



**HAL**  
open science

# Détecteur de neutrons ultra-froids sensible à la position

Yinghao Xi

► **To cite this version:**

Yinghao Xi. Détecteur de neutrons ultra-froids sensible à la position. Instrumentations et Détecteurs [physics.ins-det]. Université Grenoble Alpes [2020-..], 2021. Français. NNT : 2021GRALY047 . tel-03525828

**HAL Id: tel-03525828**

**<https://theses.hal.science/tel-03525828>**

Submitted on 14 Jan 2022

**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.

## THÈSE

Pour obtenir le grade de

### DOCTEUR DE L'UNIVERSITÉ GRENOBLE ALPES

Spécialité : Physique / Physique subatomique & astroparticules

Arrêté ministériel : 25 mai 2016

Présentée par

**Yinghao XI**

Thèse dirigée par **Benoît CLEMENT**, Maître de Conférence  
**UGA, LPSC**,  
et co-dirigée par **Alexandre BES**, Ingénieur de Recherche,  
**LPSC**,  
préparée au sein du **Laboratoire de Physique Subatomique &  
Cosmologie**  
dans l'**École Doctorale de Physique - Grenoble**

## Détecteur de neutrons ultra-froids sensible à la position

Thèse soutenue publiquement le **19 juillet 2021**,  
devant le jury composé de :

**Olivier ISNARD**

Professeur UGA, Institut Néel, Président du jury

**Corinne AUGIER**

Professeur UCBL, IP2I Lyon, Rapporteur

**Kremena MAKASHEVA**

Directeur de Recherche CNRS, LAPLACE Toulouse, Rapporteur

**Arnaud LUCOTTE**

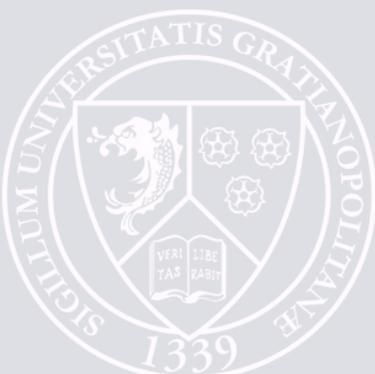
Directeur de Recherche CNRS, LPSC, Examineur

**Benoît CLEMENT**

Professeur UGA, LPSC, Directeur de thèse

**Alexandre BES**

Ingénieur de Recherche, LPSC, Co-encadrant de thèse



# Remerciements

Je remercie tout d'abord l'équipe UCN qui m'a accueillie pour réaliser cette thèse, et l'équipe CRPMN qui a collaboré à ce projet. Merci à Benoît, Guillaume, Dominique et Valery qui m'ont guidée dans la science des neutrons ultra-froids. Merci à Alexandre et Ana qui m'ont encadrée dans le domaine du plasma, et merci à Laurent et Dominique qui m'ont aidée à résoudre divers problèmes expérimentaux. Merci à vous tous d'avoir partagé votre connaissance dans la recherche scientifique et dans la vie, votre patience, votre confiance et votre soutien tout au long de cette thèse.

Je remercie Oliver et le Service Electronique de LPSC pour leur soutien apporté à ce projet.

Je remercie également le Service Détection des Neutrons de l'ILL. Merci à Bruno de m'avoir conseillé sur la thématique des détecteurs de neutrons. Merci à Damien qui m'a guidée et inspirée sur les travaux concernant les fibres optiques avec patience et passion.

Je remercie M. Isnard, M. Lamy et Mme. Dray de m'avoir aidée pendant la période difficile de la thèse. Merci à ma famille et mes amis pour leur soutien et leurs encouragements tout au long de la thèse.

Je remercie enfin les membres du jury, pour leur intérêt porté à ce sujet et à mon travail, et d'avoir pris le temps de l'évaluer.

## Résumé

Les neutrons rebondissant sur un miroir horizontal parfait se comportent comme des objets quantiques dans le champ de pesanteur terrestre. Leur énergie prend des valeurs discrètes, contrairement à une balle de tennis rebondissant à l'échelle macroscopique. L'étude des états quantiques des neutrons, et surtout des transitions résonantes entre deux états, permettrait de poser des limites sur les paramètres de certains modèles de la physique fondamentale. Le spectromètre GRANIT, installé à l'Institut Laue-Langevin (Grenoble, France), dispose de modules magnétiques pour induire des transitions résonantes aux neutrons et les étudier. Un des modes de fonctionnement nécessite d'un détecteur de neutrons sensible à la position, qui a été conçu avec des couches minces de conversion de neutrons en  $^{10}\text{B}$  et de scintillateur en  $\text{ZnS}(\text{Ag})$ , ainsi qu'un réseau de fibres optiques pour repérer la position d'impact des neutrons sur le détecteur. Des couches minces ont été élaborées par pulvérisation assistée par plasma micro-onde, leurs structures caractérisées par MEB et leurs performances de scintillation testées par un tube photomultiplicateur. L'efficacité de scintillation en fonction de la concentration d'argent a été étudiée, grâce à un procédé de dopage d'argent *in situ*. Un algorithme d'identification des photoélectrons a également été mis en place sur le réseau de fibres optiques pour reconstruire le barycentre des neutrons incidents.

## Abstract

Bouncing neutrons on a perfect horizontal mirror become quantum objects in Earth's gravitational field. Their energy takes discrete values, contrary to a bouncing ball at a macroscopic scale. The study of the neutron quantum states, and especially the resonant transitions between two states, has the prospect to constrain parameters of certain models of nowadays fundamental physics. The GRANIT spectrometer, housed in the Laue-Langevin Institute (Grenoble, France), is equipped with magnetic field generator modules to induce resonant transitions to study them. One of its operating mode requires a position-sensitive neutron detector, which is designed as a combination of thin films of neutron conversion material  $^{10}\text{B}$  and scintillator  $\text{ZnS}(\text{Ag})$ , as well as an optical fibre matrix to determine the position of incoming neutrons. The thin films were deposited by sputter deposition assisted by microwave plasma. Their structure was examined by SEM and their scintillation performance tested by a photomultiplier tube. The scintillation efficiency in relation to Ag dopant in ZnS was studied, thanks to a procedure of *in situ* Ag doping. An algorithm capable of identifying photoelectrons was also installed on the optical fibre matrix to reconstruct the barycentre of incoming neutrons.

# Table des matières

<b>Remerciements</b>	<b>2</b>
<b>Introduction</b>	<b>16</b>
<b>1 Neutrons ultra-froids dans un champ gravitationnel</b>	<b>18</b>
1.1 Les neutrons libres sous interactions fondamentales . . . . .	19
1.1.1 Interaction électromagnétique . . . . .	19
1.1.2 Interaction faible . . . . .	21
1.1.3 Interaction forte . . . . .	22
1.1.4 Interaction gravitationnelle . . . . .	23
1.2 Neutron ultra-froid (UCN) . . . . .	24
1.2.1 Production des UCN . . . . .	25
1.2.2 Particularités de l'interaction des UCN avec une surface . . . . .	28
1.3 Les UCN dans un champ gravitationnel . . . . .	31
1.3.1 Etats quantiques d'un UCN dans le champ de pesanteur . . . . .	31
1.3.2 Observation des états quantiques des UCN - principe et premières mesures . . . . .	34
1.3.3 Transitions résonantes . . . . .	38

1.3.4	Recherche de la physique fondamentale avec les états quantiques du neutron . . . . .	39
1.4	Le spectromètre GRANIT . . . . .	43
1.4.1	Configuration actuelle du spectromètre GRANIT . . . . .	44
1.4.2	Modules de transitions résonantes . . . . .	46
1.5	Conclusion . . . . .	48
<b>2</b>	<b>Détecteur de neutrons sensible à la position</b>	<b>49</b>
2.1	Généralités sur la détection de neutrons . . . . .	49
2.1.1	Interactions rayonnement-matière . . . . .	50
2.1.2	Détecteur de neutrons . . . . .	51
2.2	Conception d'un détecteur de neutrons sensible à la position pour le spectromètre GRANIT . . . . .	60
2.2.1	Caractéristiques imposées au détecteur . . . . .	61
2.2.2	Conception du détecteur . . . . .	62
2.3	Conclusion . . . . .	69
<b>3</b>	<b>Techniques de dépôt et de caractérisation de couches minces par pulvérisation assistée par plasma micro-onde</b>	<b>71</b>
3.1	Dépôt physique de couche mince par phase vapeur (PVD) et mécanismes de croissance d'une couche mince . . . . .	72
3.2	Pulvérisation cathodique . . . . .	74
3.3	Pulvérisation cathodique assistée par plasma micro-onde multi-dipolaire . . . . .	75
3.4	Dispositif expérimental . . . . .	77
3.5	Protocole du procédé de dépôt . . . . .	79
3.6	Techniques de caractérisation de couches minces . . . . .	80
3.6.1	Microscopie électronique à balayage (MEB) . . . . .	80

3.6.2	Analyse dispersive en énergie (EDS) . . . . .	82
3.7	Conclusion . . . . .	83
<b>4</b>	<b>Elaboration et caractérisation de couches minces de ZnS(Ag), dopage Ag <i>in situ</i> et couches de conversion en <math>^{10}\text{B}</math></b>	<b>84</b>
4.1	Dépôt de couche mince de ZnS(Ag) . . . . .	84
4.1.1	Conditions de dépôt . . . . .	85
4.1.2	Réalisation et caractérisation des couches minces de ZnS(Ag) . . . . .	86
4.2	Dépôt de couches minces de ZnS avec dopage Ag <i>in situ</i> . . . . .	93
4.2.1	Conditions de dépôt . . . . .	94
4.2.2	Réalisation et caractérisation des couches minces de ZnS dopé Ag <i>in situ</i> . . . . .	96
4.2.3	Détermination de la concentration d'Ag . . . . .	103
4.3	Dépôt de multicouche de Ni+ $^{10}\text{B}$ +Ti . . . . .	110
4.3.1	Conditions de dépôt . . . . .	110
4.3.2	Réalisation et caractérisation des multicouches de Ni + $^{10}\text{B}$ + Ti . . . . .	113
4.4	Conclusion . . . . .	123
<b>5</b>	<b>Scintillation des couches minces de ZnS(Ag)</b>	<b>125</b>
5.1	Dispositifs expérimentaux . . . . .	125
5.2	Test de scintillation préliminaire de ZnS(Ag) . . . . .	128
5.3	Contrôle de paramètres des tests de scintillation . . . . .	129
5.3.1	Efficacité du PM en fonction du positionnement des scintillateurs . . . . .	129
5.3.2	Effets des rayons gamma de la source alpha . . . . .	131
5.3.3	Homogénéité des échantillons de ZnS(Ag) . . . . .	132
5.4	Efficacité de scintillation de ZnS en fonction de la concentration d'Ag . . . . .	134

5.5	Conclusion . . . . .	136
<b>6</b>	<b>Réseau de fibres optiques pour le détecteur de neutrons sensible à la position</b>	<b>137</b>
6.1	Prototype du réseau de fibres optiques . . . . .	138
6.2	Algorithme d'identification des photoélectrons . . . . .	140
6.2.1	Principe de l'algorithme . . . . .	141
6.2.2	Amélioration de l'algorithme . . . . .	142
6.2.3	Détermination de la distribution des positions d'impact avec ROOT .	150
6.3	Conclusion . . . . .	154
<b>7</b>	<b>Conclusion</b>	<b>155</b>

# Table des figures

1.1	Diagramme de la désintégration $\beta$ d'un neutron libre. . . . .	22
1.2	Trajectoire d'un neutron de vitesse de 4 m/s dans une boîte vide de 50 cm $\times$ 50 cm $\times$ 50 cm. . . . .	24
1.3	Le coeur du réacteur à l'ILL (gauche) : (1) barre de sécurité (2) modérateur (3) réservoir (4) guide de neutrons froids et thermiques (5) source froide verticale (6) coeur du réacteur (7) source froide horizontale (8) barre de contrôle (9) paroi en béton. La source de UCN avec le mécanisme de turbine à l'ILL (droite). . . . .	27
1.4	Schéma d'une source superthermale d'UCN : (a) entrée du volume de conversion en béryllium ( $V_f = 252$ neV correspondant à une vitesse de neutron de 7 m/s environ) avec le faisceau de neutrons froids rentrant par la gauche, (b) volume de conversion d'UCN avec la paroi en oxyde de beryllium ( $V_f = 261$ neV) de dimensions 7 cm $\times$ 7 cm $\times$ 100 cm, rempli d'hélium 4 superfluide, (c) écran contre la radiation thermique (d'autres écrans extérieurs consacrés à maintenir le vide ne sont pas montrés ici), (d) valve d'UCN, (e) guide pour extraire des UCN vers un détecteur ou une expérience. . . . .	28
1.5	Fonctions de Airy $A_i$ et $B_i$ . . . . .	33
1.6	Etats quantiques d'un neutron piégé dans un puits de potentiel créé par le champ de pesanteur et le potentiel de Fermi du miroir.[23] . . . . .	35
1.7	Configuration de base des premières mesures sur les états quantiques des UCN dans le champ de pesanteur, réalisées en 1999 à l'ILL.[24] . . . . .	35
1.8	Résultats des premières mesures sur les états quantiques des UCN dans le champ gravitationnel terrestre, réalisées en 1999 à l'ILL. On mesure le flux de neutrons transmis en fonction de la taille de la fente entre un miroir horizontal et un plafond absorbant. La ligne pleine représente le comportement classique $N \propto z^{1.5}$ . [24] . . . . .	37

1.9	Illustration du dispositif expérimental avec une marche permettant la transition des neutrons à un état d'énergie plus élevée. . . . .	37
1.10	Histogramme des positions verticales des neutrons obtenu grâce aux mesures effectuées en 2005 à l'ILL.[7] . . . . .	38
1.11	La fonction d'onde du deuxième état quantique $\Psi_2(z)$ sans présence du champ caméléon et non perturbée (courbe noire), et perturbée par le potentiel caméléon avec indice Ratra-Peebles $n = 2$ et le paramètre de couplage $\beta = 10^9$ , calculée avec la correction du premier ordre de perturbation.[7] . . . . .	41
1.12	L'installation du spectromètre GRANIT au niveau C à l'ILL. . . . .	43
1.13	L'installation du spectromètre GRANIT dans la salle blanche. . . . .	44
1.14	Les instruments de contrôle du spectromètre GRANIT dans la chambre à vide. . . . .	45
1.15	Illustration de la configuration pour induire les transitions résonantes des UCN dans le spectromètre GRANIT. . . . .	46
1.16	Illustration de la configuration du spectromètre GRANIT en mode DC pour les transition résonantes, avec un détecteur sensible à la position placé à une distance de 30 cm par rapport à la fente de filtration. . . . .	47
2.1	Le nombre des charges collectées en fonction du potentiel électrique appliqué sur les électrodes.[46] . . . . .	52
2.2	Gauche : spectre en énergie d'un détecteur proportionnel à base d'hélium 3, avec un pic à 764 keV correspondant à l'énergie totale des produits issus de la capture neutronique, et deux plateaux débutant à 191 keV et 573 keV correspondant à l'énergie du proton et du tritium respectivement causés par un "effet de paroi". Lorsque la capture du neutron a lieu proche de la paroi de l'enceinte, il se peut qu'un des produits s'échappe de la paroi et son énergie n'est pas déposée dans le gaz, d'où la présence de ces deux plateaux. Droite : spectre en énergie d'un détecteur proportionnel avec une couche mince de $^{10}\text{B}$ sur les parois, avec deux plateaux à 0.84 MeV et 1.47 MeV correspondant à l'énergie des ions $^7\text{Li}$ et des particules alpha issus de l'interaction neutron- $^{10}\text{B}$ , en raison de l'effet de paroi.[50] . . . . .	55
2.3	Illustration de la structure des bandes dans un scintillateur inorganique.[46] . . . . .	57
2.4	Illustration de la structure d'un tube photomultiplicateur.[46] . . . . .	58

2.5	Une jonction p-n sans tension extérieure (a) et avec l'application d'une polarisation en inverse (b).[46]	60
2.6	Illustration de la configuration du spectromètre GRANIT en mode DC pour les transitions résonantes, avec un détecteur sensible à la position placé à une distance de 30 cm par rapport à la fente de filtration.	61
2.7	Illustration du fonctionnement d'un détecteur à scintillation avec un réseau de fibres optiques.	62
2.8	(a) : Efficacité de conversion et de détection d'une couche de $^{10}\text{B}$ en fonction de son épaisseur pour les différentes vitesses des UCN incidents. (b) : Efficacité de détection des différentes configurations de couche de conversion $\text{Ti-}^{10}\text{B-Ni}$ en fonction de la vitesse des UCN incidents.[57]	64
2.9	La résolution du détecteur conçu en fonction de l'épaisseur du substrat pour des signaux de 100 photoélectrons, avec des fibres optiques de diamètre de 0.5 mm et 1 mm.[56]	66
2.10	Spectres d'émission et d'absorption des fibres optiques WLS des modèles Y-7, Y-8 et Y-11 de Kuraray.[68]	67
2.11	Réponse spectrale d'un photomultiplicateur multi-anodique de modèle H7546A d'Hamamatsu.[69]	68
2.12	Prototype du réseau de fibres optiques.	68
3.1	Illustration de la formation d'une couche mince[72].	73
3.2	Schéma d'une source plasma élémentaire (a), et image d'un plasma obtenu avec cette source (b).	75
3.3	(a) : Illustration de la chambre de pulvérisation par plasma micro-onde multi-dipolaire. (b) : La chambre de dépôt avec le plasma allumé vue par le dessus, avec les sources plasma rangées en cercle.	76
3.4	Réacteur de dépôt par pulvérisation assistée par plasma micro-onde multi-dipolaire.	77
3.5	Cibles de natures différentes installées au porte-cibles.	78
3.6	Illustration du volume de diffusion des différents rayonnements issus de l'interaction électron-matière.	81

4.1	Gauche : l'échantillon TS0015_Si, ZnS(Ag) sur substrat Si(100). Droite : l'échantillon TS0017_Saphir, ZnS(Ag) sur substrat saphir Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (0001). . . .	87
4.2	Image MEB de la section de l'échantillon TS0015_Si, détecteur SE2. La mesure de l'épaisseur $e$ de la couche ZnS(Ag) s'effectue à l'aide des deux curseurs (ligne blanche). . . . .	88
4.3	Images MEB de la surface de l'échantillon TS0015_Si, avec des zones de focalisation différentes, obtenues avec le détecteur SE2. Gauche : focalisation sur les petites poussières de ZnS(Ag) sur la surface. Droite : focalisation sur les poussières de ZnS(Ag) incrustées dans la couche. . . . .	89
4.4	Images de la surface de l'échantillon TS0015_Saphir, détecteur InLens (gauche) et détecteur ESB (droite). . . . .	89
4.5	Gauche : image de la surface de l'échantillon ZnSAg002, détecteur InLens. Droite : image de la section de découpage de l'échantillon ZnSAg004, détecteur InLens. . . . .	90
4.6	Face arrière des échantillons ZnSAg001 (gauche) et ZnSAg004 (droite). La distribution de la laque d'argent n'est pas suffisamment homogène sur l'échantillon ZnSAg004. . . . .	91
4.7	Illustration du positionnement des 3 échantillons du dépôt ZnSAg015. Le cercle noir représente la plaque en cuivre. Les 3 substrats de saphir (carré bleu) sont collés aux positions représentant le centre, le bord et un angle d'une surface virtuelle de 5 cm × 5 cm (ligne pointillée orange). . . . .	93
4.8	Le porte-cibles du dispositif de dépôt avec 3 cibles de ZnS pur et 1 cible d'Ag.	95
4.9	Image de la section de l'échantillon ZnS0032, détecteur InLens. . . . .	100
4.10	Image de la surface de l'échantillon ZnS0031, détecteur InLens. . . . .	101
4.11	Image de la surface de l'échantillon ZnS0037, détecteur InLens. . . . .	102
4.12	Haut : spectre EDS de l'échantillon ZnS0032 dont le dopage d'Ag est réalisé <i>in situ</i> . Bas : spectre EDS de l'échantillon ZnS0038 qui est élaboré avec une cible de ZnS pré-dopé Ag. . . . .	105

4.13	Concentration atomique de S (gauche) et de Zn (droite) dans ZnS en fonction du potentiel de polarisation effectif sur la cible d'Ag. Les points noirs représentent les échantillons de ZnS dopé Ag <i>in situ</i> . Les lignes pointillées bleue et violette représentent les échantillons réalisés avec une cible de ZnS(Ag) pré-dopé. La ligne noire marque la concentration théorique de Zn et S selon la stoechiométrie de ZnS. . . . .	107
4.14	Concentration atomique d'Ag dans ZnS en fonction du potentiel de polarisation effectif sur la cible d'Ag. Les points noirs représentent les échantillons de ZnS dopé Ag <i>in situ</i> . Les lignes pointillées bleue et violette représentent les échantillons réalisés avec une cible de ZnS(Ag) pré-dopé à une concentration massique de 0.05% (soit une concentration atomique de 0.045%). . . . .	108
4.15	Concentration atomique de Fe (a), Cr (b) et Ni (c) dans ZnS en fonction du potentiel de polarisation effectif sur la cible d'Ag. Les points noirs représentent les échantillons de ZnS dopé Ag <i>in situ</i> . Les lignes pointillées bleues et violettes représentent les échantillons réalisés avec une cible de ZnS(Ag) pré-dopé à une concentration massique de 0.05% (soit une concentration atomique de 0.045%).	109
4.16	Positionnement des cibles de Ni, Ti et $^{10}\text{B}$ sur le porte-cibles . . . . .	111
4.17	Gauche : détecteur CCD Hamamatsu. Droite : scintillateur CRY18. . . . .	111
4.18	Gauche : support de CCD en cuivre sans masque, avec un CCD au centre. Droite : support de CCD avec le masque au-dessus. . . . .	113
4.19	Deux échantillons du dépôt B0002. Gauche : échantillon B0002_Si avec le dépôt multicouche de Ni + $^{10}\text{B}$ + Ti déposé directement sur un substrat de silicium. Droite : échantillon B0002_Saphir avec le dépôt multicouche de Ni + $^{10}\text{B}$ + Ti sur une couche mince de ZnS(Ag) déposée sur un substrat de saphir. . . . .	114
4.20	Image de la section de l'échantillon B0002_Si, détecteur InLens. . . . .	115
4.21	Image de la surface de l'échantillon B0012_Si, détecteur InLens. . . . .	116
4.22	Image de la surface d'un échantillon de $^{10}\text{B}$ sans couche d'accroche en nickel, détecteur InLens. . . . .	117
4.23	Image de la surface de l'échantillon B0012_Saphir, détecteur InLens. . . . .	118
4.24	Les CCD 578 et 025 sortis du sas après le dépôt B0008 (gauche) et le dépôt B0009 (droite). Les capteurs ont été enfoncés plus soigneusement dans le support pendant la préparation pour le dépôt B0009. . . . .	121

4.25	Le CCD 027 après le dépôt B0011. Quelques défauts ponctuels de couleur blanche sont visibles. . . . .	121
4.26	Les échantillons de multicouche de Ni + $^{10}\text{B}$ + Ti : B008_CRY18-26 (gauche) qui est déposé sur un scintillateur CRY18, et B005_Saphir (droite) qui est déposé sur une couche de ZnS(Ag) avec un substrat de saphir. . . . .	122
5.1	Illustration de la configuration des dispositifs expérimentaux pour un test de scintillation sur des couches minces de ZnS(Ag). Les tailles des composants ne sont pas à l'échelle. . . . .	126
5.2	Simulation SRIM du spectre en énergie des particules alpha de 5.485 MeV après avoir traversé 12 $\mu\text{m}$ d'Al et 12 mm d'air. . . . .	127
5.3	Deux signaux enregistrés dans l'oscilloscope numérique. Le signal à gauche dépasse le seuil de -100 mV et est accepté. En revanche, le signal à droite ne satisfait pas à ce critère. Il est donc rejeté. . . . .	127
5.4	Spectres de scintillation de l'échantillon de ZnS(Ag) TS0017_Saphir (courbe bleue) et d'un scintillateur en silicate CRY18 (magenta) enregistrés avec un seuil de -40 mV, comparés aux bruits de fond du PM dans la boîte noire enregistrés avec un seuil de -40 mV (rouge) et -15 mV (noir) respectivement. Les scintillateurs sont irradiés par des alpha de 1.4 MeV pendant 25 minutes, et une tension de -1800 V est appliquée au PM pendant l'acquisition des données. . . . .	128
5.5	Haut : spectre de scintillation en échelle logarithmique de l'échantillon de ZnS(Ag) ZnS0042_Saphir, enregistré à la position Gauche (courbe noire) et Centre-gauche (bleue) sur la fenêtre d'entrée du PM. Bas : nombre total d'évènements en fonction de la position de l'échantillon sur le diamètre de la fenêtre d'entrée du PM, avec un décalage de 5 mm pour chaque position. Les barres d'erreurs sont trop petites pour être visibles sur le graphe. Pendant chaque session d'acquisition de 30 minutes, l'échantillon est irradié par des alpha de 1.4 MeV et le PM est polarisé à -1700 V. . . . .	130
5.6	Spectre de scintillation en échelle logarithmique de l'échantillon de ZnS(Ag) ZnS0017_Saphir directement irradié par des alpha de 1.4 MeV (courbe rouge) avec un seuil de -40 mV, et à travers une plaque en plastique d'environ 500 mm d'épaisseur (bleu). Le PM est polarisé à -1800 V pendant l'acquisition des données. . . . .	131

5.7	Haut : spectre de scintillation en échelle logarithmique de l'échantillon de ZnS(Ag) ZnS0031_Saphir, irradié par des alpha de 1.4 MeV à deux zones différentes sur la surface. Bas : nombre total d'évènements en fonction des différentes zones sur la surface de l'échantillon ZnS0031_Saphir. Les zones sont numérotées de 1 à 4. Le PM est alimenté à -1700 V pendant chaque session d'acquisition qui dure 30 minutes. Les barres d'erreur sont trop petites pour être visibles sur le graphe. . . . .	133
5.8	Nombre total des évènements enregistrés sur les échantillons de ZnS(Ag) irradiés par des particules alpha de 1.4 MeV, en fonction de leurs concentrations atomiques d'argent. Cinq échantillons sont dopés Ag <i>in situ</i> pendant dépôt, avec leurs concentrations atomiques déterminées de 0.1% à 2.5%, ainsi qu'un dernier échantillon élaboré par une cible de ZnS(Ag) pré-dopé, avec sa concentration atomique d'argent déterminée à 0.5%. Le PM est alimenté à -1850 V pendant les sessions d'acquisition de 20 minutes. . . . .	134
6.1	Prototype du réseau de fibres optiques dans la boîte étanche à la lumière. . .	138
6.2	Interface du logiciel de traitement de signal hdf5, avec visualisation d'un évènement de scintillation. . . . .	139
6.3	Exemple de l'intégration de la charge et du comptage des photoélectrons d'un évènement enregistré sur les fibres optiques. Image du poster de D. Roulier et B. Guerard, ILL. . . . .	140
6.4	Reconstruction du centre de masse avec les méthodes de comptage de photoélectrons (gauche) et d'intégration de la charge (droite). Tests réalisés avec des neutrons de 0.25 nm à l'ILL. Image du poster de D. Roulier et B. Guerard, ILL. . . . .	141
6.5	L'évènement de scintillation No.4 capté sur la fibre No.5 (gauche), et l'évènement No.2 enregistré sur la fibre No.7 qui provient du bruit électronique (droite). Les courbes bleues sont les signaux enregistrés. Les courbes rouges représentent les courbes de convolution. Les maxima locaux identifiés par l'algorithme sont marqués par des carrés. . . . .	143
6.6	L'évènement No.2 enregistré sur la fibre No.7 (gauche) qui provient du bruit électronique, et l'évènement de scintillation No.4 capté sur la fibre No.5 (droite). Les courbes bleues sont les signaux enregistrés. Les courbes rouges représentent la courbe de convolution avec $N = 20$ . Les carrés sont les maxima locaux identifiés par l'algorithme. . . . .	144

6.7	L'évènement No.2 enregistré sur la fibre No.7 (a) qui provient du bruit, l'évènement de scintillation No.4 capté sur la fibre No.5 (b), et l'évènement No.8 enregistré sur la fibre No.7 (c). Les courbes bleues sont les signaux enregistrés. Les courbes rouges représentent les courbes de convolution avec $N = 6$ et $X = 10$ . Un seuil de 60 mV est appliqué dans le but de filtrer les bruits. Les maxima locaux identifiés par l'algorithme sont marqués par les carrés. . . . .	145
6.8	L'évènement No.4 enregistré sur la fibre No.5. Les photoélectrons, représentés par les carrés, sont identifiés par l'algorithme avec (gauche) et sans (droite) la nouvelle fonction avec un seuil d'amplitude minimal de 30 mV et un seuil de durée maximale de 0.5 $\mu s$ . Les courbes bleues sont les signaux enregistrés. Les courbes rouges représentent la courbe de convolution avec $N = 6$ et $X = 10$ . . . . .	147
6.9	Deux évènements provenant du bruit : l'évènement No.8 enregistré sur la fibre No.7 (a), et l'évènement No.1 capté sur la fibre No.7 (b). Les extrema locaux, représentés par les carrés, sont identifiés par l'algorithme avec (les images à gauche) et sans (à droite) la nouvelle fonction qui prend en compte d'un seuil d'amplitude minimal de 30 mV et un seuil de durée maximale de 0.5 $\mu s$ . Les courbes bleues sont les signaux enregistrés. Les courbes rouges représentent la courbe de convolution avec $N = 6$ et $X = 10$ . . . . .	148
6.10	L'évènement No.4 enregistré sur la fibre No.5. Les courbes bleues sont les signaux des photoélectrons enregistrés. Les courbes rouges représentent la courbe de convolution avec $N = 3$ et $X = 4$ (gauche), et avec $N = 6$ et $X = 10$ (droite). Les maxima locaux, représentés par les carrés, sont identifiés par l'algorithme avec un seuil d'amplitude minimal de 30 mV et un seuil de durée maximale de 0.5 $\mu s$ . . . . .	149
6.11	Le nombre total des photoélectrons identifiés par la version initiale de l'algorithme sur chacune des 7 fibres optiques pour 5000 évènements. . . . .	151
6.12	Le nombre total des photoélectrons enregistrés sur chacune des 7 fibres optiques pour 5000 évènements, identifiés par la version initiale de l'algorithme (rouge), puis par la deuxième version (bleue) qui introduit un seuil maximal de durée de temps de 0.5 $\mu s$ , et finalement par la version actuelle de l'algorithme (jaune), dont les paramètres de convolution et de l'intervalle des maxima locaux sont ajustés ( $N = 3$ et $X = 4$ ) pour minimiser la suppression des fluctuations, avec l'addition des seuils d'amplitude et de durée. . . . .	152
6.13	Le nombre total des photoélectrons sur chacune des 7 fibres optiques sur 5000 évènements, enregistré par le détecteur irradié par une source de neutrons AmBe (rouge), avec un écran de plomb (bleu), et avec un écran de B <sub>4</sub> C (jaune).153	

# Liste des tableaux

1.1	Classification des neutrons selon leur énergie cinétique . . . . .	24
1.2	Exemples de longueur de diffusion cohérente, densité volumique du noyau et potentiel de Fermi de différents matériaux. . . . .	30
1.3	Energies et hauteurs classiques associée aux niveaux quantiques d'un neutron dans le champ gravitationnel terrestre. . . . .	34
2.1	Exemples des matériaux avec une section efficace d'absorption des neutrons thermiques élevée[43, 44, 45] et les réactions utilisées pour la détection des neutrons. . . . .	51
2.2	Caractéristiques du scintillateur ZnS(Ag) . . . . .	65
4.1	Mesures de l'épaisseur moyenne $e$ des dépôts de ZnS(Ag) réalisés à 1 mTorr, à une distance de 10.5 cm de la cible et pour une puissance de polarisation RF de 200 W. . . . .	88
4.2	Série des dépôts de couche mince de ZnS(Ag), réalisés à 12 cm de distance cible-substrat. Les échantillons avec * ont craqué en sortant du sas. Les valeurs moyennes de l'épaisseur et les vitesses de dépôt calculées sont reportées dans la table. . . . .	91
4.3	Série des dépôts de couche mince de ZnS(Ag) réalisés à 1 mTorr sur les substrats de Si(100) de 50.8 mm de diamètre. Le potentiel de polarisation négatif est fixé à 600 V. . . . .	92

4.4	Echantillons du dépôt ZnSAg015, positionnés au centre, au bord et à un angle d'une surface virtuelle de 5 cm × 5 cm (cf. Figure 4.7), élaborés à 1 mTorr sur des substrats de saphir. Le potentiel de polarisation négatif est fixé à 600 V et la distance cible-substrat à 13.5 cm. La durée de dépôt est de 3 heures et 40 minutes. . . . .	92
4.5	Deux dépôts de couche mince de ZnS(Ag) réalisés à 1 mTorr sur des substrats de saphir de dimensions 10 mm × 10 mm × 0.5 mm. . . . .	93
4.6	4 dépôts de couche mince de ZnS réalisés avec une distance cible-substrat de 10.5 cm, une pression d'argon de 1 mTorr et une durée de 4 heures. . . . .	97
4.7	2 dépôts de couche mince de ZnS réalisés avec une distance cible-substrat de 10.5 cm, une pression d'argon de 1 mTorr, 300 W de puissance RF et une durée de 4 heures. La puissance micro-onde pour générer le plasma varie entre ces deux dépôts. . . . .	97
4.8	5 dépôts de couche mince de ZnS réalisés avec une puissance micro-onde de 2 × 1 kW, une pression de 1 mTorr d'argon et une puissance RF de 300 W sur les cibles de ZnS. La distance cible-substrat $h$ varie entre 8 cm et 12 cm. . . . .	98
4.9	4 dépôts de couche mince de ZnS réalisés avec une puissance micro-onde de 2 × 1 kW, une distance cible-substrat de 9 cm et une puissance RF de 300 W sur les cibles de ZnS. La pression d'argon varie entre 2 mTorr et 3 mTorr. . . . .	98
4.10	5 dépôts de couche mince de ZnS réalisés avec 2 × 1 kW de puissance micro-onde. Les cibles de ZnS sont polarisées avec une puissance RF variant entre 150 W et 250 W. La distance cible-substrat varie entre 9 cm et 12 cm, et la pression d'argon varie entre 1.5 mTorr et 2 mTorr. . . . .	99
4.11	6 dépôts de ZnS réalisés avec 2 × 1 kW de puissance micro-onde. Le dopage d'argent est effectué en variant le potentiel de polarisation sur la cible d'Ag entre 0 V et 20 V. . . . .	100
4.12	5 dépôts de couche mince de ZnS(Ag) pré-dopé réalisés avec 2 × 1 kW de puissance micro-onde. La cible de ZnS(Ag) est polarisée par un générateur radiofréquence. . . . .	102
4.13	Concentrations globale et ponctuelle des éléments Ag, S et Zn pour les échantillons de ZnS dopé Ag <i>in situ</i> , déterminées par analyse EDS. . . . .	104
4.14	Concentration globale des éléments Ag, S, Zn, Fe et Cr pour les échantillons de ZnS pré-dopé Ag avec une concentration massique de 0.05% (soit une concentration atomique de 0.045%), déterminée par analyse EDS. . . . .	104

4.15	3 dépôts de multicouche de Ni + $^{10}\text{B}$ + Ti réalisés avec 1 mTorr de pression d'argon. La puissance de sortie du générateur RF est fixée à 250 W pour polariser les cibles de $^{10}\text{B}$ , et un potentiel de polarisation négatif de 100 V est appliqué par deux générateurs DC sur les cibles de Ni et Ti respectivement. Les mesures de l'épaisseur ont été effectuées sur les échantillons en Si(100), et la valeur moyenne $e$ est reportée dans la table. . . . .	115
4.16	Coefficient de dilatation thermique $\alpha$ et potentiel de Fermi $V_F$ du bore, du nickel, et des matériaux disponibles en cible de pulvérisation et ayant un $\alpha$ avec une valeur proche de celle du bore. . . . .	118
4.17	8 dépôts multicouche de Ni + $^{10}\text{B}$ + Ti réalisés avec une pression d'argon de 1 mTorr et une distance cible-substrat de 10.5 cm. Les échantillons avec * étaient vierges et ont suivi le protocole de nettoyage décrit dans la section 4.3.1. Les autres échantillons avaient déjà subit un dépôt précédent et ont été re-nettoyés à ultrason pour un nouveau dépôt. . . . .	120
4.18	Série de 8 dépôts multicouche de Ni + $^{10}\text{B}$ + Ti réalisés avec une pression d'argon de 1 mTorr, sur des échantillons de ZnS(Ag) avec un substrat de saphir, des scintillateurs commerciaux CRY18 et des substrats en silicium. Le potentiel de polarisation négatif appliqué sur les cibles de $^{10}\text{B}$ par un générateur RF est fixé à 300 V, et à 100 V sur les cibles de Ni et Ti respectivement par deux générateurs DC. Les mesures de l'épaisseur $e$ ont été effectuées sur les échantillons avec un substrat de Si(100), et les valeurs moyennes $e$ sont reportées dans la table. . . . .	123

# Introduction

Le travail de cette thèse, qui s'inscrit dans le domaine de la physique des neutrons ultra-froids, concerne le spectromètre GRANIT installé à l'Institut Laue-Langevin à Grenoble, France. Le dispositif est conçu pour étudier l'effet gravitationnel sur un système de particules élémentaires, spécifiquement les états quantiques du neutron dans le champ de pesanteur terrestre.

Les neutrons ultra-froids ont la particularité de pouvoir rebondir sur un miroir horizontal parfait, dont le mouvement est analogue à une balle rebondissant sur une surface à l'échelle macroscopique. Les neutrons se comportant comme des objets quantiques, leurs énergies prennent des valeurs discrètes qui correspondent aux différents états quantiques autorisés. On retrouve une fonction d'onde et une densité de probabilité pour détecter un neutron à une hauteur donnée, analogue à un puits de potentiel carré central symétrique.

La caractérisation précise de ces états quantiques du neutron, et surtout les transitions résonantes entre deux états quantiques, peut fournir des informations pour contraindre, infirmer ou confirmer certaines hypothèses des modèles physiques actuels. Le spectromètre GRANIT dispose des modules pour induire des transitions aux neutrons ultra-froids et cherche à caractériser leurs fréquences résonantes. Un des modes de fonctionnement de GRANIT parvient à associer la fréquence résonante avec la vitesse horizontale des neutrons. Cette dernière grandeur peut être mesurée par la hauteur de chute libre à une distance donnée, ce qui exige un détecteur de neutrons ultra-froids sensible à la position. Le concept du détecteur utilisant une combinaison d'un scintillateur et un réseau de fibres optiques est ainsi proposé, et cette thèse se focalise sur la réalisation du détecteur et l'évaluation de sa performance.

Le chapitre 1 présentera les particularités des neutrons ultra-froids dans un champ gravitationnel. Les interactions des neutrons avec les quatre forces fondamentales seront décrites. La définition et la méthode de production des neutrons ultra-froids seront également présentées, ainsi que le spectromètre GRANIT et ses enjeux.

Le chapitre 2 présentera le concept d'un détecteur de neutrons ultra-froids sensible à la position qui répond aux critères imposés par le spectromètre GRANIT. Les généralités des détecteurs de neutrons seront également discutées.

Le chapitre 3 se focalise sur la technique du dépôt de couche mince par pulvérisation assisté par plasma, qui est la méthode utilisée dans la thèse pour fabriquer le composant scintillateur du détecteur. Le principe du fonctionnement sera expliqué dans ce chapitre. Le dispositif du dépôt utilisé pendant cette thèse, le protocole du procédé de dépôt, ainsi que les méthodes de caractérisation des couches minces seront également décrits.

Dans le chapitre 4, les couches minces de scintillateur fabriquées par dépôt et les résultats de leur caractérisation seront présentés. La faisabilité du dopage *in situ* des centres d'activation dans le scintillateur pendant le procédé de dépôt sera démontrée dans le chapitre 5, et les résultats de l'efficacité des scintillateurs fabriqués seront exploités dans le chapitre 6.

Le chapitre 7 concerne le réseau de fibres optiques, et se focalise spécifiquement sur l'amélioration de l'algorithme pour identifier les photoélectrons captés par les fibres optiques. Le concept du réseau et le prototype sur lequel les tests sont effectués seront également présentés. Enfin, le chapitre 8 résumera les résultats obtenus, et présentera la conclusion et les perspectives sur la faisabilité d'un tel détecteur de neutrons sensible à la position avec les méthodes utilisées pendant cette thèse.

# Chapitre 1

## Neutrons ultra-froids dans un champ gravitationnel

Dans ce chapitre, nous introduirons les neutrons ultra-froids et leurs comportements dans un champ gravitationnel, ainsi que le contexte et la justification pour installer un détecteur de neutrons sensible à la position au spectromètre GRANIT.

La définition d'un neutron libre et ses comportements sous les quatre interactions fondamentales seront d'abord présentés. Les neutrons ultra-froids (UCN) seront introduits par la suite, ainsi que leurs méthodes de production. La particularité des UCN de pouvoir rebondir sur une surface sous certaines conditions sera également expliquée, et elle sert comme la base expérimentale du spectromètre GRANIT.

Lorsqu'un UCN rebondit sur une surface dans le champ de pesanteur, ses niveaux d'énergie sont quantifiés. La section suivante se focalisera donc sur la physique de ce phénomène dans le champ de pesanteur, ainsi que le principe de l'observation expérimentale de ces états quantiques et les résultats obtenus sur les prédécesseurs du spectromètre GRANIT. Le potentiel d'un tel système pour sonder de nouvelles physiques sera également discuté.

Enfin, la dernière section sera consacrée aux aspects techniques du spectromètre GRANIT, parmi lesquels les modules de transitions résonantes présentent un intérêt particulier à l'étude plus approfondie des états quantiques des UCN. Ces modules induisent des transitions aux UCN et parviennent à modifier leurs vitesses horizontales pendant le processus. Nous nous intéressons à cette dernière grandeur, qui peut être déterminée à partir de la hauteur de chute libre de l'UCN à la sortie du spectromètre. Ceci justifiera la nécessité d'un détecteur de neutrons sensible à la position.

## 1.1 Les neutrons libres sous interactions fondamentales

Observé pour la première fois en 1930 par W. Bothe et H. Becker[1] comme un rayonnement très pénétrant et insensible au champ électrique, résultant des bombardements des cibles d'éléments légers (Be, B et Li) par des particules alpha, le neutron est identifié en 1932 par J. Chadwick[2, 3] comme une particule de masse similaire à celle du proton et de charge électrique nulle.

Lorsqu'un neutron n'est pas lié à d'autres nucléons, comme le rayonnement constaté par W. Bothe et H. Becker, il s'agit d'un neutron libre. Etant une particule neutre, le neutron ne subit pas de force de Coulomb répulsive à proximité d'un noyau d'atome, contrairement aux particules chargées telles que les particules alpha. Les chercheurs de l'époque ont immédiatement reconnu le neutron comme un outil puissant pour sonder le noyau atomique. E. Fermi démontre dès 1934 l'existence des nouveaux éléments radioactifs produits par l'irradiation neutronique. Ceci mène en 1938 à la découverte de la fission nucléaire par O. Hahn, L. Meitner et F. Strassman en bombardant des cibles d'uranium par des neutrons[4, 5].

Aujourd'hui, on trouve de nombreuses applications des neutrons comme un outil d'analyse pour sonder la matière, grâce à sa charge neutre, sa durée de vie suffisamment longue et la maîtrise de sa production. De plus, la capacité de diminuer l'énergie des neutrons jusqu'à l'ordre du milliélectronvolt, voire nanoélectronvolt, contrairement à 25 meV qui correspond à l'énergie des neutrons thermiques à 300 K, donne également la possibilité d'étudier les interactions fondamentales avec les neutrons. Nous verrons dans cette section comment, et à quels degrés, ces interactions affectent les neutrons libres.

### 1.1.1 Interaction électromagnétique

Etant composé d'un quark up et deux quarks down, le neutron a une charge électrique nulle. La limite donnée par le PDG[6] en 2018 est compatible avec zéro avec une précision absolue de  $10^{-28} e$ , soit :

$$q = (-0.2 \pm 0,8) \times 10^{-21} e \quad (1.1)$$

où  $e$  est la charge élémentaire.

Il est aussi prédit par le modèle standard que le moment dipolaire électrique du neutron (EDM) est extrêmement faible[7] :

$$d_n \approx 10^{-32} e.cm. \quad (1.2)$$

Cependant, une mesure précise de l'EDM du neutron reste toujours en progrès et fait l'objet de nombreuses expériences aujourd'hui. En effet, les hypothèses pour expliquer l'asymétrie baryonique pendant l'univers primordial généralement impliquent une violation de la symétrie CP plus importante que permet le modèle standard, ce qui exigent des modifications de ce dernier. L'existence potentielle de l'EDM étant une source de violation CP, une mesure précise de cette grandeur permet de mettre des limites sur les paramètres d'extension possible du modèle standard. En raison de sa valeur extrêmement faible, l'enjeu des expériences actuelles est d'améliorer la sensibilité de ces mesures. La limite donnée en 2020 [8] est :

$$|d_n| < 1.8 \times 10^{-26} e.cm. \quad (1.3)$$

Ainsi, dans le contexte de cette thèse, nous considérons que le neutron est une particule électriquement neutre. Ceci dit, malgré son insensibilité aux champs électriques uniformes, le neutron est affecté par l'interaction électromagnétique à cause de son moment magnétique  $\vec{\mu}_n$ . L'orientation de  $\vec{\mu}_n$  est définie par le spin du neutron  $\frac{1}{2}\hbar$ , et sa valeur a été précisément mesurée[6] à :

$$\vec{\mu}_n = -1.913043\vec{\mu}_N = -6.030774 \times 10^{-8} eV.T^{-1}, \quad (1.4)$$

avec  $\vec{\mu}_N$  le magnéton nucléaire dont la valeur est définie en lien avec le proton :

$$\mu_N = \frac{e\hbar}{2m_p}. \quad (1.5)$$

Par conséquent, le potentiel induit par un champ magnétique extérieur  $\vec{B}$  subit par un neutron peut être décrit ainsi :

$$V_{mag} = -\vec{\mu}_n \cdot \vec{B}. \quad (1.6)$$

Si ce champ magnétique n'est pas homogène, le neutron sera soumis à une force exprimée par la formule suivante :

$$\vec{F}_{mag} = -\vec{\nabla} V_{mag} = \vec{\nabla}(\vec{\mu}_n \cdot \vec{B}). \quad (1.7)$$

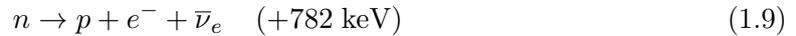
Il faut noter que l'on suppose une variation adiabatique du champ magnétique ici, afin de maintenir le spin du neutron toujours aligné sur le champ magnétique. En effet, s'il existe un angle entre le moment magnétique et la direction du champ magnétique, ceci engendre une précession du moment magnétique. La fréquence de Larmor, qui quantifie cette précession, est proportionnelle à l'amplitude du champ magnétique :

$$f_{Larmor} = \frac{1}{2\pi} \frac{g\mu_N}{\hbar} |\vec{B}|, \quad (1.8)$$

avec le facteur de Landé  $g \approx -3.826085$  pour le neutron[9]. Ceci dit, on peut toutefois considérer que le champ magnétique varie adiabatiquement, si la fréquence de variation est beaucoup plus faible que celle de Larmor. Ces propriétés magnétiques du neutron contribuent à une partie importante du principe de fonctionnement du spectromètre GRANIT, que nous élaborerons en détail dans la section 1.4.2 de ce chapitre.

### 1.1.2 Interaction faible

L'interaction faible se manifeste sur un neutron par la désintégration  $\beta$ , comme illustrée dans le diagramme 1.1. Un neutron libre se désintègre spontanément en un proton, un électron et un antineutrino électronique :



avec une durée de vie d'environ 15 minutes, ce qui est suffisant pour la plupart des expériences nécessitant un stockage de neutrons de faible énergie. Le fait que l'interaction faible viole la conservation de la parité a été mis en évidence par l'observation d'une distribution angulaire anisotrope des produits de la désintégration  $\beta$  en 1957 par Wu et al[10].

Une mesure précise du temps de vie d'un neutron demeure un sujet activement recherché aujourd'hui. En effet, ce paramètre est indispensable pour prédire l'abondance de l'hélium 4 pendant la nucléosynthèse primordiale. Il joue également un rôle dans la détermination du terme  $V_{ud}$  dans la matrice CKM et pour contraindre les paramètres des modèles de la physique au delà du modèle standard[11].

Deux méthodes de mesure existent actuellement pour une détermination précise de la durée de vie d'un neutron. Pour une méthode de type "faisceau", il s'agit de mesurer le taux de désintégration d'un faisceau de neutrons  $\frac{dN}{dt}$  par la détection des protons provenant de la désintégration  $\beta$ . On détermine la durée de vie  $\tau_n$  par l'équation  $\frac{dN}{dt} = -\frac{N}{\tau}$ . Le résultat obtenu par Yue et al en 2013 est  $\tau_n^{faisceau} = (887.7 \pm 1.2[stat] \pm 1.9[sys]) \text{ s}$  [6].

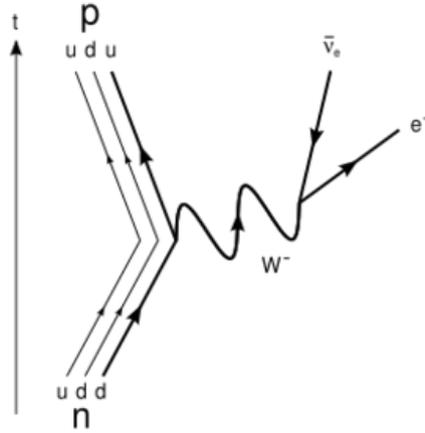


FIGURE 1.1 – Diagramme de la désintégration  $\beta$  d'un neutron libre.

En revanche, pour une méthode de type "bouteille", les neutrons sont confinés dans un volume par une paroi physique ou un champ magnétique, et on mesure le nombre des neutrons qui restent dans le volume à différents temps. La relation  $N(t) = N_0 e^{-\frac{t}{\tau_n}}$  nous permet de déterminer le temps de vie, et la valeur obtenue par Arzumanov et al en 2015 est  $\tau_n^{bouteille} = (880.2 \pm 1.2)$  s [6].

L'écart de 7 secondes entre ces deux méthodes de mesure reste significatif, malgré l'amélioration de la précision des mesures depuis des années. L'hypothèse de la désintégration du neutron en matière noire ayant été exclue[12], l'effort actuel se concentre sur la maîtrise des divers effets systématiques des différentes expériences[11].

### 1.1.3 Interaction forte

Etant un constituant du noyau atomique, le neutron est affecté par l'interaction forte. Cette force relie des neutrons et des protons dans un noyau. Elle gouverne également les mécanismes d'absorption et de diffusion d'un neutron libre par un nucléon à proximité.

L'interaction forte joue un rôle essentiel dans la détection de neutrons. En effet, les détecteurs de particules sont généralement adaptés pour la détection des particules ionisantes. Le neutron ayant une charge électrique nulle, la détection de neutrons nécessite de les convertir en particules chargées ou en rayon gamma par la capture de neutrons dans un noyau, un processus gouverné par l'interaction forte.

Le neutron peut également être diffracté par un cristal, ou être diffusé par une surface d'un matériau à cause de l'interaction forte. Grâce à sa dualité onde-corpuscule, le neutron peut être considéré comme une particule de vitesse  $v$  et d'énergie cinétique  $E = \frac{1}{2}m_n v^2$ , ou

comme une onde avec une longueur d'onde de De Broglie  $\lambda_n = \frac{2\pi\hbar}{\sqrt{2m_n E_n}}$ , selon le domaine de physique concerné.

Lorsqu'un neutron s'approche d'une surface, et si sa longueur d'onde de De Broglie est suffisamment grande, c'est-à-dire que  $\lambda_n > 1 \text{ \AA}$  ou  $E_n < 80 \text{ meV}$ , le neutron interagit fortement avec les noyaux de la surface de façon cohérente, analogue à une onde lumineuse par interaction électromagnétique. Un phénomène de diffraction dû à la diffusion cohérente peut être observé sur un faisceau de neutrons monochromatique de faible énergie incident à un cristal. La diffraction obéit à la loi de Bragg :

$$2d \sin(\theta) = n\lambda_n, \quad (1.10)$$

avec  $d$  la distance interréticulaire,  $\theta$  l'angle incident de l'onde neutronique et  $n$  l'ordre de diffraction. La diffractométrie de neutrons est basée sur ce principe, ainsi que la sélection d'une longueur d'onde spécifique à partir d'un faisceau de neutrons polychromatique.

Si  $\lambda_n$  devient encore plus grande, jusqu'à  $\lambda_n \gg 1 \text{ \AA}$  ou  $E_n \ll 80 \text{ meV}$ , le neutron peut être complètement réfléchi par la surface de différents matériaux. Ce phénomène permet le stockage de neutrons dans un volume avec une paroi physique, ou encore la modération d'un faisceau de neutrons, un mécanisme que l'on exploite dans le spectromètre GRANIT.

#### 1.1.4 Interaction gravitationnelle

La masse du neutron est mesurée à [6] :

$$m_n = 1.00866u = 939.5654 \text{ MeV}/c^2 = 1.6750 \times 10^{-27} \text{ kg}. \quad (1.11)$$

Ainsi, son potentiel induit par le champ de pesanteur terrestre en fonction de la hauteur  $z$  est :

$$V(z) = m_n g z = \frac{z}{1m} \times 102 \text{ neV}. \quad (1.12)$$

On note que cette énergie cinétique de 102 neV correspond à un neutron de vitesse de 4.4 m/s. L'effet du champ de pesanteur sur les neutrons de très faible énergie est significatif, comme montré sur la figure 1.2. Compte tenu du fait que l'interaction forte a une très faible portée, et que le potentiel magnétique est faible et facilement modéré par un écran, les neutrons de très faible énergie sont un outil optimisé pour étudier l'effet gravitationnel sur un système de particules subatomiques.

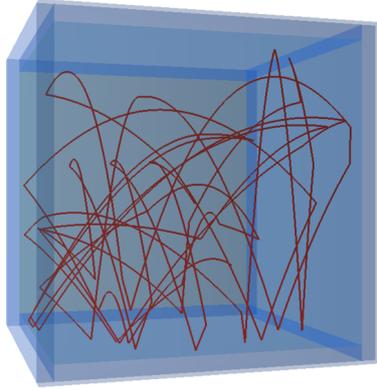


FIGURE 1.2 – Trajectoire d'un neutron de vitesse de 4 m/s dans une boîte vide de 50 cm × 50 cm × 50 cm.

## 1.2 Neutron ultra-froid (UCN)

Les neutrons libres peuvent être classés selon leur température ou leur énergie cinétique, comme montré dans la table 1.1 :

TABLE 1.1 – Classification des neutrons selon leur énergie cinétique

	Energie cinétique	Vitesse (m/s)	Longueur d'onde (nm)
rapide	$E > 500 \text{ keV}$	$v > 10^7$	$\lambda < 4 \times 10^{-5}$
épithermique	$25 \text{ meV} < E < 500 \text{ keV}$	$2200 < v < 10^7$	$4 \times 10^{-5} < \lambda < 0.18$
thermique	$E \approx 25 \text{ meV}$	$v \approx 2200$	$\lambda \approx 0.18$
froid	$0.05 \text{ meV} < E < 25 \text{ meV}$	$100 < v < 2200$	$0.18 < \lambda < 4$
très froid	$250 \text{ neV} < E < 0.05 \text{ meV}$	$7 < v < 100$	$4 < \lambda < 57$
ultra-froid	$E < 250 \text{ neV}$	$v < 7$	$\lambda > 57$

On note la notion du neutron thermique ici, qui correspond à un neutron avec une énergie cinétique de 25 meV ou avec une vitesse de 2200 m/s. Ce sont les valeurs les plus probables à 293 K selon la distribution de Maxwell-Boltzmann, une loi que les neutrons produits dans les réacteurs obéissent à l'équilibre thermique.

Les neutrons ultra-froids, observés la première fois en 1969[13, 14] et communément appelés UCN (Ultra-Cold Neutrons en anglais), ont la particularité d'être réfléchis par une surface à tout angle incident. Ils possèdent typiquement une énergie cinétique en dessous de 250 neV ou une vitesse inférieure à 7 m/s. Nous expliquerons dans cette section, les méthodes de production des UCN et leurs caractéristiques particulières par rapport aux neutrons plus énergétiques.

### 1.2.1 Production des UCN

Dans cette section, nous présenterons d'abord la généralité de la production des neutrons. La production des neutrons ultra-froids à l'ILL, où le spectromètre GRANIT est installé, sera discutée en détail par la suite.

#### Généralité de la production des neutrons

En raison de la désintégration  $\beta$ , présentée dans la section 1.1.2, les neutrons libres ne sont pas stables. En revanche, les neutrons liés à un noyau atomique stable ne peuvent pas se désintégrer, dû au fait que ce processus est énergiquement défavorable par rapport à l'énergie de liaison entre les nucléons. Ainsi, les sources de neutrons libres pour les applications de recherche scientifique ou de technologie consistent à extraire les neutrons dans des noyaux d'atomes par diverses réactions nucléaires.

Certains isotopes produisent des neutrons par fission nucléaire spontanée, tels que  $^{252}\text{Cf}$ . Il existe également des mélanges d'un corps émetteur alpha ( $^{241}\text{Am}$ ,  $^{238}\text{Pu}$ , etc) ou gamma ( $^{124}\text{Sb}$ ,  $^{88}\text{Y}$ ) avec un élément léger tel que le béryllium, pour exploiter les réactions de type  ${}^9_4\text{Be}(\alpha, n\gamma){}^{12}_6\text{C}$  ou  ${}^9_4\text{Be}(\gamma, n){}^9_4\text{Be}$ . Ces sources de petit volume sont très pratiques à manipuler, mais leur flux de neutrons est limité, de l'ordre de  $10^7$  n/s [15].

Pour atteindre un flux de neutrons libres plus élevé, il existe deux méthodes principales. Une des ces méthodes consiste à bombarder une cible avec un faisceau de particules dans un accélérateur, afin d'induire les réactions nucléaires qui produisent des neutrons. Un exemple est la réaction d'un faisceau de deutérium sur une cible de tritium dans un générateur de neutrons. Ceci produit un faisceau de neutrons rapides de 14 MeV avec un flux généralement supérieur à  $10^8$  n/s[15].

Lorsque l'on accélère les protons à 800 – 1200 MeV et les fait bombarder une cible d'élément lourd tel que le plomb ou l'uranium, les noyaux atomiques de la cible absorbent les protons et rentrent dans un état excité, ce qui conduit à l'émission de plusieurs neutrons du noyau. Ce processus, nommé spallation, est la base de plusieurs sources de neutrons telles que celles à Los Alamos (Etats-Unis) et ISIS-Rutherford-Appleton (Royaume-Uni). Ces sources de neutrons opèrent en mode pulsé et sont capable de produire un flux de neutrons jusqu'à  $10^{16}$  n.cm<sup>-2</sup>.s<sup>-1</sup>[16].

L'autre méthode pour produire des neutrons libres à haut flux est la fission nucléaire dans un réacteur, dont un des produits est le neutron. La source de neutrons situé à l'Institut Laue-Langevin (ILL) à Grenoble, France, de laquelle proviennent les neutrons pour le spectromètre GRANIT, est un tel modèle. Nous expliquerons en détail ce processus de production de neutrons ultra-froids dans le contexte du spectromètre GRANIT et des dispositifs à l'ILL.

## Production des UCN à l'ILL

Le coeur du réacteur à l'ILL, montré sur la figure 1.3, est constitué d'un combustible d'uranium enrichi, immergé dans de l'eau lourde ( $D_2O$ ) maintenue à température ambiante, qui fonctionne comme un modérateur. Chaque fission, elle-même provoquée par un neutron, émet en moyenne 2.5 neutrons rapides, et le flux au coeur peut atteindre  $10^{15}$  n.cm<sup>-2</sup>.s<sup>-1</sup>[16]. Dans un réacteur, soit à des fins de recherche scientifique, soit pour la production d'énergie, on cherche toujours à maintenir une réaction en chaîne, c'est-à-dire qu'un seul neutron issu d'une fission contribue à une nouvelle fission. Or, la réaction s'arrêtera si trop peu de neutrons y participent, et elle divergera si trop de neutrons y contribuent.

Ainsi, les neutrons dans l'excès pour la réaction en chaîne seront extraits du réacteur. Ils sont d'abord considérablement ralentis par multiples collisions avec le deutérium dans  $D_2O$  en traversant le volume du modérateur maintenu à température ambiante. Le choix de l'eau lourde comme modérateur provient de sa grande section efficace de diffusion cohérente ( $\sigma_{coh} = 5.6$  barn) et sa faible section efficace d'absorption ( $\sigma_{abs} = 0.0005$  barn) pour un neutron thermique. A la sortie du modérateur, on obtient un faisceau de neutrons dont la distribution de Maxwell-Boltzmann est centrée sur la température ambiante, ce qui correspond aux neutrons thermiques ( $E = 25$  meV ou  $\lambda = 1.8$  Å pour  $T = 293$  K). Il est aussi possible d'obtenir un flux de neutrons d'une plus faible énergie en utilisant un modérateur plus froid, tel que le deutérium liquide ( $T < 25$  K) ou solide ( $T < 18$  K).

A partir des neutrons thermiques ou froids, on peut continuer à diminuer leur énergie cinétique jusqu'au domaine des UCN. Une des méthodes est le refroidissement par turbine, comme montré sur la figure 1.3. Les neutrons sont décélérés grâce aux réflexions totales sur les lames tournantes du dispositif[17]. Une telle source a été employée à l'ILL depuis 1985, avec une densité d'UCN de l'ordre de 10 par cm<sup>3</sup>[18]. Les neutrons produits par ce type de source possèdent une énergie inférieure au potentiel de Fermi du matériau de la paroi (252 neV pour le béryllium par exemple, correspondant à une vitesse de 7 m/s) ou inférieure au potentiel magnétique d'un champ extérieur, puisque les neutrons plus énergétiques sont capables de s'échapper de ces barrières de potentiel physique ou magnétique.

Afin de continuer à augmenter la densité des UCN et réduire leur vitesse moyenne, une nouvelle génération de sources d'UCN dite superthermales ont été développées. Le principe est basé sur le transfert d'énergie du neutron à une matière condensée par création d'un phonon[19]. En raison d'une très faible probabilité de ré-excitation des neutrons à basse température selon la distribution de Boltzmann, il est envisageable de stocker les UCN dans un volume de conversion pour augmenter leur densité avant de les guider aux divers dispositifs expérimentaux. Les matières avec une section efficace d'absorption de neutron très faible, telles que l'hélium 4 superfluide et le deutérium solide ( $sD_2$ )[20, 21], sont les candidats idéals pour cette application. La source d'UCN dédiée au spectromètre GRANIT est un des prototypes de source superthermale utilisant l'hélium 4 superfluide.

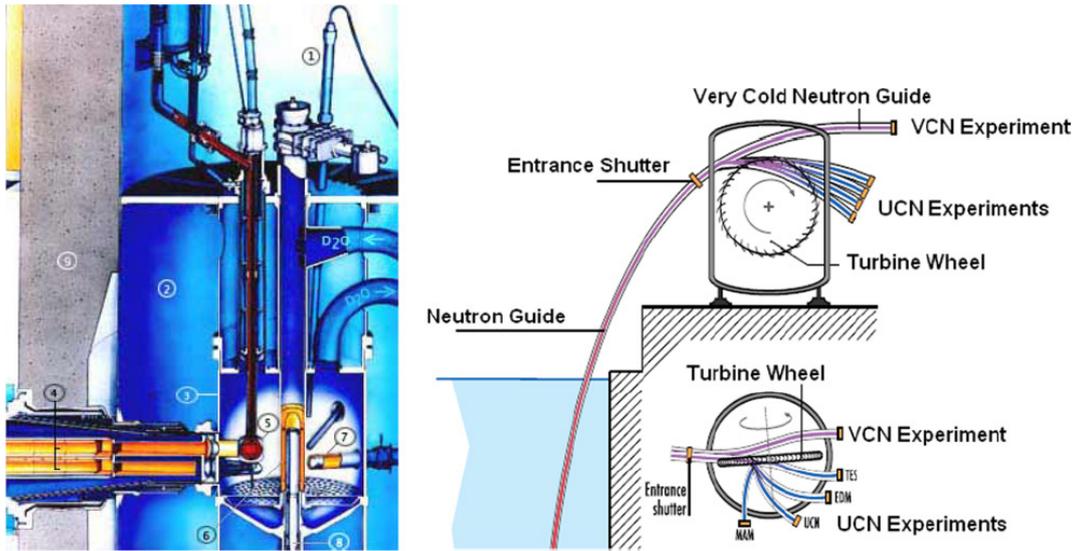


FIGURE 1.3 – Le coeur du réacteur à l’ILL (gauche) : (1) barre de sécurité (2) modérateur (3) réservoir (4) guide de neutrons froids et thermiques (5) source froide verticale (6) coeur du réacteur (7) source froide horizontale (8) barre de contrôle (9) paroi en béton. La source de UCN avec le mécanisme de turbine à l’ILL (droite).

Il faut noter que, avant de rentrer dans la source superthermale, le faisceau de neutrons thermiques est d’abord guidé vers un monochromateur, composé de deux rangées de 9 cristaux de  $KC_{24}$ , avec chaque couche de potassium intercalée par deux feuilles de graphite. Ce dispositif permet de sélectionner les neutrons de  $0.89 \text{ nm}$  ( $E \approx 1 \text{ meV}$ ), dû au fait que cette longueur d’onde correspond à un niveau d’énergie où le transfert d’énergie avec l’hélium superfluide par création de phonon est le plus efficace[18].

Le faisceau de neutrons froids sortant du monochromateur est ensuite guidé vers le volume de conversion de la source, comme montré sur la figure 1.4. Un bain d’hélium 4 est refroidi à  $0.7 \text{ K}$  avant l’arrivée du faisceau, grâce à un refroidissement par évaporation (baisse de température du liquide par diminution de la pression de vapeur saturante). La température accessible par évaporation de l’hélium 4 étant  $1.3 \text{ K}$ , un deuxième circuit avec hélium 3 assure la descente de la température en dessous de  $1 \text{ K}$ , grâce à sa pression de vapeur saturante plus élevée que celle de l’hélium 4[22].

Dans le but de minimiser la perte d’UCN par capture de neutrons, l’hélium 4 naturel dans le volume de conversion a été purifié de l’hélium 3. Le processus de purification est réalisé par une filtration à travers une superfuite, par laquelle seul un superfluide peut passer. Etant donné que la température de transition au superfluide est  $2.2 \text{ K}$  pour l’hélium 4 et  $2.5 \text{ mK}$  pour l’hélium 3[22], la purification est assurée en maintenant une température permettant la transition au superfluide de l’hélium 4 et non pas celle de l’hélium 3.

Ayant été stockés et refroidis dans le volume de conversion, les UCN sont enfin extraits par une valve et guidés vers un détecteur de comptage ou vers une expérience. La densité d'UCN d'une source superthermale peut atteindre jusqu'à 55 neutrons par  $\text{cm}^3$ [18].

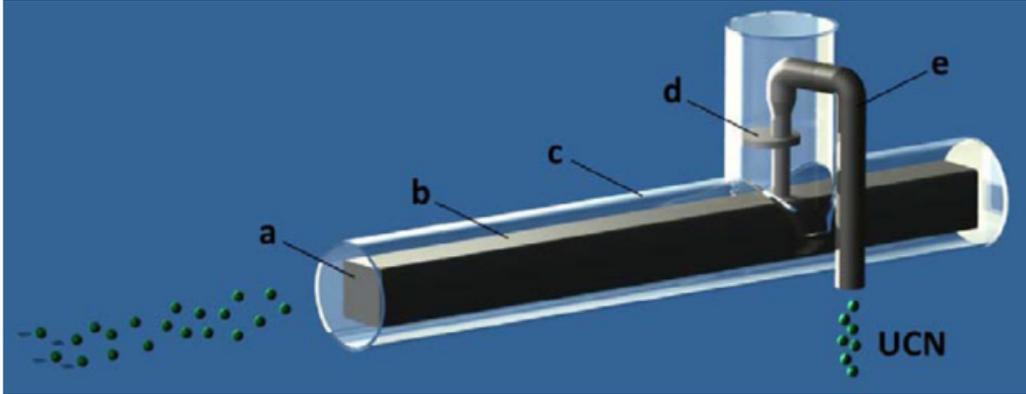


FIGURE 1.4 – Schéma d'une source superthermale d'UCN : (a) entrée du volume de conversion en béryllium ( $V_f = 252$  neV correspondant à une vitesse de neutron de 7 m/s environ) avec le faisceau de neutrons froids rentrant par la gauche, (b) volume de conversion d'UCN avec la paroi en oxyde de beryllium ( $V_f = 261$  neV) de dimensions  $7 \text{ cm} \times 7 \text{ cm} \times 100 \text{ cm}$ , rempli d'hélium 4 superfluide, (c) écran contre la radiation thermique (d'autres écrans extérieurs consacrés à maintenir le vide ne sont pas montrés ici), (d) valve d'UCN, (e) guide pour extraire des UCN vers un détecteur ou une expérience.

## 1.2.2 Particularités de l'interaction des UCN avec une surface

Comme discuté dans la section 1.1.3, un UCN peut être réfléchi à tout angle incident par des surfaces de différents matériaux à cause de l'interaction forte. Pour pouvoir expliquer ce phénomène en détail, on considère que le potentiel d'un nucléon peut être représenté comme un puits de potentiel carré central symétrique :

$$V(r) = \begin{cases} -V_0 & r \leq R \\ 0 & r > R \end{cases}, \quad (1.13)$$

avec  $V_0 \approx 40$  MeV et  $R \approx 2$  fm, dû au fait que l'interaction forte est une force de très courte portée.

La longueur d'onde d'un UCN satisfait à la condition  $kR = \frac{2\pi R}{\lambda_n} \ll 1$ . Ainsi, son onde diffusée par un nucléon sera sphérique. La fonction d'onde totale du neutron, en incluant l'onde plane incidente et l'onde diffusée, dans la zone hors du puits de potentiel est donc :

$$\psi = e^{i\vec{k} \cdot \vec{r}} + f(\theta) \frac{e^{ikr}}{r} \quad (1.14)$$

avec  $\theta$  l'angle de diffusion et  $f(\theta)$  l'amplitude de diffusion.

On note que pour un UCN,  $f(\theta) = -a = \text{constante}$ . Son indépendance vis-à-vis de l'angle  $\theta$  est imposée par le moment angulaire nul de l'onde sphérique diffusée. Par conséquent, pour  $R < r < \frac{1}{k}$ , l'équation 1.14 peut être transformée en :

$$\psi \approx 1 - \frac{a}{r}. \quad (1.15)$$

On constate que  $\psi = 0$  lorsque  $r = a$ . Ceci peut être interprété comme une sphère dure de rayon  $a$ , capable de produire la même onde diffusée que le potentiel  $V_0$  à  $r \gg R$ . On définit donc  $a$  la longueur de diffusion du neutron sur ce nucléon.

On cherche à décrire l'interaction UCN-nucléon par l'observable  $a$ . Etant donné que  $V_0$  est beaucoup plus élevé que l'énergie de UCN  $E_n$ , la théorie de la perturbation n'est pas adaptée pour trouver la solution à  $r \leq R$  où  $V_0$  est présent. Cependant, on s'intéresse à la fonction d'onde à  $r \gg R$  où elle est peu perturbée. Ceci permet de calculer ces petites variations de fonction d'onde en introduisant un potentiel équivalent  $V_F$ , appelé potentiel de Fermi et proposé pour la première fois par E. Fermi en 1936 :

$$V_F(r) = \frac{2\pi\hbar^2 a}{m_n} \delta^{(3)}(\vec{r}). \quad (1.16)$$

Ainsi, un UCN incident à une matière condensée sera affecté par l'ensemble des potentiels de Fermi de chaque nucléon individuel, superposés les uns aux autres :

$$V_F(\vec{r}) = \frac{2\pi\hbar^2}{m} \sum a_i \delta^{(3)}(\vec{r} - \vec{r}_i), \quad (1.17)$$

avec  $r_i$  la position de l' $i$ -ème nucléon dans le système.

Lorsque la matière condensée est homogène, la somme peut être remplacée par la densité volumique du noyau du matériau  $N$  et la longueur moyenne de diffusion  $\bar{a}$ . De plus, la diffusion des UCN est toujours cohérente, puisqu'ils ont le même déphasage lors de l'interaction.

TABLE 1.2 – Exemples de longueur de diffusion cohérente, densité volumique du noyau et potentiel de Fermi de différents matériaux.

Matériau	$b_{coh}$ (fm)	N ( $10^{22}$ cm $^{-3}$ )	$V_F$ (neV)
He (superfluide)	3.26	2.18	18
Be	7.79	12.3	252
BeO	13.6	7.25	261
B	5.30	12.8	176
$^{10}\text{B}$	-0.1	12.8	-3.3
Al	3.45	6.02	54
Ti	-3.34	5.6	-48
Ni	10.6	9.0	252
$^{58}\text{Ni}$	14.4	9.0	335
Cu	7.6	8.93	168
$^{65}\text{Cu}$	11.0	8.93	244
PTFE (Teflon)	17.6	2.65	123
DLC (diamond-like carbon)	6.6	13.9	250

On peut donc échanger  $\bar{a}$  avec  $b_{coh}$ , qui est la longueur de diffusion cohérente des atomes. On obtient ainsi le potentiel de Fermi, considéré comme une propriété macroscopique d'un matériau homogène :

$$V_F = \frac{2\pi\hbar^2}{m_n} N \cdot b_{coh}. \quad (1.18)$$

On remarque que le potentiel de Fermi est positif pour la plupart des matériaux comme reportés dans la table 1.2, ce qui indique un potentiel répulsif malgré le fait que l'interaction forte soit attractive.

Un neutron d'énergie  $E_n$  et d'angle incident  $\theta$  peut être totalement réfléchi par une surface avec un potentiel  $V_F$ , si la condition suivante est satisfaite :

$$E_n \sin^2(\theta) < V_F. \quad (1.19)$$

On peut également associer une vitesse limite au potentiel de Fermi avec la formule suivante :

$$v_{lim} = \sqrt{\frac{2V_F}{m_n}}. \quad (1.20)$$

Ceci nous permet de déterminer la vitesse du neutron incident  $v$  qui satisfait la condition de réflexion totale :

$$v \cdot \sin(\theta) < v_{lim}. \quad (1.21)$$

Par conséquent, un neutron sera réfléchi tant que la composante de sa vitesse perpendiculaire à la surface est inférieure à la vitesse de limite, ce qui est typiquement le cas pour les UCN à tout angle incident.

### 1.3 Les UCN dans un champ gravitationnel

Les expériences réalisées sur le spectromètre GRANIT consistent à étudier les UCN en chute libre à courte distance dans le champ de pesanteur. Ce système est essentiellement le cas d'une particule massive dans un puits de potentiel, créé par le champ gravitationnel terrestre et la surface sur laquelle les neutrons rebondissent. Les UCN étant des particules subatomiques de basse énergie, ce système rentre dans le cadre de la mécanique quantique non-relativiste, où les états d'énergie d'une particule sont quantifiés.

Dans cette section, nous présenterons la physique des états quantiques d'un UCN dans le champ de pesanteur, les premières mesures ayant démontré la quantification de ces états, ainsi que l'intérêt apporté par une caractérisation précise de ce système.

#### 1.3.1 Etats quantiques d'un UCN dans le champ de pesanteur

On considère un neutron de masse  $m$  soumis au champ gravitationnel terrestre avec l'accélération de la pesanteur à la surface de la Terre  $g$ . Le neutron rebondit verticalement sur un miroir parfait horizontal, avec un potentiel de Fermi infini. On suppose également que le principe d'équivalence faible est valide. Ainsi, le hamiltonien de ce système s'écrit de la manière suivante :

$$H = \frac{p^2}{2m} + V(z), \quad (1.22)$$

avec

$$V(z) = \begin{cases} mgz & z \geq 0 \\ \infty & z < 0 \end{cases}. \quad (1.23)$$

Dans le cadre de mécanique quantique non-relativiste, ceci nous mène à l'équation de Schrödinger unidimensionnelle avec la fonction d'onde du neutron  $\Psi(z, t)$  :

$$-\frac{\hbar^2}{2m} \frac{\partial^2 \Psi}{\partial z^2} + V(z)\Psi = i\hbar \frac{\partial \Psi}{\partial t}. \quad (1.24)$$

La solution de l'équation de Schrödinger prend la forme  $\Psi(z, t) = \Psi_k(z) \exp(-i\frac{E_k}{\hbar}t)$  en régime stationnaire, avec  $\Psi_k$  la fonction d'onde spatiale associée à l'état quantique  $k$  d'énergie  $E_k$ . On peut donc transformer l'équation 1.24 en une équation de Schrödinger indépendante du temps :

$$-\frac{\hbar^2}{2m} \frac{\partial^2 \Psi_k}{\partial z^2} + V(z)\Psi_k = E_k \Psi_k. \quad (1.25)$$

Pour résoudre cette équation, on cherche à la simplifier mathématiquement en introduisant une grandeur caractéristique :

$$z_0 := \left(\frac{\hbar^2}{2m^2g}\right)^{\frac{1}{3}}, \quad (1.26)$$

ce qui nous permet de définir deux termes sans dimension :

$$\begin{cases} Z = \frac{z}{z_0} \\ \epsilon_k = \frac{E_k}{E_0} = \frac{E_k}{mgz_0} \end{cases}. \quad (1.27)$$

Ainsi, en effectuant un changement de variables, l'équation 1.25 se transforme en une équation d'Airy :

$$\frac{\partial^2 \Psi_k}{\partial Z^2} - (Z - \epsilon_k)\Psi_k = 0, \quad (1.28)$$

dont les solutions sont des combinaisons linéaires des fonctions de Airy  $A_i$  et  $B_i$ . La solution générale de l'équation 1.28 s'écrit alors comme :

$$\Psi_k(Z) = C_A A_i(Z - \epsilon_k) + C_B B_i(Z - \epsilon_k), \quad (1.29)$$

avec les coefficients  $C_A$  et  $C_B$  déterminés par les conditions aux limites de notre système.

Comme nous pouvons constater sur la figure 1.5, lorsque  $Z \rightarrow -\infty$ ,  $Ai$  et  $Bi$  manifestent un comportement oscillant. Mais dans le cas où  $Z \rightarrow +\infty$ ,  $Ai$  converge rapidement vers 0, alors que  $Bi$  diverge.

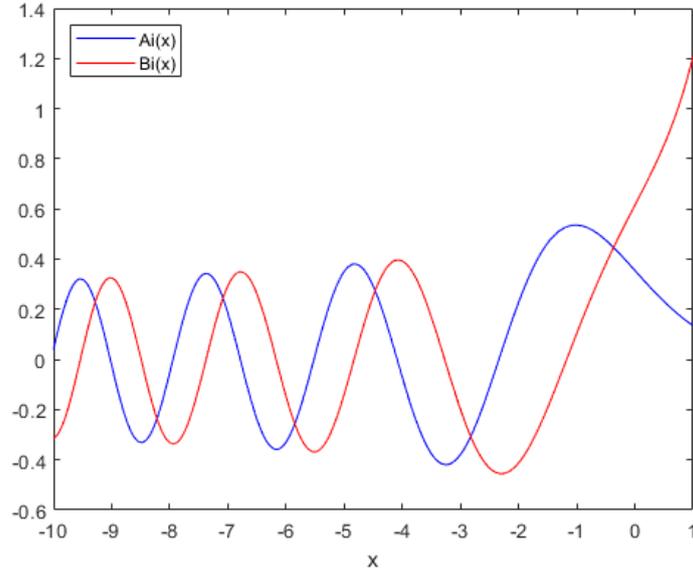


FIGURE 1.5 – Fonctions de Airy  $A_i$  et  $B_i$ .

Or, une fonction d'onde doit être normalisable ( $\int_{-\infty}^{+\infty} |\Psi(x, t)|^2 dx = 1$ ). On pose donc les conditions aux limites suivantes :

$$\begin{cases} \Psi_k(Z) = 0 & Z \leq 0 \\ \Psi_k(Z) \rightarrow 0 & Z \rightarrow +\infty \end{cases} . \quad (1.30)$$

Puisque  $\lim_{Z \rightarrow +\infty} Bi(Z - \epsilon_k) = +\infty$ , comme montré sur la figure 1.5, il est impératif que  $C_B = 0$ . La solution de l'équation 1.28 devient :

$$\Psi_k(Z) = C_A Ai(Z - \epsilon_k). \quad (1.31)$$

Par conséquent, la condition  $\Psi_k(Z) = 0$  implique que  $Ai(-\epsilon_k) = 0$ . En raison de la nature oscillante de  $Ai$ ,  $\epsilon_k$  ne peut prendre que certaines valeurs particulières. Sachant que  $E_k = mgz_0\epsilon_k$ , on retrouve une quantification des états d'énergie de l'UCN dans le champ de pesanteur.

### 1.3.2 Observation des états quantiques des UCN - principe et premières mesures

On remarque que la hauteur caractéristique  $z_0 = (\frac{\hbar^2}{2m^2g})^{\frac{1}{3}} = 5.87 \mu\text{m}$  avec l'accélération de la pesanteur  $g = 9.81 \text{ m.s}^{-2}$  sur Terre. De plus, les valeurs de  $-\epsilon_k$  étant connues grâce à la fonction d'Airy  $A_i$ , on peut déterminer les valeurs des niveaux d'énergie et les hauteurs classiques  $z_k = \frac{E_k}{mg} = z_0\epsilon_k$  associées aux niveaux  $k$ , que l'on présente dans la table 1.3.

TABLE 1.3 – Energies et hauteurs classiques associée aux niveaux quantiques d'un neutron dans le champ gravitationnel terrestre.

k	$\epsilon_k$	$E_k$ (peV)	$z_k$ ( $\mu\text{m}$ )
1	2.338	1.407	13.7
2	4.088	2.461	24.0
3	5.521	3.323	32.4
4	6.787	4.086	39.8
5	7.944	4.782	46.6
6	9.023	5.431	53.0

Dans le cadre de la mécanique classique,  $z_k$  est la hauteur maximale qu'un objet puisse atteindre ayant initialement une énergie cinétique de  $E_k$ . Mais dans le domaine quantique, la probabilité d'observer un neutron dans son état quantique  $k$  avec une énergie de  $E_k$  à une hauteur  $z$ , est déterminée par  $|\Psi_k|^2$ . Comme nous pouvons constater sur la figure 1.6, il est toujours possible d'observer un neutron de l'état  $k$  à une hauteur supérieure à  $z_k$ , mais cette probabilité décroît très rapidement dans cette zone. Cette propriété nous permettra d'observer les états quantiques en mesurant le flux des UCN traversant une fente de hauteur  $\Delta z$  entre un miroir horizontal et un absorbeur.

On s'attend à ce que le flux de neutrons soit toujours présent quelle que soit la hauteur de la fente dans le cadre de la mécanique classique, mais ce n'est pas le cas dans le domaine quantique. Lorsque la largeur de la fente est beaucoup plus importante que la hauteur associée à l'état quantique  $k$  ( $\Delta z \gg z_k$ ), les neutrons de cet état  $k$  peuvent traverser la fente avec peu de diminution du flux. En diminuant  $\Delta z$ , la fonction d'onde  $\Psi_k(z)$  commence à toucher l'absorbeur, et la probabilité de la perte de neutrons augmente, jusqu'au moment où la fente devient plus petite que  $z_1$ , qui est la hauteur associée à l'état quantique le plus bas, aucun neutron ne peut alors plus traverser cette fente.

C'est donc ce comportement de quantification d'énergie que l'on a observé dans les premières mesures sur des UCN dans le champ gravitationnel terrestre, effectuées en 1999 sur la plateforme PF2 à l'Institut Laue-Langevin (ILL)[24, 25]. La configuration de l'expérience de base est représentée sur la figure 1.7.

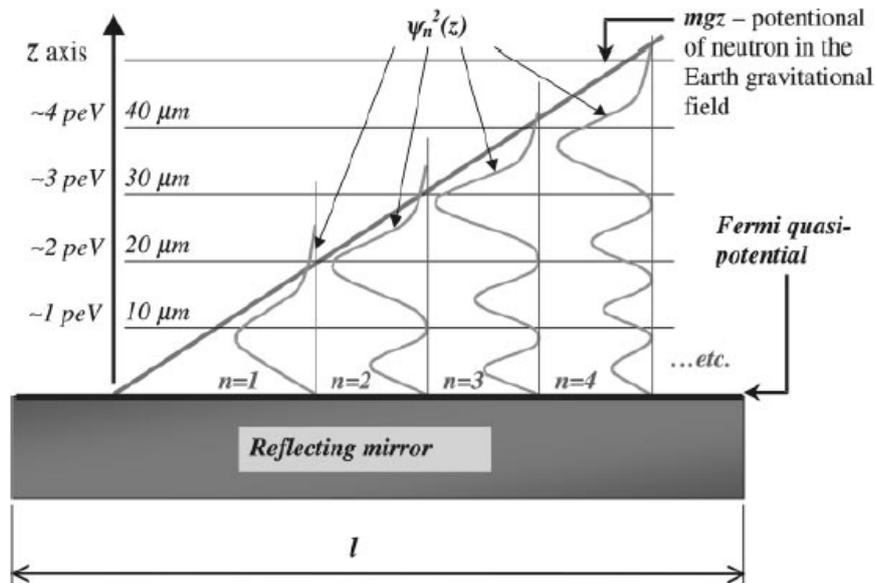


FIGURE 1.6 – Etats quantiques d'un neutron piégé dans un puits de potentiel créé par le champ de pesanteur et le potentiel de Fermi du miroir.[23]

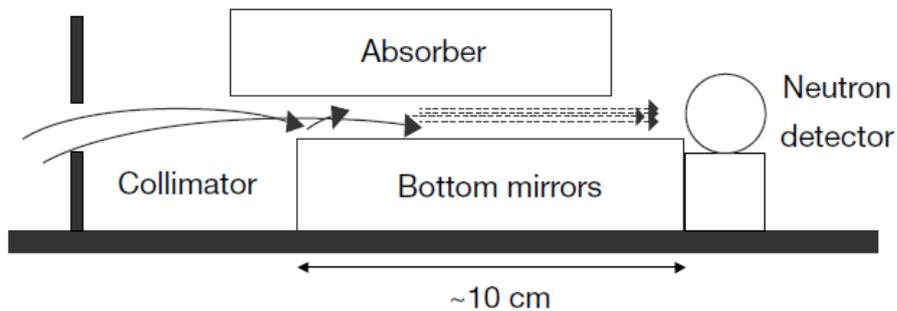


FIGURE 1.7 – Configuration de base des premières mesures sur les états quantiques des UCN dans le champ de pesanteur, réalisées en 1999 à l'ILL.[24]

Guidés par un collimateur, un faisceau d'UCN horizontal entre dans une fente restreinte par un miroir réfléchissant et un absorber. La largeur de la fente  $\Delta z$  peut être modifiée par la hauteur de l'absorber, et elle est mesurée avec une grande précision. Les neutrons, après avoir traversé la fente, sont ensuite détectés par un détecteur d'hélium 3 gazeux installé à la sortie de la fente.

Les forces extérieures, telles que le gradient des champs magnétiques extérieurs (terrestre ou d'autres instruments électromagnétiques) ou la vibration mécanique du dispositif, sont éliminées par blindage magnétique et table anti-vibration, etc, afin d'assurer que les neutrons sont piégés dans le puits de potentiel constitué seulement du champ de pesanteur et du potentiel de Fermi du miroir. Ces deux forces n'affectent que la vitesse verticale des neutrons. En revanche, leur vitesse horizontale n'est influencée par aucune autre force.

On note également que la longueur du miroir est déterminée par le principe d'incertitude de Heisenberg portant sur l'énergie et le temps  $\Delta E \cdot \Delta t \approx \hbar$ . Or, l'observation des états quantiques nécessite un écart en énergie  $\Delta E_k$ , entre deux états  $k$  et  $k + 1$ , plus grand que la largeur de ces niveaux d'énergie, qui est déterminée par le temps de vol du neutron sur le miroir. Avec l'augmentation du nombre quantique  $k$ ,  $\Delta E_k$  diminue jusqu'à un moment où les états avec un grand  $k$  se superposent et le système montre une continuité comme dans le cadre classique. Par conséquent,  $\Delta E$  ne peut dépasser la valeur de  $\Delta E_0 = E_1 - E_0 = 1.407$  peV, ce qui correspond à  $\Delta t \geq 0.5$  ms. Etant donné que la vitesse des UCN est généralement entre 5 m/s et 10 m/s, une longueur du miroir d'environ 10 cm est justifiée.

Le flux de neutrons mesuré dans les expériences dépend de la taille de fente  $\Delta z$  (mode "flow-through"), et il est intégré sur toutes les énergies possibles des neutrons. En augmentant  $\Delta z$ , on s'attend à une croissance par palier du flux de neutrons. Le flux est initialement zéro, lorsque  $\Delta z$  est plus petit que  $z_1$ , la hauteur associée au premier état quantique. Le flux augmentera rapidement une fois que  $\Delta z$  atteint  $z_1$ , mais reste constant par la suite tant que  $\Delta z$  est inférieur à la hauteur associée à l'état quantique plus élevé. Quand  $\Delta z$  est suffisamment grand, l'évolution du flux devient à  $N \propto z^{1.5}$ . La contribution additionnelle de  $z^{0.5}$  sur le comportement classique de  $N \propto z$  provient du fait que l'augmentation de  $\Delta z$  permet aussi d'élargir l'intervalle de vitesse verticale des neutrons rentrant dans la fente.

Les résultats représentés sur la figure 1.8 ont été obtenus avec les premières mesures effectuées en 1999, et ils montrent un comportement de quantification d'énergie conforme à la prédiction. On remarque que le flux de neutrons devient non-nul vers une hauteur d'absorbeur d'environ 15  $\mu\text{m}$ , ce qui est en conformité avec la hauteur correspondant au premier état quantique ( $z_1 = 13.7$   $\mu\text{m}$ ).

Une caractérisation plus précise des états quantiques a été réalisée sur la même plateforme PF2 à l'ILL en 2005[26], dans laquelle les mesures directes de la fonction d'onde ont été effectuées. Ceci permet une représentation visuelle de la fonction d'onde et l'observation du noeud à 10  $\mu\text{m}$  du deuxième état quantique, comme prédit par la théorie quantique et représenté sur la figure 1.6. Cette mesure est expérimentalement réalisable grâce à une extension spatiale de la fonction d'onde dans le domaine micrométrique, comme montrée dans la table 1.3.

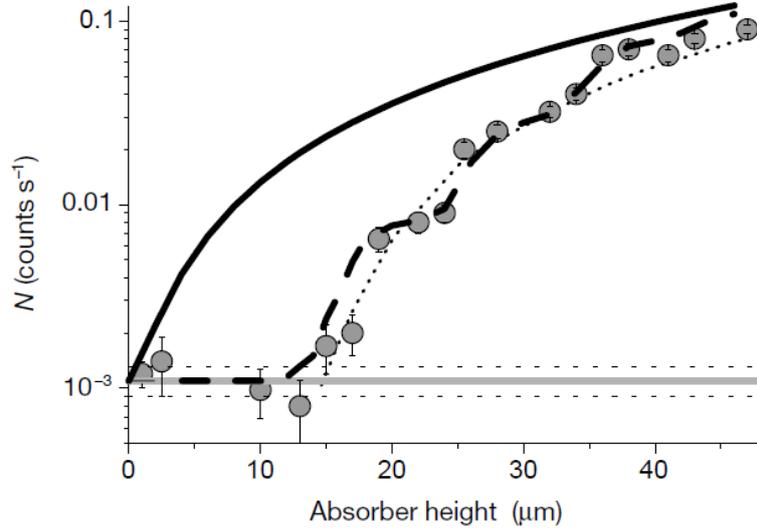


FIGURE 1.8 – Résultats des premières mesures sur les états quantiques des UCN dans le champ gravitationnel terrestre, réalisées en 1999 à l’ILL. On mesure le flux de neutrons transmis en fonction de la taille de la fente entre un miroir horizontal et un plafond absorbeur. La ligne pleine représente le comportement classique  $N \propto z^{1.5}$ . [24]

Cette nouvelle expérience consiste toujours à mesurer le flux de neutrons transmis par une fente entre un miroir horizontal et un plafond absorbeur, mais on introduit cette fois-ci une marche de  $13.5 \mu\text{m}$  sur le miroir, comme illustré sur la figure 1.9. Ceci permet aux neutrons d’acquérir suffisamment d’énergie pour passer à un état plus élevé que le premier état, ce qui effectivement supprime la population du premier état quantique [27]. Pour pouvoir directement mesurer la probabilité d’observer des neutrons à différentes hauteurs (mode différentiel), il faut un détecteur sensible à la position avec une résolution micrométrique pour détecter les neutrons transmis par la fente [28]. Dans cette expérience, un détecteur solide de traces avec une couche de conversion en  $^{235}\text{U}$  a été utilisé [7]. Le résultat obtenu est représenté sur la figure 1.10, et on parvient effectivement à constater la présence d’un noeud à  $10 \mu\text{m}$ .

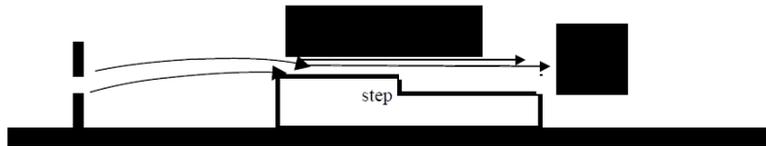


FIGURE 1.9 – Illustration du dispositif expérimental avec une marche permettant la transition des neutrons à un état d’énergie plus élevée.

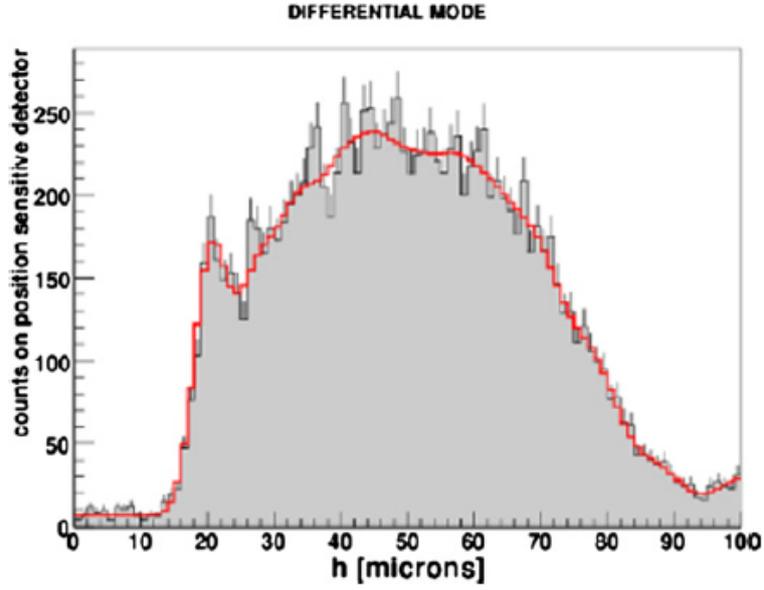


FIGURE 1.10 – Histogramme des positions verticales des neutrons obtenu grâce aux mesures effectuées en 2005 à l’ILL.[7]

### 1.3.3 Transitions résonantes

On note que, avec  $g = 9.81 \text{ m.s}^{-2}$  sur Terre, l’énergie caractéristique des neutrons dans le puits de potentiel de la pesanteur est :

$$E_0 = mgz_0 = 0.602 \text{ peV}, \quad (1.32)$$

ce qui donne la fréquence caractéristique  $f_0$  :

$$f_0 = \frac{E_0}{h} = 145 \text{ Hz}. \quad (1.33)$$

Cette fréquence caractéristique  $f_0$  est indicative non seulement de l’ordre de grandeur des fréquences associées à chaque état d’énergie des UCN dans le champ de pesanteur, mais aussi celui des fréquences de transition entre deux états quantiques  $k$  et  $p$  :

$$f_{kp} = \frac{E_k - E_p}{h}. \quad (1.34)$$

Curieusement, la valeur de  $f_0$  tombe dans le domaine acoustique, ce qui est très accessible expérimentalement pour induire des transitions entre deux états quantiques différents, soit mécaniquement, soit magnétiquement. Afin d'approfondir nos connaissances sur les états quantiques des neutrons dans le champ gravitationnel terrestre, deux collaborations ont été établies avec le but de maîtriser et étudier les transitions résonantes : la collaboration GRANIT (GRAvitational Neutron Induced Transition), qui induit des transitions par un gradient de champ magnétique oscillant, et la collaboration qBOUNCE[29, 30, 31], qui génère des vibrations au miroir pour provoquer des transitions. Le spectromètre GRANIT sera décrit en détail dans la section 1.4.

### 1.3.4 Recherche de la physique fondamentale avec les états quantiques du neutron

Avec le développement de la technologie de production et de stockage des neutrons ultra-froids, diverses expériences utilisant les UCN pour sonder de nouvelles forces ou tester des principes sont proposées et en cours de développement. Dans le cadre des états quantiques du neutron dans le champ de pesanteur, le spectromètre GRANIT pourrait apporter des perspectives intéressantes notamment aux deux sujets activement recherchés actuellement : le champ caméléon qui est un des candidats prometteurs de l'énergie noire et la cinquième force fondamentale, et le test sur le principe d'équivalence faible.

#### Le champ caméléon

L'accélération de l'expansion de l'Univers a été mise en évidence par l'observation des supernovas de type IA depuis la fin des années 1990[32, 33]. Cette découverte surprenante implique l'existence d'une substance avec une pression négative, nommée "énergie noire" en général, afin d'exercer une force répulsive et non pas attractive vis-à-vis de la gravitation pour soutenir l'accélération de l'expansion.

Deux approches existent aujourd'hui pour expliquer la nature de l'énergie noire : elle est considérée soit comme une constante cosmologique comme dans le modèle  $\Lambda$ CDM, soit comme un champ scalaire à l'instar des modèles de quintessence. Dans ce deuxième cas, un tel champ couplé avec de la matière implique une cinquième force non détectée jusqu'à présent. Il était initialement supposé que le couplage ait une valeur extrêmement faible pour être en accord avec les tests du principe d'équivalence. Mais dans un des modèles plus raffinés, un mécanisme d'écrantage nommé "caméléon" a été proposé, avec lequel la portée du champ est fortement réduite dans un environnement de haute densité[34]. Par conséquent, seule une très fine couche autour de la surface d'un corps massif peut contribuer à la force exercée sur un objet de test.

Dans le cadre d'un neutron ultra-froid rebondissant sur un miroir, il a été montré que le champ caméléon en surface du miroir pourrait coupler avec ce neutron, et sa présence affecterait les niveaux d'énergie du neutron dans le champ de pesanteur terrestre[35].

Le potentiel sur le neutron s'écrit de la manière suivante[7] :

$$\Phi(z) = mgz + \beta \frac{m}{m_{Pl}} \varphi(z). \quad (1.35)$$

Le terme du champ caméléon dans le potentiel prend la forme :

$$\beta \frac{m}{m_{Pl}} \varphi(z) = \beta v_n \left(\frac{z}{\lambda}\right)^{\alpha_n}, \quad (1.36)$$

avec

$$v_n = \frac{m}{m_{Pl}} M_\Lambda \left(\frac{2+n}{\sqrt{2}}\right)^{\alpha_n} \approx \left(\frac{2+n}{\sqrt{2}}\right)^{\alpha_n} \times 10^{-21} \text{ eV}, \quad (1.37)$$

$\beta$  une constante sans dimension qui correspond au couplage du champ caméléon par rapport à la gravitation,  $m_{Pl}$  la masse de Planck réduite,  $M_\Lambda = 2.4 \text{ meV}$  qui est l'échelle de l'énergie noire,  $\lambda = \frac{\hbar c}{M_\Lambda} = 82 \text{ } \mu\text{m}$ ,  $n$  l'indice de Ratra-Peebles et  $\alpha_n = \frac{2}{2+n}$ .

Ainsi, l'équation de Schrödinger 1.25 se transforme de la façon suivante :

$$-\frac{\hbar^2}{2m} \frac{d^2 \Psi_k}{dz^2} + \Phi(z) \Psi_k = E_k \Psi_k, \quad \Psi_k(0) = 0. \quad (1.38)$$

Les conséquences que l'on attend de la présence du champ caméléon sur les états quantiques des UCN, sont des décalages de la fonction d'onde et des fréquences de transition. La modification des propriétés des états quantiques permettrait l'estimation du paramètre  $\beta$  du champ caméléon. Les contraintes sur les valeurs de  $\beta$  actuellement proposées par les études des états quantiques des UCN sont  $6 \times 10^8 < \beta < 10^{11}$ [36, 35].

Il est possible d'évaluer ces décalages quantitativement en considérant le champ caméléon comme une perturbation. Nous nous intéressons à l'implication de ces conséquences sur les mesures avec des UCN dans le cadre du spectromètre GRANIT. La procédure de calcul est détaillée dans l'HDR de G. Pignol[7].

La correction du premier ordre de la fonction d'onde prend la forme suivante[7] :

$$\Psi_k(z) = \Psi_k^{(0)}(z) + \beta v_n \left(\frac{z_0}{\lambda}\right)^{\alpha_n} \sum_{l \neq k} \frac{O_{kl}(\alpha_n)}{E_k - E_l} \Psi_l^0(z), \quad (1.39)$$

avec  $O_{kl}(\alpha_n) = \langle \Psi_l | \left(\frac{z}{z_0}\right)^{\alpha_n} | \Psi_k \rangle$  les éléments des matrices de recouvrement. La modification du deuxième état quantique avec le paramètre de couplage  $\beta = 10^9$  est montrée sur la figure 1.11. On peut constater une rétrécissement de la fonction d'onde et le déplacement du noeud  $h_2^0$  vers une valeur plus faible de  $z$ . La détermination du décalage du noeud  $h_2^0$  est basée sur la mesure du flux des UCN transmis par une fente de largeur variable, dont le principe est décrit dans la section 1.3.2. Cette manipulation est également conçue pour le spectromètre GRANIT. Avec un détecteur d'une précision de  $0.1 \mu\text{m}$ , on peut s'attendre à une sensibilité du dispositif au paramètre de couplage  $\beta$  de l'ordre de  $10^8$ [7].

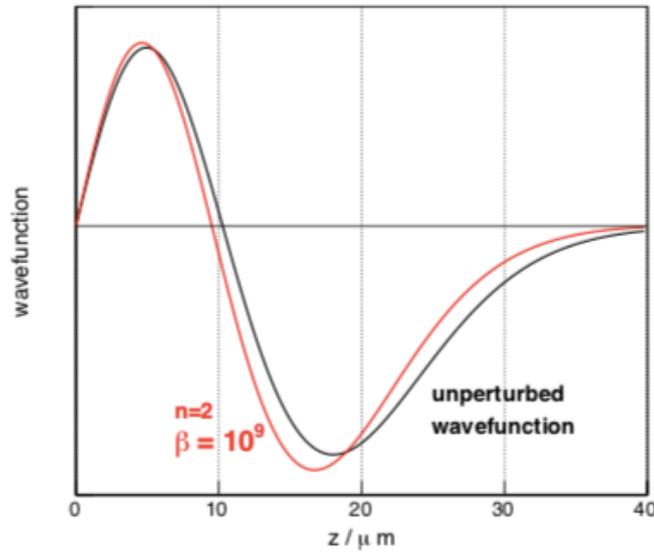


FIGURE 1.11 – La fonction d'onde du deuxième état quantique  $\Psi_2(z)$  sans présence du champ caméléon et non perturbée (courbe noire), et perturbée par le potentiel caméléon avec indice Ratra-Peebles  $n = 2$  et le paramètre de couplage  $\beta = 10^9$ , calculée avec la correction du premier ordre de perturbation.[7]

De même, la correction du premier ordre des niveaux d'énergie s'écrit de la façon suivante[7] :

$$\delta E_k = \beta v_n \left(\frac{z_0}{\lambda}\right)^{\alpha_n} O_{kk}(\alpha_n). \quad (1.40)$$

La correction des fréquences de transition s'exprime ainsi :

$$\delta f_{kl} = \frac{\delta E_k - \delta E_l}{2\pi\hbar} = \beta \frac{v_n}{2\pi\hbar} \left(\frac{z_0}{\lambda}\right)^{\alpha_n} (O_{kk}(\alpha_n) - O_{ll}(\alpha_n)). \quad (1.41)$$

Si on considère que le décalage de la transition résonante  $2 \rightarrow 1$ , dont la fréquence de transition  $f_{21} = 254$  Hz est produite par un champ caméléon avec l'indice de Ratra-Peebles  $n = 2$ , une précision de mesure de 1 Hz permettrait une sensibilité au paramètre  $\beta$  de l'ordre  $10^7$  [7]. Le spectromètre GRANIT dispose de modules d'induction des transitions résonantes, spécialement conçus pour réaliser cette mesure. Les détails seront présentés dans la section 1.4.

### Test du principe d'équivalence faible

Le principe d'équivalence faible dit que la masse inertielle  $m_i$  et la masse gravitationnelle  $m_g$  sont égales. Par conséquent, dans le cadre classique, tous les objets qui chutent dans le même champ gravitationnel subissent la même accélération  $a = g$ .

Cependant, ceci n'est pas nécessairement le cas pour un neutron qui rebondit sur un miroir, car la masse dans l'équation de Schrödinger, qui décrit les comportements quantiques, ne se simplifie pas. En faisant la distinction entre masse inertielle et masse gravitationnelle, l'équation de Schrödinger devient :

$$-\frac{\hbar^2}{2m_i} \frac{d^2\Psi_k}{dz^2} + m_g g z \Psi_k = E_k \Psi_k, \quad \Psi_k(0) = 0. \quad (1.42)$$

En utilisant la définition de la grandeur caractéristique de la section 1.3.1, le même paramètre s'écrit ainsi :

$$z_0 := \left(\frac{\hbar^2}{2m_i m_g g}\right)^{\frac{1}{3}}. \quad (1.43)$$

De même, on rappelle que les énergies des états quantiques s'écrivent comme  $E_k = E_0 \epsilon_k$  avec

$$E_0 = m_g g z_0 = \left(\frac{m_g^2 g^2 \hbar^2}{m_i}\right)^{\frac{1}{3}}. \quad (1.44)$$

On remarque que les propriétés spatiales des états quantiques du neutron sont sensibles au produit  $m_i m_g$ , alors que les niveaux d'énergie sont sensibles au terme  $\frac{m_g^2}{m_i}$ . Ainsi, en combinant les deux types de mesures sur les propriétés spatiales et les fréquences de transition des états quantiques du neutron, que le spectromètre GRANIT est capable de fournir, et en extrapolant les valeurs de  $z_0$  et  $E_0$ , il est possible de mesurer la masse inertielle  $m_i$  et la masse gravitationnelle  $m_g$  séparément, et mettre ainsi le principe d'équivalence faible en examen.

## 1.4 Le spectromètre GRANIT

Le GRANIT est un spectromètre gravitationnel de deuxième génération. Suite à des premières mesures qui ont mis en évidence les états quantiques des neutrons dans le champ gravitationnel terrestre[24, 25], ce nouveau spectromètre est dédié à étudier les transitions résonantes entre deux états, induites par un gradient de champ magnétique oscillant. Les mesures effectuées sur ce spectromètre de haute résolution pourrait fournir des limites sur les paramètres des nouvelles forces à très courte portée[37, 38, 39, 40].

Le projet a été financé dans le cadre de l'ANR (Agence Nationale de la Recherche, France) en 2005, avec une collaboration entre l'ILL (Institut Laue-Langevin, Grenoble), le LPSC (Laboratoire de Physique Subatomique et de Cosmologie, Grenoble) et le LMA (Laboratoire des Matériaux Avancés, Lyon). Le spectromètre est aujourd'hui installé sur la ligne de neutrons H172A au niveau C du réacteur à haut flux de l'ILL, comme montré sur la figure 1.12. L'ensemble du dispositif est composé d'une source d'UCN superthermale et du spectromètre situé dans une salle blanche de classe ISO5.

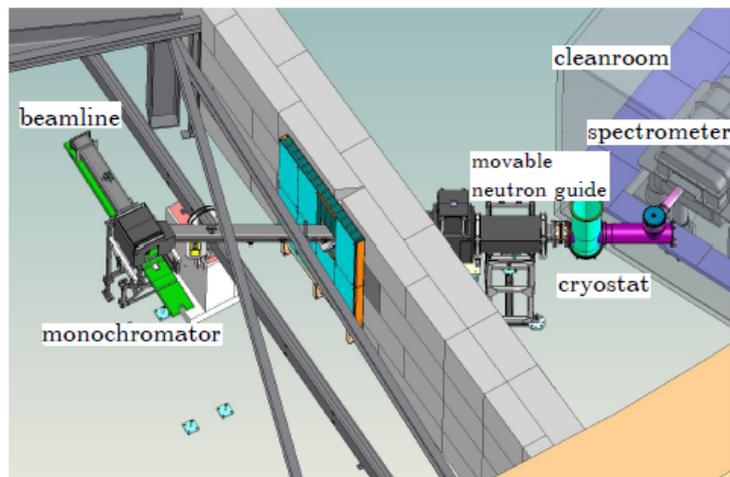


FIGURE 1.12 – L'installation du spectromètre GRANIT au niveau C à l'ILL.

### 1.4.1 Configuration actuelle du spectromètre GRANIT

La configuration actuelle du spectromètre GRANIT est illustrée sur la figure 1.13. Les instruments de mesure et de contrôle, y compris les miroirs, l'absorbeur et le détecteur, sont installés sur une table plate en granit de 550 kg au sein d'une chambre à vide en aluminium passivé, afin de minimiser les vibrations ambiantes et protéger les composants délicats. Un blindage magnétique est installé autour de la chambre à vide pour éliminer les effets des champs magnétiques extérieurs.

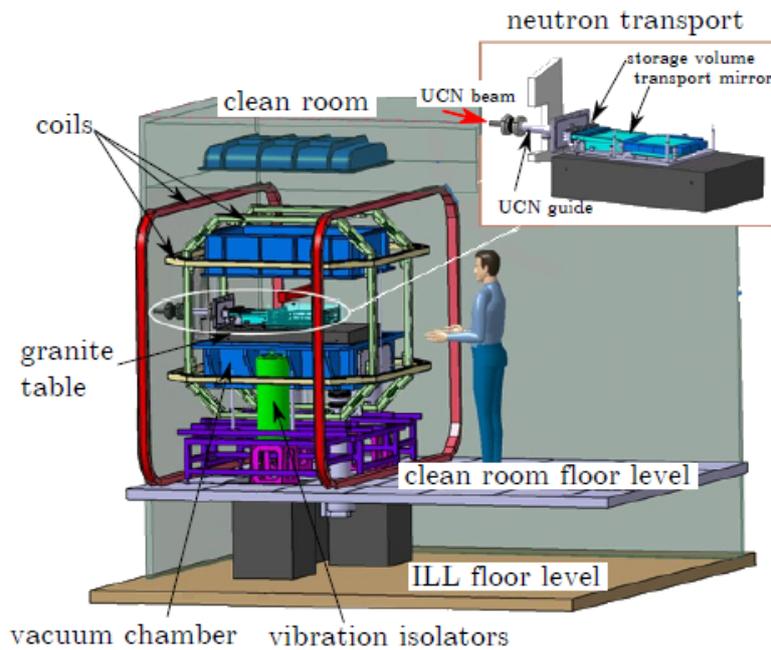


FIGURE 1.13 – L'installation du spectromètre GRANIT dans la salle blanche.

A l'aide d'un monochromateur, un faisceau de neutrons monochromatique avec une longueur d'onde de  $0.89 \mu\text{m}$  est extrait du faisceau de neutrons lents dans la ligne H172A. Le faisceau est ensuite guidé vers la source superthermale, où les neutrons se refroidissent dans le superfluide d'hélium 4. Les UCN sortant de la source sont transférés dans un volume de stockage intermédiaire du spectromètre. Ce volume en cuivre de 3.4 cm de diamètre et 30 cm de longueur permet de rendre les trajets de neutrons aléatoires dans le stockage. Une feuille de titane ( $V_F = -48 \text{ neV}$ ) est installée dans le tuyau en cuivre à l'entrée du volume intermédiaire. Ceci permet de maintenir le vide à l'intérieur de la chambre, tout en laissant rentrer les neutrons lents avec très peu de réflexions.

Comme montré sur la figure 1.14, la sortie du volume de stockage est une fente dite "semi-diffusive", composée d'un diffuseur et d'un miroir d'extraction. Ces deux composants sont tous les deux constitués de 3 miroirs de dimensions  $10\text{ cm} \times 10\text{ cm} \times 2\text{ cm}$ , collés côte à côte. Leurs surfaces sont recouvertes par une couche de DLC ( $V_F = 250\text{ neV}$ ), de manière à assurer la réflexion des UCN de différentes vitesses dans la fente[41]. Le miroir d'extraction possède une très faible rugosité ( $0.5\text{ nm}$ ) pour privilégier la réflexion spéculaire des neutrons. En revanche, la surface du diffuseur a une rugosité volontairement élevée ( $5.6\text{ }\mu\text{m}$ ), dans le but d'optimiser la densité des UCN en faisant retourner les neutrons non transmis dans le volume de stockage intermédiaire. Le diffuseur est fixé à environ  $100\text{ }\mu\text{m}$  de hauteur par rapport au miroir d'extraction, afin d'obtenir un faisceau d'UCN collimaté dans la direction horizontale tout en faisant un compromis entre le flux de neutrons transmis et leur densité dans l'espace des phases.

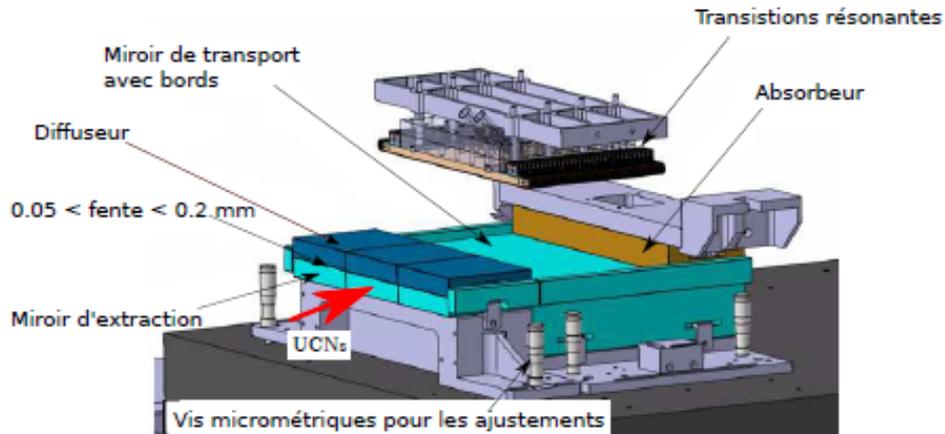


FIGURE 1.14 – Les instruments de contrôle du spectromètre GRANIT dans la chambre à vide.

Un deuxième miroir de dimensions  $30\text{ cm} \times 25\text{ cm} \times 7\text{ cm}$ , appelé "miroir de transport", est situé à la sortie de la fente contre le miroir d'extraction. La position de l'ensemble diffuseur - miroir d'extraction par rapport au miroir de transport est réglable au micromètre près, permettant de former une marche entre les deux miroirs pour sélectionner les états quantiques en préparation pour l'expérience. Les modules dédiés aux transitions résonantes par gradient de champ magnétique, dont le fonctionnement sera détaillé dans la section suivante, sont installés au-dessus du miroir de transport et couvrent une zone de  $30\text{ cm}$  de largeur et  $16\text{ cm}$  de longueur. Un absorbeur de  $30\text{ cm}$  de largeur et  $9\text{ cm}$  de longueur est localisé également au-dessus du miroir, mais à l'extrémité de ce dernier. Il est ajustable en hauteur entre  $5\text{ }\mu\text{m}$  et  $50\text{ }\mu\text{m}$  par des composants piézoélectriques pour filtrer les états quantiques non-désirés. Les neutrons transmis seront enfin détectés à la sortie par un détecteur sensible à la position.

## 1.4.2 Modules de transitions résonantes

Le dispositif du spectromètre GRANIT permettant d'induire des transitions résonantes est composé de 4 modules, chacun composé de 32 fils de  $1 \text{ mm}^2$  de section et 30 cm de longueur. Comme illustré sur la figure 1.15, ces 128 fils espacés de 0.25 mm sont fixés à 0.8 mm au-dessus du miroir de transport.

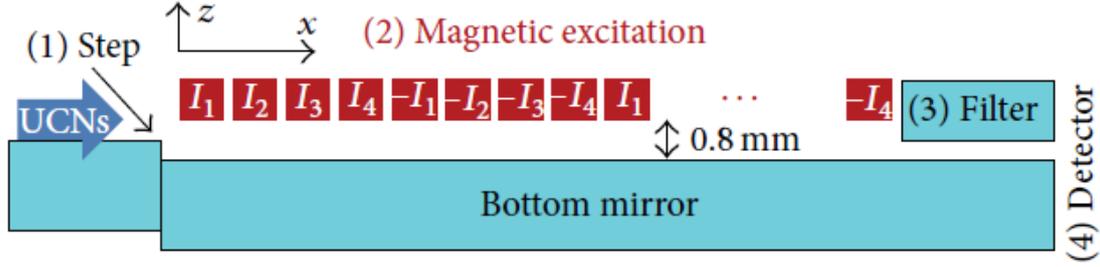


FIGURE 1.15 – Illustration de la configuration pour induire les transitions résonantes des UCN dans le spectromètre GRANIT.

Le déroulement d'une expérience avec les transitions résonantes est constitué de 4 étapes principales : (1) préparation des états initiaux, (2) transitions résonantes, (3) filtration des états finaux, (4) détection des UCN.

La préparation des états initiaux est réalisée grâce à la marche négative de  $15 \mu\text{m}$  entre le miroir d'extraction et le miroir de transport, ce qui permet de supprimer la majorité de la population des neutrons dans l'état fondamental en sortant de la fente semi-diffusive. Ainsi, les neutrons qui vont traverser la zone avec un gradient de champ magnétique seront dans un état d'énergie plus élevé.

Deux modes de fonctionnement sont possibles pour induire les transitions résonantes avec les modules[42]. Le premier est le mode DC, qui consiste à générer un gradient de champ magnétique statique mais oscillant spatialement. Les fils sont connectés de façon que le courant soit périodique chaque 8 fils :  $I_1, I_2, I_3, I_4, -I_1, -I_2, -I_3, -I_4, I_1, \dots$ , ce qui crée un champ magnétique avec une période  $d = 1 \text{ cm}$  dans la direction  $x$ . Par conséquent, seuls les neutrons ayant une vitesse horizontale  $v = d \cdot f_{k1}$  et dans l'état  $k$  peuvent être désexcités vers l'état fondamental. Par exemple, la fréquence  $f_{21}$  associée à la désexcitation  $2 \rightarrow 1$  est 254 Hz. On attend donc que la transition vers l'état fondamental ait lieu sur les neutrons en deuxième état quantique avec une vitesse horizontale de 2.54 m/s. Pour la transition  $3 \rightarrow 1$ , la fréquence associée  $f_{31}$  est 462 Hz. Les transitions peuvent donc avoir lieu sur les neutrons avec une vitesse de 4.62 m/s.

Le deuxième mode de fonctionnement est le mode AC. Il s'agit de générer un gradient de champ magnétique oscillant temporellement dans le domaine de 100 Hz à 1000 Hz, mais uniforme dans la direction  $x$ . La probabilité pour chaque désexcitation atteint donc le maximum sur les fréquences résonantes correspondantes.

Après avoir traversé la zone du gradient magnétique, les neutrons seront ensuite filtrés par la fente de 25  $\mu\text{m}$  entre le miroir de transport et un absorbeur. Seuls les neutrons dans l'état fondamental peuvent être transmis. Les neutrons plus énergétiques seront absorbés par le plafond absorbeur.

Enfin, les neutrons transmis seront détectés à la sortie de la fente de filtration. En mode AC, on mesure le flux de neutrons en fonction de la fréquence de la variation du champ magnétique. On s'attend à observer une augmentation du flux jusqu'à atteindre un maximum lorsque la fréquence d'oscillation s'approche des fréquences résonantes.

En revanche, en mode DC, on mesure la vitesse horizontale des neutrons, avec laquelle on détermine la fréquence de transition. Cette mesure peut être effectuée en laissant les neutrons subir une chute libre avant d'être détectés par un détecteur positionné à une distance  $d = 30$  cm par rapport à la sortie de la fente de filtration, comme montré sur la figure 2.6. En mesurant la hauteur de chute du neutron  $h$ , on peut donc en déduire sa vitesse horizontale  $v_{UCN}$  avec la relation  $v_{UCN} = d(\frac{g}{2h})^{\frac{1}{2}}$ .

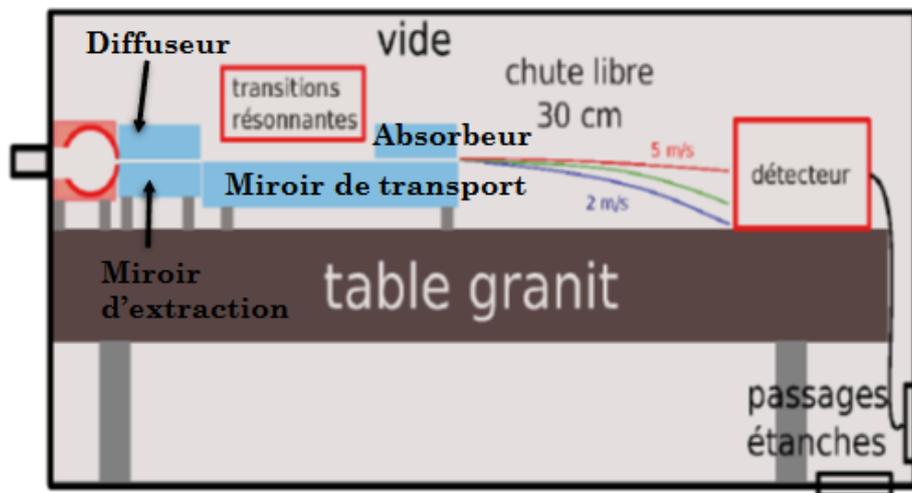


FIGURE 1.16 – Illustration de la configuration du spectromètre GRANIT en mode DC pour les transition résonantes, avec un détecteur sensible à la position placé à une distance de 30 cm par rapport à la fente de filtration.

Ainsi, un détecteur de neutrons sensible à la position est requis pour pouvoir réaliser cette mesure. Sachant que la vitesse des UCN varie typiquement entre 2 m/s et 10 m/s, une résolution sub-millimétrique du détecteur et une surface de détection avec une hauteur de 11 cm sont nécessaires pour pouvoir atteindre la sensibilité désirée et couvrir la gamme des vitesses jusqu'à 2 m/s.

## 1.5 Conclusion

Dans ce premier chapitre, nous nous sommes focalisés sur les caractéristiques des neutrons, ainsi que leurs particularités lorsqu'ils ont une énergie cinétique inférieure à 250 neV, dites "ultra-froids". Ceci permet de souligner les avantages des UCN comme un outil de recherche de la physique fondamentale, notamment une insensibilité aux champs électriques et non pas aux champs magnétiques, une durée de vie suffisamment longue, et la capacité d'être réfléchi par une surface lorsque leur vitesse perpendiculaire à la surface est inférieure à une limite.

La quantification des niveaux d'énergie d'un neutron en chute libre dans le champ de pesanteur a également été discutée. Grâce à l'avancement technologique sur la production des UCN, plusieurs expériences réalisées à l'ILL de 1999 à 2005 ont démontré la viabilité de l'observation et la caractérisation de ces états quantiques. Le spectromètre GRANIT, dont le principe de fonctionnement est basé sur ces expériences précédentes, cherche à étudier les états quantiques de neutrons par induction des transitions résonantes, afin de poser des contraintes sur le paramètre  $\beta$  du champ caméléon et de tester le principe d'équivalence faible.

Les modules de transitions résonantes du spectromètre GRANIT sont conçus de telle manière que la vitesse horizontale des UCN traversant le spectromètre est affectée par la transition entre deux états quantiques. Par conséquent, la détermination de la vitesse horizontale est nécessaire pour en déduire la fréquence de transition. En laissant les UCN en chute libre à la sortie du spectromètre, on peut quantifier leur vitesse horizontale à partir de la mesure de leur hauteur de la chute. Ceci nécessite donc un détecteur de neutrons sensible à la position, que nous discuterons et détaillerons dans le chapitre suivant.

## Chapitre 2

# Détecteur de neutrons sensible à la position

Dans ce chapitre, nous nous focalisons sur la conception d'un détecteur de neutrons sensible à la position qui satisfait les critères imposés par la configuration du spectromètre GRANIT. La première section sera consacrée aux généralités de la détection de neutrons, y compris les notions de base sur les interactions rayonnement-matière et les catégories principales des détecteurs de neutrons. Ceci permet de fournir des perspectives sur la conception d'un détecteur de neutrons.

La deuxième section détaillera la composition de notre détecteur de neutrons sensible à la position. Les caractéristiques du détecteur imposées par GRANIT seront d'abord présentées. Les composants du détecteurs seront ensuite détaillés, ainsi que leurs justifications.

### 2.1 Généralités sur la détection de neutrons

La détection des particules atomiques et subatomiques se base sur la recherche de la signature de leurs interactions avec la matière. En tant qu'une particule électriquement neutre, les neutrons ont une interaction négligeable avec les électrons des atomes du milieu, contrairement aux particules chargées qui ionisent les atomes de la manière directe. Par conséquent, la plupart des détecteurs conçus pour étudier les radiations ionisantes ne sont pas adaptés pour la détection de neutrons.

En revanche, les interactions principales des neutrons sont avec les noyaux des atomes, grâce à l'interaction forte. Ainsi, pour pouvoir détecter les neutrons, on cherche d'abord à les convertir en particules ionisantes par diverses réactions nucléaires. Il faut noter que

l'interaction forte est une force à très courte portée, et que les noyaux occupent très peu d'espace dans la matière. La probabilité de l'interaction est alors très faible en général, d'où la nature pénétrante des neutrons. Il est donc nécessaire de choisir des matériaux avec une section efficace d'interaction élevée pour la matière de conversion.

### 2.1.1 Interactions rayonnement-matière

Les interactions rayonnement-matière décrivent l'effet d'un rayonnement sur un atome. On parle de rayonnement pour une onde électromagnétique (lumière, rayon x, rayon gamma) ou un flux de particules (électron, proton, neutrons, particule alpha, etc.). La nature de l'interaction dépend des caractéristiques du rayonnement et du milieu. Divers types d'interactions rayonnement-matière peuvent avoir lieu dans un détecteur de neutrons.

Deux catégories de processus d'interaction sont exploitées pour la conversion des neutrons selon leur énergie. Pour les neutrons rapides ayant une énergie supérieure à 1 MeV, le processus d'interaction dominant est la diffusion élastique avec un noyau atomique. Une partie de l'énergie cinétique du neutron est transmise au noyau, et le trajet du neutron est dévié en conséquence. De plus, plus la masse du noyau est comparable à celle du neutron, plus le transfert d'énergie est efficace. Par conséquent, si la matière est riche en hydrogène, un proton dit "proton de recul" peut être éjecté, puis détecté par un détecteur.

Une particularité de cette méthode de détection, est la possibilité de mesurer l'énergie du neutron incident. En effet, lorsqu'un neutron avec une énergie  $E_n$  fait éjecter un proton précédemment stationnaire, son énergie cinétique est :

$$E_p = E_n \cos^2 \theta, \quad (2.1)$$

avec  $\theta$  l'angle de diffusion du proton par rapport à la direction incidente du neutron. En mesurant simultanément  $E_p$  et  $\theta$ , il est possible de déterminer l'énergie cinétique du neutron incident.[43]

Pour les neutrons thermiques ou froids, ils peuvent être capturés par un noyau atomique et provoquer une réaction nucléaire. Les matériaux tels que  $^3\text{He}$ ,  $^6\text{Li}$ ,  $^{10}\text{B}$  ont une section efficace d'absorption de neutrons thermiques très élevée (cf Table 2.1). Les particules chargées ainsi produites peuvent être détectées par la suite. Lorsque le noyau absorbant le neutron est très lourd ( $Z > 90$ ), une réaction de fission peut être induite. Le noyau se désintègre en plusieurs fragments, dont les particules chargées peuvent faire partie et être détectées de manière directe. Un des matériaux couramment utilisés pour ce processus est  $^{235}\text{U}$ .

TABLE 2.1 – Exemples des matériaux avec une section efficace d’absorption des neutrons thermiques élevée[43, 44, 45] et les réactions utilisées pour la détection des neutrons.

Réaction	Particules chargées produites	$\sigma_{abs}$ (barn) pour $E_n = 250$ meV	Valeur Q (MeV)	Energie des produits (MeV)
$^{10}\text{B}(n, \alpha_0)^7\text{Li}$	$\alpha, ^7\text{Li}$	3835 (6.1%)	2.792	$E_\alpha = 1.78$ MeV $E_{Li} = 1.02$ MeV
$^{10}\text{B}(n, \alpha_1)^7\text{Li}$	$\alpha, ^7\text{Li}$	3835 (93.9%)	2.310	$E_\alpha = 1.47$ MeV $E_{Li} = 0.84$ MeV
$^6\text{Li}(n, \alpha)^3\text{H}$	$\alpha, ^3\text{H}$	940	4.786	$E_\alpha = 2.05$ MeV $E_{^3\text{H}} = 2.73$ MeV
$^3\text{He}(n, p)^3\text{H}$	$p, ^3\text{H}$	5333	0.764	$E_p = 0.573$ MeV $E_{^3\text{H}} = 0.191$ MeV
$^{235}\text{U}(n, f)$	fragments de fission	680.9	$\sim 200$ MeV	

Dans certains cas, après avoir capturé un neutron, le noyau passe par un état intermédiaire excité et se stabilise avec une émission de rayon gamma sans se désintégrer. Il s’agit alors d’une capture radiative ( $n, \gamma$ ), et le photon émis est la signature de l’interaction des neutrons à détecter. Dans d’autres cas, il est préférentiel de transformer un neutron excédentaire en proton par émission d’un électron et d’un antineutrino (émission  $\beta^-$ ). L’énergie libérée par cette émission est généralement assez élevée, ce qui laisse le noyau dans un état excité. Un rayon gamma peut alors être émis pour dégager cette énergie. Ces réactions d’activation émettant des gamma prompts et des  $\beta^-$  retardés sont très utiles dans les analyses d’activation par neutrons pour identifier des éléments dans un échantillon[46].

## 2.1.2 Détecteur de neutrons

Comme présentée dans la section précédente, l’interaction neutron-matière dominante varie avec l’énergie des neutrons. Il existe donc différents types de détecteurs selon l’énergie des neutrons, les matériaux de conversion et les informations que l’on souhaite collecter.

### Détecteurs proportionnels à ionisation de gaz

Les détecteurs proportionnels à ionisation de gaz sont couramment utilisés pour la détection des neutrons thermiques ou froids. Le dispositif est typiquement composé d’un volume rempli d’un gaz, et équipé de deux électrodes sur lesquelles un potentiel électrique est appliqué. Lorsqu’une radiation ionisante traverse l’espace entre les deux électrodes, elle dépose partiellement ou toute son énergie cinétique dans les atomes du gaz en créant des paires électron-ion. Ces porteurs de charge sont ensuite attirés vers les électrodes pour être collectés grâce au champ électrique appliqué.

La relation entre le nombre des charges collectées et la tension appliquée sur les électrodes est illustrée sur la figure 2.1. Dans la région I dite "région de recombinaison", le potentiel électrique est suffisant pour guider les porteurs de charge créés par des radiations ionisantes incidentes vers les électrodes, mais trop faible pour empêcher leurs recombinaisons. Le taux de recombinaison décroît jusqu'à zéro avec l'augmentation du potentiel, mais le nombre de charges collectées sur les électrodes reste constant, tant que le potentiel n'est pas encore suffisamment élevé pour créer de nouveaux porteurs de charge. Cette région II est donc la "région d'ionisation". Les chambres d'ionisation fonctionnent dans cette région.

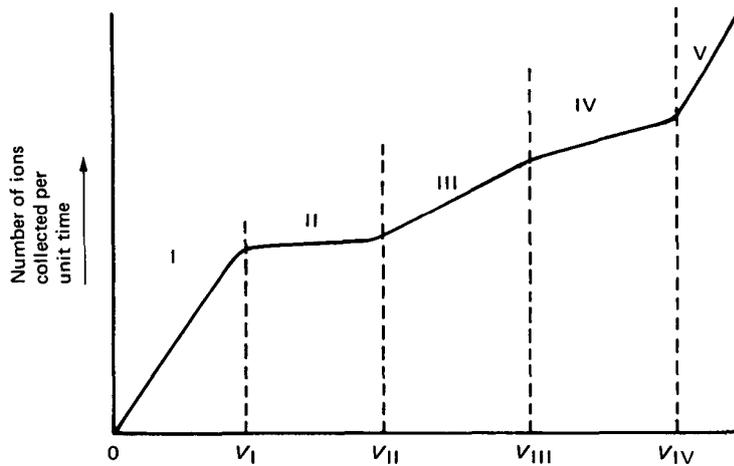


FIGURE 2.1 – Le nombre des charges collectées en fonction du potentiel électrique appliqué sur les électrodes.[46]

Les électrons libres, étant des particules d'une masse considérablement plus faible que les ions, sont beaucoup plus faciles à être accélérés par un champ électrique. Si le potentiel appliqué continue à augmenter, on entre dans la région proportionnelle (région III), dans laquelle les électrons peuvent acquérir une énergie cinétique plus élevée que l'énergie d'ionisation des molécules neutres du gaz, et créer une nouvelle paire électron-ion lorsqu'ils entrent en collision avec des molécules du gaz.

Les électrons libérés dans ce processus d'ionisation secondaire peuvent continuer à créer d'autres porteurs de charge s'ils sont suffisamment énergétiques. Ceci constitue donc une avalanche électronique, dans laquelle la croissance du nombre des électrons libres par unité de distance est caractérisée par l'équation de Townsend[45] :

$$\frac{dN(x)}{N(x)} = \alpha dx, \quad (2.2)$$

avec  $N(x)$  le nombre d'électrons à une distance  $x$ , et  $\alpha$  le premier coefficient de Townsend qui est une constante pour un champ électrique constant dans l'espace.

L'équation 2.2 mène à :

$$N(x) = N(x=0)e^{\alpha x}, \quad (2.3)$$

ce qui implique une croissance exponentielle du nombre des électrons libres avec la distance. Ceci dit, étant donné que le phénomène d'avalanche se termine lorsque tous les électrons sont collectés sur l'anode du détecteur, et que la distance entre les deux électrodes est fixe, le nombre total des charges collectées est proportionnel au nombre des ionisations primaires dans le détecteur, et le facteur de multiplication est constant pour un potentiel électrique donné. Les détecteurs de neutrons à gaz fonctionnent en général dans la région proportionnelle. Une amplification significative du signal intrinsèque du détecteur constitue l'avantage principal de fonctionner dans la région proportionnelle, mais ceci cause également au détecteur une plus grande sensibilité aux impuretés dans le gaz[45].

Lorsque le champ électrique devient encore plus fort et atteint la région Geiger-Müller (région IV), il se peut que plusieurs avalanches soient déclenchées par la radiation ionisante initiale dans une réaction en chaîne, jusqu'à ce que l'effet collectif de ces avalanches l'interrompe. Ceci crée un signal très fort dans le détecteur, mais son amplitude est indépendante du nombre des ionisations primaires[45]. Ainsi, les compteurs Geiger-Müller qui fonctionnent dans cette région sont des compteurs efficaces, mais on perd l'accès à l'énergie des particules ionisantes initiales. Au-delà de la région Geiger-Müller (région V), le champ électrique est tellement fort qu'une seule radiation ionisante provoque une décharge continue, ce qui n'est plus une condition utile pour un détecteur de particules.

$^3\text{He}$  et  $\text{BF}_3$  enrichi à 96% de  $^{10}\text{B}$ [43] sont fréquemment choisis comme gaz de remplissage pour la détection des neutrons thermiques ou froids, grâce à leurs grandes sections efficaces de capture neutronique et leurs valeurs  $Q$  élevées. Etant donné que l'énergie déposée par des particules chargées est la valeur  $Q$ , qui est l'énergie libérée dans la réaction, le spectre en énergie du détecteur est indépendant de l'énergie des neutrons. Ainsi, le détecteur fonctionne comme un compteur. Les avantages de l'hélium 3 par rapport au  $^{10}\text{BF}_3$  sont une plus grande

section efficace, une insensibilité au rayonnement gamma, et surtout sa non-toxicité et sa stabilité chimique, mais il demeure une ressource très coûteuse et limitée[47].

Le gaz de conversion de neutrons est souvent mélangé avec un gaz de quenching, comme l'introduction des gaz polyatomiques tels que  $\text{CF}_4$  et  $\text{CH}_4$  dans l'hélium 3. En effet, les atomes et les molécules dans le gaz peuvent entrer dans un état excité suite à des collisions avec les particules chargées. Leur désexcitation sous forme d'une émission de photon retardée, voire un déclenchement d'une avalanche si le photon est suffisamment énergétique, provoque des effets non désirables tels que l'augmentation du temps mort et la perte de la linéarité dans un compteur proportionnel. Les gaz polyatomiques sont capables d'absorber ces photons énergétiques et dissiper leur énergie par dissociation ou excitation rotationnelle[48, 49]. Leur introduction dans l'enceinte peuvent donc améliorer la résolution du détecteur.  $\text{CF}_4$  est particulièrement adapté pour un détecteur de neutrons grâce à la section efficace de capture neutronique extrêmement faible du fluor ( $\sigma_F = 0.0096$  barn pour un neutron thermique[44]).

D'autres configurations existent pour répondre à la pénurie de l'hélium 3. Elles se focalisent généralement sur l'utilisation de  $^{10}\text{B}$  sans avoir recours au  $\text{BF}_3$ . Une solution fréquemment employée est de recouvrir les parois de l'enceinte par une fine couche de  $^{10}\text{B}$ . Cette méthode nécessite peu de modifications sur le dispositif d'un compteur avec l'hélium 3, mais son efficacité de détection est relativement faible par rapport à l'hélium 3, en raison d'un volume effectif plus limité et une section efficace de capture neutronique plus faible du  $^{10}\text{B}$ , ainsi que la perte des particules chargées par échappement à travers les parois.

L'augmentation de l'épaisseur de la couche de conversion peut améliorer l'efficacité de détection, mais seulement dans une certaine mesure. En effet, si l'épaisseur du  $^{10}\text{B}$  dépasse leurs libres parcours moyens, les particules alpha et les ions de  $^7\text{Li}$  issus de la conversion de neutron peuvent perdre toute leur énergie cinétique dans la couche de conversion. On perd alors le comptage de ces neutrons. De plus, la perte d'énergie partielle des particules chargées dans la couche de  $^{10}\text{B}$  résulte en un spectre en énergie avec deux plateaux, correspondant aux énergies des particules alpha et des ions de  $^7\text{Li}$  respectivement, contrairement à une distribution gaussienne dans un compteur de gaz d'hélium 3 ou de  $^{10}\text{BF}_3$ , comme montré sur la figure 2.2. Ceci cause une plus grande difficulté pour la discrimination du bruit de fond provenant des rayons  $\gamma$  dans un détecteur avec un revêtement de  $^{10}\text{B}$ [50, 51]. De nouvelles variations utilisant un assemblage de plusieurs tubes recouverts de couche mince de  $^{10}\text{B}$ [52, 53] ou remplaçant l'hélium 3 par un aérosol de nanoparticules de  $\text{B}_4\text{C}$ [50] enrichi en  $^{10}\text{B}$  ont été testées, et elles ont montré des résultats prometteurs comme une nouvelle solution.

Il est également possible de recouvrir la surface des électrodes par une couche mince d'uranium 235 et remplir la chambre avec de l'argon. Les fragments de fission issus de la capture des neutrons par les noyaux d'uranium 235 ionisent les atomes d'argon, et les porteurs de charge ainsi créés peuvent ensuite être collectés sur les électrodes. Il s'agit d'une chambre à fission, et le détecteur fonctionne dans la région d'ionisation. En raison d'une

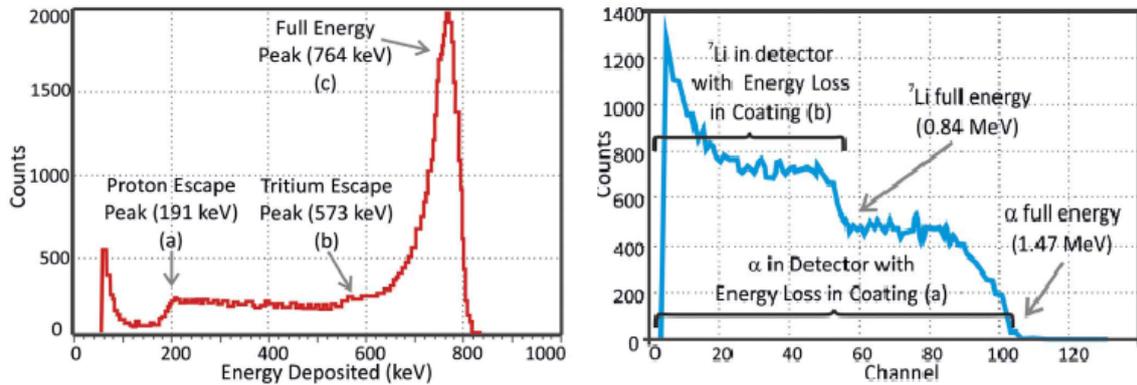


FIGURE 2.2 – Gauche : spectre en énergie d'un détecteur proportionnel à base d'hélium 3, avec un pic à 764 keV correspondant à l'énergie totale des produits issus de la capture neutronique, et deux plateaux débutant à 191 keV et 573 keV correspondant à l'énergie du proton et du tritium respectivement causés par un "effet de paroi". Lorsque la capture du neutron a lieu proche de la paroi de l'enceinte, il se peut qu'un des produits s'échappe de la paroi et son énergie n'est pas déposée dans le gaz, d'où la présence de ces deux plateaux. Droite : spectre en énergie d'un détecteur proportionnel avec une couche mince de  $^{10}\text{B}$  sur les parois, avec deux plateaux à 0.84 MeV et 1.47 MeV correspondant à l'énergie des ions  $^7\text{Li}$  et des particules alpha issus de l'interaction neutron- $^{10}\text{B}$ , en raison de l'effet de paroi.[50]

valeur  $Q$  très élevée (de l'ordre de 160 MeV[43]) de la réaction de fission, les chambres à fission sont très insensibles aux rayons gamma du fond. Mais la perte d'énergie des fragments de fission dans la couche d'uranium 235 reste significative, ce qui diminue considérablement son efficacité de détection. Les chambres à fission sont généralement utilisées pour les mesures de neutrons dans un réacteur, où il y a une forte présence d'un fond de rayons gamma, ou pour les mesures des sections efficaces de fission[43].

Les détecteurs proportionnels à ionisation de gaz peuvent également être adaptés pour la détection des neutrons rapides. Une solution pratique est d'enrober un compteur proportionnel à l'hélium 3 ou au  $^{10}\text{BF}_3$  avec un modérateur en polyéthylène[43]. La diffusion élastique des neutrons rapides sur les atomes d'hydrogène et de carbone permet de réduire leur énergie cinétique jusqu'au domaine thermique, mais on perd l'information sur l'énergie cinétique initiale des neutrons. Une autre méthode est de remplacer le gaz de remplissage par un mélange d'hydrogène et de  $\text{CH}_4$ . Un proton de recul peut être éjecté d'une molécule du gaz lors de la diffusion élastique d'un neutron rapide incident. La forme du spectre d'un tel détecteur devrait être un plateau en raison de l'isotropie du processus de diffusion, mais elle peut être modifiée à cause de l'effet de paroi[46].

## Détecteurs à scintillation

Les détecteurs à scintillation sont largement utilisés pour la détection et la spectrométrie de diverses radiations ionisantes. Il s'agit de détecter la lumière émise par un matériau scintillateur irradié par des rayonnements ionisants. Un tube photomultiplicateur est généralement connecté au scintillateur pour convertir la lumière émise en signal électrique. Pour la détection des neutrons, qui ne sont pas ionisants de manière directe, une étape préalable pour les convertir en rayonnement ionisant est nécessaire.

Un scintillateur adapté à la détection de radiations doit avoir un rendement lumineux optimal et proportionnel à l'énergie déposée. Un temps de réponse court permet de générer des signaux rapidement, ce qui est également une qualité recherchée pour un détecteur de particules. Afin d'optimiser la détection de la lumière de scintillation, le scintillateur doit être transparent pour la longueur d'onde de la lumière émise, et possède un indice de réfraction proche du verre ( $\sim 1.5$ ) pour optimiser la transmission de lumière au tube photomultiplicateur. Enfin, la stabilité chimique et la facilité de fabrication à grand échelle sont aussi des paramètres importants à considérer.

En pratique, il y a rarement des matériaux qui peuvent répondre à tous les critères désirés. Les scintillateurs cristaux inorganiques ont généralement un meilleur rendement lumineux et une linéarité de réponse, mais leur temps de réponse sont souvent plus lents que ceux des scintillateurs organiques en liquide ou plastique. Un compromis est souvent nécessaire lors du choix d'un scintillateur. Comme nous anticipons une fréquence de détection entre 1 à 10 Hz pour les neutrons ultra-froids, nous privilégions une réponse linéaire et un meilleur rendement de scintillation à un temps de réponse très court. Nous nous focaliserons donc sur les scintillateurs inorganiques pour la suite de cette section.

Le mécanisme de scintillation dans les scintillateurs inorganiques peut être expliqué par la théorie des bandes. Comme illustré sur la figure 2.3, dans un solide cristallin, les électrons se répartissent dans des bandes d'énergie discrètes. La bande de valence est la dernière bande remplie. Les électrons qui s'y trouvent sont liés aux atomes et donc confinés dans des états localisés. La bande de conduction est vide (isolant ou semi-conducteur) ou partiellement remplie (métal). Les électrons qui s'y trouvent sont suffisamment énergétiques pour migrer dans le solide, contribuant ainsi aux phénomènes de conduction électrique. Dans un solide cristallin pur, les électrons ne peuvent pas se trouver dans la zone entre ces deux bandes. Cette zone est la bande interdite.

Lorsqu'une particule chargée dépose de l'énergie dans un solide cristallin, un électron dans la bande de valence peut franchir la bande interdite et monter dans la bande de conduction, laissant un trou dans la bande de valence. Dans le cas où l'énergie déposée n'est pas suffisante pour que l'électron surmonte la bande interdite, l'électron reste lié au trou correspondant. Une telle paire électron-trou forme un exciton, qui est également capable de se déplacer dans le solide.

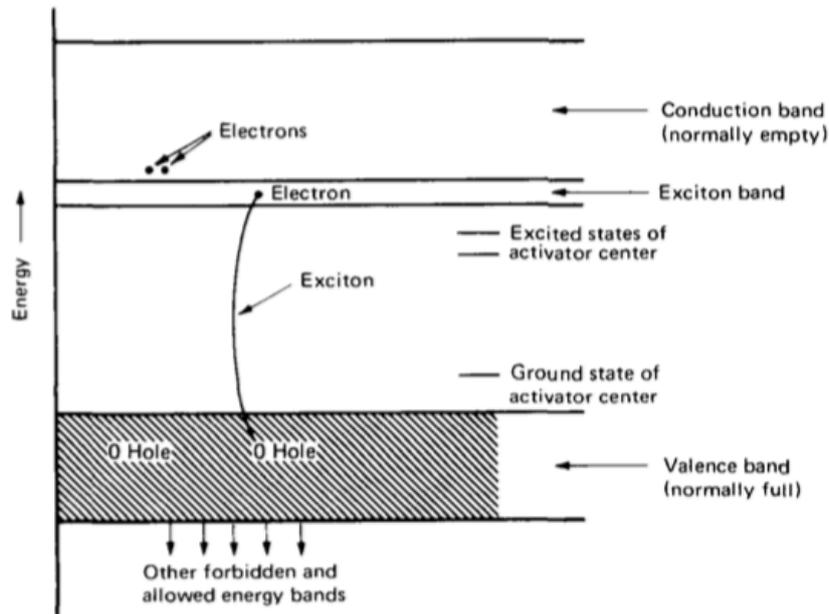


FIGURE 2.3 – Illustration de la structure des bandes dans un scintillateur inorganique.[46]

Dans un cristal pur, la désexcitation par recombinaison radiative des paires électron-trou n'est pas un processus favorisé en matière d'énergie. De plus, la lumière ainsi émise est généralement hors du spectre visible, en raison de la largeur des bandes interdites typiquement de l'ordre de 8 eV[46]. Cependant, avec une présence modérée des défauts et des impuretés dans la structure cristalline, des niveaux d'énergie additionnels peuvent être créés dans la bande interdite, ce qui améliore la probabilité des recombinaisons radiatives dans le spectre visible. Les impuretés introduites dans la structure cristalline forment des centres d'activation, sur lesquelles les paires électron-trou ou les excitons sont capturés et se recombinent. Le centre d'activation rentre dans un état excité en conséquence, puis émet un photon si la transition au niveau fondamental est permise. Le temps de désexcitation est généralement de l'ordre de  $10^{-8}$ - $10^{-7}$  s [45, 46].

Dans le cas où la transition vers le niveau fondamental est interdite, le centre d'activation peut acquérir de l'énergie supplémentaire par excitation thermique et remonter à un niveau d'énergie plus élevé où la transition est de nouveau permise. Cette émission d'un photon retardé contribue à l'afterglow (scintillation rémanente) d'un scintillateur, ce qui augmente le temps de réponse du détecteur et n'est pas un effet désirable. Les centres d'activation peuvent également subir des transitions non-radiatives si celles-ci sont permises suite à la capture d'un électron libre. Ce phénomène de quenching contribue à la baisse du rendement de scintillation et la dégradation de linéarité d'un détecteur de scintillation.

Pour la détection de neutrons, il faut incorporer des éléments capables de convertir des neutrons en particules chargées dans les scintillateurs. Pour cette raison, les scintillateurs à base de lithium tels que  ${}^6\text{LiI}(\text{Eu})$  peuvent répondre à ce besoin, grâce à la réaction  ${}^6\text{Li}(n, \alpha){}^3\text{H}$ . Contrairement aux détecteurs proportionnels gazeux, la densité des détecteurs à scintillation solide permet de limiter davantage l'effet de paroi. En revanche, la capacité de discriminer les événements du rayon gamma est réduite en comparaison. La nature hygroscopique de l'iodure de lithium exige aussi une protection étanche avec une fenêtre d'entrée pour le scintillateur. D'autres configurations existent également, telles que l'incorporation du  ${}^6\text{Li}$  dans une fine couche de  $\text{ZnS}(\text{Ag})$  de 0.6 mm d'épaisseur[45], ou la combinaison d'une couche de  ${}^6\text{LiF}$  ou de  ${}^{10}\text{B}$  avec une couche de  $\text{ZnS}$ . Une épaisseur limitée permet une meilleure capacité à discriminer les événements du gamma.

Un tube photomultiplicateur (PMT) est généralement couplé au scintillateur pour amplifier le signal produit par la lumière de scintillation. Ce composant (cf Figure 2.4) consiste en un tube en verre à vide, équipé d'une photocathode à l'entrée du tube, plusieurs dynodes capables d'émettre des électrons secondaires au sein du tube, et une anode à l'autre extrémité pour collecter des électrons. Lorsqu'un photon de scintillation frappe la photocathode, un électron est éjecté par effet photoélectrique et guidé vers la première dynode par un champ électrique. Ceci provoque l'émission des électrons secondaires, qui sont ensuite guidés vers la deuxième dynode. Ce processus se répète jusqu'à la dernière dynode, ce qui mène à l'amplification du signal. La sensibilité spectrale d'un photomultiplicateur dépend de la matière de la photocathode. Il est donc important de choisir un photomultiplicateur adapté au spectre d'émission du scintillateur. On remarque également la présence d'un courant faible même en l'absence de photons, lorsqu'un potentiel électrique est appliqué au photomultiplicateur. Ce courant, dû à l'émission thermoionique de la photocathode, contribue à une partie du bruit de fond et peut être réduit en refroidissant le photomultiplicateur. Il est également conseillé d'appliquer le potentiel au PMT placé dans le noir plusieurs heures avant des mesures, afin d'obtenir une performance plus stable[54].

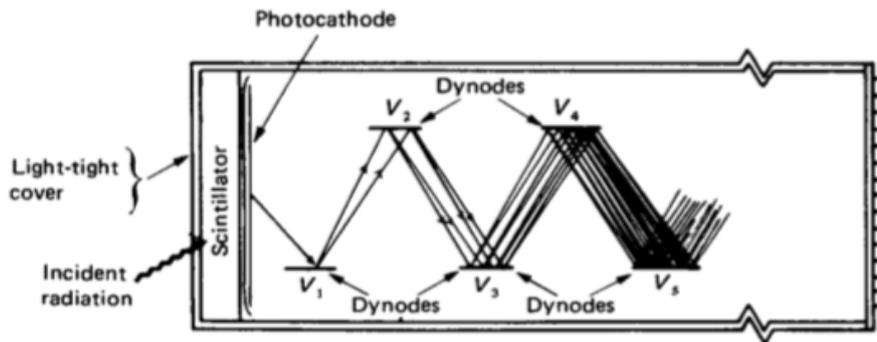


FIGURE 2.4 – Illustration de la structure d'un tube photomultiplicateur.[46]

## Détecteurs semiconducteurs

Les détecteurs semiconducteurs sont des détecteurs solides qui fonctionnent de manière similaire aux détecteurs proportionnels à gaz. Les rayonnements ionisants déposent leur énergie dans la matière du détecteur et créent des porteurs de charge. Ces derniers sont ensuite collectés pour construire des signaux électriques. Dans le cas des détecteurs semiconducteurs, les porteurs de charges ne sont pas des ions et des électrons comme dans un détecteur à gaz, mais des électrons et des trous. Le mécanisme de création des paires électron-trou dans un détecteur semiconducteur est similaire à celui dans un détecteur à scintillation. Mais au lieu de convertir les paires électron-trou en lumière par recombinaison radiative, on cherche à minimiser ce processus dans les détecteurs semiconducteurs, afin de détecter un maximum des porteurs de charge de manière directe. Par conséquent, les semiconducteurs à gap indirect, tels que le silicium et le germanium, sont généralement utilisés pour ce type de détecteurs, car les recombinaisons radiatives ne sont pas favorisées en raison de la conservation du quasi-moment.

Le fonctionnement d'un détecteur semiconducteur repose sur une jonction p-n. Cette structure est composée de deux semiconducteurs de type p et de type n respectivement. On considère le silicium, qui possède 4 électrons de valence. Dans un cristal de silicium pur, chaque électron de valence forme une liaison covalente avec celui d'un atome voisin. Si un des atomes de silicium est remplacé par un atome de phosphore, qui possède cinq électrons de valence, le cinquième électron ne forme pas de liaison covalente avec les atomes de silicium. Cet électron est donc faiblement lié. Une faible quantité d'énergie suffit pour rompre la liaison, et l'électron peut ainsi contribuer à la conduction électrique. Comme les porteurs de charge de ce type de semiconducteurs sont des électrons, qui ont une charge négative, il est donc nommé type n. De même, si un atome de silicium est remplacé par un atome possédant trois électrons de valence, tel que le bore, ceci crée un trou positif qui peut attirer un électron supplémentaire. Un tel semiconducteur est nommé type p.

La figure 2.5 montre deux semiconducteurs, un de type p, l'autre de type n, en contact. Une diffusion des électrons du semiconducteur de type n vers celui de type p aura lieu, et inversement des trous du type p vers le type n. Le système atteint finalement un équilibre de concentration des électrons et des trous. Mais comme les semiconducteurs étaient initialement neutres en charge, la diffusion engendre une zone chargée positive dans le type n et une zone négative dans le type p. Ceci crée une zone de déplétion entre les deux semiconducteurs, où l'application d'une différence de potentiel empêche la diffusion naturelle des porteurs de charge libres. Cette structure est une jonction p-n.

En appliquant un potentiel positif sur le semiconducteur de type n, on augmente la barrière de potentiel et élargit la zone de déplétion. Lorsqu'une particule chargée traverse cette zone de déplétion et crée des paires électron-trou, ces dernières seront rapidement séparées sous l'effet du champ électrique et peuvent ensuite être enregistrées par des composants

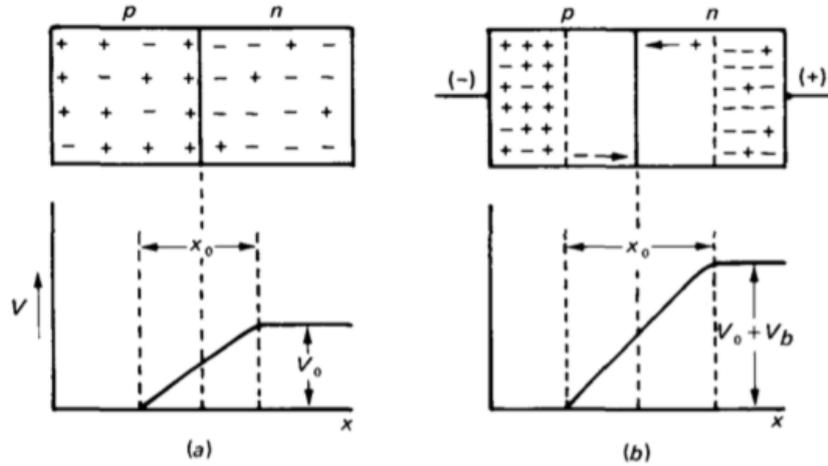


FIGURE 2.5 – Une jonction p-n sans tension extérieure (a) et avec l’application d’une polarisation en inverse (b).[46]

électroniques. Comme les détecteurs à scintillation, une étape de conversion de neutron en particule chargée est nécessaire pour les détecteurs semiconducteurs. Ceci peut se réaliser par une couche de conversion enrichie en  $^{10}\text{B}$  déposée sur le surface du semiconducteur.

Sans les étapes supplémentaires pour convertir l’énergie ionisante en scintillation puis en signal électrique, les détecteurs semiconducteurs ont généralement une meilleure résolution en énergie[45]. Les composants disponibles dans le commerce sont en général des capteurs CCD (Charge-Coupled Device). Une résolution de  $3\ \mu\text{m}$  a été rapportée dans la littérature[55], avec un capteur CCD de  $512 \times 512$  pixels de taille  $24\ \mu\text{m}$  recouvert d’une couche de conversion de neutrons, irradiée par un faisceau de neutrons froids. Une résolution sub-pixel peut également être atteinte par la méthode de la reconstruction du barycentre des pixels adjacents.

## 2.2 Conception d’un détecteur de neutrons sensible à la position pour le spectromètre GRANIT

La vitesse horizontale des neutrons ultra-froids étant liée à la fréquence de transition, la détermination de ce paramètre par mesure de la hauteur de chute libre des UCN est une opération importante pour l’étude des transitions résonantes (cf Section 1.4.2). Les détecteurs de neutrons conventionnels fonctionnant avant tout comme des compteurs, il est donc nécessaire de concevoir un détecteur sensible à la position pour réaliser cette mesure. La conception d’un tel détecteur est présentée dans cette section.

## 2.2.1 Caractéristiques imposées au détecteur

On cherche à mesurer la hauteur de chute libre des UCN sortant de la fente absorbeur-miroir de transport (cf Figure 2.6). La surface de détection souhaitée est 20 cm (horizontal)  $\times$  5 cm (vertical) avec une résolution de 250  $\mu\text{m}$ . Ceci permet de mesurer la hauteur de chute d'un UCN de 3 m/s parcourant une distance horizontale de 30 cm. Un matériau avec un potentiel de Fermi très faible est également souhaité pour la fenêtre du détecteur, afin de minimiser l'impact de l'angle de chute, et donc la hauteur de chute, sur l'efficacité de détection. Le taux de comptage attendu est de l'ordre de quelques dixièmes de Hertz selon les mesures antérieures[56].

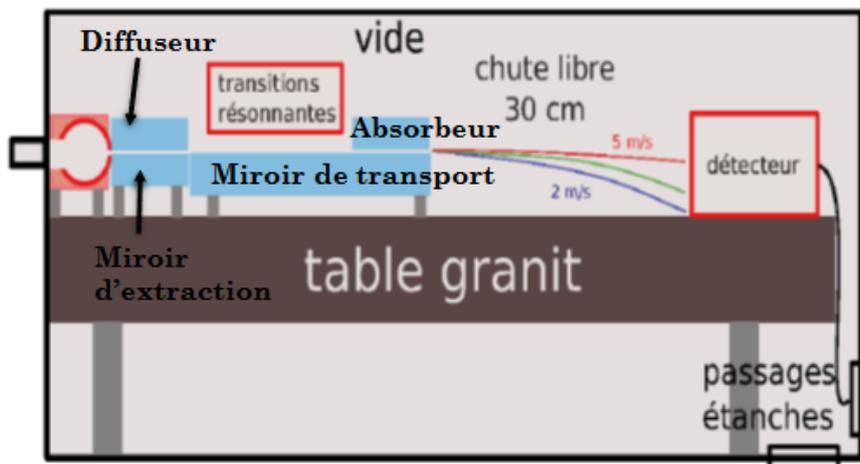


FIGURE 2.6 – Illustration de la configuration du spectromètre GRANIT en mode DC pour les transitions résonantes, avec un détecteur sensible à la position placée à une distance de 30 cm par rapport à la fente de filtration.

L'ensemble du détecteur sera installé dans la chambre à vide du spectromètre, et il doit être capable de fonctionner dans un vide de l'ordre de  $10^{-5}$  mbar. Le spectromètre étant logé dans le bâtiment réacteur de l'ILL, un bruit de fond neutronique et gamma est toujours présent, malgré les blindages robustes tels que les composants en plomb et en  $\text{B}_4\text{C}$ . Le bruit de fond est mesuré à 5  $\mu\text{Sv/h}$  pour le rayon gamma et 10 mHz pour les neutrons thermiques[56].

## 2.2.2 Conception du détecteur

La conception d'un détecteur d'UCN à scintillation couplé à un réseau de fibres optiques a été proposée dans la thèse réalisée précédemment par D. Roulier[56]. Le design est illustré sur la figure 2.7. Le détecteur est constitué d'une couche de conversion de neutrons, une couche de scintillateur, un substrat de support, et des fibres optiques alignées horizontalement dans le plan perpendiculaire à la direction incidente des neutrons. Les UCN incidents sont d'abord capturés dans la couche de conversion et convertis en particules chargées. Puis, ces dernières traversent la couche de scintillateur en y déposant leur énergie. La lumière de scintillation ainsi provoquée est ensuite canalisée dans les fibres optiques, et enfin détectée par un photomultiplicateur multi-anodique connecté au réseau de fibres optiques.

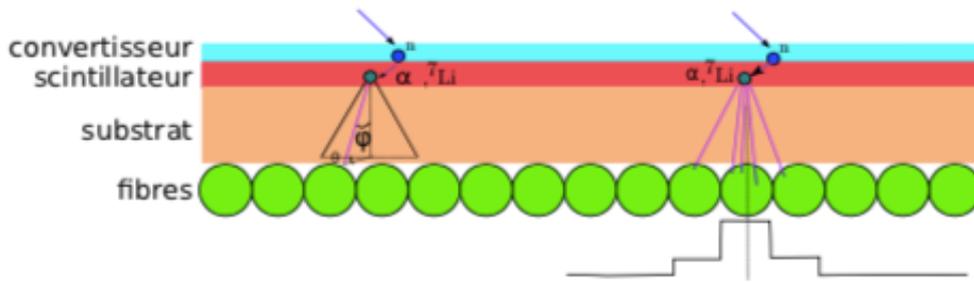


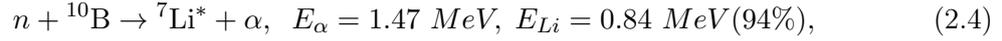
FIGURE 2.7 – Illustration du fonctionnement d'un détecteur à scintillation avec un réseau de fibres optiques.

Au lieu d'un scintillateur incorporant des centres de capture neutronique tel que  $\text{ZnS}(\text{Ag}) : ^6\text{Li}$ , nous avons choisi de séparer la couche de conversion et le scintillateur. Ceci est justifié pour assurer que la fenêtre d'entrée du détecteur est un matériau avec un potentiel de Fermi nul ou très faible.

Pour un évènement de neutron avec une grande extension spatiale qui touche plusieurs fibres optiques, la position du détecteur peut être déterminée par la reconstruction du centre de masse. La dimension des fibres optiques a également un impact sur la performance du détecteur. Les fibres optiques ayant un plus grand diamètre (1 mm) facilitent la reconstruction du centre de masse en augmentant la quantité de lumière captée et transmise par les fibres, alors que les fibres avec un plus petit diamètre (0.5 mm) permettent d'améliorer la résolution en augmentant le nombre d'entrées du signal.

## Couche de conversion en Ti-<sup>10</sup>B-Ni

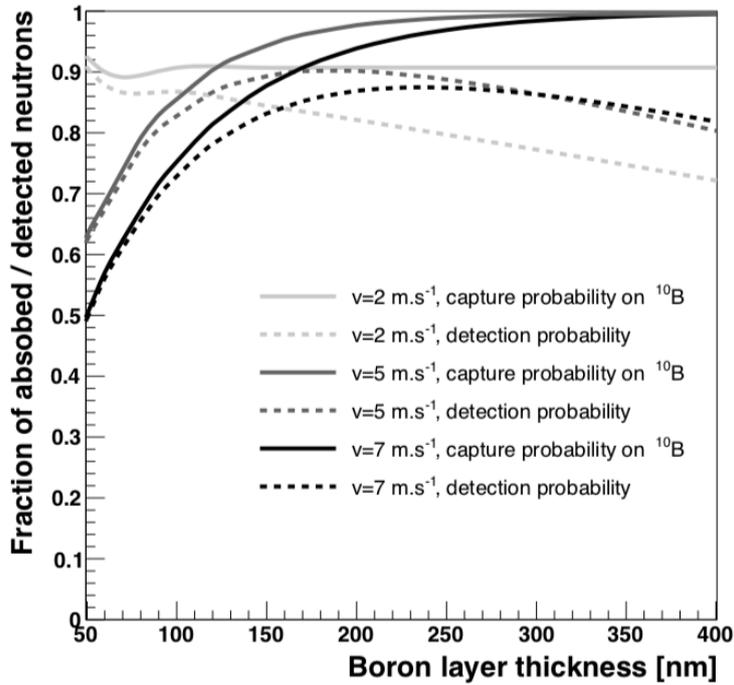
<sup>10</sup>B est choisi comme le matériau de la couche de conversion des neutrons, grâce à sa disponibilité en état solide, sa grande section efficace d'absorption des neutrons, et son potentiel de Fermi très proche de 0 neV. La conversion d'un neutron par le <sup>10</sup>B s'effectue de la manière suivante :



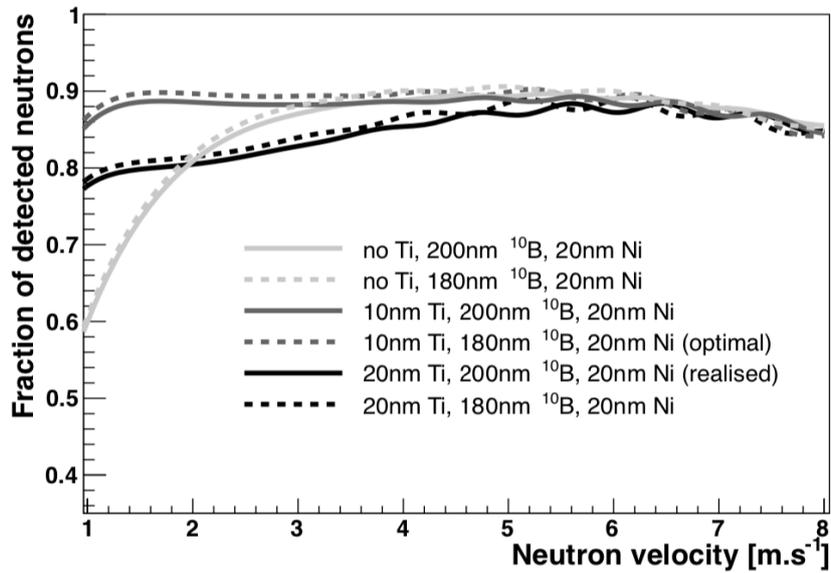
Dans 94% des cas, le lithium produit par la réaction est dans un état excité, et un rayon gamma de 0.48 MeV sera émis ultérieurement. Une seule particule chargée produite par cette réaction traversera la couche de conversion et provoquera la scintillation par la suite.

Afin d'optimiser le taux de conversion, la couche de conversion doit être suffisamment épaisse pour capturer la plupart des neutrons incidents, mais en même temps suffisamment fine pour que les produits de conversion puissent la traverser avec peu de perte d'énergie. Une simulation Monte-Carlo basée sur SRIM et la base de données NIST a été réalisée dans une étude précédente[57] pour estimer l'efficacité de conversion et l'efficacité de détection pour des UCN ayant une vitesse de 2 à 7 m/s. Sachant que la vitesse moyenne des UCN en sortant du spectromètre GRANIT est 5.1 m/s, une épaisseur de 200 nm est optimale pour la couche de <sup>10</sup>B selon la figure 2.8a.

Un des inconvénients d'une couche de <sup>10</sup>B pure est l'oxydation du bore. Une couche de protection en métal passif en dessus de la couche de <sup>10</sup>B est donc préférable. Le titane est choisi grâce à son potentiel de Fermi négatif, ce qui facilite l'absorption des UCN. Comme la section efficace d'absorption des neutrons diminue avec l'augmentation de leur vitesse, les neutrons plus rapides risquent de traverser la couche de conversion sans interaction. Une couche de réflexion entre la couche de <sup>10</sup>B et le scintillateur a alors été considérée. Une telle couche doit avoir un potentiel de Fermi élevé pour piéger les neutrons dans la couche de conversion. De bonnes propriétés mécaniques sont également souhaitées. Le nickel est donc choisi en répondant ces critères. Les résultats des simulations montrés sur la figure 2.8b suggèrent que l'épaisseur optimale des couches de titane et de nickel est 10 nm et 20 nm respectivement. Cependant, il est difficile d'obtenir une couche mince uniforme avec une épaisseur inférieure à 20 nm par le procédé de dépôt physique. Un compromis d'une épaisseur de 20 nm pour les couches de titane et de nickel et une épaisseur de 200 nm pour la couche de <sup>10</sup>B a donc été choisi



(a)



(b)

FIGURE 2.8 – (a) : Efficacité de conversion et de détection d’une couche de  $^{10}\text{B}$  en fonction de son épaisseur pour les différentes vitesses des UCN incidents. (b) : Efficacité de détection des différentes configurations de couche de conversion  $\text{Ti}-^{10}\text{B}-\text{Ni}$  en fonction de la vitesse des UCN incidents.[57]

## Couche de scintillateur en ZnS(Ag)

Le sulfure de zinc dopé à l'argent (ZnS(Ag)) est choisi pour la couche de scintillation du détecteur. Ce matériau, utilisé dans l'expérience de Rutherford[58] pour détecter les particules alpha par scintillation, est un des scintillateurs inorganiques les plus utilisés. Les caractéristiques de ZnS(Ag) sont présentées dans la table 2.2.

TABLE 2.2 – Caractéristiques du scintillateur ZnS(Ag)

	$\rho$ (g/cm <sup>3</sup> )	$\tau$ (ns)	$\lambda$ (nm)	n	l (photons/MeV)
ZnS(Ag)	4.09	72[54] 200[45]	450	2.36	60000[54]

L'efficacité de scintillation élevée de ZnS(Ag), comparable à celle de NaI(Tl)[45, 54], le rend un candidat optimal pour la détection des radiations produites lors de la conversion des neutrons. Un temps de désexcitation d'environ 200 ns est avantageux pour un temps de réponse court du détecteur. Les composantes lentes de l'ordre de 5  $\mu$ s[59] et de 100  $\mu$ s[60] ont également été citées dans la littérature, mais ceci ne cause pas de problème majeur pour une fréquence de détection attendue à quelque dizaine de Hertz dans le spectromètre GRANIT. Une faible sensibilité aux rayons gamma de ZnS(Ag) avec un comptage de moins de  $10^{-8}$  évènements par gamma incident[61] est également une qualité désirée pour un détecteur de neutrons situé au sein de la plateforme du réacteur à l'ILL.

Un des inconvénients de ZnS(Ag) est son opacité, ce qui diminue la quantité de lumière transmise. Une couche de ZnS(Ag) avec une épaisseur supérieure à 25 mg/cm<sup>2</sup> (61  $\mu$ m)[45] n'est plus adaptée pour un scintillateur à cause de la ré-absorption de sa propre lumière émise. En revanche, un minimum de volume effectif du scintillateur doit être maintenu, afin que les particules chargées puissent y déposer toute leur énergie. Pour les particules alpha de 1.47 MeV, les simulations SRIM montrent qu'une épaisseur de 5  $\mu$ m de ZnS est suffisante.

La réalisation de la couche mince s'effectuera avec la technique de dépôt physique par pulvérisation assisté par plasma. Un substrat de saphir (Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>) commercial d'une épaisseur de 500  $\mu$ m est choisi pour soutenir la couche mince de ZnS(Ag), grâce à sa transparence dans le spectre visible et sa stabilité mécanique et chimique. Des simulations Monte-Carlo avaient été effectuées pour déterminer l'influence de l'épaisseur du substrat sur la résolution, avec des fibres optiques de diamètre de 0.5 mm et 1 mm[56]. Bien qu'une épaisseur autour de 100  $\mu$ m du substrat offre la meilleure résolution pour les deux types de fibres comme montré sur la figure 2.9, un substrat avec une épaisseur de 500  $\mu$ m permet une résolution autour de 250  $\mu$ m, ce qui correspond au critère attendu pour le détecteur.

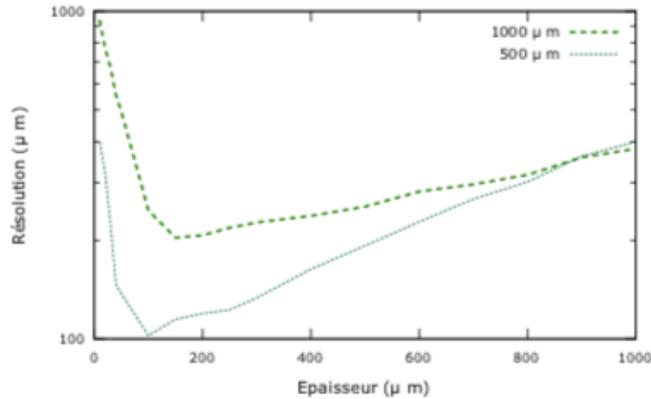


FIGURE 2.9 – La résolution du détecteur conçu en fonction de l'épaisseur du substrat pour des signaux de 100 photoélectrons, avec des fibres optiques de diamètre de 0.5 mm et 1 mm.[56]

Pour la concentration optimale d'argent dans le ZnS, il n'y a pas de consensus dans la littérature. Des concentrations atomiques de 0.01% [62], ainsi que de l'ordre de 0.12% et 0.2% [54] ont été citées. Des concentrations atomiques de 0.01% [63], ainsi qu'entre 0.005% et 0.03% [64] ont été citées dans des études de radioluminescence (RL), mais aucune scintillation n'est observée. Des concentrations atomiques de 0.01% [63] à 1% [65], ainsi qu'une concentration massique de 10% [66] (soit une concentration atomique de 9.2%) ont également été citées dans des études de photoluminescence (PL). Il a aussi été remarqué que l'intensité de PL décroît lorsque la concentration massique d'argent augmente de 1% à 10% [66] (soit une concentration atomique de 0.92% à 9.2%).

Un autre facteur qui complique la détermination d'une concentration d'argent optimale est la présence de co-activateur en chlore, qui n'est pas fréquemment discutée dans la littérature. L'introduction du chlore permet la compensation des charges avec les atomes d'argent, ce qui facilite l'intégration des centres d'activation dans la structure cristalline en substitution [54, 62]. Mais la concentration optimale des co-activateurs est rarement référencée dans la littérature. Des techniques pour spécifiquement incorporer du chlore dans une couche mince de ZnS(Ag), telles que la diffusion ou l'implantation ionique, ont été proposées dans des études, mais les dégâts causés par ces processus empêchent une amélioration significative de l'efficacité de scintillation [63].

Ainsi, nous décidons d'utiliser des cibles de ZnS(Ag) commerciales avec une concentration massique de 0.05% d'argent [67] (soit une concentration atomique de 0.045%) pour la fabrication des prototypes de scintillateur en couche mince. La concentration optimale d'argent dans ZnS fera l'objet d'une étude présentée dans la section 5.4.

## Réseau de fibres optiques

Les fibres optiques WLS (WaveLength Shifting) seront utilisées pour collecter la lumière de scintillation et la transférer au photomultiplicateur. La lumière de scintillation sera convertie en une longueur d'onde différente de celle de la scintillation. Ceci facilite l'acheminement longitudinal des photons, qui arrivent verticalement à la fibre vers le photomultiplicateur. Les spectres d'émission et d'absorption des fibres WLS (cf. Figure 2.10) sont suffisamment décalés, ce qui assure une faible probabilité de reconversion des photons par les fibres.

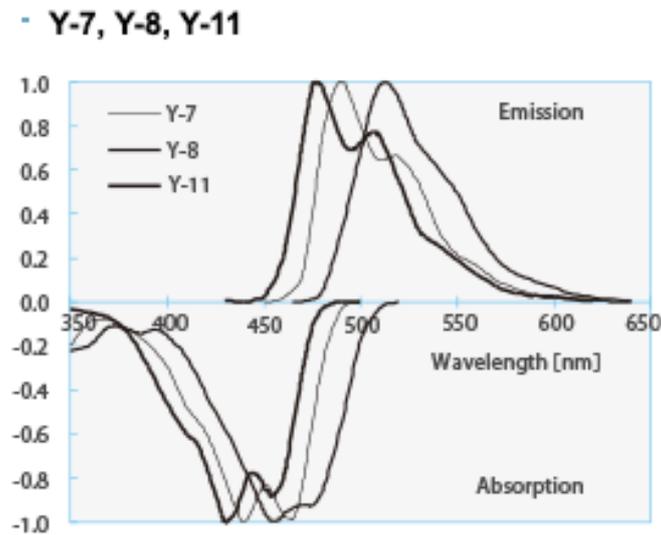


FIGURE 2.10 – Spectres d'émission et d'absorption des fibres optiques WLS des modèles Y-7, Y-8 et Y-11 de Kuraray.[68]

Un photomultiplicateur multi-anodique à 64 voies, de modèle H7546A et fabriqué par Hamamatsu[69], sera connecté à une des extrémités polies des fibres optiques pour détecter la lumière transmise. Son efficacité quantique est environ 18% à 500 nm (cf. Figure 2.11), qui est la longueur d'onde moyenne de la lumière transmise par les fibres WLS. Le signal de la dernière dynode du photomultiplicateur sera également mesuré. Ce signal, qui est commun à toutes les voies, peut fonctionner comme un signal de déclenchement lorsque le photomultiplicateur est exposé à une quantité de lumière suffisamment importante.

Un prototype du réseau de fibres optiques a été réalisé en 2014[56], comme montré sur la figure 2.12. Les fibres optiques de diamètre de 1 mm ont été choisies, car elles permettent une résolution comparable aux fibres de diamètre de 0.5 mm, et sont plus facile à manipuler pour la fabrication du prototype. Le réseau de fibres est protégé dans une boîte étanche à

la lumière. Un cadre métallique se situe au centre de la boîte pour accueillir la structure de conversion de neutrons et de scintillation. Un photomultiplicateur peut être connecté à chaque côté du réseau de fibres, afin d'augmenter la quantité de lumière détectée. Mais pour les tests réalisés sur la structure pendant cette thèse, un seul photomultiplicateur est utilisé.

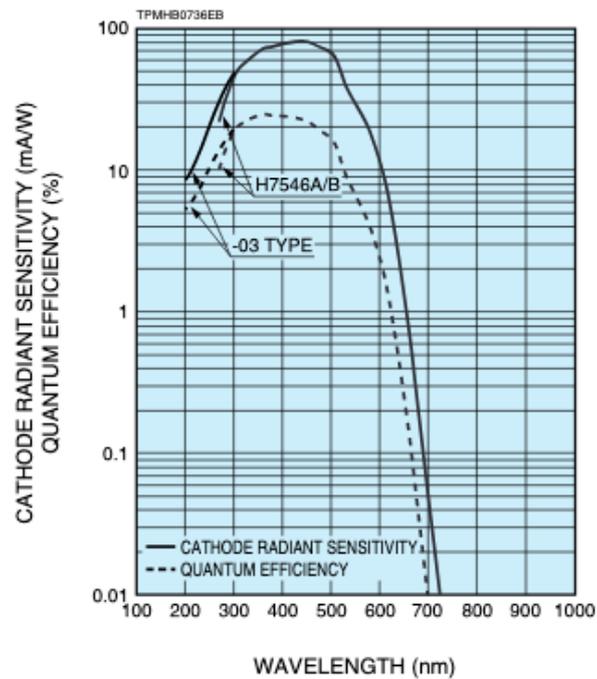


FIGURE 2.11 – Réponse spectrale d'un photomultiplicateur multi-anodique de modèle H7546A d'Hamamatsu.[69]



FIGURE 2.12 – Prototype du réseau de fibres optiques.

## Acquisition et analyse des signaux

L'acquisition des signaux du photomultiplicateur sera réalisée par la puce MAROC3[70], développée par le laboratoire Omega de l'IN2P3. Cette puce est capable d'ajuster le gain de chaque voie individuellement pour compenser les disparités entre les différentes voies. Chaque voie conserve l'information de la charge déposée et peut générer un signal de déclenchement logique, ce qui essentiellement permet deux modes de fonctionnement selon la fréquence des signaux.

Pour les photons de scintillation émis rapidement ( $>10^7$  Hz), la puce MAROC3 est capable d'intégrer la charge déposée. Pour les photons émis plus lentement, il est possible de compter le nombre des photoélectrons détectés par voie grâce à un circuit logique programmable (FPGA). Sachant que la fréquence de détection attendue de GRANIT est de l'ordre de la dizaine de Hertz, le deuxième mode de fonctionnement est bien adapté.

Les données sont ensuite récupérées par USB vers l'interface d'acquisition du logiciel AcqirisMAQS[71]. Il a été démontré par des simulations qu'un ajustement gaussien et un ajustement lorentzien pour la reconstruction du centre de masse permettent une résolution de qualité similaire, d'environ  $100 \mu\text{m}$ [56], ce qui satisfait au critère imposé. Les tests réalisés pendant la thèse de D. Roulier[56] montrent qu'une résolution de  $0.885 \text{ mm}$  peut être obtenue avec le prototype construit.

## 2.3 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons présenté les généralités des détecteurs de neutrons, ce qui nous permet d'identifier les caractéristiques nécessaires du détecteur pour satisfaire les critères imposés par la configuration du spectromètre GRANIT et les attentes sur la caractérisation des états quantiques des UCN.

On cherche à mesurer la hauteur de chute libre des UCN sortant du spectromètre, qui est installé dans une chambre à vide. Le détecteur doit avoir une surface de détection de  $20 \text{ cm}$  (horizontal)  $\times$   $5 \text{ cm}$  (vertical), afin de couvrir toute la gamme des vitesses des UCN souhaitée. En revanche, la résolution et le taux de comptage sont moins exigeants, soit  $250 \mu\text{m}$  et de l'ordre de quelques dixièmes de Hertz respectivement. Par conséquent, un détecteur à scintillation a été choisi pour sa stabilité dans le vide et sa facilité de fabrication d'une grande surface au sein du laboratoire LPSC. La sensibilité du détecteur à la position verticale sera assurée par un réseau de fibres optiques et un photomultiplicateur.

Nous avons décidé pour le détecteur de séparer la couche de conversion de neutrons et le scintillateur, afin d'assurer un très faible potentiel de Fermi à la fenêtre d'entrée du détecteur.

$^{10}\text{B}$  est choisi pour cette raison, en plus de sa disponibilité en état solide et de sa grande section efficace d'absorption des neutrons. De plus, une couche de protection en titane et une couche d'adhésion en nickel sont montrées capables d'améliorer la performance de la couche de conversion en  $^{10}\text{B}$ . Pour la couche de scintillateur, le  $\text{ZnS}(\text{Ag})$  est choisi pour son efficacité de scintillation élevée et sa facilité de maintenance par rapport aux scintillateurs hygroscopiques tels que  $\text{NaI}(\text{Tl})$ .

Nous avons également déterminé que les épaisseurs optimales des couches de  $^{10}\text{B}$  et de  $\text{ZnS}(\text{Ag})$  sont environ 200 nm et 5  $\mu\text{m}$  respectivement. L'élaboration des couches minces sera effectuée par le dépôt physique par pulvérisation assisté par plasma, qui est une méthode de dépôt de couche mince couramment pratiquée et disponible au laboratoire LPSC. Nous discuterons cette technologie en détail dans le chapitre suivant.

## Chapitre 3

# Techniques de dépôt et de caractérisation de couches minces par pulvérisation assistée par plasma micro-onde

Ce troisième chapitre porte sur les techniques expérimentales utilisées pour la réalisation de couches minces par dépôt physique par phase vapeur (PVD), ainsi que sur la caractérisation des couches minces élaborées.

Nous rappellerons d'abord les principes de base de la méthode PVD, de la croissance des couches minces et de la pulvérisation d'une surface soumise à un potentiel négatif qui joue en même temps le rôle d'électrode pour la production du plasma.

Le dispositif expérimental utilisé pour l'élaboration de nos échantillons, qui repose sur la pulvérisation d'une surface immergée dans un plasma, sera ensuite décrit en détail. Le protocole opératoire général sera également présenté par la suite.

Enfin, dans la dernière section de ce chapitre, nous décrirons les méthodes de caractérisation telles que la microscopie électronique à balayage (MEB) et l'analyse dispersive en énergie (EDS), utilisées pour l'investigation de la qualité des échantillons élaborés.

### 3.1 Dépôt physique de couche mince par phase vapeur (PVD) et mécanismes de croissance d'une couche mince

Le dépôt physique en phase vapeur (PVD) est une technique couramment utilisée pour l'élaboration de revêtements en couche mince. Elle consiste à transformer une matière solide (appelée cible) en phase vapeur sous forme d'atomes ou de molécules, puis les condenser sur une autre surface (appelée substrat) pour former une couche mince. La phase vapeur est obtenue par un apport d'énergie à la surface de la cible, nécessaire pour rompre les liaisons et libérer ainsi les atomes de la matière solide. Cet apport est amené par deux principales méthodes : la pulvérisation et l'évaporation.

En ce qui concerne la pulvérisation, il s'agit de bombarder la surface avec des particules énergétiques provenant d'un plasma ou d'un faisceau de particules. Par cette méthode, les atomes sont éjectés avec une énergie moyenne de l'ordre de l'énergie de liaison, soit 5 - 10 eV selon la nature du matériau. Pour la technique d'évaporation, l'apport en énergie est assuré par l'échauffement de la cible à l'aide d'un filament chauffant, d'un laser, ou encore d'un faisceau d'électrons dirigé vers la surface. Bien que plus efficace que la pulvérisation en matière de production de vapeurs, les atomes obtenus par cette technique ont une très faible énergie, inférieure à 1 eV. Il est largement connu que l'énergie des particules au niveau de la surface du film en croissance est un paramètre important du procédé. Par conséquent, la différence importante d'énergie des atomes de la phase vapeur est un facteur déterminant lors du choix de la technique de dépôt. Dans le cadre de cette thèse, nous avons fait le choix de la technique de pulvérisation par des ions extraits d'un plasma d'argon.

Les particules en phase vapeur libérées par la cible sont transportées en partie vers le substrat et, pendant leur trajet, elles peuvent subir plusieurs collisions avec les espèces neutres du plasma en fonction de la pression dans la chambre de dépôt et de la distance cible-substrat. Comme à chaque collision l'atome peut perdre jusqu'à la moitié de son énergie, il est préférable que le nombre de collisions soit réduit autant que possible, afin de préserver leur énergie initiale et de contrôler ainsi ce paramètre du procédé. Dans notre cas, la pression de travail est de l'ordre du mTorr (0.13 Pa), ce qui conduit à un libre parcours moyen de collisions de l'ordre de 8 cm. En considérant en plus l'uniformité des films déposés, la distance cible-substrat est réglée en conséquence à environ 10 cm.

En variant les paramètres du procédé, il est possible de contrôler la composition et la microstructure des couches minces élaborées pour obtenir les propriétés souhaitées. La synthèse d'une couche mince est un processus hors-équilibre dépendant de la mobilité des atomes absorbés par la surface. Celle-ci est influencée par l'état de surface et la température du substrat.

Lorsqu'un atome atteint la surface de dépôt, selon son énergie cinétique incidente, la température du substrat et l'interaction atome-surface, il peut être ré-évaporé après une

certaine durée, voire immédiatement réfléchi sur la surface si son énergie cinétique est élevée ou si sa masse atomique est faible[72]. Dans le cas contraire, il peut être absorbé par le substrat et diffuser sur la surface. Ces atomes absorbés sont des adatoms, et ils peuvent retourner en phase vapeur par désorption, ou former des agrégats. Les groupements d'atomes qui atteignent la taille critique deviennent stables et forment ainsi des noyaux. C'est l'étape de nucléation. Les noyaux continuent à croître en taille et en nombre, ce qui conduit à la formation d'îlots. Ces derniers se joignent et fusionnent pour former des grains de taille plus importante. Il s'agit de l'étape de coalescence des îlots. Les canaux et les trous entre les grains sont ensuite comblés en suivant les mêmes étapes de nucléation, de formation d'îlots et de coalescence pour former une couche continue. Les étapes de croissance sont illustrées sur la figure 3.1.

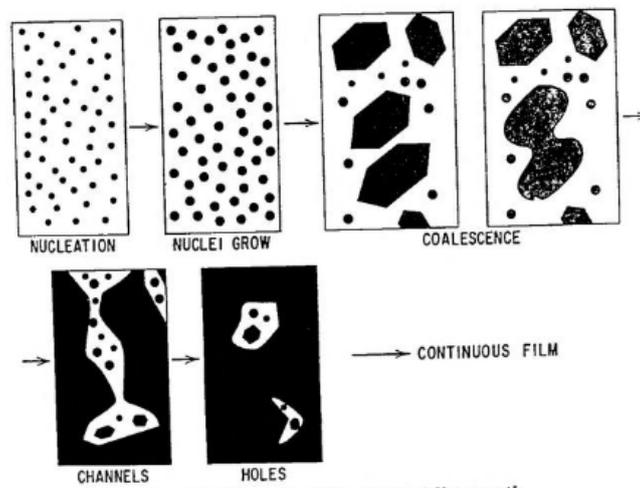


FIGURE 3.1 – Illustration de la formation d'une couche mince[72].

La microstructure des films dépend de la vitesse de dépôt et de la température du substrat. Une vitesse de dépôt élevée donne lieu à un nombre plus important de noyaux pendant le processus de nucléation, ce qui résulte en une couche mince avec des grains fins. En revanche, une température de substrat élevée et une énergie cinétique importante des atomes incidents ont l'effet d'augmenter la mobilité des adatoms, ce qui conduit à une croissance de la taille des îlots, et donc à la formation des gros grains.

Il est donc important de pouvoir contrôler l'énergie et le flux des particules incidentes de manière indépendante. La pulvérisation par le bombardement d'une cible avec un faisceau d'ions permet d'ajuster ces deux paramètres indépendamment, mais cette technique n'est pas adaptée à une production sur de grandes surfaces. En revanche, la pulvérisation par des ions extraits d'un plasma est plus appropriée à condition de pouvoir découpler les paramètres plasma-procédé et d'obtenir un contrôle indépendant de l'énergie et du flux des particules incidentes.

Dans les deux sections suivantes, nous décrivons le principe de pulvérisation cathodique par des ions d'un plasma de type diode et d'un plasma micro-onde.

## 3.2 Pulvérisation cathodique

Le phénomène de pulvérisation cathodique a été découvert et étudié la première fois par W.R. Grove en 1852[73] pendant ses études sur la décharge luminescente de type diode.

Le dispositif de décharge luminescente consiste en un tube rempli d'un gaz d'argon à basse pression, typiquement quelques centaines de mTorr. Une différence de potentiel en courant continu (DC - Direct Current) de centaines de volts est appliquée sur deux électrodes écartées d'environ 15 cm dans le tube. Lorsqu'un électron libre est présent dans le milieu (produit par rayon cosmique par exemple), il sera accéléré vers l'anode par le champ électrique et acquiert de l'énergie cinétique. Le libre parcours moyen d'un électron dans un gaz, qui dépend surtout du volume et de la pression dans le tube, est typiquement de l'ordre de 0.1 à 1 cm[73].

En entrant en collision avec un atome du gaz, l'électron libre transfère une partie de son énergie cinétique à un électron du cortège électronique de l'atome. Dans le cas où l'énergie transférée est inférieure à l'énergie d'ionisation de l'atome, l'électron lié à l'atome rentre dans un état excité, puis se désexcite en émettant un ou plusieurs photons, d'où la luminescence dans le tube. Dans le cas où l'énergie transférée est suffisamment importante, l'électron sera expulsé du cortège électronique et deviendra un électron libre. Par conséquent, l'atome du gaz est ionisé. L'électron éjecté de l'atome est ensuite accéléré par le champ électrique, et est susceptible d'entrer en collision avec d'autres atomes. Le plasma est obtenu par la génération en cascade d'électrons libres et d'ions. Contrairement aux électrons libres, les ions sont accélérés vers la cathode, et leur bombardement provoque l'émission d'électrons secondaires et la pulvérisation de sa surface.

Malgré la configuration simple d'un plasma généré par les diodes DC, cette technologie présente certaines limitations en matière de dépôt. La densité du plasma produit par cette méthode étant relativement basse (de l'ordre de  $10^9 \text{ cm}^{-3}$ ), le flux des atomes pulvérisés reste faible. Le domaine de pression dans le tube est aussi limité à environ 100 mTorr[74]. Une pression trop faible requiert une différence de potentiel trop importante pour maintenir le plasma, ce qui cause des effets non désirés tels que l'apparition d'arcs sur la cathode. Une pression trop élevée favorise les collisions ion-neutre dans la chute cathodique, ce qui a pour effet la diminution de l'énergie des ions et, par conséquent, l'efficacité de pulvérisation.

De plus, cette technique n'est pas adaptée à la pulvérisation des matériaux diélectriques, car les ions positifs s'accumulent rapidement sur la surface de la cathode, ce qui empêche davantage le bombardement ionique de la cible. Différentes techniques permettent de limiter

le problème d'accumulation de charge, et la plus courante consiste à polariser la cathode en radiofréquence (RF - Radio Frequency) . Toutefois, quel que soit le type de polarisation, DC ou RF, l'inconvénient majeur est celui de ne pas pouvoir découpler le courant de la décharge du potentiel appliqué à la cathode. Autrement dit, le flux et l'énergie d'ions ne peuvent pas être contrôlés de manière indépendante.

### 3.3 Pulvérisation cathodique assistée par plasma micro-onde multi-dipolaire

La technique de pulvérisation assistée par plasma micro-onde multi-dipolaire est développée au sein du groupe CRPMN (Centre de Recherche Plasmas-Matériaux-Nanostructures) du LPSC[75]. Cette technologie consiste à générer un plasma dans une chambre de dépôt en utilisant plusieurs sources élémentaires dipolaires alimentées par micro-ondes (2.45 GHz). Une source de plasma dipolaire est constituée de deux parties principales (cf. Figure 3.2) :

- Un applicateur micro-onde constitué d'une ligne coaxiale de propagation du champ électromagnétique. Celui-ci est muni d'un adaptateur d'impédance permettant l'optimisation de la transmission de puissance au plasma.
- Un aimant permanent (dipôle) qui permet un transfert efficace d'énergie du champ électrique haute fréquence aux électrons (chauffage à la RCE - Résonance Cyclotron Electron) et un confinement de ces électrons.

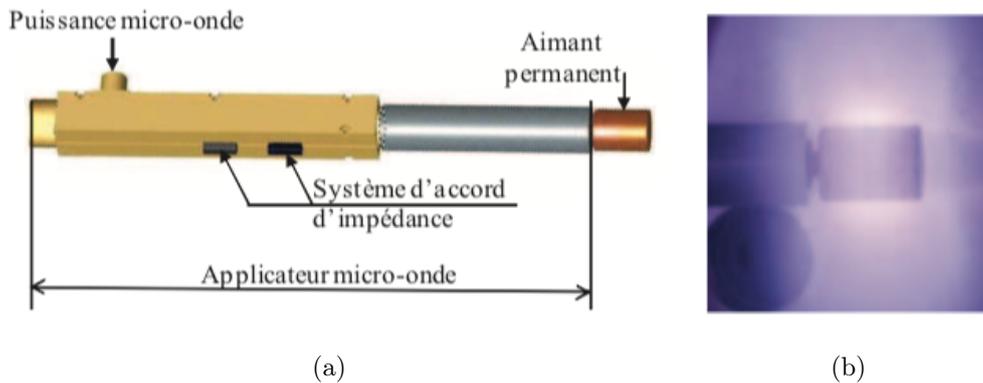


FIGURE 3.2 – Schéma d'une source plasma élémentaire (a), et image d'un plasma obtenu avec cette source (b).

Le dispositif résultant permet de produire des plasmas à très basse pression (1 - 10 mTorr) et de grande densité ( $10^{11} \text{ cm}^{-3}$ ).

Comme illustrée sur la figure 3.3, la chambre de procédé comporte 24 sources élémentaires disposées en périphérie de sa paroi latérale selon deux couronnes ( $2 \times 12$  sources). Le porte-cibles est positionné sur la flasque supérieure de la chambre et fait face au porte-substrat positionné à une distance réglable. Le plasma est produit en alimentant chaque source de manière équivalente avec une puissance micro-onde. Celle-ci constitue le paramètre qui détermine le flux d'espèces sur la cible et le substrat et, plus particulièrement, le flux d'ions. La polarisation des cibles et du substrat fixe l'énergie avec laquelle les ions extraits du plasma bombardent ces surfaces. L'énergie des ions est donc indépendante de la production du plasma.

Le découplage de ces deux paramètres de procédé, flux et énergie des particules, représente l'un des avantages de cette technologie. Il permet en effet l'étude et la mise au point paramétrique d'un procédé et, par conséquent, l'optimisation, étape par étape, des propriétés microstructurales des couches minces élaborées. Ainsi, cette technologie a été choisie pour réaliser les dépôts de couches minces pour notre détecteur. Le dispositif expérimental conçu de cette technologie est présenté dans la section 3.4

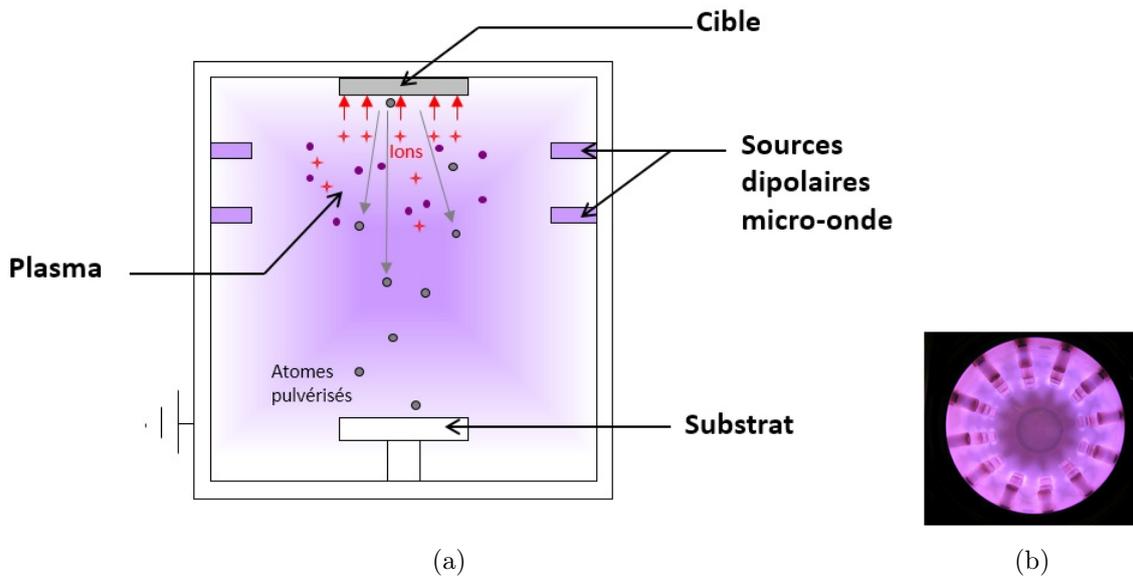


FIGURE 3.3 – (a) : Illustration de la chambre de pulvérisation par plasma micro-onde multi-dipolaire. (b) : La chambre de dépôt avec le plasma allumé vue par le dessus, avec les sources plasma rangées en cercle.

### 3.4 Dispositif expérimental

Le réacteur utilisé pour la réalisation des couches minces en mono ou multicouche est présenté sur la figure 3.4. Celui-ci est composé d'une chambre de dépôt (24 sources plasma) et d'un sas d'introduction (échantillon de diamètre de 100 mm), de deux systèmes de pompage (pompage primaire + turbo-moléculaire) et de plusieurs débitmètres pour l'injection de gaz.

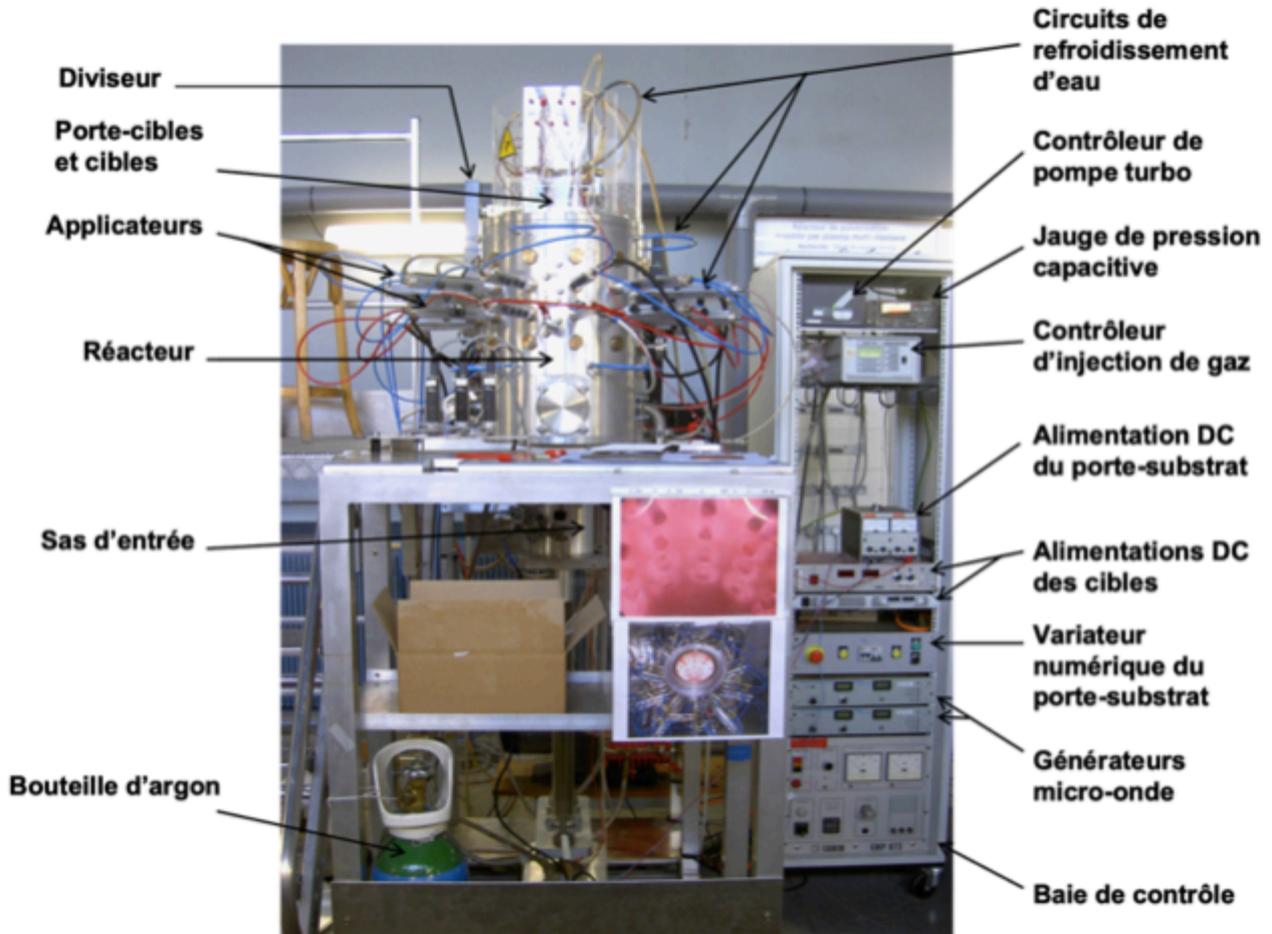


FIGURE 3.4 – Réacteur de dépôt par pulvérisation assistée par plasma micro-onde multi-dipolaire.

Le plasma est généré dans la chambre de procédé par les 24 sources élémentaires, alimentées par deux générateurs micro-onde à 2.45 GHz et jusqu'à 2 kW chacun. Deux diviseurs de puissance permettent la répartition de la puissance micro-onde sur chaque source.

Le vide limite dans la chambre est de l'ordre de  $10^{-6}$  mbar. La pression du procédé, entre 1 et 3 mTorr, est obtenue en réglant le débit du gaz (débitmètre massique). Le sas d'introduction séparé de la chambre par une vanne tiroir permet la mise en place des échantillons, tout en maintenant le vide dans la chambre de dépôt et l'isolation des échantillons pendant l'opération de nettoyage des cibles. La position du substrat dans la chambre de procédé est contrôlable (motorisation du porte-substrat) et permet donc de régler la distance cible-substrat de façon précise et reproductible.

Le porte-cibles utilisé permet de loger 7 cibles, comme montré sur la figure 3.5. Des cibles de natures différentes peuvent y être installées soit en position centrale, soit par paire à  $180^\circ$ , soit par triplet à  $120^\circ$ . Ce type de configuration permet de réaliser des dépôts séquentiels en polarisant de manière successive chaque cible ou l'ensemble des cibles (DC pour les cibles métalliques, RF pour les cibles diélectriques). Dans le cas de co-pulvérisation, on peut également maîtriser la stoechiométrie du dépôt en appliquant simultanément des tensions de polarisation adaptées sur les différentes cibles.

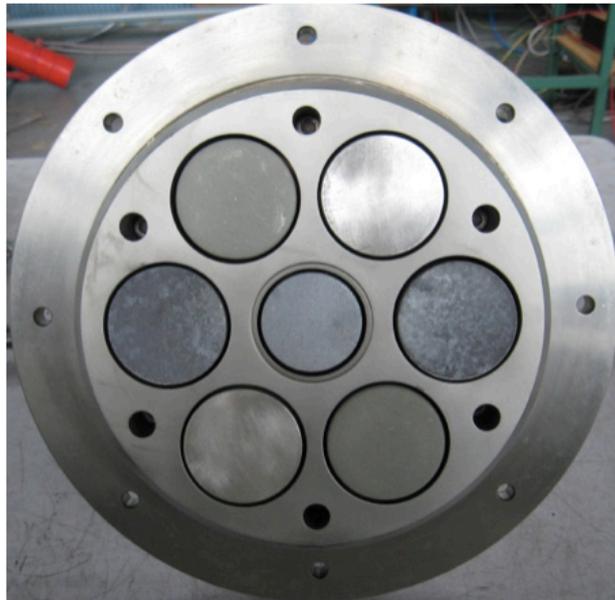


FIGURE 3.5 – Cibles de natures différentes installées au porte-cibles.

Le porte-substrat se situe initialement dans le sas d'entrée. Après le positionnement du substrat et l'obtention du vide secondaire, la valve de séparation entre le sas et le réacteur est ouverte, et le porte-substrat est remonté à l'aide d'une vis sans fin, contrôlée par un variateur numérique. La distance cible-substrat ayant un impact sur l'énergie des atomes incidents et l'uniformité de la couche élaborée, ce paramètre fait l'objet d'une étude présentée dans la section 4.1.2.

## 3.5 Protocole du procédé de dépôt

### 1. Préparation et mise en place des échantillons

Les substrats (silicium ou saphir) sont soumis à un nettoyage dans l'acétone, puis dans l'isopropanol dans un bac à ultrason, pendant 10 minutes pour chaque étape. Ils sont ensuite séchés à l'azote avant leur collage à la laque d'argent sur un support en cuivre de diamètre de 100 mm. Celui-ci est collé, toujours à la laque d'argent, sur le porte-substrat. La laque d'argent assure une bonne conductivité électrique et thermique.

Une fois le vide limite obtenu dans le sas (environ 2 heures de pompage), le porte-substrat est positionné dans la chambre de procédé à la position de nettoyage (distance cible-substrat de nettoyage  $h = 13.5$  cm). Un plasma d'argon (1 mTorr,  $2 \times 1$  kW) est produit afin de nettoyer les échantillons en appliquant une polarisation RF sur le porte-substrat (50 W, pour une durée de 30 minutes).

### 2. Réalisation du dépôt

Après l'opération de nettoyage, le porte-substrat est à nouveau remonté dans la chambre de procédé. Les dépôts sont réalisés avec les paramètres ajustés selon les critères spécifiques des différents procédés (distance cible-substrat, pression d'argon, puissance micro-onde). Pendant le dépôt, le porte-substrat est maintenu au potentiel flottant (non connecté).

### 3. Récupération et préparation des échantillons

A la fin du procédé de dépôt, le porte-substrat est positionné dans le sas afin de l'isoler de la chambre de procédé et de pouvoir récupérer les échantillons après la remise à l'air du sas. Les échantillons en silicium sont découpés pour la caractérisation par MEB et les échantillons en saphir sont réservés pour les tests de scintillation.

## 3.6 Techniques de caractérisation de couches minces

Deux techniques de caractérisation ont été utilisées pour évaluer la qualité des couches minces élaborées : la microscopie électronique à balayage (MEB), qui donne principalement des informations sur la morphologie et la composition des échantillons de manière qualitative, et l'analyse dispersive en énergie (EDS), qui permet de caractériser la composition des échantillons de manière quantitative. Nous rappelons ces deux techniques ci-après.

### 3.6.1 Microscopie électronique à balayage (MEB)

La microscopie électronique à balayage (MEB) est une technique de caractérisation basée sur l'interaction électron-matière, capable de générer des images d'une surface en haute résolution. La surface de l'échantillon est examinée à l'aide d'un faisceau d'électrons primaires. Les électrons secondaires, rétrodiffusés et Auger, ainsi que les rayons X, sont émis par l'échantillon suite aux interactions électron-matière. Ceux-ci sont détectés et corrélés à leurs positions initiales et nature, ce qui permet de fournir des informations précises sur la morphologie et la composition de l'échantillon.

Lorsqu'un faisceau d'électrons pénètre dans la matière, il est dispersé par une série d'interactions élastiques et inélastiques avec les atomes dans un volume qui a la forme d'une poire (cf. Figure 3.6). Ce volume a un diamètre variant de 0.1 à quelques micromètres selon le numéro atomique des atomes et l'énergie incidente du faisceau. Parmi les rayonnements émis, la majorité des signaux qui constituent l'image de base de la MEB proviennent des électrons secondaires et rétrodiffusés.

Les électrons secondaires sont des électrons éjectés des cortèges externes des atomes, suite aux diffusions inélastiques des électrons du faisceau incident. Ils sont généralement de faible énergie, et possèdent donc un libre parcours moyen très faible et une profondeur d'échappement de seulement quelques nanomètres. Par conséquent, les électrons secondaires détectés proviennent des zones extrêmement proches de la surface et apportent essentiellement des informations morphologiques. Le contraste de l'image permet une visualisation directe de la rugosité de surface. Les images obtenues par les électrons secondaires ont généralement une très bonne définition, avec une résolution latérale allant jusqu'à environ 10 nm. En installant le détecteur d'électrons secondaires (SE) dans une lentille d'objectif (InLens), on parvient à éliminer la plupart des électrons rétrodiffusés et produire des images plus nettes de la surface.

Les électrons rétrodiffusés sont des électrons du faisceau incident qui ressortent de la matière, après avoir subi des interactions élastiques avec les atomes de l'échantillon et ayant donc perdu une partie de leur énergie. L'énergie du faisceau incident étant de l'ordre de la dizaine de keV, les électrons rétrodiffusés maintiennent un libre parcours moyen important et une profondeur d'échappement de l'ordre de 100 nm. Le taux de rétrodiffusion augmentant avec le numéro atomique de la matière sondée, les signaux détectés par un détecteur ESB (Energy Selective Backscattered) permettent de construire des images avec des contrastes liés à la composition dans le volume d'un échantillon hétérogène. Toutefois, ce mode de fonctionnement a une résolution latérale inférieure au mode SE et fournit des images de la surface moins bien définies.

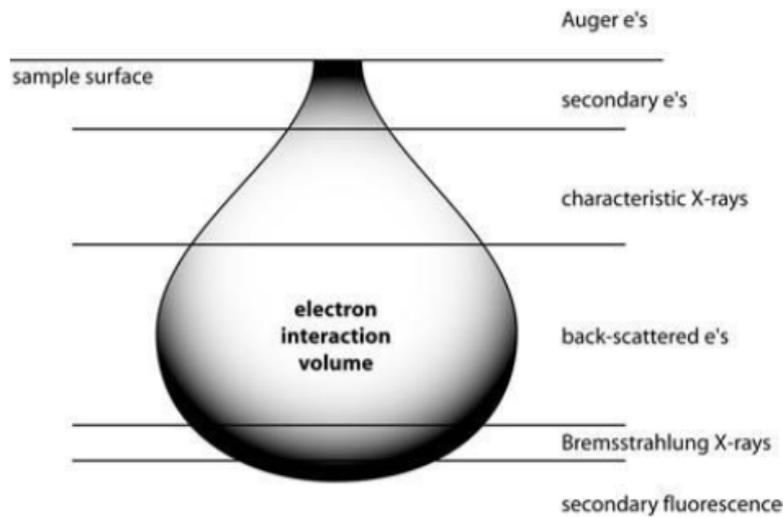


FIGURE 3.6 – Illustration du volume de diffusion des différents rayonnements issus de l'interaction électron-matière.

Avec cette technique de caractérisation, il est possible d'avoir accès à la morphologie des couches minces élaborées pour le travail de cette thèse. L'inspection de la section d'un échantillon permet également de mesurer l'épaisseur de la couche mince avec une précision de l'ordre de quelques nanomètres. Cependant, pour une analyse quantitative de la composition chimique d'un échantillon, il faut avoir recours à la microanalyse X.

### 3.6.2 Analyse dispersive en énergie (EDS)

L'analyse dispersive en énergie (EDS - Energy Dispersive X-ray Spectrometry) est une méthode de microanalyse X, qui permet d'identifier et de quantifier les éléments en présence dans un échantillon, par détection des raies caractéristiques dans un spectre de rayons X. L'analyse EDS peut se pratiquer sur un MEB muni d'un détecteur adapté.

Le principe de l'analyse EDS se base sur l'interaction électron-matière comme la MEB. Lorsqu'un faisceau d'électrons pénètre dans la matière, il existe une probabilité que des électrons situés sur une couche électronique interne soient éjectés, laissant une lacune qui sera comblée par un électron provenant d'une couche externe. L'énergie libérée pendant cette transition peut prendre la forme d'une émission de photon X, ou être transmise à un autre électron d'une couche interne et provoquer son éjection du cortège (électron Auger). Dans le cas de l'émission d'un photon X, l'énergie est caractéristique de la transition et de l'élément concerné. Les raies correspondantes permettent l'identification des éléments présents, et l'intensité du rayonnement émis est proportionnel au nombre d'atomes d'un élément donné qui compose l'échantillon.

Cependant, certaines corrections s'imposent pour obtenir une estimation fiable de la concentration des éléments. En effet, l'analyse EDS quantitative repose sur l'intensité des raies mesurées, qui correspond aux rayonnements émis par les atomes après avoir subi des effets tels que l'absorption de photons X dans la matrice et des effets inter-éléments. La méthode de correction la plus répandue est celle de ZAF, qui représente les effets de matrice par trois paramètres Z, A et F, correspondant aux effets liés aux sections efficaces d'ionisation des différents éléments présents (Z), à l'absorption des rayons X dans la matrice (A) et à la fluorescence inter-éléments (F). La présence d'un fond continu de Bremsstrahlung issu du freinage des électrons par le champ électrique des noyaux atomiques dans le spectre, nécessite également un filtrage par transformée de Fourier. Dans le cas où plusieurs raies se superposent, une déconvolution est nécessaire pour retrouver les poids de chaque raie superposée. Il est aussi recommandé de calculer les concentrations en comparant les intensités mesurées de l'échantillon avec celles d'un standard dont on connaît la composition avec précision, soit pré-enregistrée dans une bibliothèque, soit acquise au même moment que l'investigation de l'échantillon.

L'analyse EDS peut être effectuée sur un point spécifique pour déterminer une concentration ponctuelle, ou sur une surface de dimension de quelques millimètres de côté pour obtenir une concentration globale. Il est généralement préférable de polir l'échantillon avant l'analyse, afin de minimiser les effets de relief qui pourraient masquer une partie des rayons X. L'énergie du faisceau d'électrons est 15 keV pour l'analyse des couches minces élaborées dans le cadre de cette thèse, ce qui est suffisamment pénétrant pour un échantillon d'une épaisseur d'environ 5  $\mu\text{m}$  sans atteindre le substrat.

### 3.7 Conclusion

Après quelques généralités sur les techniques de dépôt par PVD, nous avons présenté dans ce chapitre les caractéristiques spécifiques du dispositif de dépôt par pulvérisation assistée par plasma micro-onde multi-dipolaire, disponible au LPSC, et plus précisément, au sein du groupe CRPMN. Nous avons également décrit les techniques de caractérisation utilisées pour l'élaboration des couches minces.

Le dépôt par pulvérisation pratiqué dans le cadre de ce travail consiste à bombarder une cible immergée dans un plasma micro-onde avec les ions extraits du plasma. Les atomes de la cible éjectés sont partiellement transportés vers le substrat de dépôt. Les paramètres de procédé, tels que la tension appliquée à la cible, la pression dans la chambre de dépôt, la puissance micro-onde de production du plasma, ont des impacts sur la qualité des films déposés.

L'objectif est d'élaborer des couches minces de  $^{10}\text{B}$  et  $\text{ZnS}(\text{Ag})$  à partir des cibles solides constituées de ces mêmes éléments et, compte tenu de leur caractère isolant, leur polarisation est en radiofréquence. La configuration multi-dipolaire a l'avantage de découpler la polarisation de la cible et la puissance micro-onde du plasma, ce qui permet un contrôle plus fin des paramètres du procédé de dépôt. Le porte-cibles du dispositif est capable de loger 7 cibles, ce qui permet de réaliser des couches minces de différents matériaux de manière successive (séquentiel : multicouches) ou simultanée (co-pulvérisation : composé à stoechiométrie contrôlée).

Dans le chapitre suivant, nous présenterons les couches minces élaborées avec la technique de dépôt et le protocole du procédé décrits dans ce chapitre. Nous préciserons les paramètres expérimentaux pour chaque type de dépôt et les résultats des caractérisations morphologiques.

## Chapitre 4

# Elaboration et caractérisation de couches minces de ZnS(Ag), dopage Ag *in situ* et couches de conversion en $^{10}\text{B}$

Dans ce chapitre, nous présentons les échantillons de ZnS(Ag) réalisés avec la cible pré-dopée et avec le dopage *in situ*, ainsi que les couches de conversion  $^{10}\text{B}$  que nous avons élaborés.

Nous décrivons les conditions de dépôt, ainsi que les différents détails pour s'adapter aux spécificités des cibles (ZnS,  $^{10}\text{B}$ ) et des substrats (saphir, capteurs CCD). La qualité morphologique des films est déterminée par MEB (Microscopie Electronique à Balayage), et les paramètres de dépôt sont ajustés en conséquence.

### 4.1 Dépôt de couche mince de ZnS(Ag)

Dans cette section, nous présentons les paramètres et les protocoles opératoires pour l'élaboration des couches minces de ZnS(Ag) en utilisant une cible préalablement dopée. La caractérisation de ces couches s'effectue principalement par MEB. Nous cherchons à obtenir une couche de ZnS(Ag) avec au moins  $5\ \mu\text{m}$  d'épaisseur.

### 4.1.1 Conditions de dépôt

En fixant la pression dans la chambre de procédé, la puissance micro-onde et la distance cible-substrat, plusieurs séries de dépôts ont été réalisées en variant la durée du dépôt et le potentiel de polarisation négatif sur la cible de pulvérisation. On cherche ainsi à déterminer la vitesse de dépôt optimale, sans causer de dégradation structurale significative de la couche de ZnS(Ag).

### Géométrie et caractéristiques des cibles et substrats

En raison d'une consommation intensive des cibles pour élaborer des couches minces d'une épaisseur micrométrique, deux cibles de ZnS dopé Ag ont été utilisées pendant la durée de travail de cette thèse. Ces cibles, fabriquées par Testbourne Ltd., contiennent une concentration massique de 0.05% (soit une concentration atomique de 0.045%) d'argent[67]. Elles ont une pureté de 99.99%, un diamètre de 60 mm et une épaisseur de 5 mm. Pendant les procédés de dépôt, une seule cible de ZnS(Ag) est installée au centre du porte-cibles.

Les dépôts ont été réalisés sur des substrats de silicium et de saphir( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ). Les substrats de silicium de 15 mm de côté et de 0.5 mm d'épaisseur sont découpés dans des plaquettes de Si(100) monocristallin. Des plaquettes de Si(100) de 50 mm de diamètre ont également été utilisées pour étudier l'uniformité de l'épaisseur des couches minces sur grande surface. Les substrats de saphir, fabriqués par CrysTec GmbH, de 10 mm de côté et de 0.5 mm d'épaisseur ont une orientation (0001)[76]. La distance cible-substrat  $h$  est fixée à 10.5 cm pendant l'étude préliminaire, puis à 12 cm et 13.5 cm afin d'étudier l'influence de ce paramètre.

Les échantillons élaborés sur les substrats de saphir sont destinés aux études de scintillation. Les mesures d'épaisseur et la caractérisation morphologique sont effectuées sur les échantillons en silicium.

### Paramètres plasma

La pression du gaz (Ar) est fixée à 1 mTorr (0.133 Pa) dans la chambre de procédé. La puissance micro-onde est réglée à  $2 \times 1$  kilowatts. Le potentiel plasma  $V_P$  est estimé à 25 V, et le potentiel flottant  $V_F$  est mesuré à 12 V.

## **Polarisation de la cible et durée de dépôt**

Un premier générateur radiofréquence, dont le seul mode de fonctionnement est de fixer la puissance de sortie, est utilisé dans l'étude préliminaire pour polariser la cible ZnS(Ag). Par conséquent, la valeur du potentiel de polarisation négatif peut fluctuer pendant la durée du dépôt. La puissance de sortie est fixée à 200 W pendant l'étude préliminaire.

Un deuxième générateur radiofréquence, qui dispose d'un mode de fonctionnement pour fixer le potentiel de polarisation au lieu de la puissance de sortie, est utilisé pour les deux séries de dépôt suivantes. Un potentiel de polarisation négatif, variant de 250 V à 600 V, est appliqué sur la cible ZnS(Ag).

La durée du dépôt a varié de 2h30 à 5h30.

## **Protocole du procédé de dépôt**

Le procédé du dépôt des couches minces de ZnS(Ag) suit le protocole standard décrit dans la section 3.5.

### **4.1.2 Réalisation et caractérisation des couches minces de ZnS(Ag)**

Dans cette section, nous nous intéressons aux impacts des différents paramètres de dépôt sur la qualité des couches minces de ZnS(Ag) élaborées.

Nous examinons d'abord la morphologie des films minces de ZnS(Ag) avec les paramètres standards. Puis, nous modifions les paramètres opératoires afin d'atteindre une vitesse de dépôt permettant, à la fois, de réaliser une couche de 5  $\mu\text{m}$  dans un temps raisonnable ( $< 8$  h), et d'obtenir une bonne adhérence ainsi qu'une qualité structurale répondant aux exigences de l'application aux détecteurs. Enfin, l'uniformité en épaisseur des couches minces sur grande surface est également examinée.

## **Morphologie des couches minces de ZnS(Ag)**

Deux dépôts de ZnS(Ag) ont été réalisés avec une distance cible-substrat  $h = 10.5$  cm pour la caractérisation morphologique des couches minces. Un potentiel de polarisation négatif  $V$  est appliqué à la cible de ZnS(Ag), avec une valeur variant entre 750 V et 780 V pour une puissance RF de 200 W. Les durées des dépôts sont de 3 heures et 4 heures respectivement.

Pour chaque dépôt, deux échantillons sont mis en place : un substrat de silicium et un substrat de saphir, comme illustré sur la figure 4.1. Sur les deux types de substrats, on peut observer des poussières présentes sur la surface des films déposés.

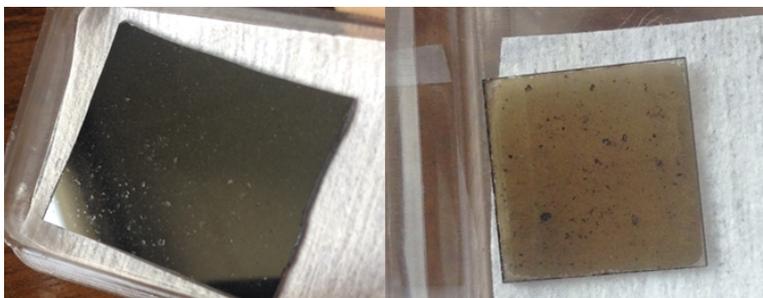


FIGURE 4.1 – Gauche : l'échantillon TS0015\_Si, ZnS(Ag) sur substrat Si(100). Droite : l'échantillon TS0017\_Saphir, ZnS(Ag) sur substrat saphir  $\text{Al}_2\text{O}_3(0001)$ .

La mesure de l'épaisseur et la caractérisation morphologique des couches de ZnS(Ag) ont été réalisées sur un MEB Zeiss Ultra Plus sur la plateforme Nanofab de l'Institut NEEL[77]. La figure 4.2 est une image de l'échantillon TS0015\_Si, capturée avec le détecteur SE2. On constate une couche dense, avec une structure colonnaire typique pour les films déposés par pulvérisation physique. La vitesse de dépôt obtenue avec ces paramètres (cf. Table 4.1) nous permet de déposer une couche d'environ  $5 \mu\text{m}$  pour une durée de 4h.

En examinant la surface de l'échantillon TS0015\_Si (cf. Figure 4.3), on remarque de petites poussières de ZnS(Ag) sur la surface, ainsi que des poussières micrométriques de ZnS(Ag) enrobées dans la couche pendant le procédé. Ces poussières micrométriques sont beaucoup plus grandes que la rugosité nanométrique des couches minces de ZnS élaborées par la pulvérisation RF rapportée dans la littérature[78, 79, 80, 66, 81, 82]. Ceci est probablement dû au fait que l'épaisseur de nos échantillons est beaucoup plus importante ( $\sim 5 \mu\text{m}$ ) que celle des couches minces destinées à l'application photovoltaïque, qui sont de l'ordre de quelques centaines de nanomètres jusqu'à  $1.76 \mu\text{m}$ [79]. Une durée de dépôt plus longue, une puissance RF plus importante et une vitesse de dépôt plus élevée dans notre cas, contribuent à une abondance de matière dans la chambre de procédé. Comme les atomes pulvérisés se déposent sur toutes les surfaces, y compris sur les parois de la chambre, des poussières peuvent se décrocher des parois et tomber sur le substrat. Etant donné que la résolution du détecteur doit être de l'ordre du millimètre, la présence des poussières de taille micrométrique n'est pas problématique.

Les images de la surface de l'échantillon TS0015\_Saphir (cf. Figure 4.4) montrent que les poussières de taille micrométrique sont également présentes sur les substrats de saphir. L'image capturée par le détecteur ESB (cf. Figure 4.4) montre l'absence de phases différentes, ce qui confirme l'homogénéité de la couche en matière d'éléments chimiques présents.

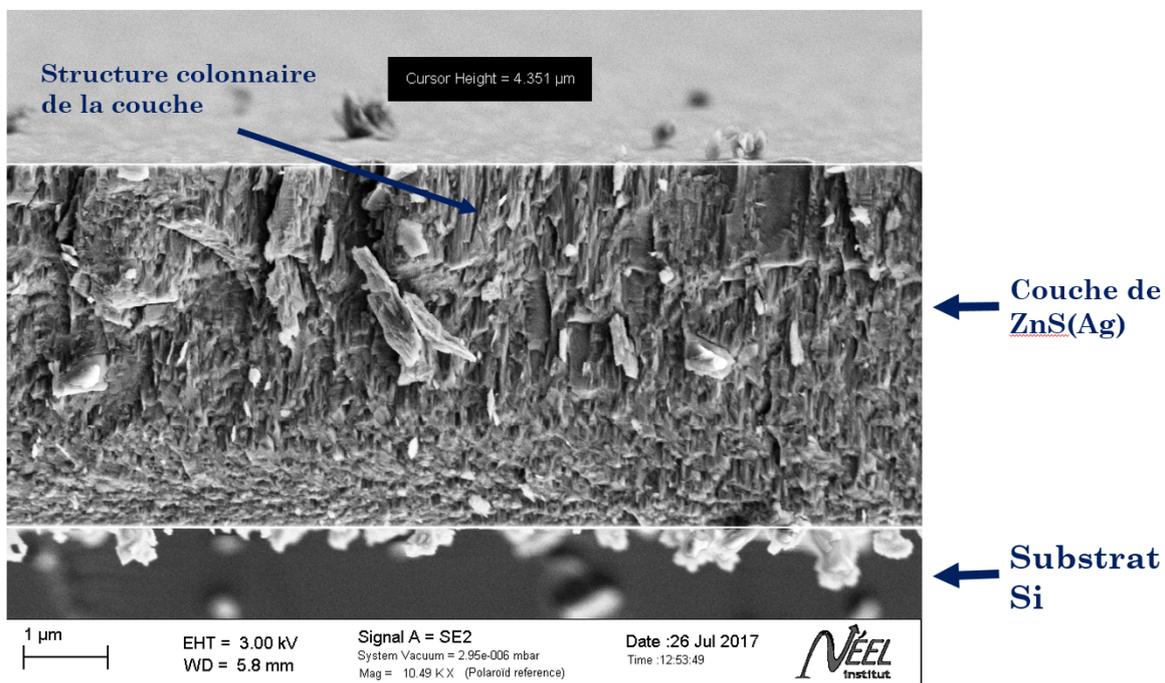


FIGURE 4.2 – Image MEB de la section de l'échantillon TS0015\_Si, détecteur SE2. La mesure de l'épaisseur  $e$  de la couche ZnS(Ag) s'effectue à l'aide des deux curseurs (ligne blanche).

TABLE 4.1 – Mesures de l'épaisseur moyenne  $e$  des dépôts de ZnS(Ag) réalisés à 1 mTorr, à une distance de 10.5 cm de la cible et pour une puissance de polarisation RF de 200 W.

Echantillon	Substrat	$V_{cible}$ (V)	Durée de dépôt	$e$ ( $\mu\text{m}$ )	Vitesse de dépôt ( $\mu\text{m}/\text{h}$ )
TS0015_Si	Si(100)	750	4h	$4.922 \pm 0.001$	$1.2305 \pm 0.0003$
TS0015_Saphir	$\text{Al}_2\text{O}_3(0001)$	750	4h		
TS0017_Si	Si(100)	780	3h	$6.101 \pm 0.001$	$2.0337 \pm 0.0003$
TS0017_Saphir	$\text{Al}_2\text{O}_3(0001)$	780	3h		

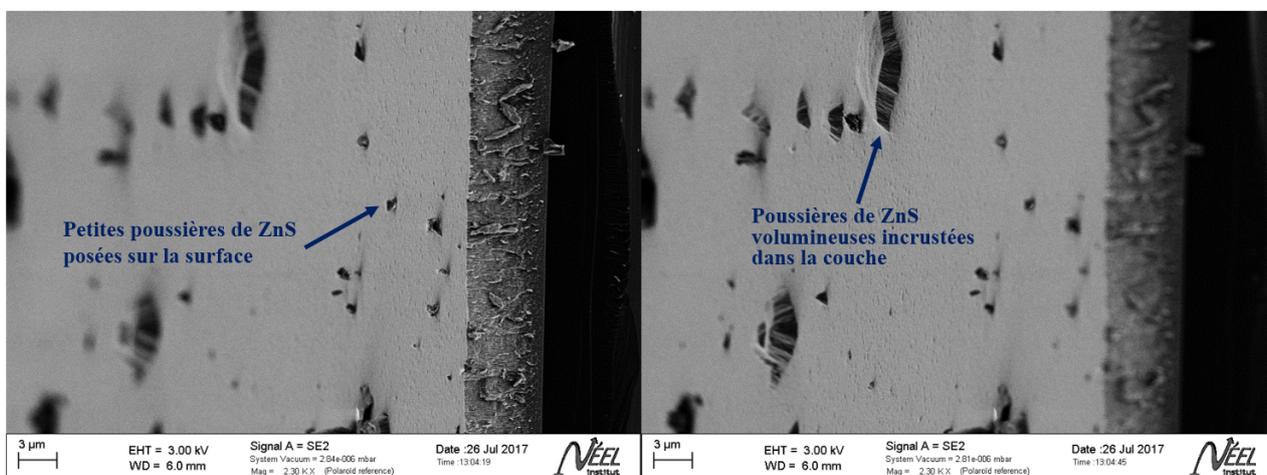


FIGURE 4.3 – Images MEB de la surface de l'échantillon TS0015\_Si, avec des zones de focalisation différentes, obtenues avec le détecteur SE2. Gauche : focalisation sur les petites poussières de ZnS(Ag) sur la surface. Droite : focalisation sur les poussières de ZnS(Ag) incrustées dans la couche.

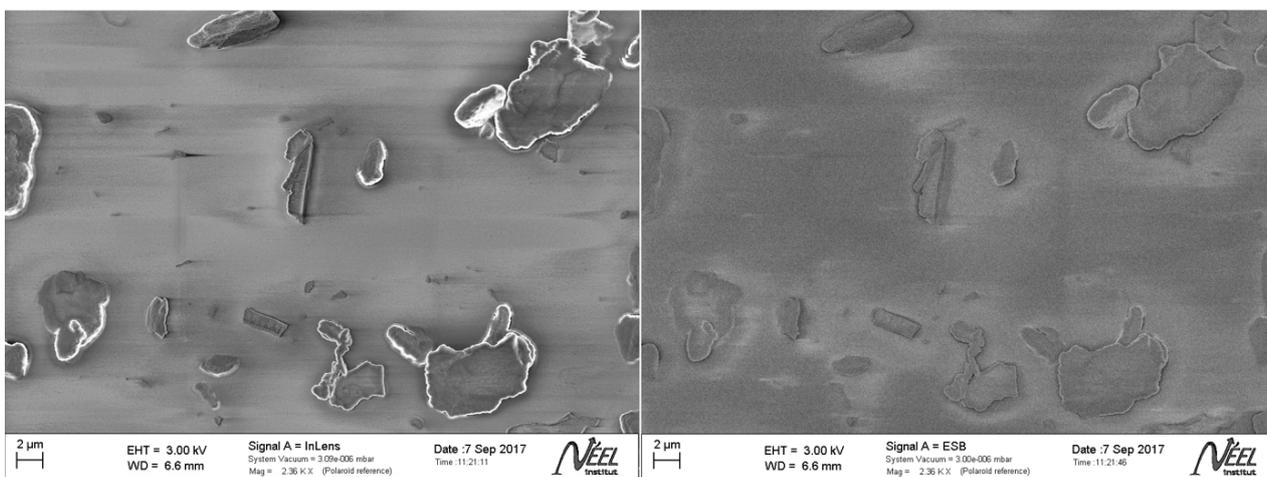


FIGURE 4.4 – Images de la surface de l'échantillon TS0015\_Saphir, détecteur InLens (gauche) et détecteur ESB (droite).

## Vitesse de dépôt des couches minces de ZnS(Ag)

Une série de dépôts de ZnS(Ag) a été réalisée avec une distance cible-substrat  $h = 12$  cm. Cette série a pour objectif de trouver un compromis entre la qualité de la couche élaborée et la vitesse de dépôt pour obtenir une épaisseur d'au moins  $5 \mu\text{m}$  en un temps raisonnable (quelques heures). Sept échantillons ont été élaborés dans cette série sur des substrats de Si(100). Des potentiels de polarisation négatifs de 250 V à 600 V sont appliqués à la cible ZnS(Ag) avec un générateur RF, avec lequel il est possible de fixer directement le potentiel de polarisation. La durée de dépôt varie de 2h30 à 5h30 selon la tension de polarisation.

Les épaisseurs des couches mesurées par MEB sont reportées dans la table 4.2. On observe la même structure colonnaire et la présence des poussières micrométriques sur les couches de cette série (cf. Figure 4.5), avec une vitesse de dépôt variant de  $0.73 \mu\text{m/h}$  à  $1.84 \mu\text{m/h}$ .

On note que les films sur plusieurs échantillons ont craqué en sortant du sas, alors que leurs vitesses de dépôt ou leurs potentiels de polarisation ne sont pas nécessairement beaucoup plus élevés que ceux des échantillons intacts. En inspectant la face arrière des échantillons endommagés (cf. Figure 4.6), on remarque une distribution inhomogène de la laque d'argent. Ceci a causé une mauvaise conduction thermique entre les substrats et le porte-substrat, qui pourrait être responsable d'une augmentation des contraintes dans la couche déposée.

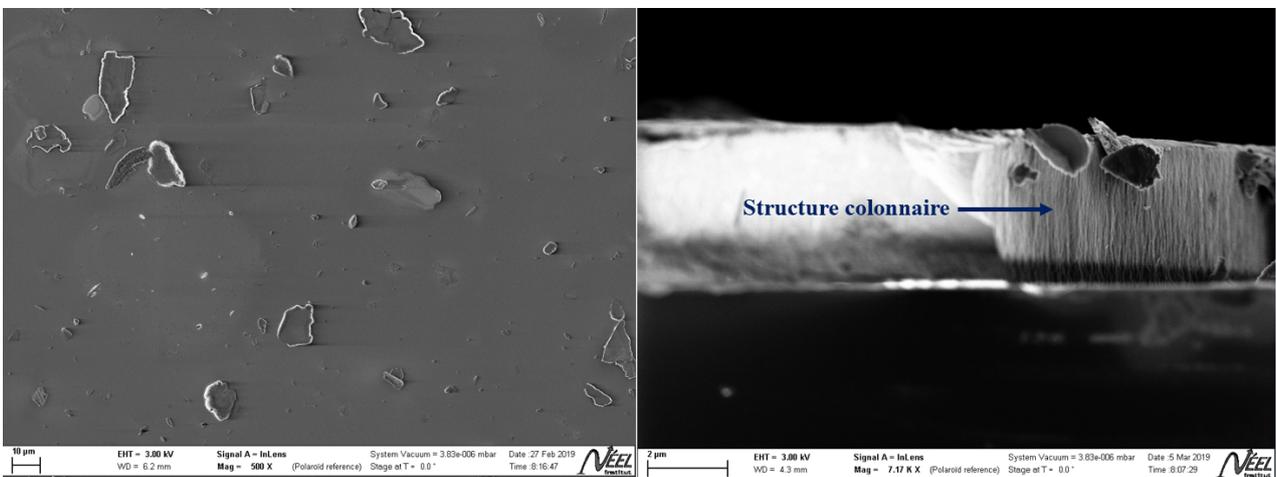


FIGURE 4.5 – Gauche : image de la surface de l'échantillon ZnSAg002, détecteur InLens. Droite : image de la section de découpage de l'échantillon ZnSAg004, détecteur InLens.

TABLE 4.2 – Série des dépôts de couche mince de ZnS(Ag), réalisés à 12 cm de distance cible-substrat. Les échantillons avec \* ont craqué en sortant du sas. Les valeurs moyennes de l'épaisseur et les vitesses de dépôt calculées sont reportées dans la table.

Echantillon	Substrat	$V_{cible}$ (V)	Durée de dépôt	$e$ ( $\mu\text{m}$ )	Vitesse de dépôt ( $\mu\text{m/h}$ )
ZnSAg001	Si(100)	300	4h	$5.886 \pm 0.001$	$1.4715 \pm 0.0003$
ZnSAg002	Si(100)	450	4h	$6.822 \pm 0.001$	$1.7055 \pm 0.0003$
ZnSAg003	Si(100)	250	4h	$3.760 \pm 0.001$	$0.9400 \pm 0.0003$
ZnSAg004*	Si(100)	275	4h	$4.105 \pm 0.001$	$1.0263 \pm 0.0003$
ZnSAg005	Si(100)	600	2h30	$4.600 \pm 0.001$	$1.8400 \pm 0.0004$
ZnSAg006*	Si(100)	250	5h30	$4.002 \pm 0.001$	$0.7276 \pm 0.0002$
ZnSAg007*	Si(100)	600	2h45	$4.470 \pm 0.001$	$1.6255 \pm 0.0004$



FIGURE 4.6 – Face arrière des échantillons ZnSAg001 (gauche) et ZnSAg004 (droite). La distribution de la laque d'argent n'est pas suffisamment homogène sur l'échantillon ZnSAg004.

### Uniformité de l'épaisseur des couches minces de ZnS(Ag)

Une deuxième série de dépôts de ZnS(Ag) a été réalisée pour étudier l'uniformité de l'épaisseur des couches minces élaborées sur une surface de dimensions  $50 \text{ mm} \times 50 \text{ mm}$ . En raison de la disponibilité des plaquettes de silicium industrielles, des plaquettes de Si(100) de  $50.8 \text{ mm}$  de diamètre (2 pouces) ont été choisies comme substrat, et les mesures d'épaisseur ont été effectuées tous les  $5 \text{ mm}$ . La distance cible-substrat  $h$  varie entre  $12 \text{ cm}$  et  $13.5 \text{ cm}$ . Le potentiel de polarisation négatif appliqué à la cible de ZnS(Ag) est fixé à  $600 \text{ V}$ , pour une durée de dépôt variant de  $2 \text{ h}$  à  $3 \text{ h}30$ .

Parmi les 7 échantillons élaborés avec les paramètres décrits ci-dessus, 4 échantillons ont craqué en sortant du sas, à cause d'une répartition inhomogène de la laque d'argent sur la face arrière de la plaquette de silicium. L'épaisseur moyenne  $e$ , ainsi que la différence d'épaisseur entre le centre et le bord de l'échantillon  $\Delta e$  des 3 échantillons intacts, sont reportées dans la table 4.3. On constate que, lorsque l'on éloigne le substrat de la cible de 12 cm à 13.5 cm,  $\Delta e/e$  diminue sans que la vitesse de dépôt varie significativement.

TABLE 4.3 – Série des dépôts de couche mince de ZnS(Ag) réalisés à 1 mTorr sur les substrats de Si(100) de 50.8 mm de diamètre. Le potentiel de polarisation négatif est fixé à 600 V.

Echantillon	Substrat	$h$ (cm)	Durée de dépôt	$e$ ( $\mu\text{m}$ )	$\Delta e$ ( $\mu\text{m}$ )	$\Delta e/e$ (%)	Vitesse de dépôt ( $\mu\text{m}/\text{h}$ )
ZnSAg008	Si(100)	12	2h	$3.185 \pm 0.001$	$0.528 \pm 0.002$	$16.57 \pm 0.07$	$1.5928 \pm 0.0005$
ZnSAg013	Si(100)	13.5	2h	$2.644 \pm 0.001$	$0.319 \pm 0.002$	$12.07 \pm 0.08$	$1.3218 \pm 0.0005$
ZnSAg014	Si(100)	13.5	3h30	$4.928 \pm 0.001$	$0.609 \pm 0.002$	$12.36 \pm 0.04$	$1.4081 \pm 0.0003$

Un nouveau dépôt ZnSAg015 a ensuite été réalisé sur 3 substrats de saphir de dimensions 10 mm  $\times$  10 mm  $\times$  0.5 mm, avec les mêmes paramètres de dépôt que ZnSAg014, sauf pour la durée, de 3h40 au lieu de 3h30. Les 3 substrats ont été positionnés stratégiquement sur la plaque en cuivre (cf. Figure 4.7), afin de vérifier les résultats obtenus précédemment sur les substrats de silicium. Leurs épaisseurs moyennes  $e$ , ainsi que la différence d'épaisseur par rapport à l'échantillon du centre  $\Delta e$ , sont reportées dans la table 4.4. On constate une uniformité d'épaisseur comparable, voire légèrement améliorée.

TABLE 4.4 – Echantillons du dépôt ZnSAg015, positionnés au centre, au bord et à un angle d'une surface virtuelle de 5 cm  $\times$  5 cm (cf. Figure 4.7), élaborés à 1 mTorr sur des substrats de saphir. Le potentiel de polarisation négatif est fixé à 600 V et la distance cible-substrat à 13.5 cm. La durée de dépôt est de 3 heures et 40 minutes.

Position	Substrat	$e$ ( $\mu\text{m}$ )	$\Delta e$ ( $\mu\text{m}$ )	$\Delta e/e_{\text{centre}}$ (%)	Vitesse de dépôt ( $\mu\text{m}/\text{h}$ )
Centre	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (0001)	$4.630 \pm 0.001$	NA	NA	$1.2628 \pm 0.0003$
Bord	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (0001)	$4.191 \pm 0.001$	$0.439 \pm 0.002$	$9.48 \pm 0.05$	$1.1420 \pm 0.0003$
Angle	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (0001)	$4.162 \pm 0.001$	$0.468 \pm 0.002$	$10.11 \pm 0.05$	$1.1341 \pm 0.0003$

Finalement, deux dépôts avec 6 échantillons au total ont été réalisés sur des substrats de saphir de dimensions 10 mm  $\times$  10 mm  $\times$  0.5 mm, en préparation pour l'étude de scintillation. Les paramètres de dépôt sont identiques à ceux du dépôt ZnSAg015, excepté la durée de dépôt : 4 heures contre 3h40 afin d'assurer une épaisseur supérieure à 5  $\mu\text{m}$ . Un échantillon de chaque dépôt a été caractérisé par MEB. Leurs épaisseurs moyennes, reportées dans la table 4.5, confirment une couche de ZnS(Ag) d'environ 6  $\mu\text{m}$  sur le saphir.

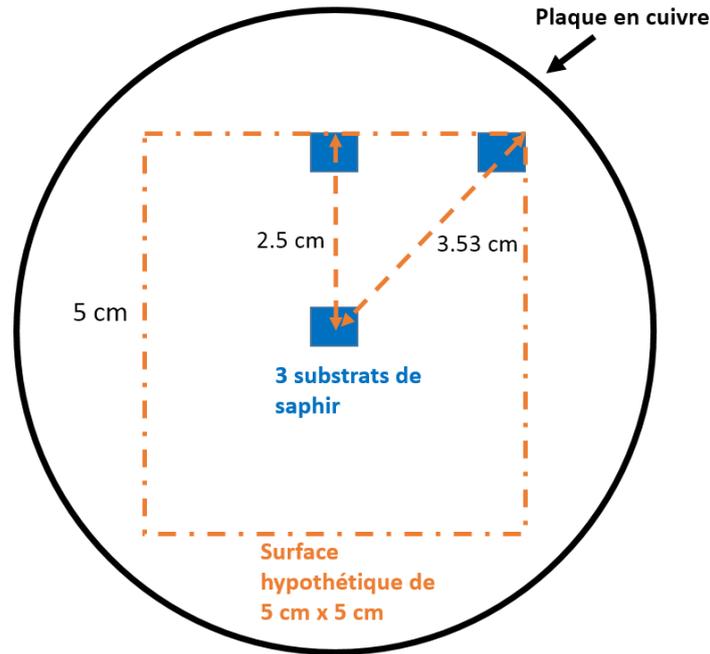


FIGURE 4.7 – Illustration du positionnement des 3 échantillons du dépôt ZnSAg015. Le cercle noir représente la plaque en cuivre. Les 3 substrats de saphir (carré bleu) sont collés aux positions représentant le centre, le bord et un angle d’une surface virtuelle de 5 cm × 5 cm (ligne pointillée orange).

TABLE 4.5 – Deux dépôts de couche mince de ZnS(Ag) réalisés à 1 mTorr sur des substrats de saphir de dimensions 10 mm × 10 mm × 0.5 mm.

Echantillon	Substrat	$V_{cible}$ (V)	$h_{cible}$ (cm)	Durée de dépôt	$e$ ( $\mu\text{m}$ )	Vitesse de dépôt ( $\mu\text{m}/\text{h}$ )
ZnSAg017	$\text{Al}_2\text{O}_3(0001)$	600	13.5	4h	$6.066 \pm 0.001$	$1.5165 \pm 0.0003$
ZnSAg018	$\text{Al}_2\text{O}_3(0001)$	600	13.5	4h	$6.116 \pm 0.001$	$1.5289 \pm 0.0003$

## 4.2 Dépôt de couches minces de ZnS avec dopage Ag *in situ*

Nous nous intéressons à la possibilité d’améliorer l’efficacité de scintillation des couches de ZnS en faisant varier la concentration du dopage d’argent. Afin de faire varier cette concentration, 3 cibles de ZnS pur et une cible d’argent pur ont été utilisées. La concentration d’argent dans les couches minces déposées est contrôlée par le potentiel de polarisation négatif appliqué à la cible d’argent.

Les paramètres et le protocole opératoire pour réaliser le dopage d'argent dans ZnS pendant un procédé de dépôt seront d'abord introduits. Une fois élaborés, les échantillons sont examinés par MEB (Microscopie Electronique à Balayage) pour la caractérisation de la morphologie et la mesure d'épaisseur, puis par EDS (Energy Dispersive X-ray Spectroscopy) pour déterminer la concentration d'argent. Enfin, les tests de scintillation avec une source de particules alpha sont effectués pour déterminer l'efficacité de scintillation des échantillons, et les résultats seront présentés dans la section 5.4.

#### 4.2.1 Conditions de dépôt

Les dépôts de couche mince ZnS dopé Ag ont été réalisés dans le même réacteur plasma multi-dipolaire que celui utilisé pour les dépôts de ZnS(Ag). La polarisation des cibles de ZnS a été appliquée avec un générateur radiofréquence, tandis que la cible d'argent a été polarisée avec un générateur de courant continu. La pression d'argon, la distance cible-substrat et la durée de dépôt ont été modifiées pendant la première série de dépôts pour déterminer une vitesse de dépôt optimale permettant la réalisation d'épaisseurs d'au moins 5  $\mu\text{m}$ . Pendant la deuxième série, le potentiel de polarisation sur la cible d'argent est variable, afin de modifier la quantité d'argent intégrée dans la couche de ZnS.

#### Géométrie et caractéristiques des cibles et substrats

Trois cibles de ZnS pur et une cible d'argent pur ont été utilisées pour cette étude. La cible d'argent est installée au centre du porte-cibles, tandis que les trois cibles de ZnS sont réparties et centrées sur trois points à égale distance (cf. Figure 4.8), afin d'assurer l'uniformité des couches minces élaborées. Une cible de ZnS dopé Ag avec une concentration massique de 0.05% (soit une concentration atomique de 0.045%) a également été utilisée pour réaliser des échantillons de référence.

Des substrats de silicium (Si(100) monocristallin), ainsi que des substrats de saphir ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ) avec une orientation de (0001) (CrysTech GmbH) ont été utilisés pour la réalisation des dépôts.

#### Paramètres du plasma

La pression d'argon dans la chambre plasma varie entre 1 mTorr et 3 mTorr (0.133 Pa et 0.399 Pa) pour les différentes séries de dépôts, tandis que la puissance micro-onde est fixée à  $2 \times 1$  kW pour la plupart des dépôts, sauf dans quelques essais particuliers où elle a été réglée à  $2 \times 0.75$  kW ou  $2 \times 1.5$  kW. Le potentiel plasma  $V_p$  est estimé à 25 V, et le potentiel flottant  $V_F$  est mesuré à 12 V.

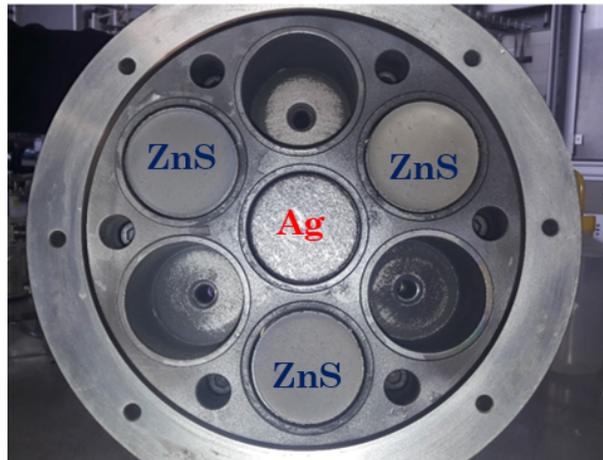


FIGURE 4.8 – Le porte-cibles du dispositif de dépôt avec 3 cibles de ZnS pur et 1 cible d'Ag.

### **Polarisation des cibles, distance cible-substrat et durée de dépôt**

Le potentiel de polarisation négatif appliqué aux cibles, la distance cible-substrat et la durée de dépôt ont été modifiés pour les différents dépôts. La polarisation des cibles de ZnS a été assurée par un générateur radiofréquence, dont la puissance varie entre 200 W et 300 W pour la première série, entre 150 W et 250 W pour la deuxième série, et enfin entre 50 W et 150 W pour la troisième série. La distance cible-substrat est ajustée entre 8 cm et 12 cm pour les trois séries, et la durée de dépôt varie entre 1 heure et 8 heures 30 minutes en fonction des autres paramètres de dépôt.

### **Protocole du procédé de dépôt**

#### **1. Préparation et mise en place des échantillons**

Le nettoyage et la mise en place des substrats de silicium et de saphir (nettoyage ultrason, collage à la laque d'argent, nettoyage par bombardement ionique) se déroulent de la même manière que ceux décrits dans la section 3.5. La seule différence est la puissance de polarisation des substrats qui est de 75 W au lieu de 50 W et pour une durée de 30 minutes.

#### **2. Réalisation du dépôt**

Les dépôts sont effectués avec les paramètres mentionnés dans la section 4.2.1. Pour déterminer la vitesse de dépôt de ZnS, seules les cibles de ZnS sont polarisées. Pour réaliser le dopage d'argent, les cibles de ZnS et d'argent sont pulvérisées simultanément au cours du dépôt, et le porte-substrat est maintenu au potentiel flottant.

### 3. Récupération et préparation des échantillons

Comme déjà précisé, à la fin du dépôt, le porte-substrat est positionné dans le sas afin de l'isoler de la chambre plasma et de pouvoir récupérer les échantillons après la remise à l'air du sas.

#### 4.2.2 Réalisation et caractérisation des couches minces de ZnS dopé Ag *in situ*

Dans cette section, nous déterminons d'abord les paramètres du procédé pour obtenir une vitesse de dépôt raisonnable, tout en maintenant la qualité structurale des films élaborés. Les échantillons de ZnS dopé Ag *in situ* et les échantillons de ZnS(Ag) pré-dopé sont ensuite réalisés avec les paramètres optimaux déterminés. Enfin, les résultats de la caractérisation morphologique par MEB seront présentés.

#### Vitesse de dépôt des couches minces de ZnS

La première série de dépôts a été réalisée pour déterminer une vitesse de dépôt optimale conduisant à des épaisseurs d'au moins  $5 \mu\text{m}$  de ZnS. Pour les 4 premiers dépôts, seules les cibles de ZnS sont pulvérisées. La pression d'argon dans la chambre plasma est fixée à 1 mTorr, et la distance cible-substrat est maintenue à 10.5 cm.

La durée de dépôt est de 4 heures pour ces 4 dépôts. La puissance RF pour la polarisation des cibles varie entre 200 W et 300 W. L'épaisseur moyenne des couches de ZnS est reportée dans la table 4.6. On constate que, pour un dépôt de 4 heures, ces paramètres opératoires ne permettent pas d'obtenir une couche de ZnS de  $5 \mu\text{m}$ .

Pour améliorer le rendement de pulvérisation, 2 dépôts sont réalisés avec une puissance micro-onde de  $2 \times 1.5 \text{ kW}$  et  $2 \times 0.75 \text{ kW}$  respectivement. La puissance RF de polarisation des cibles est fixée à 300 W, et les autres paramètres sont maintenus comme dans les 4 dépôts précédents.

Comme nous pouvons constater dans la table 4.7, une puissance micro-onde plus faible (ZnS0006) résulte en une diminution de la vitesse de dépôt. En revanche, une puissance micro-onde de  $2 \times 1.5 \text{ kW}$  (ZnS0005) ne conduit pas à une augmentation de la vitesse de dépôt par rapport à une puissance de  $2 \times 1 \text{ kW}$  (ZnS0004, cf Table 4.6). Par conséquent, la puissance micro-onde reste fixée à  $2 \times 1 \text{ kW}$  pour les dépôts suivants.

TABLE 4.6 – 4 dépôts de couche mince de ZnS réalisés avec une distance cible-substrat de 10.5 cm, une pression d’argon de 1 mTorr et une durée de 4 heures.

Echantillon	Substrat	Puissance de polarisation (W)	$V_{ZnS}$ (V)	$e$ ( $\mu\text{m}$ )	Vitesse de dépôt ( $\mu\text{m}/\text{h}$ )
ZnS0001	Si(100)	200	80	$2.364 \pm 0.001$	$0.5910 \pm 0.0003$
ZnS0002	Si(100)	200	210	$2.016 \pm 0.001$	$0.5040 \pm 0.0003$
ZnS0003	Si(100)	250	90	$2.052 \pm 0.001$	$0.5130 \pm 0.0003$
ZnS0004	Si(100)	300	130	$1.830 \pm 0.001$	$0.4575 \pm 0.0003$

TABLE 4.7 – 2 dépôts de couche mince de ZnS réalisés avec une distance cible-substrat de 10.5 cm, une pression d’argon de 1 mTorr, 300 W de puissance RF et une durée de 4 heures. La puissance micro-onde pour générer le plasma varie entre ces deux dépôts.

Echantillon	Substrat	Puissance micro-onde	$V_{ZnS}$ (V)	$e$ ( $\mu\text{m}$ )	Vitesse de dépôt ( $\mu\text{m}/\text{h}$ )
ZnS0005	Si(100)	$2 \times 1.5 \text{ kW}$	190	$1.823 \pm 0.001$	$0.4557 \pm 0.0003$
ZnS0006	Si(100)	$2 \times 0.75 \text{ kW}$	150	$1.649 \pm 0.001$	$0.4122 \pm 0.0003$

Cinq dépôts sont ensuite effectués en faisant varier la distance cible-substrat  $h$  entre 8 cm et 12 cm (cf. Table 4.8). La puissance de polarisation des cibles est de 300 W pour une durée de 1 heure. La pression d’argon est maintenue à 1 mTorr, et la puissance micro-onde est fixée à  $2 \times 1 \text{ kW}$ .

On constate que la diminution de la distance cible-substrat de 10.5 cm (ZnS0004, cf. Table 4.6) à 9 cm (ZnS0008, cf. Table 4.8) permet effectivement d’augmenter la vitesse de dépôt. Mais pour un raccourcissement de 9 cm à 8 cm (ZnS0009, cf. Table 4.8), il n’y a pas d’amélioration significative sur la vitesse. De plus, une distance cible-substrat trop courte pourrait diminuer l’uniformité des couches réalisées. Ainsi, deux dépôts ZnS0010 et ZnS0011 sont effectués avec la distance cible-substrat fixée à 9 cm, et avec une durée de dépôt prolongée. On obtient une couche d’environ  $5 \mu\text{m}$  après un dépôt de 8 heures et 30 minutes (ZnS0011, cf. Table 4.8).

Quatre dépôts supplémentaires sont par la suite effectués, en variant la pression d’argon dans la chambre plasma entre 2 mTorr et 3 mTorr. La puissance de polarisation des cibles est maintenue à 300 W, la puissance micro-onde fixée à  $2 \times 1 \text{ kW}$  et la distance cible-substrat à 9 cm. L’un des dépôts est effectué avec un dopage d’argent *in situ* pour tester la faisabilité de cette procédure. Le potentiel de polarisation négatif sur la cible d’argent est de 20 V.

L’augmentation de la pression d’argon permet d’augmenter la densité ionique, et donc le flux d’ions sur les cibles, mais la tension d’autopolarisation diminue. Comme reportée dans la table 4.9, la vitesse de dépôt augmente avec l’augmentation de la pression d’argon

TABLE 4.8 – 5 dépôts de couche mince de ZnS réalisés avec une puissance micro-onde de  $2 \times 1$  kW, une pression de 1 mTorr d’argon et une puissance RF de 300 W sur les cibles de ZnS. La distance cible-substrat  $h$  varie entre 8 cm et 12 cm.

Echantillon	Substrat	$h$ (cm)	$V_{ZnS}$ (V)	Durée de dépôt	$e$ ( $\mu\text{m}$ )	Vitesse de dépôt ( $\mu\text{m/h}$ )
ZnS0007	Si(100)	12	220	1h	$0.439 \pm 0.001$	$0.439 \pm 0.001$
ZnS0008	Si(100)	9	200	1h	$0.542 \pm 0.001$	$0.542 \pm 0.001$
ZnS0009	Si(100)	8	150	1h	$0.551 \pm 0.001$	$0.551 \pm 0.001$
ZnS0010	Si(100)	9	140	2h	$1.158 \pm 0.001$	$0.5790 \pm 0.0005$
ZnS0011	Si(100)	9	130	8h30	$5.082 \pm 0.001$	$0.5979 \pm 0.0001$

TABLE 4.9 – 4 dépôts de couche mince de ZnS réalisés avec une puissance micro-onde de  $2 \times 1$  kW, une distance cible-substrat de 9 cm et une puissance RF de 300 W sur les cibles de ZnS. La pression d’argon varie entre 2 mTorr et 3 mTorr.

Echantillon	Substrat	Pression d’argon (mTorr)	$V_{ZnS}$ (V)	Durée de dépôt	$e$ ( $\mu\text{m}$ )	Vitesse de dépôt ( $\mu\text{m/h}$ )
ZnS0012	Si(100)	2	190	4h	$2.634 \pm 0.001$	$0.6585 \pm 0.0003$
ZnS0016	Si(100)	2	180	8h	$4.928 \pm 0.001$	$0.6160 \pm 0.0001$
ZnS0017	Si(100)	2	180	4h	$2.598 \pm 0.001$	$0.6495 \pm 0.0003$
(20 V sur Ag)						
ZnS0017_Saphir	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (0001)	2	180	4h		
(20 V sur Ag)						
ZnS0021	Si(100)	3	120	4h	$0.781 \pm 0.001$	$0.1953 \pm 0.0003$

de 1 mTorr (ZnS0011, cf. Table 4.8) à 2 mTorr, mais elle décroît rapidement à 3 mTorr, comme confirmé par l’échantillon ZnS0021. Par ailleurs, le dopage d’argent *in situ* n’a pas d’influence sur la vitesse de dépôt, ce qui est confirmé en comparant les échantillons ZnS0017 et ZnS0012 dans la table 4.9.

Comme montré ci-dessus, l’optimisation des différents paramètres opératoires n’est pas suffisante pour obtenir une vitesse de dépôt supérieure à  $1 \mu\text{m/h}$  en polarisant 3 cibles de ZnS simultanément. Quatre dépôts sont donc effectués avec un nouveau générateur radiofréquence capable de générer un potentiel de polarisation plus élevé. La puissance micro-onde pour générer le plasma est fixée à  $2 \times 1$  kW pour les 4 dépôts.

Le premier dépôt de ce lot, ZnS0024, est réalisé avec une puissance de polarisation de 250 W, à 9 cm de distance cible-substrat et 2 mTorr de pression d’argon. On obtient une vitesse de dépôt de  $2.12 \mu\text{m/h}$  (cf. Table 4.10). D’autres tests ont été réalisés (ZnS0025, ZnS0026, ZnS0029) en modifiant la pression d’argon, la distance cible-substrat et la puissance de polarisation, afin de se limiter à une vitesse donnant environ  $5 \mu\text{m}$  d’épaisseur de film.

TABLE 4.10 – 5 dépôts de couche mince de ZnS réalisés avec  $2 \times 1$  kW de puissance micro-onde. Les cibles de ZnS sont polarisées avec une puissance RF variant entre 150 W et 250 W. La distance cible-substrat varie entre 9 cm et 12 cm, et la pression d’argon varie entre 1.5 mTorr et 2 mTorr.

Echantillon	Substrat	Pression Ar (mTorr)	$h$ (cm)	Puissance RF (W)	$V_{ZnS}$ (V)	$V_{Ag}$ (V)	$I_{Ag}$ (A)	Durée	$e$ ( $\mu\text{m}$ )	Vitesse ( $\mu\text{m/h}$ )
ZnS0024	Si(100)	2	9	250	340			4h	$8.487 \pm 0.001$	$2.1217 \pm 0.0003$
ZnS0025	Si(100)	1.5	9	200	320			4h	$6.754 \pm 0.001$	$1.6885 \pm 0.0003$
ZnS0026	Si(100)	1.5	10.5	200	340			4h	$6.018 \pm 0.001$	$1.5046 \pm 0.0003$
ZnS0027	Si(100)	1.5	10.5	200	350	20	0.109	4h	$7.201 \pm 0.001$	$1.8002 \pm 0.0003$
ZnS0029	Si(100)	1.5	12	150	315			4h	$5.367 \pm 0.001$	$1.3418 \pm 0.0003$

### Réalisation des échantillons de ZnS dopé Ag *in situ*

Avec les paramètres opératoires optimisés pour élaborer des couches minces de ZnS d’une épaisseur environ de  $5 \mu\text{m}$  (*i.e.*, les paramètres du ZnS0029, cf Table 4.10 : 1.5 mTorr, 150 W RF, 12 cm), six dépôts de ZnS sont effectués sur des substrats de silicium et de saphir, en variant le potentiel de polarisation négatif sur la cible d’argent entre 0 V et 20 V.

La mesure d’épaisseur est effectuée sur les échantillons en silicium, et les résultats sont reportés dans la table 4.11. On note que la majorité de ces échantillons ont une épaisseur supérieure à  $5 \mu\text{m}$  avec une durée de dépôt d’environ 3h50, sauf l’échantillon ZnS0035 qui a été élaboré avec une tension de polarisation de la cible d’argent la plus élevée et présente une épaisseur de  $4.64 \mu\text{m}$ .

On retrouve la structure colonnaire des couches minces de ZnS en examinant leur section par MEB (Zeiss Ultra plus de Nanofab à l’Institut NEEL) (cf. Figure 4.9). La morphologie de la surface des échantillons est examinée par le MEB FEG Zeiss Ultra 55 sur la plateforme CMTC (Consortium des Moyens Technologiques Communs, Grenoble INP) [83], et on retrouve la présence des poussières micrométriques sur la surface (cf. Figure 4.10). Les couches minces de ZnS dopé Ag *in situ* montrent donc une qualité structurale comparable aux échantillons réalisés par une cible de ZnS(Ag) pré-dopé.

TABLE 4.11 – 6 dépôts de ZnS réalisés avec  $2 \times 1$  kW de puissance micro-onde. Le dopage d'argent est effectué en variant le potentiel de polarisation sur la cible d'Ag entre 0 V et 20 V.

Echantillon	Substrat	$V_{ZnS}$ (V)	$V_{Ag}$ (V)	$I_{Ag}$ (A)	Durée de dépôt	$e$ ( $\mu\text{m}$ )	Vitesse de dépôt ( $\mu\text{m/h}$ )
ZnS0030	Si(100)	310	0	0	3h50	$5.133 \pm 0.001$	$1.3390 \pm 0.0003$
ZnS0030_Saphir	$\text{Al}_2\text{O}_3(0001)$	310	0	0	3h50		
ZnS0031	Si(100)	311	5	0.133	3h57	$5.140 \pm 0.001$	$1.3014 \pm 0.0003$
ZnS0031_Saphir	$\text{Al}_2\text{O}_3(0001)$	311	5	0.133	3h57		
ZnS0032	Si(100)	310	10	0.124	3h55	$5.044 \pm 0.001$	$1.2877 \pm 0.0003$
ZnS0032_Saphir	$\text{Al}_2\text{O}_3(0001)$	310	10	0.124	3h55		
ZnS0033	Si(100)	311	15	0.129	3h50	$5.199 \pm 0.001$	$1.3561 \pm 0.0003$
ZnS0033_Saphir	$\text{Al}_2\text{O}_3(0001)$	311	15	0.129	3h50		
ZnS0035	Si(100)	310	20	0.130	3h50	$4.644 \pm 0.001$	$1.2114 \pm 0.0003$
ZnS0035_Saphir	$\text{Al}_2\text{O}_3(0001)$	310	20	0.130	3h50		



FIGURE 4.9 – Image de la section de l'échantillon ZnS0032, détecteur InLens.

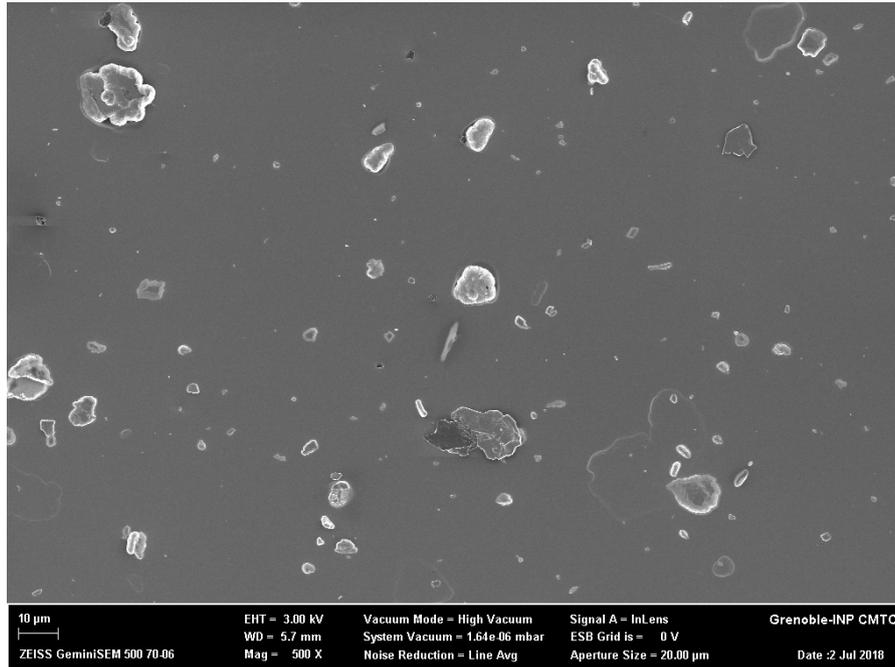


FIGURE 4.10 – Image de la surface de l'échantillon ZnS0031, détecteur InLens.

### Réalisation des échantillons de référence de ZnS(Ag) pré-dopé

Pour pouvoir comparer l'efficacité de scintillation des échantillons de ZnS dopé Ag *in situ*, des échantillons par pulvérisation d'une cible de ZnS(Ag) pré-dopé avec une concentration massique d'argent de 0.05% ont été réalisés sur des substrats de silicium et de saphir. Des essais pour déterminer une vitesse de dépôt optimale ont également été effectués en variant la pression d'argon, la distance cible-substrat, la puissance de polarisation et la durée de dépôt. En revanche, la puissance micro-onde est fixée à  $2 \times 1$  kW pour tous les dépôts. Les résultats des mesures d'épaisseur sont reportés dans la table 4.12 avec les paramètres opératoires correspondants.

En examinant la surface de l'échantillon ZnS0037, on observe (cf. Figure 4.11) une rugosité plus importante que celle obtenue par pulvérisation des 3 cibles de ZnS pur (cf. Section 4.2.2). Mais ces poussières millimétriques sur les échantillons de ZnS(Ag) pré-dopé sont cohérentes avec les résultats obtenus précédemment (cf. section 4.1.2). On peut donc attendre une qualité structurale et une performance de scintillation similaire avec les différents échantillons de ZnS(Ag) pré-dopé. Pour ces procédés, avec une vitesse de dépôt élevée (entre 1.2 et 2  $\mu\text{m}/\text{h}$ ), une accumulation importante de matière sur les parois de la chambre de procédé apparaît. De fait de la mauvaise adhérence de cette matière sur les parois, des fragments de taille micrométrique peuvent se détacher et tomber sur le film en croissance.

TABLE 4.12 – 5 dépôts de couche mince de ZnS(Ag) pré-dopé réalisés avec  $2 \times 1$  kW de puissance micro-onde. La cible de ZnS(Ag) est polarisée par un générateur radiofréquence.

Echantillon	Substrat	Pression Ar (mTorr)	$h$ (cm)	Puissance RF (W)	$V_{ZnS}$ (V)	Durée	$e$ ( $\mu\text{m}$ )	Vitesse ( $\mu\text{m}/\text{h}$ )
ZnS0037	Si(100)	1.5	10.5	140	706	3h50	7.64	1.99
ZnS0038	Si(100)	1.5	12	130	646	3h50	6.10	1.59
ZnS0040	Si(100)	1.5	12	135	650	3h15	6.39	1.66
ZnS0041	Si(100)	1	12	115	650	4h	4.71	1.18
ZnS0042	Si(100)	1	12	113	650	4h22	5.03	1.15
ZnS0042_Saphir	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (0001)	1	12	113	650	4h22		

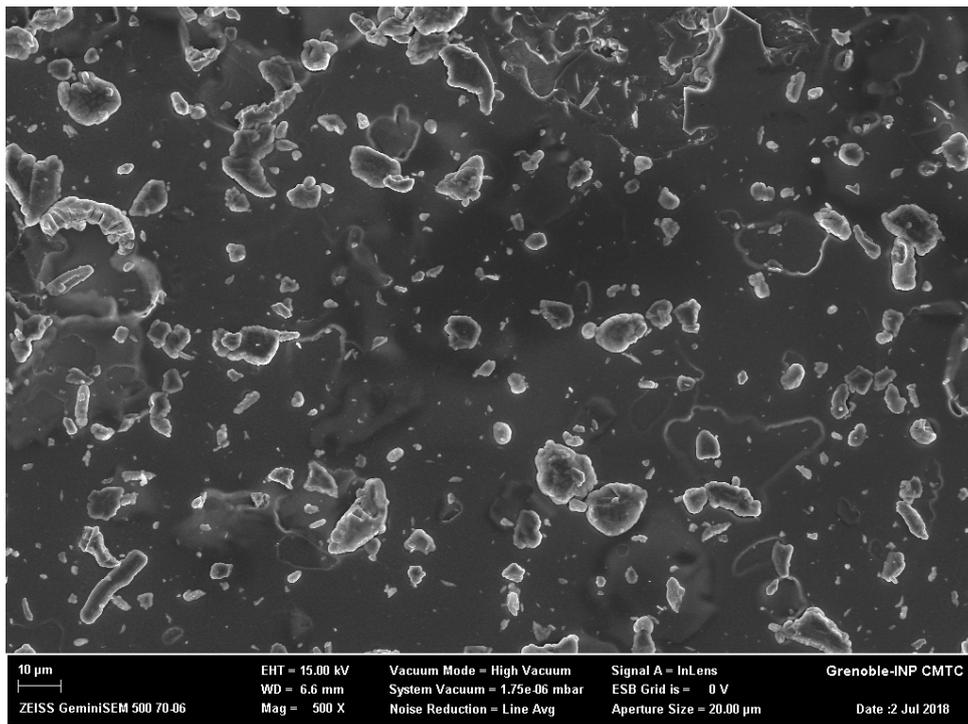


FIGURE 4.11 – Image de la surface de l'échantillon ZnS0037, détecteur InLens.

### 4.2.3 Détermination de la concentration d'Ag

Les échantillons élaborés pour l'étude sur la concentration d'argent sont inspectés par MEB (FEG Zeiss Ultra 55 sur la plateforme CMTC-Consortium des Moyens Technologiques Communs, Grenoble INP) [83]. La détermination de la concentration d'argent dans les couches minces de ZnS est effectué par la technique EDS (Energy Dispersive X-ray Spectrometry), en utilisant un canon à effet de champ (FEG) de type Schottky. La durée d'acquisition est de 100 s pour chaque échantillon.

Une première analyse est effectuée sur les échantillons de ZnS dopé Ag *in situ*. Les résultats sont reportés dans la table 4.13, avec le potentiel de polarisation négatif appliqué  $V_{Ag}$  et le potentiel effectif  $V_{eff}$ . Ce dernier est le vrai potentiel entre la cible et le potentiel plasma  $V_p$ , potentiel des particules chargées dans le plasma (électrons et ions) :

$$V_{eff} = V_p - V_{Ag}, \quad (4.1)$$

avec  $V_p$  estimé à 25 V.

Les données de la table 4.13 confirment que le dopage d'argent augmente avec  $V_{Ag}$ , puisque le taux de pulvérisation augmente avec celui-ci. En comparant la concentration d'argent globale et la concentration locale à une position aléatoire de la surface, on n'observe pas de différence majeure, ce qui démontre l'homogénéité du dépôt.

L'erreur relative  $\delta_{Ag}$  sur la concentration reste très élevée pour les échantillons avec une faible concentration d'argent (ZnS0030, ZnS0031). En effet, la précision de l'analyse EDS sur les éléments mineurs avec une concentration atomique inférieure à 10% peut varier entre 20% et 50%.

Toutefois, en analysant les échantillons ZnS0037 et ZnS0038, qui sont réalisés avec une cible de ZnS pré-dopé, on remarque la présence des éléments Cr, Fe, Al et Si. Ces éléments ne sont pas présents dans les spectres EDS des échantillons de ZnS dopé Ag *in situ* (cf. Figure 4.12).

La présence de Si provient probablement du substrat de silicium, lorsque le faisceau d'électrons atteint des zones de la couche de ZnS endommagées. En inspectant la cible de ZnS(Ag) pré-dopé, on constate qu'elle a été très usée, ayant été utilisée pour réaliser les échantillons décrits dans la section 4.1. Par conséquent, une partie de la protection en acier pourrait avoir été pulvérisée en même temps que la cible, ce qui pourrait expliquer la présence des éléments tels que le fer et le chrome. Les résultats quantitatifs des analyses sur les échantillons ZnS0037 et ZnS0038 sont reportés dans la table 4.14. Les concentrations de Fe et de Cr sont effectivement non négligeables par rapport à celle d'Ag.

TABLE 4.13 – Concentrations globale et ponctuelle des éléments Ag, S et Zn pour les échantillons de ZnS dopé Ag *in situ*, déterminées par analyse EDS.

Echantillon	$ V_{Ag} $ (V)	$V_{eff}$ (V)		$C_{Ag}$ (at%)	$\delta_{Agr}$ (%)	$C_S$ (at%)	$\delta_{Sr}$ (%)	$C_{Zn}$ (at%)	$\delta_{Znr}$ (%)
ZnS0030	0	25	global	0.1	62.4	45.5	4.1	54.4	3.9
			ponctuel	0.1	62.6	45.8	4.1	54.2	3.90
ZnS0031	5	30	global	0.4	26.0	46.5	4.0	53.1	3.9
			ponctuel	0.4	20.2	46.7	4.0	53.0	3.9
ZnS0032	10	35	global	0.8	14.0	47.5	4.0	51.8	3.9
			ponctuel	0.8	13.1	47.4	4.0	51.9	3.9
ZnS0033	15	40	global	1.2	8.4	45.0	4.1	53.8	3.9
			ponctuel	1.2	8.6	45.3	4.1	53.5	3.9
ZnS0035	20	45	global	2.4	6.8	48.7	3.9	49.0	4.0
			ponctuel	2.4	5.6	48.7	3.9	49.0	4.0

TABLE 4.14 – Concentration globale des éléments Ag, S, Zn, Fe et Cr pour les échantillons de ZnS pré-dopé Ag avec une concentration massique de 0.05% (soit une concentration atomique de 0.045%), déterminée par analyse EDS.

Echantillon	$C_{Ag}$ (at%)	$\delta_{Agr}$ (%)	$C_S$ (at%)	$\delta_{Sr}$ (%)	$C_{Zn}$ (at%)	$\delta_{Znr}$ (%)	$C_{Fe}$ (at%)	$\delta_{Fer}$ (%)	$C_{Cr}$ (at%)	$\delta_{Crr}$ (%)
ZnS0037	0.7	18.6	45.9	4.0	50.5	3.9	1.9	9.6	0.6	21.7
ZnS0038	0.5	21.0	48.0	3.9	48.6	3.9	2.0	10.1	0.5	21.8

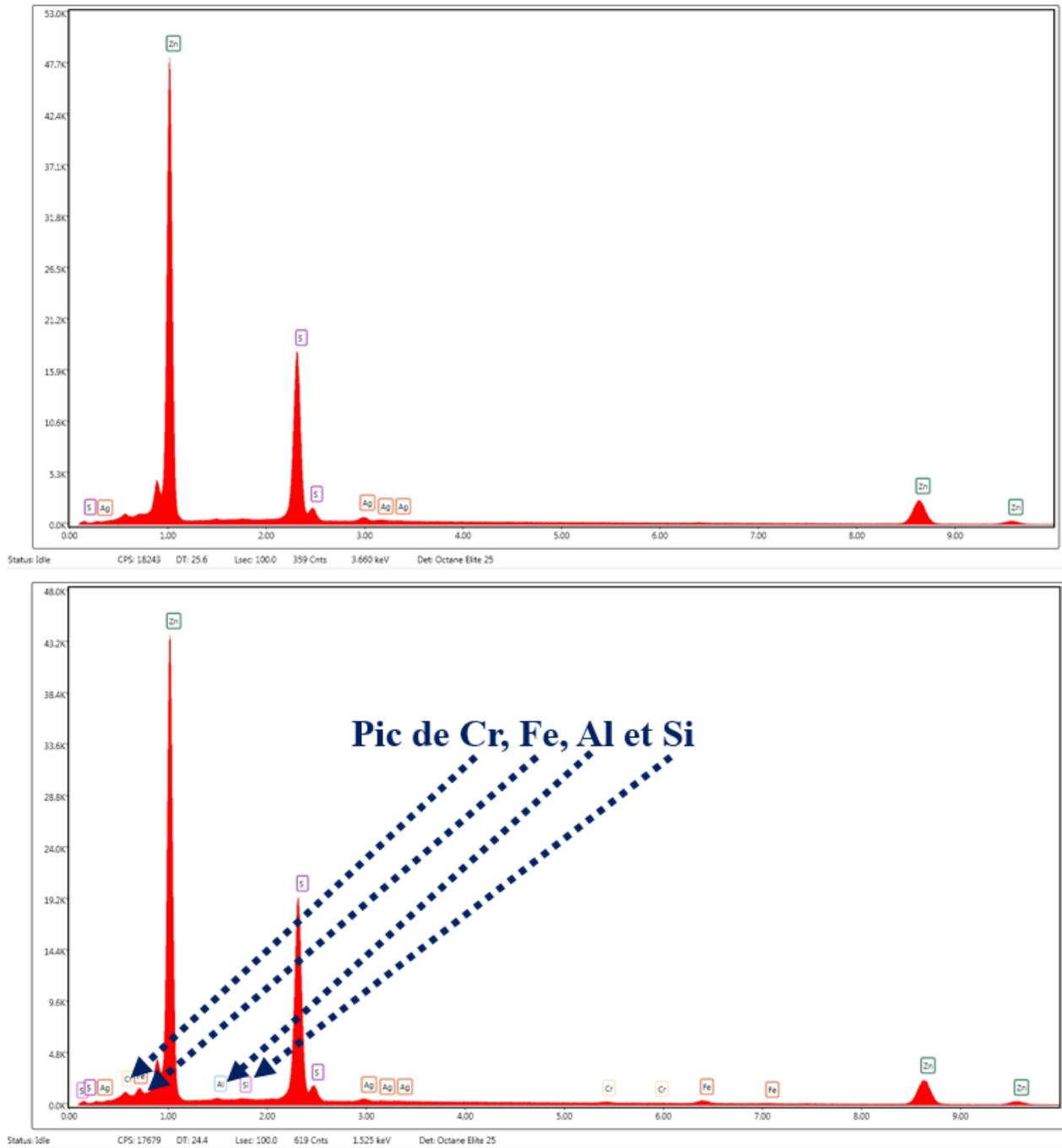


FIGURE 4.12 – Haut : spectre EDS de l'échantillon ZnS0032 dont le dopage d'Ag est réalisé *in situ*. Bas : spectre EDS de l'échantillon ZnS0038 qui est élaboré avec une cible de ZnS pré-dopé Ag.

Une nouvelle série d'analyses est effectuée par la suite, cette fois-ci avec des standards d'éléments susceptibles d'être présents dans les échantillons de ZnS. En plus de Zn, S et Ag, les éléments Fe, Cr et Ni sont inclus dans les standards en raison de leur présence dans l'acier. Dans un premier temps, plusieurs témoins des éléments purs sont polis, puis analysés par la technique EDS. Les échantillons de ZnS sont ensuite analysés, et leurs spectres sont étalonnés par rapport aux spectres des échantillons témoins.

Les résultats des analyses sont représentés dans les figures 4.13, 4.14, et 4.15. On constate un excès de zinc par rapport au sulfure dans les échantillons de ZnS dopé Ag *in situ*, ce qui a également été observé dans la littérature[66, 82, 63]. Cette perte de sulfure peut être attribuée à la ré-évaporation de cet élément à la surface, en raison de sa pression de vapeur saturante élevée[84]. Dans notre cas, une longue durée de dépôt pourrait conduire à une hausse de température de la surface extrême du film en croissance[85, 86], facilitant ainsi la ré-évaporation du sulfure.

Comme attendu, on observe que la concentration d'Ag dans le film augmente avec le potentiel de polarisation sur la cible d'Ag, ce qui confirme la possibilité de contrôler le dopage *in situ* avec cette configuration (détaillée en Section 4.2.1). La concentration d'Ag dans les échantillons de ZnS(Ag) pré-dopé à une concentration atomique de 0.045% est au voisinage de cette valeur, mais légèrement plus élevée pour l'un des deux échantillons de référence. Une tentative pour vérifier la concentration d'argent dans la cible pré-dopé par analyse EDS n'a pas pu aboutir, car la cible est trop poreuse pour une analyse quantitative. On note aussi que les échantillons réalisés avec un potentiel de polarisation effectif de 18 V et 23 V ont une concentration d'Ag proche de celle des échantillons pré-dopés.

Les analyses avec témoins de Fe, Cr et Ni nous confirment la présence non négligeable dans le film de ces trois éléments, surtout la concentration de Fe et Cr dans les échantillons de ZnS(Ag) pré-dopé. L'introduction des éléments tels que Fe, Co et Ni dans des scintillateurs de ZnS a pour effet de diminuer le temps de désexcitation (decay time), ainsi que l'intensité de scintillation[87, 88, 54], ce qui présente des avantages et des inconvénients pour un détecteur de scintillation. La cause de cet effet peut être expliquée par le transfert d'énergie résonant des centres de recombinaison aux éléments comme le Fe et le Ni, ce qui résulte en une émission des infrarouges ou en des recombinaisons non radiatives[54]. Les éléments des métaux de transition sont aussi susceptibles de créer des sites avec un niveau d'énergie profond qui favorisent les recombinaisons non radiatives, ce qui contribuerait à une baisse d'efficacité de scintillation[54].

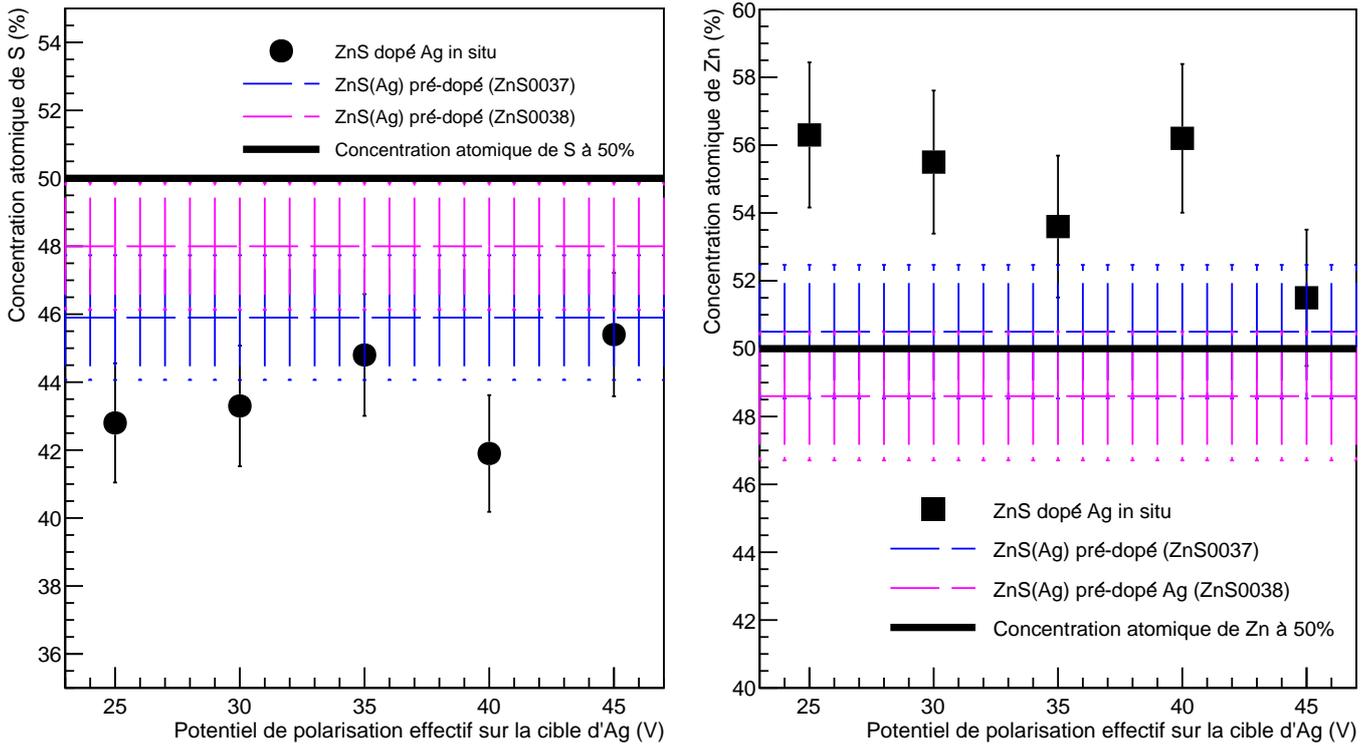


FIGURE 4.13 – Concentration atomique de S (gauche) et de Zn (droite) dans ZnS en fonction du potentiel de polarisation effectif sur la cible d'Ag. Les points noirs représentent les échantillons de ZnS dopé Ag *in situ*. Les lignes pointillées bleue et violette représentent les échantillons réalisés avec une cible de ZnS(Ag) pré-dopé. La ligne noire marque la concentration théorique de Zn et S selon la stoechiométrie de ZnS.

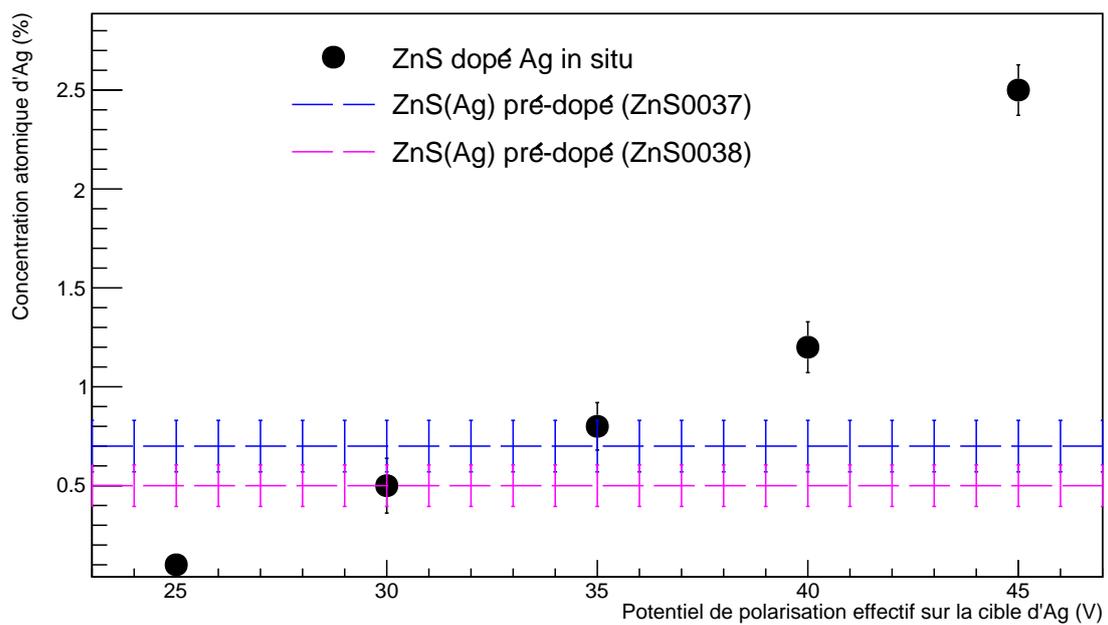


FIGURE 4.14 – Concentration atomique d'Ag dans ZnS en fonction du potentiel de polarisation effectif sur la cible d'Ag. Les points noirs représentent les échantillons de ZnS dopé Ag *in situ*. Les lignes pointillées bleue et violette représentent les échantillons réalisés avec une cible de ZnS(Ag) pré-dopé à une concentration massique de 0.05% (soit une concentration atomique de 0.045%).

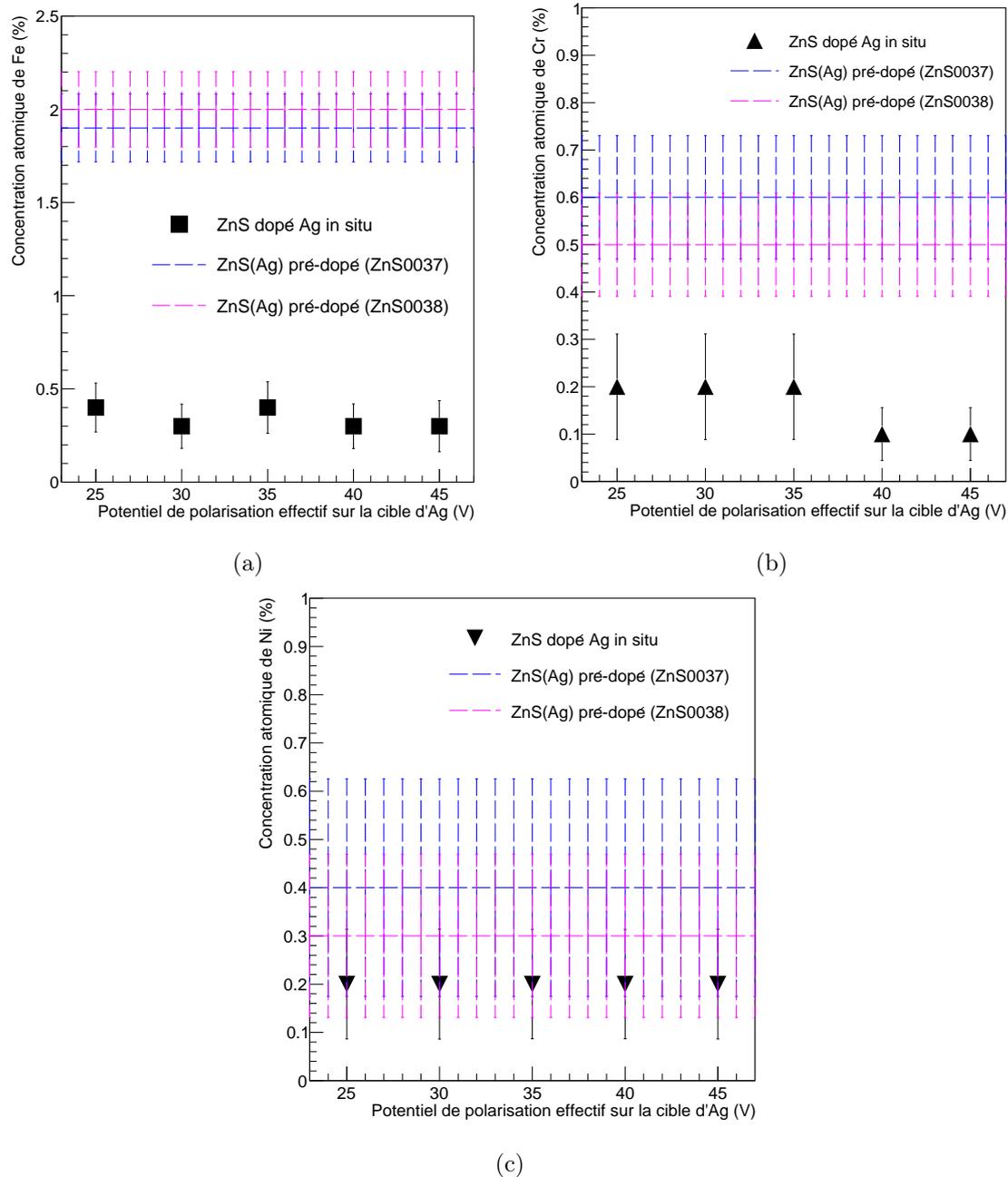


FIGURE 4.15 – Concentration atomique de Fe (a), Cr (b) et Ni (c) dans ZnS en fonction du potentiel de polarisation effectif sur la cible d'Ag. Les points noirs représentent les échantillons de ZnS dopé Ag *in situ*. Les lignes pointillées bleues et violettes représentent les échantillons réalisés avec une cible de ZnS(Ag) pré-dopé à une concentration massique de 0.05% (soit une concentration atomique de 0.045%).

## 4.3 Dépôt de multicouche de Ni+<sup>10</sup>B+Ti

Dans cette section, nous décrivons les paramètres et les protocoles opératoires pour le dépôt d'un ensemble de couches minces de Ni ( $\sim 20$  nm) + <sup>10</sup>B ( $\sim 200$  nm) + Ti ( $\sim 20$  nm). L'objectif est de réaliser ces dépôts sur la surface d'un détecteur CCD, d'un film de ZnS(Ag) élaboré auparavant, et d'un scintillateur commercial.

### 4.3.1 Conditions de dépôt

Les dépôts de couches minces de Ni + <sup>10</sup>B + Ti ont été effectués dans le même réacteur plasma que celui utilisé pour les dépôts de ZnS. Les cibles de Ni et de Ti sont polarisées par deux générateurs de courant continu, tandis que les cibles de <sup>10</sup>B sont polarisées par un générateur radiofréquence. Un deuxième générateur radiofréquence est réservé pour le nettoyage des substrats.

Les paramètres opératoires, tels que la pression d'argon dans la chambre de procédé et la puissance micro-onde, ont été fixés pour une série de dépôts. La durée de dépôt, la distance cible-substrat et le potentiel de polarisation négatif sur les cibles ont été modifiés, afin de trouver les conditions optimales pour obtenir les couches minces d'une épaisseur prédéfinie pour le détecteur de UCN.

### Géométrie et caractéristiques des cibles et substrats

Une cible de Ni, trois cibles de Ti et trois cibles de B enrichi en <sup>10</sup>B à 96% et d'une pureté de 99.99% sont utilisées pour l'élaboration des couches minces de Ni + <sup>10</sup>B + Ti.

Le positionnement des cibles sur le porte-cibles est illustré sur la figure 4.16. La cible Ni se situe au centre du porte-cibles, tandis que les 6 cibles ( $2 \times 3$ ) de Ti et de <sup>10</sup>B sont réparties sur un même diamètre de façon alternée avec un angle constant de 60°. Cette configuration permet de réaliser les dépôts de Ni, <sup>10</sup>B et Ti de manière successive *in situ*.

Les dépôts ont été réalisés sur 10 capteurs CCD, 5 échantillons de couche mince de ZnS(Ag) élaborés précédemment, et 2 scintillateurs commerciaux. Les 10 CCD sont des capteurs sans fenêtre de la série S11071-1106N de Hamamatsu[89] (cf. Figure 4.17). Les 2 scintillateurs commerciaux sont des CRY18 fabriqués par Crytur[90], à base de silicate monocristallin de 10 mm de diamètre et de 0.1 mm d'épaisseur, collés sur un substrat de quartz de 12 mm de diamètre et de 1 mm d'épaisseur (cf. Figure 4.17). Les substrats de silicium de dimensions 15 mm  $\times$  15 mm  $\times$  0.5 mm ont également été utilisés pour la caractérisation par MEB.

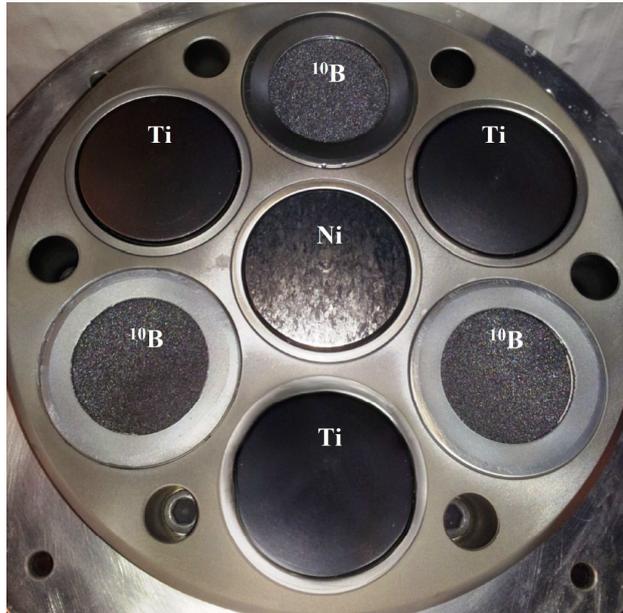


FIGURE 4.16 – Positionnement des cibles de Ni, Ti et  $^{10}\text{B}$  sur le porte-cibles

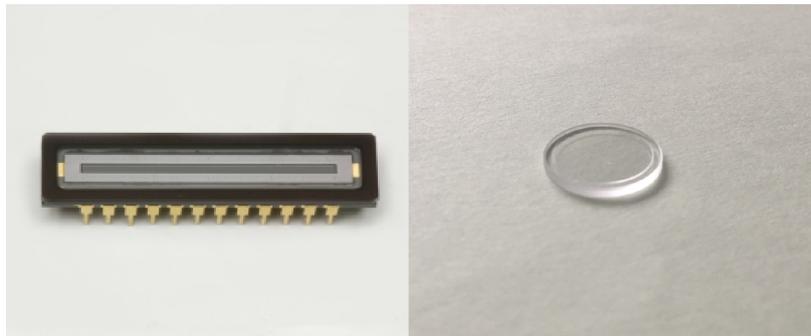


FIGURE 4.17 – Gauche : détecteur CCD Hamamatsu. Droite : scintillateur CRY18.

### Paramètres du plasma

La pression d'argon dans la chambre plasma est fixée à 1 mTorr (0.133 Pa), et la puissance micro-onde à  $2 \times 1$  kW pour tous les dépôts de Ni +  $^{10}\text{B}$  + Ti. Le potentiel plasma  $V_P$  est estimé à 25 V, et le potentiel flottant  $V_F$  est mesuré à 12 V.

## **Polarisation des cibles, durée de dépôt et distance cible-substrat**

Les cibles de Ni et de Ti sont polarisées avec deux générateurs de courant continu. Leur potentiel de polarisation négatif est fixé à 100 V, ce qui résulte en un courant de l'ordre de 100 mA. Les cibles de  $^{10}\text{B}$  sont polarisées par un générateur RF avec un potentiel négatif entre 250 V et 350 V selon le procédé.

La durée de dépôt pour le Ni varie entre 6 minutes et 23 minutes, et celle pour le Ti de 16 minutes à 18 minutes. Le taux de pulvérisation de  $^{10}\text{B}$  étant beaucoup plus faible, une couche de 200 nm nécessite une durée de dépôt entre 4h et 4h30. La distance cible-substrat est fixée à 10.5 cm ou à 13.5 cm selon les conditions de dépôt.

## **Protocole du procédé de dépôt**

### **1. Préparation et mise en place des échantillons**

Les étapes de nettoyage des substrats de silicium, des scintillateurs CRY18 et des capteurs CCD sont identiques à celles décrites dans la section 3.5. Pour les échantillons de couche mince de ZnS(Ag), ceux-ci sont directement collés sur la plaque en cuivre sans les étapes de nettoyage ultrason (risque de dégradation des films).

La géométrie des capteurs CCD nécessite un nouveau support afin d'assurer un bon contact thermique et électrique. Un nouveau support en cuivre a donc été fabriqué, avec deux embases de fixation usinées dans la masse, ce qui permet de déposer sur deux CCD au cours d'un même procédé. Une feuille de graphite (Tgon<sup>TM</sup> 820 de Laird Technologies) couvre la surface du support en laissant apparaître la partie active du capteur. Un masque métallique est ensuite placé sur la feuille de graphite et vissé au support (cf. Figure 4.18). Un substrat en silicium peut être collé sur le support pour le contrôle d'épaisseur par MEB.

### **2. Réalisation du dépôt**

Le porte-substrat est positionné dans la chambre plasma après le nettoyage des substrats dans le sas. Les dépôts sont effectués avec les paramètres mentionnés dans la section 4.3.1, dans l'ordre pour Ni,  $^{10}\text{B}$  et Ti. Le porte-substrat est connecté à la masse pendant les dépôts de Ni et Ti, et maintenu au potentiel flottant lors du dépôt de  $^{10}\text{B}$ .

### **3. Récupération et préparation des échantillons**

A la fin du procédé de dépôt, le porte-substrat est positionné dans le sas afin d'être isolé de la chambre de procédé, dans laquelle les cibles sont nettoyées simultanément en appliquant un potentiel négatif de 100 V sur les cibles de Ni et Ti, et autour de 300 V sur les cibles de  $^{10}\text{B}$ . Le nettoyage dure environ 30 minutes. Les échantillons sont récupérés après le nettoyage des cibles et la remise à l'air du sas.

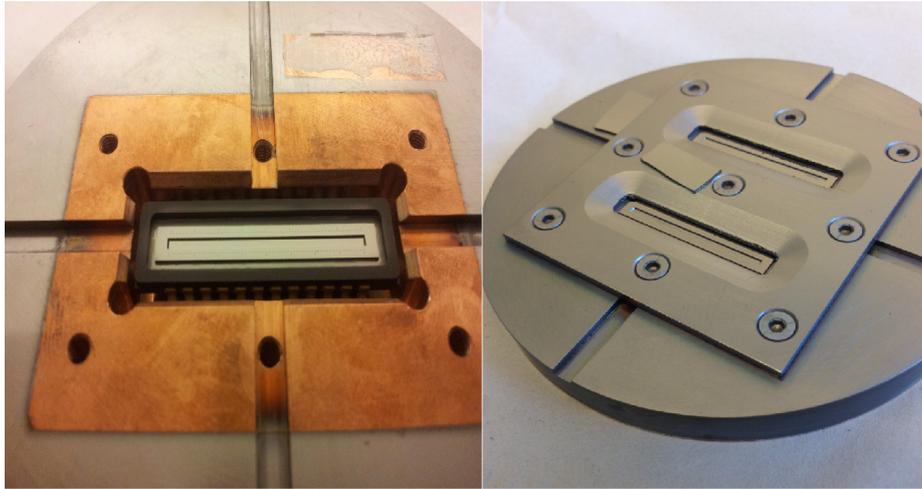


FIGURE 4.18 – Gauche : support de CCD en cuivre sans masque, avec un CCD au centre. Droite : support de CCD avec le masque au-dessus.

#### 4.3.2 Réalisation et caractérisation des multicouches de Ni + $^{10}\text{B}$ + Ti

Dans cette partie, nous nous focalisons sur la morphologie des multicouches de Ni +  $^{10}\text{B}$  + Ti sur différents types de substrats. Nous inspectons d'abord la qualité des multicouches sur les substrats de Si(100) et de saphir. Puis, la viabilité du dépôt sur les détecteurs CCD est examinée. Enfin, nous testons l'adhérence des multicouches sur les échantillons de ZnS(Ag) élaborés par pulvérisation, ainsi que sur un scintillateur CRY18.

##### Morphologie des multicouches de Ni + $^{10}\text{B}$ + Ti

Trois dépôts de Ni +  $^{10}\text{B}$  + Ti ont été réalisés afin de caractériser la morphologie des multicouches. Pour le premier dépôt, un substrat de Si(100) de 15 mm de côté et de 0.5 mm d'épaisseur a été utilisé, et seules les couches de Ni et  $^{10}\text{B}$  y ont été déposées. Pour le deuxième dépôt, une multicouche complète de Ni +  $^{10}\text{B}$  + Ti est déposée sur un substrat de Si(100). Pour le troisième dépôt, une multicouche complète est déposée sur les échantillons TS0017\_Si et TS0015\_Saphir (cf. Section 4.1.2), sur lesquels une couche de ZnS(Ag) a été préalablement déposée. Ceci nous permet de tester l'adhérence de la structure de Ni +  $^{10}\text{B}$  + Ti sur un film de ZnS(Ag).

La distance cible-substrat  $h$  est réglée à 13.5 cm pour le premier dépôt, et à 10.5 cm pour les deux procédés suivants. Un potentiel de polarisation négatif  $V$  de 100 V est appliqué par deux générateurs de courant continu sur la cible de Ni et les 3 cibles de Ti pendant leur

pulvérisation respective. Les cibles de  $^{10}\text{B}$  sont polarisées par un générateur radiofréquence, pour une puissance RF fixée à 250 W, qui correspond à un potentiel négatif entre 330 V et 350 V. La durée de dépôt varie entre 18 et 23 minutes pour le Ni, 4h et 4h20 pour le  $^{10}\text{B}$ , et reste fixée à 18 minutes pour le Ti.

Deux échantillons de multicouche de Ni +  $^{10}\text{B}$  + Ti sont montrés sur la figure 4.19. L'échantillon avec le dépôt multicouche déposé directement sur le substrat de silicium (gauche) possède une surface très lisse, avec une couleur gris foncé métallique. En revanche, l'échantillon avec le dépôt multicouche déposé sur la couche mince de ZnS(Ag) (droite) a une surface très rugueuse, du fait de la rugosité du film de ZnS(Ag).

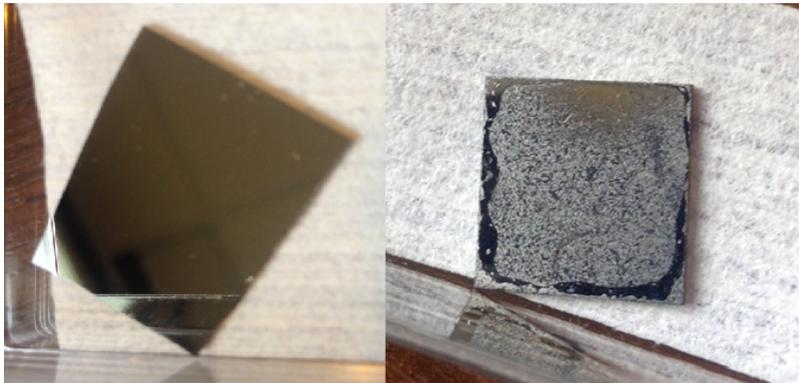


FIGURE 4.19 – Deux échantillons du dépôt B0002. Gauche : échantillon B0002\_Si avec le dépôt multicouche de Ni +  $^{10}\text{B}$  + Ti déposé directement sur un substrat de silicium. Droite : échantillon B0002\_Saphir avec le dépôt multicouche de Ni +  $^{10}\text{B}$  + Ti sur une couche mince de ZnS(Ag) déposée sur un substrat de saphir.

L'épaisseur des multicouches de Ni +  $^{10}\text{B}$  + Ti est reportée dans la table 4.15. En raison de leur faible épaisseur, la vibration de l'échantillon sous le faisceau d'électrons du MEB n'est plus négligeable, d'où une image (cf. Figure 4.20) beaucoup moins nette.

On note que le courant sur les cibles de Ti est environ 3 fois supérieur à celui sur la cible de Ni, car il s'agit de la somme des courants sur les 3 cibles de Ti. On constate que, pour une distance cible-substrat de 10.5 cm, une durée de dépôt de 23 minutes et 18 minutes respectivement est suffisante pour obtenir des couches de Ni et Ti d'environ 20 nm, et une durée d'environ 260 minutes permet de déposer un film de  $^{10}\text{B}$  d'environ 200 nm. On remarque également que la vitesse de dépôt du bore sur nos échantillons (46.2 nm/h) est beaucoup plus faible que celle décrite dans la littérature avec un réacteur magnétron classique (de l'ordre de 400-800 nm/h) [91, 92]. Une puissance de polarisation des cibles beaucoup moins élevée et une distance cible-substrat plus éloignée dans notre cas pourraient expliquer cette différence.

TABLE 4.15 – 3 dépôts de multicouche de Ni +  $^{10}\text{B}$  + Ti réalisés avec 1 mTorr de pression d'argon. La puissance de sortie du générateur RF est fixée à 250 W pour polariser les cibles de  $^{10}\text{B}$ , et un potentiel de polarisation négatif de 100 V est appliqué par deux générateurs DC sur les cibles de Ni et Ti respectivement. Les mesures de l'épaisseur ont été effectuées sur les échantillons en Si(100), et la valeur moyenne  $e$  est reportée dans la table.

Echantillon	Substrat	$h$ (cm)	$I_{Ni}$ (A)	$t_{Ni}$ (min)	$e_{Ni}$ (nm)	$V_{10B}$ (V)	$t_{10B}$ (h)	$e_{10B}$ (nm)	$I_{Ti}$ (A)	$t_{Ti}$ (min)	$e_{Ti}$ (nm)
B0001_Si	Si(100)	13.5	0.121	18	$13.4 \pm 0.1$	350	4	$144.0 \pm 0.1$			
B0002_Si	Si(100)	10.5	0.110	23	$19.2 \pm 0.1$	330	4	$156.8 \pm 0.1$	0.302	18	$24.3 \pm 0.1$
B0002_Saphir	ZnS(Ag) sur saphir	10.5	0.110	23		330	4		0.302	18	
B0012_Si	ZnS(Ag) sur Si(100)	10.5	0.107	23		330	4h20	$214.1 \pm 0.1$	0.302	18	

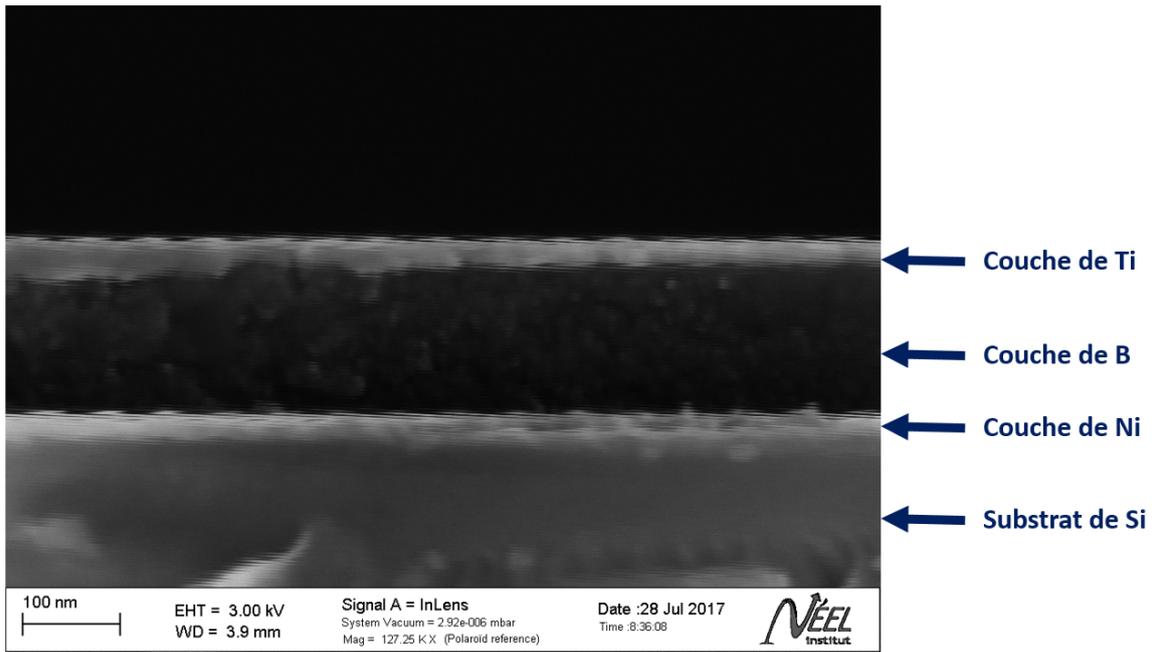


FIGURE 4.20 – Image de la section de l'échantillon B0002\_Si, détecteur InLens.

La surface de l'échantillon B0012\_Si, qui est un dépôt multicouche de Ni +  $^{10}\text{B}$  + Ti sur une couche de ZnS(Ag) préalablement déposée sur un substrat de silicium, a été examinée au MEB. Le résultat est montré sur la figure 4.21. On constate une structure en forme de serpentins sur la surface, qui n'a pas été observée dans la littérature sur des couches de bore avec une épaisseur comparable (quelques centaines de nanomètres) ou plus épaisses (quelque micromètres), élaborées par d'autres méthodes de dépôt physique par phase vapeur[91, 92, 93, 94].

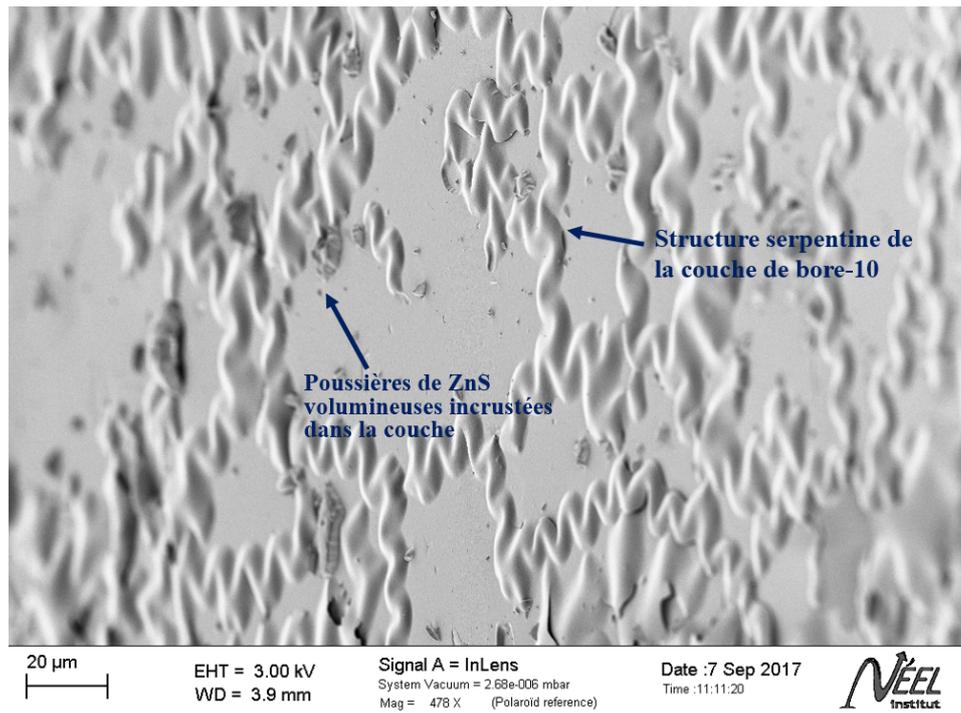


FIGURE 4.21 – Image de la surface de l'échantillon B0012\_Si, détecteur InLens.

L'apparition de cette structure est probablement due à une contrainte de compression dans la couche de  $^{10}\text{B}$ . En effet, lors d'une étude préliminaire sur le dépôt de couche mince de  $^{10}\text{B}$  avant les travaux de cette thèse, il a été observé que la couche mince de  $^{10}\text{B}$  a tendance à se rompre facilement (cf. Figure 4.22) lorsqu'il est déposé directement sur un substrat de silicium, ou lorsque la température du substrat pendant le dépôt n'est pas maintenue à la température ambiante. Le système de refroidissement du réacteur plasma employé pour cette thèse étant amélioré, la température du substrat pendant le dépôt reste à température ambiante, ce qui permet de minimiser cette contrainte dans la couche. De plus, le film de nickel fonctionne comme une couche d'accroche. Ainsi, dans le cas présent, la contrainte de compression se traduit par la formation de cette structure en serpentins sur la surface, au lieu d'un endommagement complet de la couche mince déposée.

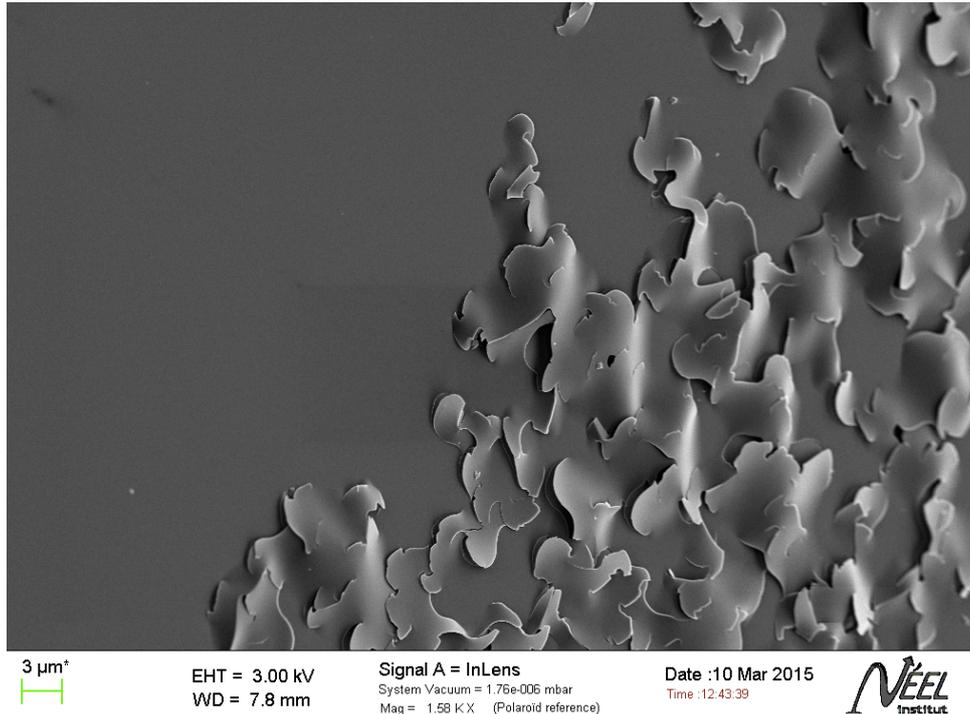


FIGURE 4.22 – Image de la surface d’un échantillon de  $^{10}\text{B}$  sans couche d’accroche en nickel, détecteur InLens.

Toutefois, il y a une différence des coefficients de dilatation thermique  $\alpha$  entre le bore ( $\alpha_B = 5 - 7 \text{ m.m}^{-1} \times 10^6$  à  $25 \text{ }^\circ\text{C}$ ) et le nickel ( $\alpha_{Ni} = 13.4 \text{ m.m}^{-1} \times 10^6$  à  $25 \text{ }^\circ\text{C}$ )[95]. Il est donc concevable de remplacer le nickel par un autre matériau, dans le but de diminuer davantage l’amplitude de cette structure en forme de serpent.

Les matériaux susceptibles de maintenir une performance similaire au nickel et diminuer la contrainte de compression, doivent avoir un coefficient de dilatation proche de celui du bore, et un potentiel de Fermi suffisamment élevé pour empêcher les neutrons de s’échapper de la couche de conversion. Ils doivent également être disponibles sous forme de cible de pulvérisation à un prix raisonnable. Certains matériaux facilement accessibles en cible, tels que Cr, Mo, Ta, Ti, ont un coefficient de dilatation similaire à celui du bore, mais ils ont tous un potentiel de Fermi trop faible en comparaison (cf. Table 4.16).

Un matériau prometteur est l’iridium, qui possède un coefficient proche de celui du bore et un potentiel de Fermi relativement élevé. Des dépôts avec l’iridium n’ont pas pu avoir lieu dans la cadre de cette thèse, en raison du coût élevé des cibles d’iridium. Ce matériau reste une alternative et une solution d’amélioration dans le cas où la contrainte de compression se révèle un facteur limitant pour la résolution du détecteur de UCN.

En examinant un échantillon (B0012\_Saphir) de multicouche de Ni +  $^{10}\text{B}$  + Ti sur un film de scintillateur ZnS(Ag) préalablement déposé sur un substrat de saphir, on constate à nouveau cette structure en forme de serpentins. On remarque aussi que leur présence se concentre surtout dans les zones où il n'y a pas de poussières de ZnS(Ag) (cf. Figure 4.23), puisque la rugosité de surface introduit des discontinuités et réduit l'amplitude de la contrainte dans la couche.

TABLE 4.16 – Coefficient de dilatation thermique  $\alpha$  et potentiel de Fermi  $V_F$  du bore, du nickel, et des matériaux disponibles en cible de pulvérisation et ayant un  $\alpha$  avec une valeur proche de celle du bore.

Matériau	$\alpha$ ( $\text{m.m}^{-1} \times 10^6$ à 25 °C)	$V_F$ (neV)
$^{10}\text{B}$	5-7	-3.3
Ni	13.4	252
Cr	4.9	78.5
Mo	4.8	111.7
Ta	6.3	99.3
Ti	8.6	-48
Ir	6.4	193.1

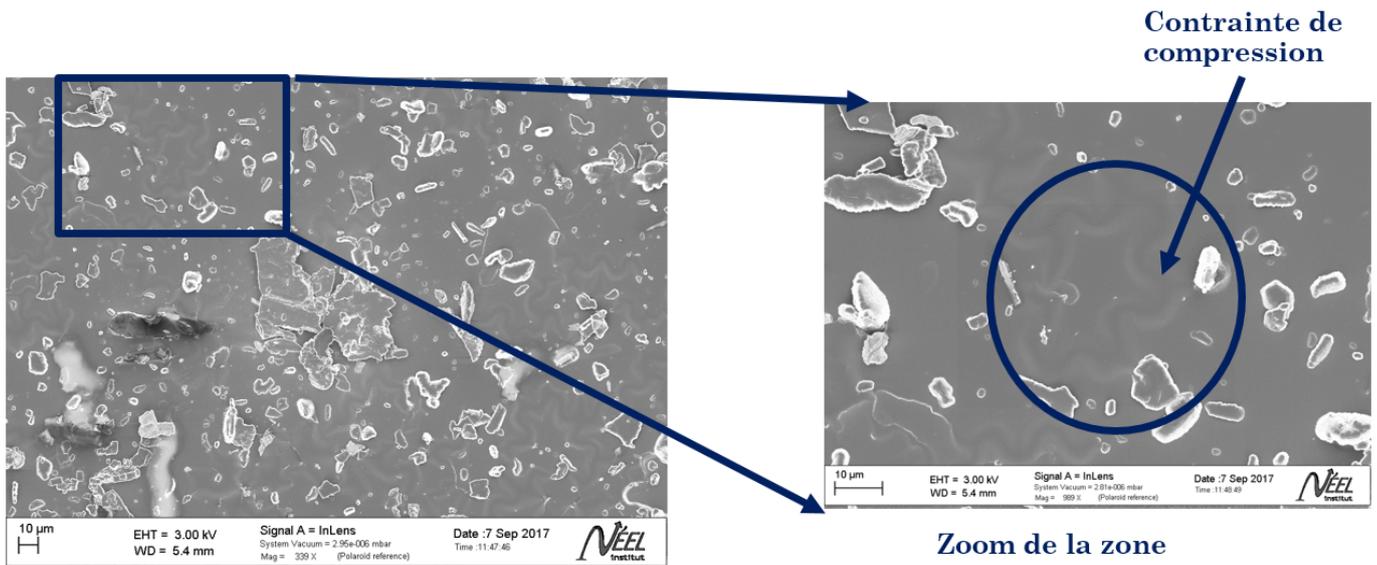


FIGURE 4.23 – Image de la surface de l'échantillon B0012\_Saphir, détecteur InLens.

## Dépôt multicouche de Ni + $^{10}\text{B}$ + Ti sur CCD

Les détecteurs CCD doivent couvrir une surface de détection de  $300\text{ mm} \times 0.5\text{ mm}$  pour photographier la forme de la fonction d'onde, ce qui nécessite 8 CCD alignés. Une campagne de dépôts sur des CCD avait déjà eu lieu antérieurement dans un autre réacteur plasma, mais les 8 dépôts réalisés présentaient des défauts significatifs sur la surface. Ces CCD ont été nettoyés à ultrason pour enlever les multicouches endommagées et pour être réutilisés dans le cadre de mon travail de thèse. Une série de dépôts multicouche de Ni +  $^{10}\text{B}$  + Ti sur 10 CCD a été effectuée pendant la thèse. Des substrats de silicium ont également été collés sur la surface du masque entre deux CCD et au bord du support en cuivre. La mesure d'épaisseur a été effectuée sur ces échantillons en silicium pour estimer celles des multicouches déposées sur les CCD.

La distance cible-substrat est 10.5 cm pour tous les dépôts. Le potentiel de polarisation sur les cibles de Ni et Ti est fixé à 100 V sur leurs générateurs DC respectifs, tandis que le potentiel de polarisation négatif varie entre 320 V et 340 V pour les cibles de  $^{10}\text{B}$  avec une puissance RF de 250 W. La durée de dépôt est fixée à 18 minutes pour le Ti, et varie entre 4h20 et 4h30 pour le  $^{10}\text{B}$  et entre 6 et 23 minutes pour le Ni. Une inspection visuelle des CCD réutilisés sous un microscope binoculaire révèle que la couche de Ni précédemment déposée restait sur la surface de certains CCD, d'où une durée de dépôt de Ni plus courte pour certains dépôts dans cette série (cf. Table 4.17).

Un contact thermique optimal entre le CCD et le support en cuivre reste un facteur important pour l'adhésion des multicouches. La figure 4.24 montre deux CCD 578 et 025 lors de leur sortie du sas après deux dépôts différents : le dépôt B0008 (gauche) où les multicouches ont complètement craqué, et le dépôt B0009 (droite) où elles restent intactes. Il n'y a pas de différence significative entre les paramètres des deux dépôts, mais pour le dépôt B0009, les capteurs CCD ont été enfoncés plus soigneusement dans le support pour assurer un contact thermique optimal.

L'endommagement des multicouches s'est très peu produit pour les dépôts B0011 et B0013 (cf. Figure 4.25), pour lesquels des précautions pour assurer un contact thermique optimal ont été prises lors de l'installation des CCD. On constate seulement des défauts ponctuels sur la surface des capteurs. La mesure d'épaisseur donne 231.0 nm en moyenne sur les échantillons de silicium placés au centre du support entre deux CCD, et 197.6 nm en moyenne sur les échantillons collés au bord du support pendant le dépôt, ce qui signifie une épaisseur d'au moins 200 nm sur les CCD.

TABLE 4.17 – 8 dépôts multicouche de Ni +  $^{10}\text{B}$  + Ti réalisés avec une pression d'argon de 1 mTorr et une distance cible-substrat de 10.5 cm. Les échantillons avec \* étaient vierges et ont suivi le protocole de nettoyage décrit dans la section 4.3.1. Les autres échantillons avaient déjà subi un dépôt précédent et ont été re-nettoyés à ultrason pour un nouveau dépôt.

Dépôt	CCD	$I_{Ni}$ (A)	$t_{Ni}$ (min)	$V_{10B}$ (V)	$t_{10B}$ (h)	$I_{Ti}$ (A)	$t_{Ti}$ (min)
B0005	572	0.107	6	330	4h30	0.303	18
	579	0.107	6	330	4h30	0.303	18
B0006	573	0.107	6	330	4h30	0.301	18
	577	0.107	6	330	4h30	0.301	18
B0007	574	0.107	6	330	4h30	0.301	18
	575	0.107	6	330	4h30	0.301	18
B0008	578*	0.107	23	340	4h25	0.300	18
	025*	0.107	23	340	4h25	0.300	18
B0009	578	0.105	23	340	4h20	0.298	18
	025	0.105	23	340	4h20	0.298	18
B0010	026*	0.105	23	320	4h20	0.304	18
	027*	0.105	23	320	4h20	0.304	18
B0011	026	0.106	15	330	4h20	0.301	18
	027	0.106	15	330	4h20	0.301	18
B0013	574	0.105	23	330	4h20	0.300	18
	575	0.105	23	330	4h20	0.300	18

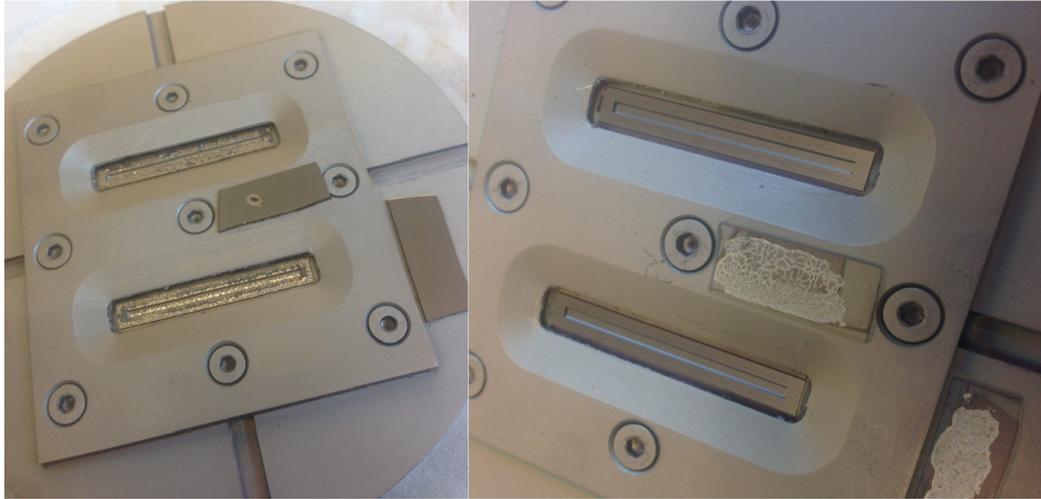


FIGURE 4.24 – Les CCD 578 et 025 sortis du sas après le dépôt B0008 (gauche) et le dépôt B0009 (droite). Les capteurs ont été enfoncés plus soigneusement dans le support pendant la préparation pour le dépôt B0009.



FIGURE 4.25 – Le CCD 027 après le dépôt B0011. Quelques défauts ponctuels de couleur blanche sont visibles.

## Dépôt multicouche de Ni + $^{10}\text{B}$ + Ti sur ZnS(Ag) et CRY18

Une série de 8 dépôts multicouche de Ni +  $^{10}\text{B}$  + Ti a été effectuée sur 5 échantillons de ZnS(Ag) précédemment réalisés sur des substrats de silicium et de saphir (cf. Section 4.1.2), et 2 scintillateurs commerciaux en silicate - CRY18. Deux dépôts multicouche ont également été réalisés sur des substrats de silicium pour calibrer les paramètres de dépôt. La distance cible-substrat est fixée à 10.5 cm pour cette série. Un potentiel de polarisation négatif de 100 V est appliqué par deux générateurs DC sur les cibles de Ni et Ti lors de leur pulvérisation respective. La polarisation des cibles de  $^{10}\text{B}$  est effectuée par un générateur RF avec un potentiel négatif de 300 V, correspondant à une puissance d'environ 112 W.

Un premier dépôt B001\_Si, sur lequel est déposé une couche de Ni puis une couche de Ti, est réalisé. La pulvérisation de chaque élément dure 40 minutes, afin de former des couches plus épaisses et de faciliter la mesure d'épaisseur. La durée de dépôt est ensuite adaptée au fur et à mesure pour le reste de la série selon les épaisseurs mesurées, et les résultats sont reportés dans la table 4.18. On parvient à obtenir une multicouche de Ni +  $^{10}\text{B}$  + Ti avec une épaisseur d'environ 20 nm, 200 nm et 20 nm respectivement.

La figure 4.26 montre deux échantillons de multicouche de Ni +  $^{10}\text{B}$  + Ti : B008\_CRY18-26 (gauche) qui est déposé sur un scintillateur CRY18, et B005\_Saphir (droite) qui est déposé sur un film de ZnS(Ag) avec un substrat de saphir. Des dégâts sur les multicouches peuvent être observés sur le bord circulaire de l'échantillon B008\_CRY18-26, ayant une couleur gris clair, mais le dépôt sur la surface active du scintillateur CRY18 est intact. La surface de l'échantillon B005\_Saphir est visiblement plus rugueuse, mais ceci provient principalement de la rugosité du film de ZnS(Ag) en dessous.

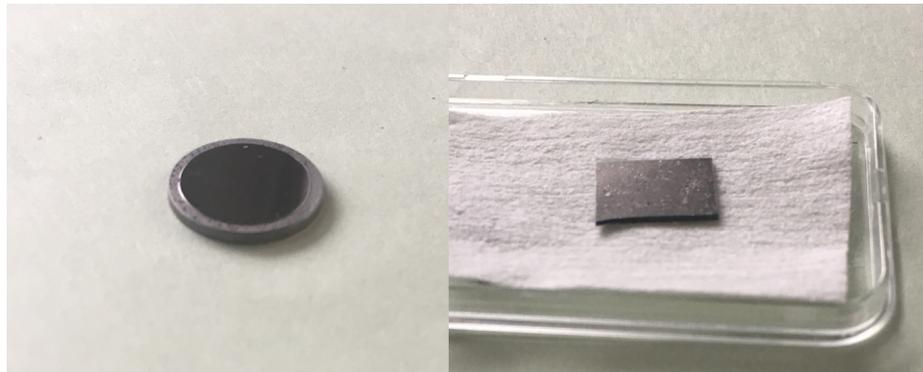


FIGURE 4.26 – Les échantillons de multicouche de Ni +  $^{10}\text{B}$  + Ti : B008\_CRY18-26 (gauche) qui est déposé sur un scintillateur CRY18, et B005\_Saphir (droite) qui est déposé sur une couche de ZnS(Ag) avec un substrat de saphir.

TABLE 4.18 – Série de 8 dépôts multicouche de Ni +  $^{10}\text{B}$  + Ti réalisés avec une pression d'argon de 1 mTorr, sur des échantillons de ZnS(Ag) avec un substrat de saphir, des scintillateurs commerciaux CRY18 et des substrats en silicium. Le potentiel de polarisation négatif appliqué sur les cibles de  $^{10}\text{B}$  par un générateur RF est fixé à 300 V, et à 100 V sur les cibles de Ni et Ti respectivement par deux générateurs DC. Les mesures de l'épaisseur  $e$  ont été effectuées sur les échantillons avec un substrat de Si(100), et les valeurs moyennes  $e$  sont reportées dans la table.

Echantillon	Substrat	$I_{Ni}$ (A)	$t_{Ni}$ (min)	$e_{Ni}$ (nm)	$t_{10B}$ (h)	$e_{10B}$ (nm)	$I_{Ti}$ (A)	$t_{Ti}$ (min)	$e_{Ti}$ (nm)
B001_Si	Si(100)	0.120	41	$53.0 \pm 0.1$			0.325	40	$46.7 \pm 0.1$
B002_Si	Si(100)	0.127	20	$27.9 \pm 0.1$	4	$208.2 \pm 0.01$	0.331	20	$28.8 \pm 0.1$
B003_Si (ZnSAg001)	ZnS(Ag) sur Si(100)	0.123	17	$24.9 \pm 0.01$	4	$204.1 \pm 0.01$	0.338	17	$23.5 \pm 0.01$
B004_Saphir (ZnSAg018_3)	ZnS(Ag) sur saphir	0.121	17	$29.0 \pm 0.01$	4	$187.5 \pm 0.01$	0.332	17	$25.1 \pm 0.01$
B005_Saphir (ZnSAg018_2)	ZnS(Ag) sur saphir	0.122	16	$21.0 \pm 0.01$	4h15	$184.7 \pm 0.01$	0.335	16	$20.5 \pm 0.01$
B006_Saphir (ZnSAg017) (ZnSAg018_4)	ZnS(Ag) sur saphir	0.121	16	22.8	4h15	205.8	0.327	16	20.5
B007_CRY18-25	silicate monocristallin	0.121	16		4h15		0.335	16	
B008_CRY18-26	silicate monocristallin	0.121	16		4h15		0.334	16	

## 4.4 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons présenté les couches minces de ZnS(Ag) et les multicouches de Ni +  $^{10}\text{B}$  + Ti élaborées par le procédé de dépôt par pulvérisation assistée par plasma micro-onde de très basse pression, ainsi que les résultats obtenus par caractérisation MEB.

Pour les couches minces de ZnS(Ag), l'objectif était d'obtenir des échantillons avec au moins  $5 \mu\text{m}$  d'épaisseur sur un substrat de saphir. On constate qu'une vitesse de dépôt d'environ  $1.25 \mu\text{m/h}$  permet d'atteindre cet objectif dans une durée de procédé raisonnable (environ 4 heures) tout en maintenant une adhérence et une qualité structurale optimale. Des rugosités de taille micrométrique sont toutefois observées sur la surface des films. Des tests de scintillation seront donc nécessaires pour vérifier si ceci pourrait limiter la résolution du détecteur, prévue à l'ordre millimétrique.

L'uniformité en épaisseur des couches minces avec une surface de  $5\text{ cm} \times 5\text{ cm}$  a également été examinée. On constate une variation d'environ 10 % en épaisseur du centre au bord sur les échantillons élaborés avec une distance cible-substrat de 13.5 cm et une vitesse de dépôt de  $1.13\ \mu\text{m/h}$ . Cette variation en épaisseur reste acceptable, tant que l'épaisseur dépasse  $5\ \mu\text{m}$  sur toute la surface. Nous testerons l'efficacité de scintillation de nos échantillons et présenterons les résultats obtenus dans le chapitre 5.

Dans ce chapitre, nous avons également démontré la faisabilité du contrôle de la concentration du dopage d'argent des couches minces de ZnS *in situ*. En modifiant la polarisation des cibles d'argent entre 0 V et 20 V, il est possible d'obtenir des films de ZnS avec une concentration atomique d'argent variant de 0.1 % à 2.4 %. Nous étudierons la relation entre la concentration d'argent et l'efficacité de scintillation dans le chapitre 5.

La caractérisation MEB montre une structure colonnaire des couches minces de ZnS dopé Ag *in situ*, similaire à celle des échantillons élaborés à partir d'une cible ZnS(Ag) pré-dopé. Les poussières de taille micrométrique sont également présentes à la surface des scintillateurs. L'analyse EDS révèle aussi la présence des contaminants (Fe, Cr et Ni). Ces éléments peuvent être susceptibles de diminuer l'intensité de scintillation, et nous vérifierons leur effet sur l'efficacité des scintillateurs dans le chapitre 5.

Pour les multicouches Ni +  $^{10}\text{B}$  + Ti, l'objectif est d'obtenir une structure avec 20 nm de Ni, 200 nm de  $^{10}\text{B}$  et 20 nm de Ti. Celle-ci est obtenue par la polarisation successive des cibles de Ni,  $^{10}\text{B}$  et Ti, sans rupture du vide dans la chambre de procédé, grâce au porte-cibles capable de loger plusieurs cibles en même temps. Avec une distance cible-substrat de 10.5 cm, on parvient à obtenir les épaisseurs souhaitées en appliquant une tension négative de 100 V sur les cibles de nickel et de titane, et un potentiel de polarisation RF négatif de 350 V sur les cibles de bore.

Des structures en forme de serpent, voire l'endommagement de l'intégralité des couches minces, sont observées sur la surface des échantillons, ce qui indique la présence de contraintes de pression. Une conduction thermique plus optimale permettrait d'éviter l'endommagement des couches minces, mais la structure en forme de serpent peut persister avec les conditions expérimentales présentées dans ce chapitre. En raison des contraintes de disponibilité des dispositifs, nous n'avons pas pu conclure sur l'impact de ces structures sur la résolution du détecteur, mais des améliorations telles que l'utilisation de l'iridium comme couche d'accroche peuvent être envisagées.

## Chapitre 5

# Scintillation des couches minces de ZnS(Ag)

Dans ce chapitre, nous allons examiner la présence et l'efficacité de scintillation dans les couches minces de ZnS(Ag) réalisées et présentées au chapitre précédent, par pulvérisation assistée par plasma. Nous présenterons d'abord les dispositifs expérimentaux utilisés pour les tests de scintillation. Un test préliminaire est ensuite effectué pour confirmer la présence de scintillation dans les échantillons fabriqués. Puis, plusieurs contrôles de paramètres sont réalisés, afin d'examiner la reproductibilité des tests et la performance des échantillons de scintillateur. Enfin, une étude est réalisée sur l'efficacité de scintillation en fonction de la concentration d'argent dans le ZnS.

### 5.1 Dispositifs expérimentaux

Les tests de scintillation des couches minces de ZnS(Ag) précédemment élaborées (voir section 4.1) sont effectués sur la plateforme de travaux pratiques du LPSC, avec une source de particules alpha et un photomultiplicateur à température ambiante. La figure 5.1 illustre la configuration des dispositifs expérimentaux.

Une plaquette d'américium 241 est utilisée comme la source de particules alpha, avec un taux de comptage d'environ 30 événements par seconde. Les particules émises par la source sont principalement des particules alpha de 5.485 MeV (84.5%) et de 5.442 MeV (13.2%)[96], ainsi que des rayons gamma de 59.5 keV. Etant donné que les alpha issus de la conversion des neutrons par  $^{10}\text{B}$  ont une énergie de 1.47 MeV, il faut réduire l'énergie des alpha sortant de la source d'américium 241 avant leur interaction avec le scintillateur.

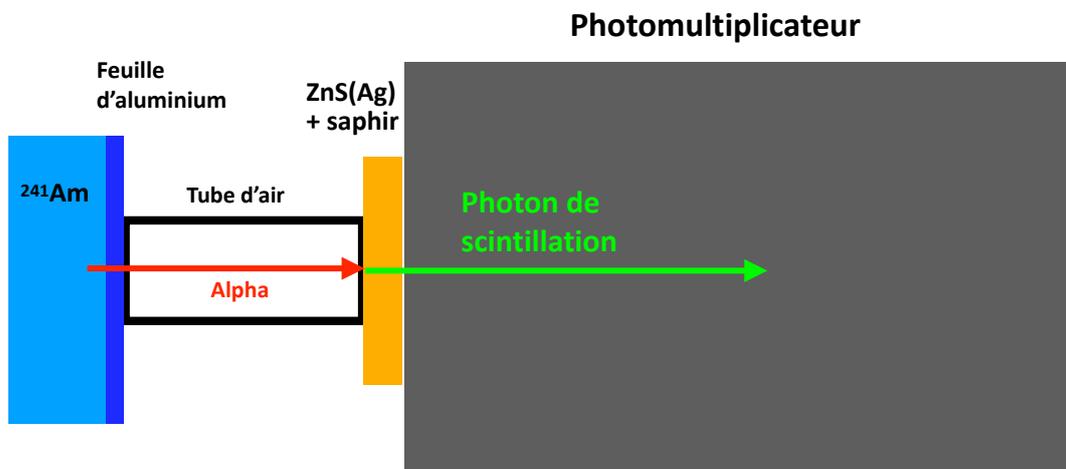


FIGURE 5.1 – Illustration de la configuration des dispositifs expérimentaux pour un test de scintillation sur des couches minces de ZnS(Ag). Les tailles des composants ne sont pas à l'échelle.

Des combinaisons de différents matériaux sont simulées par SRIM (Stopping and Range of Ions in Matter)[97], parmi lesquelles la configuration avec une feuille d'aluminium de  $12\ \mu\text{m}$  et 12 mm d'air permet d'obtenir des particules alpha d'environ 1.4 MeV, comme montré sur la figure 5.2. La distance de 12 mm d'air est assurée par un tube en acier de 0.5 mm de diamètre, positionné entre la source enrobée de la feuille d'aluminium et l'échantillon de ZnS en couche mince. Ce dernier est mis en contact contre un tube photomultiplicateur (PM) XP2020, qui collecte les photons émis par le scintillateur à travers le substrat de saphir. La réponse spectrale d'un PM XP2020 autour de 400 nm le rend bien adapté à la lumière émise par un scintillateur ZnS(Ag).

Le signal du PM est ensuite transmis à un convertisseur analogique numérique (ADC) et un oscilloscope numérique pour le caractériser. Le seuil de déclenchement est fixé à -40 mV. Les spectres en charge sont générés en faisant l'intégration sur le signal enregistré par l'ADC. Un opérateur logique peut être appliqué sur la largeur de la fenêtre de l'oscilloscope numérique pour exclure les composantes lentes. Un seuil minimal de -100 mV peut également être appliqué lors du traitement de signal, afin d'éliminer le bruit électronique comme illustré sur la figure 5.3. Le signal du PM peut aussi être transmis à un analyseur multicanal (AMC) en passant par un amplificateur de spectrométrie. On génère ainsi des spectres en amplitude avec les données enregistrées.

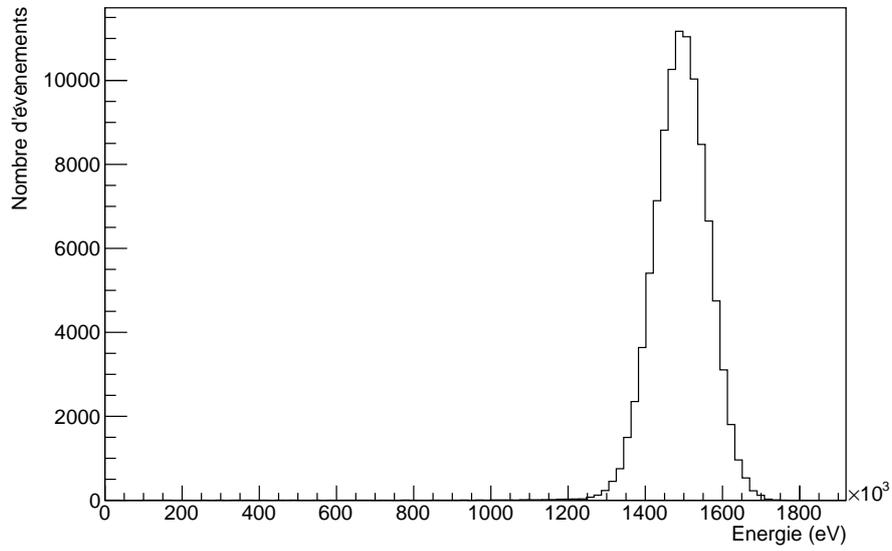


FIGURE 5.2 – Simulation SRIM du spectre en énergie des particules alpha de 5.485 MeV après avoir traversé 12  $\mu\text{m}$  d'Al et 12 mm d'air.

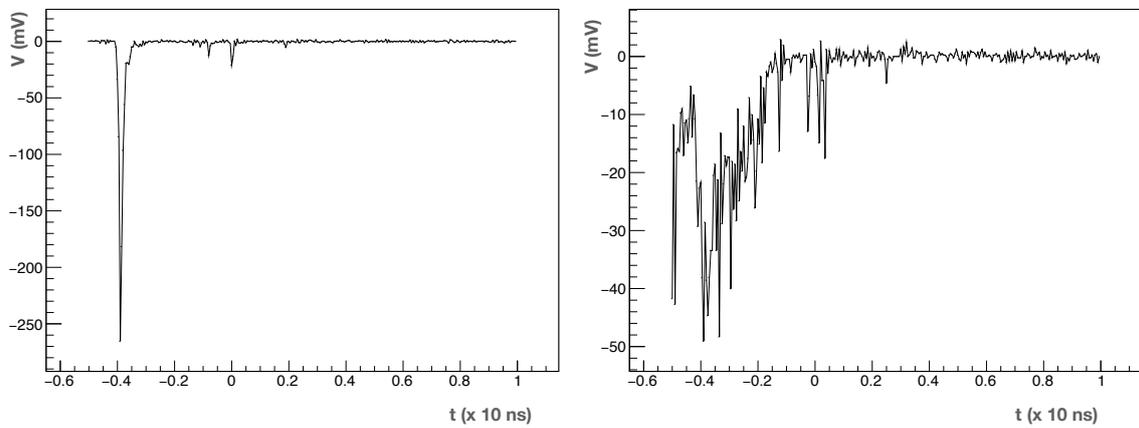


FIGURE 5.3 – Deux signaux enregistrés dans l'oscilloscope numérique. Le signal à gauche dépasse le seuil de -100 mV et est accepté. En revanche, le signal à droite ne satisfait pas à ce critère. Il est donc rejeté.

## 5.2 Test de scintillation préliminaire de ZnS(Ag)

Afin de vérifier la présence de scintillation dans les échantillons de ZnS(Ag) fabriqués par pulvérisation assisté par plasma, un test préliminaire est effectué. Le bruit de fond du tube PM est d'abord enregistré comme référence. Un pic de 0.2 évènements par seconde peut être constaté avec un seuil de -15 mV appliqué (cf. Figure 5.4, courbe noire), et la plupart du bruit est éliminé en appliquant un seuil de -40 mV (courbe rouge).

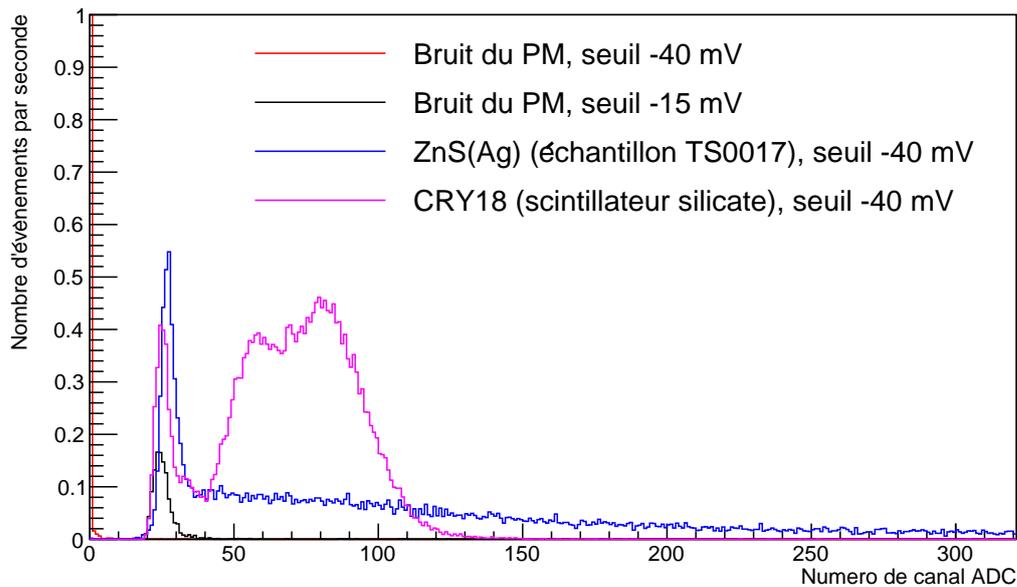


FIGURE 5.4 – Spectres de scintillation de l'échantillon de ZnS(Ag) TS0017\_Saphir (courbe bleue) et d'un scintillateur en silicate CRY18 (magenta) enregistrés avec un seuil de -40 mV, comparés aux bruits de fond du PM dans la boîte noire enregistrés avec un seuil de -40 mV (rouge) et -15 mV (noir) respectivement. Les scintillateurs sont irradiés par des alpha de 1.4 MeV pendant 25 minutes, et une tension de -1800 V est appliquée au PM pendant l'acquisition des données.

L'échantillon TS0017\_Saphir (cf. Section 4.1.2) et un scintillateur en silicate CRY18 sont ensuite irradiés pendant 25 minutes. Leurs spectres de scintillation sont enregistrés avec un seuil de -40 mV. On remarque la présence d'un pic à basse énergie pour ces deux scintillateurs, dont l'origine peut être expliquée par le bruit de fond du PM, puisque sa position se superpose sur celle du bruit enregistré avec un seuil de -15 mV. Le spectre de l'échantillon TS0017 possède une queue qui tend vers la gamme d'énergie plus élevée, ce qui indique la présence des signaux de scintillation. En comparaison, le spectre du scintillateur CRY18, dont le spectre d'émission atteint son maximum autour de 425 nm[90], présente une

bosse bien définie.

Ainsi, le test préliminaire nous confirme la présence des phénomènes de scintillation dans nos couches minces de ZnS(Ag) élaborées par pulvérisation. Mais le manque d'un pic bien défini dans le spectre de scintillation suggère une qualité et une reproductibilité de performance non satisfaisante. Nous étudierons l'impact des différents paramètres expérimentaux sur l'efficacité de scintillation dans la section suivante, afin de déterminer la cause de cette performance non optimale.

## 5.3 Contrôle de paramètres des tests de scintillation

Dans cette section, plusieurs paramètres d'expérience sont mis en examen pour vérifier la reproductibilité des tests de scintillation sur les échantillons de ZnS(Ag) irradiés par des particules alpha. Nous examinons d'abord l'efficacité du tube photomultiplicateur en fonction du positionnement de l'échantillon sur la fenêtre d'entrée. Puis, l'effet des rayons gamma de la source alpha est évalué. L'impact de l'uniformité des échantillons sur la performance de scintillation est également étudié.

### 5.3.1 Efficacité du PM en fonction du positionnement des scintillateurs

Une série de tests de scintillation est réalisée pour vérifier l'efficacité du tube photomultiplicateur en fonction du positionnement des échantillons sur la fenêtre d'entrée du PM. L'échantillon ZnS0042\_Saphir de scintillateur ZnS(Ag) (cf. Section 4.2.2) est utilisé pour cette série. Le point d'impact des particules alpha sur l'échantillon est fixé tout au long de cette série. Cinq positions sur le diamètre horizontal de la fenêtre d'entrée du PM sont choisies pour cette série, avec un écart de 5 mm entre chaque position. La précision de ces positions est assurée par une table de translation, dont la mobilité horizontale est contrôlée par une vis de précision 0.1 mm. Le PM est alimenté à -1700 V, et l'acquisition des données est effectuée sur l'analyseur multicanal avec un seuil de -20 mV pendant 30 minutes pour chaque session.

Comme montré sur la figure 5.5, les spectres de scintillation en échelle logarithmique obtenus aux différentes positions sur le PM présentent des comportements similaires : un pic provenant du bruit électronique et une queue des événements qui s'étend vers la gamme d'énergie plus élevée. Cependant, en comparant le nombre total des événements enregistrés aux différentes positions sur le PM, on remarque une augmentation significative lorsque l'échantillon est positionné au centre ou à l'extrémité gauche du PM. Afin de minimiser cette fluctuation issue du PM, les échantillons seront strictement fixés au centre de la fenêtre d'entrée pendant les tests de scintillations suivants.

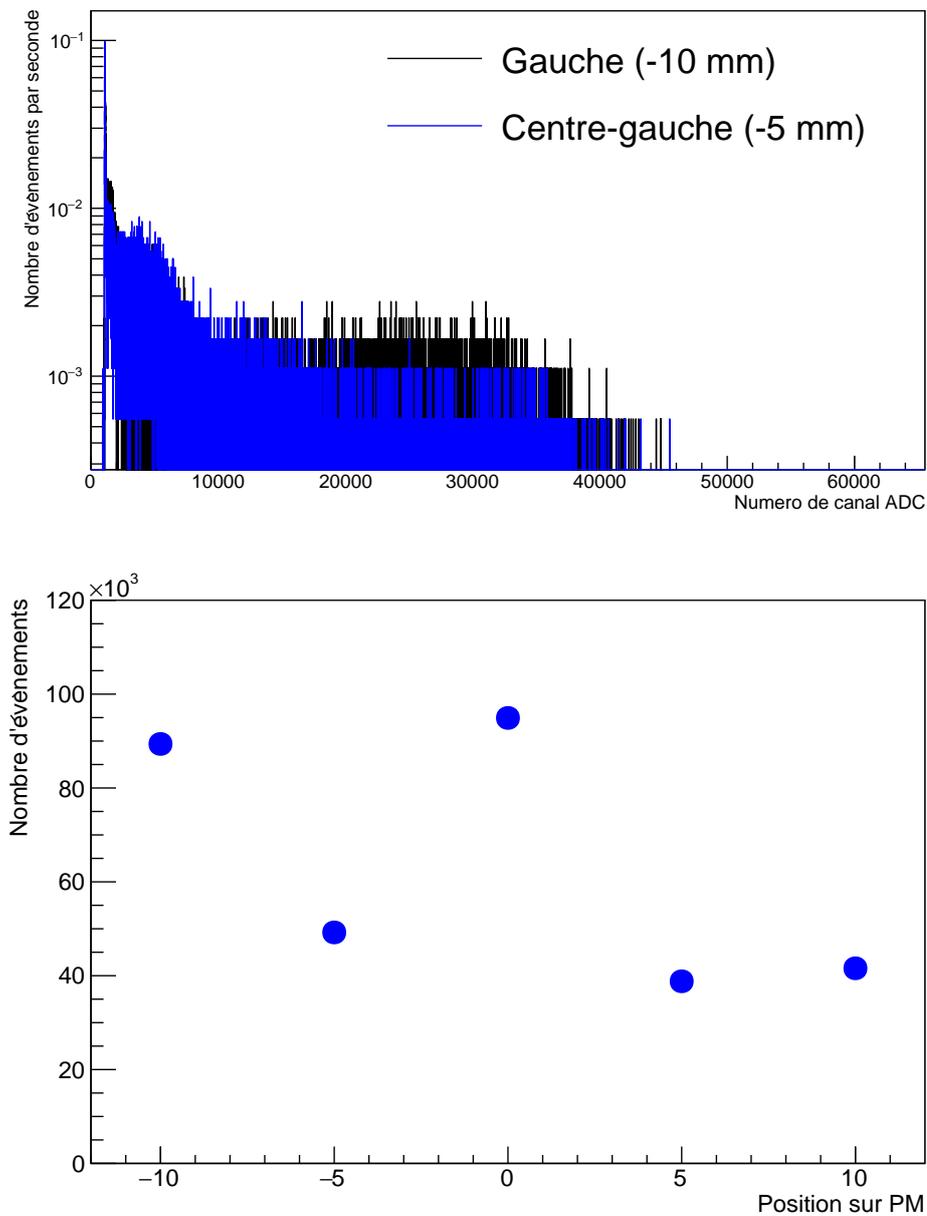


FIGURE 5.5 – Haut : spectre de scintillation en échelle logarithmique de l'échantillon de ZnS(Ag) ZnS0042\_Saphir, enregistré à la position Gauche (courbe noire) et Centre-gauche (bleue) sur la fenêtre d'entrée du PM. Bas : nombre total d'évènements en fonction de la position de l'échantillon sur le diamètre de la fenêtre d'entrée du PM, avec un décalage de 5 mm pour chaque position. Les barres d'erreurs sont trop petites pour être visibles sur le graphe. Pendant chaque session d'acquisition de 30 minutes, l'échantillon est irradié par des alpha de 1.4 MeV et le PM est polarisé à -1700 V.

### 5.3.2 Effets des rayons gamma de la source alpha

En raison de la présence des rayons gamma de 59.5 keV provenant de la désintégration de l'américium 241, un test de scintillation a été effectué pour évaluer leur effet sur les échantillons de ZnS(Ag). Une plaque en plastique d'environ 5 mm d'épaisseur est insérée entre la sortie des alpha de 1.4 MeV et l'échantillon de ZnS(Ag) ZnS0017\_Saphir (cf. Section 4.2.2). Les particules alpha seront entièrement atténuées dans la plaque en plastique, alors que les rayons gamma, plus pénétrants, peuvent atteindre la couche de scintillateur sans atténuation significative.

La figure 5.6 montre le spectre de scintillation de l'échantillon ZnS0017\_Saphir obtenu dans cette condition (courbe bleue), et sa comparaison avec le spectre obtenu en irradiant le scintillateur directement avec des alpha de 1.4 MeV (courbe rouge). On constate que les événements produits par des rayons gamma ont une énergie beaucoup plus faible que les scintillations provoquées par des particules alpha. Le nombre d'événements est aussi beaucoup plus faible. On peut donc considérer que l'effet des rayons gamma de notre source d'américium 241 est négligeable sur nos scintillateurs de ZnS(Ag).

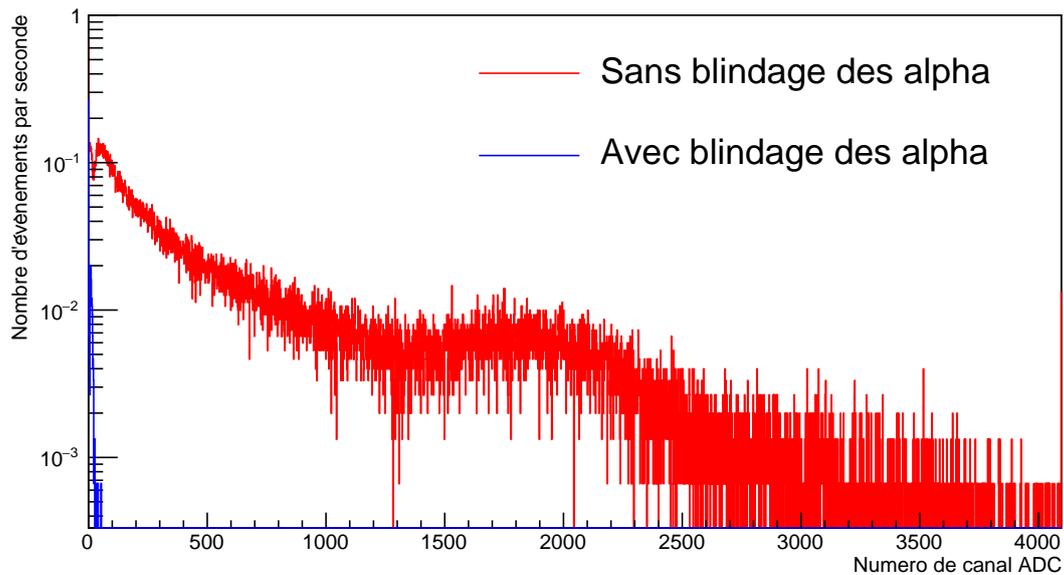


FIGURE 5.6 – Spectre de scintillation en échelle logarithmique de l'échantillon de ZnS(Ag) ZnS0017\_Saphir directement irradié par des alpha de 1.4 MeV (courbe rouge) avec un seuil de -40 mV, et à travers une plaque en plastique d'environ 500 mm d'épaisseur (bleu). Le PM est polarisé à -1800 V pendant l'acquisition des données.

### 5.3.3 Homogénéité des échantillons de ZnS(Ag)

Une nouvelle série de tests est effectuée pour étudier l'efficacité de scintillation dans différentes zones sur la surface des couches minces de ZnS(Ag), afin de vérifier l'homogénéité des échantillons fabriqués par pulvérisation assistée par plasma.

Plusieurs échantillons de ZnS dopé Ag *in situ* pendant le dépôt (cf. Section 4.2.2) sont utilisés pour cette étude. On divise la surface du substrat de saphir de dimensions 10 mm × 10 mm en 4 zones carrées de 5 mm × 5 mm, nommées de 1 à 4. Les spectres de scintillation obtenus en les irradiant avec des alpha de 1.4 MeV sont ensuite comparés. Les mêmes paramètres expérimentaux décrits dans la section 5.3.1 sont utilisés, et les échantillons sont maintenus au centre de la fenêtre d'entrée du PM pour cette série de tests.

La figure 5.7 (haut) montre les spectres de scintillation en échelle logarithmique de l'échantillon ZnS0031\_Saphir, lorsqu'il est irradié pendant 30 minutes sur deux zones en position diagonale. Une différence de comportement entre ces deux spectres peut être observée : un des spectres s'étend vers la gamme d'énergie plus élevée, alors que l'autre enregistre plus d'événements de scintillation.

En comparant le nombre total d'événements de chacune des 4 zones, on note qu'il y a en effet une fluctuation de ce nombre entre les zones différentes, voire une différence dans la même zone. En effet, du fait que le diamètre du tube de sortie des alpha est inférieur à 4 mm, le flux des alpha arrivant sur le scintillateur ne couvre pas la totalité de la surface de chaque zone. Par conséquent, on n'est pas capable d'assurer la même surface exacte irradiée pendant chaque prise de données. Si la qualité du scintillateur n'est pas parfaitement homogène, comme nous avons observé dans la section 4.2.2, une variation des spectres obtenus entre différentes sessions d'acquisition est très probable, ce qui est notre cas pour la plupart des échantillons réalisés par pulvérisation.

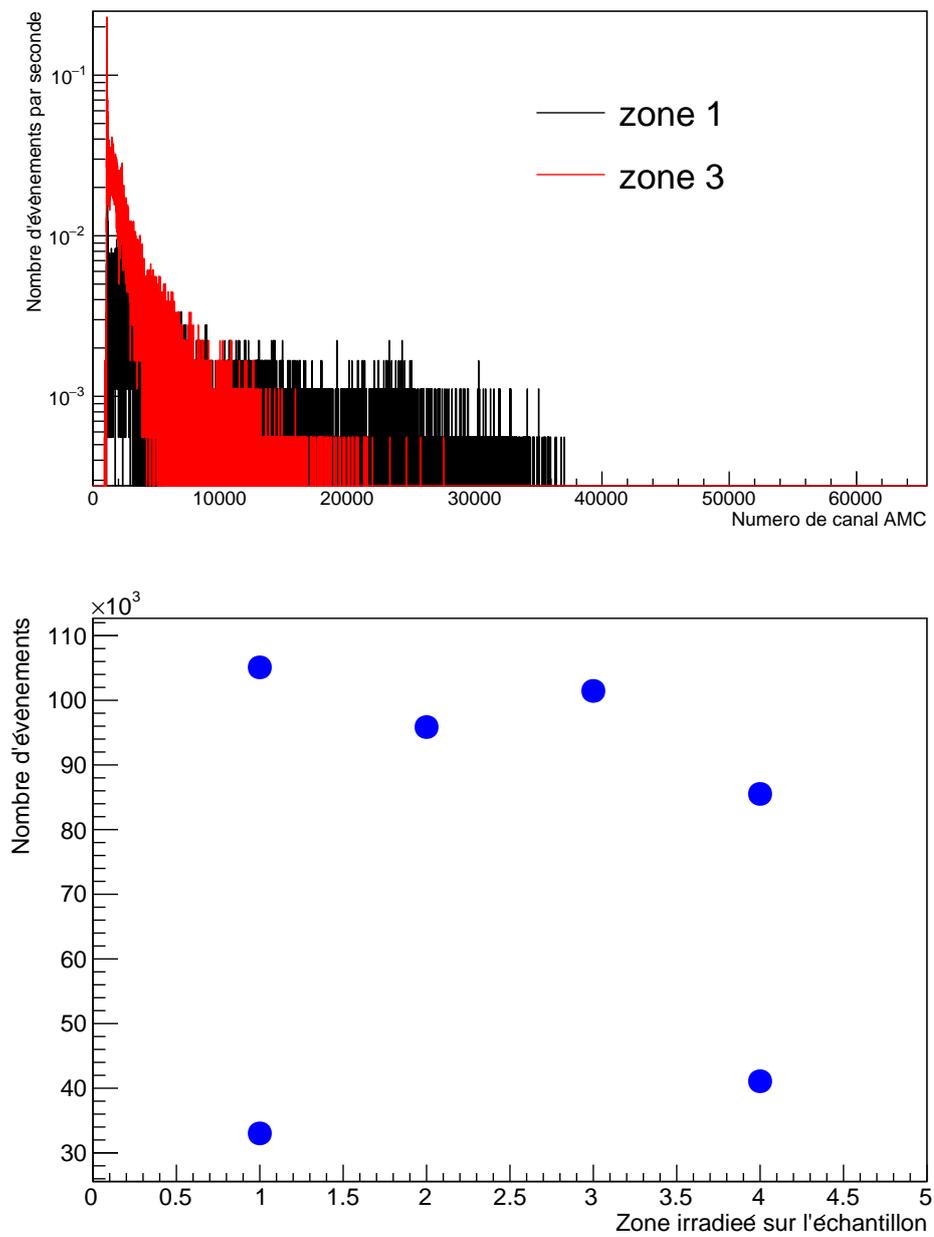


FIGURE 5.7 – Haut : spectre de scintillation en échelle logarithmique de l'échantillon de ZnS(Ag) ZnS0031\_Saphir, irradié par des alpha de 1.4 MeV à deux zones différentes sur la surface. Bas : nombre total d'évènements en fonction des différentes zones sur la surface de l'échantillon ZnS0031\_Saphir. Les zones sont numérotées de 1 à 4. Le PM est alimenté à -1700 V pendant chaque session d'acquisition qui dure 30 minutes. Les barres d'erreur sont trop petites pour être visibles sur le graphe.

## 5.4 Efficacité de scintillation de ZnS en fonction de la concentration d'Ag

Une série de sessions d'acquisition, visant à déterminer l'efficacité de scintillation de ZnS en fonction de leurs concentrations d'argent, sont effectuées. Cinq échantillons de ZnS dopé Ag *in situ* lors du dépôt, avec leurs concentrations atomiques d'argent déterminées par MEB de 0.1% à 2.5% (détaillé dans les sections 4.2.2 et 4.2.3), sont irradiés par des particules alpha de 1.4 MeV. Un échantillon élaboré avec une cible de ZnS(Ag) pré-dopé et avec une concentration déterminée par MEB à 0.5% est également utilisé comme référence. La figure 5.8 montre le nombre total des évènements enregistrés en fonction de leurs concentrations d'argent.

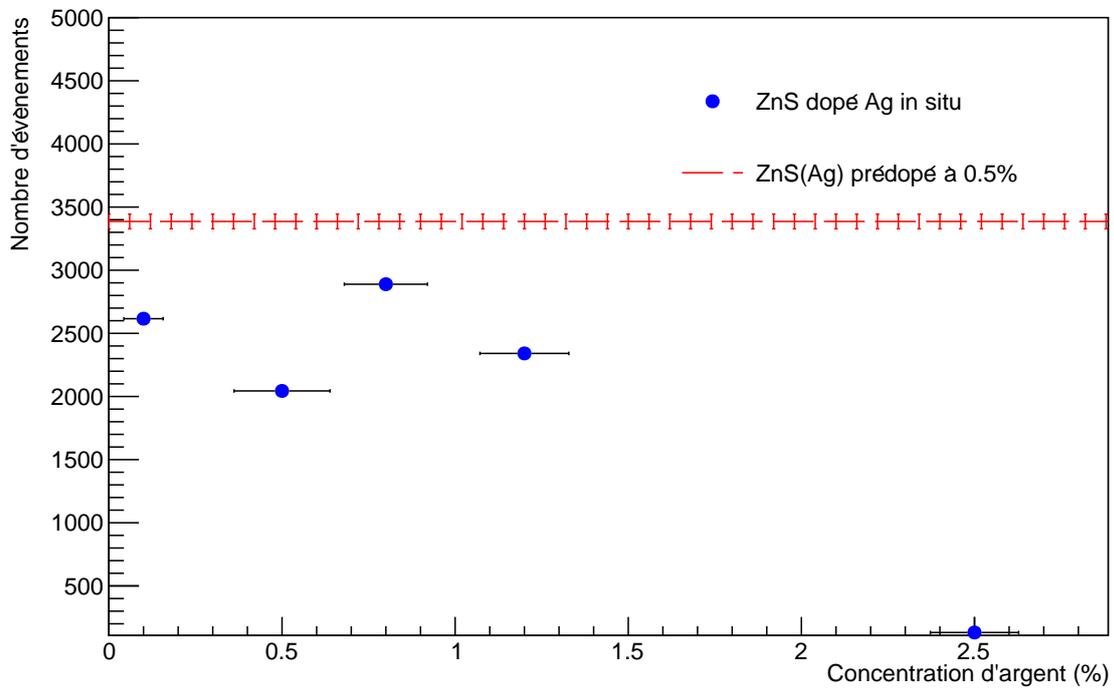


FIGURE 5.8 – Nombre total des évènements enregistrés sur les échantillons de ZnS(Ag) irradiés par des particules alpha de 1.4 MeV, en fonction de leurs concentrations atomiques d'argent. Cinq échantillons sont dopés Ag *in situ* pendant dépôt, avec leurs concentrations atomiques déterminées de 0.1% à 2.5%, ainsi qu'un dernier échantillon élaboré par une cible de ZnS(Ag) pré-dopé, avec sa concentration atomique d'argent déterminée à 0.5%. Le PM est alimenté à -1850 V pendant les sessions d'acquisition de 20 minutes.

On constate que l'échantillon réalisé avec une cible de ZnS(Ag) pré-dopé produit le plus d'évènements de scintillation, malgré la présence de Fe et Ni dans la couche de scintillateur. Parmi les échantillons dopé Ag *in situ*, on observe une fluctuation de l'efficacité de scintillation entre les concentrations atomiques d'argent de 0.1% à 1.2%, puis une diminution significative à la concentration de 2.5%. En raison de la non-uniformité de nos échantillons, ces résultats ne sont pas suffisants pour déterminer une relation définitive entre l'efficacité de scintillation et la concentration d'argent pour l'intervalle entre 0.1% et 1.2%. Mais la réduction importante des évènements de scintillation autour de 2.5% suggère une limite supérieure du dopage d'argent pour un scintillateur de ZnS autour de ou inférieure à cette valeur.

Pour les scintillateurs de ZnS(Ag) industriels, la concentration d'argent n'est pas un paramètre communiqué par défaut[98, 99]. Dans la littérature, la concentration atomique optimale en général est citée à 0.01%[62], ou de l'ordre de 0.12% et 0.2%[54]. Les concentrations atomiques de 0.01%[63], ainsi qu'entre 0.005% et 0.03%[64], ont été citées dans les études de radioluminescence (RL), mais il n'y a pas de scintillation observée. Les concentrations atomiques de 0.01%[63] à 1%[65], ainsi qu'une concentration massique de 10%[66] (soit une concentration atomique de 9.2%) ont également été citées dans les études de photoluminescence (PL). Il a été noté que l'intensité de PL décroît avec l'augmentation de la concentration massique d'argent de 1% à 10%[66] (soit une concentration atomique de 0.92% à 9.2%), ce qui est cohérent avec l'observation sur nos échantillons.

La cause de cet effet de quenching avec la croissance de concentration d'argent peut être attribuée à la recombinaison Auger[54], dans laquelle les porteurs de charge sont montés à un état d'énergie plus élevé au lieu de subir une recombinaison radiative. Le taux de ce processus augmente avec la densité de porteurs de charge[100], qui est elle-même influencée par la concentration des dopants. La diminution de la taille des grains et l'augmentation des joints de grains avec la croissance de la concentration d'argent ont également été considérées comme un facteur de la diminution de luminosité[66], mais nous n'avons pas pu vérifier cette hypothèse avec nos échantillons, en raison des contraintes à l'accès aux dispositifs de caractérisation.

## 5.5 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons présenté les résultats des tests de scintillation sur les échantillons de ZnS(Ag) fabriqués par dépôt par pulvérisation assistée par plasma. Un test préliminaire nous confirme la présence des phénomènes de scintillation dans nos échantillons, mais le spectre en énergie ne présente pas de pic caractéristique d'un scintillateur de ZnS. Plusieurs contrôles de paramètres expérimentaux par la suite révèlent que la non uniformité de la surface des échantillons s'avère problématique pour une reproductibilité satisfaisante du spectre de scintillation.

Une étude sur l'efficacité de scintillation en fonction de la concentration d'argent est également réalisée. En raison de la non-reproductibilité expérimentale, nous n'avons pas pu établir une relation entre ces deux paramètres de manière qualitative pour les concentrations d'argent entre 0.1% à 1.2%, mais une réduction importante de l'efficacité de scintillation est observée pour une concentration de 2.5%, ce qui implique une limite supérieure du dopage au voisinage de cette valeur, cohérente avec la littérature.

La présence de scintillation dans nos échantillons de ZnS(Ag) élaborés par dépôt par pulvérisation est encourageante, mais une meilleure reproductibilité du spectre de scintillation est importante pour obtenir une performance optimale du détecteur. Des études plus approfondies sur les paramètres du dépôt par pulvérisation peuvent être envisagées pour améliorer l'uniformité de la surface du scintillateur.

Dans le contexte d'un détecteur sensible à la position, le scintillateur que nous fabriquons sert à convertir les particules chargées en lumière de scintillation, qui sera collectée par un réseau de fibres optiques, puis détectée par un photomultiplicateur. Le réseau de fibres optiques, qui est le composant clé permettant la détermination de la position d'impact du neutron incident, ainsi que l'algorithme qui permet la reconstruction du centre de masse, seront présentés et discutés au chapitre suivant.

## Chapitre 6

# Réseau de fibres optiques pour le détecteur de neutrons sensible à la position

Après la conversion du neutron incident en particules chargées, ainsi que le dépôt d'énergie de ces dernières dans le scintillateur, la lumière de scintillation traverse le substrat de saphir transparent pour être collectée par un tube photomultiplicateur à travers un réseau de fibres optiques latérales. La reconstruction du centre de masse des événements permet de repérer les points d'impact des neutrons incidents, ainsi leur hauteur de chute libre.

Un prototype d'un tel réseau de fibres optiques, ainsi qu'un logiciel de traitement de signal qui y est dédié, ont déjà été développés par le service détecteurs de l'ILL, et nous les présenterons d'abord dans ce chapitre. La suite de ce chapitre se focalisera sur un algorithme développé pendant cette thèse, que nous intégrons dans le logiciel de traitement de signal. L'algorithme cherche à identifier les signaux des photoélectrons captés par chaque fibre optique, ce qui permettra de retrouver la position d'impact des neutrons incidents. Nous présenterons le principe de l'algorithme, ainsi que l'étude sur plusieurs paramètres pour améliorer son efficacité. Sa performance en pratique, avec des tests de scintillation sur le prototype du réseau de fibres, sera également discutée.

## 6.1 Prototypé du réseau de fibres optiques

Le prototype du réseau de fibres optiques sur lequel on effectue des tests, a été construit en 2014 pendant la thèse de D. Roulier. Il se compose de 64 fibres vertes de 1 mm de diamètre du modèle Y-11(200) Kuraray[101], assemblées dans une boîte noire étanche à la lumière, et alignées latéralement sur un plan de 64 mm  $\times$  64 mm. Leurs extrémités polies sont connectées à une matrice carrée 8  $\times$  8 adaptée à la géométrie des photomultiplicateurs à l'extérieur de la boîte noire (cf. Figure 6.1). Un photomultiplicateur peut être mis en place à chaque extrémité du réseau de fibres.



FIGURE 6.1 – Prototypé du réseau de fibres optiques dans la boîte étanche à la lumière.

Pour les tests effectués pendant cette thèse, un seul photomultiplicateur Hamamatsu H7546A-300[69] est connecté au dispositif. Les signaux de 8 voies individuelles sont acquis, provenant des 7 fibres optiques voisines et la dernière dynode du photomultiplicateur. Le signal de la dynode correspond à l'ensemble des signaux transmis par les fibres optiques. Il sert de trigger pour l'acquisition des signaux.

Les signaux du photomultiplicateur sont processés par la puce MAROC3 du laboratoire Omega de l'IN2P3, déjà intégrée sur la carte d'acquisition qui inclut également une puce FPGA. Puis, les données sont récupérées par USB vers l'interface d'acquisition AcqirisMAQS[71]. Le fichier de sortie produit par AcqirisMAQS peut ensuite être processé par un logiciel de traitement de signal dédié, développé par D. Roulier en langage python. Ce logiciel permet de visualiser les évènements de manière individuelle sur chaque fibre optique (cf. Figure 6.2) et de produire un fichier ROOT[102] pour l'analyse statistique des données. Ce dernier nous permettra d'extraire les informations pertinentes pour la reconstruction du centre de masse des évènements.

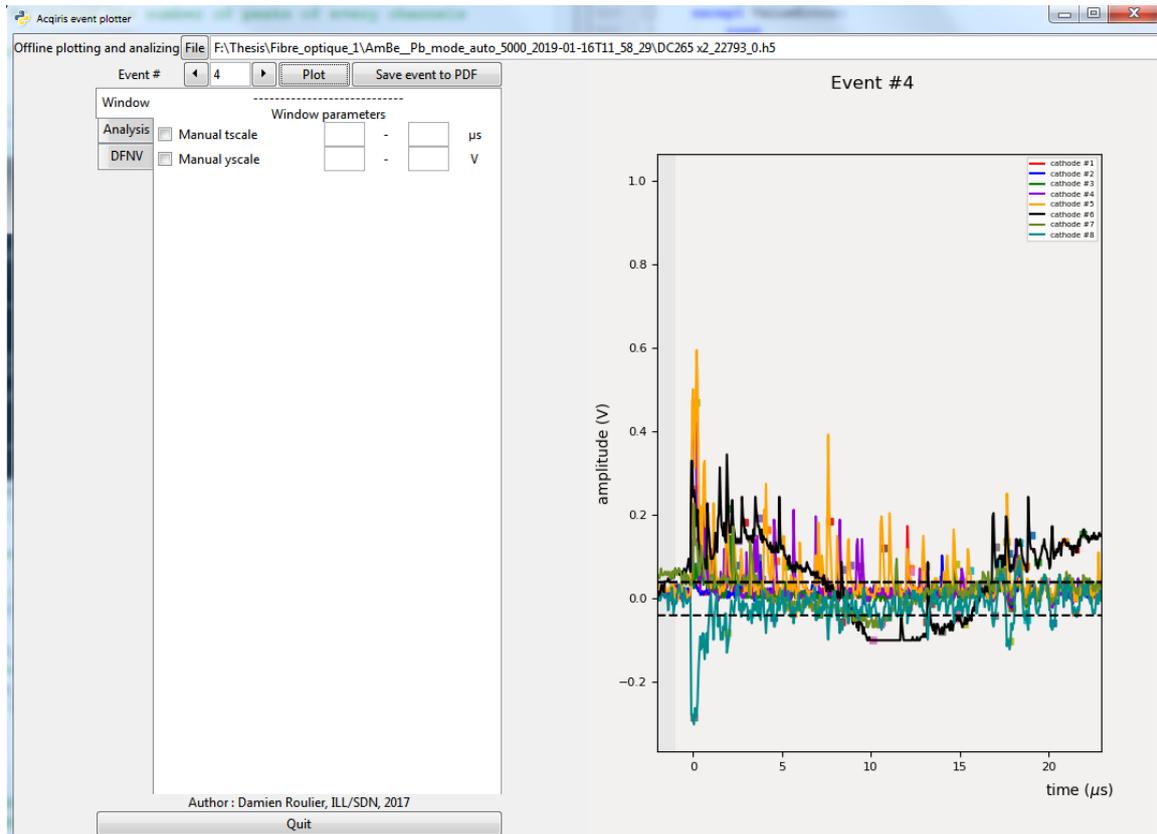


FIGURE 6.2 – Interface du logiciel de traitement de signal hdf5, avec visualisation d'un évènement de scintillation.

Pour les tests de scintillation sur le prototype du réseau de fibres optiques, on utilise une plaque de ZnS(Ag) dopé  $^6\text{Li}$  (EJ-426)[103] de dimensions  $64 \text{ mm} \times 64 \text{ mm} \times 320 \mu\text{m}$ . Elle est mise en contact avec les fibres, et irradiée par une source de neutrons américium-béryllium (AmBe). La source est positionnée contre la paroi de la boîte noire pendant l'acquisition. Ceci fait que la distance entre la source de neutrons et la plaque de ZnS(Ag) dopé au  $^6\text{Li}$  est d'environ 20 cm.

Les paramètres de mesures dans le logiciel d'acquisition AcqirisMAQS restent constants pour toutes les sessions d'acquisition, avec le seuil de déclenchement à 0.5 V pour les fibres optiques et à -0.2 V pour la dynode. La fréquence d'échantillonnage est 20 MS/s avec une fenêtre d'échantillonnage de  $25 \mu\text{s}$ . La tension appliquée sur le tube PM est -700 V.

## 6.2 Algorithme d'identification des photoélectrons

Les travaux réalisés sur le logiciel de traitement de signal dédié au prototype du réseau de fibres optiques, en collaboration avec D. Roulier, visent à l'améliorer en intégrant un algorithme capable de reconstruire le centre de masse des événements à partir de la lumière de scintillation captée et transmise par les fibres optiques. Deux méthodes ont été proposées : on peut choisir d'effectuer une intégration de la charge, ou de compter le nombre de photoélectrons enregistrés sur chaque fibre, comme l'exemple montré sur la figure 6.3.

Des simulations et des tests ont été réalisés par D. Roulier (cf. Figure 6.4). Les résultats montrent que ces deux méthodes ont une efficacité similaire sur la reconstruction du centre de masse des événements[56]. La méthode de comptage des photoélectrons, étant plus intuitive pendant le développement de l'algorithme correspondant, est choisie pour être intégrée dans le logiciel de traitement.

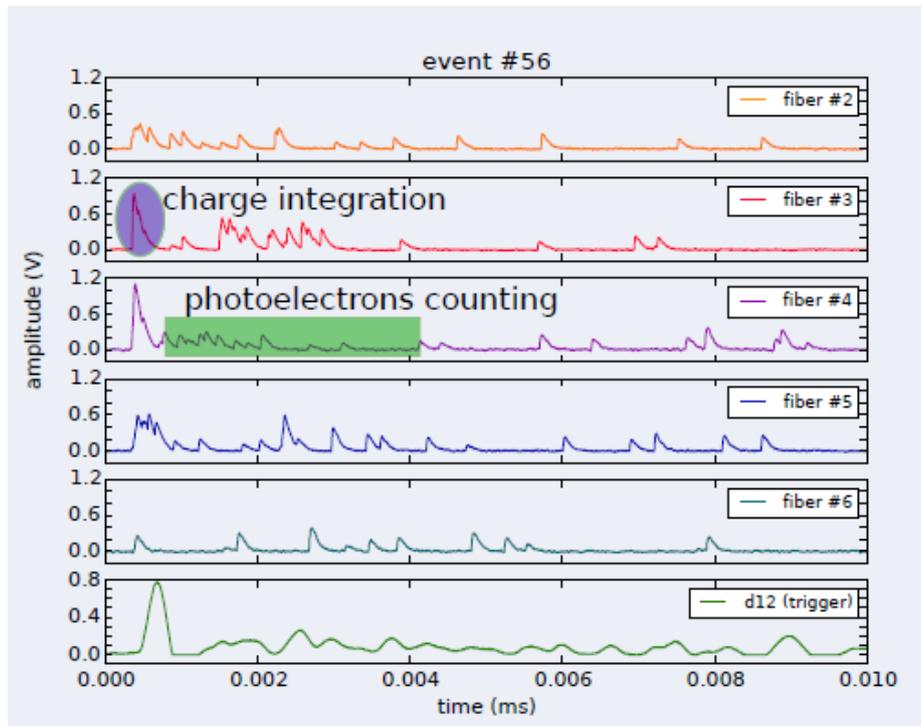


FIGURE 6.3 – Exemple de l'intégration de la charge et du comptage des photoélectrons d'un événement enregistré sur les fibres optiques. Image du poster de D. Roulier et B. Guerard, ILL.

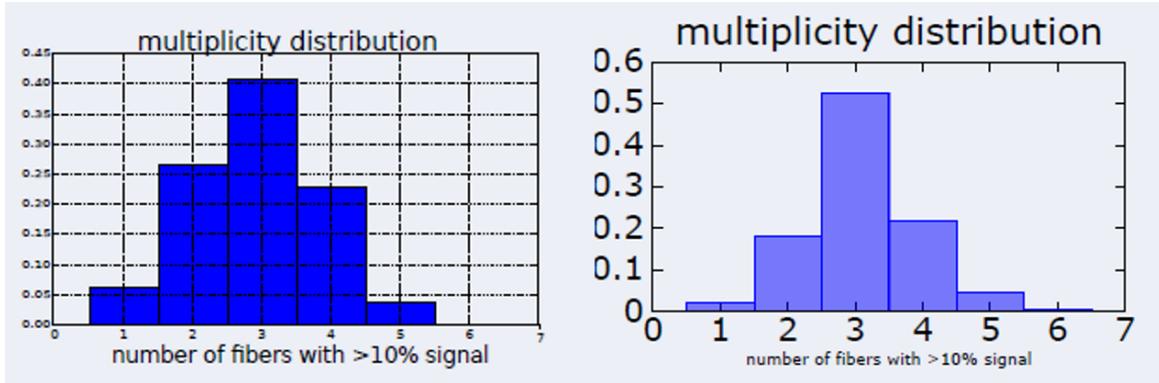


FIGURE 6.4 – Reconstruction du centre de masse avec les méthodes de comptage de photoélectrons (gauche) et d’intégration de la charge (droite). Tests réalisés avec des neutrons de 0.25 nm à l’ILL. Image du poster de D. Roulier et B. Guerard, ILL.

### 6.2.1 Principe de l’algorithme

Comme montrés sur les figures 6.2 et 6.3, les signaux de photoélectrons se manifestent comme des pics successifs. On vise donc à identifier ces maxima locaux avec l’algorithme, et à obtenir les valeurs et les indices des maxima identifiés.

L’algorithme est adapté d’un script MATLAB d’Eli Billauer[104]. Il ne cherche pas les points où la dérivée s’annule, car une telle méthode identifie parfois des points qui ne correspondent pas à de vrais extréma locaux, induisant de fausses détections. Au lieu de cela, la stratégie adoptée consiste en une comparaison directe des valeurs des points de mesure sur un intervalle défini. Le point avec la valeur la plus importante dans cet intervalle est donc logiquement le maximum local. Le processus se répète dans l’intervalle suivant grâce à une boucle, jusqu’à ce qu’on parvienne à identifier la position et l’amplitude de tous les maxima locaux. Par conséquent, la largeur de l’intervalle aura un impact sur l’efficacité de l’identification. Un intervalle trop petit causera de fausses détections des maxima locaux, alors qu’un intervalle trop large pourra manquer de vrais signaux. Cette largeur est donc un des paramètres que l’on étudiera pour l’optimisation de l’algorithme.

Avant le processus de l’identification des maxima locaux, l’algorithme effectue également une convolution pour filtrer une partie des fluctuations. La fenêtre de la moyenne mobile pour cette opération joue donc un rôle non négligeable dans l’identification des signaux : une largeur de la fenêtre trop importante risque de supprimer une partie des signaux désirés, alors qu’une fenêtre trop petite ne sera pas efficace pour filtrer les bruits. Ainsi, elle aussi fait partie des paramètres à étudier pour améliorer l’algorithme.

D'autres paramètres, tels que les seuils sur la hauteur et la largeur des signaux initialement identifiés, sont également étudiés pour minimiser les fausses détections. L'impact des paramètres susceptibles d'améliorer l'efficacité de l'algorithme sera discuté en détail dans la section suivante.

## 6.2.2 Amélioration de l'algorithme

Dans cette section, on étudie l'impact des différents paramètres de l'algorithme sur l'efficacité d'identification des photoélectrons. Une série de tests est réalisée sur le prototype du réseau de fibres optiques, avec 5000 événements enregistrés pour chaque session.

Trois scénarios ont été mis en place. Le scintillateur est d'abord irradié par la source de neutrons, positionnée adjacente à la boîte étanche à la lumière. Les données acquises avec cette configuration sont utilisées comme base pour évaluer la performance initiale de l'algorithme, ainsi que son amélioration.

Le scintillateur est ensuite irradié avec un écran de Pb devant la source pour réduire les événements des rayons X. Puis, l'écran en Pb est remplacé par un écran de  $B_4C$ , afin d'éliminer les neutrons. Ces deux configurations permettent d'étudier les signaux détectés et la performance de l'algorithme en absence de rayons X et de neutrons respectivement.

### Performance initiale de l'algorithme

Pour évaluer la performance initiale de l'algorithme, les données enregistrées pendant l'irradiation directe du scintillateur aux neutrons, sans écran de Pb ni de  $B_4C$ , sont d'abord utilisées. Les deux variables de l'algorithme,  $N$  qui est la largeur de la fenêtre de la moyenne mobile, et  $X$  qui est la largeur de l'intervalle dans lequel on détermine le maximum local pour chaque boucle, sont initialement fixées à 6 et 10 respectivement.

La figure 6.5 présente un événement de photoélectrons capté sur une des fibres optiques du réseau, ainsi qu'un événement dominé par du bruit. On constate que l'algorithme est capable d'identifier la plupart des signaux de photoélectrons, marqués par les carreaux sur la figure. On note toutefois que tous les signaux de photoélectrons ne sont pas reconnus par l'algorithme, ce qui peut diminuer l'efficacité de la reconstruction de centre de masse. On remarque également que l'algorithme parvient à identifier de nombreux maxima locaux dans l'événement dominé par du bruit. Ce sont ces fausses détections que l'on cherche à minimiser, en modifiant certains paramètres ou en introduisant des seuils dans l'algorithme.

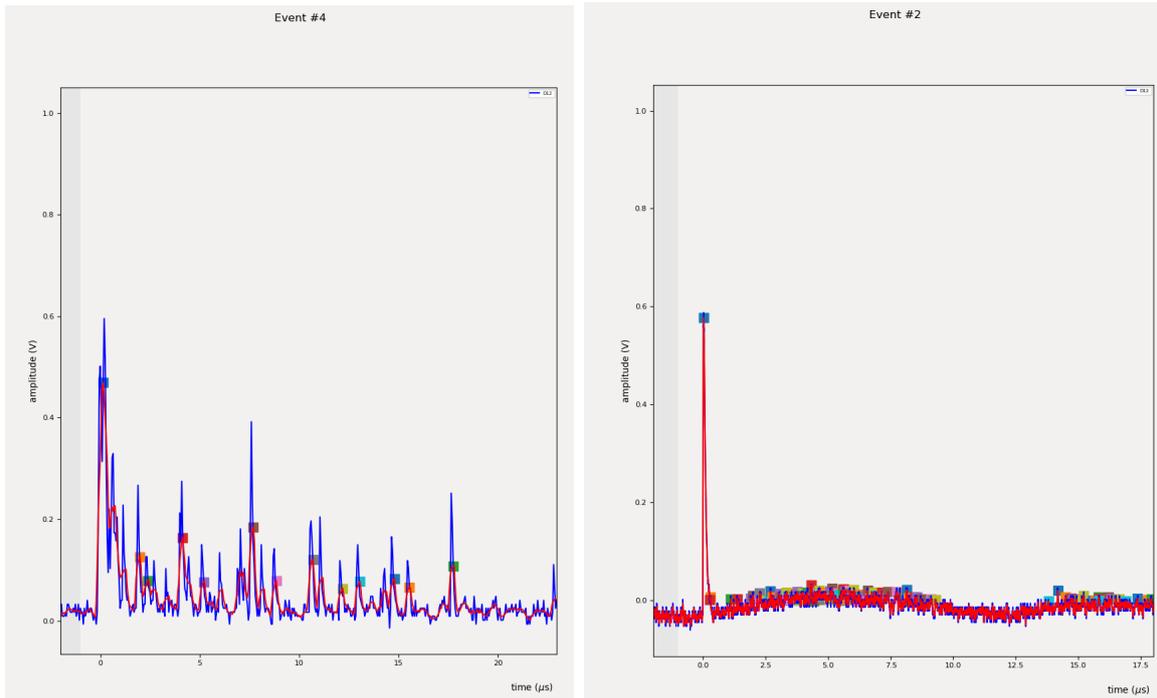


FIGURE 6.5 – L'évènement de scintillation No.4 capté sur la fibre No.5 (gauche), et l'évènement No.2 enregistré sur la fibre No.7 qui provient du bruit électronique (droite). Les courbes bleues sont les signaux enregistrés. Les courbes rouges représentent les courbes de convolution. Les maxima locaux identifiés par l'algorithme sont marqués par des carrés.

### Impact de la largeur de la fenêtre de la moyenne mobile $N$

Une première tentative pour minimiser les fausses identifications du bruit, est d'augmenter la largeur de la fenêtre de la moyenne mobile  $N$ . Ceci permet de supprimer davantage les fluctuations sur la courbe du signal. La figure 6.6 montre un évènement de bruit (gauche) et un évènement de scintillation (droite), identifiés par l'algorithme avec  $N = 20$  au lieu de  $N = 6$  pendant l'évaluation initiale. On constate que cette valeur de  $N$  n'est pas suffisamment élevée pour atteindre une diminution significative des bruits identifiés, alors que l'efficacité pour identifier les vrais signaux de photoélectrons subit une forte diminution. L'augmentation seule de la fenêtre de la moyenne mobile  $N$  n'est donc pas une solution efficace.

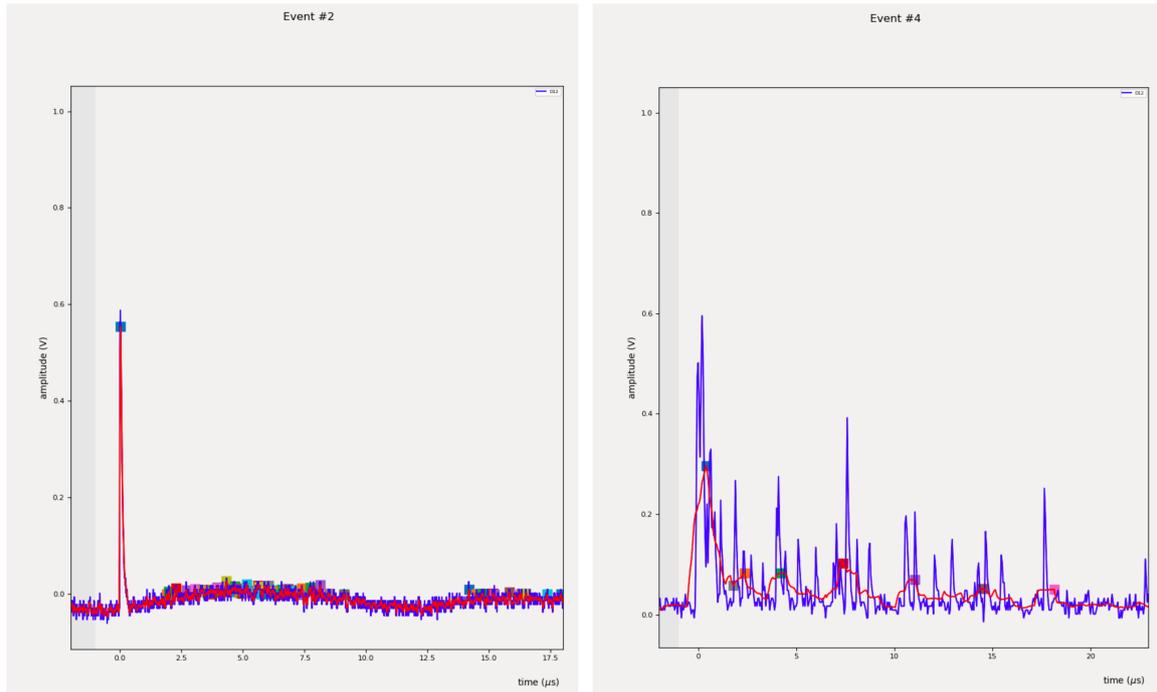


FIGURE 6.6 – L'évènement No.2 enregistré sur la fibre No.7 (gauche) qui provient du bruit électronique, et l'évènement de scintillation No.4 capté sur la fibre No.5 (droite). Les courbes bleues sont les signaux enregistrés. Les courbes rouges représentent la courbe de convolution avec  $N = 20$ . Les carrés sont les maxima locaux identifiés par l'algorithme.

### Application d'un seuil d'amplitude minimal

Une nouvelle approche est d'appliquer un seuil d'amplitude pour filtrer les bruits. Les variables  $N$  et  $X$  dans l'algorithme sont remises à 6 et 10, qui sont leurs valeurs initiales respectivement. La figure 6.7 montre les signaux identifiés par l'algorithme avec un seuil d'amplitude minimal de 60 mV. Cette valeur permet d'éliminer la majorité du bruit, comme démontré dans l'image 6.7a. Mais elle a aussi l'effet secondaire non souhaité d'éliminer une grande partie des signaux de photoélectrons, comme montré dans l'image 6.7b.

De plus, un simple seuil minimal appliqué n'est pas adapté pour filtrer les bruits qui ont des formes irrégulières. Comme montré dans l'image 6.7c, l'algorithme parvient à identifier les extrema locaux avec une amplitude absolue supérieure au seuil. Mais ces signaux identifiés ne correspondent pas aux caractéristiques des photoélectrons. Il faut donc avoir recours à d'autres méthodes plus efficaces pour distinguer les signaux des photoélectrons et du bruit.

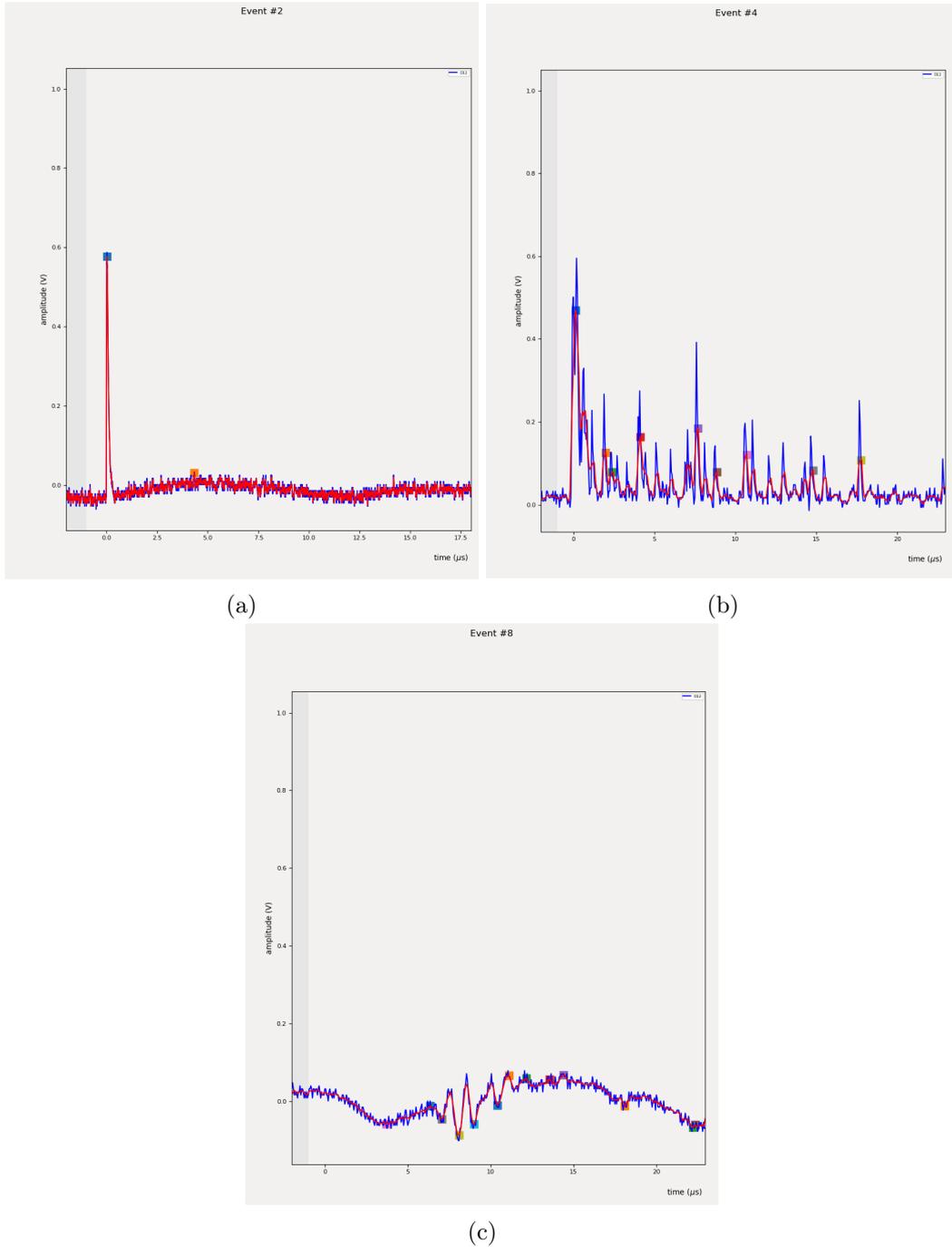


FIGURE 6.7 – L'évènement No.2 enregistré sur la fibre No.7 (a) qui provient du bruit, l'évènement de scintillation No.4 capté sur la fibre No.5 (b), et l'évènement No.8 enregistré sur la fibre No.7 (c). Les courbes bleues sont les signaux enregistrés. Les courbes rouges représentent les courbes de convolution avec  $N = 6$  et  $X = 10$ . Un seuil de 60 mV est appliqué dans le but de filtrer les bruits. Les maxima locaux identifiés par l'algorithme sont marqués par les carrés.

## Application d'un seuil maximal sur la durée des signaux

Les tentatives précédentes se focalisent sur l'élimination des bruits selon leurs amplitudes, mais elles ne permettent pas de filtrer les signaux du bruit avec une forme irrégulière. Une nouvelle approche se focalise alors sur l'identification des signaux qui correspondent aux caractéristiques des photoélectrons. On cherche donc à isoler les signaux dont l'amplitude dépasse un certain seuil et dont la largeur latérale est inférieure à une certaine durée de temps.

On intègre dans l'algorithme une nouvelle fonction, qui réexamine les signaux associés aux maxima locaux initialement identifiés. Cette nouvelle fonction, outre vérifier si l'amplitude du signal dépasse un seuil minimal, calcule également sa durée au niveau de la ligne de base, afin de vérifier si elle ne dépasse pas un seuil maximal. Les signaux qui ne satisfont pas ces critères seront rejetés.

La figure 6.8 compare les résultats obtenus, avec et sans l'addition de la nouvelle fonction qui incorpore un seuil d'amplitude minimal de 30 mV et un seuil de durée maximale de 0.5  $\mu$ s. On constate une efficacité similaire de l'identification des photoélectrons avec l'introduction des deux seuils. Mais les fausses détections des fluctuations et des signaux du bruit irréguliers ont une diminution significative, comme montrées sur les figures 6.9a et 6.9b, ce qui est un résultat encourageant.

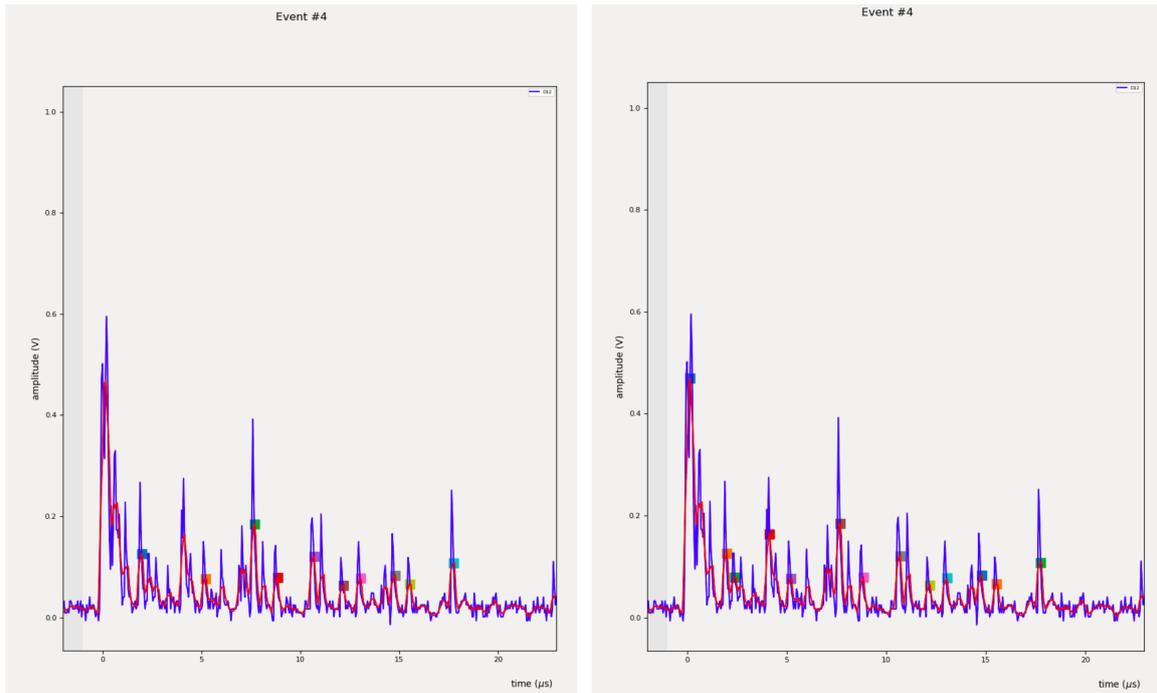
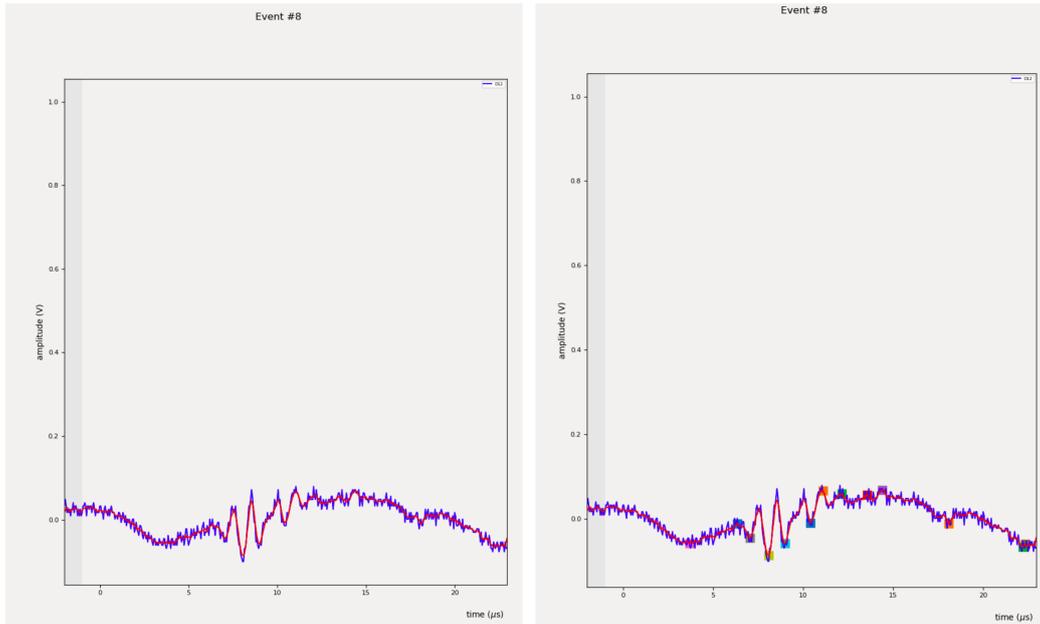
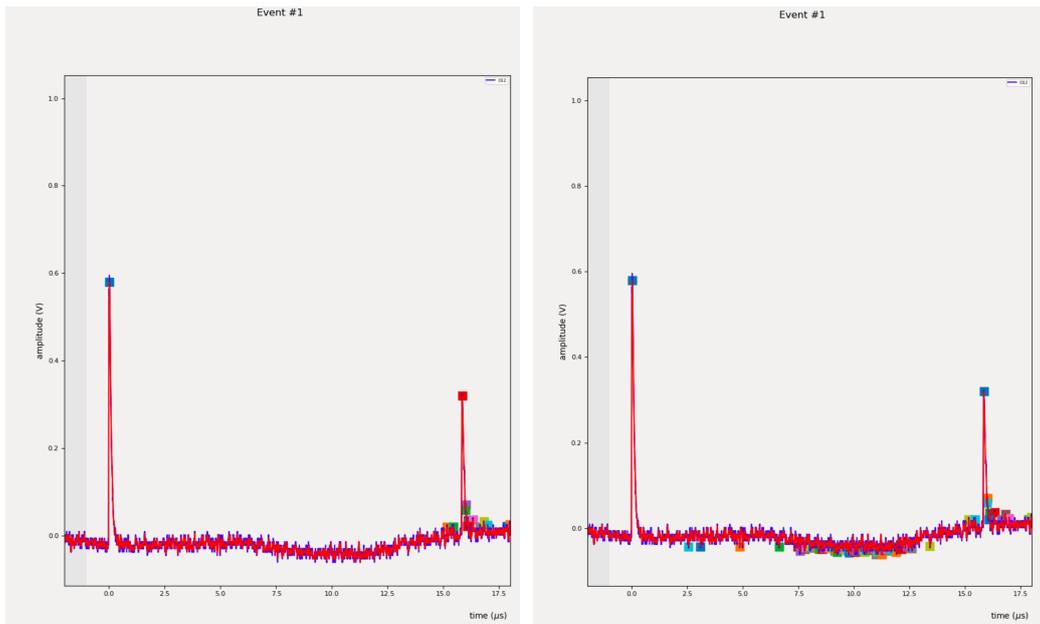


FIGURE 6.8 – L'évènement No.4 enregistré sur la fibre No.5. Les photoélectrons, représentés par les carrés, sont identifiés par l'algorithme avec (gauche) et sans (droite) la nouvelle fonction avec un seuil d'amplitude minimal de 30 mV et un seuil de durée maximale de  $0.5 \mu\text{s}$ . Les courbes bleues sont les signaux enregistrés. Les courbes rouges représentent la courbe de convolution avec  $N = 6$  et  $X = 10$ .



(a)



(b)

FIGURE 6.9 – Deux évènements provenant du bruit : l'évènement No.8 enregistré sur la fibre No.7 (a), et l'évènement No.1 capté sur la fibre No.7 (b). Les extrema locaux, représentés par les carrés, sont identifiés par l'algorithme avec (les images à gauche) et sans (à droite) la nouvelle fonction qui prend en compte d'un seuil d'amplitude minimal de 30 mV et un seuil de durée maximale de  $0.5 \mu\text{s}$ . Les courbes bleues sont les signaux enregistrés. Les courbes rouges représentent la courbe de convolution avec  $N = 6$  et  $X = 10$ .

## Ajustement des paramètres de l'algorithme

Etant donné que l'introduction des seuils en amplitude et sur la durée permet à l'algorithme d'identifier les signaux de photoélectrons et de filtrer les signaux du bruit plus efficacement, on peut se permettre de minimiser la suppression des fluctuations lors de l'opération de convolution et du calcul des maxima locaux dans un intervalle. Ceci est réalisé par la diminution des deux variables dans l'algorithme, la fenêtre de la moyenne mobile  $N$  et la largeur de l'intervalle du calcul des maxima locaux  $X$ .

La figure 6.10 montre les résultats obtenus avec les paramètres  $N = 3$  et  $X = 4$ , et les compare avec ceux obtenus en maintenant  $N = 6$  et  $X = 10$ . On constate que, en attribuant une valeur plus petite à la fenêtre de la moyenne mobile, la courbe de convolution parvient à minimiser la suppression des vrais signaux des photoélectrons. De plus, avec l'addition des seuils d'amplitude et de durée de temps comme décrite dans la section précédente, ainsi qu'une réduction de l'intervalle du calcul des maxima locaux, l'algorithme se montre capable de correctement identifier la grande majorité des signaux des photoélectrons, comme montré sur la figure 6.10.

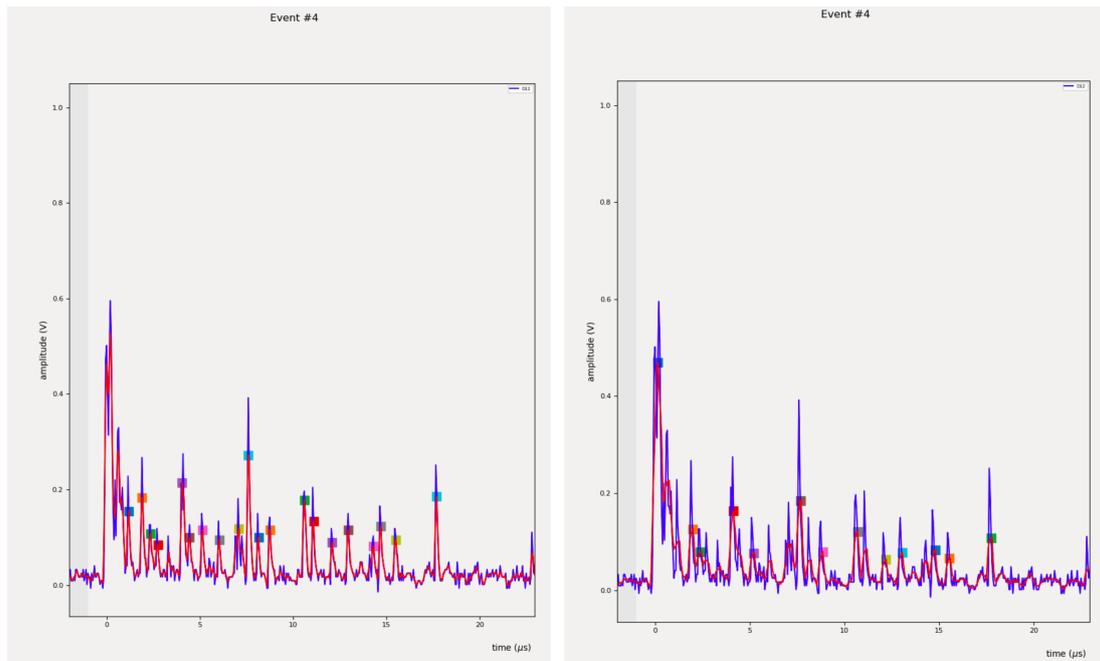


FIGURE 6.10 – L'évènement No.4 enregistré sur la fibre No.5. Les courbes bleues sont les signaux des photoélectrons enregistrés. Les courbes rouges représentent la courbe de convolution avec  $N = 3$  et  $X = 4$  (gauche), et avec  $N = 6$  et  $X = 10$  (droite). Les maxima locaux, représentés par les carrés, sont identifiés par l'algorithme avec un seuil d'amplitude minimal de 30 mV et un seuil de durée maximale de  $0.5 \mu\text{s}$ .

Ainsi, on peut conclure que la configuration actuelle de l'algorithme se montre efficace pour identifier les photoélectrons dans les données enregistrées, avec une fenêtre de la moyenne mobile  $N = 3$ , la largeur de l'intervalle du calcul des maxima locaux  $X = 4$ , un seuil d'amplitude minimal de 30 mV et un seuil de durée maximale de 0.5  $\mu$ s. La prochaine étape consiste donc à déterminer la position d'impact des neutrons à partir des photoélectrons identifiés sur chaque fibre optique.

### 6.2.3 Détermination de la distribution des positions d'impact avec ROOT

L'algorithme décrit dans la section précédente nous permet d'identifier les signaux de photoélectrons sur une fibre optique pour un évènement donné. En pratique, lorsque le détecteur sera irradié par un neutron ultra-froid, la lumière de scintillation ainsi générée touchera plusieurs fibres en même temps. On cherche donc à compiler les données pour chaque évènement afin de déterminer les fibres qui captent le plus de photoélectrons. Ceci nous indiquera la hauteur de chute libre du neutron.

Pour faciliter l'analyse des données, le logiciel de traitement de signal dispose d'une fonction pour générer un fichier ROOT à partir des données acquises. Ce fichier contient les paramètres tels que le nombre total des fibres optiques, le nombre total des évènements, l'intervalle d'échantillonnage, ainsi que les données telles que l'amplitude et l'indice d'un photoélectron identifié, et le nombre total des photoélectrons identifiés sur une fibre pour un évènement donné. En regroupant ce dernier avec un script ROOT dédié, écrit pendant la thèse, on peut visualiser avec un histogramme la distribution des photoélectrons captés par les fibres pendant une session d'acquisition, comme montré sur la figure 6.11. On obtient donc la distribution des positions d'impact des neutrons pendant la session, ce qui nous permet de déterminer la hauteur de chute libre.

### Performance des différentes versions de l'algorithme d'identification des photoélectrons

La figure 6.12 montre le nombre total des photoélectrons enregistrés sur les 7 fibres optiques, identifiés par la version initiale de l'algorithme (rouge), puis par la deuxième version (jaune) qui élimine les signaux avec une largeur supérieure à 0.5  $\mu$ s, et finalement par la version actuelle de l'algorithme (bleu), dont les paramètres de convolution et de l'intervalle des maxima locaux sont ajustés ( $N = 3$  et  $X = 4$ ) pour minimiser la suppression des fluctuations en plus de l'introduction des seuils d'amplitude et de durée, comme expliqué dans la section 6.2.2.

Nous avons montré précédemment que l'introduction d'un seuil maximal de durée est ef-

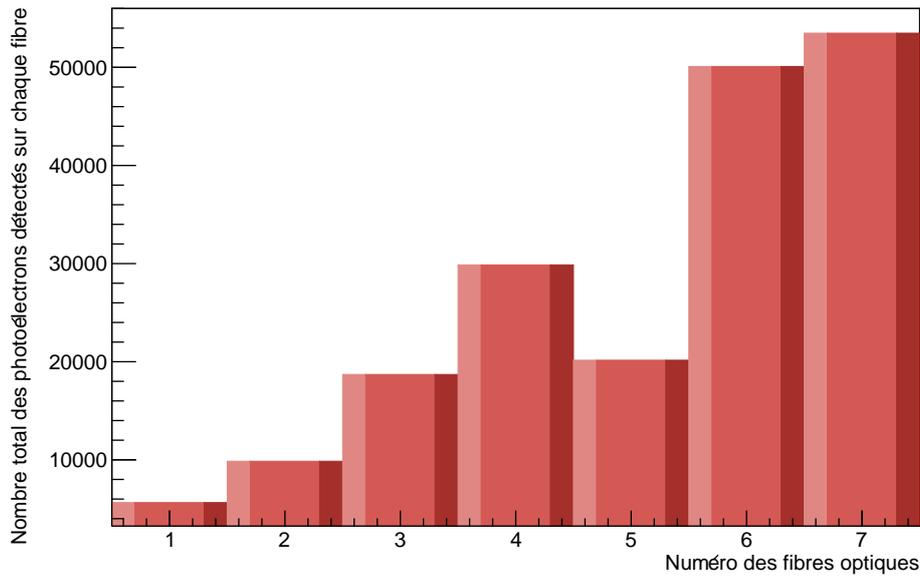


FIGURE 6.11 – Le nombre total des photoélectrons identifiés par la version initiale de l’algorithme sur chacune des 7 fibres optiques pour 5000 évènements.

ficace pour filtrer le bruit, ce qui résulte en une réduction du nombre total des photoélectrons identifiés par la deuxième version de l’algorithme. En revanche, une courbe de convolution moins lisse et un intervalle du calcul de maximum local plus restreint réduisent la suppression involontaire des signaux de photoélectrons, ce qui contribue à une augmentation du nombre total des signaux identifiés par la version actuelle de l’algorithme. On remarque également que le nombre total des signaux identifiés sur les fibres No.6 et No.7 subit une forte réduction avec la version actuelle de l’algorithme, ce qui indique qu’une proportion importante des signaux initialement identifiés est susceptible d’être du bruit.

### Performance de l’algorithme en absence du rayon gamma et du flux de neutrons

Une série de 3 sessions d’irradiation du détecteur par une source de neutrons est effectuée par la suite. Pour la première session, le détecteur est irradié par la source de neutrons adjacente à la boîte étanche à la lumière, sans aucun écran entre les deux dispositifs et avec une distance d’environ 20 cm entre la source de neutrons et le scintillateur. Un écran de plomb de 10 cm d’épaisseur est ensuite positionné entre la source de neutrons et la boîte noire pendant la deuxième session. Dans la troisième session, l’écran de plomb est remplacé par un écran de  $B_4C$  d’environ 1 cm d’épaisseur. Cette série vise à étudier, de manière préliminaire, la réponse du système en absence de rayon gamma et de flux de neutron respectivement.

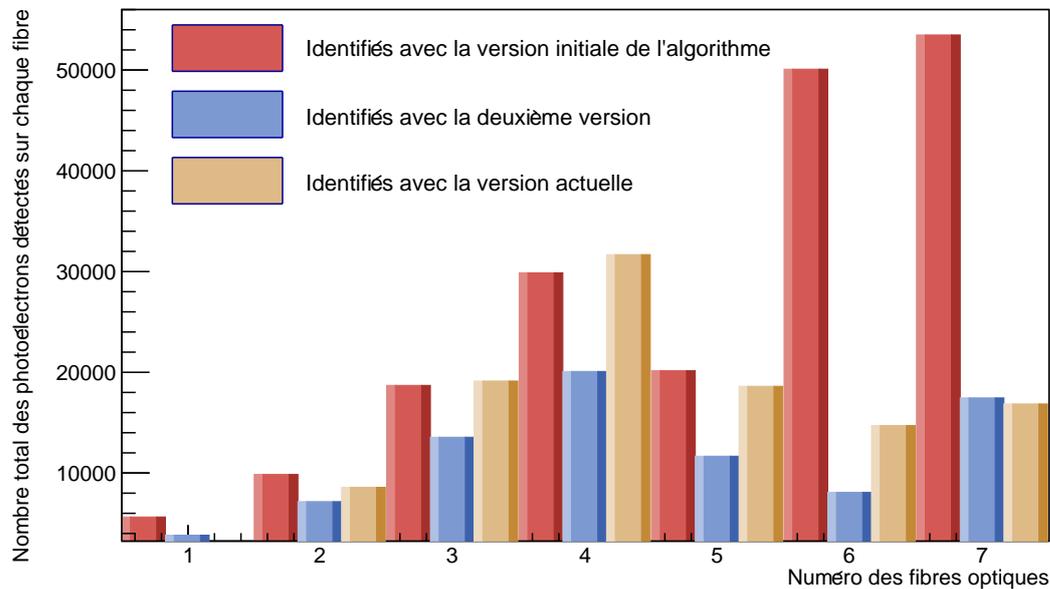


FIGURE 6.12 – Le nombre total des photoélectrons enregistrés sur chacune des 7 fibres optiques pour 5000 évènements, identifiés par la version initiale de l’algorithme (rouge), puis par la deuxième version (bleue) qui introduit un seuil maximal de durée de temps de  $0.5 \mu\text{s}$ , et finalement par la version actuelle de l’algorithme (jaune), dont les paramètres de convolution et de l’intervalle des maxima locaux sont ajustés ( $N = 3$  et  $X = 4$ ) pour minimiser la suppression des fluctuations, avec l’addition des seuils d’amplitude et de durée.

Les résultats montrés sur la figure 6.13 sont obtenus en utilisant la version actuelle de l’algorithme. On constate que le nombre total des signaux identifiés diminue avec l’utilisation de l’écran de  $\text{B}_4\text{C}$ , ce qui est attendu avec la réduction du flux de neutrons. Cependant, le nombre total des photoélectrons identifiés augmente avec l’utilisation de l’écran de plomb. Ceci suggère que la version actuelle de l’algorithme, bien qu’elle soit prometteuse, n’est pas encore capable de discriminer certains types de bruits.

En raison de la limite du temps et la disponibilité restreinte de la source de neutrons à l’ILL, nous n’avons pas pu poursuivre l’amélioration de l’algorithme de manière quantitative. Mais la possibilité d’une identification efficace des signaux de photoélectrons a été démontrée avec la version actuelle de l’algorithme, et son amélioration avec des tests plus rigoureux est envisageable.

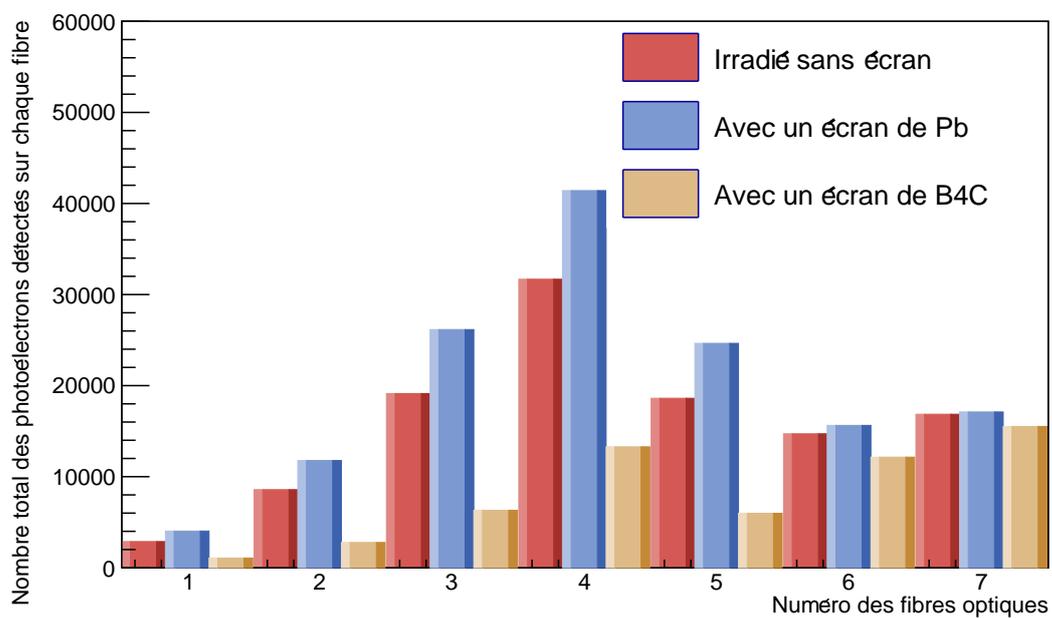


FIGURE 6.13 – Le nombre total des photoélectrons sur chacune des 7 fibres optiques sur 5000 évènements, enregistré par le détecteur irradié par une source de neutrons AmBe (rouge), avec un écran de plomb (bleu), et avec un écran de B<sub>4</sub>C (jaune).

## 6.3 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons développé un algorithme capable d'identifier les photoélectrons parmi les signaux de scintillation enregistrés sur un réseau de fibres optiques. Des tests d'irradiation d'un scintillateur de ZnS ont été réalisés sur un prototype d'un tel réseau, et les données ainsi acquises servent de base pour évaluer ses performances.

Différents paramètres de l'algorithme ont été ajustés pour améliorer son efficacité. En examinant les événements de scintillation en isolation, une combinaison des seuils d'amplitude minimale et de durée maximale dans l'algorithme se montre efficace pour identifier les photoélectrons, tout en réduisant les fausses détections du bruit. Ceci permet également un filtrage de fluctuation par convolution moins extrême, ce qui réduit la possibilité de suppression des vrais signaux de photoélectrons par erreur. Ces résultats encourageants montrent le potentiel de l'algorithme.

Cependant, les résultats obtenus en construisant la distribution des positions d'impact des multiples événements se révèlent moins convaincants, avec une augmentation des photoélectrons identifiés liée à l'utilisation d'un écran de plomb. En raison des contraintes temporelles et matérielles, nous n'avons pas pu déterminer si cette anomalie provient du dispositif expérimental ou de l'algorithme. Des tests plus rigoureux peuvent être envisagés dans l'avenir pour identifier la cause de cette anomalie et continuer à raffiner l'algorithme.

## Chapitre 7

# Conclusion

Dans cette thèse, nous avons d'abord établi les enjeux et l'objectif du spectromètre GRANIT. Le dispositif utilise pour ses mesures des neutrons ultra-froids, qui possèdent une énergie suffisamment faible pour être stockés et rebondir sur une surface. L'expérience vise à caractériser les transitions résonantes entre deux états quantiques du neutron dans le champ de pesanteur terrestre de manière précise. L'observation, ou non, de déviations par rapport aux prédictions de certains modèles de physique contemporains permet d'apporter des contraintes sur leurs paramètres.

Le spectromètre GRANIT induit les transitions résonantes par la génération d'un champ magnétique transitoire spatialement ou temporellement selon son mode de fonctionnement. Avec le mode DC, qui utilise un champ magnétique statique mais oscillant spatialement, les modules sont conçus de manière que seuls les neutrons avec une certaine vitesse horizontale subissent une transition résonante. La détermination de la vitesse horizontale des neutrons étant réalisée par la mesure de la hauteur de chute libre à une distance donnée, ceci exige un détecteur de neutrons sensible à la position.

Le détecteur est conçu en combinant des matériaux de conversion de neutrons, et un scintillateur en couche mince avec un réseau de fibres optiques latéral. La détermination de la position s'effectue en captant la lumière de scintillation par le réseau de fibres optiques et en reconstruisant le centre de masse.

Les couches minces de conversion de neutrons et de scintillateur ont été réalisées par le procédé de dépôt physique par pulvérisation assisté par plasma, puis caractérisées par la microscopie électronique à balayage et l'analyse dispersive en énergie. Les paramètres du procédé ont été étudiés pour optimiser l'uniformité de l'épaisseur et de la surface des couches minces, tout en maintenant une vitesse de dépôt viable pour la fabrication. La viabilité du dopage des centres d'activation dans le scintillateur *in situ* pendant le procédé de dépôt a

également été étudiée et démontrée.

La performance des scintillateurs en couche mince fabriqués pendant cette thèse a été examinée. La scintillation a été observée dans la plupart des échantillons irradiés par des particules alpha. Un faible rapport signal sur bruit des rayons gamma a été constaté. La variation de l'efficacité de scintillation en fonction du dopage des centres d'activation a aussi été observée, comparée et confirmée par la littérature. Cependant, une variation significative de l'efficacité de scintillation a été constatée selon la zone irradiée sur les échantillons. Une hypothèse possible est que les couches de scintillateur ne sont pas suffisamment homogènes pour l'application désirée, ce qui pourrait être examiné par des modélisations dans une étude dans l'avenir. La viabilité et la durabilité des couches de conversion de neutrons sont actuellement testées sur les détecteurs CCD avec le spectromètre GRANIT. Les tests en combinant des couches de conversion de neutrons et de scintillateur n'ont pas pu être effectués en raison d'une disponibilité limitée de la source de neutrons.

Enfin, les travaux pour optimiser l'algorithme de l'identification des photoélectrons captés par le réseau de fibres optiques ont également été effectués. Les tests réalisés sur le prototype construit antérieurement ont démontré une amélioration encourageante de l'efficacité de l'identification. Des tests plus rigoureux pourraient être réalisés dans une étude ultérieure.

# Bibliographie

- [1] W. Bothe and H. Becker. Kunstliche Erregung von Kern- $\gamma$ -Strahlen [Artificial excitation of nuclear  $\gamma$ -radiation] (in german). *Zeitschrift fur Physik*, 66 (5-6) : 289, 1930. doi : 10.1007/BF01390908.
- [2] J. Chadwick. Possible existence of a neutron. *Nature*, 129 (3252) : 312, 1932. doi : 10.1038/129312a0.
- [3] J. Chadwick. Existence of a neutron. *Proceedings of the Royal Society A*, 136 (830) : 692-708, 1932. doi : 10.1098/rspa.1932.0112.
- [4] O. Hahn and F. Strassmann. Uber den Nachweis und das Verhalten der bei der Bestrahlung des Urans mittels Neutronen entstehenden Erdalkalimetalle [On the detection and characteristics of the alkaline earth metals formed by irradiation of uranium with neutrons] (in german). *Naturwissenschaften*, 27 (1) : 11-15, 1938. doi : 10.1007/BF01488241.
- [5] L. Meitner and O.R. Frisch. Disintegration of uranium by neutrons : a new type of nuclear reaction. *Nature*, 143 (3615) : 239, 1939. doi : 10.1038/143239a0.
- [6] M. Tanabashi et al. (Particle Data Group). Review of particle physics. *Phys. Rev. D*98, 030001, 2018.
- [7] G. Pignol. Probing dark energy models with neutrons. *Int. J. Mod. Phys. A*, 30, 1530048 (2015), 2015. arXiv :1503.03317. doi :10.1142/S0217751X15300483.
- [8] C. Abel et al. Measurement of the permanent electric dipole moment of the neutron. *Phys. Rev. Lett*, 124, 081803, 2020. <https://arxiv.org/abs/2001.11966>. doi :10.1103/PhysRevLett.124.081803.
- [9] NIST. Fundamental physical constants — complete listing. <https://physics.nist.gov/cuu/Constants/Table/allascii.txt>. Last viewed on 29/08/2019.
- [10] C.S. Wu, E. Ambler, R.W. Hayward, D.D. Hoppes, and R.P. Hudson. Experimental test of parity conservation in beta decay. *Physical Review*, 105 (4) : 1413-1415, 1957.

- [11] F.E. Wietfeldt and G.L. Greene. Colloquium : The neutron lifetime, 2011. <https://doi.org/10.1103/RevModPhys.83.1173>.
- [12] D. Dubbers, H. Saul, B. Markisch, T. Soldner, and H. Abele. Exotic decay channels are not the cause of the neutron lifetime anomaly. *Physics Letter B*, 791, Pages 6-10, 2019. <https://doi.org/10.1016/j.physletb.2019.02.013>.
- [13] V.I. Luschnikov, Yu.N. Pokotilovskii, A.V. Strelkov, and F.L. Shapiro. Observation of ultracold neutrons. *JETP Letters*, 9 : 23, 1969.
- [14] A. Steyrerl. Measurements of total cross sections for very slow neutrons with velocities from 100 m/sec to 5 m/sec. *Physics Letters B*, Vol. 29, Issue 1 :33–35, 1969. [https://doi.org/10.1016/0370-2693\(69\)90127-0](https://doi.org/10.1016/0370-2693(69)90127-0).
- [15] International Atomic Energy Agency. *Neutron Generators for Analytical Purposes*. 2012. ISBN 978-92-0-125110-7.
- [16] R. Golub, D.J. Richardson, and S.K. Lamoreaux. *Ultra-Cold Neutrons*. Adam Hilber, 1991. ISBN 0-7503-0115-5.
- [17] A. Steyerl. A "neutron turbine" as an efficient source of ultracold neutrons. *Nuclear Instruments and Methods*, 125(1975) :461–469, 1975.
- [18] O. Zimmer, F.M. Piegsa, and S.N. Ivanov. Superthermal source of ultracold neutrons for fundamental physics experiments. *Physical Review Letters*, 2011.
- [19] R. Golub and J.M. Pendlebury. The interaction of ultra-cold neutrons (ucn) with liquid helium and a superthermal ucn source. *Physics Letters*, 62A, Number 5, 1977.
- [20] J. Karch, Yu. Sobolev, M. Beck, K. Eberhardt, G. Hampel, W. Heil, R. Kieser, T. Reich, N. Trautmann, and M. Ziegner. Performance of the solid deuterium ultracold neutron source at the pulsed reactor TRIGA Mainz. *The European Physical Journal A*, 50 : 78, 2014.
- [21] A. Saunders, J.M. Anaya, T.J. Bowles, B.W. Filippone, P. Geltenbort, R.E. Hill, M. Hino, S. Hoedl, G.E. Hogan, T.M. Ito, K.W. Jones, T. Kawai, K. Kirch, S.K. Lamoreaux, C.-Y. Liu, M. Makela, L.J. Marek, J.W. Martin, C.L. Morris, R.N. Mortensen, A. Pichlmaier, S.J. Seestrom, A. Serebrov, D. Smith, W. Teasdale, B. Tipton, R.B. Vogelaar, A.R. Young, and J. Yuan. Demonstration of a solid deuterium source of ultra-cold neutrons. *Physics Letters B*, vol. 593, Issues 1-4 :55–60, 2004.
- [22] F. Pobell. *Matter and Methods at Low Temperatures*. Springer, Third Edition, 2007.
- [23] V.V. Nesvizhevsky, H. Borner, A.M. Gagarski, G.A. Petrov, A.K. Petukhov, H. Abele, S. Bassler, T. Stoferle, and S.M. Soloviev. Search for quantum states of the neutron in a gravitational field : gravitational levels. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 440 (2000) 754-759), 2000.

- [24] V.V. Nesvizhevsky, H.G. Borner, A.K. Petukhov, H. Abele, S. Baessler, F.J. Ruess, T. Soferle, A. Westphal, A.M. Gagarski, G.A. Petrov, and A.V. Strelkov. Quantum states of neutrons in the earth's gravitational field. *Nature*, 415 :297–299, 2002.
- [25] V.V. Nesvizhevsky, H.G. Borner, A.M. Gagarski, A.K. Petoukhov, G.A. Petrov, H. Abele, S. Baessler, G. Divkovic, F.J. Ruess, T. Stoferle, A. Westphal, A.V. Strelkov, K.V. Protasov, and A.Yu. Voronin. Measurement of quantum states of neutrons in the Earth's gravitational field. *Physical Review D*, 67 : 102002, 2003.
- [26] S. Baessler, A.M. Gagarski, E.V. Lychagin, A. Mietke, A.Yu. Muzychka, V.V. Nesvizhevsky, G. Pignol, A.V. Strelkov, B.P. Toperverg, and K. Zhernenkov. New methodical developments for GRANIT. *Comptes Rendus Physique*, 12(8) :729–754, 2011.
- [27] V.V. Nesvizhevsky and K.V. Protasov. Quantum states of neutrons in the Earth's gravitational field : state of the art, applications, perspectives. *Trends in Quantum Gravity Research*, pages 65–107, 2005.
- [28] V.V. Nesvizhevsky, A.K. Petukhov, H.G. Borner, T.A. Baranova, A.M. Gagarski, G.A. Petrov, K.V. Protasov, A.Yu. Voronin, S. Baessler, H. Abele, A. Westphal, and L. Lucovic. Study of the neutron quantum states in the gravity field. *The European Physical Journal C - Particles and Fields*, 40(4) :479–491, 2005.
- [29] T. Jenke, D. Stadler, H. Abele, and P. Geltenbort. Q-BOUNCE - experiments with quantum bouncing ultracold neutrons. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 611(2-3) :318–321, 2009.
- [30] T. Jenke, P. Geltenbort, H. Lemmel, and H. Abele. Realization of a gravity-resonance-spectroscopy technique. *Nature Physics*, 7 :468–472, 2011.
- [31] H. Abele, G. Cronenberg, P. Geltenbort, T. Jenke, T. Lins, and H. Saul. qBounce, the quantum bouncing ball experiment. *Physics Procedia*, Volume 17, 2011.
- [32] Perlmutter et al. Measurements of mega and lambda from 42 high redshift supernovae. *The Astrophysical Journal*, Volume 517, Number 2, Pages 565-586, 1999.
- [33] Riess et al. Observational evidence from supernovae for an accelerating universe and a cosmological constant. *The Astrophysical Journal*, Volume 116, Number 3, Pages 1009-1038, 1998.
- [34] Khoury and Weltman. Chameleon cosmology. *Phys. Rev. D*, 69, 044026, 2004.
- [35] Brax and Pignol. Strongly coupled chameleons and the neutronic quantum bouncer. *Phys. Rev. Lett.*, 107, 111301, 2011.
- [36] Jenke et al. Gravity resonance spectroscopy constrains dark energy and dark matter scenarios. *Phys. Rev. Lett.*, 112, 151105, 2014.

- [37] S. Baessler, V.V. Nesvizhevsky, K.V. Protasov, and A.Yu. Voronin. Constraint on the coupling of axionlike particles to matter via an ultracold neutron gravitational experiment. *Physical Review D*, D 75, 075006, 2007.
- [38] V.V. Nesvizhevsky, G. Pignol, and K.V. Protasov. Neutron scattering and extra-short-range interactions. *Physical Review D*, C 77, 034020, 2008.
- [39] I. Antoniadis, S. Baessler, M.Buchner, V.V. Fedorov, S. Hoedl, A. Lambrecht, V.V. Nesvizhevsky, G. Pignol, K.V. Protasov, S. Reynaud, and Yu. Sobolev. Short-range fundamental forces. *Comptes Rendus Physique*, Vol.12, No.8 :755–778, 2011.
- [40] P. Brax, G. Pignol, and D. Roulier. Probing strongly coupled chameleons with slow neutrons. *Phys. Rev. D* 88, 083004 (2013), 2013. arXiv :1306.6536. doi :10.1103/PhysRevD.88.083004.
- [41] D. Roulier, F. Vezzu, S. Baessler, B. Clement, D. Morton, V.V. Nesvizhevsky, G. Pignol, and D. Rebreyend. Status of the GRANIT facility. 2018. arXiv :1410.1376v1.
- [42] G. Pignol, S. Baessler, V.V. Nesvizhevsky, K. Protasov, D. Rebreyend, and A. Voronin. Gravitational resonance spectroscopy with an oscillating magnetic field gradient in the GRANIT flow through arrangement. *Advances in High Energy Physics*, Volume 2014(Article ID 628125) : 7, 2014.
- [43] K.H. Beckurts and K. Wirtz. *Neutron Physics*. Springer-verlag Berlin Heidelberg GmbH, 1964.
- [44] NIST. Neutron scattering lengths and cross sections. <https://www.ncnr.nist.gov/resources/n-lengths/>. Last viewed on : 29/06/2019.
- [45] G.F. Knoll. *Radiation Detection And Measurement*. John Wiley and Sons, 1979.
- [46] N. Tsoulfanidis. *Measurement and Detection of Radiation (2nd edition)*. Washington, D.C. : Taylor and Francis, 1995.
- [47] D.A. Shea and D. Morgan. The Helium-3 shortage : Supply, demand, and options for congress. Congressional Research Service, 22 December 2010.
- [48] W. R. Leo. *Techniques for Nuclear and Particle Physics Experiments*. Springer-Verlag, 1994.
- [49] E. Rossi. *Characterisation of the Spatial Resolution and the Gamma-ray Discrimination of Helium-3 Proportional Counters*. PhD thesis, Universita degli Studi di Milano-Bicocca, 2015.
- [50] F.D. Amaro et al. Novel concept for neutron detection : proportional counter filled with  $^{10}\text{B}$  nanoparticle aerosol. *Sci. Rep.* 7, 41699 ; doi : 10.1038/srep41699 (2017), 2017.

- [51] A. Khaplanov, F. Piscitelli, J.-C. Buffet, J.-F. Clergeau, J. Correa, P. van Esch, M. Ferraton, B. Guerard, and R. Hall-Wilton. Investigation of gamma-ray sensitivity of neutron detectors based on thin converter films. arXiv : 1306.6247v1 [physics.ins-det], 2013.
- [52] A.T. Lintereur, R.T. Kouzes, J.H. Ely, L.E. Erikson, and E.R. Siciliano. Boron-lined neutron detector measurements. Pacific Northwest National Laboratory Report PNNL-18938, 2009.
- [53] K. Tsorbatzoglou and R.D. McKeag. Novel and efficient  $^{10}\text{B}$  lined tubelet detector as a replacement for  $^3\text{He}$  neutron proportional counters. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, Vol. 652, Issue 1 :381–383, 2011.
- [54] W.M. Yen, S. Shionoya, and H. Yamamoto. *Phosphor Handbook, Second Edition*. CRC Press, Taylor and Francis Group, 2007.
- [55] S. Kawasaki et al. Developement of a pixel detector for ultra-cold neutrons. *Nucl. Instrum. Methods*, A615 (2010) 42, 2010.
- [56] D. Roulier. *Production et detection de neutrons ultra-froids pour le spectrometre GRANIT*. PhD thesis, Universite de Grenoble, 2015.
- [57] B. Clement, A. Bes, A. Lacoste, R. Combe, V.V. Nesvizhevsky, G. Pignol, D. Rebreyend, and Y. Xi. Boron-10 conversion layer for ultra-cold neutron detection. *Instrumentation and Detectors (physics.ins-det)*, 2019. arXiv :1902.09232v2. doi :10.1088/1748-0221/14/09/P09003.
- [58] H. Geiger. The scattering of  $\alpha$ -particles by matter. *Proceedings of the Royal Society A*, Volume 83, Issue 565, Pages 492-504, 1910.
- [59] T.L. White and W.H. Miller. A triple-crystal phoswich detector with digital pulse shape discrimination for alpha/beta/gamma spectroscopy. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, Volume 422, Pages 144-147, 2/11, 1999.
- [60] N. Kubota, M. Katagiri, K. Kamijo, and H. Nanto. Evaluation of ZnS-family phosphors for neutron detectors using photon counting method. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, Volume 529, Page 321, 2004.
- [61] N.J. Rhodes, A.G. Wardle, A.J. boram, and M.W. Johnson. Pixelated neutron scintillation detectors using fibre optic coded arrays. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A : Acclerators, Spectrometeres, Detectors and Associated Equipment*, Volume 392, Pages 315, 1997.

- [62] F.E. Williams. Solid-state luminescence. *Advances in Electronics and Electron Physics*, 5, 1953.
- [63] T. Miller. *An investigation into the growth and characterisation of thin film radioluminescent phosphors for neutron diffraction analysis*. PhD thesis, Nootingham Trent University, 2010.
- [64] K.E. Bower, Y.A. Barbanel, Y.G. Shreter, and G.W. Bohnert. *Polymers, Phosphors and Voltaics for Radioisotope Microbatteries*. CRC Press, 2002.
- [65] W. Jian, J. Zhuang, D. Zhang, J. Dai, W. Yang, and Y. Bai. Synthesis of highly luminescent and photostable ZnS :Ag nanocrystals under microwave irradiation. *Materials Chemistry and Physics*, Volume 99, Issues 2-3, Pages 494-497, 2006.
- [66] S.R. Chalana, V. Ganesan, and V.P. Mahadevan Pillai. Surface plasmon resonance in nanostructured Ag incorporated ZnS films. *AIP Advances* 5, 107207 (2015), 2015.
- [67] Testbourne Ltd. Zinc sulphide-Silver ZnS-Ag compound targets. <http://www.testbourne.com/compound-targets>. Last viewed on : 02/08/2019.
- [68] Kuraray. Wavelength shifting fibers. <http://kuraraypsf.jp/psf/ws.html>. Last viewed on 05/05/2020.
- [69] Hamamatsu. Hamamatsu multianode photomultiplier tube assembly h7546a, h7546b. [https://www.hamamatsu.com/resources/pdf/etd/H7546A\\_H7546B\\_TPMH1240E.pdf](https://www.hamamatsu.com/resources/pdf/etd/H7546A_H7546B_TPMH1240E.pdf). Last viewed on 10/11/2019.
- [70] S. Blin, P. Barrillon, and C. de La Taille. MAROC, a generic photomultiplier readout chip. *Journal of Instrumentation*, 5, Dec 2010. Topical Workshop on electronics for Particle Physics, Aachen, Germany, Sep 20-24, 2010.
- [71] Keysight Technologies. U1092A-S01/S02/S03 AcqirisMAQS Multichannel Acquisition Software. <https://www.keysight.com/en/pd-1874432-pn-U1092A/acqirismaqs-multichannel-acquisition-software>. Last viewed on 10/11/2019.
- [72] L.I. Maissel and R. Glang. *Handbook of thin film technology*. McGraw-Hill, 1970.
- [73] R.V. Stuart. *Vacuum Technology, Thin Films and Sputtering - an introduction*. Academic Press, 1983.
- [74] M.A. Lieberman and A.J. Lichtenberg. *Principles of plasma discharges and materials precessing*. 2005.
- [75] LPSC. Vocation de la plate-forme IAP3. <http://lpsc.in2p3.fr/index.php/fr/groupe-de-physique/le-crpmn/plate-forme-iap3/vocation-de-la-plate-forme-iap3>. Last viewed on : 02/08/2019.

- [76] CrysTec. Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> - Sapphire. <http://www.crystec.de/al2o3sapphire-e.html>. Last viewed on : 02/08/2019.
- [77] Institut Neel. Moyens techniques. <http://neel.cnrs.fr/spip.php?rubrique363>. Last viewed on : 02/08/2019.
- [78] A. Le Donne, D. Cavalcoli, R.A. Mereu, M. Perani, L. Pagani, M. Acciarri, and S. Binetti. Study of the physical properties of ZnS thin films deposited by RF sputtering. *Materials Science in Semiconductor Processing*, 71 (2017) 7-11, 2017.
- [79] V.L. Gayou, B. Salazar-Hernandez, M.E. constantino, E. Rosendo Andres, T. Diaz, R. Delgado Macuil, and M. Rojas Lopez. Structural studies of ZnS thin films grown on GaAs by RF magnetron sputtering. *Vacuum*, 84 (2010) 1191-1194, 2010.
- [80] P. Chelvanathan, Y. Yusoff, F. Haque, M. Akhtaruzzaman, M.M. Alam, Z.A. Alothman, M.J. Rashid, K. Sopian, and N. Amin. Growth and characterization of RF-sputtered ZnS thin film deposited at various substrate temperatures for photovoltaic application. *Applied Surface Science*, 334 (2015) 138-144, 2015.
- [81] Xueping Song, Shiwei Shi, Chunbin Cao, Xiaoshuang Chen, Jingbiao Cui, Gang He, and Zhaoqi Sun. Effect of Ag-doping on microstructural, optical and electricla properties of sputtering-derived ZnS films. *Journal of Alloys and Compounds*, 551 (2013) 430-434, 2013.
- [82] Dong Hyun Hwang, Jung Hoon Ahn, Kwun Nam Hui, Kwan San Hui, and Young Guk Son. Structural and optical properties of ZnS thin films deposited by RF magnetron sputtering. *Nanoscale Research Letters*, 7 :26, 2012.
- [83] CMTc. Meb feg zeiss ultra 55. <http://cmtc.grenoble-inp.fr/fr/equipements/meb-feg-zeiss-ultra-55>. Last viewed on 04/09/2019.
- [84] Y.P. Venkata Subbaiah, P. Prathap, and K.T. Ramakrishna Reddy. Structural, electrical and optical properties of zns films deposited by close-spaced evaporation. *Applied Surface Science*, Volume 253, Issue 5, Pages 2409-2415, 2006.
- [85] R.A. Mereu, A. Le Donne, S. Trabattoni, M. Acciarri, and S. Binetti. Comparative study on structural, morphological and optical properties of Zn<sub>2</sub>SnO<sub>4</sub> thin films prepared by r.f. sputtering using Zn and Sn metal targets and ZnO-SnO<sub>2</sub> ceramic target. *Journal of Alloys and Compounds*, Volume 626, Pages 112-117, 2015.
- [86] R.A. Mereu, S. Marchionna, A. Le Donne, L. Ciontea, S. Binetti, and M. Acciarri. Optical and electrical studies of transparent conductive AZO and ITO sputtered thin films for CIGS photovoltaics. *Phys. Status Solidi*, C 11, No. 9, 1464-1467, 2014.

- [87] M. Katagiri, K. Sakasai, M. Matsubayashi, T. Nakamura, Y. Kondo, Y. Chujo, H. Nanto, and T. Kojima. Scintillation materials for neutron imaging detectors. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, Volume 529, Issues 1-3, Pages 274-279, 2004.
- [88] Y. Saito, K. Mishima, M. Matsubayashi, I.C. Lim, J.E. Cha, and C.H. Sim. Development of high-resolution high frame-rate neutron radiography. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, Volume 542, Issues 1-3, Pages 309-315, 2005.
- [89] Hamamatsu. Back-thinned type CCD area image sensor s11071-1106. <https://www.hamamatsu.com/eu/en/product/type/S11071-1106/index.html>. Last viewed on 29/08/2019.
- [90] Crytur. CRY 18. <https://www.crytur.cz/materials/cry-18/>. Last viewed on 15/08/2019.
- [91] M.A. Mckernan. Magnetron sputter deposition of boron and boron carbide. *Surface and coatings Technology*, 49 (1991) 411-415, 1991.
- [92] P.J. Kelly, S.F. Tinston, and R.D. Arnell. The deposition and analysis of pyrotechnic devices deposited by magnetron sputtering. *Surface and Coatings Technology*, 60 (1993) 597-602, 1993.
- [93] Zhehui Wang, M.A. Hoffbauer, C.L. Morris, N.B. Callahan, E.R. Adamek, J.D. Bacon, M. Blatnik, A.E. Brandt, L.J. Broussard, S.M. Clayton, C. Cude-Woods, S. Currie, E.B. Dees, X. Ding, J. Gao, F.E. Gray, K.P. Hickerson, A.T. Holley, T.M. Ito, C.-Y. Liu, M. Makela, J.C. Ramsey, R.W. Pattie Jr., D.J. Salavat, A. Saunders, D.W. Schmidt, R.K. Shulze, S.J. Seestrom E.I. Sharapov, A. Sprow, Z. Tang, W. Wei, J. Wexler, T.L. Womack, A.R. Young, and B.A. Zeck. A multilayer surface detector for ultracold neutrons. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 798 (2015) 30-35, 2015.
- [94] M. Audronis, P.J. Kelly, A. Leyland, and A. Matthews. A new approach to the deposition of elemental boron and boron-based coatings by pulsed magnetron sputtering of loosely packed boron powder targets. *Plasma Processes and Polymers*, 4, S160-S165, 2007. doi : 10.1002/ppap.200730603.
- [95] J.A. Dean. *Lange's handbook of chemistry*. McGraw-Hill, Inc., Fifteenth Edition. ISBN 0-07-016384-7.
- [96] Laboratoire National Henri Becquerel. Nucleide LARA - Library for gamma and alpha emissions - 241Am -Emissions and decay scheme. <http://www.nucleide.org/Laraweb/index.php>. Last viewed on 10/09/2019.

- [97] J.F. Ziegler. Srim - the stopping and range of ions in matter. <http://www.srim.org/>. Last viewed on 12/09/2019.
- [98] Saint-Gobain. Crystal scintillation material. <https://www.crystals.saint-gobain.com/products/crystal-scintillation-materials>. Last viewed on 16/09/2019.
- [99] Eijen Technology. Zinc sulfide coated sheets and discs. <https://eljentechnology.com/products/zinc-sulfide-coated>. Last viewed on 16/09/2019.
- [100] D.S. Meyaard, G.-B. Lin, J. Cho, and E.F. Schubert. 9 - Efficiency droop in gallium indium nitride (GaInN)/gallium nitride (GaN) LEDs. *Nitride Semiconductor Light-Emitting Diodes (LEDs) - Materials Technologies and Applications*, Pages 279-300, 2014.
- [101] Kuraray. Wavelength shifting fibers. <http://kuraraypsf.jp/psf/ws.html>. Last viewed on 10/11/2019.
- [102] CERN. ROOT data analysis framework. <https://root.cern.ch/>.
- [103] Eijen Technology. Thermal neutron detection ej-426. <https://eljentechnology.com/products/neutron-detectors/ej-426>. Last viewed on 10/11/2019.
- [104] Eli Billauer. peakdet : Peak detection using MATLAB. <http://billauer.co.il/peakdet.html>. Last viewed on 15/11/2019.