frac{\partial\epsilon_{L\beta}}{\partial I}$  : propagation de l'incertitude de l'intensité du groupe  $L\beta$  sur le rendement,  
 $\frac{\partial\epsilon_{L\beta}}{\partial A}$  : propagation de l'incertitude de l'activité de la source sur le rendement,  
 $\frac{\partial\epsilon_{L\beta}}{\partial N}$  : propagation de l'incertitude statistique sur le rendement.

L'incertitude de 0,7% sur le rendement d'absorption totale de la région  $L\beta$  est dominée par l'incertitude sur la valeur recommandée de l'intensité de 0,7% [12].

### Entre 25,5 keV et 80,7 keV

La courbe de rendement de détection est donnée par la transmission des photons à travers l'absorbeur et par les pertes de rendement dues aux échappements de photons XK de l'argent et de l'or. L'incertitude sur cette gamme d'énergie va dépendre des incertitudes sur les épaisseurs. Afin de dériver un calcul d'incertitude simple, le rendement peut être approximé par les équations suivantes sur deux régions :

$$25\text{keV} < E < 80\text{keV} : \epsilon_{int_{25-80}} = \epsilon_{Au,Ag} - \frac{\epsilon_{Ag}}{2} + (1 - e^{-\mu_{Ag}\rho_{Ag}e_{Ag}}) \frac{\epsilon_{Ag}}{2} - (e^{-\mu_{Au}\rho_{Au}e_{Au}}) \quad (3.23)$$

$$E > 80 \text{ keV} : \epsilon_{int_{80}} = \epsilon_{Au,Ag} \frac{\epsilon_{Ag}}{2} + (1 - e^{-\mu_{Ag}\rho_{Ag}e_{Ag}}) \frac{\epsilon_{Ag}}{2} - \epsilon_{Au} e^{-\mu_{Au}\rho_{Au}e_{Au}} \quad (3.24)$$

où

$\epsilon_{Au,Ag}$  : probabilité d'absorption dans les bi-couches Au et Ag,

$\epsilon_{Au}, \epsilon_{Ag}$  : probabilité d'absorption dans l'or et l'argent.

Les dérivées des équations 3.23, 3.24 par rapport aux épaisseurs permettent de déterminer l'effet des incertitudes sur les épaisseurs des couches des absorbeurs en or et argent sur le rendement. Donc, l'incertitude sur le rendement varie entre 0,5% et 1,6% sur la gamme d'énergie de l'équation 3.23, et entre 1,4% et 2,3% sur la gamme d'énergie de l'équation 3.24.

La connaissance du rendement d'absorption totale et l'utilisation d'une géométrie de simulation dont les dimensions sont adaptées seront utilisées dans la suite pour effectuer un "transfert de rendement".

Pour mesurer les intensités des émissions d'un actinide, le transfert de rendement permet de déterminer le rendement si les dimensions de la source sont différentes par rapport à la source étalon (par exemple : le diamètre, l'épaisseur, etc..).



## CHAPITRE 4

# MESURES DES INTENSITÉS D'ÉMISSION XL DES ACTINIDES

Le détecteur SMX3 a été conçu pour la spectrométrie de haute résolution de photons et pour fournir des données de décroissance, en particulier les intensités des émissions XL d'actinides. Dans ce chapitre, les mesures des intensités XL des actinides  $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{239}\text{Pu}$  et  $^{244}\text{Cm}$  sont présentées. Pour chaque mesure, une source radioactive a été préparée par électro-précipitation, son activité a été mesurée par la méthode ASD, puis la source a été installée sur SMX3 et l'ensemble refroidi entre 10 et 13 mK selon la performance du réfrigérateur à dilution. Les acquisitions ont duré entre 10 et 15 jours pour chaque actinide afin d'atteindre une statistique de plusieurs millions d'évènements dans la région XL.

Les conditions d'enregistrement en continu sont similaires à celles de  $^{241}\text{Am}$ , à l'exception du filtrage de l'amplificateur SRS : un filtre passe-bas avec une fréquence de coupure de 100 kHz a été choisi au lieu d'un passe-bande. En effet, pour l'enregistrement de  $^{241}\text{Am}$ , l'utilisation d'un filtre passe-haut engendrait des undershoots vus comme des fluctuations de la ligne de base non stationnaires et problématiques pour l'application d'un filtrage optimal. Toutefois, le but du passe-haut était de maintenir les fluctuations de ligne de base (produites par les variations de température du cryostat) dans les gammes de tension acceptées par le SRS et la carte d'acquisition, et éviter les saturations de l'enregistrement. Pour contourner ce problème et éviter l'utilisation d'un filtre passe-haut, une remise à zéro (RAZ) externe de l'électronique Magnicon a été utilisée pour les mesures. De plus, sans filtre passe-haut, il est possible de corriger les fluctuations de température grâce à la corrélation entre le niveau de ligne de base et l'amplitude des impulsions (voir partie 2.3.4.1). La fréquence d'échantillonnage est de 250 kHz.

## 4.1 Les photons émis par le Plutonium-238

Le  $^{238}\text{Pu}$  est un actinide majeur, il se désintègre vers  $^{234}\text{U}$  par émission  $\alpha$  principalement vers le niveau fondamental (71,04 %) et le niveau excité de 43,498 (1) keV (28,85 %) comme le montre le schéma de désintégration de la figure 4.1. La période du  $^{238}\text{Pu}$  est de 87,74 (3) ans, et celle de  $^{234}\text{U}$  est de 245 500 ans.

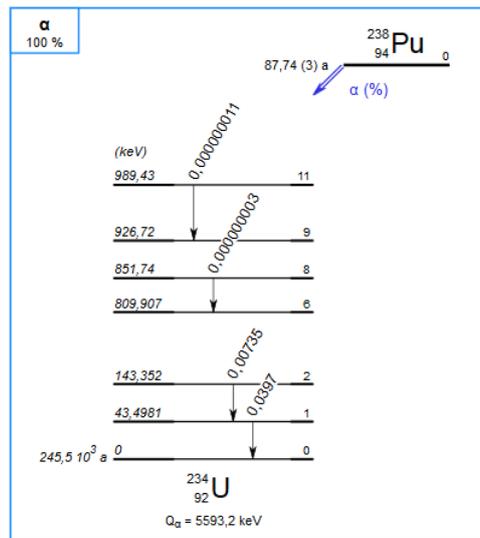


FIGURE 4.1 – Schéma simplifié de désintégration du  $^{238}\text{Pu}$  [12].

L'énergie de la transition  $\gamma_{1,0}$  de 43,498 keV est fortement convertie au cortège électronique de  $^{234}\text{U}$  avec un coefficient interne  $\alpha_L = 630$  (13) [12]. L'atome se retrouvant dans un état ionisé se désexcite entre autres par l'émission de photons X. Les émissions XL ont fait l'objet de différentes études qui ont permis au DDEP (*Decay Data Evaluation Project*) d'évaluer les intensités d'émission XL [12]. La valeur d'intensité d'émission XL est recommandée à une valeur de 10,63 (8)%, valeur mesurée par P. Johnston en 1995 [41], en accord avec la valeur calculée par Schönfeld [37].

Pour évaluer les intensités des groupes XL ( $L_L$ ,  $L_\alpha$ ,  $L_\eta$ ,  $L_\beta$ ,  $L_\gamma$ ), les valeurs issues de chaque mesure ont été normalisées à l'intensité XL recommandée, pour corriger d'éventuels biais issus de l'étalonnage du rendement ou de la mesure d'activité de la source. Les valeurs recommandées des groupes XL correspondent à la moyenne pondérée des valeurs de groupes XL renormalisées (tableau 4.1). Leurs incertitudes correspondent à un écart type de la moyenne ou à la plus faible incertitude mesurée. Malgré les mesures effectuées sur le  $^{238}\text{Pu}$ , la connaissance des intensités XL reste limitée aux groupes XL, les intensités d'émission individuelles n'ont jamais été mesurées. C'est la raison pour laquelle SMX3 est utilisé pour détailler les intensités

des photons XL émis par le  $^{238}\text{Pu}$ .

Tableau 4.1 – Intensités d'émission absolues XL évaluées par le DDEP [12]

	Mesurée			Recommandée	Calculée	
	Bemis 1977 [93]	Bortels 1984 [94]	Johnston 1995 [41]	Moyenne	Johnston 1995 [41]	Schönfeld 2000 [37]
$\text{XL}\nu$	0,26 (1)	0,260 (7)	0,231 (3)	0,235 (4)	0,234	0,232 (8)
$\text{XL}\alpha$	4,15 (7)	4,06 (7)	3,81 (3)	3,80 (3)	3,78	3,73 (12)
$\text{XL}\eta\beta$	5,61 (7)	5,85 (9)	5,31 (4)	5,31 (4)	5,42	5,23 (16)
$\text{XL}\gamma$	1,36 (2)	1,38 (2)	1,29 (1)	1,28 (1)	1,26	1,23 (4)
<b>XL total</b>	<b>11,38 (18)</b>	<b>12 (16)</b>	<b>10,63 (8)</b>	<b>10,63 (8)</b>	<b>10,68</b>	<b>10,55 (25)</b>

#### 4.1.1 Mesure à l'aide de SMX3

Une source de  $^{238}\text{Pu}$  a été préparée au LNHB par électro-précipitation sur un diamètre de 12 mm (figure 4.2) sur un disque en acier inoxydable de 25,2 mm et d'environ 0,5 mm d'épaisseur. Il n'a pas été possible de déposer la source sur un diamètre de 8 mm identique à celui de la source étalon de  $^{241}\text{Am}$  car la cellule d'électro-précipitation sur 8 mm donnait des rendements de déposition plus faibles et moins reproductibles que celle sur 12 mm.

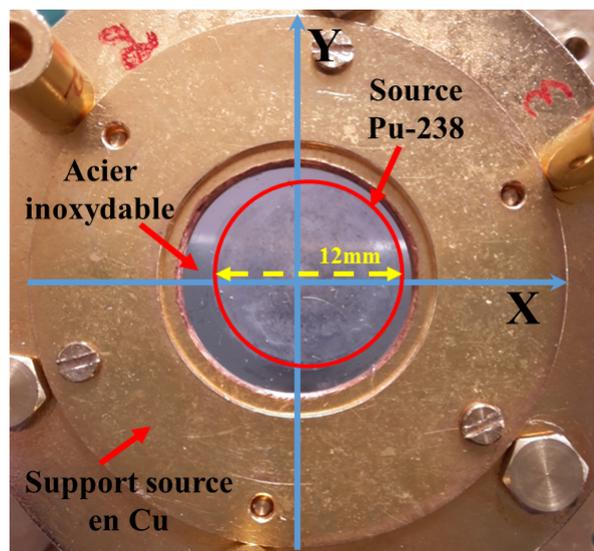


FIGURE 4.2 – Photo de la source de  $^{238}\text{Pu}$  et de son support installée face au détecteur SMX3.

L'activité de 57,95 (10) kBq au 14/12/2016 à 12h00 TU a été mesurée par la méthode ASD. Au début de la mesure (le 23/3/2017), elle est de 57,82 (10) kBq . Vu les écarts de période

entre le  $^{238}\text{Pu}$  et  $^{234}\text{U}$ , l'activité de ce dernier est négligeable. Le taux de comptage attendu est de 3,2 coups par seconde.

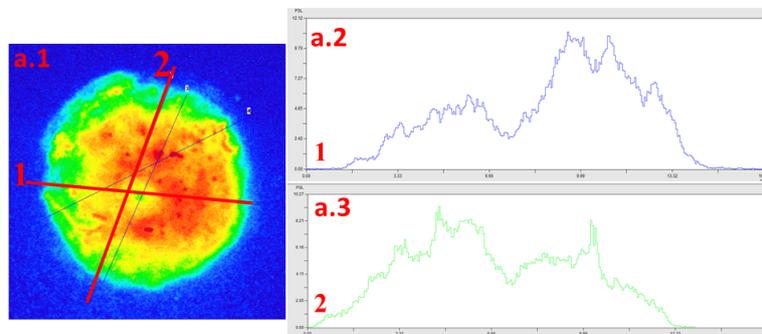


FIGURE 4.3 – (a.1) Auto-radiographie de la source de  $^{238}\text{Pu}$  électrodéposée mesurée par l'imageur *Fujifilm BAS 1800 II* à une distance d'environ  $200\ \mu\text{m}$  du film (a.2) profil de l'activité suivant l'axe numéro 1. (a.3) profil de l'activité suivant l'axe numéro 2.

La figure 4.3 a.1 montre une autoradiographie de la répartition de l'activité de la source. Des hétérogénéités importantes de l'activité apparaissent sur les profils 1 et 2 montrés dans les figures 4.3 a.2,a.3.

Les étapes de traitement hors ligne présentées dans le chapitre 2 ont été utilisées. La fonction de temps mort a déterminé un temps actif de 300,4 h et des pourcentages de temps mort de 12,91%. Le taux de comptage est de  $3,18\ \text{s}^{-1}$  dans la région des photons XL. Les amplitudes des impulsions ont été estimées par filtrage optimal dont l'impulsion modèle a une durée de 16,38 ms.

Les dérives des amplitudes des impulsions dues à la variation de la température du bain thermique n'ont pas pu être corrigées par le niveau de ligne de base. Des sauts de lignes de base apparaissent de manière aléatoire supprimant la corrélation entre le niveau de ligne de base et l'amplitude des impulsions, et rendant impossible ce type de correction. La correction s'est donc faite à partir d'une fonction spline  $f_{Amp}(t)$  suivant les amplitudes à une énergie donnée (la méthode des amplitudes décrite dans la partie 2.3.4.1). Le  $^{238}\text{Pu}$  émet une raie  $\gamma$  ( $\gamma_{(1,0)}$ , 43,498 keV) avec une probabilité de 0,0397 (8) pour 100 désintégrations. Cette faible probabilité ne permet pas de suffisamment échantillonner et de suivre les variations de température. Dans ce cas, bien que moins sensible aux variations de température (équation 2.10), les amplitudes de la raie  $L\gamma_1$  à 20,167 keV ont été utilisées pour corriger la fluctuation de température.

La non-linéarité a été corrigée en utilisant les énergies tabulées des raies XK du Fe, Ni, Cu, Mn (*cf* chapitre 2 partie 2.3.4.3 ) et les émissions XL de l'uranium suffisamment intenses :  $L\gamma_1$  et  $L\beta_1$  ainsi que l'émission  $\gamma_{(1,0)}$  [71, 85]. Ces mêmes raies ont été utilisées pour caractériser la résolution en énergie en fonction de l'énergie et dégrader les résolutions aux valeurs données par le polynôme du second degré :

$$\sigma(E) = 12,74 - 7,24 \cdot 10^{-5} \cdot E + 5,28 \cdot 10^{-9} \cdot E^2 \quad (4.1)$$

avec ,

$\sigma(E)$  : écart-type en eV de la gaussienne

$E$  : énergie de la raie en eV.

La raie  $\gamma_{1,0}$  de 43,498 (1) keV a été ajustée à l'aide d'une gaussienne dont l'amplitude, la largeur à mi-hauteur (46,49 eV) et l'énergie sont des paramètres d'ajustement libres. Des fonctions de Voigt sont utilisées pour ajuster les émissions X. Les largeurs des lorentziennes ont été fixées en utilisant les largeurs naturelles des raies XL de l'uranium mesurées précisément par spectrométrie à dispersion de longueur d'onde [23]. Comme pour le spectre  $XL_3$  de  $^{241}\text{Am}$ , le spectre  $XL_3$  du  $^{238}\text{Pu}$  possède des raies satellites qui correspondent aux transitions X en présence d'au moins une lacune spectatrice produite par une transition Coster-Kronig.

En revanche, pour le  $^{238}\text{Pu}$ , l'intensité des raies satellites par rapport à  $^{241}\text{Am}$  apparaît beaucoup plus faible comme le montrent les spectres des régions  $XL\alpha$  et  $XL\beta$  dans les figures 4.4b et 4.4c. Par exemple, pour la raie  $L_3-M_5$  ( $L\alpha_1$  figure 4.4.b), la surface mesurée des raies satellites visibles par rapport à la surface totale de la raie  $L_3-M_5$  est de 2,2% pour le  $^{238}\text{Pu}$  contre 46,3% pour  $^{241}\text{Am}$ .

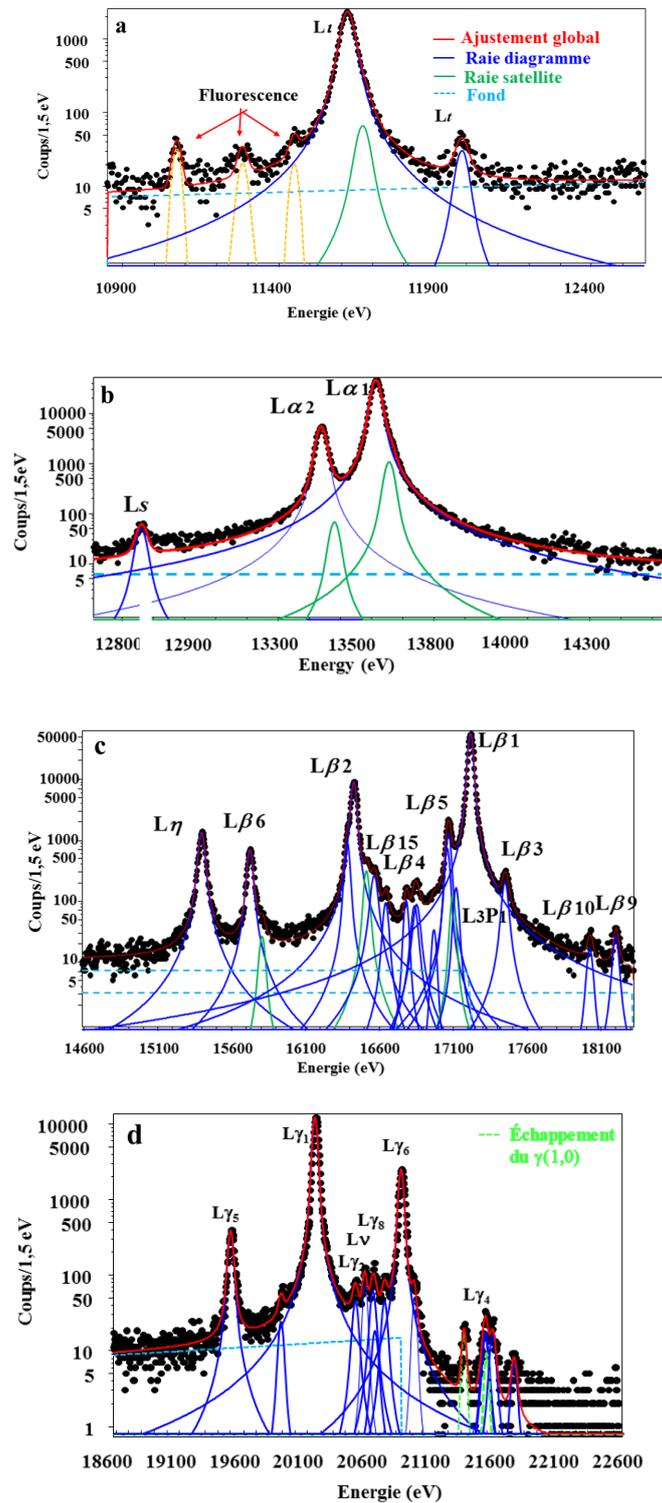


FIGURE 4.4 – Spectre mesuré du  $^{238}\text{Pu}$ . (a) Spectre de la région  $\text{XL}\iota$  (b) Spectre de la région  $\text{XL}\alpha$ . (c) Spectre de la région  $\text{XL}\eta\beta$ . (d) Spectre de la région  $\text{XL}\gamma$ . Les spectres sont ajustés à l'aide du logiciel Colegram [83]. En trait bleu raies diagrammes, en vert les structures satellites, en bleu pointillé le fond.

Ceci peut s'expliquer en calculant le nombre des lacunes primaires  $N_p$  dans chaque sous-couche L. Pour le  $^{238}\text{Pu}$ , pour 100 désintégrations, elle est de :

$$N_p(L_1) = 1,78 \quad (7) \quad (4.2)$$

$$N_p(L_2) = 52,1 \quad (21) \quad (4.3)$$

$$N_p(L_3) = 46,1 \quad (18) \quad (4.4)$$

et pour  $^{241}\text{Am}$

$$N_p(L_1) = 24,1 \quad (9) \quad (4.5)$$

$$N_p(L_2) = 33 \quad (4) \quad (4.6)$$

$$N_p(L_3) = 12,8 \quad (18) \quad (4.7)$$

Donc pour le  $^{238}\text{Pu}$ , la proportion de lacunes primaires produites en  $L_1$  est beaucoup plus faible par rapport à celle en  $L_3$ , et par conséquent la proportion d'atomes avec des lacunes multiples suite aux transitions Coster-Kronig de type  $L_1$ - $L_3$ Y est faible. Pour le  $^{238}\text{Pu}$ , la distribution des lacunes suite aux réarrangements des lacunes primaires par transitions CK est  $V_p(L_1) = 1,64$  (8),  $V_p(L_2) = 48,1$  (19),  $V_p(L_3) = 50,3$  (19). En utilisant les probabilités CK  $f_{12} = 0,035$  (18)  $f_{13} = 0,67$  (9) et  $f_{23} = 0,140$  (7) [38], la proportion d'atomes multi-ionisés  $P_{L_i L_3}^3$  est de 15,4 % (équation 4.8) contre 61,9 % pour  $^{241}\text{Am}$ .

$$P_{L_i L_3} = \frac{f_{23} \cdot N_p(L_2) + (f_{13} + f_{12} \cdot f_{23}) \cdot N_p(L_1)}{N_p(L_3) + f_{23} \cdot N_p(L_2) + (f_{13} + f_{12} \cdot f_{23}) \cdot N_p(L_1)} = 15,4 \quad (4.8)$$

$P_{L_i L_3}$  : proportion des atomes multi-ionisés par une transition  $L_i$ - $L_3$ Y ( $i=1,2$ ).

Dans le spectre mesuré avec SMX3, la proportion des raies satellites est de 3,4% par rapport à la surface totale des raies  $L_3$ - $Y_j$ . Cette proportion est beaucoup plus faible que celle calculée (équation 4.8). Comme déjà discuté, seules les raies satellites avec une lacune spectratrice dans une sous-couche M sont clairement visibles. La résolution en énergie n'est pas suffisante pour séparer les raies satellites avec des lacunes spectatrices dans les couches moins liées. En calculant la proportion d'atomes multi-ionisés avec une lacune en  $L_3$  et une lacune spectratrice en M à partir des probabilités partielles de transitions CK [90], la proportion des raies satellites visibles dans le spectre ayant un décalage suffisamment grand par rapport à la largeur des raies est de 1,4%<sup>1</sup> pour le  $^{238}\text{Pu}$  contre 3,4% déterminée à l'aide du spectre mesuré par SMX3. Donc, les

---

1. Lors du calcul de la proportion de raies satellites avec une lacune spectratrice en M, on suppose que les lacunes spectatrices ont une durée de vie infiniment plus longue que celle de la lacune en L, ce qui n'est pas exact. Par exemple dans le cas de deux lacunes en  $L_3$  et  $M_5$ , la probabilité que la lacune  $M_5$  soit comblée avant la lacune  $L_3$  suite à une transition  $M_5XY$  est de 31%. Il s'en suit que l'atome est ionisé trois fois en  $L_3$ , en

paramètres fondamentaux et les probabilités des transitions CK utilisées pour la détermination de la sous-couche à laquelle la lacune spectatrice a été créée sont cohérents entre eux.

Comme il a été montré dans le chapitre 1, les photons X de la série L sont ceux qui correspondent à des transitions de type  $L_i-Y_j$ . Dans le cas des actinides, les énergies de ces photons sont comprises entre  $\sim 10$  keV et  $\sim 24$  keV lorsque  $Y=M,N,O,P,Q$ . Au cours de la mesure de la source de  $^{238}\text{Pu}$ , une raie XL à 4,59 keV a été observée qui correspond à la transition  $L_1-L_3$  dont le taux d'émission est de 0,13 pour une lacune créée dans  $L_1$  [26]. Cette transition est également probable dans le cas de  $^{241}\text{Am}$  : elle est observée à 4,817 keV dans la région des émissions XM.

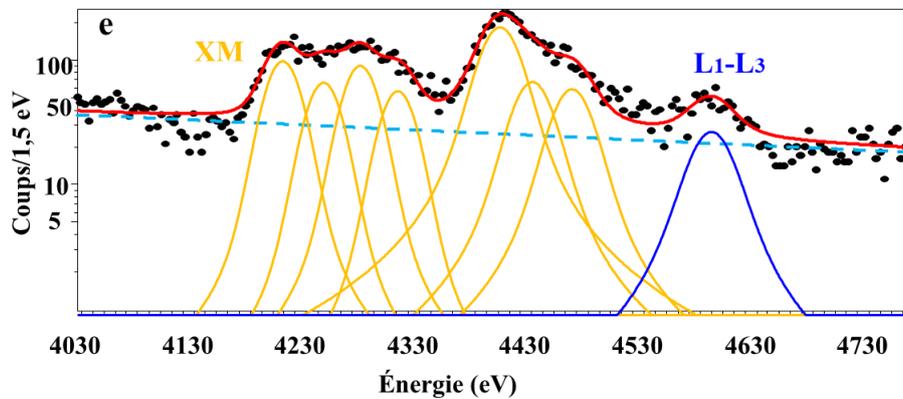


FIGURE 4.5 – Région du spectre qui montre la transition  $L_1-L_3$  (bleu) et les transitions XM (Jaune).

### 4.1.2 Mesures des intensités absolues

L'analyse du spectre permet d'extraire les surfaces des pics d'absorption totale et de déterminer les intensités d'émission absolues à l'aide du rendement obtenu dans le chapitre 3 et de l'équation 3.1. Le diamètre de la source de  $^{238}\text{Pu}$  et l'épaisseur du support en acier inoxydable, sont différents de ceux de la source étalon de  $^{241}\text{Am}$  (figure 3.1), ce qui modifie le rendement de détection. Mais il est possible de corriger le rendement en effectuant un transfert de rendement grâce à la simulation Monte Carlo en modifiant la géométrie de la source dans la géométrie déterminée au chapitre 3.

---

X et Y où X et Y appartiennent à N, O, P, (les probabilités de transitions radiatives  $M_5$  sont négligées). La raie satellite  $X L_3XY - XY Z$ , bien qu'ayant deux lacunes spectatrices en XY aura un décalage en énergie par rapport à la raie diagramme moindre qu'une raie satellite  $L_3M_5-M_5-Z$ , et sera moins visible sur le spectre. Par conséquent, supposer la durée de vie de la lacune spectatrice comme étant infinie surestime l'intensité des raies satellites visibles, d'environ 30% dans le cas d'une raie satellite  $L_3Y-YM_5$ .

En outre, il s'est avéré que la source était décentrée (figure 4.2) car le diamètre du disque inoxydable des sources fabriquées au LNHB est de 25,2 mm contre 30 mm pour la source étalon de  $^{241}\text{Am}$  rendant le positionnement du disque sur le support de source de SMX3 moins précis. D'après les calculs analytiques d'angle solide, qui supposent un collimateur d'épaisseur négligeable, le rendement varie de 0,13% et de 0,28%, respectivement pour un décalage de 0,5 mm et 0,75 mm par rapport au rendement d'une source centrée [95]. La variation du rendement par simulation est beaucoup plus importante que celle calculée analytiquement, 0,90 % et 1,08 % respectivement pour le décalage de 0,5 mm et 0,75 mm car l'épaisseur du collimateur de 1 mm diminue le diamètre apparent pour les photons émis sur le bord de la source et doit être pris en compte. L'auto-radiographie de la figure 4.3 a révélé que l'activité surfacique présentait d'importantes hétérogénéités. Celles-ci peuvent amplifier les écarts observés sur le rendement car cela est assimilable à un défaut de centrage.

Le transfert de rendement ajoute une contribution supplémentaire à l'incertitude du rendement, tenant compte des incertitudes sur le diamètre de la source, sur l'épaisseur du disque inoxydable, sur le décalage de la source et sur l'orientation de la source (tableau 4.2).

Tableau 4.2 – Contributions au transfert de rendement et incertitudes associées dans la région XL (10 keV - 25 keV).

Grandeur	Valeur	Incertitude relative(%)	Contribution de l'incertitude sur le rendement (%)
Rendement avant transfert( $XL\beta$ )	$5,59 \cdot 10^{-4}$	0,7	0,7
Épaisseur disque (mm)	0,495	8	0,4
Décalage en $Y_0$ (mm)	0,5	20	1,17
Décalage en $X_0$ (mm)	0,75	60	1,17
Orientation du décalage	( $\pm 0,075$ ; $\pm 0,05$ )		0,25
Rendement après transfert	$5,07 \cdot 10^{-4}$	1,38	

L'orientation du décalage de la source par rapport aux quatre pixels a un impact sur le rendement car les quatre pixels carrés n'ont pas de symétrie cylindrique sur l'axe Z. Cette incertitude a été prise en compte comme l'écart-type des rendements obtenus par simulations Monte Carlo selon quatre orientations possibles [0,075 ; 0,05], [-0,075 ; -0,05], [-0,075 ; 0,05] et [0,075 ; -0,05]. La plus grande part d'incertitude provient de la mesure du décalage lui-même effectué à partir de la photo en figure 4.2 comme le montre le tableau 4.2 qui résume les différentes incertitudes et leur contribution sur le rendement. Après le transfert, le rendement absolu est de  $5,07 (7) \cdot 10^{-4}$ .

Les intensités absolues ont été déterminées en utilisant ce rendement. Les incertitudes associées comprennent : l'incertitude statistique de comptage sur la raie mesurée, l'incertitude sur le rendement transféré, l'incertitude sur l'activité de la source. À noter que dans le cas de l'existence des raies satellites, par exemple la raie  $L\beta_6$  (figure 4.4 c), l'intensité de la raie est la somme des surfaces des raies satellites et de la raie diagramme. Dans le cas où la résolution n'est pas suffisante pour séparer les transitions, par exemple les raies  $L\beta_2$ ,  $L\beta_4$  et  $L\beta_{15}$ , l'intensité fournie est la somme des surfaces des trois raies. Le tableau 4.3 montre les intensités d'émission individuelles des raies XL émises par le  $^{238}\text{Pu}$ .

À partir de ces intensités, celles des groupes XL et l'intensité de la région XL totale sont présentées ; elles peuvent être comparées aux valeurs mesurées par d'autres auteurs et aux valeurs recommandées.

L'intensité XL totale obtenue par SMX3 est de  $11,07 (17)^2$  pour 100 désintégrations contre  $10,63 (8)$  pour la valeur recommandée. Un écart de 4% est donc observé par rapport à la valeur recommandée, il n'est pas couvert par les incertitudes. Toutefois, en comparant la valeur de SMX3 avec l'ensemble des valeurs disponibles dans la littérature, cette valeur n'est pas aberrante et peut être considérée comme tout à fait acceptable (figure 4.6).

Un transfert de rendement a été effectué pour déterminer l'intensité de la raie  $\gamma_{(1,0)}$ . L'intensité de cette raie est mesurée à  $0,0385 (7)^2$  pour 100 désintégrations. Dans ce cas l'incertitude associée inclut l'effet du décalage de la source, l'incertitude statistique ainsi que la propagation des incertitudes sur les épaisseurs des absorbeurs étalonné dans la partie 3.4.3 du chapitre 3. L'intensité de la raie  $\gamma_{(1,0)}$  recommandé par le DDEP est de  $0,0397 (8)$ . La valeur mesurée est donc compatible avec la valeur recommandée<sup>2</sup>.

---

2. Cette mesure est basée sur un transfert de rendement effectué en considérant une source homogène, les intensités définitives corrigées de l'effet de l'hétérogénéité de la source seront publiées dans une revue scientifique suite à la thèse.

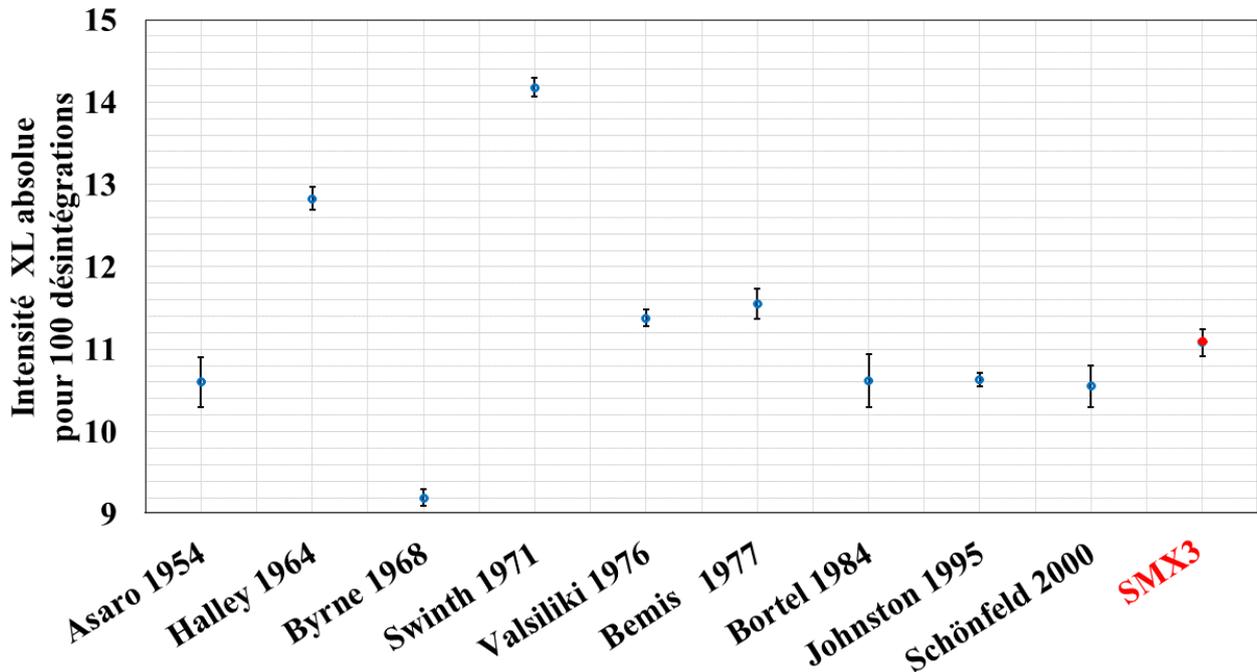


FIGURE 4.6 – Intensités d'émission XL absolues émis par le  $^{238}\text{Pu}$  référencées dans le DDEP et celle mesurée par SMX3 [12, 37, 41, 93, 94, 96–100].

En comparant les valeurs des intensités absolues des groupes XL (tableau 4.4), un écart est observé entre les valeurs recommandées et celles de SMX3 qui n'est pas couvert par les incertitudes. Le tableau 4.4 présente également les intensités d'émission relatives qui sont normalisées par rapport à la somme totale des intensités XL, y compris l'intensité de la raie  $L_1-L_3$  qui a pu être mesurée. Cette normalisation permet d'éliminer les contributions à l'incertitude provenant du rendement, de l'activité de la source et du temps actif. Seules l'incertitude statistique de comptage et l'incertitude sur le rendement intrinsèque contribuent. D'après le tableau 4.4, les intensités relatives des groupes XL obtenues à l'aide de SMX3, celles calculées et celles recommandées [12] sont compatibles. À noter que pour les valeurs issues de la littérature et pour les valeurs recommandées, la contribution des incertitudes sur le rendement et sur l'activité ne peut pas être éliminée de l'incertitude sur les intensités relatives car les bilans d'incertitude ne sont en général pas détaillés. C'est pourquoi les incertitudes sur les intensités relatives sont beaucoup plus élevées que pour SMX3.

## CHAPITRE 4. MESURES DES INTENSITÉS D'ÉMISSION XL DES ACTINIDES

Tableau 4.3 – Intensités absolues des raies individuelles XL et  $\gamma$  émises par le  $^{238}\text{Pu}$  mesurées par SMX3. Cette mesure est basée sur un transfert de rendement effectué en considérant une source homogène, les intensités définitives corrigées de l'effet de l'hétérogénéité de la source seront publiées dans une revue scientifique .

IUPAC	Siegbahn	Énergie (eV) [85]	Intensité absolue pour 100 désintégrations
L <sub>1</sub> L <sub>3</sub>		4590	0,0030 (7)
L <sub>3</sub> M <sub>1</sub>	L $\iota$	11619,2	0,2525 (39)
L <sub>3</sub> M <sub>2</sub>	L $t$	11982,7	0,00283 (10)
L <sub>3</sub> M <sub>3</sub>	L $s$	12864	0,00339 (12)
L <sub>3</sub> M <sub>4</sub>	L $\alpha_2$	13439,7	0,403 (6)
L <sub>3</sub> M <sub>5</sub>	L $\alpha_1$	13615,6	3,54 (5)
L <sub>2</sub> M <sub>1</sub>	L $\eta$	15399,4	0,1320 (21)
L <sub>3</sub> N <sub>1</sub>	L $\beta_6$	15727,1	0,0649 (11)
L <sub>3</sub> N <sub>4,5</sub>	L $\beta_2$	16386,8/16430	0,873 (13)
L <sub>1</sub> M <sub>2</sub>	L $\beta_{15}$	16575,3	
L <sub>2</sub> M <sub>3</sub>	L $\beta_4$	16648,8	
L <sub>3</sub> N <sub>7</sub>	L $\beta'_7$	16786,2	0,00686 (18)
L <sub>3</sub> O <sub>1</sub>	L $\beta_7$	16842,4	0,01824 (36)
L <sub>3</sub> O <sub>3</sub>		16974	0,00210 (9)
L <sub>3</sub> O <sub>4,5</sub>	L $\beta_5$	17064/17073	0,1663 (26)
L <sub>3</sub> P <sub>1</sub>		17124	
L <sub>2</sub> M <sub>4</sub>	L $\beta_1$	17219	4,25 (6)
L <sub>1</sub> M <sub>3</sub>	L $\beta_3$	17455,5	0,02037 (40)
L <sub>1</sub> M <sub>4</sub>	L $\beta_{10}$	18029,3	0,00164 (8)
L <sub>1</sub> M <sub>5</sub>	L $\beta_9$	18204,9	0,00214 (9)
L <sub>2</sub> N <sub>1</sub>	L $\gamma_5$	19507	0,0360 (6)
L <sub>2</sub> N <sub>3</sub>		19901,3	0,00234 (9)
L <sub>2</sub> N <sub>4</sub>	L $\gamma_1$	20167	1,035 (16)
L <sub>1</sub> N <sub>2</sub>	L $\gamma_2$	20484,5	0,00592 (16)
L <sub>2</sub> N <sub>6</sub>	L $\nu$	20556,8	0,00630 (17)
L <sub>2</sub> O <sub>1</sub>	L $\gamma_8$	20622,2	0,00958 (23)
L <sub>1</sub> N <sub>3</sub>	L $\gamma_3$	20712,5	0,00563 (16)
L <sub>2</sub> O <sub>4</sub>	L $\gamma_6$	20842,5	0,2167 (33)
L <sub>2</sub> P <sub>4</sub>		20943,4	0,00369 (12)
L <sub>1</sub> O <sub>3</sub>	L $\gamma_4$	21498,1	0,00361 (12)
L <sub>1</sub> P <sub>2,3</sub>		21727,3	7,29 (49) · 10 <sup>-4</sup>
Raie $\gamma$			
$\gamma_{(1,0)}$		43498,1	0,0385 (7)

Tableau 4.4 – Intensités relatives et absolues des groupes XL émis par le  $^{238}\text{Pu}$ .

Intensité relative					
	DDEP [12]	Calcul [12]		SMX3 <sup>2</sup>	Écart par rapport au DDEP (%)
XL $\iota$	2,221 (41)	2,20 (5)		2,308 (7)	-4,9
XL $\alpha$	35,6 (5)	35,4 (8)		35,663 (17)	-0,1
XL $\eta\beta$	51,0 (8)	50,7 (12)		50,05 (14)	1,9
XL $\gamma$	11,85 (18)	11,67 (28)		11,982 (43)	-1,1
Intensité absolue					
	DDEP [12]	Calcul [12]	Bemis 1977 [93]	SMX3 <sup>2</sup>	Écart par rapport au DDEP (%)
XL $\iota$	0,235 (4)	0,232 (8)	0,260 (7)	0,2555 (37)	-8,7
XL $\alpha$	3,80 (3)	3,73 (12)	4,06 (7)	3,95 (6)	-3,9
XL $\eta\beta$	5,31 (4)	5,35 (16)	5,85 (9)	5,54 (8)	-4,3
XL $\gamma$	1,28 (1)	1,23 (4)	1,38 (2)	1,327 (19)	-3,7

Tableau 4.5 – Intensités relatives et absolues des émissions dans les régions XL $_i$  (i=1,2,3) mesurées par SMX3<sup>2</sup> et calculées.

Région	Intensité relative		Intensité absolue	
	SMX3	Calcul	SMX3 <sup>2</sup>	Calcul
$I_{L1}$	0,651 (7)	0,520 (43)	0,0720 (12)	0,0549 (20)
$I_{L2}$	51,499 (20)	51,9 (22)	5,70 (9)	5,47 (19)
$I_{L3}$	47,851 (20)	47,6 (8)	5,30 (8)	5,02 (17)

À l'aide des intensités individuelles mesurées par SMX3, les intensités relatives et absolues des groupes XL $_i$  (i=1,2,3) ont été mesurer pour la première fois. Afin de les comparer, ses intensités sont calculées à partir des paramètres fondamentaux atomiques et nucléaires utilisés par la base des données recommandées (tableau 4.5). Contrairement aux intensités des groupes XL (L $\alpha$ , L $\beta$ , L $\eta$ , L $\gamma$ , L $\iota$ ), le calcul des groupes XL $_i$  ne nécessite pas les taux d'émission X individuels [26], mais seulement les coefficients de conversion internes, les probabilités de transition CK et les rendements de fluorescence, ce qui permet de s'affranchir d'une source d'incertitude ou de biais importants associés aux taux d'émission X individuels. Les intensités relatives et absolues des raies XL $_{(2,3)}$  montrent un accord contrairement à la raie XL $_1$  qui présente des écarts de 25% et de 31% respectivement en relatif et en absolu qui ne sont pas couverts par les incertitudes. Malgré cet écart cela permet de dire que les paramètres fondamentaux utilisés sont cohérent.

Dans le cas de  $^{241}\text{Am}$ , les incertitudes sur les intensités de ces régions étaient plus importantes probablement à cause des transitions  $\gamma$  anormales dont les coefficients de conversion

interne ne prennent pas en compte cet effet de pénétration.

Cette comparaison n'est pas possible avec des détecteurs à semi-conducteur car les raies  $XL_1$  et  $XL_2$  sont réparties sur les groupes  $XL\beta$  et  $XL\gamma$ . Il est donc nécessaire de pouvoir séparer les raies individuellement.

Parmi les mesures effectuées de l'intensité absolue XL totale suite à la désintégration de  $^{238}\text{Pu}$ , le DDEP a recommandé la mesure effectuée par P. Jonhston parce qu'elle est la seule compatible avec le calcul effectué par le code de Schönfeld [37, 41]. L'intensité mesurée à l'aide de SMX3<sup>2</sup> n'est pas aberrantes par rapport au calcul, il reviendra à l'évaluateur de données de décroissance lors d'une prochaine évaluation du  $^{238}\text{Pu}$  de prendre en compte cette donnée. La mesure des intensités d'émission XL du  $^{238}\text{Pu}$  par SMX3 a permis d'une part, de détailler individuellement les intensités et d'autre part, de démontrer pour la première fois qu'il était possible de mesurer des intensités absolues de façon métrologique avec un détecteur cryogénique.

## 4.2 Les photons émis par le Curium-244

Le  $^{244}\text{Cm}$  est un actinide mineur qui se désintègre vers le  $^{240}\text{Pu}$  à 100% par émission  $\alpha$  et par fission spontanée dans une proportion de  $1,36 (1) \cdot 10^{-4}$  avec  $3,71 (5) \cdot 10^{-4}$  neutrons émis pour 100 désintégrations. Le  $^{240}\text{Pu}$  se retrouve principalement sur le niveau fondamental (76,7%) et le niveau excité de 42,824 (8) keV (23,4%) comme le montre la figure 4.7. La période du  $^{244}\text{Cm}$  est de 18,11 (3) a et celle du fils, le  $^{240}\text{Pu}$ , est de 6561 (7) a.

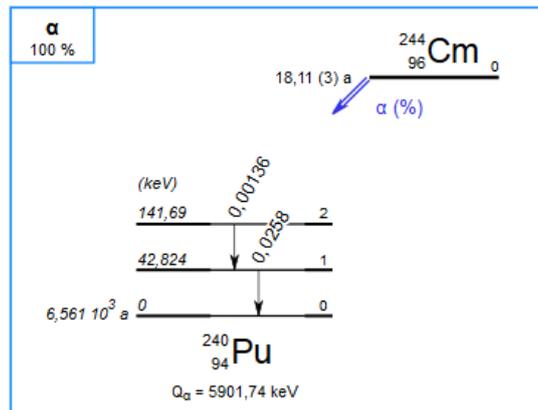


FIGURE 4.7 – Schéma simplifié de désintégration du  $^{244}\text{Cm}$  [12].

L'énergie de la transition  $\gamma_{1,0}$  de 42,824 (8) keV étant fortement convertie au cortège électronique du  $^{240}\text{Pu}$  avec un coefficient de conversion interne totale de  $\alpha_T = 905 (18)$  [12], l'atome ionisé se désexcite en émettant des photons X dont les photons XL sur une gamme d'énergie de 12,125 keV jusqu'à 21,984 keV. Contrairement au cas de  $^{238}\text{Pu}$ , peu d'études expérimentales

ont été réalisées pour mesurer les intensités XL émises par le  $^{244}\text{Cm}$ . Il existe une seule mesure d'intensités absolues des groupes XL référencée par le DDEP [41] et une autre mesure relative des groupes XL [101]. Par ailleurs, il existe des mesures qui concernent les intensités absolues des groupes qui ne sont pas évaluées par le DDEP à cause d'un écart important entre l'intensité absolue de la région XL calculé par Schönfeld [37] et les mesures effectuées [93,98].

#### 4.2.1 Mesure à l'aide de SMX3

Une source de  $^{244}\text{Cm}$  a été préparée au LNHB par électro-précipitation et déposée sur un diamètre de 12 mm sur un disque inoxydable de 25,2 mm de diamètre et de 0,5 mm d'épaisseur (figure 4.8). L'activité de 72,050 (36) kBq au 06/12/2016 à 12h28 (TU) a été mesurée par la méthode ASD. La mesure à l'aide de SMX3 a été effectuée à partir 29/09/2017, l'activité est donc de 69,84 (35) kBq. Vu l'écart des périodes entre le  $^{244}\text{Cm}$  (18,11 (3) a) et le  $^{240}\text{Pu}$  (6561 (7) a), l'activité de ce dernier est négligeable.

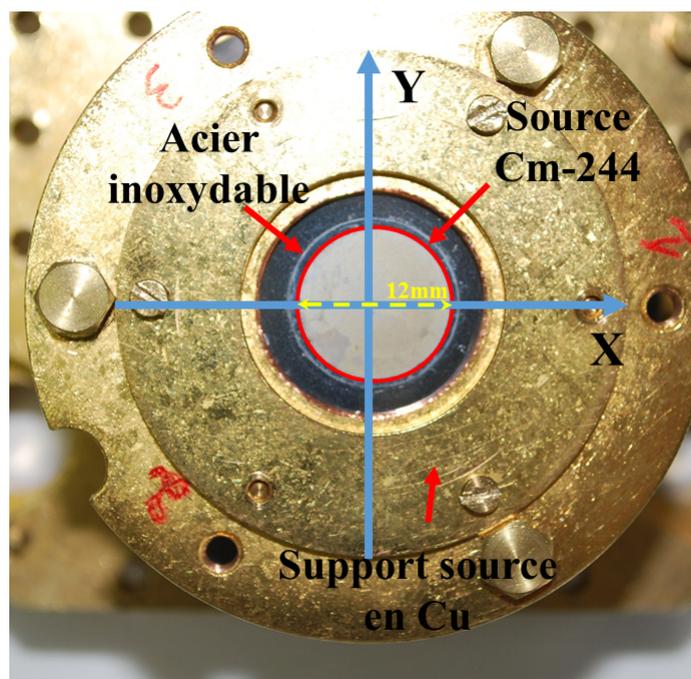


FIGURE 4.8 – Photo de la source de  $^{244}\text{Cm}$  installée face au détecteur SMX3.

L'auto-radiographie de la source de  $^{244}\text{Cm}$  montre une distribution d'activité sur les 12 mm plus homogène que celle du  $^{238}\text{Pu}$ , cependant il y a une activité plus importante sur les bords du disque par rapport au centre (figure 4.9). La mesure de l'activité par ASD a identifié une impureté en  $^{239}\text{Pu}$  de 0,7% (en activité) à 50 % près.

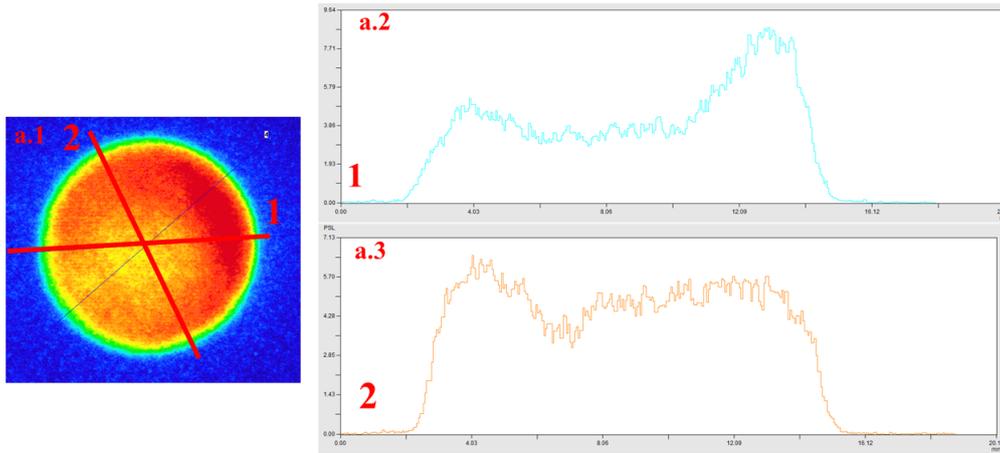


FIGURE 4.9 – (a.1) Auto-radiographie de la source  $^{244}\text{Cm}$  électroprécipitée mesuré par l'imageur *Fuji-film BAS 1800 II* au contact du film. (a.2) profil de l'activité suivant l'axe numéro 1. (a.3) profil de l'activité suivant l'axe numéro 2.

La source a été installée dans SMX3 et mesurée pendant 14 jours dans le réfrigérateur à dilution à une température de 11,9 (1) mK. Le taux de comptage attendu dans la région XL est de  $3,2 \text{ s}^{-1}$ . Le traitement hors ligne montré dans le chapitre 2 a été utilisé afin d'obtenir un spectre par filtrage optimal, dont l'impulsion modèle a une durée de 37,2 ms, avec une résolution en énergie de 37,22 eV à 21,420 keV (raie  $L\gamma_1$ ). La fonction de temps mort donne un temps actif de 258,6 h avec un pourcentage de temps mort de 23,4%.

De la même manière que pour la mesure du  $^{238}\text{Pu}$ , des sauts de lignes de base apparaissent de manière aléatoire supprimant la corrélation entre le niveau de la ligne de base et l'amplitude des impulsions utiles pour la correction des dérives de température (*cf.* chapitre 2, partie 2.3.4.1). Donc, la correction est faite à partir d'une fonction spline  $f(t)$  suivant les amplitudes à une énergie donnée. Dans ce cas aussi, la faible probabilité de la raie  $\gamma_{(1,0)}$  (0,0258 (7) pour 100 désintégrations) ne permet pas de suffisamment échantillonner et de suivre les variations des amplitudes. Donc, les amplitudes de la raie  $XL\gamma_1$  à 21,420 keV ont été utilisées pour corriger la fluctuation des amplitudes.

La non-linéarité a été corrigée et la résolution en énergie a été caractérisée en utilisant les énergies tabulées des raies XK du Fe, Ni, Cu, Mn et les émissions XL du plutonium suffisamment intenses :  $L\beta_1$  (18,296 keV),  $L\gamma_1$  (21,420 keV) et la raie  $\gamma_{1,0}$ . Un polynôme du second degré donne la résolution en fonction de l'énergie pour le spectre :

$$\sigma(E) = 14,17 - 1,14 \cdot 10^{-4} \cdot E + 8,56 \cdot 10^{-9} \cdot E^2 \quad (4.9)$$

avec,

$\sigma(E)$  : largeur de la gaussienne [eV],  
 $E$  : énergie de la raie [eV].

Le spectre obtenu par filtrage optimal a une résolution en énergie de 37,22 eV à 21,420 keV ( $L\gamma_1$ ). La raie  $\gamma_{1,0}$  42,824 (8) keV est ajustée à l'aide d'une gaussienne dont l'amplitude, la largeur à mi-hauteur (61 eV) et l'énergie sont des paramètres d'ajustement libres. D'une manière équivalente aux actinides  $^{241}\text{Am}$  et  $^{238}\text{Pu}$ , les émissions X ont été ajustées à l'aide de fonctions de Voigt avec des largeurs de lorentzienne fixées et les gaussiennes sont fixées avec l'équation 4.9. L'ajustement de la région  $XL\alpha$  montre des émissions  $XL\alpha_1$  et  $XL\alpha_2$  du  $^{239}\text{Pu}$  (figure 4.10) dues à l'impureté dans la source utilisée.

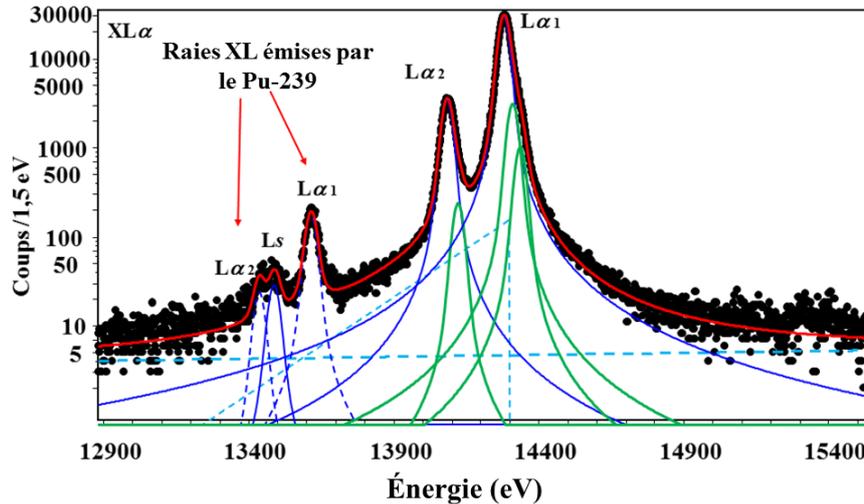


FIGURE 4.10 – Spectre X de la région  $XL\alpha$  du  $^{244}\text{Cm}$ . Il montre des émissions  $L\alpha$  de l'impureté  $^{239}\text{Pu}$ . (Rouge) Ajustement global. (Bleu) Raies diagramme émises par le  $^{244}\text{Cm}$ . (Vert) Raies satellites. (Bleu pointillé) Raies diagramme émises par l'impureté en  $^{239}\text{Pu}$ .

Afin d'éliminer les raies XL de l'impureté de  $^{239}\text{Pu}$ , qui pourraient interférer dans le spectre avec les raies XL du  $^{244}\text{Cm}$ , leur contribution a été soustraite du spectre mesuré. Pour cela le spectre XL du  $^{238}\text{Pu}$  mesuré précédemment a été utilisé, en supposant qu'il est identique à celui du  $^{239}\text{Pu}$ ; en effet, d'après le DDEP, les intensités d'émission relatives des groupes XL des deux isotopes ne diffèrent que de quelques pourcents. L'histogramme en énergie  $S_{purif}(^{244}\text{Cm})$  du  $^{244}\text{Cm}$  est obtenu à partir de l'équation 4.10

$$S_{purif}(^{244}\text{Cm}) = S_{SMX3}(^{244}\text{Cm}) - S_{SMX3}(^{238}\text{Pu}) \frac{N_{239\text{Pu}}(L\alpha_1)}{N_{238\text{Pu}}(L\alpha_1)} \quad (4.10)$$

avec,

$S_{SMX3}(^{244}Cm)$  : spectre qui montre l'impureté de  $^{239}Pu$ ,

$S_{SMX3}(^{238}Pu)$  : spectre de  $^{238}Pu$  mesuré par SMX3,

$N_{239Pu}(L\alpha_1)$  : nombre de photons au pic d'absorption totale de la raie  $L\alpha_1$  détectée dans le spectre du  $^{244}Cm$ ,

$N_{238Pu}(L\alpha_1)$  : nombre de photons au pic d'absorption totale de la raie  $L\alpha_1$  détectée dans le spectre du  $^{238}Pu$ .

Grâce à cette mesure, il a été aussi possible de déterminer plus précisément le taux d'impureté. En utilisant les données recommandées, une impureté de  $^{239}Pu$  de 1,022 (23)% (en activité) a été déterminé par l'équation 4.11.

$$P_{imp} = \frac{A_{239Pu}}{A_{244Cm}} = \frac{N_{L\alpha_1}(^{239}Pu)}{\epsilon_{abs} \cdot I(L\alpha_1) \cdot \Delta t} \cdot \frac{1}{A_{244Cm}} \quad (4.11)$$

$A_{239Pu}$  : activité de l'impureté de  $^{239}Pu$  dans la source de  $^{244}Cm$ ,

$A_{244Cm}$  : activité de la source de  $^{244}Cm$ ,

$N_{L\alpha_1}(^{239}Pu)$  : nombre de photons au pic d'absorption totale de la raie  $L\alpha_1$  émis par le  $^{239}Pu$ ,

$\epsilon_{abs}$  : rendement au pic d'absorption totale après le transfert,

$\Delta t$  : temps actif,

$I(L\alpha_1)$  : intensité de la raie  $L\alpha_1$  du  $^{239}Pu$  recommandée [12].

Comme les spectres des actinides précédemment discutés, le spectre  $XL_3$  du  $^{244}Cm$  possède des raies satellites qui correspondent aux transitions X en présence d'au moins une lacune spectatrice produite par une transition Coster-Kronig. Comme dans le cas du  $^{238}Pu$ , le spectre du  $^{244}Cm$  présente des raies satellites plus faibles par rapport à celles de  $^{241}Am$  comme le montre les régions  $XL\alpha$  et  $XL\beta$  (figures 4.11.b et 4.11.c).

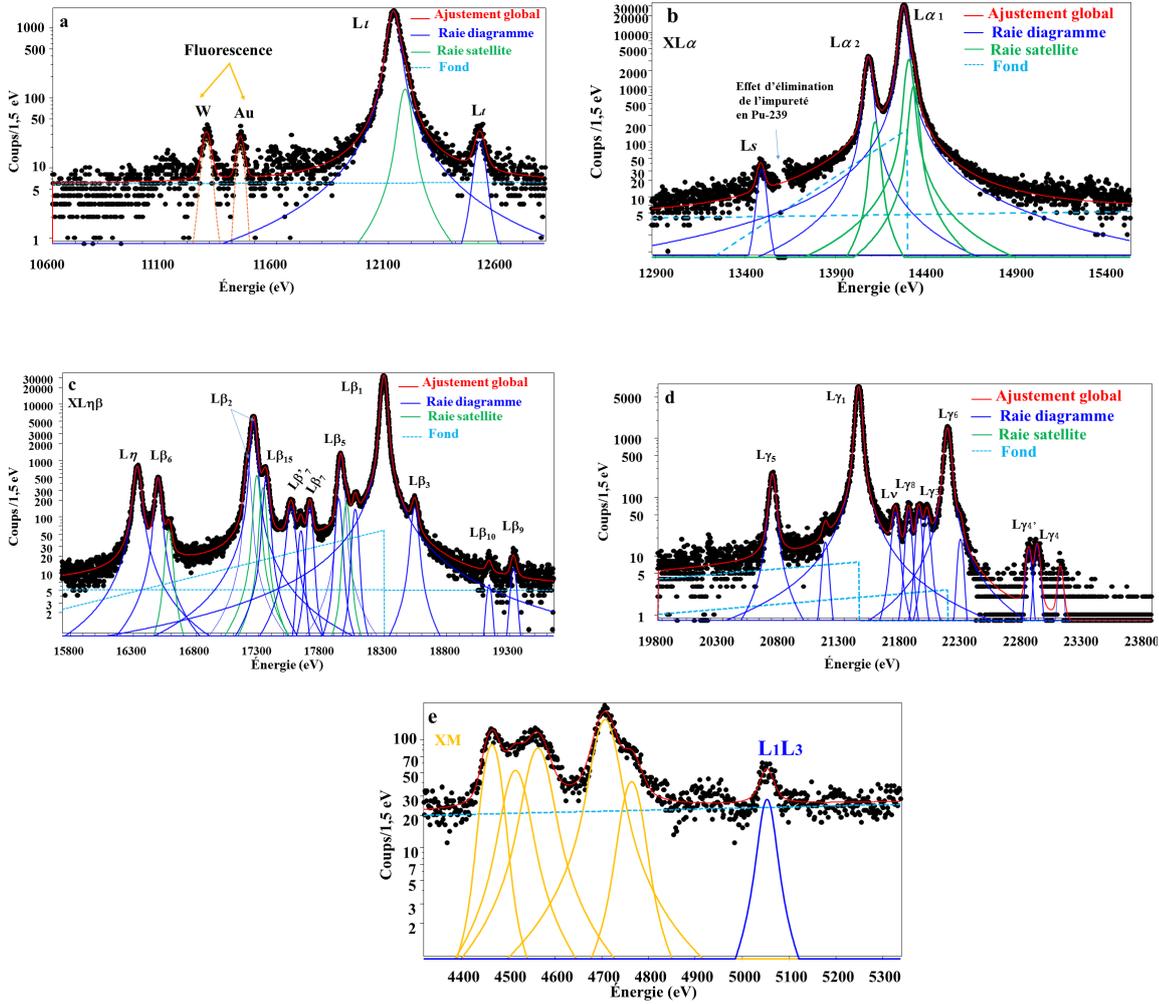


FIGURE 4.11 – Spectre mesuré par SMX3 du  $^{244}\text{Cm}$  (a) Spectre de la région  $\text{XL}\iota$  (b) Spectre de la région  $\text{XL}\alpha$ . (c) Spectre de la région  $\text{XL}\eta\beta$ . (d) Spectre de la région  $\text{XL}\gamma$ . (e) Spectre de la transition  $L_1$ - $L_3$  et des raies XM.

Par exemple, pour la raie  $L_3$ - $M_5$  ( $L\alpha_1$ ), la surface des raies satellites visibles par rapport à la raie à la totalité de la raie  $L_3$ - $M_5$  est de 12,3 % pour le  $^{244}\text{Cm}$  contre 2,2% pour le  $^{238}\text{Pu}$  et 46,3% pour  $^{241}\text{Am}$ . Le nombre des lacunes primaires  $N_p$  créées pour 100 désintégrations par conversion interne peut expliquer cette différence :

$$N_p(L_1) = 1,89 \quad (10) \quad (4.12)$$

$$N_p(L_2) = 52,7 \quad (26) \quad (4.13)$$

$$N_p(L_3) = 45,4 \quad (24) \quad (4.14)$$

La proportion de lacunes primaires en  $L_1$  est faible par rapport à  $L_3$ , donc la proportion des atomes multi-ionisés par les transitions Coster-Kronig  $L_1$ - $L_3$ Y est faible par rapport au cas de  $^{241}\text{Am}$ .

En utilisant les probabilités des transitions CK  $f_{12} = 0,030$  (15),  $f_{13}=0,68$  (10) et  $f_{23} = 0,230$  (12) [38], la distribution des lacunes primaires après ces transitions sont  $V_p(L_1) = 1,68$  (5),  $V_p(L_2) = 46,8$  (32) et  $V_p(L_3) = 51,5$  (36) et la proportion d'atomes multi-ionisés avec une lacune primaire en  $L_3$  est de 21,69 % (équation 4.8) contre 15,4 % pour le  $^{238}\text{Pu}$  et 61,9 % pour  $^{241}\text{Am}$ .

La distribution des lacunes primaires par la conversion interne peut expliquer le fait que les raies satellites du  $^{244}\text{Cm}$  ( $N_p(L_1)=1,68$  (5)) soient plus faibles par rapport à celle de  $^{241}\text{Am}$ . Mais, elles ne peuvent pas expliquer le fait que ces raies satellites soient plus intenses que celles du  $^{238}\text{Pu}$  ( $N_p(L_1)= 1,78$  (7)), elles devraient être quasiment équivalentes.

Les proportions d'atomes multi-ionisés en  $L_3$  par transitions CK  $L_2-L_3Y$  et  $L_1-L_3Y$  sont très proches entre les deux actinides. Les transitions CK  $L_2-L_3Y$  produisent 89,6% (équation 4.15) et 86,9% d'atomes multi-ionisés en  $L_3$  respectivement pour le  $^{244}\text{Cm}$  et le  $^{238}\text{Pu}$ , et les transitions CK  $L_1-L_3Y$  produisent 10,3% (équation 4.16) et 13,1% d'atomes multi-ionisés en  $L_3$  respectivement pour le  $^{244}\text{Cm}$  et le  $^{238}\text{Pu}$ .

$$P_{L_2L_3} = \frac{f_{23} \cdot N_p(L_2)}{f_{23} \cdot N_p(L_2) + (f_{13} + f_{12} \cdot f_{23}) \cdot N_p(L_1)} = 89,6\% \quad (4.15)$$

$$P_{L_1L_3} = \frac{(f_{13} + f_{12} \cdot f_{23}) \cdot N_p(L_1)}{f_{23} \cdot N_p(L_2) + (f_{13} + f_{12} \cdot f_{23}) \cdot N_p(L_1)} = 10,3\% \quad (4.16)$$

Pour expliquer cette différence, il faut utiliser les calculs des probabilités des transitions CK effectués par Chen *et al.* [90]. Pour le  $^{240}\text{Pu}$  (noyau fils de la désintégration du  $^{244}\text{Cm}$ ), la transition CK de type  $L_2-L_3M_4$  est permise et représente 42,88% des transitions  $L_2-L_3Y_j$  avec ( $Y = M, N, O, P$  et  $j = 1, 2, 3, \dots, 7$ ). Les transitions CK  $L_2-L_3M$  produisent des raies satellites visibles avec une lacune spectatrice en M correspondant à 65,84% des transitions  $L_2-L_3Y$ . Cependant, pour le  $^{238}\text{Pu}$ , la transition  $L_2-L_3M_4$  n'est pas permise pour  $^{234}\text{U}$  (noyau fils de la désintégration du  $^{238}\text{Pu}$ ) et les transitions CK  $L_2-L_3M$  ne représentent que 30,93% des transitions  $L_2-L_3Y$ . Par le biais de cette transition, le  $^{244}\text{Cm}$  possède une probabilité plus importante d'avoir des états multi-ionisés avec une lacune spectatrice en M par rapport au cas du  $^{238}\text{Pu}$ . Par conséquent, le  $^{244}\text{Cm}$  possède des raies satellites plus intenses du fait de la transition CK  $L_2-L_3M_4$ .

Ainsi, la proportion des lacunes primaires en  $L_3$  créées par les transitions CK  $L_2-L_3M$  est estimée à 12,80% pour le  $^{244}\text{Cm}$  et 1,64% de ces lacunes sont créées par les transitions  $L_1-L_3M$ , donc ce qui justifie que les raies satellites soient essentiellement générées par les transitions CK de type  $L_2-L_3Y$ .

Expérimentalement, en prenant les surfaces des fonctions de Voigt utilisées pour ajuster les raies satellites, dans la région  $XL_3$ , il y a 19,27% de raies satellites observables contre 3,4% pour le  $^{238}\text{Pu}$  et 27% pour  $^{241}\text{Am}$ . Théoriquement, 14,48% des lacunes primaires dans la sous-couche  $L_3$  ont été créées par des transitions CK  $L_1-L_3$  et  $L_2-L_3$  en présence d'une lacune spectatrice en  $M$ , ce qui est compatible avec la proportion des raies satellites observées dans le spectre.

Dans cette mesure, la transition  $L_1-L_3$  a également été détectée à une énergie de 5,054 keV dans la région des émissions  $XM$  comme le montre la figure 4.11.e.

### 4.2.2 Mesure des intensités absolues

De manière équivalente à celle de la mesure du  $^{238}\text{Pu}$  et de  $^{241}\text{Am}$ , l'analyse des spectres permet d'extraire les surfaces des pics d'absorption totale. Contrairement au cas du  $^{238}\text{Pu}$ , la source du  $^{244}\text{Cm}$  possède un décentrage moins important comme le montre la photo de la source dans la figure 4.8. Ce décalage est estimé à 0,25 mm en X et 0,1 mm en Y. Des simulations ont été effectuées pour déterminer l'incertitude sur le transfert de rendement en tenant compte du positionnement de la source et de son orientation par rapport aux pixels du détecteur. Les simulations ont montré que ce décentrage et le transfert de rendement engendrent une incertitude de 0,1% . En ajoutant, la contribution de l'incertitude sur le rendement étalonné autour de la région XL obtenu dans le chapitre 3, le rendement d'absorption totale utilisé pour déterminer les intensités absolues est de  $5,16 \cdot 10^{-4}$  à 0,84% près.

Le tableau 4.6 montre les intensités absolues d'émission des raies individuelles XL absolues du  $^{244}\text{Cm}$ . L'intensité de la région XL totale mesurée par SMX3 est de 9,12<sup>2</sup> (8) pour 100 désintégrations contre 8,92 (23) pour la valeur recommandée et basée sur le calcul de Schönfeld en 2000 [12, 37]. L'écart de 2,2% observé entre la valeur mesurée par SMX3 et la valeur recommandée est couvert par les incertitudes. La figure 4.12 compare la valeur mesurée avec SMX3 et celles publiées dans la littérature.

Un transfert de rendement est effectué afin de mesurer aussi l'intensité de la raie  $\gamma_{(1,0)}$  émise par le  $^{244}\text{Cm}$  à 42,824 keV avec une incertitude de 2,27%. Cette dernière inclut l'incertitude statistique, l'incertitude sur les épaisseurs des absorbeurs déterminée dans le chapitre 3 et l'effet du décentrage de la source sur le rendement après le transfert (0,15%) (Tableau 4.6). En comparant l'intensité de la raie  $\gamma$  mesurée par SMX3 (0,0243<sup>2</sup> (6) pour 100 désintégrations) à celle recommandée [12] (0,0258 (7) pour 100 désintégrations).

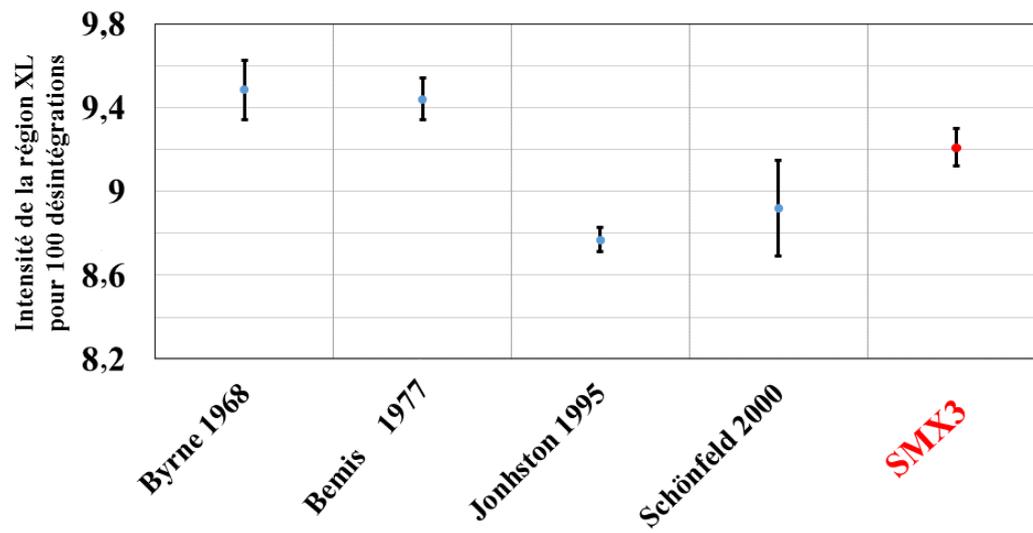


FIGURE 4.12 – Intensités absolues d'émission XL émises par le  $^{244}\text{Cm}$  référencées dans l'évaluation DDEP, la littérature et celle mesurée par SMX3 [12,37,41,93,98].

CHAPITRE 4. MESURES DES INTENSITÉS D'ÉMISSION XL DES ACTINIDES

Tableau 4.6 – Intensités absolues des raies individuelles pour 100 désintégrations de  $^{244}\text{Cm}$  mesurées par SMX3. Cette mesure est basée sur un transfert de rendement effectué en considérant une source homogène, les intensités définitives corrigées de l'effet de l'hétérogénéité de la source seront publiées dans une revue scientifique.

IUPAC	Siegbahn	Énergie (eV) [85]	Intensité individuelle pour 100 désintégrations
L <sub>1</sub> -L <sub>3</sub>		5054	0,00249 (9)
L <sub>3</sub> -M <sub>1</sub>	L $\iota$	12124	0,2343 (24)
L <sub>3</sub> -M <sub>2</sub>	L $t$	12510	0,00279 (10)
L <sub>3</sub> -M <sub>3</sub>	L $s$	13497	0,002854 (24)
L <sub>3</sub> -M <sub>4</sub>	L $\alpha_2$	14085,4	0,3333 (28)
L <sub>3</sub> -M <sub>5</sub>	L $\alpha_1$	14280,9	3,152 (31)
L <sub>2</sub> -M <sub>1</sub>	L $\eta$	16333	0,1038 (12)
L <sub>3</sub> -N <sub>1</sub>	L $\beta_6$	16498	0,0579 (7)
L <sub>3</sub> -N <sub>4,5</sub>	L $\beta_2$	17259	0,774 (8)
L <sub>1</sub> -M <sub>2</sub>	L $\beta_{15}$	17557	
L <sub>3</sub> -N <sub>7</sub>	L $\beta_{7'}$	17635,9	0,00490 (13)
L <sub>3</sub> -O <sub>1</sub>	L $\beta_7$	17707	0,0627 (8)
L <sub>3</sub> -O <sub>4,5</sub>	L $\beta_5$	17955	0,0813 (9)
L <sub>3</sub> -P <sub>1</sub>		18067,8	0,01188 (22)
L <sub>2</sub> -M <sub>4</sub>	L $\beta_1$	18296,2	3,241 (32)
L <sub>1</sub> -M <sub>3</sub>	L $\beta_3$	18541	0,01768 (29)
L <sub>1</sub> -M <sub>4</sub>	L $\beta_{10}$	19134	$6,96 (46) \cdot 10^{-4}$
L <sub>1</sub> -M <sub>5</sub>	L $\beta_9$	19329	0,00134 (6)
L <sub>2</sub> -N <sub>1</sub>	L $\gamma_5$	20707	0,02866 (21)
L <sub>2</sub> -N <sub>3</sub>		21143	0,00190 (8)
L <sub>2</sub> -N <sub>4</sub>	L $\gamma_1$	21420,4	0,794 (8)
L <sub>1</sub> -N <sub>2</sub>	L $\gamma_2$	21723,2	0,00685 (16)
L <sub>2</sub> -N <sub>6,7</sub>	L $\nu$	21832,5	0,00567 (16)
L <sub>2</sub> -O <sub>1</sub>	L $\gamma_8$	21917,4	0,00583 (14)
L <sub>1</sub> -N <sub>3</sub>	L $\gamma_3$	21983,3	0,00561 (14)
L <sub>2</sub> -O <sub>4</sub>	L $\gamma_6$	22152,4	0,1830 (19)
L <sub>1</sub> -N <sub>4</sub>		22259	
L <sub>1</sub> -O <sub>2</sub>	L $\gamma_{4'}$	22821	0,00132 (6)
L <sub>1</sub> -O <sub>3</sub>	L $\gamma_4$	22891	0,00156 (7)
L <sub>1</sub> -P <sub>1</sub>		23075	$6,28 (44) \cdot 10^{-4}$
Raie $\gamma$			
$\gamma_{(1,0)}$		42824	0,0243 (6)

Tableau 4.7 – Intensités absolues des groupes XL émis par le  $^{244}\text{Cm}$ .

	Intensité absolue				Intensité relative	
	Johnston 1995 [41]	Bemis 1977 [93]	Calcul [12]	SMX3	Popov 1990 [101]	SMX3 <sup>2</sup>
L $\iota$	0,214 (3)	0,25 (1)	0,219 (8)	0,2343 (24)	5,3 (8)	5,440 (25)
L $\alpha$	3,38 (3)	3,86 (7)	3,42 (11)	3,488 (34)	72 (7)	80,04 (29)
L $\eta$			0,092 (4)	0,1038 (12)	100	100
L $\beta$	4,18 (3)	4,30 (7)	4,21 (14)	4,254 (42)		
L $\gamma$	0,991 (8)	1,03 (2)	0,97 (4)	1,035 (10)	22,4 (23)	23,75 (13)

Tableau 4.8 – Intensités relatives et absolues<sup>2</sup> des émissions dans la région XL $_i$  (i=1,2,3) mesurées par SMX3 et calculées.

Région	Intensité relative		Intensité absolue	
	SMX3	Calcul [12]	SMX3 <sup>2</sup>	Calcul [12]
$I_{L1}$	0,638 (11)	0,594 (29)	0,0604 (7)	0,0530 (22)
$I_{L2}$	47,76 (33)	47,6 (19)	4,356 (43)	4,25 (17)
$I_{L3}$	51,50 (26)	51,8 (22)	4,698 (46)	4,62 (16)

Le tableau 4.7 montre les intensités absolues des groupes XL mesurées par SMX3 comparées aux intensités recommandées issues de la mesure de P. Johnston en 1995 [41]. Une autre mesure a été effectuée par Bemis en 1977 [93]. Il montre également les intensités relatives mesurées par Popov [101]. Les mesures issues de SMX3 sont compatibles dans le cas des émissions relativement intenses.

Les intensités XL $_i$  (i=1,2,3) ont été déterminées à partir de la mesure par SMX3<sup>2</sup>, afin de les comparer aux valeurs calculées à partir des paramètres fondamentaux atomiques et nucléaires utilisées par le DDEP [12].

Les intensités relatives et absolues des groupes XL $_i$  issues de la mesure de SMX3 sont montrées dans le tableau 4.8. Les intensités absolues des raies XL individuelles émises par le  $^{244}\text{Cm}$  ont pu être mesurées par SMX3 avec une incertitude relative de 1 % au mieux. Cette incertitude est meilleure que pour le cas du  $^{238}\text{Pu}$  du fait d'un meilleur positionnement de la source. Les valeurs mesurées par SMX3 sont en bon accord avec l'intensité XL et les intensités recommandées.



### 4.3 Les photons émis par le Plutonium-239

Le  $^{239}\text{Pu}$  de période 24100 (11) a, est un actinide majeur qui se désintègre à 100% par émission  $\alpha$  vers le  $^{235}\text{U}$ . Ce dernier se retrouve principalement dans le niveau fondamental ou l'un des niveaux excités  $\gamma_{1,0}$  (0,0765 (4) keV),  $\gamma_{2,1}$  (12,975 (10) keV) et  $\gamma_{4,1}$  (51,624 (1) keV) (figure 4.13).

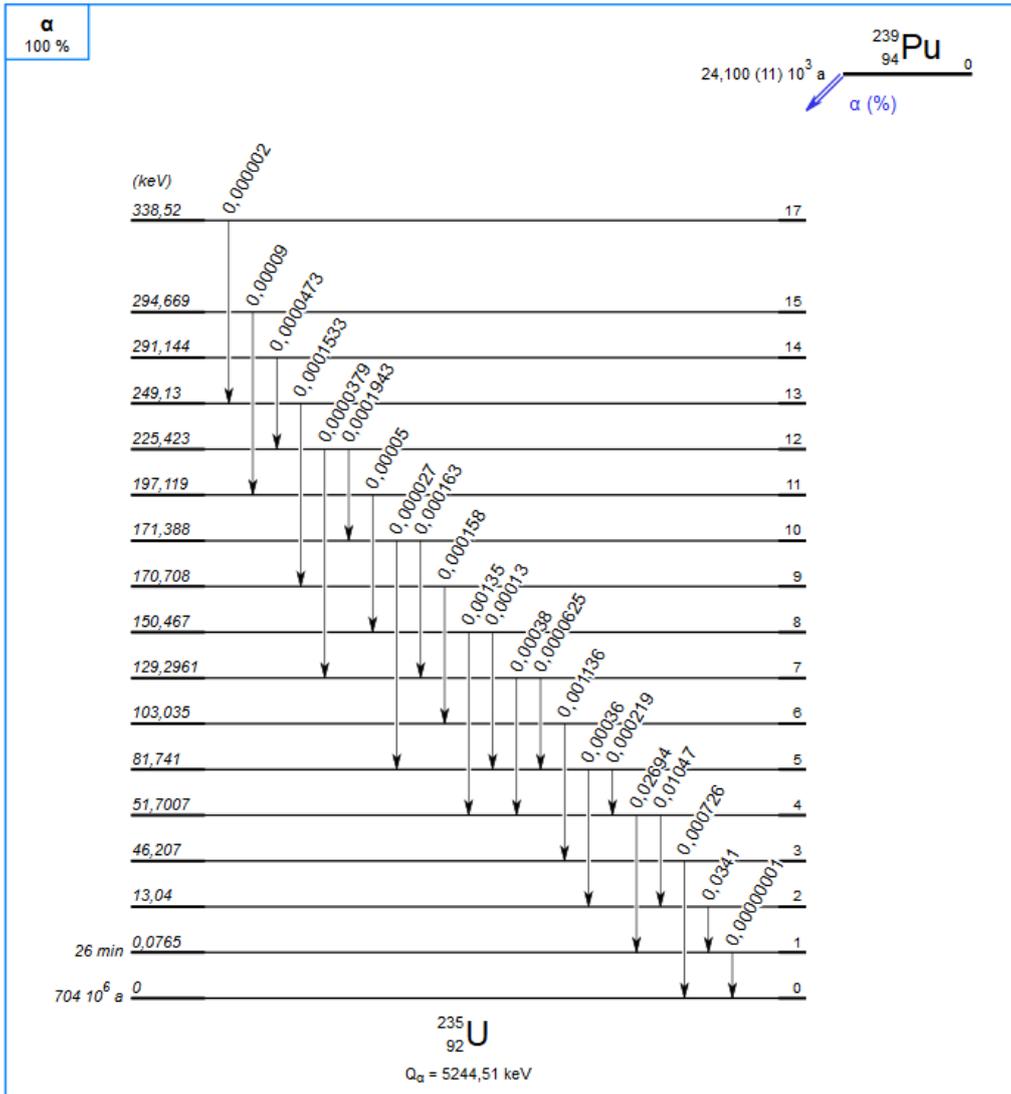


FIGURE 4.13 – Schéma simplifié de désintégration du  $^{239}\text{Pu}$  [12].

Suite à la conversion interne, l'atome peut se désexciter en émettant des photons XL dont l'intensité est de 4,66 (5) pour 100 désintégrations [12]. Des mesures ont été effectuées afin de déterminer les intensités absolues des raies XL qui ont été évaluées par le DDEP (tableau 4.9). Les intensités mesurées par C.J. Bland en 1992 [102] et J. Morel en 1994 [103] sont moyennées car elles correspondent au même groupe de recherche.

Les valeurs recommandées sont données par la moyenne pondérée des valeurs mesurées avec des incertitudes qui correspondent aussi à la moyenne pondérée des incertitudes issues de chaque mesure à condition que cette dernière ne soit pas plus petite que la plus faible incertitude mesurée.

Tableau 4.9 – Intensités absolues des émissions XL du  $^{239}\text{Pu}$  évaluées par DDEP [12].

	Bland 1992 [102] et Morel 1994 [103]	Lépy 1994-a [104]	Lépy 1994-b [48]	Évaluée
L $\iota$	0,0996 (11)	0,1027 (21)	0,1016 (17)	0,1008 (11)
L $t$		0,00214 (18)		0,00214 (18)
L $\alpha_2$		0,143 (5)	0,150 (18)	0,146 (13)
L $\alpha_1$		1,507 (19)	1,498 (31)	1,503 (22)
L $\eta$	0,0566 (10)	0,0498 (10)	0,0544 (9)	0,0537 (19)
L $\beta$	2,301 (23)	2,27 (4)	2,28 (5)	2,288 (23)
L $\gamma$	0,568 (6)	0,564 (10)	0,579 (14)	0,569 (6)

Malgré ces différentes études, la connaissance des intensités d'émission XL est limitée, car aucune information n'est fournie sur les intensités d'émission individuelles. SMX3 est également utilisée pour mesurer ces intensités et les résultats seront présentés par la suite.

### 4.3.1 Mesure à l'aide de SMX3

Une source de  $^{239}\text{Pu}$  a été préparée au LNHB par électro-précipitation sur un disque en acier inoxydable de 1,04 mm avec un diamètre actif de 12 mm. Son activité mesurée par la technique ASD est égale à 117,34 (31) kBq au 20/10/2017 à 12h00 TU. Cette mesure montre la présence d'impuretés, principalement de  $^{238}\text{Pu}$  et de  $^{241}\text{Am}$ . L'autoradiographie présentée dans la figure 4.14 montre une distribution plutôt homogène de l'activité sur la surface du dépôt. Il faut noter que les intensités présentées ont été mesurées à l'aide d'une seule voie d'acquisition ne comportant que deux pixels après la perte de l'autre voie dans le détecteur. L'étalonnage du rendement ne pourra donc pas être utilisé sur une mesure par une seule voie, seules les intensités relatives seront présentées dans la suite.

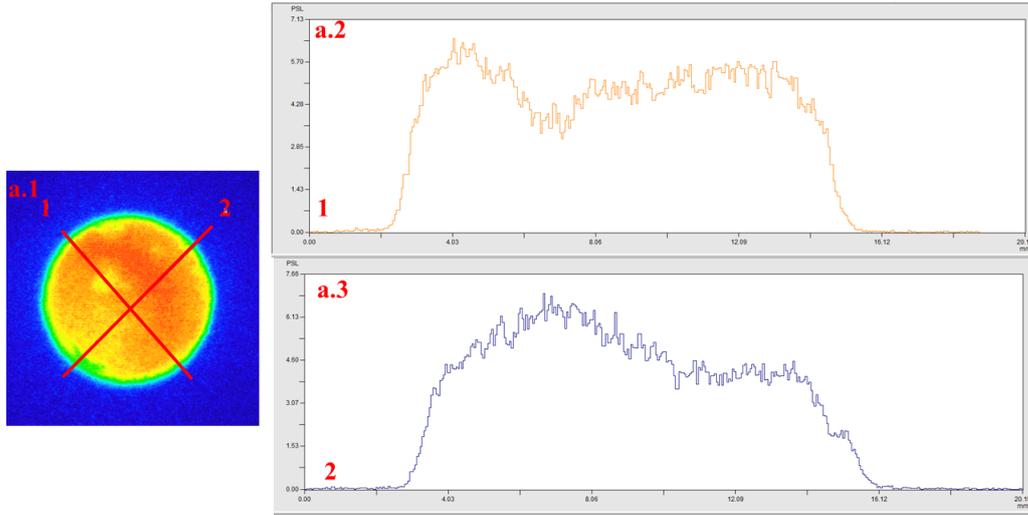


FIGURE 4.14 – (a.1) Auto-radiographie de la source de  $^{239}\text{Pu}$  mesurée par l'imageur *Fujifilm BAS 1800 II* au contact du film (a.2) profil de l'activité suivant l'axe numéro 1. (a.3) profil de l'activité suivant l'axe numéro 2.

La fonction de temps mort a déterminé un temps actif de 289 h et 11,42% de temps mort. Le taux de comptage est de  $3,39 \text{ s}^{-1}$ . Les fluctuations d'amplitude ont été corrigées à l'aide d'une fonction spline  $f_{Amp}(t)$  déterminée sur les amplitudes à l'énergie de la raie  $\gamma$  de 59,54 keV issue de l'impureté de  $^{241}\text{Am}$ . Un spectre de résolution en énergie égale à 45,1 eV à 20,18 keV (raie  $L\gamma_1$ ) est ainsi obtenu par filtrage optimal dont l'impulsion modèle a une durée de 37,22 ms. La non-linéarité a été corrigée et la résolution en énergie a été caractérisée en utilisant les énergies tabulées des raies XK du Fe, Ni, Cu, Mn et l'émission XL de l'uranium suffisamment intense  $L\gamma_1$  (20,18 keV) et la raie  $\gamma_{4,1}$ . Un polynôme du second degré donne la résolution en fonction de l'énergie pour le spectre :

$$\sigma(E) = 17,59 + 9,07 \cdot 10^{-5} \cdot E + 1,69 \cdot 10^{-9} \cdot E^2 \quad (4.17)$$

avec

$\sigma(E)$  : écart-type en eV de la gaussienne,

$E$  : énergie de la raie en eV.

Cette résolution en énergie est moins bonne que lors des mesures précédentes. Au cours de la thèse, nous avons observé une tendance à la dégradation de la résolution en énergie entre les mesure de l' $^{241}\text{Am}$  et celle du  $^{239}\text{Pu}$ . L'origine de cette tendance n'a pas été identifiée, il faudrait faire des mesures et des analyses spécifiques pour savoir si le problème provient d'une perte de sensibilité des senseurs, ou d'une capacité thermique additionnelle.

Pour éliminer l'impureté de  $^{241}\text{Am}$ , le spectre  $S_{purif}(^{239}\text{Pu})$  de  $^{239}\text{Pu}$  a été obtenu par

l'équation 4.18

$$S_{purif}(^{239}\text{Pu}) = S_{SMX3}(^{239}\text{Pu}) - S_{SMX3}(^{241}\text{Am}) \frac{N_{239\text{Pu}}(\gamma_{(2,0)})}{N_{241\text{Am}}(\gamma_{(2,0)})} \quad (4.18)$$

$S_{purif}(^{239}\text{Pu})$  : spectre obtenu après l'élimination de l'impureté,

$S_{SMX3}(^{239}\text{Pu})$  : spectre obtenu mesuré avec l'impureté,

$S_{SMX3}(^{241}\text{Am})$  : spectre de  $^{241}\text{Am}$  mesuré à l'aide de SMX3 dans le chapitre 3,

$N_{239\text{Pu}}(\gamma_{(2,0)})$  : nombre de photons au pic d'absorption totale de la raie  $\gamma_{(2,0)}$  à 59,54 keV détectée dans le spectre du  $^{239}\text{Pu}$ ,

$N_{241\text{Am}}(\gamma_{(2,0)})$  : nombre de photons au pic d'absorption totale de la raie à 59,54 keV détectée dans le spectre  $S_{SMX3}(^{241}\text{Am})$ .

Donc le taux d'impureté en  $^{241}\text{Am}$  est de 1,19 (39)% déterminée par l'équation 4.19.

$$P_{imp} = \frac{A_{241\text{Am}}}{A_{239\text{Pu}}} = \frac{N_{239\text{Pu}}(\gamma_{(2,0)})}{\epsilon_{int,\gamma_{(2,0)}} \cdot N_{239\text{Pu}}(XL)} \cdot \frac{I_{XL,\text{Pu}-239}}{I_{rec,\gamma_{(2,0)}}} \quad (4.19)$$

avec,

$P_{imp}$  : taux d'impureté dans la source de  $^{239}\text{Pu}$ ,

$A_{241\text{Am}}$  : activité de l'impureté de  $^{241}\text{Am}$  dans la source de  $^{239}\text{Pu}$ ,

$A_{239\text{Pu}}$  : activité de la source de  $^{239}\text{Pu}$ ,

$N_{239\text{Pu}}(\gamma_{(2,0)})$  : nombre de photons au pic d'absorption totale de la raie  $\gamma_{(2,0)}$  à 59,540 keV détectée dans le spectre du  $^{239}\text{Pu}$ ,

$N_{239\text{Pu}}(XL)$  : nombre de photons détectés dans la totalité de la région XL,

$I_{XL,\text{Pu}-239}$  : intensité absolue de la région XL recommandée par le DDEP [12],

$I_{rec,\gamma_{(2,0)}}$  : intensité absolue de la raie  $\gamma_{(2,0)}$  de  $^{241}\text{Am}$  recommandée par le DDEP [12].

Pour éliminer l'impureté de  $^{238}\text{Pu}$ , à l'aide du certificat fourni avec la solution du  $^{239}\text{Pu}$ , le pourcentage de l'activité massique a été identifié à 0,78%. En utilisant les intensités des régions  $XL_i$  des isotopes  $^{239}\text{Pu}$  (qui seront présentées dans la suite, mais sans la contribution du  $^{238}\text{Pu}$ ) et  $^{238}\text{Pu}$  le nombre de coups qui devrait être éliminé des intensités des raies du  $^{239}\text{Pu}$ , est donnée par l'équation 4.20.

$$N_{L_i Y_j}^8 = \frac{A_{238\text{Pu}}}{A_{239\text{Pu}}} \cdot \frac{N_{L_i Y_j}^9 \cdot I_{XL_i}^8}{I_{XL_i}^9} \quad (4.20)$$

avec,

$i=1,2,3$  et  $1 < j < 7$

$N_{L_i Y_j}^8$  : nombre de coups de la transition  $L_i Y_j$  qui correspond au  $^{238}\text{Pu}$  à éliminer,

$A_{238Pu}$  : activité du  $^{238}\text{Pu}$  dans la source de  $^{239}\text{Pu}$ ,

$A_{239Pu}$  : activité du  $^{239}\text{Pu}$ ,

$N_{L_i Y_j}^9$  : nombre de coups de la transition  $L_i Y_j$  mesurés dans le spectre du  $^{239}\text{Pu}$  y compris le  $^{238}\text{Pu}$ ,

$I_{XL_i}^8$  : intensité recommandée de la région  $XL_i$  émise par le  $^{238}\text{Pu}$ ,

$I_{XL_i}^9$  : intensité recommandée de la région  $XL_i$  émise par le  $^{239}\text{Pu}$ .

Pareillement aux actinides présentés précédemment, le spectre  $XL_3$  présente des raies satellites produites par des transitions CK qui correspondent à 9,2% des raies observées dans cette région. Par exemple, la raie  $L_3-M_5$  ( $L\alpha_1$  figure 4.15.b) observée dans le spectre du  $^{239}\text{Pu}$  correspond à 10,33% de la surface totale de la raie. Par comparaison, le  $^{239}\text{Pu}$  possède une raie satellite moins intense que celle de  $^{241}\text{Am}$  (46,3%) et du  $^{244}\text{Cm}$  (12,3%) mais plus intense que celle du  $^{238}\text{Pu}$  (2,2%). Ceci peut être expliqué également par le calcul de la distribution des lacunes primaires produites par conversion interne pour 100 désintégrations dans le cas du  $^{239}\text{Pu}$ . L'équation 4.21 montre que pour 100 désintégrations 7,21% des lacunes primaires sont créées par conversion interne dans la sous-couche  $L_1$  contre 1,78% pour le  $^{238}\text{Pu}$ , 24,1% pour  $^{241}\text{Am}$  et 1,89% pour le  $^{244}\text{Cm}$ . Le fait que cette proportion soit plus importante pour le  $^{239}\text{Pu}$  que celle pour le  $^{238}\text{Pu}$  implique que la proportion d'atomes de  $^{239}\text{Pu}$  multi-ionisés à travers les transitions CK  $L_1-L_3 Y$  l'est aussi, par conséquent les raies satellites observées dans le spectre du  $^{239}\text{Pu}$  sont plus intenses.

Cependant, cette explication ne justifie pas le rapport d'intensités des raies satellites observé dans le cas du  $^{239}\text{Pu}$  comparé au  $^{244}\text{Cm}$ . L'intensité plus importante de ces raies pour le  $^{244}\text{Cm}$  est plutôt expliquée par une probabilité d'ionisation importante par la transition  $L_2 L_3 M_4$  dans le cas du  $^{244}\text{Cm}$  (voir partie 4.2.1), dans le cas du  $^{238,239}\text{Pu}$ , cette transition n'est pas permise [90].

$$N_p(L_1) = 7,21 \quad (18) \tag{4.21}$$

$$N_p(L_2) = 50,2 \quad (12) \tag{4.22}$$

$$N_p(L_3) = 42,6 \quad (11) \tag{4.23}$$

avec,

$N_p(L_i)$  : Distribution de lacunes primaires par conversion interne dans la  $i^{\text{ème}}$  sous-couche L. Dans cette mesure, la transition  $L_1-L_3$  est observée dans la région des raies XM (figure 4.15.e); elle sera introduite dans le calcul des intensités relatives dans la section suivante.

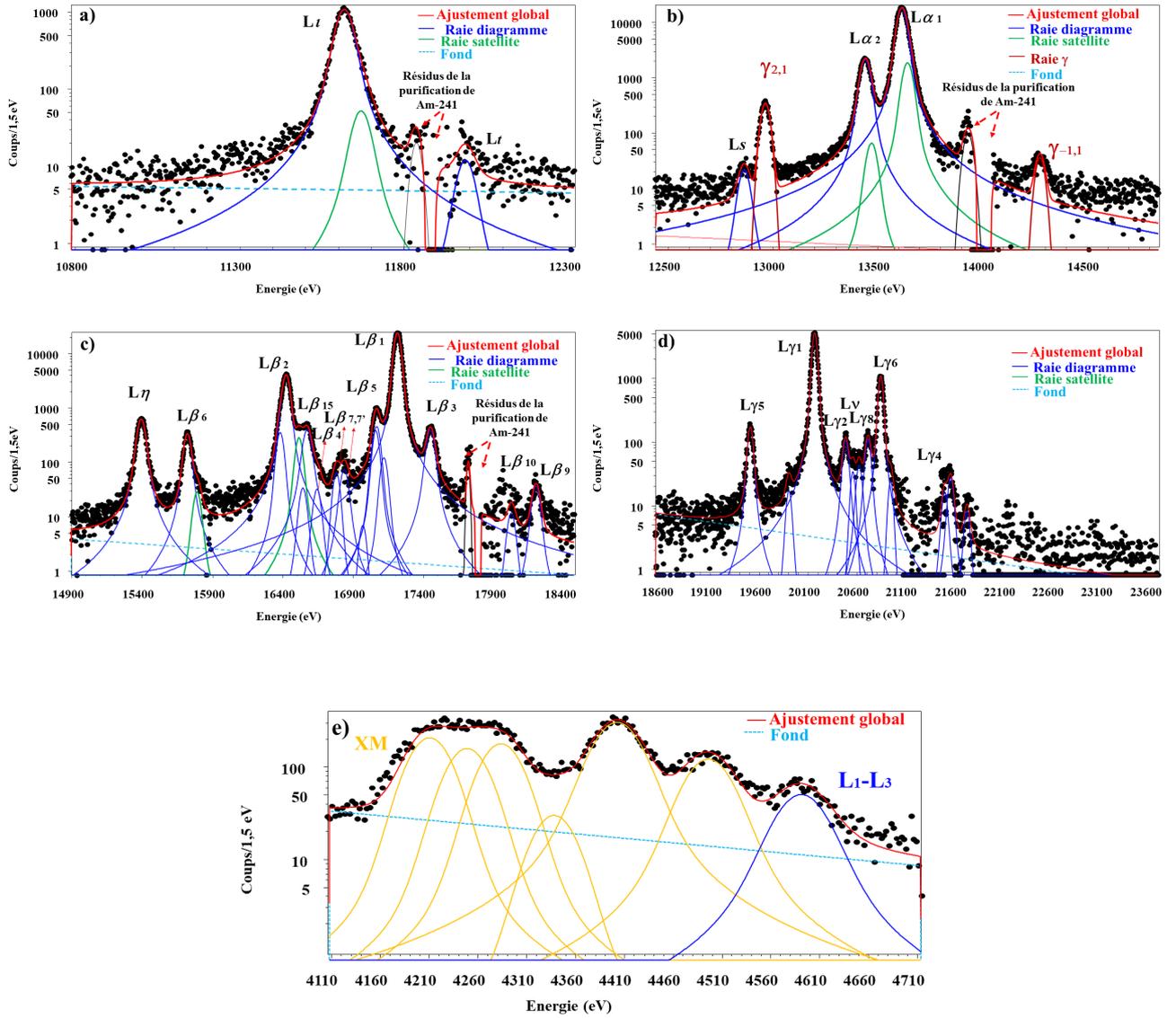


FIGURE 4.15 – Spectre de  $^{239}\text{Pu}$  mesuré par SMX3 (a) Spectre X de la région  $L_t$  (b) Spectre X de la région  $L\alpha$  (c) Spectre X de la région  $L\beta$  et de la raie  $L\eta$  (d) Spectre X de la région  $L\gamma$  (e) Région du spectre qui montre la transition  $L_1-L_3$  (bleu) et les transitions XM (jaune).

### 4.3.2 Mesure des intensités relatives

Pour déterminer les intensités relatives, les surfaces des raies doivent être normalisées par rapport à une raie de référence.

$$I_{L_i Y_j}^{rel} = \frac{\frac{N_{L_i Y_j}}{\epsilon_{int}^{L_i Y_j}}}{\frac{N_{ref}}{\epsilon_{int}^{ref}}} \quad (4.24)$$

avec,

$I_{L_i Y_j}^{rel}$  : intensité relative de la raie  $L_i$ - $Y_j$ ,

$N_{L_i Y_j}$  : nombre de photons absorbés dans le pic d'absorption totale de la transition  $L_i$ - $Y_j$ ,

$N_{ref}$  : Somme totale des surfaces des raies XL.

$\epsilon_{int}^{ref}$  : rendement intrinsèque à la raie de référence,

$\epsilon_{int}^{L_i Y_j}$  : rendement intrinsèque à la raie de  $L_i$ - $Y_j$ .

En général, l'incertitude va dépendre alors de l'incertitude statistique de comptage sur la raie mesurée ainsi que sur la raie de référence et de l'incertitude sur le rendement intrinsèque. Dans cette mesure les surfaces des raies sont normalisées par rapport à la somme totale des intensités XL y compris l'intensité de la raie  $L_1$ - $L_3$  qui a pu être mesurée. Cette normalisation permet d'éliminer l'incertitude sur l'intensité de la raie de référence. Les intensités relatives mesurées par SMX3 (une voie d'acquisition) sont montrées dans le tableau 4.10. Les intensités des raies  $\gamma_{(2,1)}$  et  $\gamma_{(-1,1)}$  sont également présentées relativement à la totalité de la région XL. À partir de la composition de la source électro-précipitée et en supposant un dépôt homogène sur sa surface, on peut calculer une épaisseur du dépôt de  $4,5 \mu\text{m}$ , ce qui engendre des effets d'auto-absorption des émissions XL prise en compte par simulation Monte Carlo. Les intensités présentées dans ce tableau ont donc été corrigées de cet effet.

CHAPITRE 4. MESURES DES INTENSITÉS D'ÉMISSION XL DES ACTINIDES

Tableau 4.10 – Intensités relatives des raies  $\gamma$  et XL individuelles émises par le  $^{239}\text{Pu}$  mesurées par SMX3.

IUPAC	Siegbahn	Énergie (eV)	Intensité relative (% XL)
L <sub>1</sub> L <sub>3</sub>		4590	0,154 (12)
L <sub>3</sub> M <sub>1</sub>	L $\iota$	11619,2	2,336 (14)
L <sub>3</sub> M <sub>2</sub>	L $t$	11982,7	0,0241 (8)
L <sub>3</sub> M <sub>3</sub>	L $s$	12864	0,0311 (9)
L <sub>3</sub> M <sub>4</sub>	L $\alpha$ 2	13439,7	3,633 (17)
L <sub>3</sub> M <sub>5</sub>	L $\alpha$ 1	13615,6	32,05 (13)
L <sub>2</sub> M <sub>1</sub>	L $\eta$	15399,4	1,191 (7)
L <sub>3</sub> N <sub>1</sub>	L $\beta$ 6	15727,1	0,5877 (46)
L <sub>3</sub> N <sub>4,5</sub>	L $\beta$ 2	16386,8/16430	8,554 (36)
L <sub>1</sub> M <sub>2</sub>	L $\beta$ 15	16575,3	
L <sub>2</sub> M <sub>3</sub>	L $\beta$ 4	16648,8	
L <sub>3</sub> N <sub>7</sub>	L $\beta$ ' <sub>7</sub>	16786,2	0,0467 (12)
L <sub>3</sub> O <sub>1</sub>	L $\beta$ 7	16842,4	0,1153 (19)
L <sub>3</sub> O <sub>3</sub>		16974	0,00739 (46)
L <sub>3</sub> O <sub>4,5</sub>	L $\beta$ 5	17064/17073	1,448 (8)
L <sub>3</sub> P <sub>1</sub>		17124	
L <sub>2</sub> M <sub>4</sub>	L $\beta$ 1	17219	37,20 (15)
L <sub>1</sub> M <sub>3</sub>	L $\beta$ 3	17455,5	0,710 (5)
L <sub>1</sub> M <sub>4</sub>	L $\beta$ 10	18029,3	0,0217 (8)
L <sub>1</sub> M <sub>5</sub>	L $\beta$ 9	18204,9	0,0628 (14)
L <sub>2</sub> N <sub>1</sub>	L $\gamma$ 5	19507	0,3242 (31)
L <sub>2</sub> N <sub>3</sub>		19901,3	0,0332 (10)
L <sub>2</sub> N <sub>4</sub>	L $\gamma$ 1	20167	9,011 (30)
L <sub>1</sub> N <sub>2</sub>	L $\gamma$ 2	20484,5	0,2272 (26)
L <sub>2</sub> N <sub>6</sub>	L $\nu$	20556,8	0,0581 (13)
L <sub>2</sub> O <sub>1</sub>	L $\gamma$ 8	20622,2	0,0667 (14)
L <sub>1</sub> N <sub>3</sub>		20712,5	0,0256 (9)
L <sub>2</sub> O <sub>4</sub>	L $\gamma$ 6	20842,5	0,1743 (23)
L <sub>2</sub> P <sub>4</sub>		20943,4	1,858 (9)
L <sub>1</sub> O <sub>3</sub>	L $\gamma$ 4	21498,1	0,0382 (10)
L <sub>1</sub> P <sub>2,3</sub>		21727,3	0,0181 (7)
Raie $\gamma$			
$\gamma$ (2,1)		12961,1	0,4404 (18)
$\gamma$ (-1,1)		14273,5	0,04449 (16)

De plus, pour comparer cette mesure aux intensités recommandées, les intensités issues de la mesure par SMX3 ont été extraites et sont montrées dans le tableau 4.11. La comparaison avec les valeurs recommandées par le DDEP [12] montre un bon accord pour les groupes L $\beta$ , L $\gamma$

et pour la raie  $L\eta$ . Un écart important de 15,4% trouvé dans le cas de la raie  $L\alpha_2$ . Cependant la raie  $L\alpha_2$  est séparée de seulement 176 eV de la raie 10 fois plus intense  $L\alpha_1$ , ces deux raies ne sont pas séparées par la résolution du détecteur HPGe utilisé pour déterminer la valeur servant de valeur recommandée. Par conséquent, avec une résolution à mi-hauteur de 44,65 eV à 14 keV, la valeur obtenue par SMX3 est plus robuste. Elle est d'ailleurs confirmée par le rapport entre les taux d'émission  $L\alpha_2 / L\alpha_1$ . Scofield donne un rapport des taux d'émission de  $L\alpha_2 / L\alpha_1 = 0,1140$ , parfaitement en accord avec celui obtenu ici de 0,1132 [26]. Alors que le rapport des taux d'émission des valeurs recommandées est de seulement 0,097.

Tableau 4.11 – Intensités relatives des groupes XL émis par le  $^{239}\text{Pu}$  .

	Intensité relative (% XL)	
	SMX3	DDEP [12]
$L\iota$	2,336 (14)	2,163 (33)
$L_t$	0,0241 (8)	0,0517 (39)
$L\alpha_2$	3,630 (17)	3,13 (28)
$L\alpha_1$	32,05 (13)	32,3 (6)
$L\eta$	1,191 (7)	1,152 (43)
$L\beta$	48,75 (13)	49,1 (7)
$L\gamma$	11,83 (32)	12,21 (18)

À l'aide des intensités des raies XL émises individuellement suite à la désintégration du  $^{239}\text{Pu}$ , les intensités des raies  $XL_i$  ( $i=1,2,3$ ) ont été déterminées en tenant en compte de la transition  $L_1-L_3$ . Les résultats sont présentés dans le tableau 4.12 et montrent un bon accord avec les intensités calculées.

Tableau 4.12 – Intensités relatives des émissions dans les régions  $XL_i$  ( $i=1,2,3$ ) mesurées par SMX3 et calculés.

Région	Intensité relative (% XL)	
	SMX3	Calcul [12]
$I_{L1}$	2,090 (12)	2,12 (6)
$I_{L2}$	49,11 (7)	50,3 (16)
$I_{L3}$	46,88 (7)	47,6 (16)

## 4.4 Conclusion sur les mesures d'intensités par SMX3

Les trois actinides  $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{239}\text{Pu}$  et  $^{244}\text{Cm}$  ont été mesurés à l'aide de SMX3 afin de fournir des intensités absolues d'émission avec une incertitude au mieux de 1 %. Suite au transfert du

rendement effectué pour les sources de  $^{238}\text{Pu}$  et  $^{244}\text{Cm}$ , il a été déduit que le positionnement latéral peut affecter l'intensité absolue de la région XL jusqu'à 4% par rapport à l'intensité recommandée. Toutefois, le décalage observé sur les positions de ces deux sources est pris en compte lors du transfert de rendement afin de pouvoir fournir des intensités absolues des émissions  $L_i Y_j$ . Les transferts de rendement ont été basés sur une hypothèse d'une source homogène, donc les intensités fournis dans ce travail ne comporte pas l'effet de l'hétérogénéité de l'activité surfacique. À l'aide des simulations Monte Carlo ces intensités vont être corrigées de cet effet et publiées dans une revue scientifique.

Cependant, lors de la mesure de la source de  $^{239}\text{Pu}$ , une voie d'acquisition a été perdue. Donc, l'étalonnage du rendement n'a pas pu être utilisé et les intensités fournies, dans ce cas, sont relatives à l'intensité totale de la région XL.

Dans les mesures des sources de  $^{239}\text{Pu}$  et  $^{244}\text{Cm}$  des impuretés ont pu être détectées avec des taux d'impureté respectivement de 1,19 (39)% et 1,02 (2)%.

Dans les trois mesures, des raies satellites ont été détectées grâce à la résolution en énergie de SMX3. La comparaison des intensités des raies satellites entre les trois mesures montre une différence importante : 9,2% pour le  $^{239}\text{Pu}$ , 3,4% pour le  $^{238}\text{Pu}$  et 19,27% pour le  $^{244}\text{Cm}$ . Bien que les deux isotopes du Pu décroissent vers l'uranium, les intensités des raies satellites sont différentes et dépendent de l'isotope, donc des structures nucléaires et atomiques du descendant.

Les intensités des régions  $\text{XL}_i$  ( $i=1,2,3$ ), qui ne sont pas mesurables à l'aide d'un détecteur à semi-conducteur, sont aussi différentes et dépendent de l'isotope. L'utilisation des intensités des raies satellites et des régions  $\text{XL}_i$  peut être avantageuse pour l'analyse isotopique des actinides par spectrométrie X à l'aide d'un détecteur cryogénique.

Les performances du détecteur SMX3, en termes de résolution et rendement, ont permis d'obtenir des spectres d'actinides inaccessibles avec les détecteurs conventionnels pour des énergies inférieures à 100 keV. La mise en œuvre d'un traitement hors ligne spécifique et la maîtrise des incertitudes associées aux mesures a permis de mesurer des intensités qui pourront être prises en compte pour compléter les données recommandées actuelles.



Le but de la présente thèse était de déterminer des intensités d'émission absolues de photons XL et  $\gamma$  émis suite à la désintégration des actinides. Jusqu'à présent la connaissance des intensités des émissions XL dans les tables de données était, soit limitée aux intensités des groupes XL, soit totalement inexistante. Il existe des méthodes de calcul permettant d'obtenir une information approximative sur ces intensités. Mais, d'une manière générale, les incertitudes importantes des paramètres fondamentaux se propagent sur les intensités calculées.

Les détecteurs à semi-conducteur ont été largement utilisés pour mesurer les intensités des émissions photoniques de radionucléides. Mais, dans le cas des émissions XL des actinides, l'information qu'ils fournissent reste limitée aux intensités des groupes XL car la résolution en énergie de ces détecteurs n'est pas suffisante pour séparer les raies XL individuellement. Un autre inconvénient des détecteurs à semi-conducteur pour la mesure précise des intensités d'émissions photoniques est leur courbe de rendement en fonction de l'énergie. Soit elle possède une forte discontinuité sur la gamme d'énergie inférieure à 100 keV (HPGe), soit elle varie fortement en fonction de l'énergie (par exemple Si(Li)). De plus, dans la gamme d'énergie qui nous intéresse ici, leur rendement est difficile à caractériser car il y a très peu de radionucléides ayant des émissions photoniques d'intensités suffisamment bien connues. Donc, ni les calculs, ni les mesures à l'aide des détecteurs à semi-conducteur ne peuvent répondre aux exigences de la métrologie des rayonnements ionisants dans ce domaine d'énergie.

C'est pourquoi dans cette thèse un détecteur cryogénique, appelé SMX3, basé sur un calorimètre métallique magnétique (MMC) et conçu pour la spectrométrie de photons de haute résolution, a été utilisé. Pour résumer, SMX3 est un détecteur conçu spécifiquement pour la métrologie des émissions XL des actinides, soit sur la gamme d'énergie allant de 10 à 25 keV.

Ce détecteur comporte quatre absorbeurs en bicouches or et argent bénéficiant des propriétés des deux matériaux afin d'obtenir une courbe de rendement d'absorption constante et proche de 100 %. Sur cette gamme en énergie, il offre une résolution en énergie à mi-hauteur d'environ 30 eV, soit presque un ordre de grandeur meilleure que celle d'un détecteur HPGe. Une attention particulière a été portée au traitement du signal pour l'obtention des spectres en énergie. L'objectif était d'obtenir la meilleure résolution, sans déformer et biaiser le spectre. Il a été validé à partir de données simulées.

Pour accomplir la mesure des intensités absolues des raies XL individuelles, un étalonnage du rendement d'absorption totale a été effectué. La méthode consiste à mesurer une source étalon de  $^{241}\text{Am}$  qui permet d'étalonner le rendement à des énergies discrètes et d'interpoler ces points de mesure à l'aide d'une simulation Monte Carlo sur toute la gamme d'énergie entre 10 keV et 60 keV. En se référant à cette mesure, l'angle solide de détection et le rendement intrinsèque ont été corrigés en adaptant, dans la géométrie simulée, les dimensions critiques qui sont essentiellement le positionnement du collimateur et les épaisseurs des absorbeurs. La courbe de rendement de SMX3 a ainsi pu être déterminée.

Pour mesurer des intensités d'émission absolues des actinides  $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{244}\text{Cm}$  et  $^{239}\text{Pu}$ , des sources ont été préparées par électro-précipitation et leur activité a été mesurée par spectrométrie alpha (méthode ASD). Chaque source a été mesurée sur SMX3 pendant près de deux semaines dans un réfrigérateur à dilution à environ 10 mK avec plusieurs millions d'évènements. La géométrie des sources mesurées étant différente de la source étalon, un transfert de rendement a dû être effectué par simulation Monte Carlo. Après transfert du rendement, les intensités absolues des émissions individuelles  $L_i\text{-}Y_j$  ( $Y=\text{M,N,O,P}$   $i=1,2,3$  et  $1<j<7$ ) du  $^{238}\text{Pu}$  et du  $^{244}\text{Cm}$  ont été mesurées avec une incertitude au mieux de 1%. Grâce à une résolution en énergie d'environ 30 eV, les intensités des raies XL individuelles des actinides ont pu être déterminées, ce qui constitue une première. Ainsi, les transitions  $L_1L_3$ , proches des émissions XM, ont été détectées pour la première fois et leurs intensités sont fournies. Les intensités des groupes XL et de la totalité des émissions XL ont aussi été déterminées et comparées aux données disponibles dans la littérature. De plus, les intensités des groupes  $XL_i$  ( $i=1,2,3$ ) ont été établies ; et on observe des différences entre les isotopes du Pu.

Les raies satellites ont aussi été détectées dans les mesures des trois actinides ; leurs intensités relatives aux raies diagrammes dépendent de l'isotope : 9,2% pour le  $^{239}\text{Pu}$ , 3,4% pour le  $^{238}\text{Pu}$  et 19,27% pour le  $^{244}\text{Cm}$ . Ces différences ont pu être expliquées par les différentes conversions internes entre les nucléides et par les transitions Coster-Kronig. Il est admis qu'il n'est pas possible de faire des analyses isotopiques par spectrométrie X, car différents isotopes

d'un même élément émettent des raies X aux mêmes énergies. Toutefois nous avons mis en évidence pour les spectres de  $^{238}\text{Pu}$  et  $^{239}\text{Pu}$ , des contributions différentes qui pourraient être mises à profit pour des analyses isotopiques de Pu en utilisant les intensités des raies satellites et les intensités relatives XLi.

L'utilisation d'un détecteur cryogénique pour la mesure d'intensités d'émission absolues est une première et des améliorations sont possibles pour baisser le niveau des incertitudes. Ce dernier est comparable à celui des détecteurs semi-conducteurs. Pour les prochains calorimètres magnétiques développés pour la spectrométrie de photons au LNHB, nous étudierons la possibilité de développer une méthode de type ASD (angle solide défini). La mesure est alors basée sur des mesures dimensionnelles de la géométrie de détection et s'affranchit ainsi de l'étalonnage du rendement par des sources étalons. Il faudra alors très précisément définir cette géométrie de détection, en particulier le positionnement des sources radioactives et des absorbeurs, ainsi que leurs dimensions. Aussi, il faudra garantir la fabrication de sources radioactives avec des activités surfaciques homogènes. Une méthode de mesure ASD en spectrométrie de photons serait une mesure réellement absolue.

Enfin, chaque source mesurée a nécessité de descendre à 10 mK dans le réfrigérateur à dilution du LNHB, ce qui est long et coûteux . De plus, les performances du cryostat et du calorimètre magnétique n'ont pas été reproductibles d'une mesure à l'autre. C'est pourquoi, un passeur de sources actionné par un moteur pas-à-pas sera installé dans le réfrigérateur de l'installation. Ainsi plusieurs sources pourront-être mesurées lors d'une descente en froid, minimisant les coûts, les temps de refroidissement.



- [1] Gregoire Kessedjian. *Mesures de sections efficaces d'actinides mineurs d'intérêt pour la transmutation*. PhD thesis, 2008.
- [2] S. Feher, T. Reiss, A. Wirth. Mox fuel effects on the isotope inventory in LWRs. *Nuclear Engineering and Design*, 252 :201–208, 2012.
- [3] P. Thakur and H. Khaing and S. Salminen-Paatero. Plutonium in the atmosphere : A global perspective. *Journal of Environmental Radioactivity*, 175-176 :39 – 51, 2017.
- [4] Alan R. Date. An introduction to inductively coupled plasma source mass spectrometry. *TrAC Trends in Analytical Chemistry*, 2 :225 – 230, 1983.
- [5] Farmer, O. T. and Olsen, K. B. and Thomas, M. L. and Garofoli, S. J. Analysis of IAEA environmental samples for plutonium and uranium by ICP/MS in support of international safeguards. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 276 :489–492, May 2008.
- [6] Boulyga, Sergei F. and Becker, J. Sabine. Isotopic analysis of uranium and plutonium using ICP-MS and estimation of burn-up of spent uranium in contaminated environmental samples. *J. Anal. At. Spectrom.*, 17 :1143–1147, 2002.
- [7] S. Burger, L.R. Riciputi, D.A. Bostick, S. Turgeon<sup>1</sup>, E.H. McBay, M. Lavelle. Isotope ratio analysis of actinides, fission products, and geolocators by high-efficiency multi-collector thermal ionization mass spectrometry. *International Journal of Mass Spectrometry*, 286 :70–82, 2009.
- [8] TE Sampson. Plutonium isotopic composition by gamma-ray spectroscopy, 1980.
- [9] S. Pommé, J. Paepen, K. Perajarvi, J. Turunen, and R. Pollanen. Conversion electron spectrometry of Pu isotopes with a silicon drift detector. *Applied Radiation and Isotopes*, 109 :183 – 188, 2016. Proceedings of the 20th International Conference on Radionuclide Metrology and its Applications.
- [10] R. Pollanen, K. Ruotsalainen, and H. Toivonen. Determination of Pu-239 and Pu-240 isotope ratio for a nuclear bomb particle using X-ray spectrometry in conjunction with

- $\gamma$ -ray spectrometry and non-destructive  $\alpha$ -particle spectrometry. *Nucl. Instr. and Meth A*, 610 :515 – 521, 2009.
- [11] D. Arnold. Improved determination of plutonium content and isotopic ratios in low activity samples by  $\alpha$ -particle and underground L X-ray measurement. *Applied Radiation and Isotopes*, 64 :1137–1140, 2006.
- [12] Bé M.M., Browne E., Chechev V.P., Chiste V., Dersch R., Dulieu C., Helmer R.G., MacMahon T.D., Nichols A.L, Schönfeld E. Table of radionuclides. *Monographie BIPM 5 Tables Vol6*, 2004.
- [13] Bennett, Douglas and D Horansky, R and R Schmidt, D and S Hoover, A and Winkler, R and K Alpert, B and Beall, J and B Doriese, W and W Fowler, J and P Fitzgerald, C and C Hilton, G and D Irwin, K and Kotsubo, V and A B Mates, J and C O’Neil, G and W Rabin, M and Reintsema, Carl and J Schima, F and S Swetz, D and N Ullom, J. A high resolution gamma-ray spectrometer based on superconducting microcalorimeters. *The Review of scientific instruments*, 2012.
- [14] R. Winkler, A.S. Hoover, M.W. Rabin, D.A. Bennett, W.B. Doriese, J.W. Fowler, J. Hays-Wehle, R.D. Horansky, C.D. Reintsema, D.R. Schmidt, L.R. Vale, and J.N. Ullom. 256-pixel microcalorimeter array for high-resolution gamma-ray spectroscopy of mixed-actinide materials. *Nucl. Instr. and Meth A*, 770 :203 – 210, 2015.
- [15] C. Bates, C. Pies, S. Kempf, D. Hengstler, A. Fleischmann, L. Gastaldo, C. Enss, S. Friedrich. Direct Detection of Pu-242 with a Metallic Magnetic Calorimeter Gma-Ray Detector. *Low Temp Phys*, 184 :351–355, 2015.
- [16] Andrew S. Hoover, Ryan Winkler, Michael W. Rabin, Duc T. Vo, Joel N. Ullom, Douglas A. Bennett, William B. Doriese, Joseph W. Fowler, Robert D. Horansky ,Dan R. Schmidt, Leila R. Vale and Kathryn Schaffer. Determination of plutonium isotopic content by microcalorimeter gamma-ray spectroscopy. *IEEE TRANSACTIONS ON NUCLEAR SCIENCE*, 60 :681, 2013.
- [17] Hoover Andrew Scott, Bennett DA, Croce Mark Philip, Rabin Michael W, Ullom JN. Progress, performance, and prospects of ultra-high resolution microcalorimeter spectrometers, 2017.
- [18] Kellett, Mark A. and Bersillon, Olivier. The decay data evaluation project DDEP and the JEFF-3.3 radioactive decay data library : Combining international collaborative efforts on evaluated decay data. *EPJ Web Conf.*, 146 :02009, 2017.
- [19] Dulieu, Christophe, Kellett, Mark A., and Mougeot, Xavier. Dissemination and visualisation of reference decay data from Decay Data Evaluation Project DDEP. *EPJ Web Conf.*, 146 :07004, 2017.
- [20] G.Zschornack. *Handbook of X-ray data*. Springer, 2007.

- [21] Bambynek, Walter and Crasemann, Bernd and Fink, R. W. and Freund, H.U. and Mark, Hans and Swift, C. D. and Price, R. E. and Rao, P. Venugopala. X-Ray Fluorescence Yields, Auger, and Coster-Kronig Transition Probabilities. *Reviews of Modern Physics*, 1972-10-01.
- [22] J.L. Campbell and Tibor Papp. Widths of the atomic K N7 levels. *Atomic Data and Nuclear Data Tables*, 77(1) :1–56, 2001-01.
- [23] J.Cl. Dousse J. Hoszowska and Ch. Rheme. Linewidths of photoinduced L X rays of uranium. *Phys. Rev. A*, 50 :123–131, 1994.
- [24] Raboud PA, Dousse JCl, Hoszowska J, and Savoy I.  $L_1$  to  $N_5$  atomic level widths of thorium and uranium as inferred from measurements of L and M x-ray spectra. *Phys. Rev. A*, 61 :012507, 1999.
- [25] Perkins S.T. , Cullen D.E. , Chen, M.H. , Rathkopf J. , Scofield J. , Hubbell J.H. Tables and graphs of atomic subshell and relaxation data derived from the LLNL Evaluated Atomic Data Library (EADL),  $Z = 1$  100. *This information is derived from the Livermore Evaluated Atomic Data Library (EADL)*, 30, 1991.
- [26] James H. Scofield. Relativistic hartree-slater values for K and L X-ray emission rates. *Atomic Data and Nuclear Data Tables*, 1974.
- [27] James H. Scofield. Radiative Decay Rates of Vacancies in the K and L Shells. *Phys. Rev.*, 179 :9 16, 1969.
- [28] Mau Hsiung Chen, Bernd Crasemann, and Hans Mark. Radiationless transitions to atomic  $M_{1,2,3}$  shells : Results of relativistic theory. *Phys. Rev. A*, 27 :2989–2994, 1983.
- [29] Mau Hsiung Chen and Bernd Crasemann. M X-ray emission rates in dirac-fock approximation. *Physical Review A*, 1984.
- [30] Mau Hsiung Chen, Bernd Crasemann, and Hans Mark. Widths and fluorescence yields of atomic L-shell vacancy states. *Phys. Rev. A*, 24 :177–182, 1981.
- [31] Pia Maria Grazia, Saracco Paolo, and Sudhakar Manju. Validation of K and L shell radiative transition probability calculations. *IEEE Transactions on Nuclear Science*, 56, 2009.
- [32] Bacrania, M. K. and Hoover, A. S. and Karpus, P. J. and Rabin, M. W. and Rudy, C. R. and Vo, D. T. and Beall, J. A. and Bennett, D. A. and Doriese, W. B. and Hilton, G. C. and Horansky, R. D. and Irwin, K. D. and Jethava, N. and Sassi, E. and Ullom, J. N. and Vale, L. R. Large area microcalorimeter detectors for ultra high resolution X ray and gamma ray spectroscopy. *IEEE Transactions on Nuclear Science*, 56, 2009.
- [33] T. Kibedi, T.W. Burrows, M.B. Trzhaskovskaya, P.M. Davidson, C.W. Nestor. Evaluation of theoretical conversion coefficients using bricc. *Nucl. Instr. and Meth. A*, 589 :202–229, 2008.

- [34] V.M. Gorozhankin, M.M. Bé. Assessment of internal conversion coefficients for anomalous electric dipole transitions. *Applied Radiation and Isotopes*, 66 :722–728, 2008.
- [35] Puri S., Mehta D., Chand B., Nirmal Singh, Hubbell J.H., Trehan P.N. Production of Li subshell and M shell vacancies following inner-shell vacancy production. *Nucl. Instr. Meth. B*, 83 :21, 1993a.
- [36] Puri S., Mehta D., Chand B., Nirmal Singh, Trehan P.N. L shell Fluorescence yields and Coster Kronig transition probabilities for the elements with  $Z=25-96$ . *X-Ray Spectrometry*, 22 :358, 1993a.
- [37] E.Schönfeld and H.Janßen. Calculation of emission probabilities of X-rays and Auger electrons emitted in radioactive disintegration processes. *Applied Radiation and Isotopes*, 52 :595, 2000.
- [38] J.L. Campbell. Fluorescence yields and CosterKronig probabilities for the atomic L subshells. *Atomic Data and Nuclear Data Tables*, 2003-11-01.
- [39] Chen MH. X ray and inner shell processes. *American Institute of Physics Conf*, 215 :391 407, 1990.
- [40] M.C. Lépy, J. Plagnard, and L.Ferreux. Measurement of Am-241L X-ray emission probabilities. *Applied Radiation and Isotopes*, 66 :715–721, 2008-06.
- [41] Peter N Johnston and Peter A Burns. Absolute L X-ray intensities in the decays of Th-230,U-234, Pu-238 and Cm-244. *Nucl. Instr. and Meth A*, 361 :229, 1995.
- [42] Campbell, J. L. and McNelles, L. A. Americium-241 as a low-energy photon intensity standard. *Nucl. Instr. and Meth A*, 117(2) :519 – 532, 1974.
- [43] M.J. Berger, J.H. Hubbell, S.M. Seltzer, J. Chang, J.S. Coursey, R. Sukumar, D.S. Zucker, and K. Olsen. Xcom photon cross sections database, 2010.
- [44] Knoll Glenn F. *Radiation detection and measurement 2nd ed.* Wiley New York, 1989.
- [45] ISO 11929-3. Determination of the characteristic limits (decision threshold, detection limit and limits of the confidence interval) for measurements of ionizing radiation Fundamentals and application, 2010.
- [46] Valery P Chechev and Nikolay K. Kuzmenko. Decay data evaluation project DDEP : updated evaluations of the Th-233 and Am-241 decay characteristics. *Applied radiation and isotopes : including data, instrumentation and methods for use in agriculture, industry and medicine*, 68 7-8 :1578–82, 2010.
- [47] David D. Cohen. X-rays from an Am-241 source and their relative intensities. *Nucl. Instr. and Meth A*, 267(2) :492–498, 1988-05.
- [48] M.C.Lépy, B.Duchemin, and J. Morel. Comparison of experimental and theoretical L X-ray emission probabilities of Am-241, Pu-239 and Pu-240. *Nucl. Instr. and Meth A*, 353 :10–15, 1994.

- [49] SR Bandler et al. Performance of TES X-ray microcalorimeters with a novel absorber design. *Journal Low Temp Phys*, 151 :400–405, 2008.
- [50] Keisuke Nakamura, Yuki Morishita, Koji Takasaki, Keisuke Maehata, Tetsuya Sugimoto, Yu Kiguchi, Naoko Iyomoto, and Kazuhisa Mitsuda. Spectroscopic measurements of L X-rays with a TES microcalorimeter for a non-destructive assay of transuranium elements. *Journal of Low Temperature Physics*, 193(3-4) :314–320, 11 2018.
- [51] C.Enss. *Cryogenic Particle Detection*. Springer, 2005.
- [52] L. Rocks, M.B. Anderson, N. Bilgri, R. Brekosky, S. Gwynne Crowder, E. Figueroa-Feliciano, R. Kelley, C.A. Kilbourne, T. Lai, M.A. Lindeman, J. Man, D. McCammon, K.L. Nelms, F.S. Porter, S. Sivananthan, G. Vidugiris, and J. Zhao. Thin absorbers for large-area soft X-ray microcalorimeters. *Nucl. Instr. and Meth A*, 2006.
- [53] Kelley, Richard L. and Mitsuda, Kazuhisa and Allen, Christine A. and Arsenovic, Petar and Audley, Michael D. and Bialas, Thomas G. and Boyce, Kevin R. and Boyle, Robert F. and Breon, Susan R. and Brown, Gregory V. and Cottam, Jean and DiPirro, Michael J. and Fujimoto, Ryuichi and Furusho, Tae and Gendreau, Keith C. and Gochar, Gene G. and Gonzalez, Oscar and Hirabayashi, Masayuki and Holt, Stephen S. and Inoue, Hajime and Ishida, Manabu and Ishisaki, Yoshitaka and Jones, Carol S. and Keski-Kuha, Ritva and Kilbourne, Caroline A. and McCammon, Dan and Morita, Umeyo and Moseley, S. Harvey and Mott, Brent and Narasaki, Katsuhiko and Ogawara, Yoshiaki and Ohashi, Takaya and Ota, Naomi and Panek, John S. and Porter, F. Scott and Serlemitsos, Aristides and Shirron, Peter J. and Sneiderman, Gary A. and Szymkowiak, Andrew E. and Takei, Yoh and Tveekrem, June L. and Volz, Stephen M. and Yamamoto, Mikio and Yamasaki, Noriko Y. The Suzaku High Resolution X-Ray Spectrometer. *Publications of the Astronomical Society of Japan*, 2007.
- [54] Kempf S., Fleischmann A., Gastaldo L., Enss C. Physics and applications of metallic magnetic calorimeters. *J. Low Temp. Phys.*, 193 :365–379, 2018.
- [55] J.E. Vaillancourta, C.A. Allenb, R. Brekoskyb, A. Dosaja,M. Galeazzic, R. Kelleyb, D. Liua, D. McCammona, F.S. Porterb,L.E. Rocks, W.T. Sandersa, C.K. Stahleb. Large area bismuth absorbers for X-ray microcalorimeters. *Nucl. Instr. and Meth A*, 520, 2004.
- [56] R. L. Kelley, S. H. Moseley, C. K. Stahle, A. E. Szymkowiak, M. Juda, D. McCammon, and J. Zhang. Development of microcalorimeters for high resolution X-ray spectroscopy. *Journal of Low Temperature Physics*, 93 :225–230, November 1993.
- [57] Ad Lagendijk Rogier H M Groenveld, Rudolf Sprik. Effet of a non-thermal electron distribution on the electron-phonon energy relaxation process in noble metal. *Physical review B*, 1992.

- [58] S.R. Blander, C.Enss,R.E. Lanou, H.J.Maris, T. More, F.S. Porter, G.M.Seodel. Metallic magnetic bolometers for particle detection. *Journal of low temperature physics*, 1993.
- [59] A. Fleischmann et al. Low temperature properties of erbium in gold. *Journal of low temperature physics*, 2000.
- [60] L. Fleischmann, M. Linck, A. Burck, C. Domesle, S. Kempf, A. Pabinger, C. Pies, J.P. Porst, H. Rotzinger, S. Schafer, R. Weldle, A. Fleischmann, C. Enss, and G.M. Seidel. Metallic Magnetic Calorimeters for X-Ray Spectroscopy. *IEEE Transactions on Applied Superconductivity*, 19, 2009.
- [61] A. Burck, S. Kempf, S. Schaefer , H. Rotzinger , M. Rodrigues , T. Wolf , L. Gastaldo ,A. Fleischmann , C. Enss. Microstructured magnetic calorimeter with meander-shaped pickup coil. *Journal of Low Temperature Physics*, 151 :337–344, 2008.
- [62] Simon R Bandler et al. Performance of High-Resolution, Micro-fabricated, X-ray Magnetic Calorimeters. *AIP Conference Proceedings*, 1185 :579–582, 2009.
- [63] Rodrigues M et al. Development of large bismuth absorbers for magnetic calorimeters applied to hard X-ray spectrometry. *Journal Low Temp Phys*, 176 :610–616, 2014.
- [64] Matias Rodrigues Riham Mariam and Martin Loidl. A metallic magnetic calorimeter dedicated to the spectrometry of L X-rays emitted by actinides. *European Physical Journal Web of Conferences*, 146 :100–112, 2017.
- [65] *Gamma and Xray spectrometry with semiconductor detectors*, page 109. IAEA, 1988.
- [66] O. V. Lounasmaa. Experimental principles and methods below 1K. *Academic Press Cambridge*, 1974.
- [67] J. Bouchard. A discriminator and dead-time module used in counting systems. *Applied Radiation Isotopes*, 52 :441–446, 2000.
- [68] W B Doriese, J N Ullom, J A Beall, W D Duncan, L Ferreira, G C Hilton, RD Horansky, KD Irwin, JAB Mates, CD Reintsema, LR Vale, YXu, and BL Zink. 14-pixel, multiplexed array of gamma-ray microcalorimeters with 47 eV energy resolution at 103 keV. *APPLIED PHYSICS LETTERS*, 90 :193508, 2007.
- [69] Tetsuya Sugimoto and Keisuke Maehata and Naoko Iyomoto and Kenji Ishibashi and Keisuke Nakamura and Makoto Maeda and Koji Takasaki and Kazuhisa Mitsuda. Spectroscopic Measurement of Pu L X-rays Emitted by Cm-244 Source with a TES Microcalorimeter. *Proceedings of International Symposium on Radiation Detectors and Their Uses*, 2016.
- [70] SH Moseley AE Szymkowiak, RL Kelley and CK Stahlet. Signal processing for microcalorimeters. *Journal of Low Temperature Physics*, 93, 1993.

- [71] Richard D. Deslattes, Ernest G. Kessler, P. Indelicato, L. de Billy, E. Lindroth, and J. Anton. X-ray transition energies : new approach to a comprehensive evaluation. 75, 2003.
- [72] J.L. Campbell and P.L. Mcghee. State-of-the-art efficiency determination for a Si(Li) X-ray detector in the 3-40 keV energy range. *Nucl. Instr. and Meth A*, 248 :393–404, 1986.
- [73] G. Ulm F. Scholzc. Characterization of a windowless Si(Li) detector in the photon energy range 0.1-5 keV. *Nucl. Instr. and Meth A*, 339 :49–54, 1994.
- [74] M.C.Lépy,T. Altzitzogloub, D. Arnold, F. Bronsond, R.Capote Noye,M. Decombazf, F. De Corteg, R. Edelmaierh, E.Herrera Perazai, S. Klemolaj, M. Korunk, M. Kralikl, H. Nederm J. Plagnarda S. Pommen J. de Sanoita O. Simao F. Ugletveitp L. Van Velzenq T. Vidmark. Intercomparison of efficiency transfer software for gamma-ray spectrometry. *Applied Radiation and Isotopes*, 55 :493–503, 2001.
- [75] L. Moens and J. De Donder and Lin Xi-lei and F. De Corte and A. De Wispelaere and A. Simonits and J. Hoste. Calculation of the absolute peak efficiency of gamma-ray detectors for different counting geometries. *Nucl. Instr. and Meth A*, 187 :451–472, 1981.
- [76] Lépy M.C. , Brondeau L. , Mnesguen Y. , Pierre S., Riffaud J. Consistency of photon emission intensities for efficiency calibration of gamma-ray spectrometers in the energy range from 20keV to 80keV. *Applied Radiation and Isotopes*, 134 :131–136, 2018.
- [77] Marie Christine Lépy Johann Plagnard, Christophe Bobin. Accurate efficiency calibration of a low energy HPGe detector using a monochromatic X ray source. *X-Ray Spectrom*, 36 :191–198, 2007.
- [78] Pavel Dryak and Petr Kovar. Experimental and MC determination of HPGe detector efficiency in the 40-2754keV energy range for measuring point source geometry with the source-to-detector distance of 25cm, journal = Applied Radiation and Isotopes. 64(10) :1346–1349, 2006.
- [79] L. Venturini and V.R. Vanin. HPGe detector efficiency calibration for extended sources in the 50-1400 keV energy range. *Applied Radiation and Isotopes*, 44 :999 – 1002, 1993.
- [80] Jelena Nikolic and Tim Vidmar and Dejan Jokovic and Milica Rajacic and Dragana Todorovic. Calculation of HPGe efficiency for environmental samples : comparison of EFFTRAN and GEANT4. *Nucl. Instr. and Meth A*, 763 :347–353, 2014.
- [81] R.G Helmer and J.C Hardy and V.E Iacob and M Sanchez-Vega and R.G Neilson and J Nelson. The use of Monte Carlo calculations in the determination of a Ge detector efficiency curve. *Nucl. Instr. and Meth A*, 511 :360–381, 2003.
- [82] Octavian Sima, Dirk Arnold. On the Monte Carlo simulation of HPGe gamma-spectrometry systems. *Applied radiation and isotopes*, 67 :701–705, 2009.

- [83] H. Ruellan and M.C. Lépy and M. Etcheverry and J. Plagnard and J. Morel. A new spectra processing code applied to the analysis of U-235 and U-238 in the 60 to 200 keV energy range. *Nucl. Instr. and Meth A*, 369 :651 – 656, 1996.
- [84] William B. Doriese et al. A practical superconducting-microcalorimeter X-ray spectrometer for beamline and laboratory science. *Review of Scientific Instruments*, 88 :053108, 2017.
- [85] Porter F.T and M.S. Freedman. Recommended Atomic Electron Binding Energies for the Heavy Elements Z=84 to 103. *J. Phys. Chem. Ref. Data*, 7 :1267, 1978.
- [86] Parente, Fernando and Chen, Mau Hsiung and Crasemann, Bernd and Mark, Hans. L X-ray satellite energies. *Atomic Data and Nuclear Data Tables*, 1981-09.
- [87] Takeshi Mukoyama and Sakae Shimizu. Electron shakeoff accompanying internal conversion. *Phys. Rev. C*, 11 :1353–1363, 1975.
- [88] Yasuhito Isozumi. Effects of nuclear decay on atomic electron rearrangements. *Nucl. Instr. and Meth A*, 280 :151 – 160, 1989.
- [89] M. S. Rapaport, F. Asaro, and I. Perlman. L - and M -shell electron shake-off accompanying alpha decay. *Physical Review C*, May 1975.
- [90] Mau Hsiung Chen, Bernd Crasemann, and Hans Mark. Relativistic radiationless transition probabilities for atomic K- and L-shells. *Atomic Data and Nuclear Data Tables*, 24(1) :13–37, 1979-07.
- [91] F. K. Richtmyer and E. G. Rambhrg. Satellite Structure of Lalpha, and L beta 2 of Au(79). *Phys. Rev.*, 51 :925–929, 1937.
- [92] F. Salvat and Nuclear Energy Agency Data-Bank. *PENELOPE-2014 : A Code System for Monte Carlo Simulation of Electron and Photon Transport; Workshop Proceedings, Barcelona, Spain, 29 June - 3 July 2015*. OECD, 2015.
- [93] CE Bemis Jnr and L Tubbs. Absolute L-series X-ray and low-energy gamma-ray yields for most transuranium nuclides in Chemistry Division Annual Progress Report ORNL-5297. Technical report, Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge Tennessee USA, 1977.
- [94] G. Bortels and B. Denecke and R. Vaninbroukx. Alpha-particle and photon emission probabilities in the Pu-238 U-234 decay. *Nucl. Instr. and Meth A*, 223 :329, 1984.
- [95] Oblozinsky P. and Ribansky I. The solid angle subtended at a disc source by a non-parallel disc detector. *Nucl. Instr. and Meth A*, 94 :187–188, 1971.
- [96] Asaro F and Perlman I. The alpha- and gamma-ray spectra of pu<sup>238</sup>. *Phys. Rev.*, 94 :381–385, 1954.
- [97] Halley J. Woods and D. Engelkemeir. L fluorescence yields in heavy elements. *Phys. Rev.*, 134 :A24–A28, 1964.

- [98] J. Byrne, W. Gelletly, M.A.S. Ross, and F. Shaikh.  $L_2$ -subshell yield measurements in  $^{240}\text{Pu}$ ,  $^{236}\text{U}$ , and  $^{234}\text{U}$ . *Phys. Rev.*, 170 :80–90, 1968.
- [99] K. L. Swinth. A Solid State X-Ray-Alpha Coincidence Counter. *IEEE Transactions on Nuclear Science*, 18 :125–130, 1971.
- [100] DG Vasiliki and RW Martin. UL  $\alpha$   $\beta$   $\gamma$  X-ray intensities from the alpha decay of Pu-238. *Nucl. Instr. and Meth A*, 135 :405, 1976.
- [101] YuS Popov et al. M-X-ray and L-X-ray emissions of actinides. *Soviet Radiochemistry*, 32 :425–427, 1990.
- [102] E Etcheverry CJ Bland, J Morel and MC Lépy. Determination of Pu-239 and Am-241 LX ray intensities using a Simplex method for fitting peaks. *Nucl. Instr. and Meth A*, 312 :323–333, 1992.
- [103] J Morel, M Etcheverry, and M Vallee. Emission probabilities of LX, KX and gamma rays in the 10-130 keV range following the decay of Pu-239. *Nucl. Instr. and Meth A*, 339(1) :232 – 240, 1994.
- [104] M.C Lépy and K Debertain. Determination of Pu-239 and Pu-240 L X-ray emission probabilities. *Nucl. Instr. and Meth A*, 339 :218 – 225, 1994.

**Titre de la thèse : Détermination des intensités absolues d'émission XL d'actinides à l'aide d'un calorimètre métallique magnétique de haute résolution**

**Mots clés : Actinide, spectrométrie X et  $\gamma$ , calorimètre métallique magnétique**

**Résumé :** L'analyse isotopique des actinides est nécessaire pour le pilotage du cycle du combustible, le contrôle du traité de non-prolifération ou pour la surveillance environnementale. La précision de ces analyses peut être limitée par la performance du détecteur utilisé mais aussi par les incertitudes associées aux intensités d'émission disponibles dans les tables de données nucléaires. La désintégration des actinides est généralement suivie par d'intenses émissions de photons X et gamma dans la gamme d'énergie inférieure à 100 keV. Leur détection peut être intéressante pour l'analyse des actinides. Cependant, les techniques conventionnelles de mesure ne permettent pas de séparer correctement les raies des émissions concernées. Cette thèse a été consacrée à la mesure des intensités à l'aide d'un détecteur cryogénique. Ce dernier est basé sur un calorimètre métallique magnétique (MMC) qui permet de mesurer le dépôt d'énergie sous forme d'une élévation de température. Le MMC, appelé SMX3, comporte quatre pixels ; il est spécifiquement conçu pour la spectrométrie X et gamma de haute résolution dans la gamme d'énergie inférieure à 100 keV en vue de la mesure des intensités d'émission des actinides. Outre la haute

résolution fournie par SMX3, due à son principe de fonctionnement, ce détecteur possède un rendement de détection constant et quasiment égal à 100% dans la gamme d'énergie inférieure à 25 keV, où les rayons XL des actinides sont émis. La courbe de rendement de SMX3 a été étalonnée par une méthode qui consiste en une mesure d'une seule source étalon d'Am-241 combinée à des simulations Monte Carlo. Les trois actinides Pu-238, Pu-239, et Cm-244 ont été mesurés afin de fournir des intensités absolues et relatives des émissions  $L_i-Y_j$  (avec  $Y=L,M,N,O,P$   $i=1,2,3$  et  $j=1..7$ ). Grâce à la très haute résolution en énergie du MMC, les raies XL individuelles des actinides peuvent être séparées. Les raies satellites sont aussi détectées, leurs intensités relatives aux raies diagrammes dépendent de l'isotope en fonction des paramètres fondamentaux atomiques. Les intensités des raies XL individuelles ont pu être déterminées pour la première fois, notamment pour les transitions  $L_1-L_3$ . De plus, les intensités des régions  $XL_i$  ( $i=1,2,3$ ) ont été établies. Les intensités des groupes XL et XL globale sont comparées avec les calculs et les données expérimentales disponibles dans la littérature.

**Thesis title :** Determination of absolute emission intensities of L-X-ray emission of actinide using a high resolution metallic magnetic calorimeter

**Keywords :** Actinide, metallic magnetic calorimeter, X and  $\gamma$  rays spectroscopy

**Abstract :** Isotopic analysis of actinides is necessary for fuel cycle management, non-proliferation treaty control or environmental monitoring. The accuracy of these analyses may be limited by the performance of the detector used but also by the uncertainties associated with the emission intensities available in the nuclear data tables. The disintegration of actinides is generally followed by intense X-ray and gamma photon emissions in the energy range below 100 keV. Their detection may be of particular interest for actinide analysis. However, conventional measurement techniques do not allow to properly separate the lines of the considered emissions. This thesis was devoted to the measurement of intensities using a cryogenic detector. The latter is based on a magnetic metallic calorimeter (MMC) that measures energy deposition as a temperature rise. The MMC, called SMX3, has four pixels and is specifically designed for high resolution X-ray and gamma spectrometry in the energy range below 100 keV to measure actinide emission intensities. In addition to the high resolution provided by SMX3 through its operating principle, this detector has a constant detection efficiency and almost equal to 100% over the energy range below 25 keV, where actinides XL rays are emitted. The SMX3 yield curve was calibrated by a method that consists of a single standard source measurement of Am-241 combined with Monte Carlo simulations. The three actinides Pu-238, Pu-239, and Cm-244 were measured to provide absolute and relative intensities of Li-Yj emissions (with  $Y=L,M,N,O,P$   $i=1,2,3$  and  $j=1..7$ ). Thanks to the very high energy resolution of the MMC, the individual XL lines of actinides can be separated. Satellite lines are also detected, their intensities relative to the diagram lines depend on the isotope according to the fundamental atomic parameters. The intensities of the individual XL lines could be determined for the first time, especially for the transitions L1-L3. In addition, the intensities of the XLi regions ( $i=1,2,3$ ) were established. The intensities of the overall XL and XL groups are compared with the calculations and experimental data available in the literature.

