



HAL
open science

Transitions par interaction faible en métrologie des rayonnements ionisants : de la physique fondamentale aux applications

Xavier Mougeot

► **To cite this version:**

Xavier Mougeot. Transitions par interaction faible en métrologie des rayonnements ionisants : de la physique fondamentale aux applications. Physique Nucléaire Théorique [nucl-th]. Université de Strasbourg (2009-..), 2020. tel-02473900

HAL Id: tel-02473900

<https://cea.hal.science/tel-02473900v1>

Submitted on 11 Feb 2020

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.



HABILITATION À DIRIGER DES RECHERCHES

Préparée au sein du CEA LIST
Département Métrologie, Instrumentation et Information (DM2I)
Laboratoire National Henri Becquerel (LNE-LNHB)

**Transitions par interaction faible en métrologie des rayonnements
ionisants : de la physique fondamentale aux applications**

Présentée et soutenue publiquement le 17 janvier 2020 par

Xavier Mougeot

Devant le jury composé de :

M. Gilles Ban	Professeur à l'ENSICAEN	(Rapporteur)
Mme Sandrine Courtin	Professeur à l'Université de Strasbourg	(Rapporteur)
Mme Fanny Farget	Directrice adjointe scientifique de l'IN2P3	(Examinatrice)
M. Steven Judge	Directeur du département Rayonnements Ionisants du BIPM	(Examinateur)
M. Abdallah Lyoussi	Professeur à l'INSTN	(Rapporteur)
M. Abdel-Mjid Nourreddine	Professeur à l'Université de Strasbourg	(Garant)

“Le silence éternel des espaces infinis m’effraie.”
— Blaise Pascal, *Pensées*

“Et la seule chose qu’on puisse lui opposer, c’est la poésie et la musique.”
— Alexander Astier, *L’Exoconférence*

*Électron arraché
Cherche interaction forte
Dans noyau instable.*

*Neutrino esseulé
Cherche interaction,
Même faible.*

Remerciements

Je te tiens à remercier très sincèrement le Pr Abdel-Mjid Nourreddine pour son soutien sans faille, son ouverture et sa bienveillance tout au long de ces années. Merci d'avoir accepté d'être le directeur de thèse des deux doctorantes que j'ai encadrées, et de leur avoir simplifié la vie à de nombreuses reprises. Merci de m'avoir introduit auprès de théoriciens de l'IPHC et de l'IPCMS et d'avoir fluidifié les relations, même si cela n'a pas toujours été facile. Merci enfin d'avoir accepté d'être le garant de cette habilitation.

Mes remerciements vont ensuite aux membres du jury qui m'ont fait l'honneur de rapporter et d'examiner cette habilitation : Pr Gilles Ban, Pr Sandrine Courtin, Dr Fanny Farget, Dr Steven Judge, Pr Abdallah Lyoussi. Les échanges lors de la soutenance ont été très intéressants, et donneront peut-être lieu à des collaborations dans un futur proche.

Je remercie bien évidemment les différents chefs du LNHB et du LMA, qui se sont succédés tout au long de ces années, pour avoir été capables de (vaguement) me supporter : François Damois et Éric Verdeau, Loïc Lenoir de Carlan et Thierry Branger, Isabelle Aubineau-Lanièce et Mark Kellett.

Mes plus sincères remerciements vont à Marie-Martine Bé, pour m'avoir accueilli à la Cellule de Données Fondamentales lorsqu'elle existait encore, pour avoir partagé son expertise en évaluation de données, pour avoir passé de longues heures à me décrypter le fonctionnement du laboratoire, de l'institut, du CEA et les arcanes de la métrologie européenne et mondiale. Merci encore pour m'avoir confié ce sujet, la spectrométrie bêta. Je ne sais toujours pas si tu imaginais à cette époque jusqu'où ça irait. Je fais mon possible depuis ton départ pour porter au mieux ce sujet et promouvoir les données, mais c'est nettement plus difficile sans toi. Merci enfin pour ton amitié dans les moments difficiles que j'ai pu traverser. C'est de loin ce qui compte le plus pour moi.

Un grand merci à Charlène Bisch et Abhilasha Singh pour leur implication, leur ténacité et leur bonne humeur. Le système de mesure de spectres bêta avec des détecteurs silicium est le fruit de leur travail, et elles peuvent en être fières.

Merci à tous les membres du LMA, passés et présents, pour tous ces échanges, cette chaleur humaine et ces efforts au quotidien pour entretenir une bonne humeur dans le laboratoire. Mon sentiment est que ce laboratoire forme une grande famille. Comme dans toutes les familles, il y a des histoires, des difficultés, des affinités, de franches rigolades et des moments de partage inoubliables, tant scientifiques qu'humains. Ce laboratoire recèle d'expertises de très haut niveau qui mériteraient, à mon sens, d'être bien mieux valorisées. J'ajouterai un remerciement particulier à l'attention de Carole et Philippe pour avoir relu ce mémoire.

Même s'il est peu probable qu'ils liront ces lignes, je souhaite remercier certains de mes collègues français et étrangers pour leur accueil et les échanges, là encore tant humains que scientifiques, que nous avons eu : Vivian Dimitriou, Jerzy Dudek, Magali Estienne, Mu-

riel Fallot, Lydie Giot, Robert Grzywacz, John Hardy, Paul-Antoine Hervieux, Xiaolong Huang, Frédéric Juget, Tibor Kibédi, Filip Kondev, Karsten Kossert, Aurelian Luca, Krzysimir Mitev, Amanda Porta, Francesco Quarati, Charlie Rasco, Krzysztof Rykaczewski, Nathal Severijns, Balraj Singh, Alejandro Sonzogni, Simone Taioli, Jagdish Tuli, Robert Vatin, Matthieu Vivier, John Wood, Kai Zuber. J'ai toujours l'impression d'oublier quelqu'un !

Enfin, il est trois personnes que je souhaite tout particulièrement remercier : Nathalie, qui a déjà subi l'épreuve de mon doctorat, Clémentine et Arthur, qui sont entrés en fanfare dans nos vies depuis. Le travail a bien trop débordé sur la vie de famille, le temps que je vous consacre ne me semble jamais suffisant. Je fais de mon mieux pour y remédier, progressivement. Vous êtes à mes yeux l'essentiel, l'indispensable, l'évidence. Vous me permettez de relativiser tout ceci, aussi enthousiasmants que ces sujets d'étude puissent être. Ce que nous construisons au quotidien est ce dont je suis le plus fier.

Table des matières

Remerciements	5
Introduction générale	11
I Spectroscopie des noyaux exotiques ${}^6\text{He}$ et ${}^7\text{He}$ par réactions de transfert	15
Introduction	17
1 Motivations	17
2 Méthode expérimentale	19
3 Résultats	23
3.1 Spectres en énergie d'excitation	24
3.2 Structure du ${}^6\text{He}$	25
3.3 Structure du ${}^7\text{He}$	26
3.4 Sections efficaces	27
Conclusion	29
Bibliographie	30
II Transitions par interaction faible en métrologie des rayonnements ionisants	33
Introduction	35
1 Motivations	37
1.1 Une enquête à rebondissements	37
1.2 Métrologie des rayonnements ionisants	39
1.2.1 Organisation de la métrologie	39
1.2.2 Le Laboratoire National Henri Becquerel	41
1.3 Données nucléaires de désintégration	43
1.4 État de l'art en début d'étude	44
1.4.1 Mesures de spectres bêta	44

1.4.2	Codes de calculs	46
1.5	Applications majeures	48
1.5.1	Physique fondamentale	48
1.5.2	Production d'énergie	50
1.5.3	Médecine nucléaire	52
2	Approche expérimentale	55
2.1	Le détecteur idéal	56
2.1.1	Un tour d'horizon au pas de charge	56
2.1.2	De l'importance de la source	58
2.2	Calorimètres métalliques magnétiques	60
2.3	Détecteurs silicium	64
2.3.1	Premiers pas	64
2.3.2	Un dispositif dédié	67
2.3.3	Une configuration compacte	72
3	Approche théorique	81
3.1	Désintégrations bêta	82
3.1.1	Le programme BetaShape	82
3.1.1.1	Modèle physique	83
3.1.1.2	Fonctions d'onde des électrons	84
3.1.1.3	Facteurs de forme théoriques	86
3.1.1.4	Correction d'écrantage	87
3.1.1.5	Corrections radiatives	89
3.1.1.6	Au-delà du modèle physique	90
3.1.1.7	Validation du code	93
3.1.2	Effet d'échange atomique	94
3.1.3	Composante nucléaire	98
3.2	Captures électroniques	107
3.2.1	Probabilités de transition	107
3.2.2	Fonctions d'onde des états liés	108
3.2.3	Effets de recouvrement et d'échange	109
3.2.4	Création de vacances secondaires	110
3.2.5	Corrections radiatives	111
3.2.6	Comparaison aux valeurs expérimentales	112
3.3	Applications	114
3.3.1	Données nucléaires	114
3.3.1.1	Étude systématique de la carte des noyaux	114
3.3.1.2	Évaluation du ^{40}K	117
3.3.2	Métrologie de la radioactivité	119
4	Perspectives	121
4.1	Travaux en cours	122
4.1.1	Détecteurs silicium	122
4.1.2	BetaShape 2.0	124
4.1.3	Module de décroissance Geant4	126
4.1.4	Composante nucléaire dans les captures électroniques	128

TABLE DES MATIÈRES

4.2	Orientations possibles à moyen terme	129
4.2.1	Structure nucléaire réaliste	129
4.2.2	Spectres antineutrino issus des réacteurs	130
4.2.3	Tests du Modèle Standard	132
4.2.4	Influence de l'environnement	136
	Conclusion	139
	Bibliographie	141
III	Curriculum vitæ	155
1	Profil de recherche	157
1.1	État civil	157
1.2	Formation	157
1.3	Positions occupées	157
1.4	Résumé	157
1.5	Encadrement	159
1.6	Responsabilités institutionnelles	161
2	Publications et communications orales	162
2.1	Liste des publications	162
2.2	Liste des communications orales	166
3	Projets déposés	168
3.1	Sujets de thèse	168
3.2	Projets nationaux	168
3.3	Projets européens	170
	Résumé	174

Introduction générale

La France fait historiquement partie des pays fondateurs de l'organisation de la métrologie mondiale, avec la signature de la Convention du Mètre à Paris en 1875 par 17 pays. Cependant, elle est un des rares grands pays industrialisés où il reste difficile de faire comprendre aux décideurs l'importance fondamentale de la métrologie pour la société, l'économie et la science. Au Moyen Âge, chaque province, chaque pays, disposait de ses propres unités de mesures de longueur, de superficie, de volume et de poids, pouvant parfois se rapporter aux caractéristiques physiques du souverain en place. Cette situation compliquait les échanges commerciaux et la diffusion des connaissances. Inspirés par l'universalisme de l'esprit des Lumières et de la Révolution française, les scientifiques français ont proposé l'emploi de références naturelles ayant la même valeur pour tous, sans rapport à une personne particulière. Par exemple, le dix millionième de la longueur du méridien terrestre fut proposé comme référence de longueur pour établir le mètre.

De même, chaque ville avait sa propre horloge et sa propre heure. Cela ne posait pas de problème tant que les échanges se faisaient à cheval. Mais avec l'avènement du chemin de fer au XIX^{ème} siècle, un besoin de cohérence dans les horaires des trains et les temps de trajet a émergé, conduisant à définir une heure commune. À l'initiative des États-Unis, la volonté d'une normalisation de l'heure sur l'ensemble du globe est apparue et en 1884, le méridien de Greenwich a été adopté comme méridien de référence pour le tout nouveau système de fuseaux horaires. En France, la diffusion progressive de l'heure de Paris dans les provinces s'est faite *via* les chemins de fer, où l'heure du chemin de fer était l'heure de Paris décalée de cinq minutes, pour les voyageurs retardataires !

Même si son influence semble peu visible, la métrologie a un rôle encore plus important de nos jours. Les exemples sont très nombreux. Les transactions à haute fréquence sur les marchés financiers se font à la microseconde près, ce qui est impossible sans une référence très précise définissant la seconde. Les satellites de positionnement par géolocalisation ne peuvent fonctionner plus de quelques minutes sans appliquer des corrections dues à la relativité générale, qui dépendent de la précision de la mesure du temps de propagation d'ondes électromagnétiques sur quelques kilomètres. En 1999, la sonde spatiale martienne Mars Climate Orbiter s'est écrasée lors de son approche finale car le logiciel de contrôle de la trajectoire, développé par le Jet Propulsion Laboratory, interprétait les données en N·s alors que le logiciel de contrôle des propulseurs, développé par Lockheed, exprimait ces mêmes données en livre-force·s.

La métrologie des rayonnements ionisants établit les étalons et les références ultimes pour tout ce qui a trait à la radioactivité et à son impact sur le corps humain, la dosimétrie. Elle est donc essentielle à l'industrie du nucléaire et à la médecine nucléaire, et a des répercussions sociétales, économiques et scientifiques. Elle fait le pont entre la recherche fondamentale, dont les expertises sont indispensables à l'établissement des références les

plus précises possible, et les applications, qu'il est nécessaire de bien connaître pour en comprendre les besoins. Ce transfert est au cœur de ses missions et explique que la métrologie soit rattachée au Ministère de l'Industrie dans la plupart des pays.

En France, la métrologie des rayonnements ionisants a naturellement trouvée sa place au sein du CEA, où elle est réalisée par le Laboratoire National Henri Becquerel (LNHB). Sa vocation de transfert technologique et de connaissance a positionné le LNHB au sein de la Direction de la Recherche Technologique. L'une des conséquences importantes, au quotidien, pour mener des recherches est la forte contrainte budgétaire qui en découle. La part de subvention en provenance du CEA arrivant au niveau du laboratoire de métrologie de l'activité est si faible qu'elle ne couvre aucun des salaires du personnel en place. Heureusement, la métrologie française est organisée par le Laboratoire National de Métrologie et d'Essais (LNE), qui dispose d'un budget propre attribué par le Ministère de l'Industrie. Le LNE délègue la métrologie des rayonnements ionisants au LNHB, et finance en contrepartie une large part de ses activités.

Cet aspect est devenu important dans toute la recherche française. Il l'est certainement plus encore en recherche technologique qu'ailleurs. Si je l'évoque ici, c'est pour souligner la difficulté de lancer une nouvelle étude, avec un volet théorique atypique en métrologie de la radioactivité. Cela pousse à produire très régulièrement des résultats concrets, valorisables scientifiquement et dans des projets financés, pour justifier du maintien de cette activité. Outre le temps passé à élaborer des projets, les soumettre et les conduire lorsqu'ils ont été acceptés, cette situation implique d'organiser la recherche menée de telle sorte qu'elle ne soit pas uniquement dépendante de la décision d'un comité de relecteurs pas nécessairement experts du domaine.

La première partie de ce mémoire résume le travail que j'ai effectué lors de mon doctorat au sein de l'Institut de Recherche sur les lois Fondamentales de l'Univers (IRFU) du CEA. Cette thèse expérimentale portait sur l'étude de la spectroscopie de noyaux exotiques légers. Je suis ensuite arrivé au LNHB pour un post-doctorat d'un an, et j'y suis resté depuis. J'ai été impliqué dès le départ dans les évaluations de données atomiques et nucléaires. En 2009, un état de l'art de la spectrométrie bêta m'a été demandé dans l'optique d'améliorer les données que nous fournissions à nos utilisateurs. Jusqu'en 2013, mon travail se répartissait entre évaluation de données, spectrométrie gamma et spectrométrie bêta. Puis, les résultats produits étant suffisamment convaincants, la spectrométrie bêta est devenue mon principal sujet d'étude.

La deuxième partie de ce mémoire présente donc le travail que j'ai effectué ces dix dernières années en spectrométrie bêta. Une approche complète de cette thématique s'est avérée nécessaire. Un système de détection dédié a été mis en place, conjointement au développement d'une nouvelle technique expérimentale par des collègues au sein du laboratoire. Les résultats obtenus positionnent le LNHB au meilleur niveau dans ce domaine. En parallèle, j'ai entamé une étude théorique des désintégrations par interaction faible, les transitions bêta et les captures électroniques. Expérimentateur de formation, je n'avais bien évidemment presque aucune confiance en moi quant à la qualité du travail que je produisais. Pour apprendre et comprendre au mieux les différents aspects, je me suis attaché à dériver les équations du formalisme et à rédiger régulièrement des rapports internes détaillés. Cet engagement fort m'a permis de pouvoir dialoguer directement avec des théoriciens de physique atomique et de structure nucléaire, en leur expliquant les enjeux et ce que j'espérais d'eux exactement. Rétrospectivement, cet effort était nécessaire pour intéresser

certains d'entre eux et les emmener dans des projets européens de métrologie. Le code de calcul BetaShape que j'ai développé, et dont une nouvelle version sera mise à disposition prochainement, est l'un des résultats majeurs de ce travail théorique.

Au cours de cette étude, les spectres bêta sont devenus un enjeu important dans certaines thématiques de recherche fondamentale. Ils contribuent au bruit de fond dans les expériences de détection de matière noire. Ils sont essentiels à la compréhension des spectres antineutrino issus des réacteurs, où des anomalies observées tendent à suggérer l'existence d'un neutrino stérile. L'étude très précise de la forme des spectres bêta peut permettre de tester certaines hypothèses du Modèle Standard, et de mettre en évidence certains effets d'une nouvelle physique. L'expertise acquise peut permettre de contribuer à ces sujets majeurs à travers différentes collaborations dans un avenir proche.

I

Spectroscopie des noyaux exotiques ${}^6\text{He}$
et ${}^7\text{He}$ par réactions de transfert

“And now for something completely different.”

— Monty Python

Introduction

Cette partie synthétise l’analyse d’une expérience réalisée en mars 2007 au GANIL¹ lors de ma thèse de doctorat. Les objectifs étaient de déterminer la spectroscopie à basse énergie des noyaux exotiques ${}^6\text{He}$ et ${}^7\text{He}$ pour tester la validité des modèles nucléaires d’alors. Ce travail faisait suite à deux expériences de diffusions élastiques et inélastiques sur une cible de protons utilisant des faisceaux d’ions radioactifs ${}^6\text{He}$ et ${}^8\text{He}$. La première expérience a permis de mettre en évidence les effets du halo de deux neutrons dans le ${}^6\text{He}$, mais pas de déterminer les états excités au-dessus du premier état 2^+ connu, à 1.8 MeV en énergie d’excitation [Lag01]. La seconde a permis de déterminer un deuxième état excité du ${}^8\text{He}$ [Ska07], d’indiquer la position du premier état excité du ${}^7\text{He}$ [Ska06], et de mettre en évidence l’importance du couplage entre la voie élastique ${}^8\text{He}(p,p)$ et la voie de transfert ${}^8\text{He}(p,d)$ [Ska06].

L’expérience de cette thèse a eu pour objectif principal d’explorer la spectroscopie du ${}^6\text{He}$ *via* la réaction de transfert de deux neutrons ${}^8\text{He}(p,t)$, et celle du ${}^7\text{He}$ *via* la réaction de transfert ${}^8\text{He}(p,d)$. Le faisceau incident d’ions ${}^8\text{He}$ a été produit par le dispositif SPIRAL² à une énergie cinétique de 15.4 MeV par nucléon, et envoyé sur une cible de protons. Cette expérience s’inscrit dans le contexte de l’étude de la structure des noyaux radioactifs dits exotiques, parce qu’ils sont faiblement liés par rapport à l’interaction forte et qu’ils présentent des structures inhabituelles. Elle a été réalisée au cours d’une campagne de trois expériences de la collaboration MUST2. Elle est la première à avoir utilisé un ensemble de détection composé de cinq télescopes à particules chargées MUST2.

Cette thèse a été réalisée entre 2005 et 2008 sous la direction du Dr Valérie Lapoux au sein de Département de Physique Nucléaire, qui fait partie de l’Institut IRFU³ du CEA-Saclay.

1 Motivations

Le noyau est un ensemble de nucléons, protons et neutrons, en interaction. Deux types de forces entrent en jeu : la force électromagnétique, bien connue, et la force nucléaire forte. Tenter de comprendre et caractériser la structure d’un noyau, c’est s’attaquer au problème à N corps mais en tenant compte d’une interaction entre les nucléons complexe et mal connue. Il est possible de mesurer l’interaction proton-proton ou proton-neutron, mais nous ne connaissons pas directement l’interaction neutron-neutron. De plus, la connaissance de ces interactions nues n’est pas suffisante. Au sein du noyau, l’interaction entre deux nucléons est modifiée par la présence des autres nucléons, et les interactions à trois ou quatre corps peuvent jouer un rôle important.

Les théories de structure nucléaire ont d’abord été développées pour reproduire les propriétés mesurées des noyaux stables. Dans les années 1980, il est devenu possible de produire

1. Grand Accélérateur National d’Ions Lourds, Caen, France.
2. Système de Production d’Ions Radioactifs Accélérés en Ligne [Vil01].
3. Institut de Recherche sur les lois Fondamentales de l’Univers.

des faisceaux d'ions radioactifs, et donc d'étudier les isotopes instables d'un élément donné. Plus ces noyaux sont riches ou déficients en neutrons, plus leur énergie de liaison est faible. La limite au-delà de laquelle un isotope n'est plus lié est appelée *drip-line* et les noyaux proches de cette limite sont dits exotiques. L'utilisation de ces faisceaux pour produire des noyaux loin de la vallée de la stabilité a conduit à la découverte d'une grande variété de phénomènes nouveaux et inattendus. Certains sont liés alors qu'aucun des sous-systèmes binaires ne l'est : ces noyaux sont qualifiés de borroméens. Des structures de type clusters α , halo et peau de neutrons, ou encore des états résonants de basse énergie ont été observés dans les noyaux légers proches de la *drip-line* neutron [Tan95, Jon04]. La structure du modèle en couches, établie à partir des propriétés des noyaux dans la vallée de stabilité, s'est profondément modifiée avec l'apparition de nouveaux nombres magiques [Ots01, Ots05]. La figure 1 résume les noyaux légers riches en neutrons possédant ces structures.

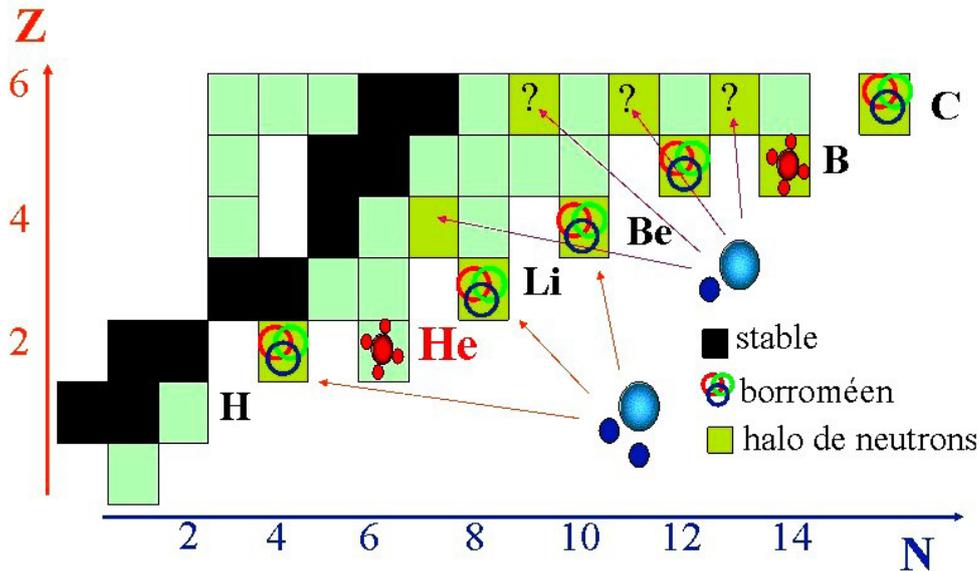


FIGURE 1 – Carte des noyaux légers.

L'étude des noyaux exotiques permet donc de tester les modèles établis avec les noyaux stables dans des conditions extrêmes afin d'améliorer notre compréhension de l'interaction forte et de la structure nucléaire. La mise en évidence de ces nouveaux phénomènes a engendré des développements théoriques intensifs pour tenter de les expliquer. Il est apparu que l'interaction à trois nucléons joue un rôle important dans le spectre en énergie des noyaux légers [Pie04] et dans la position exacte des *drip-lines* [Ots10, Hag09]. La séquence des différentes couches est influencée par le terme tensoriel de spin-orbite [Ots01, Ots05]. Les spectres des états résonants de basse énergie dans les noyaux faiblement liés sont quant à eux sensibles au couplage au continuum entre les états liés, les états résonants et les états de diffusion [Mic02, Mic03]. Le Gamow Shell Model [Hag05, Mic10a], le Continuum Shell Model [Vol05] ou le Complex Scaled Cluster Orbital Shell Model [Myo07] ont modélisé ces effets de couplage au continuum pour tenter de reproduire la structure des noyaux exotiques légers. Dans l'ensemble, ils réussissent à reproduire les caractéristiques des états fondamentaux et des premiers états excités qui ont été bien mesurés. En revanche, leurs prédictions divergent pour les états résonants suivants, là où l'information expérimentale manque.

Ces désaccords entre les prédictions théoriques remettent en question la validité des éléments microscopiques utilisés pour décrire les interactions nucléaires, les différentes techniques adoptées pour le traitement du problème à N corps, et leur interaction avec les effets du couplage au continuum. Dans ce contexte, la spectroscopie des noyaux exotiques légers à basse énergie est idéale pour tester les hypothèses et contraindre les paramètres de ces modèles.

2 Méthode expérimentale

Pour étudier la structure des noyaux, les réactions directes à basse énergie sont un outil privilégié. En particulier, les réactions de transfert permettent d'accéder aux masses, aux spins et aux parités des différents états excités peuplés. Comme le temps de vie des noyaux exotiques est inférieur à la seconde, il a fallu développer de nouvelles techniques expérimentales pour mesurer ces réactions. Les physiciens travaillent en cinématique inverse : au lieu d'envoyer un faisceau de particules légères de structure connue, protons ou électrons, sur une cible composée du noyau à étudier, ils envoient un faisceau du noyau d'intérêt sur une cible connue de protons, deutons, ${}^{12}\text{C}$, ${}^{208}\text{Pb}$, etc.

En cinématique inverse, l'éjectile lourd est focalisé autour de l'axe du faisceau et les particules légères sont distribuées sur une large gamme angulaire. Les réactions d'intérêt sont étudiées par la méthode de la masse manquante. La mesure des angles de diffusion et des énergies des particules détectées est un point crucial pour ce type d'expérience. La qualité des spectres obtenus dépend avant tout de l'identification en masse et en charge des particules détectées, ainsi que des résolutions en position et en énergie. Or, les qualités optiques des faisceaux d'ions radioactifs sont moins bonnes que celles des faisceaux d'ions stables. Des détecteurs de faisceau ont dû être développés afin de reconstruire avec précision l'angle de diffusion des particules. De plus, l'angle solide du dispositif expérimental doit être optimisé pour compenser les faibles intensités des faisceaux radioactifs et les contraintes cinématiques sur la détection des particules chargées.

Les émittances importantes des faisceaux radioactifs nécessitent de connaître avec précision le point d'impact et l'angle d'incidence sur la cible de chaque ion du faisceau. Les détecteurs de faisceau CATS⁴ sont des chambres à fils basse pression développées par le SEDI⁵ du CEA-Saclay [Ott99]. Un schéma en vue éclatée est présenté à la figure 2. Au centre du détecteur se trouve l'anode, un plan de 71 fils de $10\ \mu\text{m}$ de diamètre séparés de 1 mm. Une haute tension sépare les deux plans de cathode, à 6.4 mm l'un de l'autre, reliés à la masse et constitués d'une feuille de Mylar de $1.5\ \mu\text{m}$ d'épaisseur sur laquelle 28 pistes d'aluminium doré ont été évaporées. Ces pistes sont larges de 2.34 mm et sont séparées de 0.2 mm. Les pistes d'une cathode sont parallèles aux fils de l'anode, et permettent de reconstruire la position horizontale. Les pistes de l'autre cathode sont perpendiculaires, pour la reconstruction de la position verticale. Enfin, deux feuilles de Mylar de $1.5\ \mu\text{m}$ d'épaisseur constituent les faces externes du détecteur, assurant l'étanchéité de l'ensemble, rempli d'isobutane (C_4H_{10}) à une pression d'environ 12 mbar. La surface active de détection est de $70 \times 70\ \text{mm}^2$.

4. Chambre À Trajectoires de Saclay.

5. Service d'Électronique des Détecteurs et d'Informatique

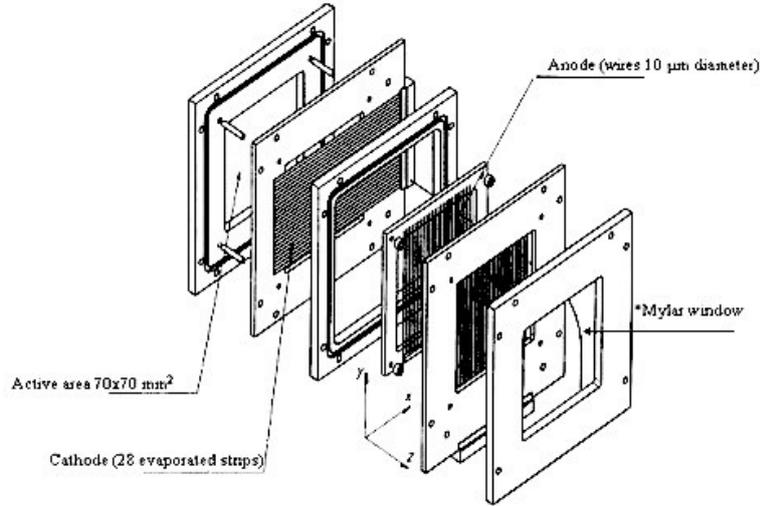


FIGURE 2 – Vue éclatée de la composition du détecteur CATS.

Hormis le cas remarquable du ^{11}Be et de son état $1/2^-$ à 320 keV, tous les noyaux à halo connus possèdent des états excités non liés. Ils ne décroissent donc pas par émission de γ mais par émission de particules. Dans notre cas, seuls les états fondamentaux des $^{6,8}\text{He}$ sont liés, tandis que celui du ^7He est déjà un état résonant. Que leur étude se fasse par réactions élastiques, inélastiques ou de transfert, il est nécessaire de mesurer en coïncidence des éjectiles qu'il faut pouvoir identifier. Les groupes de physique nucléaire et d'ingénierie du CEA-Saclay IRFU, de l'IPN-Orsay⁶, et du GANIL ont développé le télescope à particules chargées MUST2 [Pol05] pour la mesure des particules légères émises dans les réactions directes induites par les faisceaux radioactifs, en tirant parti de l'expérience acquise avec le détecteur précédent MUST [Blu99]. Ce détecteur MUST2 a été développé à partir de 2001 afin d'augmenter la surface de détection et d'améliorer les résolutions. Dans sa configuration complète, il est composé de trois étages de détection : *i*) un détecteur de silicium (Si) double face à pistes (128 X, 128 Y) constituant la face d'entrée du télescope, d'une surface active de $100 \times 100 \text{ mm}^2$ et de $300 \mu\text{m}$ d'épaisseur ; *ii*) un détecteur de silicium dopé au lithium [Si(Li)] segmenté (16 éléments), placé à 17 mm du premier étage, de surface active identique et de 5 mm d'épaisseur ; *iii*) un ensemble de 16 cristaux d'iodure de césium dopés au thallium [CsI(Tl)], placé à 30 mm du premier étage, chaque cristal ayant une géométrie pyramidale avec une face d'entrée de $30 \times 30 \text{ mm}^2$ et une épaisseur de 40 mm. Les premiers tests sous faisceau ont eu lieu en 2004, et un ensemble de cinq télescopes était opérationnel début 2007.

Le dispositif expérimental adopté, présenté en figure 3, comprenait quatre éléments essentiels : le faisceau SPIRAL d'ions ^8He , une cible mince de polypropylène riche en protons (4 ou $50 \mu\text{m}$ d'épaisseur), deux détecteurs de faisceau CATS et les cinq télescopes à particules chargées MUST2. Le deuxième étage de Si(Li) dans les détecteurs MUST2 n'a pas été utilisé car la dynamique en énergie des particules ne le nécessitait pas. Un plastique scintillant NE102 a été positionné en face du cinquième module, à l'arrière, pour arrêter les ions ^8He du faisceau et ne pas aveugler le détecteur.

6. Institut de Physique Nucléaire, IN2P3, CNRS.

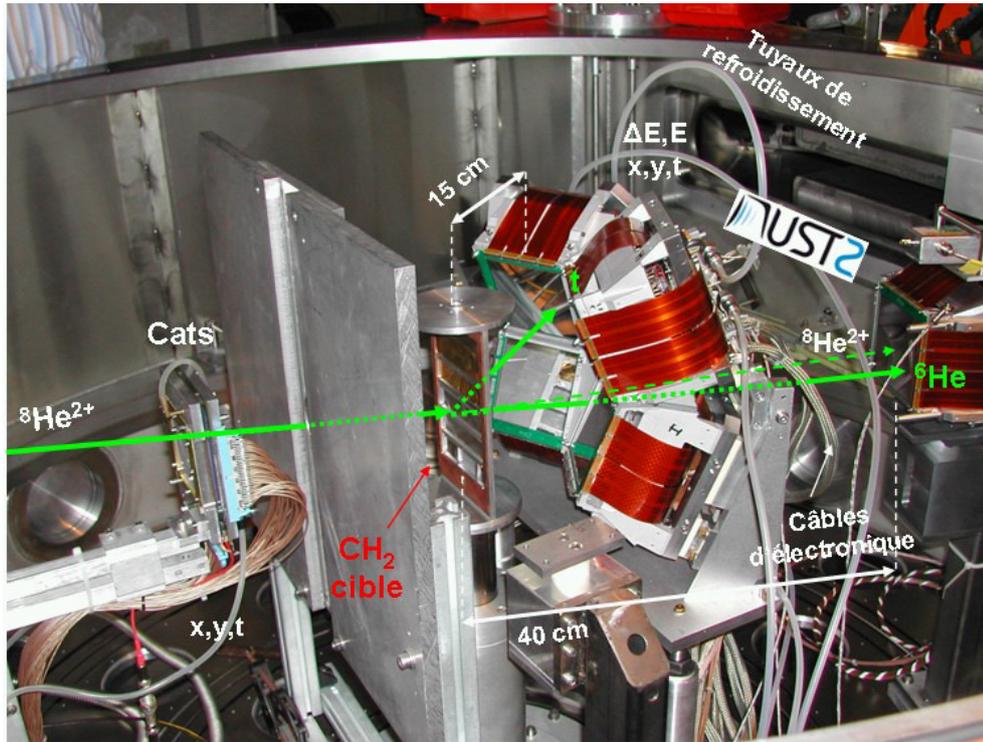


FIGURE 3 – Configuration du dispositif expérimental. Le plastique, couplé à un guide de lumière et une photodiode, a été rajouté par la suite devant et au centre du télescope à 40 cm de la cible. Un écran de protection a été placé entre la cible et le détecteur de faisceau Cats le plus proche.

Un programme de simulation était nécessaire pour tester notre compréhension des différents effets expérimentaux : efficacités et coupures géométriques, seuils de détection, résolutions en énergie et en angle, etc. Une telle simulation doit inclure les cinématiques des réactions et fournir les caractéristiques des particules détectées : énergies, angles de diffusion et taux de comptage. Au sein du laboratoire, un programme utilisant une méthode Monte-Carlo a été développé pour le détecteur MUST [Jou01]. Il a été amélioré pour générer sous ROOT [Bru96] la géométrie de la détection et pour effectuer les calculs d'angle solide et d'efficacité [Ska04]. Au cours de ce travail de thèse, la simulation a été adaptée aux caractéristiques de MUST2 et couplée avec un programme de pertes d'énergie plus complet [Fil95]. Les réactions peuvent être traitées facilement si elles sont à deux corps dans l'état final. Par contre, si au moins l'un des deux corps décroît par émission de particules, ou si la réaction est à plus de deux corps, il est nécessaire d'inclure des calculs d'espace des phases. Le programme a donc été modifié pour qu'il gère ces trois situations, ce qui est indispensable pour simuler une expérience avec des noyaux exotiques faiblement liés.

La figure 4 présente les calculs de la couverture angulaire et de l'efficacité géométrique de détection du dispositif à partir d'une simulation de protons de 50 MeV détectés dans le premier étage des détecteurs MUST2. Ces calculs tiennent compte de la forme du faisceau incident sur cible. On effectue un tirage aléatoire sur les angles θ et ϕ , tels que définis classiquement dans les coordonnées sphériques, pour déterminer un angle de diffusion. La couverture angulaire est obtenue à partir du nombre de particules détectées dans un

intervalle de 1° autour de l'angle de diffusion. Pour chacun de ces intervalles, on détermine l'efficacité géométrique de détection en normalisant la couverture angulaire avec l'angle solide total. On observe que ce dispositif expérimental permet de détecter les éjectiles avec une efficacité de plus de 90 %, et les noyaux de recul avec une efficacité d'environ 60 %.

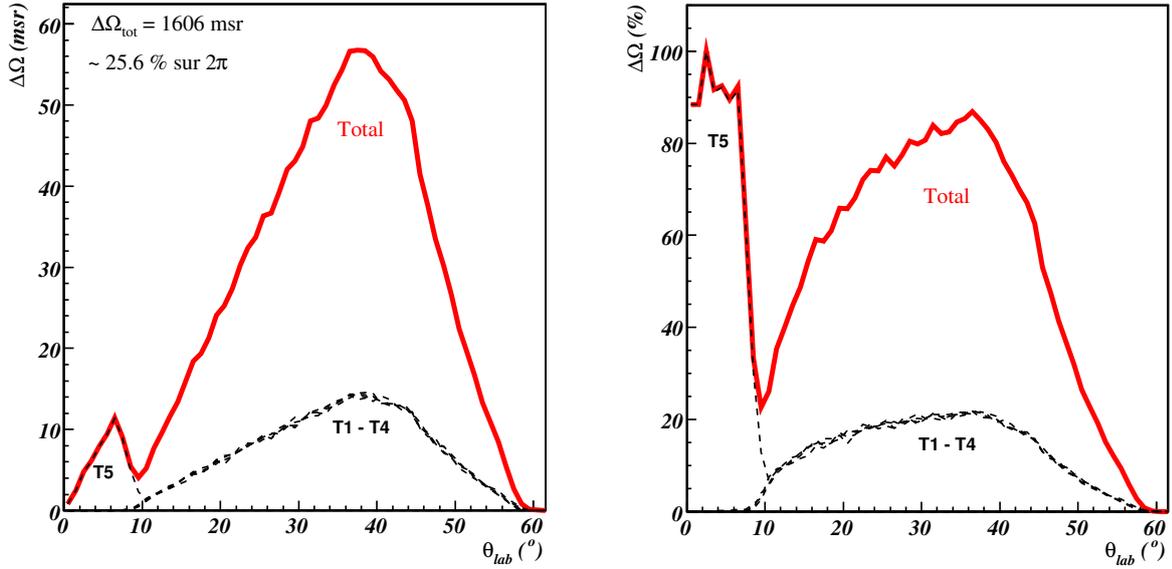


FIGURE 4 – Calculs de l'angle solide, à gauche, et de l'efficacité géométrique de détection, à droite, pour le dispositif de la figure 3. Les contributions de chaque télescope sont en pointillés (T1 - T4 pour le bloc au plus près de la cible et T5 pour le MUST2 dans l'axe du faisceau), et leur somme apparaît en trait plein. Le plastique, placé devant le T5, n'a pas été pris en compte. L'étude en cinématique inverse des transferts (p, d) et (p, t) focalise les particules à l'avant : l'angle solide couvert est comparé aux 2π sr à l'avant.

La figure 5 présente le résultat d'une simulation selon ce dispositif expérimental. Elle a été faite avec 300 000 événements, pour les paramètres suivants :

- un faisceau de ^8He à 15.4 MeV par nucléon, dont les événements sont issus du traitement des données de notre expérience,
- une cible de polypropylène normale à l'axe du faisceau de $50 \mu\text{m}$ d'épaisseur,
- les caractéristiques des détecteurs déterminées lors du traitement des données de notre expérience,
- des sections efficaces constantes et identiques pour toutes les réactions,
- une voie d'entrée $^8\text{He}+p$ avec les voies de sorties suivantes :
 - diffusion élastique $^8\text{He}+p$,
 - $^6\text{He}_{gs}+t$,
 - $^6\text{He}_{1.8\text{MeV}}+t$ avec la décroissance $^6\text{He}_{1.8\text{MeV}} \rightarrow \alpha + 2n$,
 - $^7\text{He}_{gs}+d$ avec la décroissance $^7\text{He}_{gs} \rightarrow ^6\text{He}+n$,
 - $^7\text{He}_{2.9\text{MeV}}+d$ avec la décroissance $^7\text{He}_{2.9\text{MeV}} \rightarrow \alpha + 3n$.

On observe que les lignes cinématiques des différentes particules détectées sont bien identifiables.

Ce dispositif était parfaitement adapté à la mesure des réactions de transfert $^8\text{He}(p,t)$

et ${}^8\text{He}(p,d)$ à 15.4 MeV par nucléon, sur une très grande gamme en angle de diffusion dans le référentiel du centre de masse (abrégé par la suite « angle cm »). Il était ainsi un outil idéal pour l'étude des noyaux exotiques par réaction de transfert à basse énergie.

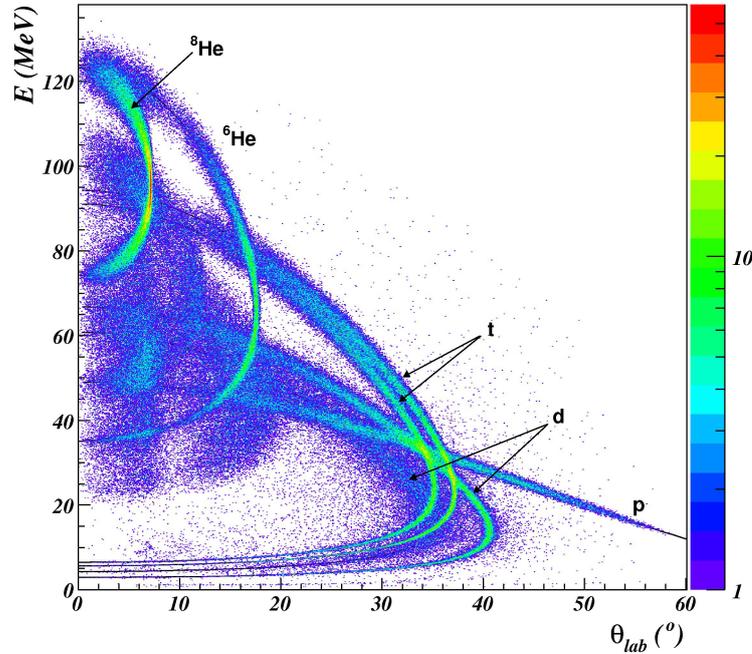


FIGURE 5 – Cinématiques simulées pour la diffusion élastique ${}^8\text{He}+p$ à 15.4 MeV par nucléon, et les réactions de transfert d'un et de deux neutrons, vers les états fondamentaux des ${}^6,{}^7\text{He}$ et un état excité pour chacun.

3 Résultats

Je ne détaillerai pas les procédures d'étalonnage et de reconstruction, même si elles sont au cœur de ce travail. La reconstruction de l'énergie d'excitation de l'éjectile par masse manquante nécessite de connaître l'énergie de la réaction, ainsi que l'énergie et l'angle de diffusion du noyau de recul. L'angle de diffusion de ce dernier est déterminé grâce à la mesure de son point d'impact dans un télescope MUST2, par rapport à l'angle d'incidence sur cible de l'ion du faisceau. Son énergie totale est la somme des énergies perdues dans chaque étage de détection, plus l'énergie perdue dans la cible déterminée avec le même programme de pertes d'énergie que celui utilisé dans nos simulations.

L'identification en masse et en charge des particules a été faite selon deux méthodes. Pour les particules de basse énergie s'arrêtant dans le premier étage de Si des détecteurs MUST2, l'identification a été faite en corrélant l'énergie déposée et la mesure de leur temps de vol. Pour les particules qui traversent, l'identification a été faite en corrélant les énergies déposées dans les deux étages de détection. En effet, la perte d'énergie ΔE d'une particule dans un matériau dépend de son énergie E , de sa masse A et de sa charge Z : $\Delta E \propto AZ^2/E$. Dans des matrices $\Delta E_{Si} - E_{CsI}$, chaque particule est donc caractérisée par une ligne spécifique et un contour permet son identification.

Les spectres en énergie d'excitation présentent un fond physique important qui provient des états du continuum, mais aussi de toutes les autres réactions pouvant produire les mêmes éjectiles en voie de sortie. L'identification des particules et la sélection des événements d'intérêt selon des coïncidences spécifiques a permis d'éliminer une très grande partie de ce fond. Cependant, les particules chargées en voie de sortie peuvent avoir été produites selon des processus différents, qui ne peuvent pas être identifiés sans détection en coïncidence des neutrons émis. Ces contributions au fond physique restant ont été étudiées précisément et modélisées à l'aide de notre programme de simulation.

3.1 Spectres en énergie d'excitation

Quand un noyau acquiert une énergie d'excitation supérieure à un seuil d'émission de particules, les états accessibles ne sont plus quantifiés. Ils se distribuent de manière continue dans l'espace des phases du système, selon l'impulsion emportée par chaque particule. Mais le système peut aussi passer par un état non lié spécifique à sa structure. Un tel état peut être peuplé préférentiellement lors de l'excitation du noyau, selon le type de réaction, l'énergie disponible et le moment angulaire transféré. C'est une résonance propre au système, dont le temps de vie est de l'ordre de 10^{-20} s. Le principe d'incertitude de Heisenberg implique une largeur intrinsèque non nulle de cet état, d'autant plus grande que son temps de vie est court. Cela rend difficile une définition non ambiguë d'un état résonant d'un point de vue théorique. Il faut pouvoir distinguer un état de diffusion d'un état résonant dans le continuum des états résonants et non résonants, et les prédictions pour un même modèle peuvent différer selon la définition employée.

Dans notre analyse, les résonances ont été modélisées de façon réaliste par des distributions de Breit-Wigner d'énergie E_R et de largeur Γ_R . Pour tenir compte de la résolution expérimentale, incluant les effets de straggling⁷ dans la cible ainsi que les résolutions des détecteurs en énergie et en position, ces distributions ont été convoluées avec une distribution gaussienne dont la largeur a été extraite de nos mesures. Nous avons reconstruit le spectre en énergie d'excitation et déterminé les paramètres (E_R, Γ_R) des résonances possibles pour un intervalle spécifique en angle cm. Nous avons ensuite vérifié que ces paramètres sont conservés d'un intervalle angulaire à l'autre. Ceci constituait notre définition expérimentale d'un état résonant.

Modéliser un état résonant par une distribution symétrique est une approximation. Près d'un seuil d'émission de particules, la pénétrabilité, qui dépend du moment angulaire de l'état, et les interférences avec les états du continuum, qui dépendent des couplages vers ces états, ont pour effet de déformer la distribution [Lan58]. La résolution expérimentale ne permet pas d'observer cet effet pour des états dont la largeur est bien inférieure à l'énergie de la résonance. C'est le cas du premier état excité du ${}^6\text{He}$ à 1.8 MeV, large de 113 keV. Pour le ${}^7\text{He}$, l'état fondamental est proche du seuil de séparation ${}^6\text{He}+n$ et il est nécessaire de prendre en compte cette déformation. Nous avons reproduit l'effet principal par une dépendance au premier ordre : $\Gamma_R = \Gamma_R[1 + K(E - E_R)]$ appliquée seulement si $E > E_R$. K est un facteur ajusté sur les données à 2.5, constant quel que soit l'intervalle en angle de diffusion. Les spectres en énergie d'excitation reconstruits dans un intervalle angulaire

7. Élargissement statistique des distributions angulaire et en énergie des particules dû à leurs interactions dans la cible. L'effet est d'autant plus important que les cibles sont épaisses.

spécifique sont donnés en figure 6 pour les ${}^6\text{He}$ et ${}^7\text{He}$. L'analyse des fonds physiques et l'ajustement des résonances a permis d'identifier les états indiqués sur les figures.

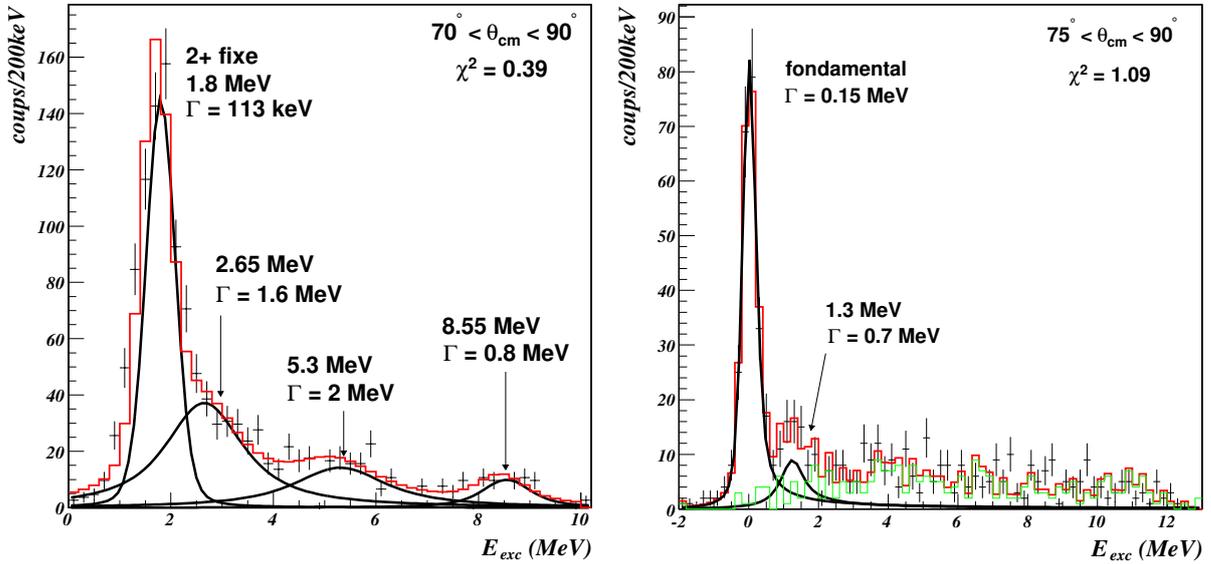


FIGURE 6 – (Gauche) Analyse du spectre en énergie d'excitation du ${}^6\text{He}$ obtenu après soustraction du fond physique dans l'intervalle $[70^\circ, 90^\circ]_{cm}$. (Droite) L'analyse du spectre en énergie d'excitation du ${}^7\text{He}$ dans l'intervalle $[75^\circ, 90^\circ]_{cm}$ montre qu'il est nécessaire de prendre en compte un état supplémentaire. Le fond physique simulé est en vert, la contribution de chaque résonance est en noir et le spectre total simulé est en rouge.

3.2 Structure du ${}^6\text{He}$

La figure 7 établit le bilan de nos mesures pour le ${}^6\text{He}$ en les comparant aux mesures des expériences précédentes et aux prédictions théoriques les plus récentes. Les données de notre expérience indiquent au minimum deux résonances au-delà du premier état excité, dont une inférieure à 4 MeV. La résonance à 8.55 MeV visible en figure 6 n'est nécessaire pour reproduire le spectre en énergie d'excitation que dans la gamme angulaire $[70^\circ, 90^\circ]_{cm}$. Elle reste donc une indication mais nous ne pouvons pas affirmer son existence. Les calculs du *Continuum Shell Model* [Vol05] ne prédisent pas de résonance entre 2 et 4 MeV, en contradiction avec nos données. Les prédictions des autres deux modèles sont compatibles, et chacun tient compte des effets de couplage au continuum. T. Myo, K. Kato et K. Ikeda [Myo07] ont utilisé la *Complex Scaling Method* pour décrire les résonances à plusieurs corps du ${}^6\text{He}$ et prédisent trois résonances au-delà du premier état excité : 3.5 MeV, 4 MeV et 4.9 MeV, de largeurs respectives 3.9 MeV, 6 MeV et 8.8 MeV. G. Hagen, N. Hjorth-Jensen et J. Vaagen [Hag05] utilisent une interaction plus élaborée à trois corps et prédisent également trois résonances : 2.9 MeV, 3.4 MeV et 5.3 MeV, de largeurs respectives 4.2 MeV, 5.8 MeV et 7.8 MeV.

Dans ces modèles, les largeurs prédites dépendent fortement des positions des états résonants. Les incertitudes que nous avons déterminées, dues à la procédure d'ajustement,

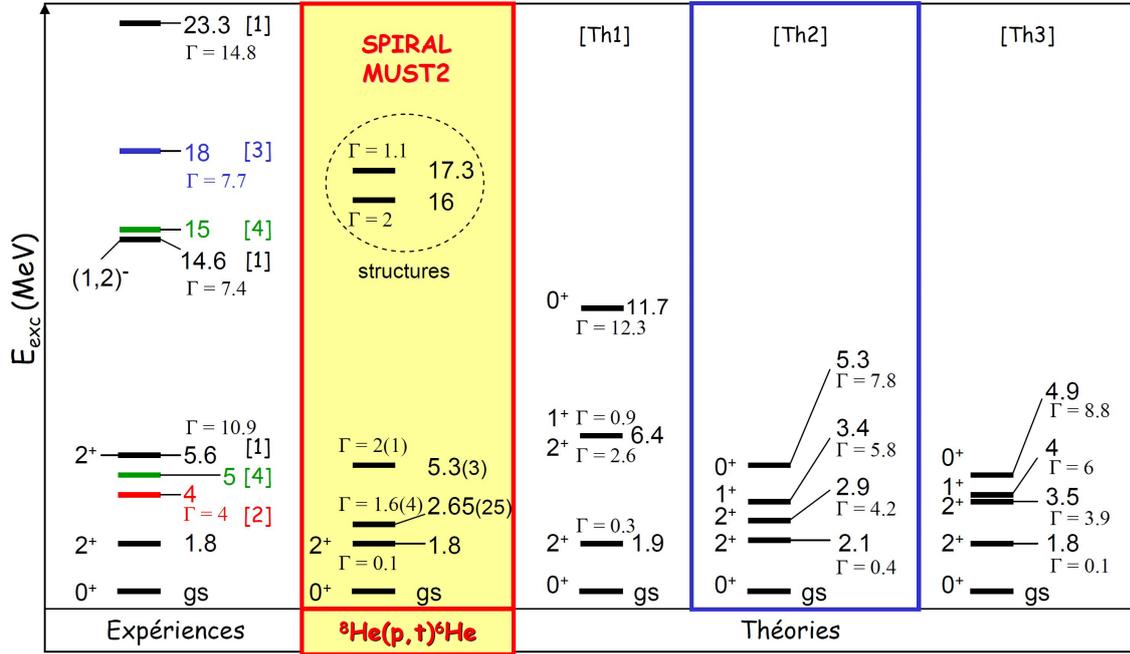


FIGURE 7 – Synthèse des résultats expérimentaux et théoriques de la spectroscopie du ${}^6\text{He}$. Références associées aux expériences : (1) [Jan96], (2) [Nak00], (3) [Nak02], (4) [Aki03]. Références associées aux théories : (Th1) [Vol05], (Th2) [Hag05], (Th3) [Myo07]. Les approches incorporant le traitement réaliste du continuum sont en accord avec nos données, en particulier celle de (Th2) [Hag05].

sont suffisantes pour changer d'un ordre de grandeur ces largeurs. Nous avons donc fixé les positions des états prédits, et laissé libres les largeurs lors de l'ajustement. On observe alors que les états prédits par T. Myo, K. Kato et K. Ikeda [Myo07] ne peuvent pas reproduire les données de notre expérience de manière satisfaisante. L'ajustement tend à faire disparaître l'état à 4.9 MeV, et l'absence d'état autour de 3 MeV ne rend pas compte de la statistique entre 2 et 3 MeV. En revanche, les états prédits par G. Hagen, N. Hjorth-Jensen et J. Vaagen [Hag05] permettent de reproduire nos données remarquablement bien. Cela semble indiquer qu'une théorie qui incorpore à la fois le traitement réaliste du continuum et des interactions nucléaires élaborées représente une bonne approche de la spectroscopie des noyaux exotiques légers. Seule une étude systématique des prédictions de telles théories, comparées à celles de théories ne traitant pas ces effets, sera concluante.

3.3 Structure du ${}^7\text{He}$

Les états que nous avons observés dans le ${}^7\text{He}$ sont résumés à la figure 8 et comparés aux théories les plus récentes d'alors, prédisant un état $1/2^-$ entre le fondamental $3/2^-$ et l'état $5/2^-$ vers 3 MeV. Nos données sont compatibles avec les prédictions de T. Myo, K. Kato et K. Ikeda [Myo07] et de G. Hagen, N. Hjorth-Jensen et J. Vaagen [Hag05]. La comparaison avec les prédictions de S. Pieper *et al.* [Pie01] montre que l'effet principal des couplages au continuum est d'abaisser l'état $1/2^-$ vers 1 MeV en énergie d'excitation. L'état vu à 3.3 MeV est compatible avec la double résonance prédite par les modèles entre 2.5 et 3.8 MeV.

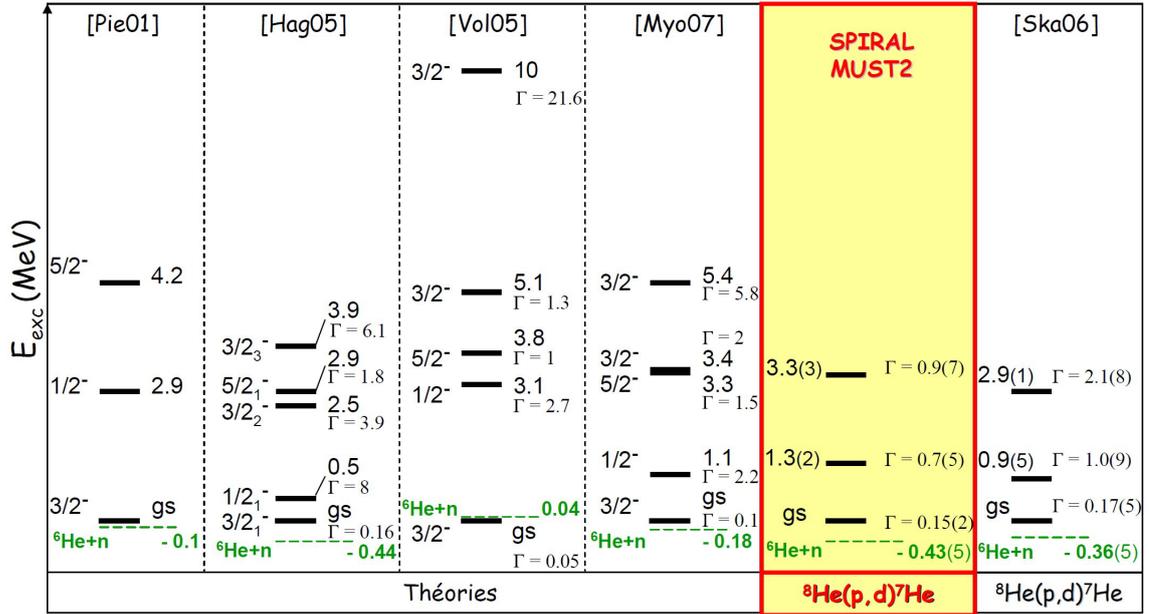


FIGURE 8 – Synthèse théorique de la spectroscopie du ${}^7\text{He}$, comparée à nos mesures et à celles de [Ska06]. La première théorie [Pie01] ne traite pas les effets du continuum, alors que les trois suivantes les traitent. L'effet principal est d'abaisser l'état $1/2^-$ vers 1 MeV. Les états de [Ska06] ont été déterminés avec l'hypothèse de résonances symétriques, les nôtres avec l'hypothèse de résonances déformées.

3.4 Sections efficaces

L'analyse des distributions angulaires des sections efficaces fournit des informations de structure concernant les noyaux étudiés. Dans le cas des noyaux stables, la voie élastique est prépondérante par rapport aux autres voies de réactions. Pour les noyaux exotiques riches en neutrons, faiblement liés, la probabilité de transférer un ou plusieurs neutrons est plus grande. L'analyse complète et cohérente des distributions angulaires des sections efficaces par N. Keeley *et al.* [Kee07], obtenues lors d'une expérience précédente du laboratoire, a montré que des calculs en voies de réactions couplées sont nécessaires pour reproduire les données. La comparaison entre les sections efficaces calculées et mesurées permet de déterminer les facteurs spectroscopiques, qui reflètent l'intensité des couplages entre les voies de réactions et renseignent sur la structure des noyaux. L'analyse en DWBA⁸ de données partielles pour la réaction ${}^8\text{He}(p,t){}^6\text{He}$ à 61 MeV par nucléon a conduit A. Korshennikov *et al.* à la conclusion que le ${}^8\text{He}$ possède une structure de cœur α et quatre neutrons dans la couche $p_{3/2}$ [Kor03]. Les facteurs spectroscopiques déterminés lors de l'analyse menée par N. Keeley *et al.* [Kee07] renseignent sur la structure du ${}^8\text{He}$ par rapport aux ${}^7\text{He}$, ${}^6\text{He}(0^+)$ et ${}^6\text{He}(2^+)$. Ils ont conduit à une description complète et cohérente du ${}^8\text{He}$, différente de celle proposée auparavant par [Kor03] : un mélange entre les configurations $(p_{3/2})^4$ et $(p_{3/2})^2(p_{1/2})^2$, indiquant la contribution non négligeable d'une sous-structure ${}^6\text{He}$.

Grâce à la couverture angulaire exceptionnelle de notre dispositif expérimental, nous avons pu reconstruire les sections efficaces des réactions étudiées sur une large gamme en

8. Distorted Wave Born Approximation.

angle cm. Dans le cas de la réaction de transfert ${}^8\text{He}(p,t){}^6\text{He}$, les sections efficaces issues de nos données sont en bon accord avec des calculs en voies de réactions couplées [Mou12a], comme l'illustre la figure 9. Pour l'état fondamental et le premier état excité du ${}^6\text{He}$, la forme des distributions angulaires est cohérente à la fois avec les données issues d'une expérience précédente du laboratoire et avec les spins et parités connus de ces états, 0^+ et 2^+ respectivement. Pour les deux résonances à 2.65 MeV et 5.3 MeV que nous avons mis en évidence, la forme des distributions angulaires est cohérente avec des états 2^+ et 1^- , respectivement.

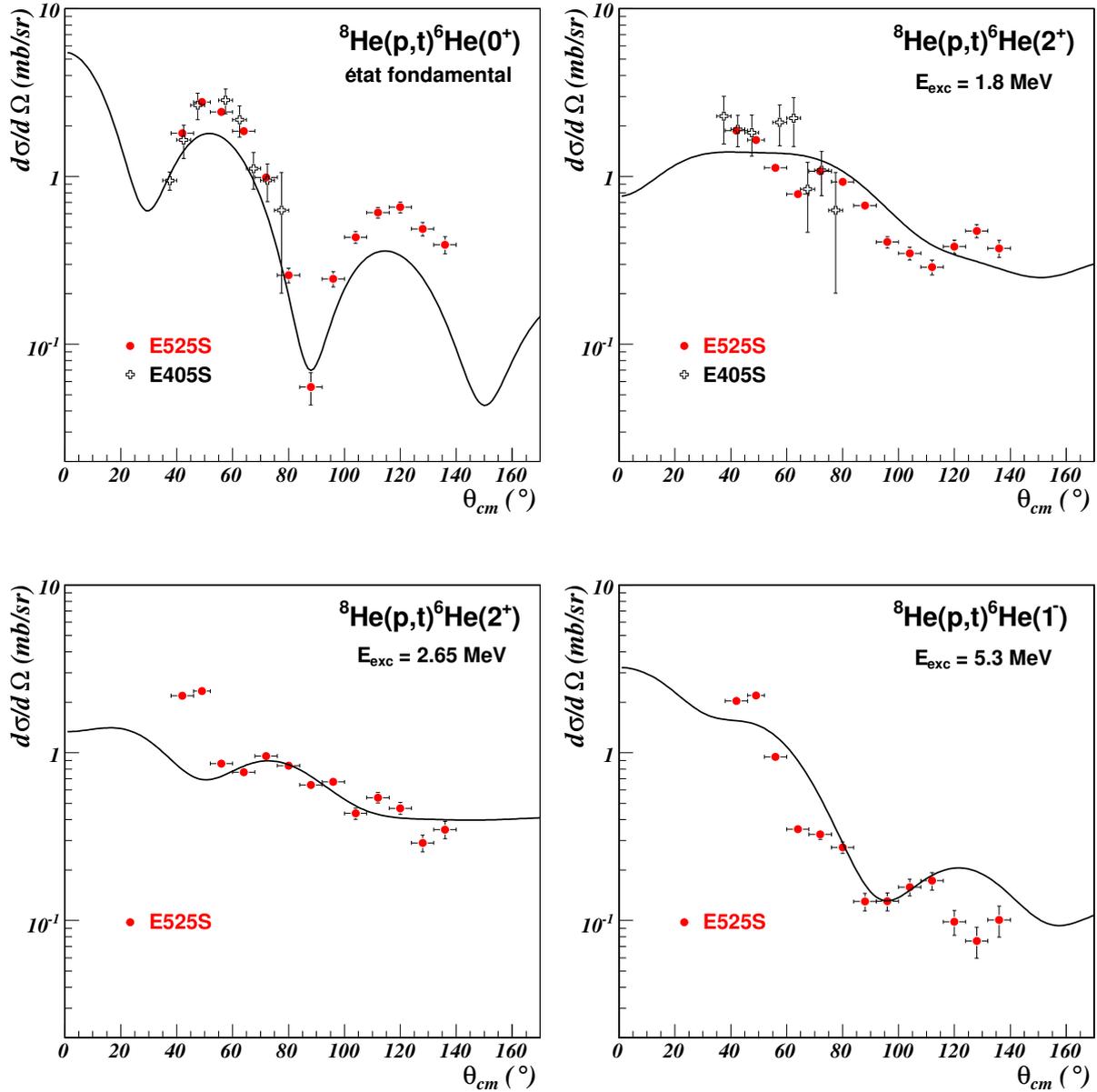


FIGURE 9 – Sections efficaces pour les quatre premiers états du ${}^6\text{He}$ peuplés par la réaction ${}^8\text{He}(p,t){}^6\text{He}$ à 15.4 MeV par nucléon. Les données de notre expérience (E525S, points rouges) sont compatibles avec les données d'une précédente expérience (E405S [Ska04], croix blanches). La comparaison à des calculs en voies de réactions couplées permet d'assigner les spins et parités des états.

Conclusion

La structure des noyaux exotiques ${}^6\text{He}$ et ${}^7\text{He}$ est difficile à modéliser et les prédictions des modèles divergent. Malgré une recherche intense depuis le milieu des années 1990 et l'emploi de différentes sondes expérimentales, peu de données existaient avant notre expérience sur la spectroscopie de ces noyaux à basse énergie d'excitation. Pour contraindre les modèles de structure nucléaire, nous avons envoyé un faisceau d'ions ${}^8\text{He}$ produit par le dispositif SPIRAL à 15.4 MeV par nucléon sur une cible mince de protons et mesuré les réactions de transfert ${}^8\text{He}(p,d){}^7\text{He}$ et ${}^8\text{He}(p,t){}^6\text{He}$. La détection en coïncidence des trajectoires incidentes des ions sur la cible et des particules chargées émises était assurée par un ensemble de deux détecteurs de faisceau CATS et de cinq télescopes MUST2. Ce dispositif expérimental nous a permis de reconstruire, par la méthode de la masse manquante, les spectres en énergie d'excitation des éjectiles lourds et les distributions angulaires des sections efficaces associées.

En dessous d'une énergie d'excitation de 6 MeV, nos données indiquent sans ambiguïté l'existence d'au moins deux états excités supplémentaires dans le ${}^6\text{He}$ au-delà du premier état excité, à $E^* = 2.65(25)$ MeV de largeur $\Gamma = 1.6(4)$ MeV, et à $E^* = 5.3(3)$ MeV de largeur $\Gamma = 2(1)$ MeV. Les distributions angulaires des sections efficaces indiquent les spins et parités de ces états : $J^\pi = 2^+$ pour l'état à 2.65 MeV, et $J^\pi = 1^-$ pour l'état à 5.3 MeV. Nous observons également deux structures entre 15 et 18 MeV, à la limite de l'acceptance du dispositif expérimental mais compatibles avec les observations de précédentes expériences.

La résolution expérimental de notre dispositif nous a permis d'être sensibles à la déformation de l'état fondamental résonant du ${}^7\text{He}$. En incluant l'effet de cette déformation dans notre analyse, nous avons pu mettre en évidence trois états résonants : l'état fondamental à $E^* = 0.01(5)$ MeV de largeur $\Gamma = 0.15(2)$ MeV, un premier état excité $E^* = 1.3(2)$ MeV de largeur $\Gamma = 0.7(5)$ MeV, et un deuxième état excité $E^* = 3.3(3)$ MeV de largeur $\Gamma = 0.3(7)$ MeV.

Ces résultats ont démontré que la réaction de transfert ${}^8\text{He}(p,t)$ à basse énergie est une bonne sonde expérimentale pour explorer la spectroscopie du ${}^6\text{He}$. Ils confirment l'importance d'une prise en compte des couplages au continuum pour des prédictions théoriques réalistes de la structure des noyaux exotiques. À ma connaissance, il restent encore actuellement les plus complets et les plus précis malgré quelques expériences utilisant des sondes expérimentales différentes [Cao12, Gur15, Ren16]. Citons enfin la revue très complète des mesures et des modèles théoriques microscopiques disponibles concernant les ${}^6\text{He}$ et ${}^8\text{He}$ [Lap15], réalisée dans le but de dégager une compréhension cohérente de ces noyaux exotiques.

Bibliographie

- [Aki03] H. Akimune *et al.*, *Di-triton molecular structure in ${}^6\text{He}$* , Phys. Rev. C **67** (2003) 051302.
- [Blu99] Y. Blumenfeld *et al.*, *MUST : A silicon strip detector array for radioactive beam experiments*, Nucl. Instr. and Meth. A **421** (1999) 471.
- [Bru96] R. Brun, F. Rademakers, *ROOT - An Object Oriented Data Analysis Framework*, Proceedings AIHENP'96 Workshop, Lausanne, Sep. 1996, Nucl. Inst. and Meth. A **389** (1997) 81. Voir aussi <http://root.cern.ch>.
- [Cao12] Z.X. Cao *et al.*, *Recoil proton tagged knockout reaction for ${}^8\text{He}$* , Phys. Lett. B **707** (2012) 46.
- [Fil95] E. De Filippo, *Reference for the INDRA CHIO-Si identification and the Energy Loss routines*, DAPNIA-SPhN-95-60, Décembre 1995.
- [Gur15] Yu.B. Gurov *et al.*, *Search for light neutron-rich isotopes in stopped pion absorption*, Phys. Atomic Nuclei **79** (2016) 525; Yad. Fiz. **79** (2016) 338.
- [Hag05] G. Hagen, N. Hjorth-Jensen, J.S. Vaagen, *Effective interaction techniques for the Gamow shell model*, Phys. Rev. C **71** (2005) 044314.
- [Hag09] G. Hagen *et al.*, *Ab initio computation of neutron-rich oxygen isotopes*, Phys. Rev. C **80** (2009) 021306(R).
- [Jan96] J. Jänecke *et al.*, *Structure of the neutron-halo nucleus ${}^6\text{He}$* , Phys. Rev. C **54** (1996) 1070.
- [Jon04] B. Jonson, *Light dripline nuclei*, Phys. Rep. **389** (2004) 1.
- [Jou01] C. Jouanne, *Étude de la structure des isotopes de carbone déficients en neutrons : ${}^{10}\text{C}$ et ${}^{11}\text{C}$. Diffusions élastiques et inélastiques sur cible de protons*, Thèse de doctorat 2001, Université Paris VI, DAPNIA/SPhN-01-01T.
- [Kee07] N. Keeley *et al.*, *Probing the ${}^8\text{He}$ ground state via the ${}^8\text{He}(p,t){}^6\text{He}$ reaction*, Phys. Lett. B **646** (2007) 222.
- [Kor03] A.A. Korshennikov *et al.*, *Experimental evidence for the existence of ${}^7\text{H}$ and for a specific structure of ${}^8\text{He}$* , Phys. Rev. Lett. **90** (2003) 082501.
- [Lag01] A. Lagoyannis *et al.*, *Probing the ${}^6\text{He}$ halo structure with elastic and inelastic proton scattering*, Phys. Lett. B **518** (2001) 27.
- [Lan58] A.M. Lane, R.G. Thomas, *R-matrix theory of nuclear reactions*, Rev. Mod. Phys. **30** (1958) 257.
- [Lap15] V. Lapoux, N. Alamanos, *Weakly bound Borromean structures of the exotic ${}^6,8\text{He}$ nuclei through direct reactions on proton*, Eur. Phys. J. A **51** (2015) 91.
- [Mic02] N. Michel *et al.*, *Gamow shell model description of neutron-rich nuclei*, Phys. Rev. Lett. **89** (2002) 042502.
- [Mic03] N. Michel *et al.*, *Gamow shell model description of weakly bound nuclei and unbound nuclear states*, Phys. Rev. C **67** (2003) 054311.
- [Mic10a] N. Michel, W. Nazarewicz, M. Płoszajczak, *Isospin mixing and the continuum coupling in weakly bound nuclei*, Phys. Rev. C **82** (2010) 044315.

- [Mou12a] X. Mougeot *et al.*, *New excited states in the halo nucleus ${}^6\text{He}$* , Phys. Lett. B **718** (2012) 441.
- [Myo07] T. Myo, K. Kato, K. Ikeda, *Resonances of ${}^7\text{He}$ in the complex scaling method*, Phys. Rev. C **76** (2007) 054309.
- [Nak00] S. Nakayama *et al.*, *Soft dipole resonance in the neutron-skin nucleus ${}^6\text{He}$* , Phys. Rev. Lett. **85** (2000) 262.
- [Nak02] T. Nakamura, *Low-lying states of ${}^6\text{He}$ studied via the ${}^6\text{Li}(t, {}^3\text{He}){}^6\text{He}$ reaction*, Eur. Phys. J. A **13** (2002) 33.
- [Ots01] T. Otsuka *et al.*, *Magic Numbers in Exotic Nuclei and Spin-Isospin Properties of the NN Interaction*, Phys. Rev. Lett. **87** (2001) 082502.
- [Ots05] T. Otsuka *et al.*, *Evolution of Nuclear Shells due to the Tensor Force*, Phys. Rev. Lett. **95** (2005) 232502.
- [Ots10] T. Otsuka *et al.*, *Three-Body Forces and the Limit of Oxygen Isotopes*, Phys. Rev. Lett. **105** (2010) 032501.
- [Ott99] S. Ottini-Hustache *et al.*, *CATS a low pressure multiwire proportional chamber for secondary beam tracking at GANIL*, Nucl. Instr. and Meth. A **431** (1999) 476.
- [Pie01] S.C. Pieper *et al.*, *Realistic models of pion-exchange three-nucleon interactions*, Phys. Rev. C **64** (2001) 014001.
- [Pie04] S.C. Pieper, R.B. Wiringa, J. Carlson, *Quantum Monte-Carlo calculations of excited states in $A = 6 - 8$ nuclei*, Phys. Rev. C **70** (2004) 054325.
- [Pol05] E. Pollacco *et al.*, *MUST2 : A new generation array for direct reaction studies*, Eur. Phys. J. A **25** (2005) 287.
- [Ren16] F. Renzi *et al.*, *Spectroscopy of ${}^7\text{He}$ using the ${}^9\text{Be}({}^6\text{He}, {}^8\text{Be})$ transfer reaction*, Phys. Rev. C **94** (2016) 024619.
- [Ska04] F. Skaza, *Structure du noyau exotique ${}^8\text{He}$ par les réactions directes ${}^8\text{He}(p, p'){}^8\text{He}$, ${}^8\text{He}(p, d){}^7\text{He}$ et ${}^8\text{He}(p, t){}^6\text{He}$* , Thèse de doctorat 2004, Université Paris XI, DAPNIA-04-13-T.
- [Ska05] F. Skaza *et al.*, *Important pickup coupling effect on ${}^8\text{He}(p, p)$ elastic scattering*, Phys. Lett. B **619** (2005) 82.
- [Ska06] F. Skaza *et al.*, *Experimental evidence for subshell closure in ${}^8\text{He}$ and indication of a resonant state in ${}^7\text{He}$ below 1 MeV*, Phys. Rev. C **73** (2006) 044301.
- [Ska07] F. Skaza *et al.*, *Low-lying states and structure of the exotic ${}^8\text{He}$ via direct reactions on the proton*, Nucl. Phys. A **788** (2007) 260c.
- [Tan95] I. Tanihata, H. Savajols, R. Kanungo, *Recent experimental progress in nuclear halo structure studies*, Prog. Part. Nucl. Phys. **35** (1995) 505.
- [Vil01] A.C.C. Villari, *The accelerated ISOL technique and the SPIRAL project*, Nucl. Phys. A **s693** (2001) 465.
- [Vol05] A. Volya, V. Zelevinsky, *Discrete and continuum spectra in the unified shell model approach*, Phys. Rev. Lett. **94** (2005) 052501.

II

Transitions par interaction faible en métrologie des rayonnements ionisants

Introduction

Le Laboratoire National Henri Becquerel (LNHB) est en charge de la métrologie des rayonnements ionisants en France. En métrologie de l'activité, l'unité associée est le becquerel (Bq), et est définie par des étalons de référence pour chaque radionucléide. La diversité des processus de désintégration nucléaire et des états physiques des éléments rend indispensable l'emploi de différentes techniques de mesures adaptées à chaque situation. Les techniques primaires ne doivent pas dépendre d'un étalon de référence de la même grandeur physique, c'est-à-dire que l'instrumentation ne peut pas être étalonnée à partir d'une source radioactive, même d'un autre radionucléide. Cependant, une certaine connaissance préalable est nécessaire, tant pour sélectionner la technique la mieux adaptée que pour analyser les mesures. C'est la raison pour laquelle le LNHB est impliqué dans les évaluations de données atomiques et nucléaires.

Lors d'une désintégration bêta, l'énergie disponible se répartit entre la particule β , le neutrino ν et le noyau fils. Ce processus à trois corps génère un spectre en énergie continu pour chacun des produits. La forme de ce spectre est influencée par certains effets atomiques et par la nature de la transition, qui peut être « permise » ou « interdite » selon la structure des noyaux initiaux et finaux. Les particules β , les plus faciles à mesurer dans cette désintégration, présentent donc des spectres en énergie continus de formes variées. Le processus de capture électronique est très proche de la désintégration bêta du point de vue de l'interaction faible, mais c'est un processus à deux corps et les différents produits ont des spectres en énergie discrets.

Il y a une quinzaine d'années, les utilisateurs des données évaluées par le LNHB, au premier rang desquels les laboratoires de métrologie de l'activité à travers le monde, ont insisté pour avoir accès aux spectres en énergie des particules β associés à chaque radionucléide. Jusqu'alors, seules les énergies moyennes de ces spectres et les valeurs de $\log ft$ des transitions étaient fournies. De même, seules les probabilités de capture électronique associées aux couches atomiques principales étaient fournies, et les utilisateurs souhaitaient avoir le détail de chaque sous-couche atomique. Ces demandes sont à l'origine des recherches que j'ai menées ces dix dernières années.

L'implication importante du LNHB dans les évaluations de données atomiques et nucléaires le place dans une position centrale, à mi-chemin entre différentes communautés de physique fondamentale et des applications. Les spectres bêta sont indispensables en métrologie des rayonnements ionisants, en médecine nucléaire pour la radiothérapie interne vectorisée et la micro-dosimétrie, et dans le domaine de l'énergie nucléaire pour les calculs de puissance résiduelle ou la gestion du combustible après irradiation. La mesure des spectres antineutrino issus des réacteurs, directement corrélés aux spectres bêta, permettrait à terme une surveillance en temps réel des installations nucléaires, et pourrait mettre en évidence une éventuelle nouvelle physique au-delà du Modèle Standard en recherche

fondamentale. La question de la qualité, de la précision et des incertitudes associées à ces données est devenue un enjeu important dans ces différents domaines.

À l'exception de quelques cas particuliers, les transitions bêta ont été peu étudiées depuis la fin des années 1970. L'apparition de nouvelles techniques de mesure et l'amélioration des simulations Monte Carlo ont apporté de nouvelles contraintes expérimentales permettant de tester les modèles théoriques avec une précision inégalée. La faiblesse de ces modèles est alors devenue évidente, relançant les études théoriques. Le LNHB a joué un rôle important ces dix dernières années, tant sur le plan expérimental que sur le plan théorique. Les efforts constants qui ont été entrepris ont suscité l'intérêt de plusieurs laboratoires, en France et à l'étranger, aboutissant notamment au financement spécifique de deux projets européens de métrologie dédiés à l'étude expérimentale et théorique des transitions bêta (MetroBeta, 2016–2019) et par capture électronique (MetroMMC, 2018–2021).

Le premier chapitre introduit le contexte et les motivations de cette recherche. L'état de l'art effectué en début d'étude est résumé et démontre la nécessité d'améliorer la cohérence et la précision des mesures, mais aussi les prédictions théoriques. Quelques applications majeures nécessitant une meilleure connaissance des spectres bêta sont évoquées.

Le deuxième chapitre est dédié à l'approche expérimentale conduite au cours de cette étude. Une nouvelle technique expérimentale, la calorimétrie métallique magnétique, a été appliquée avec succès à la spectrométrie bêta par deux de mes collègues du LNHB. Les résultats obtenus sont d'une précision inégalée, et ont été importants dans l'orientation des recherches théoriques menées. J'ai été en charge de la mise en place d'une technique complémentaire, la spectrométrie bêta par détecteurs silicium. Ces développements ont été réalisés en collaboration avec les étudiants que j'ai encadrés, en stage de Master ou en thèse de doctorat.

Le troisième chapitre est consacré aux études théoriques que j'ai menées. Le programme BetaShape en est un résultat majeur et est présenté en détail. Je présente également l'étude très fine des effets atomiques qui m'a permis de réaliser des prédictions théoriques en excellent accord avec les spectres mesurés par calorimétrie métallique magnétique. Les récents travaux effectués pour introduire la composante de structure nucléaire dans les calculs sont ensuite évoqués. La modélisation des captures électroniques, que j'ai développée et comparée à des mesures précises, est également présentée. Enfin, quelques exemples de l'impact de ces prédictions améliorées sur les données nucléaires et la métrologie de la radioactivité sont donnés.

Le dernier chapitre est consacré aux perspectives de cette recherche. La présentation est nécessairement sélective, tant les voies possibles sont nombreuses. Les travaux en cours, dont les résultats sont attendus dans les deux ans qui viennent, sont d'abord évoqués. Enfin, les sujets qui me semblent les plus structurants et les plus prometteurs pour les dix prochaines années clôturent ce mémoire.

Chapitre 1

Motivations

“Il n’est point de vent favorable pour qui ne sait en quel port se rendre.”
— Sénèque

Le présent chapitre introduit le contexte de cette étude des transitions par interaction faible. Un bref rappel historique replace l’importance des désintégrations bêta dans le développement de la physique moderne, tant théorique qu’expérimentale. Nous aborderons ensuite la métrologie des rayonnements ionisants et les données nucléaires. Puis, nous verrons un état de l’art effectué au début de cette étude focalisé plus spécifiquement sur nos sujets d’intérêt, la thématique pouvant être très vaste. Enfin, nous évoquerons quelques applications majeures.

1.1 Une enquête à rebondissements

La désintégration bêta a été au cœur des avancées majeures de la physique subatomique pendant les trois-quarts du XX^{ème} siècle. Nombreux sont les scientifiques de renom, prix Nobel ou non, à s’y être intéressés. En 1896, H. Becquerel découvre la radioactivité en observant les traces laissées sur une plaque photographique par du minerai d’uranium [Bec96a, Bec96b, Bec96c, Bec96d, Bec96e]. En 1898, E. Rutherford distingue les rayonnements alpha et bêta selon leur pouvoir de pénétration dans la matière [Rut08]. Après que P. et M. Curie eurent démontré que les rayons β étaient de charge négative [Reg08a, Reg08b], W. Kaufmann mesura en 1902 leur rapport masse sur charge et les identifia à des électrons de grande vitesse [Nee38].

En 1910, O. Hahn et L. Meitner¹ construisirent le premier spectromètre bêta et observèrent des raies en énergie [Bae10, Bae11]. Ils en déduisirent alors que l’émission bêta était un processus à deux corps et que l’énergie de l’électron était propre à l’émetteur, identifiant des substances inconnues. Cette conclusion est remise en cause dès 1914 par J. Chadwick qui remplaça les plaques photographiques servant à la détection par un compteur à gaz de H. Geiger [Cha14]. Il observa alors des spectres continus, début d’une controverse sur deux décennies aux répercussions fondamentales. En effet, si la désintégration est à deux corps et le spectre en énergie continu, l’énergie ne peut pas être conservée!

1. Lise Meitner est l’un des cas les plus flagrants de scientifiques injustement ignorés par le comité Nobel.

En 1923, A. Compton découvrit le phénomène de diffusion inélastique des photons sur les électrons liés [Com23], qu'il interpréta dans le cadre de la théorie quantique de la lumière avec des prédictions en très bon accord avec ses observations. Pour L. Meitner, c'est entendu : la continuité des spectres bêta est due à un phénomène secondaire [Mei23]. Les électrons sont initialement émis à la même énergie et ils sont ralentis en diffusant dans la matière, créant un spectre en énergie continu. En 1927, C. Ellis et W. Wooster réalisèrent une délicate expérience de calorimétrie avec le ^{210}Bi , alors nommé RaE [Ell27]. Si L. Meitner avait raison, l'énergie déposée par la source devait être l'énergie maximale du spectre continu, 1.1 MeV. Si le spectre était continu à l'origine, ce devait être l'énergie moyenne du rayonnement, 0.39 MeV. Ils observèrent que l'énergie déposée était de 0.34 MeV avec une incertitude de 10%, démontrant que les électrons étaient émis selon un spectre en énergie continu. Pas convaincue, L. Meitner reprit l'expérience avec un dispositif amélioré et une meilleure précision, et confirma pleinement ce résultat [Mei30].

Dès 1924, H. Kramers, J. Slater et N. Bohr proposèrent une solution théorique en formulant l'hypothèse que l'énergie ne serait conservée que statistiquement [Boh24]. En 1925, H. Geiger et W. Bothe reprirent l'expérience d'A. Compton et élaborèrent la première détection en coïncidence [Bot25a, Bot25b]. Grâce à cette nouvelle technique expérimentale, essentielle encore aujourd'hui, ils purent démontrer que l'énergie est bien conservée à chaque événement. Face à ces informations contradictoires, W. Pauli proposa en 1930 une désintégration bêta à trois corps, seule à même d'expliquer un spectre en énergie continu tout en sauvegardant le principe de conservation de l'énergie. En contrepartie, il fut obligé de supposer l'existence d'une particule fantomatique, neutre, de faible masse, n'interagissant que très peu avec la matière et emportant l'énergie manquante [Pau79] :

“Aujourd'hui j'ai fait ce qu'un théoricien ne devrait jamais faire de sa vie. J'ai en effet tenté d'expliquer quelque chose qu'on ne peut pas comprendre par quelque chose qu'on ne peut pas observer.”

En 1932, J. Chadwick découvrit une particule répondant à ces critères : le neutron [Cha32]. Elle était malheureusement trop lourde, et E. Fermi renomma cette hypothétique particule neutrino – petit neutron en italien.

Jusque là, il était admis que les électrons devaient exister dans le noyau, puisqu'ils en étaient expulsés au moment de la désintégration bêta. En 1930, J. Dorfman, V. Ambarzumjan et D. Ivanenko firent une proposition radicale en analogie avec l'effet photoélectrique : l'électron est créé au moment de l'émission bêta [Amb30, Dor30]. Cela sous-entend une transformation neutron \rightleftharpoons proton et le moment angulaire total ne peut pas être conservé si seul un électron est émis.

En 1933, E. Fermi reprit ces idées et les formalisa en jetant les bases modernes d'une théorie de la désintégration bêta, nécessairement relativiste [Fer34]. Pour l'anecdote, son article fut refusé par la revue Nature car il s'agissait de « spéculations trop éloignées de la réalité ». Cette théorie formelle décrit la désintégration bêta comme la transformation d'un neutron en un proton accompagnée par la création d'un électron et d'un neutrino. Comme pour l'émission de la lumière par un atome, ce processus dépend d'une nouvelle constante universelle qui gouverne l'émission simultanée des deux leptons. E. Fermi montra qu'en première approximation, certaines désintégrations sont impossibles, ce qui signifie qu'en pratique elles sont plusieurs ordres de grandeur moins probables. Il classa alors les transitions en deux groupes : les transitions permises et les transitions interdites. Il

établit une relation simple entre l'énergie maximale E_{\max} des électrons émis et la période radioactive $T_{1/2}$. Ses calculs quantitatifs permettaient de reproduire remarquablement bien les observations et la relation empirique de B. Sargent entre ces deux quantités [Sar32, Sar33]. Pour la première fois, cette nouvelle théorie permettait de calculer la forme des spectres bêta, c'est-à-dire la proportion relative d'électrons de telle ou telle énergie, de l'énergie nulle à l'énergie maximale.

La théorie de la désintégration bêta subit des évolutions importantes par la suite, mais le fondement est resté la théorie développée par E. Fermi, qui ne publia plus sur le sujet par la suite car il était trop occupé par l'étude des réactions nucléaires. Il fallut attendre 1956 avec l'expérience de C. Cowan et F. Reines pour que le neutrino soit enfin détecté [Cow56, Rei56]. La même année, T. Lee et C. Yang suggérèrent dans leurs travaux théoriques que la parité pourrait ne pas être conservée dans la désintégration bêta et proposèrent une expérience pour le montrer [Lee56]. Elle fut réalisée la même année par C.-S. Wu en mesurant les électrons β issus de la désintégration de noyaux de ^{60}Co polarisés, confirmant la violation de parité [Wu57]. G. Gamow et E. Teller complétèrent la théorie de Fermi en incluant des couplages vectoriel (V) et pseudo-vectoriel (ou vecteur-axial, A) des fermions [Gam36], ce qui permit de décrire par la suite la violation de parité et l'hélicité du neutrino. Plus tard, R. Feynman et M. Gell-Mann établirent la forme correcte de l'interaction, en $(V - A)$ [Fey58]. Sur cette base, S. Glashow [Gla61], A. Salam [Sal59] et S. Weinberg [Wei67] unifièrent les interactions faible et électromagnétique entre les particules élémentaires et établirent la théorie électrofaible moderne décrivant l'interaction faible vectorisée par des bosons de jauge massifs, pilier du Modèle Standard.

Avec la Seconde Guerre Mondiale et l'explosion des connaissances en physique nucléaire, les radionucléides artificiels étaient devenus accessibles. Les études se poursuivirent avec la construction de spectromètres bêta magnétiques et électrostatiques tout autour du monde [Sie55]. Une déviation persistait à basse énergie dans les spectres des transitions permises, et certaines transitions interdites défiaient les prédictions avec l'apparition d'effets dus à la structure nucléaire. Ainsi, le spectre du ^{210}Bi , dont le rôle historique est pourtant majeur, restait difficilement compréhensible.

1.2 Métrologie des rayonnements ionisants

1.2.1 Organisation de la métrologie

La métrologie est la science de la mesure et s'applique à tous les domaines où des mesures quantitatives sont effectuées. Le développement des économies nationales et des échanges régionaux et internationaux, tant de produits que de services, a rendu nécessaire d'améliorer et d'étendre la traçabilité et la crédibilité des résultats de mesure au niveau international. Avec la signature de la Convention du Mètre à Paris en 1875, la métrologie mondiale s'est structurée autour d'une collaboration, de bonne volonté, entre les différents états impliqués. Le Comité International des Poids et Mesures (CIPM) comprend 18 membres et est en charge de la bonne exécution des travaux métrologiques que les états souhaitent mener en commun. Il s'appuie pour cela sur le Bureau International des Poids et Mesures (BIPM), une organisation intergouvernementale créée par la Convention du Mètre. Centre de collaboration scientifique, son rôle est de coordonner le système mondial de mesure pour garantir que les mesures effectuées dans les laboratoires nationaux de

métrologie soient comparables, et reconnues au niveau international à travers le Système International d'unités (SI). Tous les quatre ans, la Conférence Générale des Poids et Mesures (CGPM) rassemble des délégués des États Membres et des États Associés. Elle valide notamment les orientations du CIPM, et prend des résolutions scientifiques de portée internationale en métrologie et concernant le SI. En 1999, le CIPM a rédigé « l'Arrangement de reconnaissance mutuelle des étalons nationaux de mesure et des certificats d'étalonnage émis par les laboratoires nationaux de métrologie » (MRA). Le MRA représente l'étape la plus importante pour la coordination métrologique internationale depuis la signature de la Convention du Mètre. Ce texte a été signé par les représentants de 106 laboratoires : 61 États Membres, 41 États Associés à la CGPM et 4 organisations internationales. Il en résulte des exigences accrues pour les laboratoires :

- communiquer et faire reconnaître par leurs homologues l'ensemble de leurs possibilités de mesures et d'étalonnages (Calibration and Measurement Capabilities – CMC),
- participer régulièrement aux comparaisons clés internationales, dont les résultats sont collectés au sein d'une base de données (Key Comparison Database – KCDB),
- mettre en œuvre un système qualité conforme à la norme ISO/CEI 17025, qui concerne les exigences générales sur la compétence des laboratoires d'étalonnage et d'essais.

Des Comités Consultatifs regroupant différents experts du domaine conseillent scientifiquement et techniquement le CIPM. Les Organisations Régionales de Métrologie (RMO) sont des associations régionales de différents Instituts Nationaux de Métrologie (NMI) et Instituts Désignés (DI). Par exemple, l'association des laboratoires européens de métrologie EURAMET a été fondée en 1987. Les RMO proposent aux Comités Consultatifs les comparaisons clés à effectuer et les mènent à l'échelle régionale. Ils valident les CMC avant publication dans la KCDB, ont un rôle majeur dans le maintien des systèmes qualité en place, et formulent des propositions concernant la mise en œuvre du MRA. Les informations relatives aux signataires du MRA, aux CMC des différents NMI et DI, et aux comparaisons clés sont publiques et accessibles sur internet ². Le fait marquant le plus récent est scientifique et concerne la révision du SI en 2018, où le kilogramme, le kelvin, la mole et l'ampère ont été redéfinis à partir des constantes, aux valeurs numériques fixées, de Planck (h), de Boltzmann (k), d'Avogadro (N_A) et de la charge élémentaire (e).

Afin de soutenir et de renforcer la métrologie en Europe, la Commission Européenne a mis en place avec le soutien d'EURAMET un programme européen de recherche en métrologie (European Metrology Research Programme – EMRP). Ce programme bénéficie d'un financement pour moitié de la Commission Européenne et s'inscrit dans les Initiatives de l'article 185 du Traité sur le Fonctionnement de l'Union Européenne (TFUE). Celui-ci permet à la Commission Européenne de soutenir des programmes de R&D (Recherche et Développement) nationaux entrepris en commun par plusieurs États membres. Ce programme a été actif de 2009 à 2017, finançant des projets de trois ans pour l'industrie, l'énergie, l'environnement, la santé, les nouvelles technologies et les unités SI, avec un budget total de 400 millions d'euros sur l'ensemble de la durée. Il a été prolongé de 2014 à 2020 par le programme européen de métrologie pour l'innovation et la recherche (European Metrology Programme for Innovation and Research – EMPIR) avec un renforcement des thématiques fondamentales et normatives, mais également de son budget, celui-ci passant

2. <http://kcdb.bipm.org/>

à 600 millions d’euros. Cette évolution conduit à mettre de plus en plus en commun les moyens humains et matériels des instituts nationaux de métrologie sur des projets définis. À long terme, elle pourrait conduire à des restructurations profondes de la métrologie européenne, certains pays pouvant choisir de se recentrer sur leurs domaines d’excellence et de confier les autres aux laboratoires plus performants d’autres pays. Un positionnement fort des laboratoires de métrologie français en Europe est donc nécessaire.

En France, la métrologie s’est structurée à partir de 1969, près d’un siècle après la Convention du Mètre, avec la création du Bureau National de Métrologie. En 2005, l’État a confié au Laboratoire National de métrologie et d’Essais (LNE) le pilotage de l’ensemble de la métrologie française. Cette nouvelle organisation place le LNE au même niveau que les autres grands instituts nationaux de métrologie tels que le NIST (National Institute of Standards and Technology) aux États-Unis, le NPL (National Physical Laboratory) au Royaume-Uni ou le PTB (Physikalisch-Technische Bundesanstalt) en Allemagne. Cependant, la métrologie française reste profondément structurée par son histoire et les études sont réalisées dans des laboratoires de différents organismes publics ou privés. Son pilotage s’organise au sein du Réseau National de la Métrologie Française (RNMF) et regroupe quatre Laboratoires Nationaux de Métrologie (LNM) et six Laboratoires Associés (LA), pour un total d’environ 220 chercheurs. Les missions et responsabilités du LNE sont celles du BIPM retranscrites au niveau national. Il représente la France dans les diverses organisations et commissions internationales liées à la métrologie.

1.2.2 Le Laboratoire National Henri Becquerel

Le Laboratoire National Henri Becquerel (LNHB) est un service du Commissariat à l’Énergie Atomique et aux Énergies Alternatives (CEA) situé sur le plateau de Saclay, et évolue au sein de la Direction de la Recherche Technologique (DRT), de l’institut Laboratoire d’Intégration des Systèmes et des Technologies (List) et du Département Métrologie Instrumentation et Information (DM2I). Il est l’un des laboratoires nationaux de métrologie fédérés par le LNE. À ce titre, le LNE a délégué au LNHB le rôle de laboratoire national de métrologie dans le domaine des rayonnements ionisants. Ce rôle consiste essentiellement à mettre en œuvre dans ce domaine les unités SI et à permettre l’accès des utilisateurs aux références métrologiques dont ils ont besoin, dans le cadre d’une traçabilité rigoureusement établie. Les activités qui en découlent sont :

- la R&D pour développer de nouveaux étalons et dispositifs de détection des rayonnements,
- le maintien au meilleur niveau des références existantes et leur comparaison au plan international,
- la contribution à la qualité et à la cohérence des mesures au niveau national,
- l’enseignement et le transfert aux utilisateurs.

Le périmètre du LNHB inclut les mesures de radioactivité pour le becquerel et ses dérivés, de taux d’émission de sources neutroniques en s^{-1} , et la dosimétrie des photons et particules chargées pour le gray et le sievert. Une convention cadre signée entre le LNE et le CEA précise les missions du LNHB et ses relations contractuelles avec le LNE. Le LNHB comprend le Laboratoire de Métrologie de l’Activité (LMA), le Laboratoire de Métrologie de la Dose (LMD), et depuis 2019 le Laboratoire Modélisation et Simulation des Systèmes (LM2S).

La métrologie de la radioactivité a pour objet la quantification des radionucléides en termes d'activité (becquerel) et la connaissance des caractéristiques physiques du phénomène de transformation nucléaire spontanée. Les radionucléides sont nombreux et se présentent sous les aspects les plus divers. Ces différences portent sur l'état (liquide, solide ou gazeux), la période radioactive, ou sur la nature et l'énergie des rayonnements émis. Cette diversité rend nécessaire l'utilisation d'une vaste palette d'instruments et des méthodes de mesures adaptées aux spécificités de chaque radionucléide. La mise en œuvre simultanée de plusieurs méthodes de mesure indépendantes les unes des autres est également recherchée pour assurer la redondance métrologique.

Les étalons primaires, les plus élevés dans la hiérarchie métrologique, sont constitués d'une instrumentation de mesure spécifique comprenant les dispositifs de détection, d'acquisition et de traitement du signal, et de méthodes d'analyse associées. Par extension, une fois son activité ainsi déterminée, la source devient un étalon primaire. Ces instruments étalons permettent de caractériser de manière absolue ou primaire, c'est-à-dire sans utilisation d'étalon de la même grandeur, des sources ou solutions radioactives en termes d'activité ou de ses dérivés – activité massique, activité volumique. Une fois caractérisées, ces sources jouent à leur tour le rôle d'étalons d'instruments de mesure secondaires, et ainsi de suite. Le LNHB développe, maintient et transfère aux utilisateurs les étalons primaires et secondaires qu'il produit. Le référencement au BIPM et la certification COFRAC assurent une traçabilité internationale et nationale.

La diversité des processus radioactifs rend indispensable une certaine connaissance préalable lorsqu'il s'agit de choisir l'instrumentation et la méthode la plus appropriée à un radionucléide donné. De plus, la méthode d'analyse nécessite généralement certaines informations telles que le schéma de désintégration ou des données atomiques et nucléaires. Par exemple, la technique primaire de mesure par scintillation liquide a besoin de connaître précisément le spectre en énergie des particules β émises pour modéliser l'émission de la lumière car le rendement de détection varie fortement à basse énergie [Bro07]. L'incertitude finale de mesure doit inclure une composante reflétant le degré de connaissance sur ces paramètres [Kos15]. Il apparaît donc naturel que le LNHB soit fortement impliqué dans l'évaluation des données de décroissance atomiques et nucléaires, pour la métrologie.

Notons enfin que la métrologie de l'activité est parfois mésestimée par la communauté de métrologie, à cause d'incertitudes relatives au mieux de 0.1%. En attendant une redéfinition en 2025, la seconde est actuellement définie à partir de la transition entre les deux niveaux hyperfins de l'état fondamental de l'atome de ^{133}Cs , avec une incertitude typique de l'ordre de 10^{-16} . On semble effectivement bien loin de ce niveau de précision, mais ce n'est peut-être qu'une question de point de vue et de définition. Pour reprendre un sujet à la mode dernièrement, considérons une mesure d'activité de 10 Bq de tritium dans un litre d'eau³. Cela signifie détecter 10 atomes de tritium se désintégrant chaque seconde au milieu de $6.7 \cdot 10^{25}$ atomes d'hydrogène. L'ordre de grandeur est donc bien de mesurer une fréquence relative de 10^{-25} s^{-1} , ou encore de détecter une présence relative de 10^{-16} des atomes de tritium dans un litre d'eau. À cela, nous pourrions ajouter que le tritium se désintègre par transition bêta en émettant uniquement des électrons ayant une énergie moyenne d'environ 5 keV, soit $8 \cdot 10^{-16} \text{ J}$. Le parcours moyen dans l'eau de ces électrons est de 350 nm, ce qui rend leur détection particulièrement délicate. Il s'agit donc bien d'une mesure de haute qualité métrologique.

3. Pour mémoire, la limite réglementaire dans l'eau potable est à 100 Bq/L.

1.3 Données nucléaires de désintégration

En métrologie, les mesures d'activité absolue nécessitent des données nucléaires issues du schéma de désintégration, ainsi que des données liées à la relaxation atomique subséquente. Au cours d'exercices internationaux d'intercomparaison, des différences significatives dans les valeurs d'activité recommandées ont été constatées selon les données employées. Le LNHB s'est donc engagé dans un travail à long terme d'évaluation de ces données, et de production de valeurs recommandées pour les schémas de désintégration des radionucléides.

Le groupe de travail international "Decay Data Evaluation Project" (DDEP) [Hel02, Kel17] a été initié en 1995 à l'initiative du LNHB et du PTB afin d'établir avec soin les données atomiques et nucléaires des radionucléides d'intérêt, assorties d'incertitudes fiables. La collaboration a été formellement établie sous les auspices de AIEA⁴ en lien avec les groupes américains impliqués dans le réseau international NSDD⁵ en charge de la production des données de décroissance ENSDF⁶. Elle a été rejointe par la suite par des groupes de Chine, de Roumanie, de Russie, d'Espagne et du Royaume-Uni.

Encore aujourd'hui, le DDEP entreprend l'évaluation des données de radionucléides ayant un intérêt majeur pour la métrologie, l'étalonnage des détecteurs, la médecine nucléaire, tant diagnostique que thérapeutique, et répond aux demandes plus spécifiques des utilisateurs de diverses communautés. À ce jour, les membres du DDEP ont évalué plus de 220 radionucléides, selon une méthodologie commune et un processus de relecture par les pairs. Les évaluations comprennent tous les paramètres relatifs aux transitions nucléaires principales (α , β , ε , γ), aux énergies et intensités de rayonnement, à la période de désintégration, aux rapports de branchement, etc. Les données atomiques associées sont liées aux émissions de rayons X, d'électrons Auger et d'électrons de conversion. À l'issue des évaluations, des recommandations pour de nouvelles mesures sont établies afin d'améliorer les données, et servent régulièrement à justifier les mesures de futurs programmes.

Le BIPM, par l'intermédiaire du Comité Consultatif des Rayonnements Ionisants (CCRI), supervise les intercomparaisons de la communauté internationale de métrologie. Il recommande depuis plus de 15 ans que les données évaluées par le DDEP soient utilisées par tous les laboratoires de métrologie. À ce titre, ces évaluations sont compilées et éditées par le LNHB, et publiées en tant que volumes de la monographie du BIPM-5 [Be04a, Be04b, Be06, Be08, Be10, Be11, Be13, Be16]. Le LNHB met également ces données à disposition des utilisateurs à travers son site internet⁷ et la publication chez EDP Sciences des Mini-Tables de Radionucléides. Le DDEP s'appuie sur la base de données NUCLÉIDE développée par le LNHB [Be02], et ses outils associés.

Notons que l'objectif n'est pas de concurrencer les évaluations ENSDF, axées sur la structure nucléaire et à vocation exhaustive. Historiquement, ces évaluations se font par chaînes de masse entières, ce qui ne laisse en général pas de temps pour une analyse fine d'un noyau en particulier. Il s'agit plutôt d'un effort complémentaire visant à améliorer des données spécifiques utiles à certaines communautés. D'ailleurs, les évaluateurs du DDEP prennent très souvent comme point de départ la dernière évaluation ENSDF en date,

4. Agence Internationale de l'Énergie Atomique.

5. Nuclear Structure and Decay Data.

6. Evaluated Nuclear Structure Data File.

7. <http://www.lnhb.fr/donnees-nucleaires/>

et certaines données comme les énergies, les spins, les parités et les multipolarités des niveaux nucléaires sont régulièrement reprises de ces évaluations. Les liens entre ces deux communautés d'évaluateurs restent étroits.

Dans ce contexte, le LNHB a constaté dans les années 2000 une demande accrue de ses utilisateurs pour une connaissance précise de la forme des spectres en énergie des émissions bêta des radionucléides obéissant à ce mode de désintégration, assortie d'incertitudes bien établies. Pour y répondre, le laboratoire s'est engagé depuis 2009 dans une étude ambitieuse de ces spectres, à la fois théorique et expérimentale. En effet, des calculs théoriques sont nécessaires car il est impossible de mesurer tous les spectres d'intérêt : périodes de désintégration trop courtes, décroissances multiples, etc. Mais il faut aussi mesurer des spectres bêta pour tester les prédictions théoriques, valider et contraindre les modèles, et établir des incertitudes fiables. L'objectif idéal, fixé un peu naïvement en début d'étude, serait d'atteindre une incertitude maximale de 1% sur tous les spectres bêta. Comme nous le verrons, si tant est qu'une incertitude globale sur un spectre continu ait une réelle signification, cet objectif peut être atteint pour des transitions permises sur toute la gamme en énergie, mais au prix d'un effort important. Pour les transitions interdites, cela reste un objectif à long terme qui sera très difficile à atteindre, et pour lequel des expertises hors du LNHB seront indispensables.

1.4 État de l'art en début d'étude

Au début de cette étude, j'ai réalisé un état de l'art concernant les mesures de spectres bêta et les codes de calcul disponibles, et conclu à la nécessité d'une action forte dans ces deux domaines.

1.4.1 Mesures de spectres bêta

En collaboration avec un collègue russe, V. Gorozhankin du Joint Institute for Nuclear Research (JINR) de Dubna, malheureusement décédé depuis, j'ai effectué une revue des différentes mesures publiées dans la littérature. Nous avons compilé un total de 130 facteurs de forme expérimentaux, disponibles dans la littérature, pour des transitions entre des niveaux nucléaires bien identifiés. Cette compilation m'a amené à créer par la suite une base de données spécifique [Mou15].

Nous avons constaté que l'étude des spectres bêta était passée de mode dans les années 1970. À cette époque, ces spectres étaient considérés suffisamment bien connus pour les applications contemporaines. Les mesures avaient été réalisées principalement avec des spectromètres magnétiques et concernaient les transitions permises et premières interdites, car des sources radioactives intenses étaient nécessaires [Gor10]. En effet, sur 130 transitions, 36 sont permises, 53 premières interdites non-uniquees et 25 premières interdites uniques. Très peu de transitions de degré d'interdiction plus élevé ont été mesurées, alors même qu'elles sont les plus sensibles aux modèles théoriques utilisés. Seulement 11 facteurs de forme avaient été publiés depuis 1976.

De plus, ces mesures ne bénéficiaient pas des outils d'analyse modernes d'aujourd'hui. Les électrons sont les particules élémentaires les plus légères et ont la fâcheuse tendance à diffuser facilement dans les tous les sens. Cela rend extrêmement délicat la moindre mesure

de spectre bêta, pour laquelle il est impératif de corriger des distorsions induites par le dispositif. Or, pour n'évoquer que ces aspects, les mesures par spectromètre magnétique n'étaient pas corrigées des inhomogénéités des champs magnétiques, et les quelques mesures par détecteurs semi-conducteurs n'étaient pas corrigées par des simulations Monte Carlo.

Ce constat est à nuancer dans certains cas, les publications montrant une grande expertise des dispositifs expérimentaux. Les distorsions liées à l'auto-absorption des électrons dans la source, par exemple, étaient corrigées par une série de mesures avec des sources de plus en plus fines, mais de moins en moins actives, et par extrapolation à une source infiniment mince. Malgré cela, les facteurs de forme expérimentaux publiés ne fournissaient aucune information en-dessous de 50 keV. Par ailleurs, une incohérence méthodologique globale apparaît clairement. En effet, seuls les facteurs de forme expérimentaux étaient donnés et ils étaient établis à partir des spectres mesurés corrigés par une composante théorique. Or, cette composante était rarement explicitée et des différences notables pouvaient apparaître selon les hypothèses et les formalismes utilisés.

L'idée initiale de V. Gorozhankin était d'analyser les facteurs de forme expérimentaux pour chaque type de transition et d'en tirer une déformation moyenne qui pourrait être appliquée aux spectres des transitions non mesurées [Gor10]. Malheureusement, il n'y avait pas assez de valeurs disponibles pour obtenir des données dites « de référence », et une déformation moyenne ne semble pas être physiquement pertinente. La figure 1.1 illustre la disparité des mesures de spectres bêta pour deux transitions β^- deuxièmes interdites non-unique, celles du ^{99}Tc à gauche et celles du ^{36}Cl à droite. Il est évident que l'on est loin d'une connaissance précise du spectre en énergie sur toute la gamme en énergie.

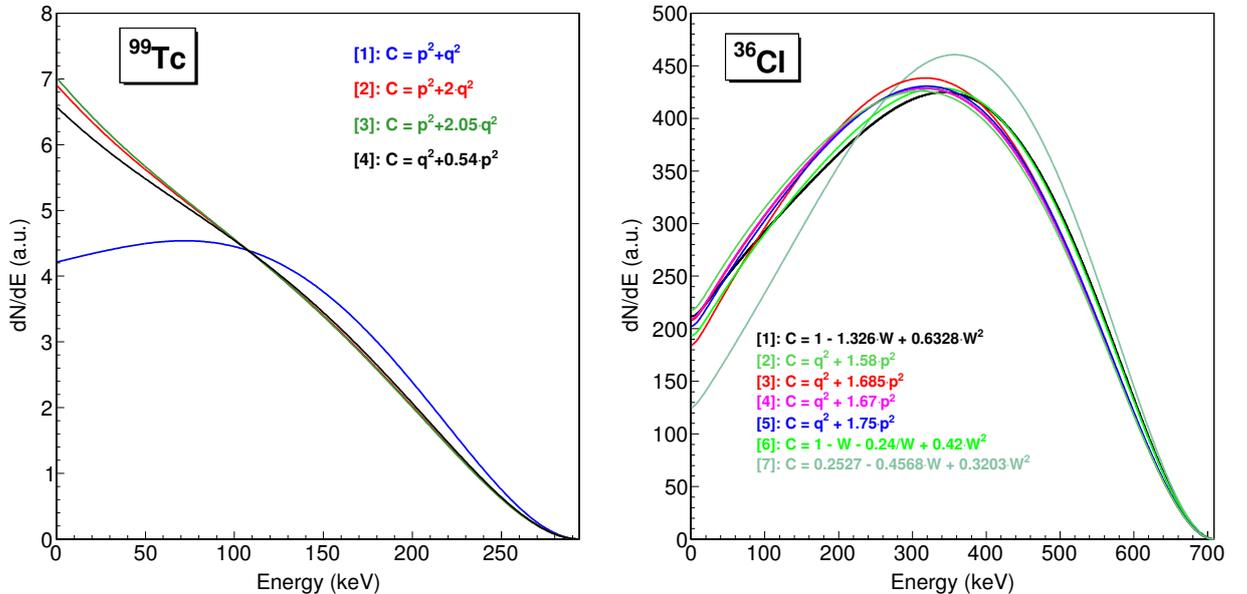


FIGURE 1.1 – Comparaison des facteurs de forme expérimentaux pour deux transitions β^- deuxièmes interdites non-unique. (*Gauche*) Désintégration du ^{99}Tc . Références : (1) [Tai51], (2) [Fel52], (3) [Sny66], (4) [Rei74]. (*Droite*) Désintégration du ^{36}Cl . Références : (1) [Rot08, Kos10], (2) [Sas72], (3) [Rei74], (4) [Fel52], (5) [Joh56], (6) [Wil67], (7) [Gra98].

Au final, toutes les personnes concernées par la mesure des spectres bêta s'accordent sur un point essentiel. Même si certains facteurs de forme expérimentaux, dans une certaine gamme d'énergie, peuvent être considérés comme bien connus, leurs incertitudes, lorsqu'elles sont données, sont très certainement sous-évaluées. Il serait nécessaire de tous les mesurer et les analyser à nouveau, de manière cohérente, avec les moyens actuels et dans une gamme d'énergie plus grande. C'est pourquoi le choix a été fait de se lancer dans l'étude expérimentale de ces spectres, avec deux techniques de mesure qui seront détaillées plus loin.

1.4.2 Codes de calculs

En étudiant la base de données ENSDF, qui comprend tous les radionucléides connus, on trouve plus de 35 000 transitions bêta (β^\pm) ou captures électroniques (ε) dans plus de 1 500 radionucléides, répartis en 35% β^- , 28% β^+ et 37% ε . Il est important de noter que les évaluations de données de décroissance ne peuvent être faites qu'à partir de prédictions théoriques lorsque les données expérimentales manquent. Dans ce contexte, tout code de calcul doit fournir des estimations précises dans un large éventail de cas.

Un examen des rares codes de calcul disponibles a rapidement mis en évidence leurs limites. Notons qu'il s'agit bien de codes *disponibles*. En effet, quelques laboratoires dans le monde ont développé une expertise dans ce domaine mais ils gardent leurs propres programmes, codes ou exécutable. Parfois même, j'ai pu constater que les chercheurs étaient partis et que leurs codes étaient tout simplement perdus. Quatre codes ont été trouvés pour les transitions bêta, et deux pour les captures électroniques.

Le code SpeBeta a été développé au LNHB par R. Vatin au début des années 1990 [Cas92]. Les transitions sont calculées comme des permises selon un formalisme analytique. Une correction d'écrantage datant de 1936 [Ros36], mais d'application courante, y est incluse. L'utilisateur a la possibilité d'introduire un facteur de forme, en général expérimental et issu de la littérature. Le code fournit le spectre bêta calculé.

Le code SimpBeta a été développé au BIPM par C. Michotte dans les années 2000. Il utilise des tables de paramètres que nous verrons dans un autre chapitre (fonction de Fermi, λ_k) qui ont été déterminés par résolution numérique de l'équation de Dirac, et qui incluent un noyau non ponctuel [Beh69]. Il permet ainsi de calculer les transitions permises, premières, deuxièmes et troisièmes interdites uniques. De plus, une correction d'écrantage est tabulée pour la fonction de Fermi et λ_2 , ce qui permet de l'appliquer correctement aux transitions permises et premières interdites uniques. Une interpolation linéaire de paramètres est faite pour les énergies non tabulées. Notons que le programme dépend entièrement de ces tables, ce qui empêche toute modification du formalisme. Les paramètres sans écrantage considérés vont de 2.6 keV à 3.6 MeV espacées sur 33 valeurs en énergie. Les paramètres avec écrantage sont tabulés pour nettement moins d'énergies, le nombre exact variant avec le nombre de protons dans le noyau. L'utilisateur peut également introduire un facteur de forme, et le programme fournit le spectre bêta calculé.

Le code BetaSpectrum a été développé au JINR par V. Gorozhankin à la fin des années 2000. Il utilise les tables de paramètres sans écrantage dans [Beh69, Dzh69] pour calculer les transitions comme des permises, et applique un facteur de forme expérimental s'il existe. Une interface graphique permet de visualiser les informations concernant les transitions et les résultats du calcul. Le programme détermine le spectre et le pondère par sa probabilité

d'émission. Les incertitudes sont propagées et permettent de déterminer une enveloppe de probabilité autour de chaque spectre.

Le programme LogFT a été établi dans les années 1970 à partir du travail originel de N. Gove et M. Martin [Gov71]. C'est encore actuellement le code de référence pour les évaluations de données nucléaires ENSDF. Il traite à la fois les transitions bêta et les captures électroniques. Il lit en entrée un fichier ENSDF, récupère les paramètres puis calcule les valeurs de $\log ft$, les énergies moyennes des spectres β^\pm , les probabilités de transitions ε des couches K et L et les rapports de probabilité de capture totales ε/β^+ et K/β^+ . Les incertitudes sur les paramètres d'entrée données dans le fichier ENSDF sont propagées, et une incertitude de modélisation arbitraire de 1% est ajoutée pour le rapport ε/β^+ . Par ailleurs, toute incertitude finale inférieure à 0.1% n'est pas donnée par le programme LogFT. Les transitions permises, premières et deuxièmes interdites uniques sont traitées spécifiquement. Il fournit en sortie un fichier ENSDF avec les valeurs calculées mises à jour, mais ne donne pas les spectres. La modélisation des transitions bêta est analytique. La fonction de Fermi correspond à la solution des équations de Dirac pour un noyau ponctuel. Les fonctions d'onde, déterminées selon la même solution, ne sont calculées qu'à la surface du noyau, et ces valeurs servent à calculer les paramètres λ_2 et λ_3 . La même correction d'écrantage analytique que dans SpeBeta est utilisée, et une autre correction analytique est ajoutée pour tenir compte de l'effet dû à un noyau non ponctuel. Le calcul des captures électroniques repose sur l'hypothèse de couches fermées et utilise des valeurs tabulées de densités radiales des fonctions d'onde atomiques évaluées à la surface du noyau, et corrigées des effets atomiques de recouvrement et d'échange que nous verrons plus loin [Mar70]. Les paramètres des fonctions d'onde atomiques ont été déterminés à l'aide d'une approche de type Hartree-Fock-Slater, auto-cohérente et relativiste, avec une distribution réaliste de la densité de charge nucléaire de type Fermi-Dirac, mais pour des atomes neutres et non excités [Lu71]. Ce recours à des valeurs tabulées rend en pratique impossible toute amélioration de l'ensemble de la modélisation.

Le programme EC-capture calcule des probabilités de capture relatives pour les transitions permises et prétend traiter les transitions premières interdites non-unes [Sch98]. En réalité, ces dernières sont traitées comme des permises car aucune structure nucléaire n'est prise en compte. Les probabilités relatives pour les couches K, L, M, N et O sont données avec une propagation des incertitudes. Le calcul repose sur l'hypothèse de couches fermées et utilise des rapports tabulés de fonctions d'onde atomiques évaluées à la surface du noyau. Les fonctions d'onde sont issues d'une modélisation relativiste et les rapports sont ceux donnés dans [Bam77] pour un petit nombre de Z (nombre de protons dans le noyau). Les corrections atomiques proviennent des valeurs tabulées dans [Bam77] et ont été établies à partir de différents modèles pour des Z faibles et élevés, toujours pour un petit nombre de Z . Les auteurs ont eu recours à l'interpolation pour estimer les valeurs non tabulées pour tous les Z . Les programmes EC-capture et LogFT sont utilisés dans les évaluations de données DDEP pour les captures électroniques.

Cette revue a clairement mis en évidence la nécessité d'une amélioration des prédictions théoriques, tant pour les transitions bêta que pour les captures électroniques. Ceci ne peut pas être réalisé à partir d'un modèle purement analytique, ni même en utilisant des tables de paramètres tabulés il y a 50 ans avec des codes adaptés aux puissances de calcul des ordinateurs de l'époque. Il est nécessaire de reprendre à la racine les différentes hypothèses du modèle théorique afin de le complexifier. Ce faisant, une résolution numérique devient

inévitables, ce qui change profondément toute l’algorithmique des programmes existants. Le choix a donc été fait de se lancer dans une étude théorique des transitions par interaction faible et d’élaborer un nouveau code de calcul. Par rapport aux programmes existants, ce programme devait fournir les mêmes informations, mais plus précises, et les informations supplémentaires réclamées par nos utilisateurs, comme les spectres bêta ou les probabilités de capture pour chaque sous-couche atomique. Il devait malgré tout conserver un côté pratique, comme le programme LogFT qui gère les fichiers ENSDF, pour que l’intervention de l’utilisateur soit minimale.

1.5 Applications majeures

Une connaissance précise des propriétés des transitions par interaction faible est indispensable dans de nombreux domaines. En métrologie, bien sûr, car les étalons sont élaborés grâce à des techniques de mesure de l’activité dont certaines dépendent de ces données : compteurs proportionnels à gaz, chambres d’ionisation ou scintillation liquide, par exemple. Les désintégrations bêta sont également connues pour jouer un rôle important en astrophysique, par exemple en cosmo-chronologie, pour le processus r , ou pour les neutrinos galactiques [Kla85]. Nous allons voir maintenant plus en détail certaines de ces applications les plus importantes.

1.5.1 Physique fondamentale

Il peut sembler un peu provocateur de ranger la physique fondamentale dans la catégorie des applications. Il s’agit plutôt de mettre en lumière un biais de pensée dans la communauté de métrologie de la radioactivité, qui a tendance à ne considérer que les applications environnementales, industrielles, médicales ou sociétales. J. Hardy a martelé un message fort, auquel j’adhère pleinement, lors de la conférence de métrologie ICRM2017⁸ : les métrologues ne doivent pas oublier que la physique fondamentale fait partie des applications cibles car la précision de leurs mesures peut avoir un impact fort.

Comme nous l’avons vu, les transitions bêta ont été principalement étudiées il y a plus de 40 ans et ont contribué de manière décisive à établir les principales caractéristiques de l’interaction faible, telles que la violation de parité et l’hélicité des neutrinos. Depuis des décennies, les valeurs de $\log ft$ ont été utilisées dans les études de structure nucléaire pour assigner les spins et parités des niveaux nucléaires, dans une sorte de cercle vicieux car les $\log ft$ sont déterminés à partir du degré d’interdiction de la transition, lui-même défini selon les spins et parités des niveaux nucléaires. Les règles utilisées couramment dans les évaluations de données nucléaires ont été définies par S. Raman et N. Gove dans [Ram73], mais des études ont depuis souligné leurs limites et la nécessité d’en établir de nouvelles [Soo04, Soo11]. Améliorer les calculs des transitions par interaction faible et la mesure des périodes de désintégration peut donc avoir un impact direct.

D’ailleurs, une étude au long cours de certaines transitions spécifiques, les transitions super-permises de Fermi, effectuée en particulier par J. Hardy et I. Towner, a permis de tester certaines prédictions du Modèle Standard, mais aussi l’existence d’effets possibles

8. 21st International Conference on Radionuclide Metrology and its Applications, 15-19 Mai 2017, Buenos Aires, Argentine.

d'une nouvelle physique [Sev06, Har15]. Ainsi, l'unitarité de la matrice CKM (Cabibbo–Kobayashi–Maskawa) est une propriété fondamentale de l'interaction faible telle que décrite dans le Modèle Standard. La contrainte actuelle la plus précise a été établie par l'étude des $\log ft$ de ces transitions super-permises. Les publications courent sur 45 ans et peuvent être trouvées à partir de la dernière en date [Har15]. Cependant, cette observable n'est pas suffisamment sensible pour mettre en évidence des effets d'une nouvelle physique, et toute personne voulant améliorer significativement ces incertitudes avec les instrumentations actuelles en physique nucléaire devra faire face à de sérieuses difficultés expérimentales.

Au cours de la dernière décennie, la communauté de physique des particules s'est fortement intéressée au spectre en énergie des antineutrinos issus des réacteurs en fonctionnement. Les réacteurs nucléaires sont les dispositifs de production les plus intenses pour ces particules, environ 10^{20} s^{-1} , ce qui est essentiel pour la mesure car elles n'interagissent que très peu avec la matière. Les antineutrinos de réacteur sont émis lors de la désintégration β^- des produits issus de la fission du combustible nucléaire : ^{235}U , ^{238}U , ^{239}Pu et ^{241}Pu . Les rapports de branchement et les spectres en énergie de chacun des deux leptons émis sont caractéristiques des noyaux initiaux et finaux, ainsi que des rendements de fission. Le spectre antineutrino émis par le cœur d'un réacteur résulte ainsi de la superposition de milliers de spectres bêta, comme l'illustre la figure 1.2 à gauche.

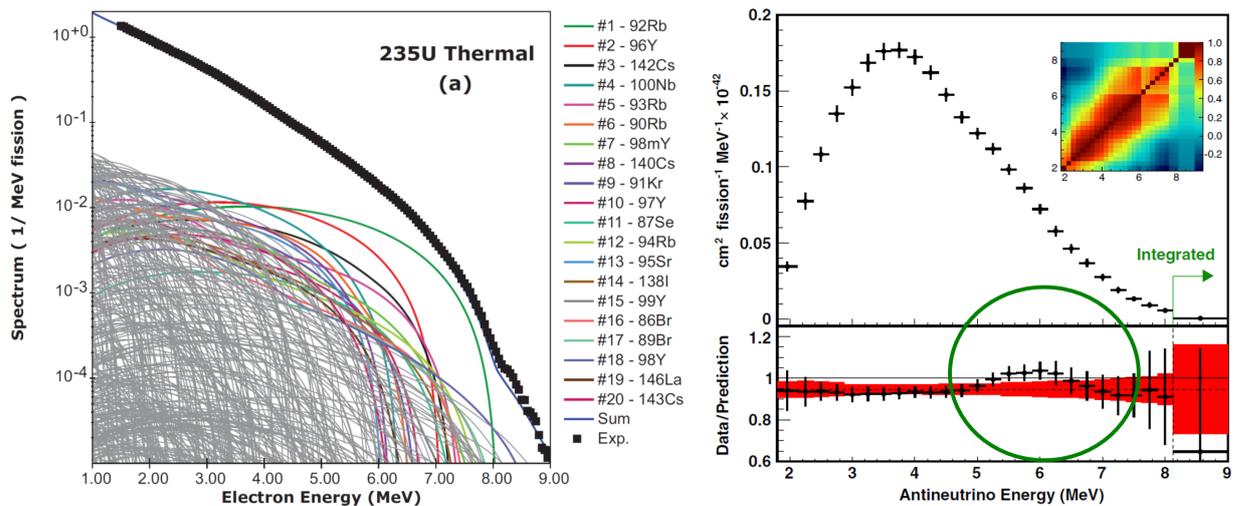


FIGURE 1.2 – (Gauche) Spectres bêta issus de la fission thermique du ^{235}U [Son15]. (Droite) Anomalie de forme du spectre antineutrino mesuré à Daya Bay, le célèbre “bump” à 6 MeV [An17].

En 2011, une réévaluation des spectres antineutrinos issus des réacteurs a été faite pour les besoins de l'expérience Double Chooz⁹. Cette étude a montré l'existence d'un déficit systématique du nombre d'antineutrinos détectés par rapport à celui attendu dans une vingtaine d'expériences passées et situées à moins de 100 m d'un réacteur : c'est l'anomalie des antineutrinos de réacteur [Mue11, Men11]. Il y a quelques années, de nouveaux spectres expérimentaux mesurés auprès du réacteur chinois Daya Bay ont également révélé un désaccord sur la forme des spectres par rapport aux prédictions, ce que l'on appelle

9. Cette expérience étudie l'oscillation des antineutrinos de réacteur et est située dans les Ardennes, auprès de la centrale nucléaire de Chooz.

l'anomalie de forme [An17], illustrée sur la figure 1.2 à droite. L'une des explications de ces anomalies pourrait être une contribution supplémentaire à l'oscillation de saveur des neutrinos avec l'existence d'un quatrième type de neutrino, dit stérile car couplé uniquement au champ de gravité. Cette porte possiblement ouverte vers une nouvelle physique au-delà du Modèle Standard a généré de nombreuses propositions d'expériences [Cri11]. Notons cependant qu'une étude récente a mis en lumière l'influence majeure des incertitudes qui peuvent être associées aux calculs des spectres bêta, mettant en doute la réalité de l'anomalie des antineutrinos de réacteur [Hay14]. En effet, ces calculs sont effectués à l'aide de modèles analytiques peu précis [Hub11]. Améliorer les prédictions théoriques des spectres bêta pourrait avoir un impact majeur sur cette thématique, et certains s'y emploient sur certaines transitions spécifiques [Hay19].

Concernant les captures électroniques, la nature même du processus le rend particulièrement sensible aux effets atomiques. Ce processus est très similaire à la désintégration bêta, mais au lieu d'émettre un électron et un antineutrino, le noyau absorbe un électron atomique et émet seulement un neutrino. Par conséquent, une transition d'un état fondamental à un autre ne peut être détectée que par le réarrangement atomique subséquent, ce qui rend toute mesure particulièrement difficile à faible Z . Les calculs théoriques dépendent intrinsèquement de la précision des fonctions d'onde atomiques, pour lesquelles un traitement relativiste est obligatoire pour un Z élevé. Les rapports de probabilités de capture ont donc souvent été mesurés pour explorer différents effets atomiques. La revue la plus complète des mesures et des prédictions théoriques de captures électroniques a été publiée il y a 40 ans [Bam77]. C'est, à ma connaissance, la dernière en date.

1.5.2 Production d'énergie

Dans l'industrie nucléaire, les spectres en énergie des émetteurs bêta, et les énergies moyennes associées, sont nécessaires à la quantification de la puissance résiduelle du combustible nucléaire issue de la désintégration des produits de fission après l'arrêt du réacteur [Rud79, Yos07]. Cette dernière a un impact significatif sur la sûreté des opérations, sur les diverses contraintes législatives et sur les aspects économiques de la production d'énergie nucléaire. C'est également un facteur majeur pour la gestion du combustible après irradiation : déchargement du combustible, transport, stockage et refroidissement du combustible, retraitement des déchets. Ces études quantitatives nécessitent un ensemble complet de données nucléaires, des estimations fiables et des incertitudes bien établies [Nic05]. Améliorer ces données permettrait également de réduire les incertitudes globales sur la puissance électrique générée en phase de production, aussi bien pour les réacteurs actuels utilisant le cycle $^{235}\text{U}/^{239}\text{Pu}$ que pour les futurs réacteurs de génération IV utilisant le cycle $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$ [Gup10].

La puissance résiduelle peut être déterminée par des mesures ou des modélisations nécessitant l'inventaire des noyaux créés, pendant le processus de fission et après l'arrêt, et leurs caractéristiques de désintégration. Les modélisations sont d'application générale et leurs prédictions servent aussi à piloter le réacteur, mais elles doivent être validées par des mesures afin de s'assurer de leur fiabilité. Les deux méthodes sont donc complémentaires et un bon accord entre les calculs et les mesures de puissance résiduelle signe une bonne maîtrise de l'ensemble des processus en jeu dans le réacteur. Toutefois, des écarts persistent. L'incertitude sur l'estimation de la puissance résiduelle est déterminée à partir des

informations extraites des bases de données nucléaires. Elle résulte donc des incertitudes élémentaires sur les sections efficaces de production, l'énergétique des réactions et des transitions, et la période de désintégration, mais aussi de celles qui sont liées aux conditions de fonctionnement du réacteur, et enfin des incertitudes sur les modèles de calcul. Des études ont montré qu'une part importante de l'écart constaté est liée aux données de désintégrations β pour des produits de fission de courte durée de vie. Beaucoup de ces radionucléides, au schéma de désintégration complexe, sont très mal caractérisés du fait d'une surestimation de l'énergie moyenne libérée par les particules β et d'une sous-estimation de l'énergie emportée par les photons γ . L'effet expérimental à l'origine de cette mauvaise estimation de la chaleur de décroissance (Q-value) est connu sous le nom d'effet Pandémonium et a été mis en évidence par J. Hardy [Har77]. Il est dû à l'utilisation de détecteurs germanium de haute résolution pour mesurer les spectres γ émis lors de la décroissance des produits de fission. En effet, les schémas de désintégration incluant les branches bêta sont reconstruits à partir des spectres γ . Or, les détecteurs germanium ont un inconvénient majeur : leur efficacité de détection chute drastiquement à haute énergie. Ainsi, les intensités d'émission γ venant de niveaux de haute énergie sont sous-estimées ou ne sont pas observées, et les branches bêta alimentant ces niveaux sont donc mal déterminées. La technique d'absorption totale (Total Absorption Gamma-ray Spectrometry – TAGS) appliquée à l'étude des produits de fission a montré qu'il était possible de s'affranchir de l'effet Pandémonium, et ainsi de mieux connaître leur schéma de désintégration [Alg10]. De nouvelles mesures utilisant cette technique sont actuellement entreprises afin de corriger les bases de données [Gua17, Gua19]. Une meilleure connaissance de la forme des spectres bêta permettrait d'améliorer la compréhension et les incertitudes des calculs de puissance résiduelle.

Dans le contexte mondial de non-prolifération des armes nucléaires, la mesure des anti-neutrinos produits au cœur des réacteurs fait l'objet d'intenses recherches depuis plusieurs années. En effet, elle permettrait une surveillance infalsifiable et en temps réel des installations nucléaires de par le monde, tout en donnant un accès direct à la quantité produite de matériaux fissiles à usages militaires [IAEA08]. Les propriétés de la désintégration β^- des produits de fission sont essentielles pour analyser le spectre des antineutrinos issus des réacteurs car ce spectre en énergie dépend de la contribution de chaque désintégration bêta. Il est donc directement lié aux intensités d'émission, aux spectres en énergie des particules β , ainsi qu'à la nature et à la quantité de matière fissile présente dans le cœur.

D'un ordre de grandeur totalement différent des réacteurs nucléaires¹⁰, les piles bêta-voltaïques connaissent un regain d'intérêt ces dernières années. Dès la première moitié du XX^{ème} siècle, la conversion de l'énergie issue de la désintégration nucléaire directement en énergie électrique a suscité l'intérêt [Pre14]. Les piles nucléaires sont idéales pour un certain nombre d'applications nécessitant des sources d'énergie à longue durée de vie et de faible puissance : sondes spatiales, stimulateurs cardiaques, microsystèmes, téledétecteurs, etc. Les dispositifs thermoélectriques utilisent une méthode indirecte pour produire de l'électricité. En comparaison, les piles bêta-voltaïques convertissent directement l'énergie de la désintégration bêta en courant électrique, et sont donc beaucoup plus efficaces. L'idée essentielle est d'utiliser directement le courant généré dans un semi-conducteur par les électrons émis depuis une source de haute activité. Elles font actuellement l'objet de recherches intensives [Ulm09, Mun15, Kim16, Yak16, Kur17, Svi18, Bel19]. Parmi les différents radionucléides possibles, le ⁶³Ni semble être le compromis le plus prometteur grâce

10. Nous passons des GW aux μ W, aux mW dans le meilleur des cas.

à sa longue période de désintégration, à la faible énergie des particules β qui minimise les dommages causés au semi-conducteur et assure que le rayonnement ne s'échappe pas de la pile, et à son abondance dans les déchets produits par les centrales nucléaires. La source radioactive joue un rôle majeur dans la performance de la pile car une source de haute activité est nécessairement épaisse, ce qui induit une absorption importante des électrons β dans la source elle-même. Les dispositifs usuels sont plans, mais certains tentent de concevoir des géométries tridimensionnelles à l'aide de nanofils de phosphure de gallium afin de contourner le problème de l'auto-absorption et d'améliorer l'efficacité de la pile [McN18].

1.5.3 Médecine nucléaire

Les énergies moyennes des spectres bêta sont depuis longtemps d'une grande importance en radioprotection et pour les applications biomédicales [Cro83]. L'utilisation de radionucléides émetteurs bêta en imagerie et en radiothérapie rend nécessaire une connaissance précise de leurs spectres en énergie, et donc de leurs énergies moyennes, ne serait-ce que pour le calcul des doses induites aux patients. Des radionucléides tels que le ^{32}P , le ^{89}Sr ou le ^{131}I sont utilisés depuis des décennies dans les applications thérapeutiques. Le développement de la radiothérapie interne vectorisée comme modalité de traitement du cancer a conduit ces dernières années à la recherche active de nouveaux radio-pharmaceutiques, pour lesquels de nombreux émetteurs bêta sont une piste prometteuse [Bos07]. Le médicament radio-pharmaceutique qui est administré au patient est en général un peptide ou un anticorps marqué par un radionucléide. La molécule vectrice va se diriger sélectivement vers les cellules tumorales, s'y fixer, et permettre leur irradiation en émettant des rayonnements ionisants. La pénétration des particules β dans les tissus est de quelques millimètres à quelques centimètres selon les énergies maximales, ce qui convient parfaitement pour irradier des tumeurs de taille moyenne. Outre les aspects énergétiques, les radionucléides sélectionnés doivent avoir également des périodes de désintégration de quelques heures à quelques jours afin de limiter au strict nécessaire la dose reçue par le patient, en cohérence avec la période biologique d'évacuation par l'organisme.

Comme dans tout traitement utilisant les rayonnements ionisants, la connaissance de la dose délivrée à la tumeur et au reste du corps est essentielle pour assurer l'efficacité et la sécurité du traitement. Deux aspects majeurs doivent être abordés pour estimer cette dose le plus précisément possible. Il faut bien sûr connaître la répartition spatiale et temporelle du produit dans le corps, en particulier dans la zone tumorale, sujet qui ne nous concerne pas directement. Le second aspect, qui nous concerne plus, est celui du calcul de la dose délivrée dans les volumes d'intérêt selon la quantité de radionucléides présents. Les particules β émises par le radio-pharmaceutique ont un fort pouvoir ionisant et sont à l'origine de la majeure partie de la dose absorbée dans les cellules du patient. Les éléments cellulaires sensibles à la dose absorbée (ADN, ARN, protéines) sont des polymères dont les dimensions spatiales sont typiquement inférieures à 130 nm. Or, comme le montre la figure 1.3, le transfert d'énergie linéique, quantité décrivant l'énergie transférée au milieu traversé par une particule ionisante, augmente fortement à basse énergie pour les électrons. Une meilleure connaissance de la forme des spectres bêta à basse énergie permettrait donc d'améliorer l'estimation de la dose absorbée dans les cellules du patient pour, à terme, les réduire au strict nécessaire [Bar94].

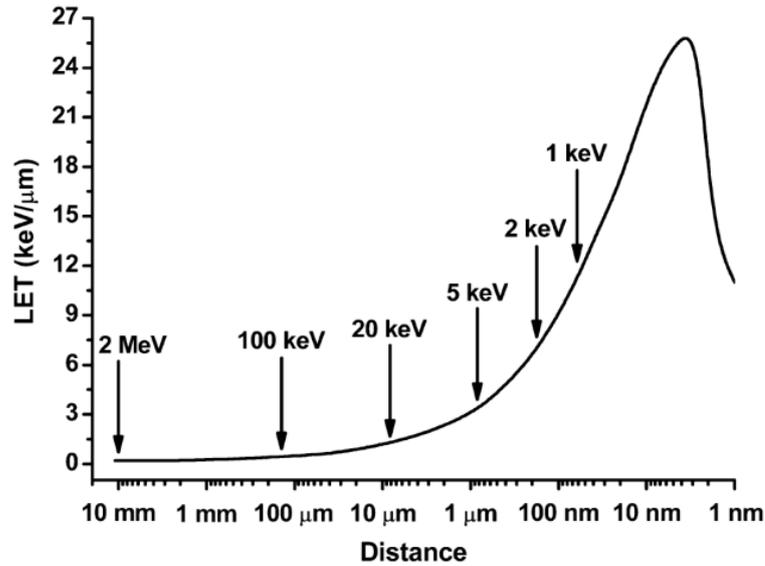


FIGURE 1.3 – Transfert d'énergie linéique (Linear Energy Transfer – LET) des électrons en fonction de la distance parcourue [Kas04].

L'état de l'art au début de cette étude a établi la nécessité de relancer l'étude des spectres bêta, tant expérimentale que théorique, pour tous les types de transitions, avec l'objectif d'atteindre une précision métrologique. De nombreux contacts ont été pris avec différentes équipes de physique fondamentale et de physique théorique, mais il a été difficile de les convaincre de l'intérêt du sujet. Une stratégie a donc été établie en s'appuyant sur les compétences expérimentales du LNHB en métrologie des rayonnements ionisants. En parallèle, j'ai également pris en charge le volet théorique, ce qui nécessite de longs apprentissages. J'ai pris soin de consulter régulièrement les communautés intéressées par cette thématique afin de prioriser les différentes étapes de cette étude.

Chapitre 2

Approche expérimentale

“Une expérience scientifique est une expérience qui contredit l’expérience commune.”

— Gaston Bachelard, *La formation de l’esprit scientifique*

Comme nous l’avons vu au chapitre précédent, la connaissance de la forme des spectres bêta n’est pas suffisamment précise pour les besoins de nombreux domaines scientifiques. Il y a dix ans, force était de constater que cette thématique n’était plus à la mode depuis longtemps, et que les nouvelles mesures étaient particulièrement rares. Il apparaissait naturel que le LNHB, en tant que laboratoire de métrologie des rayonnements ionisants, s’intéresse de près à la mesure la plus précise possible des spectres bêta.

Nous verrons dans un premier temps les différentes techniques expérimentales existantes et, ce faisant, les réelles difficultés associées à ce type de mesure. Nous aborderons ensuite en détail les deux techniques développées, ou encore en développement, au LNHB. La première utilise des calorimètres métalliques magnétiques, une technique permettant de mesurer avec une grande précision les spectres bêta de basse énergie. Je n’ai pas participé directement à leur mise en place et aux mesures, mais je me suis appliqué à comprendre au mieux leur fonctionnement et l’analyse des données recueillies pour estimer quel degré de confiance je pouvais avoir dans les résultats produits. En revanche, je suis en charge de la mise en place d’un système de détection complémentaire utilisant des détecteurs silicium. Les avancées se font essentiellement grâce au travail et à l’implication des étudiants que j’ai la chance d’encadrer, et dépendent des financements que je peux obtenir, tant pour le matériel que pour la main d’œuvre.

Au fil des ans, des liens se sont créés autour de cette thématique avec différents laboratoires étrangers. Ces échanges m’ont conduit à m’intéresser à d’autres techniques expérimentales, par exemple les mesures par scintillateur inorganique dans le cadre d’une collaboration avec l’Université Technique de Delft [Qua16], par spectromètre magnétique avec celui en développement à l’Institut de Radiophysique de Lausanne [Jug19], ou encore les pièges de Penning pour la mesure de grande précision des Q-values [San19]. De ces échanges sont nées des collaborations parfois informelles et ponctuelles, pouvant aller jusqu’à la publication d’un article, parfois plus approfondies dans le cadre d’un projet financé, comme les projets européens de métrologie MetroBeta et MetroMMC par exemple. Je permets de renvoyer le lecteur curieux à la littérature pour ces différentes techniques.

2.1 Le détecteur idéal

Les particules β , électrons et positons, sont les particules élémentaires chargées et libres les plus légères qui existent. Elles diffusent très (trop) facilement dans la matière, avec des trajectoires très erratiques. Ce comportement dépend fortement de leur énergie cinétique et est d'autant plus important que leur énergie est faible. La diffusion élastique dévie une partie des électrons en dehors de l'angle solide de détection, faisant perdre des coups dans le spectre. La diffusion inélastique a le même effet mais fait perdre en plus une petite quantité d'énergie à la particule. Si cette énergie est perdue dans le détecteur et que la particule s'échappe, la majeure partie de l'énergie cinétique est perdue et le coup est compté dans la partie basse du spectre. Si l'énergie est perdue en dehors mais que la particule est finalement détectée, le coup sera compté à une énergie légèrement plus faible. À basse énergie, notamment en fin de ralentissement dans la matière, les diffusions multiples augmentent drastiquement, démultipliant la possibilité de ne détecter qu'une fraction de l'énergie cinétique totale. Bien évidemment, il faut ajouter à cela le fait que l'émission initiale des particules β suit un spectre continu, de l'énergie nulle à une énergie maximale souvent relativiste. On comprend donc aisément à quel point la mesure précise de la forme d'un spectre bêta, sur une large gamme en énergie, est une véritable gageure.

Pour que la forme du spectre ne soit pas déformée par le système de détection, un détecteur idéal devrait avoir :

- une résolution en énergie suffisamment fine pour ne pas masquer les variations du spectre,
- un rendement de détection de 100%, c'est-à-dire que toutes les particules émises par la source sont détectées et toute l'énergie est absorbée dans le volume de détection,
- une réponse en énergie linéaire, avec une relation proportionnelle entre l'amplitude du signal et l'énergie déposée sur toute la gamme de mesure,
- un temps de réponse rapide afin de détecter chaque interaction, même si ce critère est moins important avec un bon dispositif de gestion du temps mort.

Au-delà du détecteur, le système de détection dans son ensemble doit être conçu pour minimiser la diffusion et la rétrodiffusion des particules β . Nous allons voir rapidement les différents détecteurs possibles, puis nous évoquerons l'influence de la source elle-même sur la forme du spectre mesuré.

2.1.1 Un tour d'horizon au pas de charge

Dans la compilation des facteurs de forme publiés dans littérature de H. Behrens et L. Szybisz [Beh76], plus de 70% des spectres bêta avaient été mesurés avec un spectromètre magnétique. C'est de loin la technique expérimentale qui a été la plus utilisée. Dans un champ magnétique homogène, un électron se déplace perpendiculairement aux lignes de champ et décrit une trajectoire courbe qui converge vers le détecteur, en général un simple compteur. L'idée consiste alors à parcourir le spectre bêta en faisant varier le champ magnétique et en comptant le nombre de particules détectées pendant un intervalle de temps identique. Comme il est possible de contrôler très précisément l'intensité d'un champ magnétique, il est possible de sélectionner des électrons avec une résolution en énergie pouvant atteindre quelques eV. Néanmoins, l'angle solide du dispositif est très réduit et la statistique de comptage est d'autant plus faible que la résolution en énergie est fine. Cette technique

requiert donc de longs temps de comptage et des sources très intenses, ce qui signifie des périodes de désintégration suffisamment longues et des sources épaisses où l’auto-absorption va déformer fortement le spectre mesuré.

Dans un spectromètre électrostatique, une haute tension est utilisée pour accélérer les particules β et les focaliser de la même manière qu’un spectromètre magnétique [Hug29]. Différents développements ont eu lieu, comme des spectromètres électrostatiques sphériques par exemple [Mor64]. Cependant, ces spectromètres ne sont pas utilisables pour des énergies cinétiques relativistes car ils utilisent la différence de vitesse des électrons. De plus, les hautes tensions applicables étaient limitées à quelques dizaines de kV. Ils permettaient par contre de détecter des particules β de très basses énergies. Leur utilisation est restée anecdotique, essentiellement pour la mesure du spectre du ^3H dans le cadre de la recherche de la masse du neutrino [Ham53, Sal69, Ake19].

L’ouvrage de Siegbahn publié en 1955 [Sie55] donne un bon aperçu des divers développements de ces deux techniques. À ma connaissance, ces spectromètres ont presque tous été arrêtés, voire démantelés. Notons que quelques versions plus modernes de spectromètres magnétiques sont en développement, comme le projet miniBeta à l’Université catholique de Louvain en Belgique [Sev14]. Deux chambres à dérive multi-fils, emplies d’un mélange de 30 kPa (300 mbar) d’hélium et d’isobutane, sont en cours d’élaboration et seront combinées à des scintillateurs plastiques, l’ensemble étant plongé dans un champ magnétique vertical. Ainsi, les particules β issues de la source placée entre les deux chambres traverseront le gaz le long d’une trajectoire dont la courbure permettra de déterminer leur énergie. Notons également la mise en service et la caractérisation d’un spectromètre magnétique chez nos collègues métrologues de l’Institut de Radiophysique (IRA) de Lausanne, en Suisse [Jug19].

Le compteur à gaz a longtemps été un détecteur essentiel en physique nucléaire et ce, dès sa création par H. Geiger au début du XX^{ème} siècle. Avec un champ électrique suffisamment intense, une particule de très faible énergie peut ioniser le gaz et une seule paire électron-ion peut déclencher une avalanche avec assez de particules secondaires pour obtenir un signal utile. Pour la spectrométrie bêta, le rendement de détection peut atteindre 100% si la source est placée au centre du volume de gaz, ou si c’est le gaz lui-même, et que toutes les particules β sont arrêtées dans le gaz. Cependant, cette technique est limitée par la faible densité du gaz, et donc par la taille de la chambre et les champs électriques applicables. Dans un gaz, la portée des électrons devient vite supérieure aux dimensions du détecteur. En général, les résolutions en énergie vont de quelques dizaines de keV à 100 keV. Notons tout de même que certains spectres bêta de basse énergie ont été mesurés avec de bien meilleures résolutions en énergie, tels que le ^3H [Han49] ou le ^{14}C [Kuz00].

La mesure de la quantité de lumière produite par le dépôt d’énergie de particules ionisantes dans un matériau est l’une des plus anciennes techniques de détection. En scintillation liquide, le solvant, composant principal du cocktail scintillant, absorbe l’énergie des particules ionisantes émises par le radionucléide. Cette énergie migre d’une molécule de solvant à une autre par des mécanismes d’excitation et d’ionisation en un temps typiquement inférieur à la nanoseconde, jusqu’à être transformée en chaleur ou, avec une faible probabilité, être piégée par une molécule fluorescente du soluté. Le rayonnement de fluorescence des molécules du soluté est détecté en coïncidence par des photomultiplicateurs selon une configuration permettant de s’affranchir de leur bruit de fond [Bro07]. Cette technique est relativement facile à mettre en œuvre et assure un angle solide de détection de 4π sr. Cependant, le rendement lumineux reste faible car il faut environ 1 keV d’énergie

électron pour produire quelques photoélectrons dans les photomultiplicateurs. De plus, ce rendement est hautement non linéaire et la résolution en énergie peut difficilement être meilleure que 20 keV.

À partir des années 1960, les matériaux semi-conducteurs ont commencé à être couramment utilisés dans de nombreux domaines, en particulier le silicium et le germanium en physique nucléaire. L'énergie nécessaire pour créer une paire électron-trou étant de 1 eV dans le silicium et de 0.7 eV dans le germanium, une particule ionisante va créer typiquement dix fois plus de porteurs de charges pour une même énergie initiale que dans un gaz. Pour une épaisseur de 1 mm, le temps de collecte des porteurs de charge est d'une dizaine de ns. Une réponse rapide, une résolution en énergie bien plus fine, un meilleur rapport signal-sur-bruit, une facilité de mise en œuvre, toutes ces qualités en ont fait une véritable alternative aux spectromètres magnétiques pour la mesure de spectres bêta. Grâce à leur compacité, il est possible d'atteindre un angle solide de détection de presque 4π sr en intercalant la source entre deux détecteurs. Grâce à leur réponse rapide, on peut envisager des activités de source de plusieurs dizaines de kBq sans craindre de temps mort excessif, et donc des temps de comptage raisonnables de quelques jours. Le silicium est préférable au germanium car il peut être opérationnel à température ambiante, et car il présente une épaisseur inerte (zone morte) plus faible avant la zone de déplétion, et un numéro atomique plus faible limitant la rétrodiffusion des particules β sur la surface d'entrée.

La plupart des mesures de spectres bêta avec des détecteurs silicium ont été publiées dans les années 1965-1975. Les dispositifs expérimentaux les plus aboutis couplent deux détecteurs silicium positionnés face à face, offrant ainsi une géométrie de mesure de 4π sr [Spe66, She67, Tri67, And68, Gil72]. En sommant directement les signaux en sortie de détecteurs, toute l'énergie déposée était mesurée, ce qui permettait de s'affranchir du problème de la rétrodiffusion. Les détecteurs étaient généralement refroidis et placés dans une chambre à vide, et étaient parfois couplés avec des détecteurs Na(I) pour détecter en coïncidence des photons γ . Cette dernière configuration est idéale lorsque le radionucléide se désintègre *via* plusieurs branches bêta vers différents niveaux excités du noyau fils car les coïncidences adéquates permettent de mesurer séparément chaque spectre bêta. Notons cependant qu'en réalité, l'angle solide n'est pas exactement de 4π sr car il reste toujours un faible espace entre les détecteurs pour y insérer une source sans risquer de les contaminer. L'effet de déformation du spectre induit par les particules s'échappant sur les bords était considéré comme étant négligeable, et les expérimentateurs n'avaient pas de méthode à leur disposition pour pouvoir ni l'estimer, ni le corriger. Nous verrons plus loin que nos études démontrent que la déformation induite n'est pas du tout négligeable, et que les outils modernes à notre disposition nous permettent de la corriger.

Ajoutons enfin une nouvelle technique développée au LNHB ces dix dernières années, les calorimètres métalliques magnétiques, que nous verrons plus en détail en section suivante.

2.1.2 De l'importance de la source

À cause de l'extrême facilité avec laquelle les particules β diffusent dans la matière, ces dernières peuvent facilement être absorbées dans la source elle-même, ou plus simplement perdre de l'énergie. Ce phénomène d'auto-absorption dans la source a une grande influence sur la forme du spectre bêta mesuré. Dans les mesures effectuées avec des spectromètres magnétiques, on trouve souvent une correction de cet effet par la mesure de plusieurs

sources de différentes épaisseurs et une extrapolation vers une source infiniment mince, par exemple dans [Qui65].

La méthode employée pour préparer la source est particulièrement importante. Récemment, nos collègues du PTB M. Paulsen, K. Kossert et J. Beyer ont étudié l'influence de la cristallisation sur la forme du spectre bêta du ^{36}Cl dans le cadre du projet européen de métrologie MetroBeta [Kos19]. Une série de simulations simples a été effectuée à l'aide du code Monte Carlo EGSnrc [Kaw18] en considérant que les électrons étaient émis depuis le centre d'une sphère monocristalline de NaCl et en faisant varier son rayon r . Un cube d'or de 1 m^3 entourant la sphère a été utilisé en guise de détecteur virtuel, assurant un dépôt d'énergie total. La figure 2.1 montre le résultat pour plusieurs valeurs de r . Le spectre initial a été généré à partir du facteur de forme expérimental de [Rot08, Kos10], et correspond au spectre bleu ($r = 0$). Les spectres correspondant à trois autres valeurs du rayon sont également donnés, pour $r = 0.05$, 0.1 et 0.5 mm. Comme attendu, les électrons perdent une fraction de leur énergie dans la sphère de NaCl d'autant plus grande que r est grand. Cependant, il est clair que cet effet induit une forte déformation du spectre et peut expliquer à lui seul la différence entre les facteurs de forme expérimentaux présentés au chapitre précédent en figure 1.1 à droite.

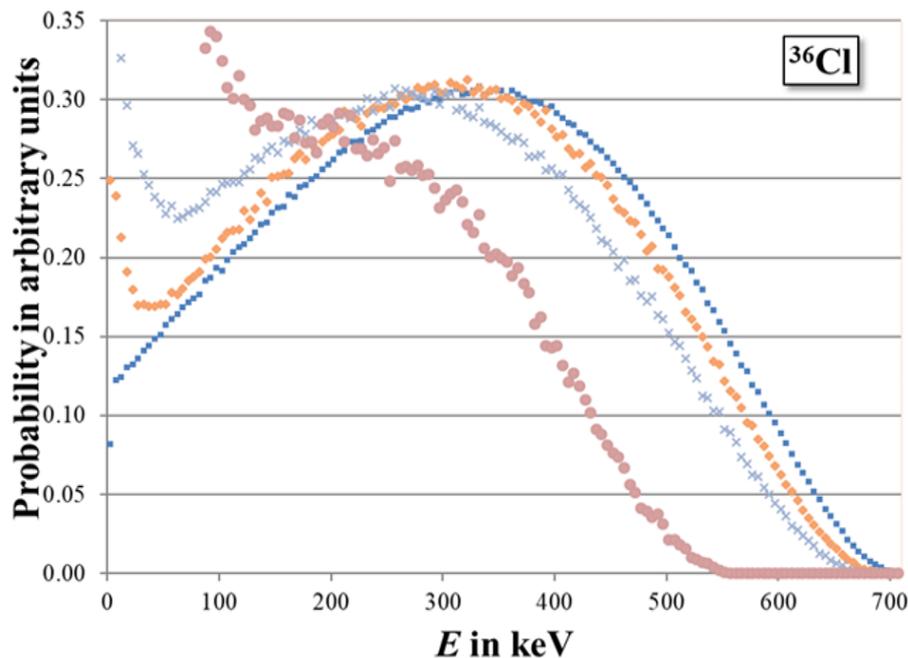


FIGURE 2.1 – Simulations du spectre bêta du ^{36}Cl pour une source sphérique monocristalline de rayon r . (Bleu) $r = 0$ (sans déformation). (Orange) $r = 0.05$ mm. (Bleu clair, croix) $r = 0.1$ mm. (Marron) $r = 0.5$ mm.

La conclusion est donc sans appel : une spectrométrie bêta de précision nécessite une très grande maîtrise de la préparation des sources radioactives, avec un contrôle de la cristallisation au minimum à l'échelle micrométrique. Nous verrons plus loin la technique spécifique de préparation de source que nous avons développée pour les mesures avec détecteurs silicium. Notons par ailleurs que la présence d'impuretés, c'est-à-dire d'autres

radionucléides non désirés dans la solution radioactive initiale, peut demander un travail de séparation particulièrement important par radiochimie. La solution idéale à toutes ces difficultés est bien connue : il faut implanter directement les radionucléides à mesurer dans le détecteur lui-même. Cette méthode présente malgré tout quelques inconvénients : l'accès à une installation onéreuse, que le LNHB ne possède pas ; la faible quantité de radionucléides produite et implantée, ce qui en fait une technique difficile à envisager pour les longues périodes de désintégration ; et enfin, la contamination du détecteur empêchant sa réutilisation, ce qui a un coût certain, pour des périodes de désintégration supérieures à quelques années.

2.2 Calorimètres métalliques magnétiques

L'utilisation de calorimètres métalliques magnétiques (MMC) pour la mesure de spectres bêta est récente. Ces dix dernières années, cette méthode a été développée au LNHB par mes collègues M. Loidl et M. Rodrigues en collaboration avec l'Université de Heidelberg, et a été appliquée à la spectroscopie des photons X et des particules β . Il existe d'autres types de microcalorimètres dont une description peut être trouvée dans [LeB12].

Ces détecteurs sont cryogéniques, avec une température de fonctionnement de quelques dizaines de mK. Leur excellente linéarité surpasse celle des autres détecteurs cryogéniques, une caractéristique essentielle pour la spectrométrie bêta de haute précision. Le radionucléide est incorporé dans un absorbeur en or et chaque particule bêta émise lors d'une désintégration y dépose toute son énergie. L'élévation de température induite est proportionnelle à l'énergie déposée et inversement proportionnelle à la capacité thermique du détecteur. Elle est transformée en variation d'aimantation par un thermomètre paramagnétique en or-erbium, en fort contact thermique avec l'absorbeur. Cette variation de flux magnétique est transformée en signal détectable par un magnétomètre spécifique, un dispositif supraconducteur à interférence quantique (SQUID), couplé magnétiquement au thermomètre *via* un champ externe. Après l'interaction, un faible lien thermique entre le détecteur et un bain thermostaté ramène le détecteur à sa température d'équilibre. La constante de temps de remise à l'équilibre doit être suffisamment grande pour ne pas évacuer la chaleur avant qu'elle ne soit lue par le thermomètre, et suffisamment petite pour discriminer chaque interaction du rayonnement dans l'absorbeur. Une représentation schématique est donnée à la figure 2.2.

La relation entre la variation de flux magnétique ϕ et l'énergie déposée δE est donnée par :

$$\delta\phi = \frac{\mu_0 G}{Br} \left(\frac{1}{1 + C_\alpha/C_s} \right) \delta E \quad (2.1)$$

avec μ_0 la perméabilité du vide, G un facteur de couplage entre la variation du moment magnétique et le flux mesuré par le magnétomètre, B le champ magnétique extérieur, r le rayon de la boucle sensible du magnétomètre, C_s et C_α les capacités thermiques de l'absorbeur et du thermomètre, respectivement. La capacité thermique d'un matériau dépend de sa masse et de la température. Pour limiter au maximum le bruit thermique et maximiser le rapport signal-sur-bruit, les MMC sont refroidis aux alentours de 15 mK à l'aide d'un cryostat à dilution ^3He - ^4He .

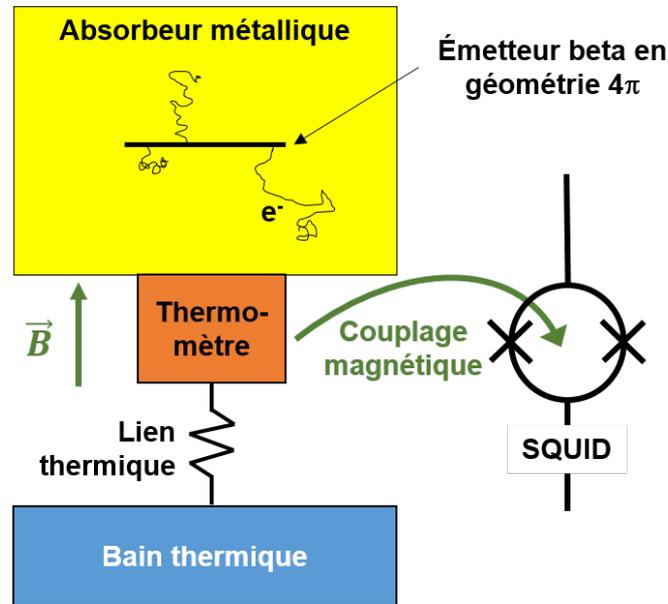


FIGURE 2.2 – Schéma de principe d'un calorimètre métallique magnétique, fonctionnant à une température de 15 mK. L'énergie déposée par la particule induit une élévation de température de l'absorbeur qui est convertie en variation de flux magnétique, puis en signal par un capteur de type SQUID.

Les SQUID sont des capteurs constitués de deux jonctions Josephson montées en parallèle dans une boucle supraconductrice et permettent de mesurer des champs magnétiques très faibles. Ils sont largement utilisés en métrologie dans les mesures électromagnétiques de précision et peuvent être optimisés pour les besoins spécifiques des MMC. La réponse d'un MMC, en particulier les propriétés magnétiques de l'or-erbium, peut être calculée avec confiance et toutes les contributions pertinentes au bruit peuvent être modélisées. Il est ainsi possible, jusqu'à un certain point, de développer et d'optimiser ces détecteurs avec des performances prévisibles [Fle05].

La source de rayonnement étant située à l'intérieur même de l'absorbeur, cette géométrie permet une détection totale dans un angle solide de 4π sr. Pour une transition bêta pure, le rendement de détection peut atteindre 100% et toute l'énergie des particules β peut être mesurée si l'absorbeur est dimensionné correctement. Le seuil de détection en énergie est très bas puisque la moindre interaction d'un rayonnement avec la matière provoque un dégagement de chaleur. La résolution intrinsèque théorique minimale est fixée par les fluctuations thermodynamiques, qui sont très faibles à très basse température.

La résolution en énergie est typiquement de 30 eV à 6 keV et le seuil de détection peut être inférieur à 100 eV. Atteindre des performances aussi exceptionnelles nécessite également un traitement du signal spécifique. Le signal impulsionnel généré par le SQUID est enregistré en continu pendant toute la durée de l'acquisition, en général deux ou trois semaines, soit environ 1 To de données. Les lignes de base sont corrigées des dérives en température, des filtrages linéaires sont appliqués et les impulsions sont sélectionnées selon des critères de coupure. Ce traitement n'est absolument pas trivial et je souhaite souligner la difficulté de son adaptation à la spectrométrie bêta. En effet, ces détecteurs ont été

développés à l'origine dans le but d'atteindre la meilleure résolution en énergie possible. Un moyen simple d'y parvenir consiste à ne conserver que les impulsions dont la forme est bien définie, c'est-à-dire celles pour lesquelles l'énergie peut être très précisément déterminée. Ce faisant, 90% des impulsions sont rejetées. Mais pour la spectrométrie bêta, cette méthode pose problème car cette sélection des événements n'est pas du tout uniforme en fonction de l'énergie déposée. Elle ne permet donc pas de reconstruire correctement le spectre mesuré. Un travail important a été effectué lors de la mesure du ^{63}Ni pour s'assurer que ni le traitement du signal, ni la sélection des événements n'introduisaient de déformation dans le spectre [LeB12]. Le taux de rejet d'impulsions reste tout de même de 30%.

Grâce à cette technique, le LNHB a effectué les mesures les plus précises au monde des spectres bêta du ^{63}Ni et du ^{241}Pu , avec une résolution en énergie de 30 eV et un seuil de détection de 300 eV [Loi14]. Ces spectres sont présentés en figure 2.3 et comparés aux calculs théoriques que j'ai développés, qui seront détaillés dans le chapitre suivant. Plus récemment, les probabilités de capture du ^{55}Fe ont également été mesurées très précisément [Loi18]. Les spectres bêta du ^{14}C , du ^{99}Tc et du ^{151}Sm ont été mesurés dans le cadre du projet européen de métrologie MetroBeta et sont encore en cours d'analyse.

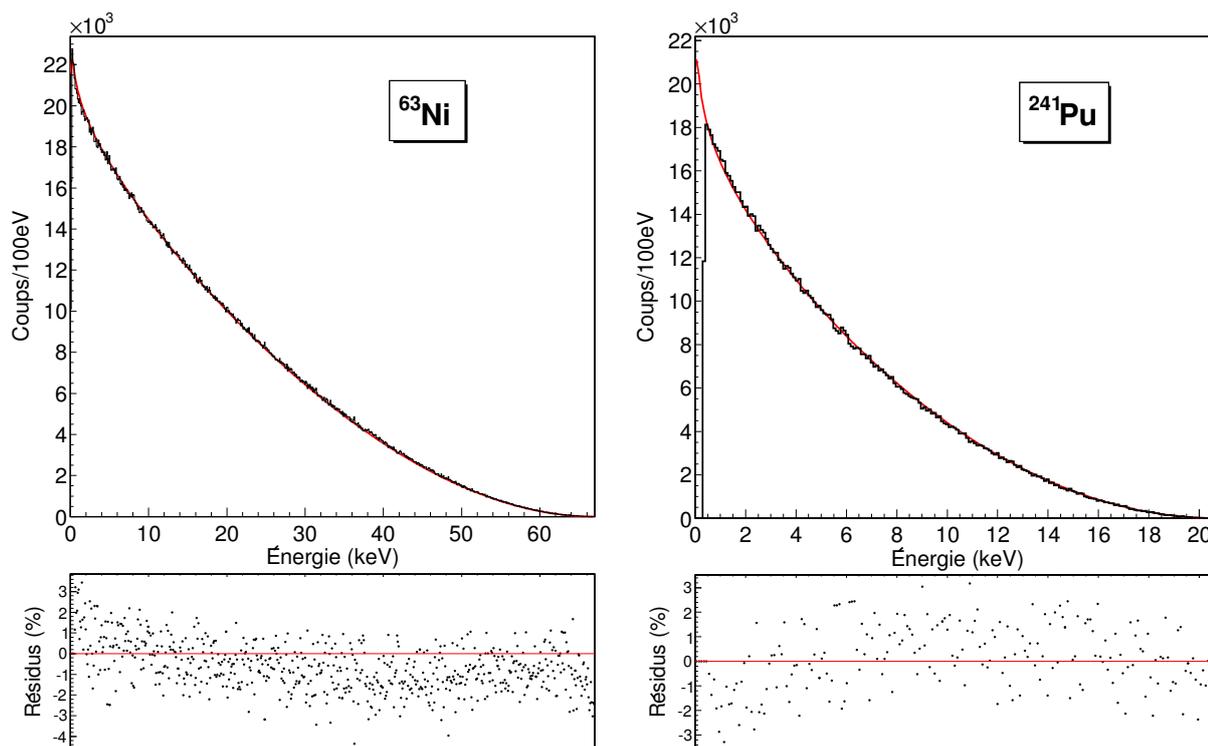


FIGURE 2.3 – Spectres bêta du ^{63}Ni à gauche et du ^{241}Pu à droite mesurés au LNHB par la technique de calorimétrie métallique magnétique. Ils sont comparés à des calculs précis qui seront détaillés dans le chapitre suivant, et les résidus correspondants sont présentés sous les spectres.

Les MMC sont une technique expérimentale exigeante mais prometteuse, et remplissent bien les critères nécessaires à la mesure de spectres β^- de qualité métrologique. Cette technique présente malgré tout quelques inconvénients. Atteindre des températures cryogéniques nécessite un équipement approprié, souvent coûteux et encombrant, et demandant

une certaine expertise. L'absorbeur doit être dimensionné de sorte à arrêter tous les électrons. Cependant, l'or est souvent choisi pour sa forte densité, ses propriétés thermiques et son absence de radioactivité naturelle. Les phénomènes radiatifs, tels que le bremsstrahlung et la fluorescence, vont alors produire des photons qui pourront s'échapper de l'absorbeur, conduisant à un dépôt d'énergie partiel. La taille de l'absorbeur et les phénomènes radiatifs limitent l'application des MMC à des énergies maximales $\lesssim 1$ MeV.

Par ailleurs, le temps de remise à l'équilibre étant de quelques millisecondes, l'activité de la source doit être faible, typiquement 10 Bq. Les temps d'acquisition sont donc nécessairement longs pour obtenir une statistique suffisante, ce qui ne permet pas de mesurer de radionucléides dont les périodes de désintégration sont inférieures à un mois. Cette faible activité doit être déposée sur une très faible surface, $\lesssim 1$ mm², ce qui nécessite de concentrer une grande quantité de radionucléides lorsque les périodes de désintégration sont très grandes. La qualité de préparation de la source et de l'absorbeur devient alors essentielle, et tient presque de l'art. Ainsi, une source de ²⁴⁹Bk a été mesurée au tout début de cette étude, mais la quantité de radionucléide était si faible par rapport à la quantité d'entraîneur que le spectre mesuré était fortement déformé et inutilisable. Un travail important a été fait dans le cas du ⁶³Ni pour l'électrodeposer directement sur l'absorbeur en or, assurant ainsi un état atomique neutre et métallique [LeB12]. Ce n'est toutefois pas possible avec n'importe quel radionucléide.

Comme l'illustre la figure 2.3, il est possible pour certaines transitions de mesurer le spectre bêta très précisément sur l'ensemble de la gamme en énergie, et les calculs théoriques peuvent reproduire ces spectres remarquablement bien. Une façon de définir l'incertitude globale pour un spectre est de s'intéresser au paramètre de qualité d'ajustement en quantifiant l'écart entre le spectre mesuré et le spectre théorique dans une certaine gamme en énergie. Si l'on considère un ensemble n de mesures $\{y_i\}$ et un modèle qui conduit à n prédictions $\{y_i^{\text{th}}\}$, la qualité d'ajustement de ce modèle par rapport aux mesures est donnée par :

$$R^2 = 1 - \frac{\text{var}(\hat{\epsilon}_i)}{\text{var}(y_i)} \quad (2.2)$$

C'est une définition générale valide pour $n \gg 1$, sans restriction sur le type de modèle. Cette quantité prend ces valeurs dans l'intervalle $0 \leq R^2 \leq 1$, où $R^2 = 1$ correspond à une prédiction parfaite. L'erreur de modélisation est $\hat{\epsilon}_i = y_i - y_i^{\text{th}}$. Les estimateurs non biaisés des variances sont alors définis par :

$$\text{var}(y_i) = \sum_{i=1}^n \frac{(y_i - \bar{y})^2}{n - 1} \quad \text{et} \quad \text{var}(\hat{\epsilon}_i) = \sum_{i=1}^n \frac{(\hat{\epsilon}_i)^2}{n - N_p - 1} \quad (2.3)$$

avec \bar{y} la moyenne simple des mesures, et N_p le nombre de paramètres du modèle. Pour les spectres bêta, E_{max} est un paramètre évident. Il faut également tenir compte du facteur constant de dilatation globale appliqué au spectre théorique pour le normaliser au spectre mesuré. Il faut donc déterminer R^2 avec $N_p = 2$. Ainsi, le paramètre $(1 - R^2)$ quantifie le désaccord global en les spectres mesurés et calculés. Notons qu'il n'est valable que dans la gamme en énergie de mesure, et qu'il n'a de signification que si les formes sont proches à cause de \bar{y} qui moyenne les coups sur la portion de spectre considérée. Entre 0.5 keV et l'énergie maximale du spectre, on trouve $(1 - R^2) = 0.03\%$ pour le ⁶³Ni, et $(1 - R^2) = 0.05\%$ pour le ²⁴¹Pu. Si l'on prend $(1 - R^2)$ comme définition de l'incertitude globale sur un

spectre bêta, nous pourrions donc en conclure que l'objectif d'une incertitude de 1% sur les spectres de ces deux radionucléides est atteint. Cependant, la situation n'est pas si claire car les résidus donnés en figure 2.3 présentent encore une dispersion importante. Des non linéarités apparaissent clairement et pourraient être dues à la précision des corrections atomiques ou à l'absence de prise en compte des effets nucléaires dans ces deux calculs. Mais même avec des résidus plats, les fluctuations statistiques sont trop importantes car le nombre de coups dans le spectre est insuffisant. Des temps d'acquisition de plusieurs mois seraient nécessaires dans la configuration actuelle du dispositif MMC, ce qui est difficilement envisageable. Une solution alternative est de considérer une autre technique expérimentale permettant d'obtenir une bien meilleure statistique, et de valider la forme du spectre mesuré sur celui acquis avec un MMC dans la gamme en énergie commune.

2.3 Détecteurs silicium

Si les MMC constituent une technique expérimentale très prometteuse et permettent de mesurer les spectres bêta de basse énergie avec une précision jusqu'ici inégalée, ils sont difficiles à mettre en œuvre et ne sont pas encore adaptés à des énergies au-delà de 1 MeV. Cela justifie le développement au LNHB d'une approche complémentaire, plus conventionnelle, utilisant des détecteurs silicium. Cette méthode de détection est bien établie en physique nucléaire et peut permettre de valider les mesures par MMC dans une gamme en énergie commune de 20 keV à 1 MeV.

Avec l'expérience acquise pendant ma thèse, une solution évidente s'est immédiatement imposée d'elle-même : une source entourée de deux détecteurs silicium en configuration proche pour un angle solide de presque 4π sr, et deux détecteurs germanium ultra-purs, un derrière chaque silicium, pour détecter en coïncidence les photons γ lors de transitions bêta vers des niveaux nucléaires excités. Pour des particules β de haute énergie, un montage télescope avec deux ou trois étages de détection est envisageable. Je n'avais pas anticipé la difficulté d'obtenir un rapport signal-sur-bruit suffisamment bon pour détecter des électrons de basse énergie, ce qui explique que peu de facteurs de forme mesurés sont donnés en-dessous de 50 keV. Mais il a surtout fallu faire face au caractère circonspect du métrologue et aux contraintes budgétaires en convaincant, étape après étape, de la pertinence de la démarche et en trouvant au fur et à mesure les fonds nécessaires.

2.3.1 Premiers pas

En 2010, Maugan Michel a effectué un stage de Master 2 au LNHB, et je l'ai encadré pendant ses six mois de présence [Mic10b]. Nous avons récupéré du matériel stocké dans le laboratoire depuis plusieurs années « au cas où », et nous l'avons utilisé pour réaliser un premier dispositif de mesure de spectres bêta.

La figure 2.4 montre une représentation en 3D du dispositif. Un détecteur silicium de $500\ \mu\text{m}$ d'épaisseur, incluant un porte-détecteur en aluminium, a été positionné sur un doigt froid en cuivre plongeant dans un Dewar rempli d'azote liquide. Un transistor à effet de champ (FET) était monté au plus près du détecteur en guise de préamplificateur de charge. La source était placée à l'extrémité d'une traversée de translation à vis micrométrique. Le détecteur était isolé de la source par une vanne pour le maintenir en froid et sous vide.

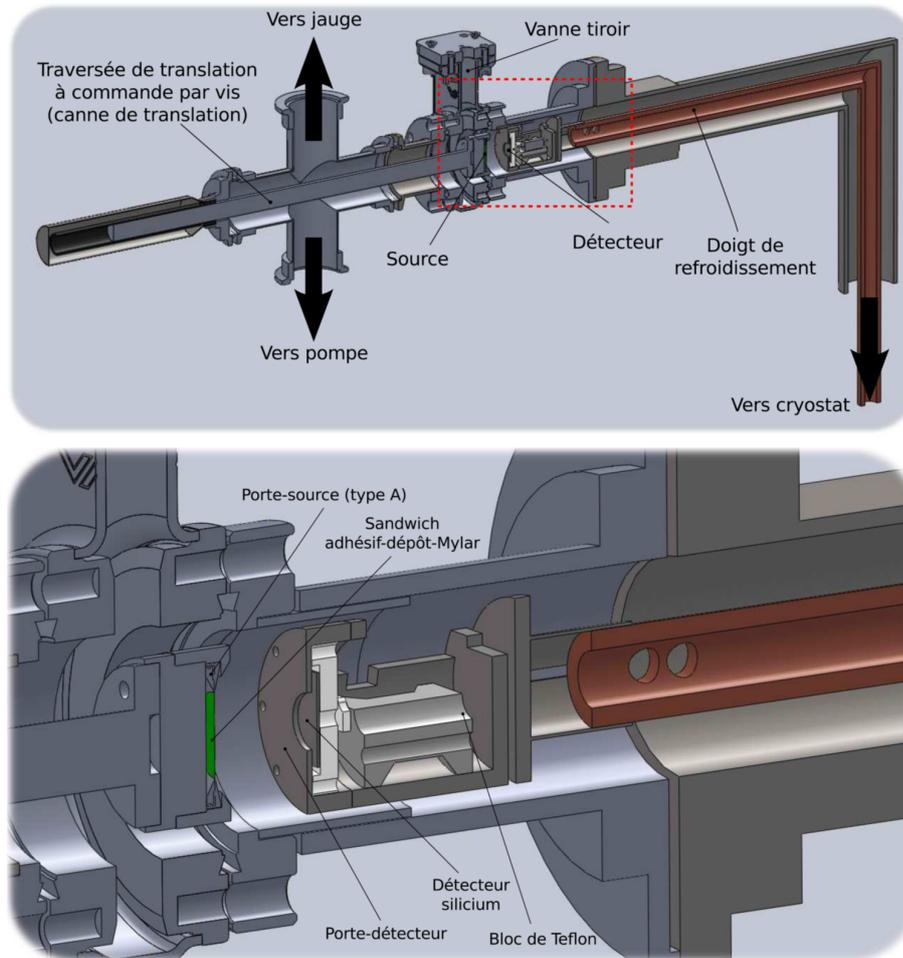


FIGURE 2.4 – Représentation 3D du montage dans lequel se trouvent la source et le détecteur. (*Haut*) Vue d'ensemble du dispositif. (*Bas*) Vue de la zone source–détecteur.

La source était insérée dans un compartiment spécifique dans lequel le vide était fait, puis positionnée à environ 20 mm du détecteur.

Nous avons fait face à plusieurs difficultés concernant la qualité du vide, l'électronique et le détecteur. Le matériel avait été stocké pendant de nombreuses années sans être utilisé, et le bâtiment avait été entièrement rénové depuis peu, engendrant beaucoup de poussière. Le nettoyage a été long et délicat, mais nous avons finalement pu atteindre un vide suffisamment bon de 5 mPa ($5 \cdot 10^{-5}$ mbar) à température ambiante, et de 0.3 mPa ($3 \cdot 10^{-6}$ mbar) à 77 K. Le FET ne fonctionnait plus et nous l'avons remplacé par un CoolFET A250CF de chez Amptek. Ce dispositif est un préamplificateur de charge bas bruit refroidi par un module Peletier développé pour les détecteurs de rayons X. Intégré dans un boîtier dédié, il a dû être déporté à l'extérieur du montage. Le signal issu du détecteur devait alors parcourir une distance importante avant d'être amplifié, ce qui a engendré un bruit important et une très grande sensibilité aux vibrations mécaniques générées par la pompe. Des moisissures s'étaient développées sur plus du tiers de la surface du détecteur et ont été nettoyées, et le contact électrique avec la face d'entrée, qui était détruit, a dû être refait.

Nous avons été en mesure d'acquérir deux spectres présentés en figure 2.5, celui du ^{129}I à gauche et celui du ^{36}Cl à droite. Les sources étaient celles disponibles dans le laboratoire,

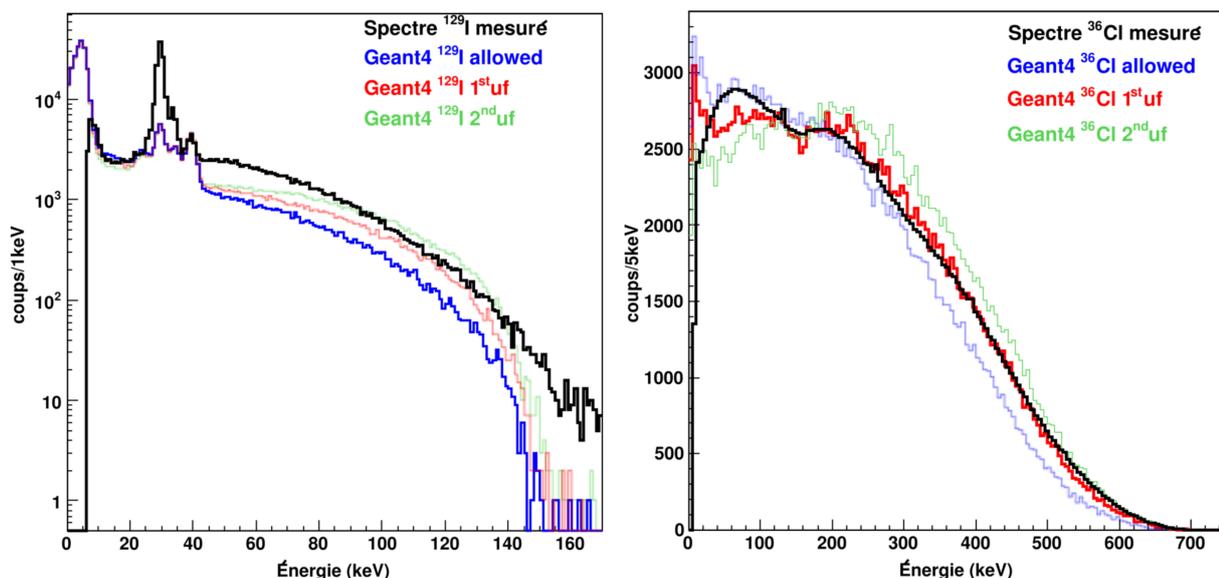


FIGURE 2.5 – Spectres bêta du ^{129}I à gauche et du ^{36}Cl à droite mesurés avec le dispositif présenté en figure 2.4. Ils sont comparés à des simulations Monte Carlo Geant4 avec différents spectres bêta théoriques en entrée : les transitions sont calculées comme des permises (allowed), premières interdites uniques (1^{st} uf) et deuxièmes interdites uniques (2^{nd} uf).

élaborées pour d'autres types de mesure. La source de ^{129}I avait été préparée pour de la spectrométrie γ et comportait un dépôt radioactif sur un film adhésif de $50\ \mu\text{m}$ d'épaisseur, recouvert d'un film de Mylar de $18\ \mu\text{m}$ pour empêcher toute perte de matière radioactive. La source de ^{36}Cl a été fabriquée au milieu des années 1990 en fixant une solution radioactive de NaCl sur une résine échangeuse d'ions et en retirant le sodium. Cette source très active, environ 50 kBq, est très bonne pour la spectrométrie bêta car les électrons émis ne traversent pas de matériau avant d'arriver au détecteur. En revanche, la composition exacte de la résine et son épaisseur ont été perdues, ce qui a compliqué l'analyse.

Le dispositif expérimental et les sources ont été simulés avec le code Monte Carlo Geant4 [Ago03], en implémentant le schéma de désintégration du ^{129}I à partir des données du DDEP pour tenir compte des émissions de photons vers 29.5 keV et 39.5 keV. La source de ^{36}Cl a été modélisée comme un support de polystyrène de $500\ \mu\text{m}$ d'épaisseur. Les particules β émises par le ^{36}Cl sont suffisamment énergétiques pour traverser le détecteur silicium en ne laissant qu'une partie de leur énergie cinétique, ce qui crée cette allure à deux bosses dans le spectre. Les étalonnages en énergie étaient approximatifs : nous avons calé indépendamment les deux pics du ^{129}I et les deux bosses du ^{36}Cl sur les résultats des simulations avec une régression linéaire.

L'accord entre les simulations et les mesures est loin d'être bon mais cela a été analysé comme étant dû à plusieurs facteurs mal connus. Si la géométrie du dispositif avait été étudiée aussi précisément que possible, nous avons constaté que les axes du détecteur et de la source une fois insérée n'étaient pas alignés, sans pouvoir quantifier ce décentrage. Les spectres théoriques utilisés en entrée des simulations ne pouvaient pas être proches de ceux de ces deux transitions deuxièmes interdites non-unique. Malgré tout, ce travail a clairement démontré que la mesure de spectres bêta avec des détecteurs silicium était pertinente pour notre étude et qu'un dispositif dédié pouvait être développé au LNHB.

2.3.2 Un dispositif dédié

Charlène Bisch a conduit son projet de doctorat de 2011 à 2014 au LNHB sous mon encadrement quotidien, et sous la direction du Pr A.-M. Nourreddine de l'Université de Strasbourg [Bis14]. L'objectif de son travail de thèse était de mettre au point un nouveau dispositif expérimental dédié à la mesure de précision de spectres bêta. Nous avons souhaité conserver les points forts du dispositif précédent et améliorer ses points faibles. Charlène a entièrement pris en charge la conception du dispositif et nous l'avons fait réaliser, après quelques ajustements techniques, par l'atelier de mécanique de l'IPHC¹.

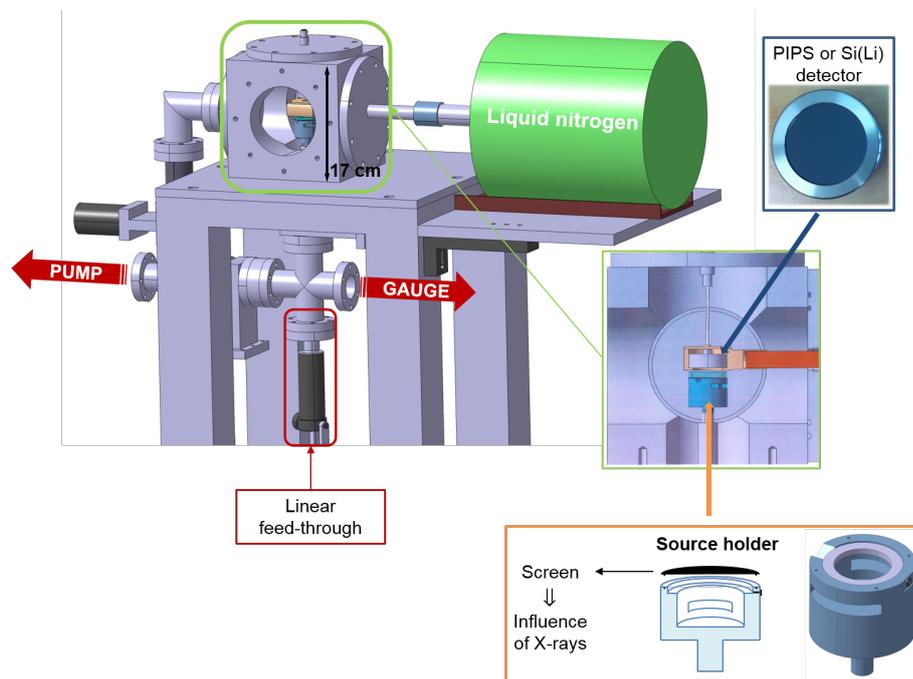


FIGURE 2.6 – Schéma du dispositif expérimental développé par C. Bisch avec un détecteur silicium positionné précisément dans une chambre à vide dédiée, et la possibilité d'insérer une source à l'aide d'une traversée de translation sur laquelle est fixé un porte-source.

La figure 2.6 présente le dispositif final, élaboré autour d'un détecteur silicium PIPS de $500\ \mu\text{m}$ d'épaisseur fabriqué par Canberra². Le dispositif a été conçu pour être modulaire afin de pouvoir changer aisément le détecteur PIPS par un détecteur Si(Li) de 5 mm d'épaisseur. Le détecteur était positionné au centre d'une chambre à vide fabriquée à partir d'un cube d'aluminium plein de 170 mm de côté percé à l'aide d'un foret de 100 mm de diamètre. Six brides venaient fermer la chambre et étaient dédiées *i)* au passage de l'électronique, *ii)* au passage du doigt froid relié à un Dewar d'azote liquide, *iii)* à la traversée de translation à vis micrométrique pour insérer la source, *iv)* à une jauge à vide pour connaître la qualité du vide dans le cube à tout instant, et *v)* au maintien du vide dans le cube lors des changements de sources. Un système de vannes permettait d'isoler chaque section.

1. Institut Pluridisciplinaire Hubert Curien, une unité mixte de recherche du CNRS et de l'Université de Strasbourg.

2. Aujourd'hui devenu Mirion Technologies.

Les dimensions et le choix des matériaux ont résulté d'une étude préliminaire par simulations Monte Carlo avec Geant4 afin de minimiser les diffusions et d'optimiser le temps de pompage et l'encombrement. Le porte-source était en PEEK (*polyether ether ketone*), un polymère organique usinable qui ne dégaze que très peu. Des encoches assuraient un bon équilibre des pressions lors de la mise sous vide, et le maximum de volume possible a été évidé sous la source afin de limiter au mieux la rétrodiffusion vers le détecteur des particules β émises vers le bas. Il était également possible de positionner des écrans en PEEK et en cuivre de 1 mm d'épaisseur devant la source afin d'arrêter les électrons et de ne mesurer que les photons traversant. La distance minimale entre la source et le détecteur était de 5 mm, lorsque le porte-source était en contact avec le porte-détecteur.

Maintenu sous un vide secondaire, le détecteur était refroidi par l'intermédiaire d'un porte-détecteur en cuivre fixé sur un doigt froid, lui aussi en cuivre, en contact avec l'azote liquide dans le Dewar. Le doigt en cuivre traversait la bride et un tuyau externe jusqu'au Dewar. Son maintien était assuré par un joint en colle époxy bi-composant Araldite 2011, adaptée aux collages des métaux et qui présente une bonne tenue aux sollicitations dynamiques. Cette solution, proposée par les mécaniciens de l'atelier de l'IPHC, s'est avérée pertinente jusqu'à un certain point seulement. Après plusieurs cycles de refroidissement et de réchauffage, nous avons observé des fuites thermiques importantes au niveau du tuyau externe et des fuites d'air importantes à travers le joint de colle, en provenance du tuyau, nous empêchant d'atteindre un simple vide primaire. Une dérivation du pompage a alors été installée afin de pomper cette partie en même temps que le cube, nous permettant d'atteindre un vide de 0.5 mPa ($5 \cdot 10^{-6}$ mbar). Nous n'avions cependant aucune idée de la température réelle au niveau du détecteur.

La mise sous haute tension nécessaire pour dépléter le cristal de silicium et la récupération du signal se faisaient par l'intermédiaire de deux fils (masse et signal) reliant le détecteur à une traversée Microdot-BNC soudée sur la bride. À l'extérieur sur la bride, un module CoolFET A250CF de chez Amptek servait de préamplificateur de charge, puis le signal était amplifié et encodé avec des modules NIM standards.

En lien avec le pôle Radiochimie du LNHB, Charlène a effectué un travail important afin d'adapter une technique de préparation de source existante aux exigences de la spectrométrie bêta. Le support de source est une membrane en Vyns (copolymère d'acétate de chlorure de polyvinyle, de faible Z moyen), à l'origine en poudre puis dilué dans un solvant organique et solidifié par enduction centrifuge (*spin coating*). Les films ont une épaisseur de 500 nm, directement déterminée par la concentration de la poudre dans la solution. Lors du séchage de la solution radioactive, la tension de surface de la goutte a tendance à concentrer en périphérie, dans une géométrie annulaire, la cristallisation des sels d'entraîneur, et donc des radionucléides. Afin d'obtenir les sources les plus fines et les plus homogènes possibles, une électro-pulvérisation de micro-sphères de polystyrène-latex mono-dispersées, d'un diamètre aérodynamique de 0.15 μm , était réalisée, améliorant la mouillabilité du support et fournissant des germes de cristallisation pour le dépôt sec. La solution radioactive était ensuite déposée sur une surface circulaire de 10 mm de diamètre afin d'obtenir une activité de l'ordre du kBq. La dernière étape du processus, le séchage, était fait par lyophilisation, c'est-à-dire en congelant la source rapidement et en sublimant le dépôt sous vide. Cette technique nous a permis d'obtenir des sources de très grande qualité, idéales pour la spectrométrie bêta.

Par manque de temps, les mesures n'ont été effectuées qu'avec le détecteur PIPS. L'éta-

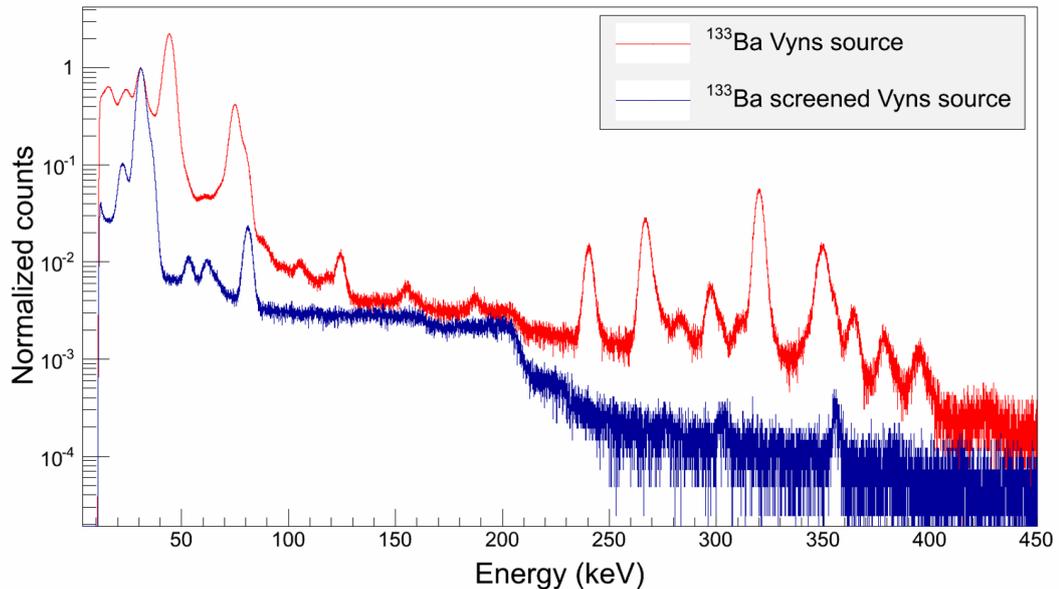


FIGURE 2.7 – Mesure d’une source de ^{133}Ba avec un écran qui arrête les électrons mais pas les photons (bleu), et sans écran avec une détection des électrons et des photons émis.

lonnage en énergie a pu être réalisé précisément grâce à des sources de ^{109}Cd et de ^{133}Ba . La figure 2.7 présente la mesure de la source de ^{133}Ba avec et sans écran, ce qui a permis de bien distinguer les pics photons des pics électrons. La courbe d’étalonnage a été trouvée parfaitement linéaire dans la gamme de mesure, de 20 keV à 320 keV. En analysant la largeur des pics mesurés, une résolution en énergie constante de 4.4 keV (largeur à mi-hauteur de la distribution gaussienne) a pu être déterminée, ce qui signifie que la source de bruit dominante provient de l’électronique.

Une simulation Geant4 complète du dispositif a été implémentée en incluant le plus précisément possible toutes les informations de l’ensemble des éléments : positions, matériaux et épaisseurs. En l’absence d’information précise du constructeur, nous avons fait radiographier le détecteur PIPS pour déterminer sa géométrie interne. La figure 2.8 présente différents éléments de cette géométrie simulée, dont la précision a été essentielle à la qualité de l’analyse des mesures.

Les spectres bêta du ^{99}Tc , du ^{151}Sm et du ^{14}C ont été mesurés et les résultats sont présentés ci-dessous. Le ^{99}Tc se désintègre par une transition deuxième interdite non-unique avec une énergie maximale de 297.5 keV, et il existe notamment un facteur de forme expérimental mesuré avec deux détecteurs Si(Li) dans une configuration géométrique compacte [Rei74]. Le ^{151}Sm présente deux transitions premières interdites non-unique, l’une vers le premier état excité du ^{151}Eu avec une intensité $I_\beta = 0.91\%$ et $E_{\max} = 55.1$ keV, et l’autre vers l’état fondamental avec une intensité $I_\beta = 99.09\%$ et $E_{\max} = 76.6$ keV. À notre connaissance, il n’existe pas dans la littérature de facteur de forme expérimental pour ce radionucléide. Le ^{14}C se désintègre par une transition permise avec une énergie maximale de 156.5 keV, mais sa période anormalement longue pour ce type de transition, 5 700 ans, signe la présence d’un effet nucléaire important. Il existe dans la littérature quelques facteurs de forme expérimentaux montrant une déviation par rapport à la forme attendue pour une transition permise [Kuz00].

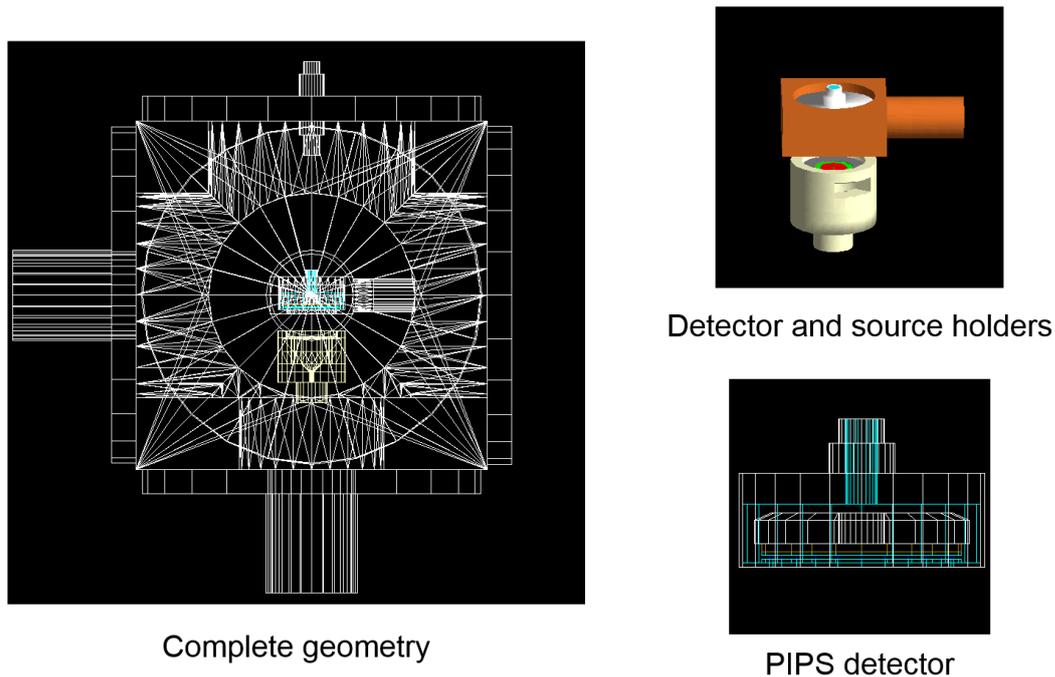


FIGURE 2.8 – Chambre de détection et ses composants tels que modélisés dans Geant4, avec une vue plus détaillée à droite sur le détecteur, le porte-détecteur et le porte-source.

Le spectre du ^{99}Tc est présenté en figure 2.9 à gauche. Il est comparé à une simulation Geant4 avec, en entrée, un spectre déterminé à partir du facteur de forme expérimental de [Rei74]. Si la divergence sous 40 keV est manifeste, les deux spectres sont en bon accord dans la gamme en énergie commune de mesure, entre 55 keV et 250 keV, avec $(1 - R^2) = 0.7\%$. Le spectre du ^{151}Sm , quant à lui, est présenté en figure 2.9 à droite. Les spectres théoriques des deux branches, utilisés en entrée de la simulation Geant4, ont été calculés comme des transitions permises car l'approximation ξ est valable dans ce cas, avec $2\xi = 15.6$ MeV très grand devant $E_{\text{max}} = 76.7$ keV. La correction des effets atomiques d'écrantage et d'échange telle que décrite dans le chapitre suivant a été incluse. Une simulation identique a également été effectuée sans tenir compte de ces effets atomiques. Dans la gamme de mesure entre 15 keV et l'énergie maximale, le désaccord expérience–théorie est plus faible si les effets atomiques sont inclus, $(1 - R^2) = 0.07\%$, que s'ils sont omis, $(1 - R^2) = 0.12\%$. La différence est ténue mais ce résultat est compatible avec ce que l'on peut attendre d'un point de vue théorique, et souligne la qualité de notre dispositif de mesure dans son ensemble.

Le spectre du ^{14}C est présenté en figure 2.10 à gauche. Ce spectre mesuré (bleu) est comparé à une simulation Geant4 (rouge) avec en entrée un spectre calculé selon les approximations usuelles (noir). Un bon accord a été obtenu sur l'ensemble de la gamme de mesure, entre 15 keV et l'énergie maximale, avec $(1 - R^2) = 0.15\%$. La déformation du spectre initialement émis par notre système de détection est très nette. Elle est due essentiellement à la rétrodiffusion des électrons sur la face d'entrée du détecteur silicium, qui ne laissent alors qu'une fraction de leur énergie cinétique et sont déviés vers l'extérieur.

Nous avons donc développé un algorithme de déconvolution spectrale afin de corriger cette déformation et de déterminer le spectre émis. Nous nous sommes inspirés de la méthode de N. Tsoulfanidis [Tso69] qui a proposé une déconvolution des spectres bêta me-

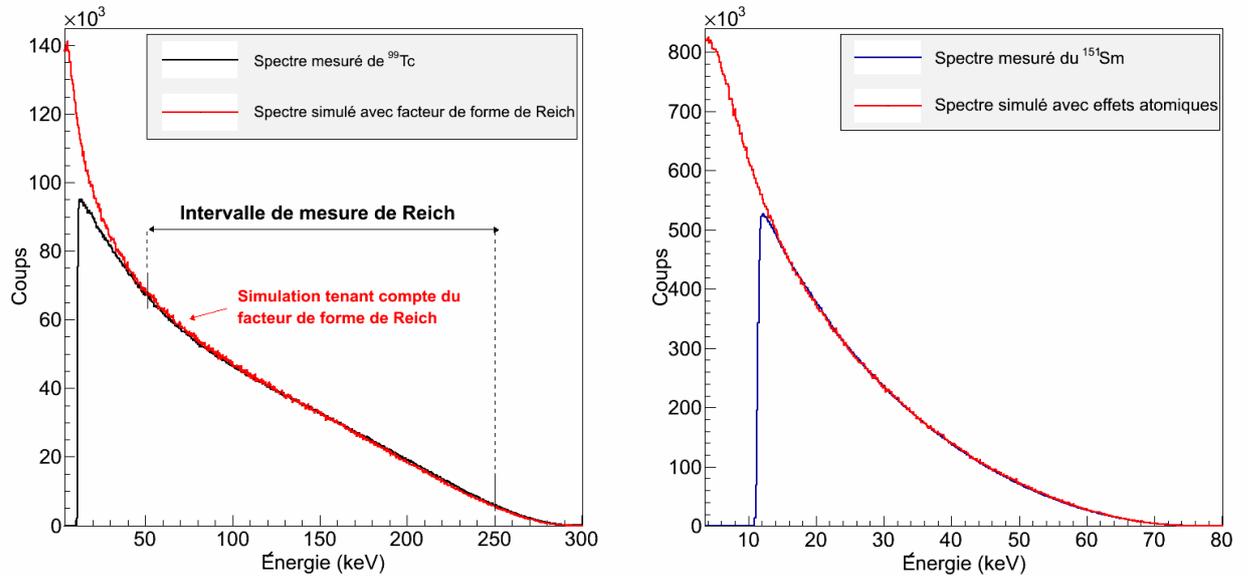


FIGURE 2.9 – Spectres bêta du ^{99}Tc à gauche et du ^{151}Sm à droite mesurés avec le dispositif présenté en figure 2.6. Ils sont comparés à des simulations Monte Carlo Geant4 avec en entrée le facteur de forme expérimental de M. Reich [Rei74] pour le ^{99}Tc , et avec un calcul théorique incluant les effets atomiques pour le ^{151}Sm .

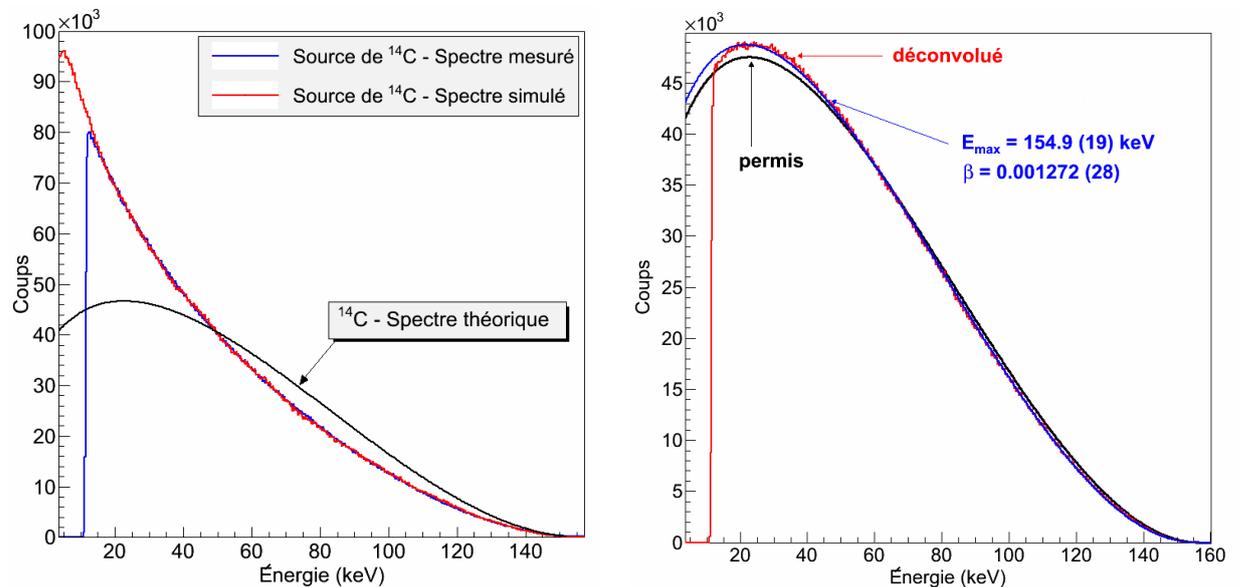


FIGURE 2.10 – Spectres bêta du ^{14}C . (Gauche) Spectre mesuré (bleu) avec le dispositif présenté en figure 2.6, spectre simulé avec Geant4 (rouge) et spectre théorique (noir). (Droite) Spectre mesuré déconvolué des effets de déformation du système de détection (rouge), comparé au spectre d'une transition permise (noir). Un spectre a été ajusté (bleu) sur le spectre mesuré à partir du facteur de forme de [Kuz00].

surés en utilisant une fonction réponse simple et analytique. Cette fonction réponse a été construite pour un scintillateur plastique à partir d'une fonction de Dirac pour le dépôt

d'énergie total à l'énergie impulsionnelle considérée, et d'une fonction constante pour tenir compte du fond composé des électrons ne déposant qu'une fraction de leur énergie. Cette distribution est convoluée avec une distribution gaussienne pour tenir compte de la résolution en énergie du système. En générant la réponse impulsionnelle de notre système de détection à partir de simulations Geant4, nous nous sommes aperçus que cette description était trop simple et nous l'avons complexifiée en considérant une déformation quadratique du fond. Nous avons ajusté les paramètres de ces distributions sur des simulations impulsionnelles à différentes énergies. Il a été difficile d'obtenir un ensemble de paramètres à peu près cohérents avec une évolution raisonnable selon l'énergie cinétique de l'électron. C'est un problème bien connu de recherche de minima locaux et globaux. L'algorithme de déconvolution, élaboré en considérant des distributions continues, a besoin de connaître la réponse impulsionnelle quelle que soit l'énergie, ce qui nécessite d'interpoler entre les valeurs des paramètres ajustés. C'est, par ailleurs, un cas d'école de problème inverse « mal posé » mathématiquement pour lequel la convergence du processus itératif n'est pas assurée. Nous avons donc validé cette méthode en déconvoluant le spectre simulé et en vérifiant que nous retrouvions bien le spectre initial utilisé en entrée de la simulation. Enfin, nous avons déconvolué le spectre mesuré et le résultat est présenté en figure 2.10 à droite.

De ce spectre déconvolué (rouge), nous avons ajusté un spectre (bleu) généré à partir du spectre d'une transition permise (noir) déformé par un facteur de forme. Le facteur de forme choisi était celui déterminé par V. Kuzminov dans [Kuz00] :

$$C(E) = 1 + \beta(E_{\max} - E) \quad (2.4)$$

Les deux paramètres ajustés étaient β et l'énergie maximale. Pour cette dernière, nous avons obtenu $E_{\max} = 154.9(19)$ keV, un résultat compatible avec le Q-value de cette transition. Pour le paramètre de déformation, nous avons obtenu $\beta = 1.272(28) \cdot 10^{-3}$ keV⁻¹, une valeur compatible avec celle de [Kuz00], $\beta = 1.24(4) \cdot 10^{-3}$ keV⁻¹.

Ce travail a permis d'établir au LNHB un système de mesure dédié à la spectrométrie bêta utilisant des détecteurs silicium. Un soin particulier a été pris pour analyser, minimiser et corriger chaque source de déformation lors de la mesure des spectres. Les spectres bêta mesurés étaient en excellent accord avec les simulations Monte Carlo et compatibles avec les facteurs de forme expérimentaux de la littérature.

Cependant, plusieurs améliorations possibles avaient été identifiées : fragilité des sources radioactives et des connecteurs de l'électronique, bruit parasite dans la haute tension et contribution trop importante de la rétrodiffusion. Le processus de déconvolution était trop complexe à gérer et difficilement applicable à d'autres radionucléides. De plus, nous n'avons pas déterminé l'incertitude associée à cette déconvolution, et il était évident qu'elle était d'autant plus grande que la correction était importante. Enfin, une chaîne d'acquisition numérique intégrant l'amplification et l'acquisition du signal avec une meilleure gestion du temps mort était également souhaitable.

L'étape suivante a donc consisté à faire évoluer le dispositif pour limiter au maximum la contribution de la rétrodiffusion, et à améliorer les différents points sensibles identifiés.

2.3.3 Une configuration compacte

Abhilasha Singh a démarré son projet de doctorat au LNHB en 2017 sous mon encadrement quotidien, et sous la direction du Pr A.-M. Nourredine de l'Université de Strasbourg,

et l'achèvera en 2020. L'objectif de ce travail est de pouvoir mesurer des spectres bêta avec une très grande précision et d'en extraire des facteurs de forme expérimentaux de qualité métrologique, en partant de l'expérience acquise avec le dispositif existant développé par C. Bisch.

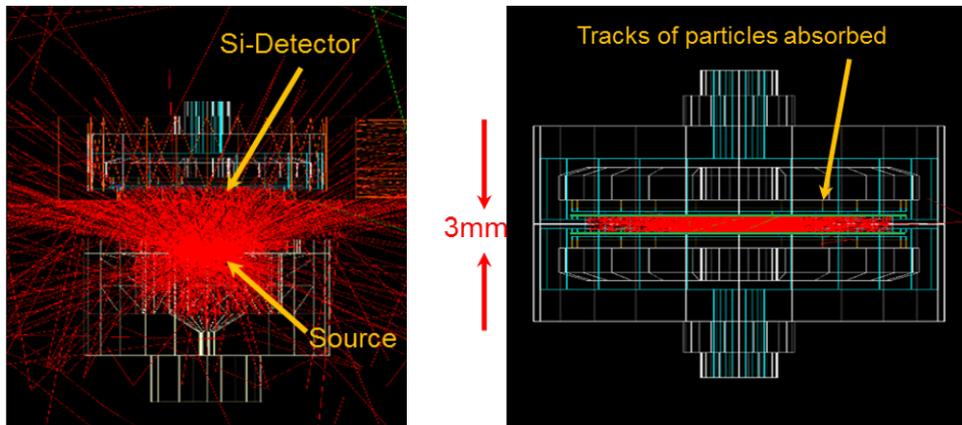


FIGURE 2.11 – Simulations avec Geant4 des trajectoires des électrons émis depuis la source, dans la configuration géométrique précédente $\lesssim 2\pi$ sr et la nouvelle configuration $\simeq 4\pi$ sr.

L'idée essentielle consiste à faire évoluer le dispositif précédent en adoptant une configuration géométrique compacte, avec deux détecteurs silicium entourant la source, pour obtenir un angle solide proche de 4π sr. La figure 2.11 montre une simulation Geant4 de trajectoires de particules β émises par la source dans la configuration précédente, à gauche, et dans une configuration compacte, à droite. Le gain est évident : les électrons diffusés semblent être quasiment tous détectés dans l'un ou l'autre des deux détecteurs silicium. La somme des énergies déposées événement par événement, grâce à une mesure en coïncidence, doit permettre d'obtenir un spectre bêta identique au spectre émis initial. Rappelons-nous que c'était l'hypothèse adoptée dans les anciennes mesures ayant adoptées le même type de configuration [Rei74]. Pour le vérifier, des simulations Monte Carlo du spectre du ^{14}C ont été effectuées et le résultat est présenté en figure 2.12. Là encore, le gain obtenu grâce à une configuration compacte est évident. Cependant, il est important de remarquer la dépendance de la forme du spectre simulé en fonction de la distance entre les deux détecteurs. Même une distance de 1 mm a une influence significative qui doit être corrigée, ce qui n'était pas fait dans les anciennes mesures car les simulations Monte Carlo de particules interagissant dans la matière n'étaient pas d'utilisation courante.

Depuis 2014, de nouveaux détecteurs PIPS d'une épaisseur de 1 mm sont commercialement disponibles. Abhilasha a élaboré le nouveau dispositif autour de deux de ces détecteurs, tout en conservant la modularité nécessaire à un changement par deux détecteurs Si(Li) de 5 mm d'épaisseur. Plusieurs possibilités ont été dessinées, imprimées en 3D et testées en conditions réelles jusqu'à obtenir la configuration géométrique optimale. La distance entre les deux faces d'entrée de nos détecteurs ne peut être a priori inférieure à 3 mm, du fait de l'encapsulation des détecteurs, des épaisseurs minimales pour les porte-détecteurs en cuivre, et de l'épaisseur de la source. L'électronique et les connectiques ont été entièrement repensées. Des préamplificateurs de charge bas bruit A1422H de chez CAEN ont été placés au plus près des détecteurs. La figure 2.13 montre ces changements. Des modules bas bruit ont été acquis pour l'alimentation en puissance des préamplificateurs et

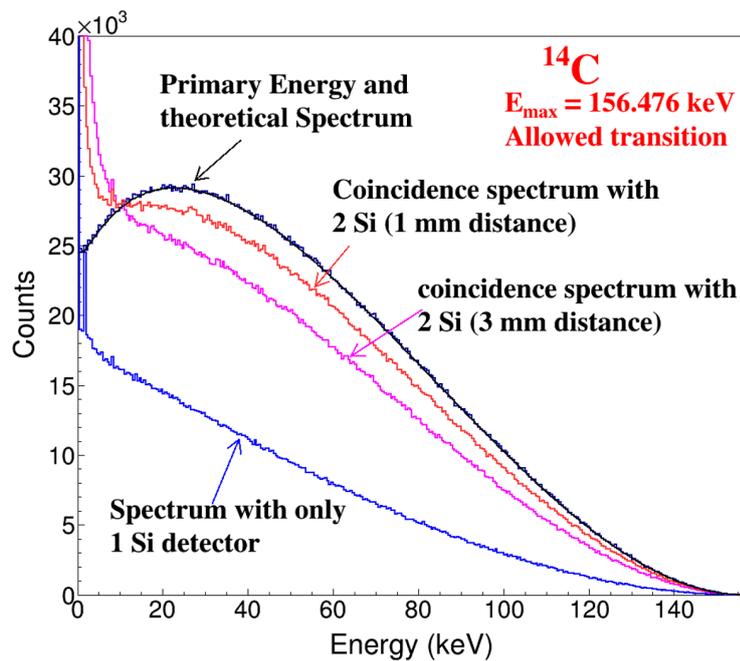


FIGURE 2.12 – Simulation du spectre du ^{14}C mesuré avec un seul détecteur silicium ou avec deux détecteurs silicium en coïncidence. Dans cette dernière configuration, l'influence de la distance entre les deux détecteurs a été étudiée, ici pour 1 mm et 3 mm.

pour la haute tension appliquée aux détecteurs. Une nouvelle pompe plus puissante a été mise en place et pratiquement tous les raccords de vide ont été changés par des joints en cuivre ou en aluminium. Les vibrations induites par la pompe ont été fortement atténuées par l'ajout de soufflets et d'un bac à sable. L'alimentation de la pompe a été découplée de la masse de notre système de détection à l'aide d'un transformateur car elle réinjectait trop de bruit. Une sonde de température a également été mise en place permettant de connaître en temps réel la température des détecteurs.

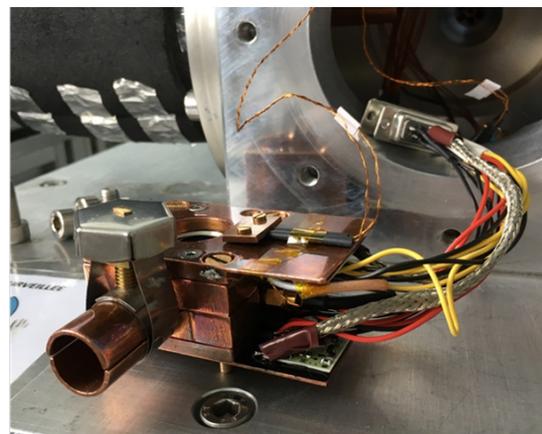
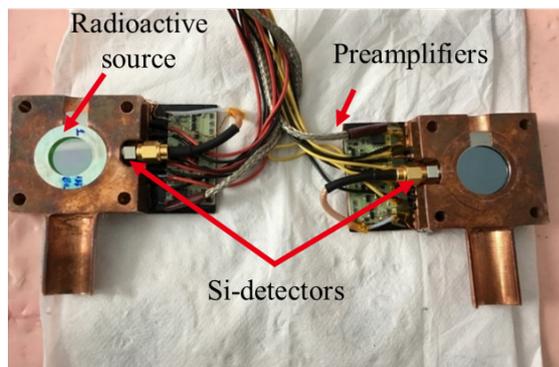


FIGURE 2.13 – Nouveau dispositif expérimental. Chaque détecteur est placé dans un porte-détecteur sur lequel est fixé un préamplificateur de charge. La source radioactive est placée entre les deux détecteurs. L'ensemble est refermé puis monté sur le doigt froid dans la chambre à vide.

Nous avons souhaité pouvoir acquérir les signaux issus des deux détecteurs indépendamment afin d'effectuer les coïncidences a posteriori lors d'une phase d'analyse des données. Pour cela, nous avons utilisé un module CAEN DT5724 qui permet de définir deux seuils de déclenchement indépendants, les deux voies étant enregistrées si au moins l'un des deux seuils est dépassé. Cependant, nous avons constaté une perte aléatoire d'événements, environ 1% en totalité, et plus importante à basse énergie qu'à haute énergie. Le constructeur n'ayant pas été en mesure de trouver une explication, nous avons alors pensé à sommer directement les signaux en sortie des préamplificateurs. Cependant, une différence de gain significative a été observée, due au fait que les détecteurs et les composants électroniques ne sont jamais parfaitement identiques. Nous avons alors mis en place un module passif permettant d'ajuster finement les gains, en prenant comme référence le pic à 975 keV du ^{207}Bi . Le signal sommé est ensuite acquis à l'aide d'un module LabZY³ nanoMCA, un module numérique bas bruit développé sur une carte FPGA⁴ incluant un analyseur multicanaux, un amplificateur, un générateur d'impulsion réglable et un logiciel d'acquisition permettant d'ajuster le traitement du signal. Si cette solution nous a permis de mesurer différentes sources, elle a l'inconvénient de sommer aussi le bruit de chaque signal, dégradant de fait la résolution en énergie et le seuil de détection. Nous souhaitons revenir rapidement à la solution initiale d'une acquisition en parallèle avec un module FASTER⁵ développé par le Laboratoire de Physique Corpusculaire de Caen, en cours d'acquisition.

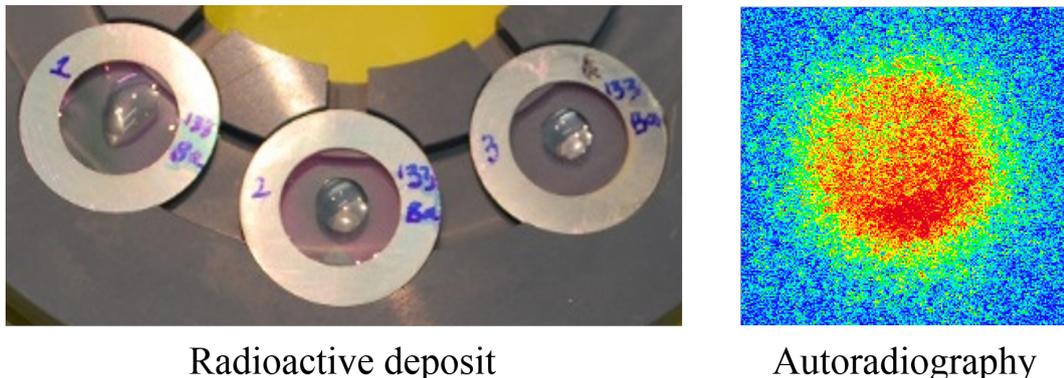


FIGURE 2.14 – (Gauche) La solution radioactive a été déposée sur un film de Mylar de $0.7 \mu\text{m}$ d'épaisseur, sur lequel des micro-sphères de polystyrène-latex ont été électropulvérisées. L'effet d'une meilleure mouillabilité est très net sur la forme de la goutte. Une fois séché, le dépôt sera recouvert d'un deuxième film de Mylar identique. (Droite) Autoradiographie d'une source finalisée.

Notons que cette configuration quasi 4π n'est possible que parce que nous avons renoncé à la possibilité de changer la source tout en maintenant le dispositif en froid et sous vide. La préparation des sources a aussi évolué. Les sources préparées sur film de Vyns étaient fragiles et ont occasionné une contamination des détecteurs. Depuis peu, des films de Mylar plus fins qu'auparavant sont commercialisés. Abhilasha a adapté la technique de préparation

3. <https://www.labzy.com/>

4. Field-Programmable Gate Array.

5. <http://faster.in2p3.fr/>

des sources à des films de Mylar de $0.7 \mu\text{m}$ d'épaisseur, sur lesquels l'électro-pulvérisation est plus difficile. Après une quantification de l'effet par simulation Monte Carlo, il a été décidé d'ajouter un film de Mylar identique par-dessus le dépôt radioactif pour prévenir toute contamination. Ces nouvelles sources sont plus solides et plus pérennes. La figure 2.14 illustre une étape de la préparation de source et le résultat de l'autoradiographie effectuée, qui permet de s'assurer de l'homogénéité des dépôts.

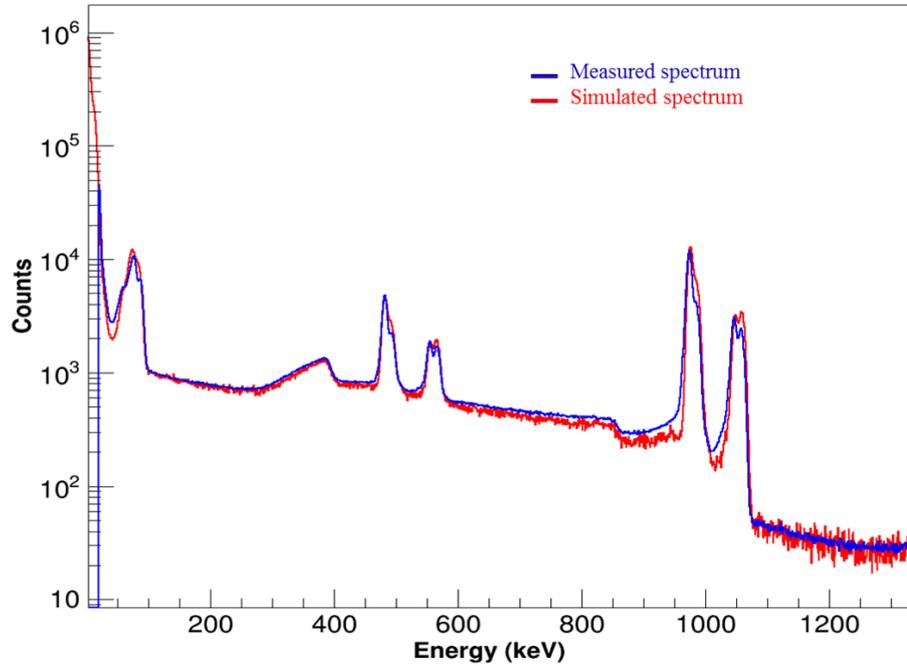


FIGURE 2.15 – Spectre du ^{207}Bi mesuré (bleu) avec le dispositif présenté en figure 2.13, comparé au spectre simulé (rouge) avec PENELOPE et le module PenNuc. Les raies provenant des transitions γ , photons et électrons de conversions, sont utilisées pour l'étalonnage en énergie.

L'ensemble de ce dispositif a été simulé à l'aide du code Monte Carlo PENELOPE [Sal15], bien connu en métrologie des rayonnements ionisants pour sa précision dans les simulations de transport des photons et des électrons, en particulier à basse énergie grâce à son modèle de diffusions multiples. Le code a été modifié afin de générer un fichier de sortie donnant l'énergie primaire émise par la source, l'énergie déposée dans chaque détecteur et la somme des deux. Un arbre ROOT [Bru97] est ensuite créé et les mêmes outils d'analyse développés pour l'analyse des spectres mesurés peuvent être utilisés. Récemment, le module PenNuc [Gar17] a été ajouté au code PENELOPE. Pour un radionucléide choisi par l'utilisateur, ce module va gérer automatiquement l'ensemble des particules primaires générées lors de la désintégration en suivant les différentes désexcitations nucléaires, mais aussi en tenant compte de la relaxation atomique. Les données utilisées sont celles du DDEP, assurant une bonne précision des simulations. L'étalonnage en énergie de notre dispositif a été effectué en mesurant des sources de ^{109}Cd , de ^{133}Ba et de ^{207}Bi . La figure 2.15 montre le spectre mesuré comparé au spectre simulé avec PENELOPE et PenNuc, et les deux sont en très bon accord.

Les spectres bêta du ^{14}C , du ^{36}Cl , du ^{99}Tc et du ^{204}Tl ont été mesurés. L'analyse préliminaire a montré que la distance réelle entre les deux détecteurs était plutôt de 2.5 mm, et non de 3 mm comme nous l'avions définie a priori selon les plans de fabrication. Les spectres mesurés et simulés sont en bon accord, mais il est encore nécessaire de déconvoluer la mesure de la déformation induite par le système de détection, comme le montre la figure 2.12. Pour ce faire, une nouvelle procédure de déconvolution a été développée, plus robuste. Dans le cadre du projet européen de métrologie MetroBeta, M. Paulsen du PTB a développé pour les mesures MMC un algorithme de déconvolution qui corrige la déformation due à l'échappement des photons de bremsstrahlung dans le cas du ^{36}Cl . Au lieu de considérer des distributions continues, il a décidé de travailler sur des spectres échantillonnés. L'avantage de cette méthode est que le problème inverse est cette fois-ci bien posé et peut être résolu exactement. En effet, le spectre mesuré est alors un vecteur, produit d'une matrice représentant la fonction réponse du système de détection et d'un vecteur représentant le spectre émis initial. La matrice peut être construite colonne par colonne par des simulations Monte Carlo impulsives. Elle est ensuite inversée et appliquée au spectre mesuré. Nous avons adapté cette idée aux mesures de spectres bêta et nous avons appliqué notre nouvel algorithme d'abord aux anciennes mesures en configuration $\lesssim 2\pi$ sr, puis à la configuration compacte actuelle lorsque les mesures ont été disponibles. L'inconvénient principal de cette méthode est qu'elle requiert une simulation mono-énergétique avec plusieurs millions d'événements pour chaque canal en énergie considéré, ce qui nécessite de très longs temps de calcul.

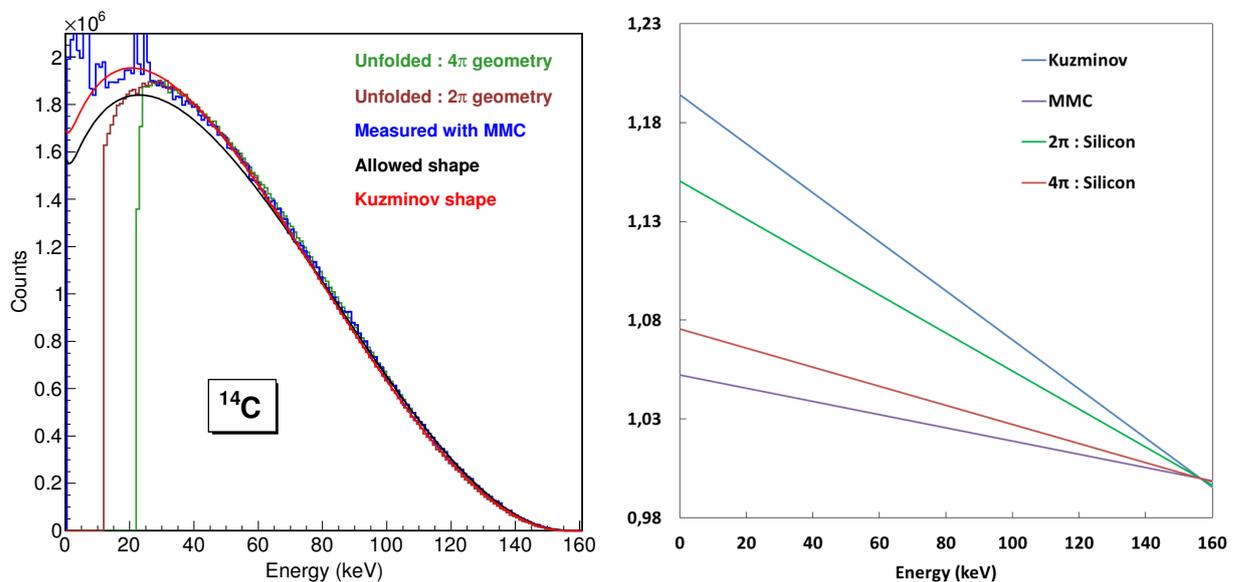


FIGURE 2.16 – (*Gauche*) Spectres bêta du ^{14}C mesurés avec un MMC et des détecteurs silicium dans les configurations des figures 2.6 et 2.13. Ces deux derniers spectres ont été corrigés par déconvolution. Les spectres calculés comme une transition permise (noir) et avec le facteur de forme expérimental de [Kuz00] (rouge) sont également donnés. (*Droite*) Les facteurs de forme ont été extraits des spectres mesurés entre 30 keV et 140 keV et en fixant l'énergie maximale. Ils ont été recalculés sur toute la gamme en énergie.

Deux spectres bêta ont été récemment analysés et nous présentons ici des résultats préliminaires. La figure 2.16 à gauche montre la comparaison de plusieurs mesures du spectre du ^{14}C : l'ancienne mesure dans une géométrie $\lesssim 2\pi$ sr, la nouvelle mesure dans une géométrie $\simeq 4\pi$ sr et une mesure préliminaire MMC. Notons que la mesure MMC a connu quelques difficultés permettant de douter de la fiabilité du spectre à basse énergie, en-dessous de 10 keV. Une nouvelle mesure est en cours. À l'œil, formidable instrument du métrologue, on constate que les spectres sont en bon accord dans leur gamme de mesure commune, de 25 keV à l'énergie maximale. Les facteurs de forme expérimentaux ont été ajustés selon la formulation de [Kuz00] donnée à l'équation (2.4), entre 30 keV et 140 keV et en fixant l'énergie maximale. Les résultats sont présentés en figure 2.16 à droite, et montrent que l'œil n'est peut-être pas l'instrument le plus pertinent dans ce cas. La disparité des résultats est importante, l'accord semblant être meilleur entre les spectres MMC et en configuration compacte. Notre conclusion préliminaire est qu'en mesurant un spectre beaucoup plus proche du spectre émis initial, le nouveau dispositif minimise l'impact du processus de déconvolution et l'incertitude associée.

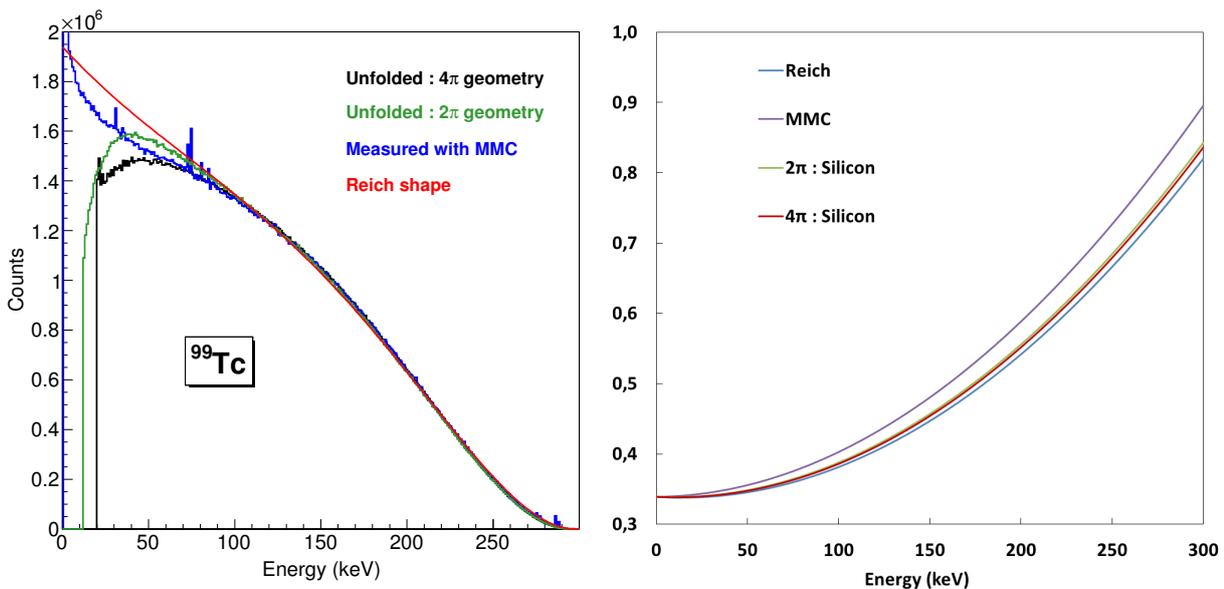


FIGURE 2.17 – (Gauche) Spectres bêta du ^{99}Tc mesurés avec un MMC et des détecteurs silicium dans les configurations des figures 2.6 et 2.13. Ces deux derniers spectres ont été corrigés par déconvolution. Le spectre calculé avec le facteur de forme expérimental de [Rei74] (rouge) est également donné. (Droite) Les facteurs de forme ont été extraits des spectres mesurés entre 60 keV et 260 keV et en fixant l'énergie maximale. Ils ont été recalculés sur toute la gamme en énergie.

Comme pour le ^{14}C , la figure 2.17 à gauche montre la comparaison de plusieurs mesures du spectre du ^{99}Tc , là encore avec des détecteurs silicium pour les configurations de mesure $\lesssim 2\pi$ sr et $\simeq 4\pi$ sr, et une mesure préliminaire MMC. Les mesures semblent toutes cohérentes au-dessus de 80 keV, même celle issue de [Rei74]. On observe un excellent accord entre les spectres MMC et en configuration compacte au-dessus de 70 keV, mais

un écart significatif en-dessous. Les facteurs de forme expérimentaux ont été ajustés selon la formulation de [Rei74], entre 60 keV et 260 keV et en fixant l'énergie maximale. Les résultats sont présentés en figure 2.17 à droite, et semblent assez sensibles à la gamme en énergie considérée, des facteurs de forme très proches issus des spectres MMC et en configuration compacte pouvant être obtenus entre 60 keV et 240 keV. Cependant, nous n'arrivons pas à expliquer pour le moment leur désaccord en-dessous de 70 keV. La seule piste envisageable serait la présence de cristaux plus gros que prévu dans notre source, à cause d'une cristallisation plus délicate qu'attendu à maîtriser.

Par leurs performances exceptionnelles, les MMC ont contredit l'opinion commune, à savoir que les effets atomiques sur la forme du spectre bêta étaient négligeables. Concernant les mesures avec détecteurs silicium, un effort important a été entrepris pour développer un système de détection robuste et des outils d'analyse appropriés. Les résultats de la thèse en cours, dans la continuité de la précédente, sont très prometteurs. L'analyse doit encore être finalisée, les détecteurs Si(Li) et leur électronique doivent être mis en place et caractérisés, et il faut certainement étudier encore plus finement l'influence de la préparation de source. Néanmoins, les résultats sont déjà suffisants pour une comparaison avec les prédictions théoriques, que nous allons maintenant aborder.

Chapitre 3

Approche théorique

*“But I don’t want to go among mad people,” Alice remarked.
“Oh, you can’t help that,” said the Cat : “we’re all mad here. I’m mad. You’re mad.”
“How do you know I’m mad ?” said Alice.
“You must be,” said the Cat, “or you wouldn’t have come here.”
— Lewis Carroll, Alice’s Adventures in Wonderland*

La désintégration d’un radionucléide par interaction faible, bêta (β^\pm) ou capture électronique (ε), décrite dans toute sa généralité est un défi théorique très complet. En effet, la probabilité de transition dépend à la fois de l’interaction faible, de l’interaction forte car la transition a lieu dans le noyau, et de l’interaction électromagnétique à cause du champ coulombien des protons. L’intensité des interactions forte et électromagnétique interdit tout traitement perturbatif. Le formalisme doit être complètement relativiste à cause de la faible masse de l’électron par rapport aux énergies en jeu. Si une précision de l’ordre du pourcent est recherchée, il faut aussi prendre en compte des corrections radiatives issues de l’électrodynamique quantique et des effets atomiques tels que l’écrantage et l’échange.

Mon étude théorique de la désintégration par interaction faible n’a pas été linéaire, et elle ne l’est toujours pas. La première raison est personnelle. Avec une formation initiale d’expérimentateur, il m’a été nécessaire d’acquérir des connaissances théoriques de plus en plus élaborées et des compétences en techniques mathématiques numériques. La seconde tient à l’environnement, avec la nécessité de produire rapidement et régulièrement des résultats concrets, valorisables scientifiquement et dans des projets financés, pour justifier du maintien de cette activité pour le moins atypique en métrologie des rayonnements ionisants. Cela pousse à s’intéresser précisément à des aspects très spécifiques qui, autrement, auraient été moins prioritaires.

Sans entrer dans des démonstrations théoriques longues, j’essaie ici de présenter mes travaux en donnant une idée de leur complexité et de la démarche. La désintégration bêta sera abordée à travers le code BetaShape, la modélisation précise des effets atomiques et la prise en compte de la structure des noyaux. Nous continuerons avec la modélisation de la capture électronique que j’ai développée. Enfin, quelques applications notables dans les données nucléaires et en métrologie seront évoquées.

3.1 Désintégrations bêta

Au début de cette étude, j’ai développé un premier code de calcul à partir d’un formalisme analytique très proche de celui du programme LogFT [Gov71]. Puis, j’ai débuté l’étude détaillée du formalisme de Behrens et Bühring [Beh82], très complet mais très complexe. Plusieurs années d’étude seront encore nécessaires pour en comprendre tous les raffinements. Néanmoins, j’ai pu développer le code BetaShape à partir de ce formalisme, incluant plusieurs améliorations importantes dans la modélisation par rapport à LogFT. Les exécutable de ce code ont été mis à disposition sur le site internet du LNHB en 2016.

Les résultats des mesures MMC au LNHB sont d’une précision inégalée, et la mise en évidence de l’échec des modèles de désintégration bêta usuels m’a conduit à étudier les effets atomiques d’écrantage et d’échange. Cela a nécessité la mise en place d’un calcul numérique précis des fonctions d’onde relativistes des électrons, tant pour les états du continuum que pour les états liés. Plus récemment, j’ai commencé à intégrer la structure des noyaux dans les calculs en débutant par un modèle nucléaire simple.

Je présente ci-dessous le code BetaShape et sa validation, puis l’étude précise des effets atomiques. Je finis par l’introduction de la composante nucléaire dans les calculs.

3.1.1 Le programme BetaShape

Depuis les années 1970, le programme LogFT [Gov71] est couramment utilisé dans les évaluations de données nucléaires pour déterminer les énergies moyennes et les valeurs des $\log ft$ des transitions bêta. Cependant, il ne fournit pas de spectre en énergie et les prédictions issues de son modèle purement analytique, dont nous avons vu les limites dans le premier chapitre en section 1.4.2, ne sont plus suffisamment précises pour les utilisateurs actuels.

Le programme BetaShape a été développé pour améliorer la précision des données nucléaires des émissions bêta [Mou17]. Le modèle développé spécifiquement repose sur des calculs analytiques à l’exception notable des fonctions d’onde relativistes de l’électron, déterminées numériquement en résolvant l’équation de Dirac. Les améliorations par rapport à LogFT sont importantes : calcul des transitions permises et interdites uniques de tout ordre ; correction d’écrantage de Bühring [Buh84] adaptée à des potentiels d’écrantage récents plus précis ; corrections radiatives, récemment améliorées à partir de celles utilisées dans l’étude des transitions super-permises [Tow08]. Les énergies moyennes, les $\log ft$ et les spectres en énergie des particules β (électron ou positon) et ν (neutrino ou antineutrino) pour les transitions simples et multiples sont fournis. Une base de données de facteurs de forme expérimentaux est incluse [Mou15], les incertitudes des paramètres d’entrée sont propagées et une interface avec les fichiers standards ENSDF a été développée.

Avant d’aborder le modèle physique utilisé, il est indispensable de définir quelques quantités qui apparaîtront de manière récurrente.

- Les masses au repos m_e , m_p , m_n et $m_N = (m_n + m_p)/2$ sont celles respectivement de l’électron, du proton, du neutron et du nucléon. Les particules ν sont supposées de masse nulle. Une masse réaliste ≤ 0.2 eV n’affecte que très faiblement la forme des spectres bêta dans la région proche de l’énergie maximale, là où la probabilité d’émission est la plus faible.

- Les unités relativistes $\hbar = m_e = c = 1$ sont utilisées dans l'ensemble du modèle, comme Behrens et Bühring dans leur formalisme [Beh82]. L'unité d'énergie est alors $m_e c^2$, l'unité de longueur $\lambda_C = \hbar/m_e c$ et l'unité de temps $\hbar/m_e c^2$.
- La constante de structure fine est notée α .
- Le numéro atomique du noyau fils est noté Z et le nombre de masse de la transition isobarique considérée est noté A .
- Le rayon de charge du noyau fils est donné, selon [Beh69], par $R = 0.42587 \cdot \alpha A^{1/3}$, ce qui correspond à la formule habituelle $R = 1.2 \cdot A^{1/3}$ fm. D'autres modèles ont été testés, comme celui présenté dans [Hub11], mais aucun changement significatif n'a été constaté.
- L'énergie cinétique d'une particule β est notée E . Son énergie totale, incluant sa masse au repos, est notée $W = 1 + E/m_e$. Son impulsion est notée $p = \sqrt{W^2 - 1}$.
- L'énergie disponible dans la transition est notée E_{\max} , et correspond à l'énergie maximale du spectre bêta. L'énergie maximale normalisée est notée W_0 .
- L'énergie d'une particule ν est $q = W_0 - W$, qui est aussi son impulsion sous l'hypothèse d'une masse nulle.

L'ensemble du formalisme est à symétrie sphérique. Notons enfin que toutes les intégrations numériques sont réalisées à l'aide d'une interpolation lagrangienne locale sur trois points.

3.1.1.1 Modèle physique

La désintégration bêta est un processus isobarique et il en existe deux types :

$$(\beta^-) : {}^A_Z X \longrightarrow {}^A_{Z+1} Y + e^- + \bar{\nu}_e$$

$$(\beta^+) : {}^A_Z X \longrightarrow {}^A_{Z-1} Y + e^+ + \nu_e$$

Les transitions bêta se produisent entre deux niveaux nucléaires bien définis. Dans la très grande majorité des cas, au moins l'un des deux états nucléaires est un état excité, voire métastable, les transitions entre deux états fondamentaux étant rares. Notons $J_i^{\pi_i}$ le spin et la parité du noyau père dans l'état initial, et $J_f^{\pi_f}$ le spin et la parité du noyau fils dans l'état final. Les transitions sont classées selon $\Delta J = |J_i - J_f|$ et $\pi_i \pi_f$ comme illustré dans le tableau 3.1.

Ce processus à trois corps implique que le spectre de l'énergie cinétique des particules est continu. L'énergie disponible pour la transition est déterminée par le Q-value et les énergies des états nucléaires initiaux et finaux, soit $E_{\max}^- = Q_\beta + E_i - E_f$ pour une transition β^- et $E_{\max}^+ = Q_\beta + E_i - E_f - 2m_e$ pour une transition β^+ . Les énergies totales normalisées correspondantes sont respectivement $W_0^- = (1 + E_{\max}^-/m_e)$ et $W_0^+ = (1 + E_{\max}^+/m_e) - 2$. L'énergie de recul du noyau est négligée.

La forme d'un spectre bêta dépend de la structure des noyaux en jeu et de certains effets atomiques. Elle est proportionnelle à : *i*) un facteur d'espace des phases pWq^2 qui correspond à la répartition de l'impulsion entre les leptons, *ii*) la fonction de Fermi $F(Z, W)$ qui corrige des effets coulombiens dus au champ électromagnétique statique du noyau, et *iii*) un facteur de forme $C(W)$ qui correspond à la dépendance énergétique provenant du couplage entre la structure nucléaire et la dynamique leptons. Dans le formalisme de

TABLE 3.1 – Classification des transitions par interaction faible (β , ε) selon les variations de spin ΔJ , parité $\pi_i\pi_f$ et isospin ΔT .

ΔJ	$\pi_i\pi_f$	Interdiction	Commentaire
Permise			
0	1	Super-permise	$0^+ \longrightarrow 0^+$, $\Delta T = 0$ (états miroirs)
0	1	Permise (Fermi)	$0^+ \longrightarrow 0^+$, $\Delta T \neq 0$
0	1	Permise	$0^+ \longrightarrow 0^+$ impossible
1	1	Permise (Gamow–Teller)	$0^+ \longleftrightarrow 1^+$
1	1	Permise	$0^+ \longleftrightarrow 1^+$ impossible
0, 1	-1	Première interdite non-unique	
> 1	$(-1)^{\Delta J}$	$\Delta J^{\text{ème}}$ interdite non-unique	
> 1	$(-1)^{\Delta J-1}$	$(\Delta J - 1)^{\text{ème}}$ interdite unique	

Behrens et Bühring [Beh82], la forme du spectre est donnée par :

$$\frac{dN}{dW} \propto pWq^2 F(Z, W)C(W)S(Z, W)R(Z, W) \quad (3.1)$$

où $S(Z, W)$ est la correction d'écrantage et $R(Z, W)$ correspond aux corrections radiatives. Elles seront détaillées par la suite.

Ce formalisme est présente une certaine symétrie qui le rend valable pour les deux types de transition bêta : le calcul d'une transition β^- sera fait avec $Z > 0$ et celui d'une transition β^+ avec $Z < 0$. En raison de la conservation de la charge leptonique et de l'énergie dans la transition, il existe également une symétrie entre les spectres des particules β et ν , ce dernier étant le complémentaire du premier. En effet, la probabilité qu'une particule β soit créée avec l'énergie W est la même que la probabilité qu'une particule ν soit créée avec l'énergie $q = W_0 - W$. Comme nous le verrons, une différence subtile existe au niveau des corrections radiatives, qui sont différentes et conduisent à une légère asymétrie.

3.1.1.2 Fonctions d'onde des électrons

Les fonctions d'onde des électrons sont nécessaires pour déterminer certains paramètres impliqués dans la forme du spectre. Les énergies des transitions bêta peuvent aller de moins de 1 keV à environ 30 MeV. Il est donc évident qu'un formalisme complètement relativiste est indispensable. Le comportement d'un électron relativiste plongé dans le champ coulombien d'un noyau est décrit par l'équation de Dirac¹ :

$$[-(\vec{\alpha} \cdot \vec{p}) - \beta - \mathbb{1}\{W - V(r)\}] \Psi(\vec{r}) = 0 \quad (3.2)$$

1. Rappelons ici les définitions de quelques quantités matricielles. $\mathbb{1}$ représente la matrice unité, 4×4 ou 2×2 selon le contexte, $\vec{\alpha}$ et β les matrices de Dirac usuelles, de dimension 4×4 . Pour les définir, nous devons d'abord revenir aux matrices de Pauli, de dimension 2×2 :

$$\sigma_1^P = \begin{pmatrix} 0 & 1 \\ 1 & 0 \end{pmatrix}, \quad \sigma_2^P = \begin{pmatrix} 0 & -i \\ i & 0 \end{pmatrix}, \quad \sigma_3^P = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{pmatrix}$$

Pour alléger les notations, les éléments matriciels nuls ne seront plus indiqués. Les matrices de Pauli permettent de définir les trois composantes matricielles de $\vec{\alpha}$ et $\vec{\sigma}$, les matrices β et γ_5 étant quant à elles

avec $V(r)$ le potentiel coulombien supposé à symétrie sphérique du noyau, et $\Psi(\vec{r})$ la fonction d'onde de l'électron.

La fonction d'onde de l'électron est définie dans [Beh82] en symétrie sphérique à partir des fonctions d'onde radiales $f_\kappa(r)$ (petite composante), $g_\kappa(r)$ (grande composante) et des fonctions spin-orbitales χ_κ^μ par :

$$\Psi(\vec{r}) = \Psi^\mu = \begin{pmatrix} S_\kappa f_\kappa(r) \chi_{-\kappa}^\mu \\ g_\kappa(r) \chi_\kappa^\mu \end{pmatrix} \quad (3.3)$$

avec $S_\kappa = \kappa/|\kappa|$ le signe de κ . Si $\vec{l} = \vec{r} \times \vec{p}$ est l'opérateur de moment angulaire orbital, l'opérateur L^2 ne commute pas avec l'hamiltonien du système. À la place, il faut utiliser l'opérateur $K = \beta \left\{ (\vec{\sigma} \cdot \vec{l}) + 1 \right\}$, de valeur propre non nulle $\kappa = \pm 1, \pm 2$, etc. Par commodité, on introduit en général la notation $k = |\kappa|$. Le paramètre μ correspond aux sous-états magnétiques. Les fonctions spin-orbitales sont définies par :

$$\chi_\kappa^\mu = i^l \sum_m C(l1/2j; \mu - m, m) Y_l^{\mu-m} \chi^m \quad (3.4)$$

où $C(l1/2j; \mu - m, m)$ est un coefficient de Clebsch–Gordan, Y_l^m est une harmonique sphérique et la somme est effectuée sur les sous-états de spins.

Comme le montre l'équation (3.3), il est suffisant de déterminer la partie radiale des fonctions d'onde. L'équation de Dirac devient alors un système d'équations différentielles couplées :

$$\begin{cases} \frac{df_\kappa}{dr} = \frac{(\kappa - 1)}{r} f_\kappa - [W - 1 - V(r)] g_\kappa \\ \frac{dg_\kappa}{dr} = [W + 1 - V(r)] f_\kappa - \frac{(\kappa + 1)}{r} g_\kappa \end{cases} \quad (3.5)$$

Une résolution analytique n'est possible que dans le cas d'un potentiel $V(r) = -\alpha Z/r$ généré par une charge ponctuelle [Ros61]. Il faut alors introduire une approximation analytique pour corriger de l'effet de la taille finie du noyau [Gov71]. J'ai préféré suivre [Beh82] en considérant le potentiel coulombien central, scalaire et statique généré par une sphère uniformément chargée de rayon R :

$$V(r) = \begin{cases} -\frac{\alpha Z}{2R} \left[3 - \left(\frac{r}{R} \right)^2 \right] & 0 \leq r \leq R \\ -\frac{\alpha Z}{r} & R \leq r \leq \infty \end{cases} \quad (3.6)$$

L'effet de la taille finie du noyau est donc intrinsèquement pris en compte dans notre modèle.

définies à partir de la matrice unité 2×2 :

$$\forall k \in \{1, 2, 3\}, \quad \alpha_k = \begin{pmatrix} \sigma_k^P & \sigma_k^P \\ \sigma_k^P & \sigma_k^P \end{pmatrix}, \quad \sigma_k = \begin{pmatrix} \sigma_k^P & \\ & \sigma_k^P \end{pmatrix}, \quad \text{et} \quad \beta = \begin{pmatrix} \mathbb{1} & \\ & -\mathbb{1} \end{pmatrix}, \quad \gamma_5 = \begin{pmatrix} & \mathbb{1} \\ \mathbb{1} & \end{pmatrix}$$

Pour résoudre numériquement le système (3.5), j'ai suivi la méthode de Bühring dans laquelle les fonctions d'onde radiales des électrons sont exprimées localement par un développement en séries entières en puissance de r . Des relations de récurrence sont alors établies à partir des équations de Dirac radiales [Buh65]. Des solutions spécifiques doivent être déterminées par rapport aux points singuliers $r = 0$ et $r = \infty$. Behrens et Bühring décrivent deux méthodes dans [Beh82] pour déterminer la solution globale. La première est appelée « *la méthode simple mais lente* ». Les fonctions d'onde radiales sont évaluées *i)* près des points singuliers avec leurs solutions spécifiques et *ii)* pas à pas entre ces deux points en utilisant la solution ordinaire afin de *iii)* reconnecter chaque solution avec la renormalisation et le déphasage appropriés. Les amplitudes coulombiennes α_κ sont déterminées, et définies, par la reconnexion des solutions à l'origine et des solutions asymptotiques. Cette procédure nécessite beaucoup de temps de calcul car il faut évaluer les fonctions d'onde dans tout l'espace, sans négliger aucune oscillation spatiale. Remarquons tout de même qu'elle est plus efficace qu'une résolution numérique standard, une méthode Runge-Kutta d'ordre quatre par exemple, car il est possible de contrôler la précision de la solution locale en considérant suffisamment de termes de la série entière. Le pas de la grille radiale peut alors être variable et plus grand tout en assurant un calcul précis des fonctions d'onde.

La deuxième méthode, utilisée dans BetaShape, est appelée « *la méthode rapide mais compliquée* ». En fait, il est possible d'éviter d'évaluer les fonctions d'onde dans tout l'espace dans le cas spécifique du potentiel (3.6). Cette méthode est trop compliquée pour être exposée en détail ici, l'idée principale étant de choisir les solutions relatives à l'origine comme base pour représenter la solution en dehors du noyau. En raison de la complexité de cette méthode, j'ai voulu valider les calculs. Les fonctions coulombiennes sans écrantage tabulées en Tableau II dans [Beh69] ont été recalculées et parfaitement reproduites jusqu'à la dernière décimale. Il m'est ainsi possible de calculer ces paramètres à n'importe quelle énergie, notamment la fonction de Fermi $F_0 L_0$ et les paramètres λ_k , évitant toute interpolation dans ces tables.

En effet, dans le formalisme de Behrens de Bühring, la fonction de Fermi est définie différemment de la fonction de Fermi analytique traditionnelle F_0 . Elle inclut l'effet de taille finie du noyau par le facteur L_0 et est déterminée directement à partir des amplitudes coulombiennes α_k :

$$F(Z, W) = F_0 L_0 = \frac{\alpha_{-1}^2 + \alpha_{+1}^2}{2p^2} \quad (3.7)$$

Les paramètres λ_k sont nécessaires au calcul des facteurs de forme théoriques $C(W)$ et sont définis dans la section suivante.

3.1.1.3 Facteurs de forme théoriques

Comme certains de leurs prédécesseurs [Kon66, Sch66], Behrens et Bühring ont suivi une méthode usuelle en physique nucléaire et en physique des particules en développant les courants hadroniques et leptoniques en multipôles. Le facteur de forme théorique $C(W)$ s'exprime alors comme un développement multipolaire à plusieurs paramètres, et que nous verrons plus loin. Il est possible de montrer qu'en première approximation, mais avec une excellente précision, la composante due au courant hadronique peut être factorisée dans le cas des transitions permises et interdites. La forme du spectre bêta ne dépend alors plus que des paramètres décrivant les leptons. En introduisant $L = 1$ pour $\Delta J = 0$ et $L = \Delta J$

sinon, le facteur de forme d'une transition permise ($L = 1$) ou $(L - 1)^{\text{ième}}$ interdite unique est donné par [Beh82] :

$$C(W) = (2L - 1)! \sum_{k=1}^L \lambda_k \frac{p^{2(k-1)} q^{2(L-k)}}{(2k - 1)! [2(L - k) + 1]!} \quad (3.8)$$

où les paramètres λ_k sont définis à partir des amplitudes coulombiennes α_κ par :

$$\lambda_k = \frac{(\alpha_{-k}^2 + \alpha_k^2)}{(\alpha_{-1}^2 + \alpha_1^2)} \quad (3.9)$$

Le calcul des λ_k n'étant pas trivial, on retrouve souvent dans la littérature l'approximation $\lambda_k = 1$, même dans les études récentes [Hub11]. Elle permet d'éviter de déterminer les fonctions d'onde relativistes des électrons.

Le calcul des spectres bêta des transitions interdites non-unique est beaucoup plus difficile. Nous verrons plus loin qu'elles sont très sensibles à la structure des états nucléaires initiaux et finaux. Pour certaines transitions premières interdites non-unique, il peut être justifié de les calculer comme des permises si la condition de l'approximation ξ est remplie [Sch66], c'est-à-dire si l'énergie coulombienne de la particule β émise à la surface du noyau est grande devant l'énergie maximale de la transition :

$$2\xi = \frac{\alpha Z}{R} \gg E_{\max} \quad (3.10)$$

Malgré l'absence de justification théorique et en l'absence d'une autre méthode simple, cette approximation est généralisée à toutes les transitions interdites non-unique. Une transition interdite non-unique sera alors calculée comme une transition interdite unique (ou permise) de même ΔJ . C'est l'approximation adoptée dans BetaShape.

3.1.1.4 Correction d'écrantage

Le potentiel coulombien de l'équation (3.6) ne tient pas compte des électrons du cortège électronique. Or, ceux-ci vont avoir une influence sur la particule β en l'accélération ou en la ralentissant selon le type de transition, et en modifiant la fonction d'onde asymptotique car la charge vue par l'électron à l'infini ne sera pas la même.

L'approche la plus répandue a été définie il y a 80 ans par M.E. Rose dans [Ros36], à l'origine pour certaines transitions permises uniquement, ce que tout le monde semble avoir ignoré par la suite. Pour évaluer l'effet dû à l'écrantage des électrons atomiques, on soustrait de l'énergie totale W de la particule β un potentiel de Thomas-Fermi V_0 dans toutes les quantités nécessaires au calcul de la forme du spectre, sauf dans l'énergie q de la particule ν car elle est neutre. On définit pour cela les quantités corrigées $W' = W - V_0$ et $p' = \sqrt{W'^2 - 1}$. Cette méthode est bien décrite dans [Gov71]. Le potentiel ne dépend pas de l'énergie de la particule β . On trouve dans la littérature pour les transitions β^- [Dil80] :

$$V_0(\beta^-) = (-9.45 \cdot 10^{-9}) \cdot |Z|^3 + (3.014 \cdot 10^{-6}) \cdot |Z|^2 + (1.881 \cdot 10^{-4}) \cdot |Z| - (5.116 \cdot 10^{-4}) \quad (3.11)$$

et pour les transitions β^+ [Gov71] :

$$V_0(\beta^+) = V_0(\beta^-) \cdot \exp(a/p + b/p^2) \quad (3.12)$$

avec les paramètres suivants :

$$\begin{aligned} a &= (1.11 \cdot 10^{-7}) \cdot |Z|^3 - (1.01 \cdot 10^{-5}) \cdot |Z|^2 - (2.38 \cdot 10^{-3}) \cdot |Z| + 0.102 \\ b &= (-2.42 \cdot 10^{-8}) \cdot |Z|^3 + (3.83 \cdot 10^{-6}) \cdot |Z|^2 + (3.60 \cdot 10^{-5}) \cdot |Z| - 0.0156 \end{aligned} \quad (3.13)$$

Cette méthode n'est clairement pas applicable quand $(W - V_0) < 1$, ce qui crée une discontinuité non physique dans le spectre bêta en $W = V_0$. Pour les transitions β^+ , le potentiel de Thomas-Fermi est ajouté à l'énergie totale et aucune discontinuité n'apparaît.

Une approche analytique plus précise a été utilisée dans BetaShape, développée par Bühring [Buh84], à partir de laquelle la correction d'écrantage de Rose peut être retrouvée. Les potentiels d'écrantage les plus réalistes à l'époque, variant dans l'espace, étaient dit de Hulthén, du nom de celui qui les avait paramétrés (voir [Beh69] et les références qui s'y trouvent). Dans une étude précédente, Bühring avait établi une version de l'équation de Dirac qui incluait correctement les potentiels de Hulthén mais simplifiait la partie dépendant du moment angulaire, permettant d'établir des solutions analytiques [Buh83]. Dans [Buh84], il développe en puissance de r ces solutions analytiques et le potentiel coulombien, incluant le potentiel d'écrantage de Hulthén, et retient le terme dominant. Cette procédure permet alors d'établir une correction d'écrantage à appliquer aux paramètres $F_0 L_0$ et λ_k .

J'ai adapté cette correction aux potentiels d'écrantage de F. Salvat [Sal87], plus récents et largement utilisés en physique atomique pour leur précision. Le potentiel coulombien près de l'origine peut être approximé par :

$$V(r) = -\frac{\alpha Z}{r} + \frac{\alpha Z}{2}\beta + O(r) \quad (3.14)$$

où β est déterminé à partir des paramètres A_i et α_i des potentiels d'écrantage de Salvat par :

$$\beta = \sum_{i=1}^3 A_i \alpha_i \quad (3.15)$$

La correction d'écrantage est alors effectuée à partir des facteurs correctifs $Q(Z, W)$ pour la fonction de Fermi et Q_k/Q pour les λ_k , avec $Q(Z, W) = Q_1$ et :

$$Q_k = \frac{(\alpha Z)^2 [N(-k)]^2 + (k + \gamma_k)^2 [N(+k)]^2}{(\alpha Z)^2 [N^{\text{Coul}}(-k)]^2 + (k + \gamma_k)^2 [N^{\text{Coul}}(+k)]^2} \quad (3.16)$$

où le facteur de normalisation de la fonction d'onde de l'électron à l'origine est :

$$\begin{aligned} [N(\kappa)]^2 &= \frac{(\kappa - \gamma_k)(\kappa \tilde{W} - \gamma_k) + \frac{1}{2}(\gamma_k/\kappa)(W + 1)(\tilde{\kappa} - \kappa)^2}{2R_{AB} \Gamma(2\gamma_k + 1)^2} \\ &\times \frac{|\Gamma(\gamma_k + i\tilde{y})|^2}{|\Gamma(k + 2iP)|^2} \left| \Gamma(\gamma_k + 2i\tilde{P}) \right|^2 \beta^{2(\gamma_k - k)} (2p)^{2k-1} \end{aligned} \quad (3.17)$$

avec $\Gamma(z)$ la fonction Gamma complexe usuelle,

$$R_{AB} = \begin{cases} 1 + (k/2)^2(\beta/p)^2 & , \kappa > 0 \\ 1 & , \kappa < 0 \end{cases} \quad (3.18)$$

et avec les quantités suivantes :

$$\begin{aligned} \tilde{\kappa} &= \kappa \sqrt{1 - \frac{\alpha Z \beta}{W + 1}}; & \tilde{W} &= W - (\alpha Z \beta) / 2; & \tilde{p} &= \frac{p}{2} + \frac{1}{2} \sqrt{p^2 - 2\alpha Z \tilde{W} \beta}; \\ \tilde{y} &= \frac{\alpha Z \tilde{W}}{\tilde{p}}; & P &= p / \beta; & \tilde{P} &= \tilde{p} / \beta. \end{aligned} \quad (3.19)$$

Le facteur de normalisation pour la fonction d'onde asymptotique est :

$$[N^{\text{Coul}}(\kappa)]^2 = \frac{(\kappa - \gamma_k)(\kappa W - \gamma_k)}{2} \times \frac{|\Gamma(\gamma_k + iy)|^2}{\Gamma(2\gamma_k + 1)^2} e^{\pi y} (2p)^{2\gamma_k - 1} \quad (3.20)$$

Cette formulation permet de déterminer les rapports écranté sur non-écranté $F_0 L_0^* / F_0 L_0$ et λ_k^* / λ_k . J'ai recalculé ces rapports tabulés en Table III dans [Beh69] et les résultats sont très cohérents, malgré l'utilisation de potentiels d'écrantage différents. Les différences les plus importantes apparaissent à basse énergie et aux grands Z , comme attendu.

Notons que la correction d'écrantage de Bühring ne fait apparaître aucune discontinuité non physique dans le spectre bêta. Cela est dû au fait que l'impulsion corrigée \tilde{p} n'a pas de signification physique contrairement à p' dans la correction de Rose, mais est plutôt un paramètre mathématique qui peut être imaginaire aux très basses énergies.

3.1.1.5 Corrections radiatives

Les corrections radiatives sont des corrections coulombiennes non statiques et peuvent avoir un effet important sur les formes de spectres bêta pour des valeurs élevées d'énergie maximale. Formellement, elles devraient être déterminées numériquement en appliquant la théorie de l'électrodynamique quantique. Cependant, les théories de la désintégration bêta sont en général des théories effectives à basse énergie et ne sont pas renormalisables. Le formalisme de Behrens et Bühring ne fait pas exception. Néanmoins, il est possible d'établir des corrections radiatives analytiques dans le cas des transitions permises $0^+ \rightarrow 0^+$. Elles sont usuellement appliquées à tous les types de transitions en espérant qu'elles soient, au moins, une bonne approximation.

Elles peuvent être scindées en corrections radiatives « internes », dont les termes sont indépendants du noyau, et « externes », dont les termes dépendent du noyau. Les corrections internes sont en général calculées à part et intégrées directement dans les constantes de couplages effectives. Les corrections radiatives externes rendent compte de la perte d'énergie de la particule β dans le champ électromagnétique du noyau par échange de photons virtuels et par bremsstrahlung interne. Elles seules influencent la forme du spectre bêta [Sir67], et je n'ai pas considéré les corrections internes. J'ai suivi dans un premier temps la description de [Sir67, Jau72, Beh82]. Le spectre est corrigé par un facteur $[1 + \delta_R(W, Z)]$ défini comme suit :

$$\delta_R(W, Z) = \delta_1(W) + \delta_2(Z) + \delta_3(Z) + \delta_4(Z) \quad (3.21)$$

Le terme qui dépend de l'énergie est d'ordre α :

$$\delta_1(W) = \frac{\alpha}{2\pi} \cdot g(W, q) \quad (3.22)$$

où :

$$g(W, q) = 3 \ln \left(\frac{m_p}{m_e} \right) - \frac{3}{4} + \frac{4}{\beta} L \left(\frac{2\beta}{1+\beta} \right) + 4 \left(\frac{\tanh^{-1}\beta}{\beta} - 1 \right) \left[\frac{q}{3W} - \frac{3}{2} + \ln(2q) \right] \\ + \frac{\tanh^{-1}\beta}{\beta} \left[(1 + \beta^2) \frac{q^2}{3W^2} - 4 \tanh^{-1}\beta \right] \quad (3.23)$$

avec $\beta = p/W$ et $L(x)$ la fonction de Spence. Les termes d'ordres supérieurs en (αZ) sont indépendants de l'énergie en première approximation :

$$\delta_2(Z) = 1.1 \cdot |Z| \alpha^2 \frac{m_p}{m_e}; \quad \delta_3(Z) = \frac{Z^2 \alpha^3}{\pi} \left(3 \ln 2 - \frac{3}{2} + \frac{\pi^2}{3} \right) \frac{m_p}{m_e}; \quad \delta_4(Z) = \frac{|Z| \alpha^3 m_p}{2\pi m_e} \quad (3.24)$$

Ces corrections radiatives ont récemment été calculées pour les particules ν et il a été démontré que la contribution du bremsstrahlung interne est différente [Sir11]. Lors du calcul des spectres ν , seul le résultat de [Sir11] est pris en compte, ce qui modifie le spectre par un facteur $[1 + \delta_\nu(q)]$ défini comme suit :

$$\delta_\nu(q) = \frac{\alpha}{2\pi} \cdot h(W) \quad (3.25)$$

avec :

$$h(W) = 3 \ln \left(\frac{m_p}{m_e} \right) + \frac{23}{4} + \frac{8}{\beta} L \left(\frac{2\beta}{1+\beta} \right) + 8 \left(\frac{\tanh^{-1}\beta}{\beta} - 1 \right) \ln(2W\beta) \\ + 4 \frac{\tanh^{-1}\beta}{\beta} \left(\frac{7 + 3\beta^2}{8} - 2 \tanh^{-1}\beta \right) \quad (3.26)$$

où W est toujours l'énergie totale de la particule β correspondant à l'énergie q de la particule ν , et la quantité $\beta = p/W$ reste identique.

Le programme BetaShape a été implémenté avec ces corrections radiatives. Depuis, je me suis intéressé à des corrections radiatives plus précises pour les particules β . Elles ont été développées à partir de techniques mathématiques plus récentes qui ont conduit à un changement significatif des termes correctifs [Cza04]. Notons qu'une erreur de signe dans un terme correctif de la désintégration du neutron, présente depuis 40 ans, a été corrigée par ces auteurs à l'occasion. Il serait trop long d'exposer en détail les différents changements. J'invite le lecteur intéressé à étudier la revue [Hay18]. Cependant, l'influence de ces corrections radiatives sur l'intégrale du spectre bêta a été calculée pour une vingtaine de transitions super-permises par I. Towner et J. Hardy [Tow08]. La figure 3.1 présente une comparaison de leurs résultats avec les corrections radiatives calculées selon l'ancienne et la nouvelle méthode. Il est clair que la nouvelle correction est significativement plus faible que l'ancienne, et ce d'autant plus que le Z est grand. L'accord avec les calculs de [Tow08] est excellent.

3.1.1.6 Au-delà du modèle physique

Le programme BetaShape a été implémenté en C++ et comprend plus de 18 000 lignes de codes, six classes, quatre programmes interfacés, 155 fonctions et une base de données de

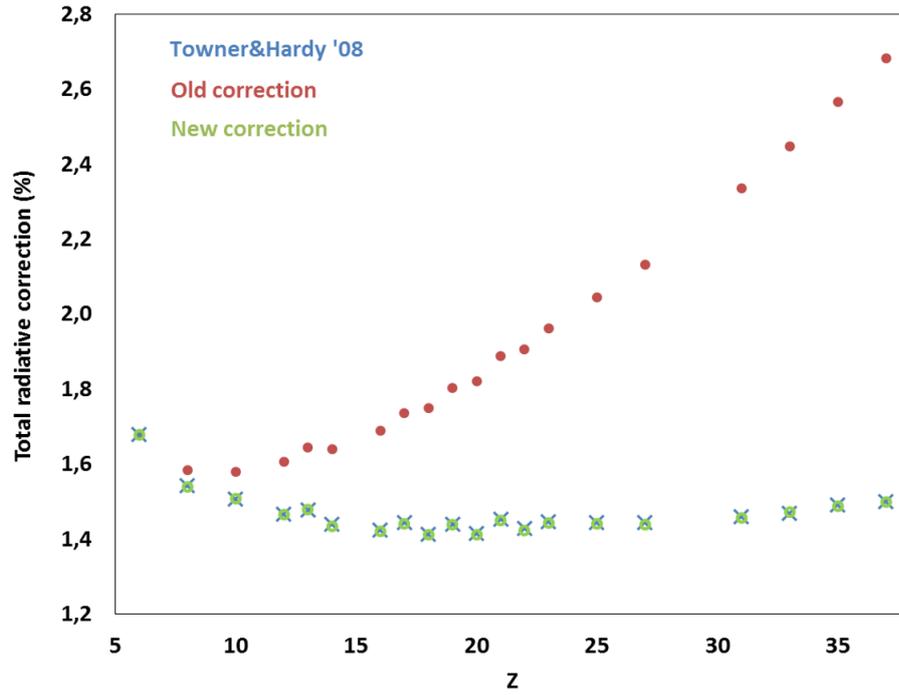


FIGURE 3.1 – Corrections radiatives totales pour différentes transitions super-permises. Les anciennes corrections radiatives (ronds rouges, [Sir67, Jau72, Beh82]) sont implémentées dans BetaShape. Les nouvelles corrections radiatives [Cza04, Hay18] ont été calculées dans [Tow08] (croix bleues), et nos calculs sont en excellent accord (cercles verts).

130 facteurs de forme expérimentaux. Plutôt que d'utiliser le degré d'interdiction présent dans le fichier ENSDF, comme le programme LogFT, BetaShape le détermine à partir des spins et parités des niveaux nucléaires, garantissant ainsi une cohérence des calculs.

Les paramètres de transition des désintégrations bêta sont déterminés avec leurs incertitudes à partir des données d'entrée. Ces paramètres sont : le rapport de branchement ou l'intensité de la transition I_β , la période de désintégration partielle $t = T_{1/2}/I_\beta$, le degré d'interdiction, et l'énergie maximale de la particule β déterminée à partir du Q-value et des énergies des niveaux nucléaires. Les spectres bêta sont ensuite calculés et normalisés à l'intensité de la transition. Si la transition est présente dans la base de données interne de BetaShape, le spectre correspondant est déterminé à partir du facteur de forme expérimental.

Ces spectres en énergie $N(W)$ sont intégrés pour déterminer l'énergie moyenne et le $\log ft$ de chaque transition. L'énergie moyenne est définie par :

$$\bar{E} = m_e \frac{\int_1^{W_0} (W - 1) N(W) dW}{\int_1^{W_0} N(W) dW} \quad (3.27)$$

Le $\log ft$ d'une transition β^- est calculé à partir de sa période de désintégration partielle t et du facteur f_β :

$$f_\beta = \int_1^{W_0} N(W) dW \quad (3.28)$$

Comme une transition β^+ est toujours en compétition avec une capture électronique, le $\log ft$ doit tenir compte dans ce cas de la contribution de la capture :

$$f_{\varepsilon/\beta^+} = f_{\varepsilon} + f_{\beta} \quad (3.29)$$

Les calculs dans BetaShape ne peuvent déterminer exactement le $\log ft$ puisque les captures électroniques ne sont pas traitées. Cependant, si $I_{\beta} \neq 0$, on peut écrire la relation suivante :

$$\log ft = \log \left(\frac{f_{\beta}}{I_{\beta}} T_{1/2} \right) + \left(\frac{1 + f_{\varepsilon}/f_{\beta}}{1 + I_{\varepsilon}/I_{\beta}} \right) \quad (3.30)$$

Comme nous le verrons plus loin, les captures électroniques sont traitées de manière similaire aux transitions bêta dans le formalisme de Behrens et Bühring. En introduisant la constante de désintégration λ , on a : $I_{\varepsilon}/I_{\beta} = \lambda_{\varepsilon}/\lambda_{\beta}$. Pour les transitions permises et interdites uniques, la composante nucléaire se factorise et n'apparaît que comme une constante K_{nuc} identique pour les parties β^+ et ε : $\lambda_{\beta} = K_{\text{nuc}} f_{\beta}$ et $\lambda_{\varepsilon} = K_{\text{nuc}} f_{\varepsilon}$. La quantité f_{ε} est la somme de la contribution de chaque orbitale :

$$f_{\varepsilon} = \sum_x n_x C_x f_x \quad (3.31)$$

où C_x est similaire au facteur de forme des transitions β^+ , et n_x est le nombre de d'occupation relatif de l'orbitale x . Ainsi, $I_{\varepsilon}/I_{\beta} \approx f_{\varepsilon}/f_{\beta}$. Par conséquent, on peut raisonnablement attendre pour les transitions permises et interdites uniques :

$$\log ft \approx \log \left(\frac{f_{\beta}}{I_{\beta}} T_{1/2} \right). \quad (3.32)$$

Une interface a été développée pour lire et écrire les fichiers standards ENSDF. Des choix ou des estimations sont souvent nécessaires en raison de l'incomplétude des données nucléaires : spins ou parités des niveaux incertains, quantités sans incertitude, transitions non placées, etc. Soulignons que ce travail, très technique et n'apportant rien à la modélisation physique, a demandé beaucoup de temps. Cependant, cette fonctionnalité est essentielle pour la diffusion de BetaShape et son utilisation par différentes communautés. L'utilisateur n'a qu'à fournir en entrée de BetaShape le fichier ENSDF correspondant à la dernière évaluation du radionucléide qui l'intéresse. BetaShape calcule alors l'ensemble des transitions bêta présentes avec, par défaut, les meilleures options de calcul. En sortie, plusieurs fichiers de contrôle et de rapport sont générés ainsi qu'un fichier pour chaque transition individuelle donnant les spectres en énergie des particules β et ν , et les spectres déterminés à partir des facteurs de forme expérimentaux s'ils sont présents dans la base de données. Un fichier est également généré pour les spectres en énergie totaux reconstruits à partir des transitions individuelles, ainsi qu'un nouveau fichier ENSDF mis à jour.

Les incertitudes sont propagées comme dans le programme LogFT, en accord avec les règles ENSDF qui considèrent l'écart-type d'une distribution gaussienne. Cependant, si une valeur d'entrée n'a pas d'incertitude, BetaShape détermine une incertitude relative d'environ 60% à partir d'une distribution uniforme entre zéro et le double de la valeur. Le programme LogFT, quant à lui, ne prend en compte aucune incertitude. De plus, l'incertitude sur un facteur de forme expérimental n'est pas propagée parce que les paramètres

polynomiaux sont fortement corrélés et que l'information sur cette corrélation est inexistante dans les publications. La composante d'incertitude du spectre bêta ne provient donc que de l'incertitude sur W_0 , estimée en calculant le spectre à 1σ et en prenant la différence entre cette valeur et la valeur à W_0 .

3.1.1.7 Validation du code

J'ai comparé les prédictions théoriques de BetaShape aux facteurs de forme expérimentaux présents dans la base de données. J'en ai profité pour tester la pertinence des hypothèses les plus courantes dans le calcul des spectres bêta et antineutrino, notamment dans le contexte de l'étude des spectres antineutrino issus des réacteurs [Mou15].

Le très bon accord obtenu pour les transitions permises et interdites uniques valide le code. Les spectres calculés avec l'approximation $\lambda_k = 1$ pour les transitions uniques interdites sont systématiquement en moins bon accord avec les facteurs de forme expérimentaux que ceux calculés avec les λ_k corrects. Concernant les transitions interdites non-unicques, j'ai constaté que l'approximation ξ n'est valide que pour environ la moitié des transitions premières interdites non-unicques et qu'elle est incorrecte dans tous les autres cas. De plus, le seul critère $2\xi/E_0 \gg 1$ s'avère insuffisant en soi si $2\xi/E_0 < 100$.

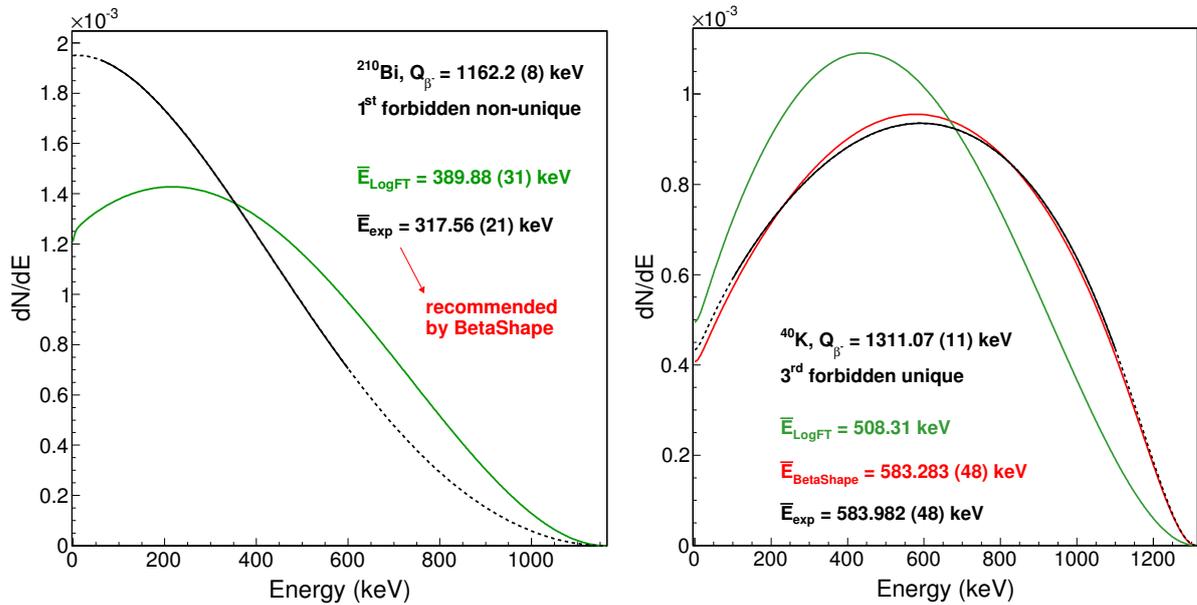


FIGURE 3.2 – Comparaison de spectres bêta issus d'un facteur de forme (noir plein dans l'intervalle de mesure, noir pointillé extrapolé), calculé avec les mêmes hypothèses de calcul que le code LogFT (vert), et calculé avec le code BetaShape (rouge). (*Gauche*) Pour le ^{210}Bi , le spectre calculé de BetaShape se confond avec celui de LogFT, calculés pour une transition permise dans le cadre de l'approximation ξ . (*Droite*) Pour le ^{40}K , LogFT calcule la transition comme une permise et BetaShape comme une troisième interdite unique.

La figure 3.2 présente une comparaison de spectres bêta illustrant l'amélioration apportée par BetaShape par rapport à LogFT. Le programme LogFT ne fournissant pas de spectre, je les ai recalculés en suivant les mêmes hypothèses. La transition première

interdite non-unique du ^{210}Bi est calculée par les deux codes comme une permise selon l'approximation ξ . Le désaccord avec le spectre reconstruit à partir du facteur de forme expérimental est évident. Cependant, BetaShape recommande dans ce cas le spectre issu du facteur de forme grâce à sa base de données. La transition troisième interdite unique du ^{40}K est calculée par LogFT comme permise, alors que BetaShape la calcule correctement. L'accord avec le spectre reconstruit à partir du facteur de forme expérimental est nettement meilleur avec BetaShape.

3.1.2 Effet d'échange atomique

La modélisation de BetaShape reste incapable de reproduire les mesures MMC des spectres bêta du ^{63}Ni et du ^{241}Pu , d'énergies maximales respectives 66.98 keV et 20.8 keV. La transition du ^{63}Ni est permise et celle du ^{241}Pu est première interdite non-unique, mais c'est un cas idéal où l'approximation ξ est applicable. Comme nous l'avons vu dans le chapitre précédent, un écart important subsiste entre les prédictions théoriques et les spectres expérimentaux, supérieur à 10% aux plus basses énergies. Je présente ici les travaux introduisant précisément les effets atomiques d'écrantage et d'échange dans la modélisation des désintégrations bêta que j'ai développée.

La désintégration bêta est vue usuellement comme une transition entre un niveau nucléaire initial dans le père et un niveau nucléaire final dans le noyau fils. En réalité, il s'agit d'une transition entre l'atome père et l'atome fils et les électrons atomiques, supposés spectateurs et inertes, contribuent à la désintégration. En effet, le changement de charge du noyau lors de la transition implique que les fonctions atomiques initiales et finales ne sont pas orthogonales. Il existe donc une probabilité non nulle, due à l'indiscernabilité des électrons, pour que l'électron issu de la désintégration bêta soit émis directement dans une orbitale atomique, éjectant l'électron s'y trouvant avec une énergie qui correspond au transfert d'impulsion. Il est impossible expérimentalement de distinguer ce processus de la désintégration directe qui crée un électron dans un état du continuum de l'atome fils.

Lorsque j'ai débuté cette étude, la modélisation la plus complète disponible était celle de M. Harston et N. Pyper [Har92], valable uniquement dans le cas des transitions permises. Pour ces transitions, seuls les électrons β de nombre quantique $\kappa = \pm 1$ sont considérés, donc seuls les électrons $s_{1/2} = s$ et $p_{1/2} = \bar{p}$ contribuent à l'effet d'échange. Cet effet apparaît comme une correction de l'équation (3.1) :

$$\frac{dN}{dW} \longrightarrow \frac{dN}{dW} \times (1 + \eta_{\text{ex}}^T) \quad (3.33)$$

La correction totale d'effet d'échange s'exprime par :

$$\eta_{\text{ex}}^T(E) = f_s(2T_s + T_s^2) + (1 - f_s)(2T_{\bar{p}} + T_{\bar{p}}^2) \quad (3.34)$$

avec :

$$f_s = \frac{g_{-1}^c(R)^2}{g_{-1}^c(R)^2 + f_1^c(R)^2} \quad (3.35)$$

Les quantités T_s et $T_{\bar{p}}$ dépendent des recouvrements entre les fonctions d'onde du continuum et les états liés :

$$T_s = - \sum_{ns'} \langle Es' | ns \rangle \frac{g_{n,-1}^b(R)}{g_{-1}^c(R)} \quad \text{et} \quad T_{\bar{p}} = - \sum_{n\bar{p}'} \langle E\bar{p}' | n\bar{p} \rangle \frac{f_{n,1}^b(R)}{f_1^c(R)} \quad (3.36)$$

Les sommes courent sur les états occupés de l'atome fils. Les exposants b et c distinguent les fonctions d'onde des états liés de celles du continuum, respectivement. Harston et Pyper indiquent que la contribution des états \bar{p} peut être négligée, ce que j'ai fait.

Dans un premier temps, j'ai considéré des fonctions d'onde analytiques [Ros61], tant pour les états liés que pour les états du continuum. J'ai calculé les spectres des ^{63}Ni et ^{241}Pu et obtenu le résultat donné en figure 3.3. L'accord n'était pas très bon dans le cas du ^{241}Pu mais j'ai pu démontrer que l'effet d'échange jouait un rôle essentiel dans l'écart théorie–expérience constaté [Mou12b]. Le bon accord obtenu pour le ^{63}Ni m'a alors conduit à l'hypothèse que l'écart restant provenait d'une correction trop approximative de l'effet d'écranage, celui de Rose dans cette étude.

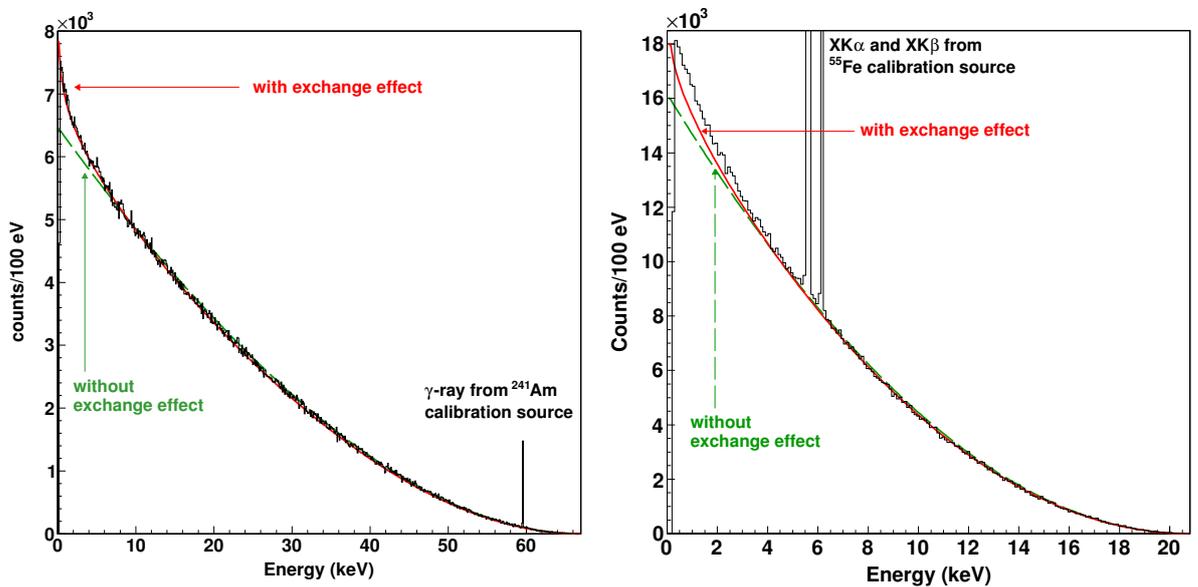


FIGURE 3.3 – Spectres bêta avec effet d'échange calculés à l'aide de fonctions d'onde analytiques pour le ^{63}Ni à gauche et le ^{241}Pu à droite.

Dans un deuxième temps, j'ai voulu mettre en place un calcul cohérent des effets d'écranage et d'échange à partir de fonctions d'onde plus précises [Mou14]. Pour ce faire, j'ai adapté « *la méthode simple mais lente* » de Behrens et Bühring pour la résolution numérique de l'équation Dirac. La structure du potentiel atomique est essentielle dans la détermination des fonctions d'onde. Partant du potentiel coulombien de l'équation (3.6) pour une sphère uniformément chargée, j'ai introduit les potentiels d'écranage de [Sal87] :

$$V(r) = -\frac{\alpha Z}{r} \sum_{i=1}^N a_i e^{-\beta_i r} = -\frac{\alpha Z}{r} \phi(r), \quad (3.37)$$

où les a_i et β_i sont des paramètres ajustés pour chaque atome. La reconnexion de ce potentiel coulombien avec le potentiel asymptotique est assurée en introduisant un polynôme quadratique dans une zone limitée de l'espace. Pour évaluer les états liés, il est nécessaire de prendre en compte le fait que les électrons atomiques ne sont pas des particules indépendantes. Cela se fait en général par l'introduction d'un potentiel d'échange. Son calcul exact

est en général très difficile, voire impossible. Cependant, il existe des modèles approximatifs qui donnent le potentiel d'échange sous une forme analytique. Utilisant la théorie d'un gaz d'électrons libres, J. Slater proposa un potentiel d'échange dépendant uniquement de la densité de charge électronique [Sla51]. L'équation de Poisson relie le laplacien du potentiel à la densité de charge ρ :

$$\Delta V = 4\pi\rho \quad (3.38)$$

La densité peut donc être calculée à partir de la dérivée seconde du potentiel généré par une charge nucléaire étendue écrantée [Sal87]. Cette approximation est couramment utilisée dans la littérature et je l'ai adoptée. Dans le formalisme de [Beh82], le potentiel d'échange s'exprime de la façon suivante :

$$V_{ex}(r) = F_{ex} \phi_{ex}^{1/3}(r) \quad (3.39)$$

avec :

$$F_{ex} = \frac{3\alpha}{2} \left(\frac{3Z}{4\pi^2} \right)^{1/3} \quad \text{et} \quad \phi_{ex}(r) = \sum_{i=1}^N a_i \frac{\beta_i^2}{r} e^{-\beta_i r} \quad (3.40)$$

Certains calculs Hartree-Fock incluent une paramétrisation du potentiel d'échange de Slater, le processus de convergence se faisant également sur ces paramètres [Gra70]. J'ai introduit la possibilité de modifier le potentiel d'échange à travers l'ajustement d'une constante K :

$$V_{ex}(r) = K F_{ex} \phi_{ex}^{1/3}(r) \quad (3.41)$$

Notons que la densité de charge ρ définie par les équations (3.38) et (3.39) est indépendante des orbitales atomiques. Pourtant, on s'attend physiquement à ce qu'elle en dépende puisque chaque orbitale ne contient pas le même nombre d'électrons et n'a pas le même rayon moyen. Il est donc justifié de pouvoir adapter le potentiel d'échange différemment pour chaque orbitale.

Après avoir dérivé les formules nécessaires au calcul effectif de ces fonctions d'onde, j'ai implémenté un algorithme spécifique pour assurer la convergence des solutions. Je suis parti de la méthode proposée par Behrens et Bühring [Beh82] mais j'ai constaté que les énergies vers lesquelles l'algorithme convergait n'étaient pas réalistes. J'ai alors introduit un processus de convergence supplémentaire dans lequel j'ajuste la constante K du potentiel d'échange de l'équation (3.41), dans un intervalle raisonnable entre -2 et 2, jusqu'à retrouver les énergies tabulées par J.-P. Desclaux dans [Des73] obtenues à l'aide d'un code Dirac-Fock. Pour vérifier les calculs, j'ai recalculé les paramètres du tableau V de [Beh69] pour les fonctions d'onde des états liés, et un bon accord est obtenu pour tous les Z .

J'ai introduit une nouvelle correction d'écrantage, partant du constat que la correction de Rose était nécessairement trop simple et que les mesures MMC étaient les premières à explorer aussi précisément les effets atomiques. Les spectres bêta sont calculés à l'aide du carré des fonctions d'onde des électrons évaluées à la surface du noyau. Or, les potentiels d'écrantage sont très faibles dans cette zone, ce qui rend négligeable toute modification significative de la forme globale du spectre. J'ai donc défini une correction d'écrantage qui considère plutôt le carré des fonctions d'onde moyenné dans tout l'espace [Mou14]. La figure 3.4 présente le résultat pour les spectres des ^{63}Ni et ^{241}Pu . L'accord est significativement meilleur qu'avec les fonctions d'onde analytiques.

Lors d'une récente revue des différents effets influençant la forme des spectres bêta des transitions permises en collaboration avec l'Université Catholique de Louvain-la-Neuve

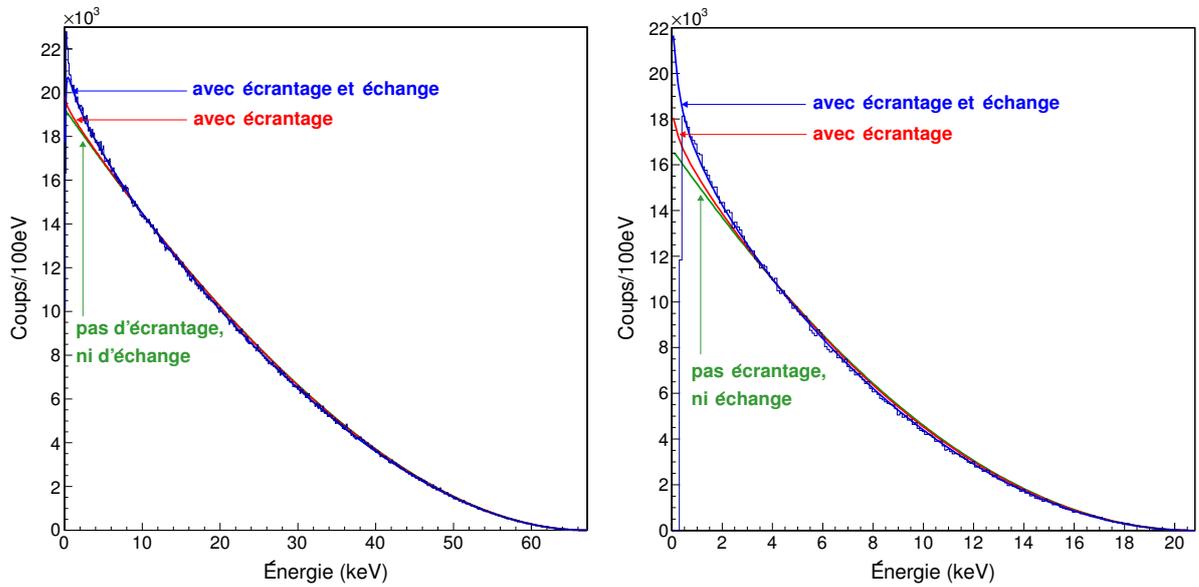


FIGURE 3.4 – Spectres bêta avec effet d'échange pour le ^{63}Ni à gauche et le ^{241}Pu à droite. Les fonctions d'onde des électrons ont été calculées numériquement avec les énergies des orbitales de [Des73]. Une correction supplémentaire de l'effet d'écrantage a été introduite. Les raies d'étalonnage présentes dans la figure 3.3 ont été soustraites.

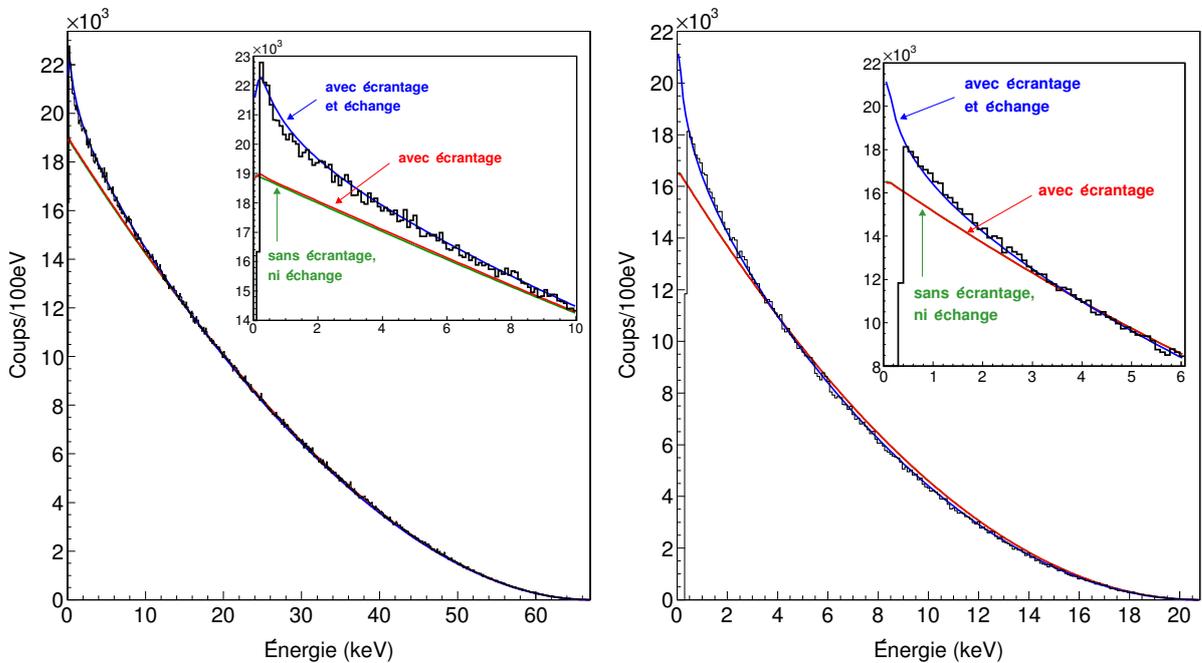


FIGURE 3.5 – Spectres bêta avec effet d'échange pour le ^{63}Ni à gauche et le ^{241}Pu à droite. Les fonctions d'onde des électrons ont été calculées numériquement avec les énergies des orbitales de [Kot97]. Le terme d'échange des orbitales $p_{1/2}$ a été inclus.

[Hay18], cette nouvelle correction d'écrantage est apparue comme difficilement justifiable d'un point de vue théorique. En revanche, nous avons constaté qu'une composante supposée négligeable par Harston et Pyper, l'influence des orbitales $p_{1/2}$, a en réalité une contribution significative. De plus, nous avons privilégié les énergies des orbitales atomiques déterminées par S. Kotochigova *et al.* [Kot97]. Ces énergies, qui peuvent différer de celles de [Des73] d'un ordre de grandeur pour les sous-couches les moins liées, ont été obtenues pour un noyau ponctuel dans le cadre de la théorie de la fonctionnelle de la densité en considérant une approximation locale, paramétrée, de la densité de charge. Dans cette approche, les corrélations entre électrons sont intégrées dans un potentiel d'échange qui dépend de la valeur locale de la densité électronique. La figure 3.5 présente le résultat pour les spectres des ^{63}Ni et ^{241}Pu . Le calcul inclut également les nouvelles corrections radiatives décrites précédemment. On constate dans les deux cas un excellent accord sur l'ensemble du spectre, jusqu'aux énergies les plus basses, démontrant la pertinence et la précision de ce modèle.

3.1.3 Composante nucléaire

La modélisation des transitions bêta que j'ai développée donne de très bons résultats pour les transitions permises, même à très basse énergie. Cependant, il reste impératif d'inclure la structure nucléaire. La composante nucléaire est bien évidemment indispensable pour un calcul réaliste des spectres des transitions interdites non-unicas. Elle est aussi nécessaire quel que soit le type de transition si une précision $\lesssim 1\%$ est requise tant sur la forme du spectre que sur ses quantités intégrées (constantes et périodes de désintégration, rapports de branchement, $\log ft$). Je ne détaillerai pas l'ensemble des calculs, bien trop longs, nécessaires pour établir les formules. Seules les grandes lignes du raisonnement seront données ci-dessous.

J'ai abordé cette problématique avec comme point de départ l'approche la plus simple du formalisme de Behrens et Bühring [Beh82]. Dans ce cadre, on considère que la désintégration bêta correspond à la transformation d'un nucléon au sein d'un noyau ($n \rightarrow p$ pour β^- ou $p \rightarrow n$ pour β^+), ce qui se traduit par le calcul d'éléments de matrice à une particule (*single particle matrix elements*). Ces derniers sont d'une importance toute particulière car ils constituent les briques élémentaires pour définir les éléments de matrice nucléaire dans des descriptions plus complexes des noyaux. Le défi consiste alors à déterminer les fonctions d'onde des nucléons et des leptons, à calculer les différents éléments de matrice et à les coupler de manière cohérente dans un formalisme relativiste de la désintégration bêta. À ma connaissance, aucun code disponible n'est capable de le faire quel que soit le type de transition, cette expertise étant conservée dans les quelques laboratoires intéressés par ce problème.

Nous considérons dans ce qui suit la théorie de la désintégration faible dite de Fermi. Dans ce cadre, le vertex de l'interaction faible est supposé ponctuel, aucun boson vecteur W^\pm n'est propagé et une constante de couplage effective G_β est utilisée à la place de la constante de couplage de l'interaction faible. Cette approximation se justifie pleinement car l'énergie maximale des transitions bêta – 30 MeV maximum – est largement négligeable devant la masse des bosons vecteurs – environ 80 GeV. Nous nous plaçons aussi dans le cadre de l'approximation soudaine (*impulse approximation*) où l'on considère qu'au moment de la désintégration, le nucléon ne ressent que l'interaction faible. Les autres nucléons du noyau sont donc considérés comme des spectateurs par rapport au processus de désintégration

faible. La figure 3.6 schématise une transition β^- avec ces hypothèses sous la forme d'un diagramme de Feynman.

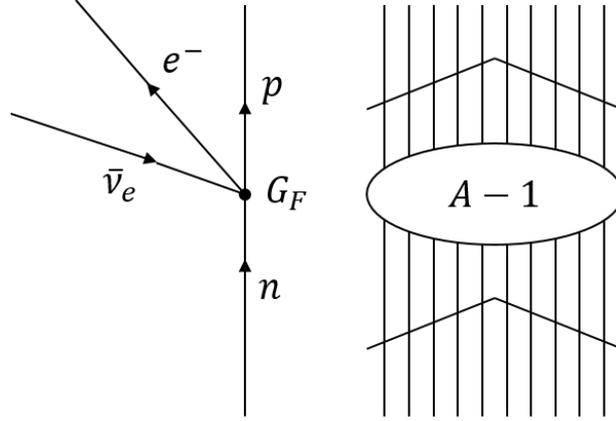


FIGURE 3.6 – Diagramme de Feynman d'une transition β^- dans le cadre de la théorie de Fermi et de l'approximation soudaine.

La probabilité de transition pour un électron ayant une énergie comprise entre W_e et $W_e + dW_e$ est donnée par :

$$P(W_e)dW_e = \frac{G'_\beta{}^2}{2\pi^3} F_0 L_0 C(W_e) p_e W_e (W_0 - W_e)^2 dW_e \quad (3.42)$$

Par souci de clarté, les facteurs correctifs discutés précédemment ne sont pas donnés. Le facteur de forme théorique est défini par :

$$C(W_e) = \sum_{K k_e k_\nu} \lambda_{k_e} \left[M_K^2(k_e, k_\nu) + m_K^2(k_e, k_\nu) - \frac{2\mu_{k_e} \gamma_{k_e}}{k_e W_e} M_K(k_e, k_\nu) m_K(k_e, k_\nu) \right] \quad (3.43)$$

où l'on retrouve les quantités λ_{k_e} définies à l'équation (3.46), ainsi que les nombres quantiques des leptons $k_e = |\kappa_e|$ et $k_\nu = |\kappa_\nu|$. On a également $\gamma_{k_e} = \sqrt{k_e^2 - (\alpha Z)^2}$ et :

$$\mu_{k_e} = \frac{k_e W_e}{\gamma_{k_e}} \cdot \frac{\alpha_{-k_e}^2 - \alpha_{k_e}^2}{\alpha_{-k_e}^2 + \alpha_{k_e}^2} \quad (3.44)$$

La constante G'_β correspond à la constante de couplage effective de l'interaction faible G_β corrigée de la correction radiative interne Δ_R^V . J'ai mis à jour sa valeur à partir des évaluations des constantes CODATA 2014 [Moh16] et de la correction radiative établie dans [Har15] :

$$G'_\beta = G_\beta \times (1 + \Delta_R^V) = 3,1176(12) \cdot 10^{-12} \times (m_e c^2)^2 / (\hbar c)^3 \quad (3.45)$$

Elle est supérieure de 4% à celle recommandée dans [Beh82].

La probabilité totale de désintégration par unité de temps, c'est-à-dire l'intensité de la transition, est donnée par l'intégrale du spectre en énergie :

$$\frac{dW}{dt} = \lambda = \int_1^{W_0} P(W_e) dW_e \quad (3.46)$$

La période de désintégration partielle est donnée par $t = \ln 2/\lambda$. La période de désintégration totale d'un radionucléide est la somme des périodes partielles de chacune des transitions : $T_{1/2} = \sum_i t_i$. En introduisant la quantité intégrée :

$$f = \int_1^{W_0} p_e W_e (W_0 - W_e)^2 F(Z, W_e) dW_e \quad (3.47)$$

la période de désintégration partielle s'exprime par :

$$t = \frac{2\pi^3 \ln 2}{G_\beta'^2 f \overline{C(W_e)}} \quad (3.48)$$

avec le facteur de forme moyen du spectre en énergie défini par :

$$\overline{C(W_e)} = \frac{1}{f} \int_1^{W_0} C(W_e) p_e W_e (W_0 - W_e)^2 F(Z, W_e) dW_e \quad (3.49)$$

Le couplage entre les fonctions d'onde des leptons et des nucléons s'effectue dans les termes $M_K(k_e, k_\nu)$ et $m_K(k_e, k_\nu)$. Avant d'explicitier le formalisme permettant de calculer ces quantités, il est nécessaire d'introduire la définition des fonctions d'onde relativistes des nucléons, cohérente avec celle des leptons, en tenant compte du nombre quantique d'isospin :

$$\Psi(\vec{r}) = \Psi_\kappa^\mu = \begin{pmatrix} S_\kappa f_\kappa(r) \chi_{-\kappa}^\mu \\ g_\kappa(r) \chi_\kappa^\mu \end{pmatrix} \chi_t \quad (3.50)$$

L'isospineur χ_t permet de sélectionner l'un des deux états possibles du nucléon, c'est-à-dire neutron ou proton :

$$\chi_n = \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \end{pmatrix} \quad \text{et} \quad \chi_p = \begin{pmatrix} 0 \\ 1 \end{pmatrix} \quad (3.51)$$

Dans un cadre relativiste, la construction a priori de l'hamiltonien est possible avec cinq composantes différentes : scalaire (S), pseudo-scalaire (P), vecteur (V), pseudo-vecteur ou vecteur-axial (A) et tensoriel (T). L'interaction faible peut donc résulter de toute combinaison linéaire de ces cinq composantes. Les études expérimentales des années 1970 ont conduit à l'élaboration de l'interaction électrofaible, pilier du Modèle Standard. L'interaction faible y est modélisée comme une interaction de type $(V - A)$, et c'est l'hypothèse que nous privilégions. Dans la suite, nous nous focaliserons sur les transitions β^- par souci de clarté.

L'hamiltonien s'écrit en terme des courants hadronique J_μ et leptonique L_μ :

$$H_\beta(x) = \frac{G_\beta}{\sqrt{2}} \{ J_\mu^\dagger(x) L_\mu(x) + \text{h.c.} \} \quad (3.52)$$

où h.c. désigne l'hermitique conjugué. Le courant leptonique s'exprime à partir des opérateurs de champs de l'électron ψ_e et de l'antineutrino ψ_{ν_e} :

$$L_\mu(x) = \bar{\psi}_{\nu_e}(x) \gamma_\mu (1 + \gamma_5) \psi_e(x) \quad (3.53)$$

où les matrices γ_μ sont définies par $\gamma_4 = -\beta$ et $\gamma_k = \nu\gamma_4\alpha_k$ pour $k = 1, 2, 3$. En considérant dans un premier temps des nucléons ponctuels et libres vis-à-vis de l'interaction forte, le courant hadronique s'exprime de manière analogue :

$$J_\mu^\dagger(x) = \bar{\psi}_p(x) \gamma_\mu (1 + \lambda\gamma_5) \psi_n(x) \quad (3.54)$$

Les quantités ψ_p et ψ_n sont les opérateurs de champs du proton et du neutron, respectivement. La constante $\lambda = -g_A/g_V$ est le ratio des constantes de couplage des composantes vecteur-axiale et vectorielle. En principe, le fait de considérer une interaction faible entre des fermions ponctuels libres de spin 1/2, comme nous le faisons ici, impose $g_A = g_V = 1$ et donc $\lambda = 1$. Cependant, nous souhaitons introduire des effets de structure nucléaire dans les calculs de transitions bêta. Ce faisant, nous reconnaissons que les nucléons ne sont pas ponctuels et qu'ils sont influencés par l'interaction forte. La description moderne unifiée de l'interaction électrofaible permet de démontrer que le courant vecteur est conservé, mais les observations expérimentales montrent que le courant vecteur-axial ne l'est pas, probablement à cause d'effets de renormalisation dus à la présence de l'interaction forte. Behrens et Bühring recommandent la valeur établie dans [Kro74] : $\lambda = 1,250(9)$. J'ai réévalué cette valeur à partir des mesures les plus récentes et les plus précises [Liu10, Mun13] : $\lambda = 1,2763(15)$.

L'hamiltonien s'écrit alors :

$$H_\beta(x) = -\frac{G'_\beta}{\sqrt{2}} \{ \bar{\psi}_p \gamma_\mu (1 + \lambda \gamma_5) \psi_n \bar{\psi}_e \gamma_\mu (1 + \gamma_5) \psi_{\nu_e} + \text{h.c.} \} \quad (3.55)$$

avec les opérateurs de champs :

$$\begin{aligned} \psi(x) &= \frac{1}{V} \sum_p \sum_r \{ e^{ipx} a_r(p) u_r(p) + b_r^\dagger(p) v_r(p) e^{-ipx} \} \\ \bar{\psi}(x) &= \frac{1}{V} \sum_p \sum_r \{ e^{-ipx} a_r^\dagger(p) \bar{u}_r(p) + b_r(p) \bar{v}_r(p) e^{ipx} \} \end{aligned} \quad (3.56)$$

Les quantités $a_r^\dagger(p)$ et $a_r(p)$ sont les opérateurs de création et d'annihilation pour un fermion d'impulsion p et de spin r , et les quantités $b_r^\dagger(p)$ et $b_r(p)$ sont les opérateurs correspondants pour les antiparticules. Les quantités $u_r(p)$ et $v_r(p)$ sont les spineurs de Dirac pour une particule libre, avec $\bar{u}_r(p) = u_r^\dagger(p) \gamma_4$ et $\bar{v}_r(p) = v_r^\dagger(p) \gamma_4$. La matrice de transition entre l'état initial et l'état final s'écrit alors :

$$T_{\beta^-} = \frac{G'_\beta}{\sqrt{2}} [\bar{u}_p \gamma_\mu (1 + \lambda \gamma_5) u_n] [\bar{u}_e \gamma_\mu (1 + \gamma_5) v_\nu] \quad (3.57)$$

Jusqu'ici, les interactions coulombiennes entre les hadrons et les leptons n'ont pas été prises en compte. Cela complexifie quelque peu la modélisation car l'interaction électromagnétique est trop intense pour un traitement perturbatif. Behrens et Bühring ont adapté une méthode usuelle en physique nucléaire et en physique des particules, en développant les courants hadronique et leptonique en multipôles. Cette modélisation est incomplète car ce n'est pas une théorie renormalisable. Cependant, à l'exception notable des corrections radiatives, elle est suffisante pour décrire la désintégration bêta.

On introduit maintenant $V_\mu(x)$ et $A_\mu(x)$ qui représentent les courants nucléaires vectoriel et pseudo-vectoriel, respectivement. Il est possible de substituer la partie hadronique dans la matrice de transition pour revenir à un cas plus général de nucléons au sein de noyaux :

$$T_{\beta^-} = -\frac{G'_\beta}{\sqrt{2}} \langle f | V_\mu(0) + A_\mu(0) | i \rangle i \bar{u}_e \gamma_\mu (1 + \gamma_5) v_\nu \quad (3.58)$$

On effectue ensuite une expansion multipolaire de ce courant nucléaire de type $(V - A)$. L'avantage de cette décomposition est qu'elle sépare clairement dans l'amplitude de la

transition *i*) la structure cinétique de la matrice de transition, *ii*) les effets dus au modèle de structure nucléaire, et *iii*) les effets de l'interaction électromagnétique entre le lepton et le noyau, et ce indépendamment du modèle de structure nucléaire utilisé. Cette expansion multipolaire introduit des facteurs de forme F_{KLs} . Les détails de la structure nucléaire et de la désintégration bêta ne vont influencer que ces facteurs de forme, mais les relations existantes entre les facteurs de forme et les observables resteront inchangées.

La transition considérée étant à un corps, il est utile de définir un opérateur tensoriel irréductible sphérique, une matrice 4×4 qui agit sur les spineurs leptoniques, défini par :

$$T_{LL0}^M(\hat{q}) = \iota^L Y_L^M(\hat{q}) \quad (3.59)$$

et

$$\begin{aligned} T_{KL1}^M(\hat{q}) &= (-1)^{L-K+1} \iota^L \vec{Y}_{KL}^M(\hat{q}) \cdot \vec{\alpha} \\ &= \sum_{\mu} C(1LK; \mu, M - \mu) \iota^L \gamma_5 \sigma^{\mu} Y_L^{M-\mu}(\hat{q}) \end{aligned} \quad (3.60)$$

avec \vec{q} l'impulsion transférée et $\hat{q} = \vec{q}/|\vec{q}|$. Le courant hadronique se décompose alors de la façon suivante [Ste64, Sch64] :

$$\begin{aligned} (-\iota) \langle f | V_{\mu}(0) + A_{\mu}(0) | i \rangle \gamma_4 \gamma_{\mu} &= \sum_{KLMs} (-1)^{J_f - M_f + M} \iota^L \sqrt{4\pi} \sqrt{2J_i + 1} \\ &\times \begin{pmatrix} J_f & K & J_i \\ -M_f & M & M_i \end{pmatrix} T_{KLs}^{-M}(\hat{q}) \frac{(qR)^L}{(2L+1)!!} F_{KLs}(q^2) \end{aligned} \quad (3.61)$$

Les quantités J_i, J_f, M_i, M_f sont les spins et les nombres quantiques magnétiques qui labélisent les états nucléaires. Les facteurs de forme $F_{KLs}(q^2)$ jouent le rôle d'éléments de matrice réduits. Ils peuvent être réécrits en appliquant les relations d'orthogonalité des opérateurs tensoriels irréductibles :

$$F_{KLs}(q^2) = (-1)^{K-L} \mathcal{M}_{KLs}(q^2) \quad (3.62)$$

Les quantités $\mathcal{M}_{KLs}(q^2)$ sont du type vecteur (V) ou vecteur-axial (A), et sont labélisées en conséquence. Explicitement :

$${}^V F_{KLs}(q^2) = (-1)^{K-L} {}^V \mathcal{M}_{KLs}(q^2) \quad \text{et} \quad {}^A F_{KLs}(q^2) = (-1)^{K-L} \lambda {}^A \mathcal{M}_{KLs}(q^2) \quad (3.63)$$

Pour un traitement exact de la matrice de transition, il est nécessaire de tenir compte de l'interaction coulombienne entre le noyau et l'électron émis, c'est-à-dire de la déformation de la fonction d'onde de l'électron due à l'influence de la charge du noyau. Le courant leptonique va lui aussi subir une expansion multipolaire, faisant apparaître les éléments de matrice leptonique :

$$\int \phi_e^+(\vec{r}) T_{KLs}^{-M}(\hat{r}) (1 + \gamma_5) \phi_{\bar{\nu}_e}(\vec{r}) d\hat{r} \quad (3.64)$$

Il est donc intéressant d'introduire une base sphérique sur laquelle on projette les fonctions d'onde de l'électron et de l'antineutrino :

$$\phi_{e^-}(\vec{r}) = \sum_{\kappa_e \mu_e} a_{\kappa_e \mu_e} \phi_{\kappa_e}^{\mu_e} \quad \text{et} \quad \phi_{\nu_e}(\vec{r}) = \sum_{\kappa_{\nu} \mu_{\nu}} b_{\kappa_{\nu} \mu_{\nu}} \phi_{\kappa_{\nu}}^{\mu_{\nu}} \quad (3.65)$$

La matrice de transition devient alors :

$$\begin{aligned}
 T_{\beta^-} &= \frac{G'_\beta}{\sqrt{2}} \frac{1}{\pi^{3/2}} \sum_{KLSM} \sum_{\substack{\kappa_e \mu_e \\ \kappa_\nu \mu_\nu}} (-1)^{J_f - M_f + j_e - \mu_e} \\
 &\times (-1)^{L+M+j_\nu+\mu_\nu} \sqrt{2J_i+1} \begin{pmatrix} J_f & K & J_i \\ -M_f & M & M_i \end{pmatrix} \begin{pmatrix} j_e & K & j_\nu \\ -\mu_e & -M & -\mu_\nu \end{pmatrix} \\
 &\times a_{\kappa_e \mu_e}^* b_{\kappa_\nu \mu_\nu}^* \int_0^\infty q^2 dq \int_0^\infty r^2 dr \frac{(qR)^L}{(2L+1)!!} j_L(qr) F_{KLS}(q^2) \\
 &\times \langle \phi_{\kappa_e, e^-} || T_{KLS}(1 + \gamma_5) || \phi_{\kappa_\nu, \bar{\nu}} \rangle
 \end{aligned} \tag{3.66}$$

Ici, nous avons appliqué le théorème de Wigner-Eckart, qui permet d'exprimer les éléments de matrice d'un opérateur tensoriel sphérique sur une base d'états propres d'harmoniques sphériques en un produit de deux termes : un coefficient de Clebsch-Gordan et un élément de matrice réduit indépendant de l'orientation du moment angulaire. Les éléments de matrice leptonique réduits se déduisent directement :

$$\begin{aligned}
 &\sqrt{2\pi} \langle \phi_{\kappa_e, e^-} || T_{KLS}(1 + \gamma_5) || \phi_{\kappa_\nu, \bar{\nu}} \rangle \\
 &= g_{\kappa_e}(Z) S_{\kappa_\nu} \{ j_{k_\nu}(p_\nu r) G_{KLS}(\kappa_e, k_\nu) - j_{k_\nu-1}(p_\nu r) G_{KLS}(\kappa_e, -k_\nu) \} \\
 &+ S_{\kappa_e} S_{\kappa_\nu} f_{\kappa_e}(Z) \{ j_{k_\nu}(p_\nu r) G_{KLS}(-\kappa_e, k_\nu) - j_{k_\nu-1}(p_\nu r) G_{KLS}(-\kappa_e, -k_\nu) \}
 \end{aligned} \tag{3.67}$$

où le coefficient géométrique $G_{KLS}(\kappa_e, \kappa_\nu)$ est la combinaison d'un coefficient de Clebsch-Gordan et d'un symbole $9j$. On retrouve les fonctions radiales de l'électron $f_{\kappa_e}(Z)$ et $g_{\kappa_e}(Z)$, où Z correspond au noyau fils, ainsi que celles de l'antineutrino $j_{l(\kappa_\nu)}(p_\nu r)$, avec p_ν l'impulsion de l'antineutrino, qui sont des fonctions de Bessel sphériques car cette particule n'interagit pas avec le champ coulombien du noyau.

Behrens et Bühring introduisent ensuite les quantités $M_K(k_e, k_\nu)$ et $m_K(k_e, k_\nu)$ par :

$$\begin{aligned}
 &\frac{2}{\pi} \frac{1}{\sqrt{2K+1}} \sum_{Ls} (-1)^{K-L} \int_0^\infty q^2 dq \int_0^\infty r^2 dr \frac{(qR)^L}{(2L+1)!!} j_L(qr) F_{KLS}(q^2) \\
 &\times \sqrt{2\pi} \langle \phi_{\kappa_e, e^-} || T_{KLS}(1 + \gamma_5) || \phi_{\kappa_\nu, \bar{\nu}} \rangle \\
 &= -S_{\kappa_\nu} \alpha_{\kappa_e} \{ M_K(k_e, k_\nu) + S_{\kappa_e} m_K(k_e, k_\nu) \}
 \end{aligned} \tag{3.68}$$

Puis, ils introduisent une décomposition particulière des fonctions d'onde, qui peut se résumer ainsi :

$$\alpha_{\kappa_e} \frac{(p_e r)^{k_e-1}}{(2k_e-1)!!} \{ H_{k_e}(r) + S_{\kappa_e} h_{k_e}(r) \} = \begin{cases} f_{\kappa_e} & \text{si } \kappa_e > 0 \\ g_{\kappa_e} & \text{si } \kappa_e < 0 \end{cases} \tag{3.69}$$

$$S_{\kappa_e} \alpha_{\kappa_e} \frac{(p_e r)^{k_e-1}}{(2k_e-1)!!} \frac{r}{R} \{ D_{k_e}(r) + S_{\kappa_e} d_{k_e}(r) \} = \begin{cases} g_{\kappa_e} & \text{si } \kappa_e > 0 \\ f_{\kappa_e} & \text{si } \kappa_e < 0 \end{cases} \tag{3.70}$$

On peut alors établir que :

$$M_K(k_e, k_\nu) = \frac{2}{\pi} \frac{1}{\sqrt{2K+1}} \sum_{Ls} (-1)^{K-L} \int_0^\infty q^2 dq \int_0^\infty \frac{(qR)^L}{(2L+1)!!} j_L(qr) F_{KLS}(q^2) F^-(r) r^2 dr \tag{3.71}$$

avec :

$$\begin{aligned}
F^-(r) &= \frac{(p_e r)^{k_e-1}}{(2k_e-1)!!} H_{k_e}(r) [j_{k_\nu-1}(p_\nu r) G_{KLs}(-k_e, -k_\nu) - j_{k_\nu}(p_\nu r) G_{KLs}(-k_e, k_\nu)] \\
&+ \frac{(p_e r)^{k_e-1}}{(2k_e-1)!!} \cdot \frac{r}{R} D_{k_e}(r) [j_{k_\nu-1}(p_\nu r) G_{KLs}(k_e, -k_\nu) - j_{k_\nu}(p_\nu r) G_{KLs}(k_e, k_\nu)]
\end{aligned} \tag{3.72}$$

La quantité $m_K(k_e, k_\nu)$ s'obtient à partir de $M_K(k_e, k_\nu)$ simplement par substitution : on définit $f^-(r)$ à partir de $F^-(r)$ en remplaçant $H_{k_e}(r)$ par $h_{k_e}(r)$ et $D_{k_e}(r)$ par $d_{k_e}(r)$, et on remplace $F^-(r)$ par $f^-(r)$ dans l'expression de $M_K(k_e, k_\nu)$.

Il est possible de mener analytiquement l'intégration sur l'impulsion transférée q dans l'équation (3.71). Au final, j'ai obtenu :

$$M_K(k_e, k_\nu) = \frac{\sqrt{2}}{\sqrt{2K+1}\sqrt{2J_i+1}} \sum_{Ls} \int_0^\infty \mathcal{A}_{KLs} r^2 dr \tag{3.73}$$

Les quantités \mathcal{A}_{KLs} sont des quantités radiales qui couplent les fonctions d'onde des leptons et des nucléons :

— Composante du courant vecteur, temporelle et non-relativiste

$$\begin{aligned}
{}^V \mathcal{A}_{KK0} &= G_{KK0}(\kappa_f, \kappa_i) g_f(r, \kappa_f) F^-(r) g_i(r, \kappa_i) \\
&+ S_{\kappa_f} S_{\kappa_i} G_{KK0}(-\kappa_f, -\kappa_i) f_f(r, \kappa_f) F^-(r) f_i(r, \kappa_i)
\end{aligned} \tag{3.74}$$

— Composante du courant vecteur-axial, temporelle et relativiste

$$\begin{aligned}
{}^A \mathcal{A}_{KK0} &= S_{\kappa_i} G_{KK0}(\kappa_f, -\kappa_i) g_f(r, \kappa_f) F^-(r) f_i(r, \kappa_i) \\
&+ S_{\kappa_f} G_{KK0}(-\kappa_f, \kappa_i) f_f(r, \kappa_f) F^-(r) g_i(r, \kappa_i)
\end{aligned} \tag{3.75}$$

— Composante du courant vecteur-axial, spatiale et non-relativiste

$$\begin{aligned}
{}^A \mathcal{A}_{KL1} &= G_{KL1}(\kappa_f, \kappa_i) g_f(r, \kappa_f) F^-(r) g_i(r, \kappa_i) \\
&+ S_{\kappa_f} S_{\kappa_i} G_{KL1}(-\kappa_f, -\kappa_i) f_f(r, \kappa_f) F^-(r) f_i(r, \kappa_i)
\end{aligned} \tag{3.76}$$

— Composante du courant vecteur, spatiale et relativiste

$$\begin{aligned}
{}^V \mathcal{A}_{KL1} &= S_{\kappa_i} G_{KL1}(\kappa_f, -\kappa_i) g_f(r, \kappa_f) F^-(r) f_i(r, \kappa_i) \\
&+ S_{\kappa_f} G_{KL1}(-\kappa_f, \kappa_i) f_f(r, \kappa_f) F^-(r) g_i(r, \kappa_i)
\end{aligned} \tag{3.77}$$

Lors du calcul effectif du spectre bêta, le choix de la composante vecteur ou vecteur-axial pour (K, L, s) fixés dépend de la parité de la transition. Les règles suivantes s'appliquent, selon le changement de parité $\pi_i \pi_f$ dans la transition :

$$F_{KK0} = \begin{cases} {}^V \mathcal{M}_{KK0} & \longrightarrow {}^V \mathcal{A}_{KK0} & \text{si } \pi_i \pi_f = (-1)^K \\ \lambda {}^A \mathcal{M}_{KK0} & \longrightarrow \lambda {}^A \mathcal{A}_{KK0} & \text{si } \pi_i \pi_f = (-1)^{K+1} \end{cases} \tag{3.78}$$

$$F_{KL1} = \begin{cases} (-1)^{K-L} \lambda^A \mathcal{M}_{KL1} & \longrightarrow \lambda^A \mathcal{A}_{KL1} & \text{si } \pi_i \pi_f = (-1)^L \\ (-1)^{K-L} \nu^V \mathcal{M}_{KL1} & \longrightarrow \nu^V \mathcal{A}_{KL1} & \text{si } \pi_i \pi_f = (-1)^{L+1} \end{cases} \quad (3.79)$$

Le calcul du facteur de forme théorique selon l'équation (3.43) doit être effectué pour chaque énergie de la grille donnée en entrée. Même si certains paramètres sont bornés lorsque les autres sont fixés, le développement multipolaire est en théorie infini. La question se pose donc du contrôle de la précision du calcul, autrement dit de la sélection des termes pertinents du développement multipolaire. La stratégie que j'ai adoptée est la suivante. Avant le calcul pour chaque énergie de la grille, le code effectue une pré-analyse en milieu de spectre à l'énergie $E_{max}/2$. Un nombre suffisamment important de valeurs de k_e est testé, assurant de ne rater aucun terme significatif. Pour chaque valeur de k_e , les termes sont calculés pour toutes les valeurs possibles de (K, L, s, k_ν) apportant une contribution $C_{Kk_e k_\nu}$ au facteur de forme théorique total C . Seuls ceux contribuant à plus de $10^{-5}\%$ à C sont conservés.

Il reste à déterminer les fonctions d'onde des nucléons à partir d'un modèle nucléaire. J'ai suivi Behrens et Bühring dans [Beh82] en considérant le modèle le plus simple : un oscillateur harmonique non relativiste pour la grande composante. La petite composante est estimée en prenant la limite non relativiste des équations radiales (3.5). Le choix des orbitales des nucléons initiaux et finaux est fait à partir d'un modèle en couche très simple comme donné dans [Val89]. J'ai également dérivé les solutions complètes pour un oscillateur de Dirac, aussi appelé oscillateur harmonique relativiste, en suivant la méthode exposée dans [Str98]. Pour ces deux oscillateurs, j'ai choisi une fréquence très simple donnant le bon ordre de grandeur, $\hbar\omega = 41A^{-1/3}$ MeV.

Voyons maintenant comment cette modélisation s'applique dans deux cas favorables, c'est-à-dire pour lesquels la transition neutron \longrightarrow proton doit être une bonne approximation.

L'état fondamental $9/2^+$ du ^{209}Pb se désintègre par une transition première interdite non-unique vers l'état fondamental $9/2^-$ du ^{209}Bi . C'est un cas idéal pour tester le modèle développé : un nucléon seul dans une orbite aisément identifiable ne ressentant que le champ moyen du cœur doublement magique ^{208}Pb . La transition à calculer est donc $|n, 2g_{9/2} \rangle \longrightarrow |p, 1h_{9/2} \rangle$. Sur les 170 $C_{Kk_e k_\nu}$ calculés en milieu de spectre, seuls 6 sont retenus. Les facteurs de forme pour les deux types d'oscillateurs sont présentés en figure 3.7 à gauche et sont comparés à un facteur de forme expérimental avec son enveloppe d'incertitude. On observe que l'oscillateur harmonique relativiste (RHO) produit un facteur de forme en très bon accord avec la mesure, contrairement à l'oscillateur harmonique non relativiste (NRHO). Ceci peut s'expliquer par le fait que le terme multipolaire dominant $^A\mathcal{M}_{KK0}$ est relativiste, montrant l'importance d'une bonne estimation des petites composantes par rapport aux grandes composantes dans ce cas. Cependant, on observe la tendance inverse sur les périodes partielles : $t_{NRHO} = 2.874$ h est du bon ordre de grandeur par rapport à la valeur évaluée $t_{exp} = 3.234(7)$ h, alors que $t_{RHO} = 252.2$ h ne l'est clairement pas. L'amplitude des éléments de matrice nucléaire n'est donc pas correcte dans le cas RHO, ce qui peut s'expliquer par une valeur de $\hbar\omega$ établie pour des fonctions d'onde non relativistes.

L'état fondamental 4^- du ^{40}K se désintègre par une transition troisième interdite unique vers l'état fondamental 0^+ du ^{40}Ca . Ce dernier peut être vu comme l'état de vide de

référence pour une excitation particule-trou dans le ^{40}K . Si l'on décrit l'état fondamental du ^{40}K par la configuration $|n, 1f_{7/2}; p^{-1}, 1d_{3/2}\rangle$, on peut montrer que chaque élément de matrice à une particule doit être renormalisé d'un facteur 3, ce qui n'a pas d'influence sur la forme du spectre. Sur les 56 $C_{Kk_e k_\nu}$ calculés en milieu de spectre, seuls 4 sont retenus. Les facteurs de forme pour les deux types d'oscillateurs sont présentés en figure 3.7 à droite et sont comparés à un facteur de forme expérimental, pour lequel aucune incertitude n'est donnée. On observe dans les deux cas un bon accord avec l'expérience, ce qui est cohérent avec une transition troisième interdite unique dont le terme multipolaire dominant $^A\mathcal{M}_{KL1}$ est non relativiste. Cela montre que la description de la structure nucléaire, dans ce cas précis, est proche de la réalité. Cette fois-ci, j'obtiens un meilleur accord avec la valeur expérimentale $t_{exp} = 1.4010(43) \cdot 10^9$ a dans le cas relativiste, avec $t_{RHO} = 1.281 \cdot 10^8$ a, que dans le cas non relativiste, avec $t_{NRHO} = 2.748 \cdot 10^7$ a.

Notons pour conclure que ces deux exemples sont des cas très favorables pour le modèle présenté ici. Dans la très grande majorité des cas, un modèle nucléaire beaucoup plus raffiné et précis est nécessaire. Le modèle de désintégration bêta doit alors être complexifié pour prendre en compte divers effets, par exemple des mélanges de configurations de nucléons ou la déformation du noyau.

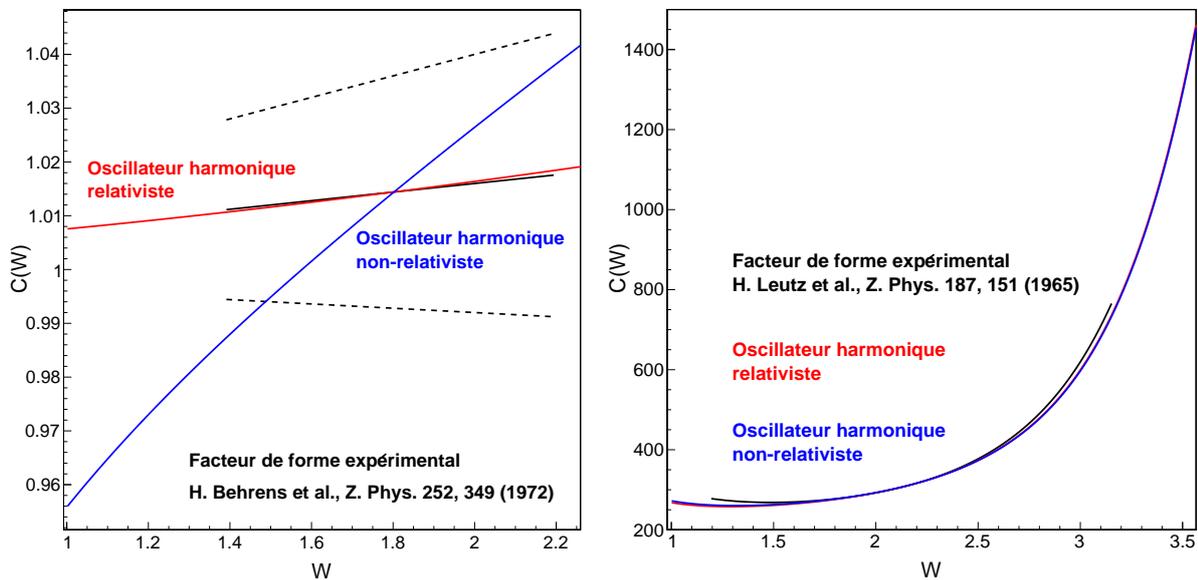
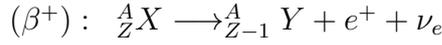
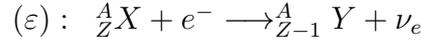


FIGURE 3.7 – Facteurs de formes théoriques pour le ^{209}Pb à gauche et le ^{40}K à droite. (Bleu) Oscillateur harmonique non relativiste. (Rouge) Oscillateur harmonique relativiste. (Noir) Facteur de forme expérimental dans son intervalle de mesure, les courbes pointillées correspondent à l'enveloppe d'incertitude.

3.2 Captures électroniques

La capture électronique est un processus isobarique qui entre en compétition avec la désintégration β^+ :



L'énergie disponible pour la transition est déterminée par le Q-value et les énergies des états nucléaires initiaux et finaux, soit $E_{\max} = Q + E_i - E_f$, et l'énergie totale normalisée est $W_0 = (1 + E_{\max}/m_e) - 2$. L'énergie de recul du noyau peut être négligée, la plus grande connue étant de 57 eV dans la désintégration du ${}^7\text{Be}$. Une transition bêta plus n'est possible que si $E_{\max} = 2m_e$ et l'énergie maximale du spectre bêta est alors $E_{\beta^+} = E_{\max} - 2m_e$.

De par sa nature même, la désintégration par capture électronique dépend fortement de la structure atomique des radionucléides impliqués. Des prédictions théoriques précises nécessitent des fonctions d'onde précises des états liés, et il est bien connu qu'une modélisation relativiste est obligatoire pour des nombres atomiques $Z \gtrsim 50$. Comme nous ne considérons pas d'expérience sensible aux sous-états magnétiques, nous labélisons un état lié par deux nombres quantiques (n, κ) , que l'on condense en κ_x lorsque cette notation n'est pas ambiguë. L'énergie E_{κ_x} d'une orbitale est par définition négative et $W_{\kappa_x} = 1 - |E_{\kappa_x}|/m_e$ est l'énergie totale correspondante. L'impulsion du neutrino, supposée sans masse, vaut $q_{\kappa_x} = W_0 + W_{\kappa_x}$ et celle de l'électron capturé vaut $p_{\kappa_x} = \sqrt{1 - W_{\kappa_x}^2}$. Une fonction d'onde est symbolisée par $|(n, \kappa) \rangle$ ou $|(n, \kappa)' \rangle$ dans l'atome père ou fils respectivement. Pour chaque orbitale atomique, il est nécessaire de connaître son énergie, son nombre d'occupation N_{κ_x} , sa fonction d'onde dans tout l'espace, incluant son amplitude coulombienne β_{κ_x} .

3.2.1 Probabilités de transition

Contrairement à la désintégration bêta, la capture électronique est un processus à deux corps où les énergies des particules sont bien définies. Malgré cette différence, l'interaction faible agit d'une manière très similaire et une symétrie existe entre les deux formalismes. Une désintégration se produit entre un état nucléaire initial du noyau père de spin et parité (J_i, π_i) et un état nucléaire final (J_f, π_f) du noyau fils. Les transitions sont classées comme pour la décroissance bêta (voir le tableau 3.1). Par cohérence avec le travail effectué pour les transitions bêta, le formalisme de Behrens et Bühring [Beh82] a été privilégié.

La probabilité totale de désintégration pour une transition est donnée par :

$$\lambda_\varepsilon = \frac{G'_\beta{}^2}{2\pi^3} \sum_{\kappa_x} \frac{\pi}{2} n_{\kappa_x} C_{\kappa_x} q_{\kappa_x}^2 \beta_{\kappa_x}^2 B_{\kappa_x} \left(1 + \sum_{m, \kappa} P_{m\kappa} \right) \quad (3.80)$$

où $n_{\kappa_x} = N_{\kappa_x}/2|\kappa_x|$ est le nombre d'occupation relatif. Notons que n_{κ_x} est ignoré dans le modèle du programme LogFT. Nous verrons les termes restants dans les sections suivantes. Le terme C_{κ_x} est similaire au facteur de forme dans la désintégration bêta et couple les fonctions d'onde leptoniques et nucléaires. Le terme B_{κ_x} corrige des effets atomiques de recouvrement et d'échange. Le terme entre parenthèse corrige des effets d'excitation et d'ionisation internes (*shaking*).

Comme pour les transitions bêta, les éléments de matrice nucléaire présents dans C_{κ_x} se factorisent dans le cas des transitions permises et interdites uniques. La méthode usuelle pour éviter de les calculer consiste alors à déterminer les probabilités de capture relatives P_{κ_x} . La probabilité de capture de référence est la plupart du temps P_K , sauf dans les rares cas où la capture sur la couche K est énergétiquement impossible. Les P_{κ_x} sont reliés aux probabilités de désintégration par $\lambda_{\kappa_x}/\lambda_K = P_{\kappa_x}/P_K$, ce qui permet de calculer les rapports P_{κ_x}/P_K pour chaque orbitale. Il suffit ensuite de se servir de la relation qui définit les probabilités de capture relatives $\sum_{\kappa_x} P_{\kappa_x} = 1$ pour déterminer P_K , puis tous les P_{κ_x} .

Si l'énergie de la transition est suffisante, la probabilité d'émission β^+ n'est pas nulle et l'on s'intéresse alors aux rapports de probabilités capture sur bêta plus (ε/β^+). Le terme de la somme dans l'équation (3.80) est souvent condensé en $n_{\kappa_x} C_{\kappa_x} f_{\kappa_x}$. Le rapport de probabilité ε/β^+ pour une orbitale donnée est :

$$\frac{\lambda_x}{\lambda_{\beta^+}} = \frac{n_{\kappa_x} C_{\kappa_x} f_{\kappa_x}}{f_{\beta^+}} \quad (3.81)$$

où f_{β^+} est l'intégrale du spectre bêta incluant le facteur de forme selon le degré d'interdiction de la transition. Le rapport de probabilité ε/β^+ total se déduit aisément.

3.2.2 Fonctions d'onde des états liés

Nous avons déjà vu la méthode de calcul des fonctions d'onde atomiques relativistes que j'ai développée dans la section précédente. Au début de cette étude, j'ai utilisé la première version, décrite dans [Mou14] et utilisant les énergies de [Des73]. Les résultats décrits dans [Mou18] n'étaient pas très satisfaisants car ces fonctions d'onde n'étaient pas suffisamment précises. Par la suite, j'ai utilisé la deuxième version, qui utilise les énergies atomiques plus précises de [Kot97].

Cependant, la procédure itérative utilisée pour déterminer les fonctions d'onde atomiques est gourmande en temps de calcul. Par ailleurs, les énergies atomiques de [Kot97] ne sont disponibles que jusqu'à $Z = 92$, ce qui ne permet pas d'appliquer le modèle sur toute la carte des noyaux. Pour pallier ces difficultés, j'ai extrapolé les énergies des différentes orbitales jusqu'à $Z = 120$. Puis, j'ai négligé le faible décalage isotopique des énergies atomiques, qui provient du noyau à la fois par un effet de masse et un effet de volume [Pal10]. Pour chaque Z , j'ai fixé le nombre de masse A en utilisant la formule empirique donnée dans [Ang99] pour le nombre de protons le long de la ligne de stabilité. Toutes les fonctions d'onde atomiques de $Z = 1$ à $Z = 120$ ont été calculées et les paramètres pertinents ont été tabulés. Au final, le calcul des captures électroniques se trouve considérablement accéléré car la procédure itérative est évitée.

Ces fonctions d'onde sont déterminées en considérant un atome neutre avec son cortège électronique dans l'état fondamental. Cependant, le processus de capture crée une vacance dans une couche de l'atome père et diminue le nombre atomique d'une unité. L'atome fils est donc globalement neutre mais dans un état excité. La capture est instantanée par rapport à la relaxation atomique et il est important de prendre en compte cet effet dit de trou. Des fonctions d'onde approchées peuvent être obtenues en appliquant la théorie des perturbations indépendantes du temps [Vat70]. L'hamiltonien de la perturbation est construit à partir de la variation de charge du noyau et en retirant l'influence moyenne de

l'électron capturé (n, κ) :

$$H' = \frac{\alpha}{r} - \langle (n, \kappa) | \frac{\alpha}{|\vec{r}_{n\kappa} - \vec{r}'|} | (n, \kappa) \rangle \quad (3.82)$$

La fonction d'onde d'une orbitale de l'atome fils est alors celle de l'atome père, corrigée de la perturbation qui mélange cet état avec les autres états de même nombre quantique κ :

$$|(i, \kappa)' \rangle = |(i, \kappa) \rangle - \sum_{j \neq i} \frac{\langle (j, \kappa) | H' | (i, \kappa) \rangle}{W_j - W_i} |(j, \kappa) \rangle \quad (3.83)$$

Comme le modèle de capture électronique que j'ai développé ne nécessite que des recouvrements de fonctions d'onde, cet effet n'est corrigé que dans les recouvrements asymétriques :

$$\langle (j, \kappa)' | (i, \kappa) \rangle = \frac{\langle (j, \kappa) | H' | (i, \kappa) \rangle}{W_j - W_i} \quad (3.84)$$

où j'ai déterminé que :

$$\begin{aligned} \langle (j, \kappa) | H' | (i, \kappa) \rangle &= \int_0^\infty (\alpha r) [f_{j\kappa}(r)f_{i\kappa}(r) + g_{j\kappa}(r)g_{i\kappa}(r)] \times \\ &\quad \left\{ 1 - \int_0^r x^2 [f_{n\kappa}^2(x) + g_{n\kappa}^2(x)] dx - r \int_r^\infty x [f_{n\kappa}^2(x) + g_{n\kappa}^2(x)] dx \right\} dr \end{aligned} \quad (3.85)$$

3.2.3 Effets de recouvrement et d'échange

Les désintégrations par capture électronique sont particulièrement sensibles aux effets atomiques. Les deux effets majeurs discutés dans cette section sont dus à l'indiscernabilité des électrons et au changement de la charge nucléaire entre le noyau initial et le noyau final.

À l'ordre zéro, les électrons atomiques qui ne sont pas directement impliqués dans le processus de capture peuvent être considérés comme spectateurs, et leur contribution à la probabilité de capture négligée. En réalité, la variation du nombre de protons dans le noyau implique que les états atomiques initiaux et finaux ne sont pas parfaitement orthogonaux. Même si les recouvrements symétriques $\langle (n, \kappa)' | (n, \kappa) \rangle$ sont proches de 1, l'effet cumulé pour tous les électrons spectateurs induit une contribution importante, qu'il est nécessaire de prendre en compte. C'est ce que l'on appelle l'effet de recouvrement.

Les électrons de même nombre quantique κ étant indiscernables, l'électron capturé ne vient pas nécessairement de l'orbitale où apparaît la vacance. Par exemple, dans la capture d'un électron de la couche K, cela peut être vu comme un processus virtuel dans lequel un électron d'une orbitale supérieure (L_1 , M_1 , etc.) est capturé et un électron de la couche K est promu sur cette orbitale. L'état final, une vacance dans la couche K, est alors identique à une capture K directe et ne peut pas être distingué expérimentalement. C'est ce que l'on appelle l'effet d'échange, qui dépend des recouvrements asymétriques $\langle (m, \kappa)' | (n, \kappa) \rangle$.

Dans la littérature, deux modèles existent pour corriger ces effets. La difficulté majeure pour calculer les éléments de la matrice atomique est due au processus d'ionisation interne : un nombre infini d'états atomiques finaux contribue de manière significative à la probabilité de désintégration. J.N. Bahcall a proposé de contourner cette difficulté en

ne considérant que les électrons des couches K, L₁ et M₁ [Bah65]. Les autres électrons sont supposés être spectateurs et former un ensemble d'états complet. Les corrections B_K , B_{L_1} et B_{M_1} sont établies en utilisant la relation de fermeture. Dans cette approche, les fonctions d'onde sont non relativistes et l'effet de trou dû à l'électron capturé est négligé. La seconde approche, là encore non relativiste, a été proposée par E. Vatai [Vat70]. Il a étendu la correction de Bahcall à la couche N₁, a pris en compte l'effet de trou dû à la capture ainsi que les recouvrements symétriques pour l'ensemble des électrons. J'ai unifié ces deux approches dans une même formulation relativiste, cohérente avec le formalisme de Behrens et Bühring, et je l'ai étendue à toutes les orbitales atomiques. La correction de recouvrement et d'échange pour un électron capturé (n, κ) est alors définie par :

$$B_{n\kappa} = \left| \frac{b_{n\kappa}}{\beta_{n\kappa}} \right|^2 \quad (3.86)$$

avec :

$$b_{n\kappa} = t_{n\kappa} \left[\prod_{m \neq n} \langle (m, \kappa)' | (m, \kappa) \rangle \right] \left[\beta_{n\kappa} - \sum_{m \neq n} \beta_{m\kappa} \frac{\langle (m, \kappa)' | (n, \kappa) \rangle}{\langle (m, \kappa)' | (m, \kappa) \rangle} \right] \quad (3.87)$$

L'approche de Bahcall généralisée s'obtient avec $t_{n\kappa} = 1$. Celle de Vatai s'obtient avec :

$$t_{n\kappa} = \langle (n, \kappa)' | (n, \kappa) \rangle^{n_{n\kappa} - 1/2|\kappa|} \times \left[\prod_{m \neq n} \langle (m, \kappa)' | (m, \kappa) \rangle^{n_{m\kappa} - 1} \right] \left[\prod_{\substack{m, \mu \\ \mu \neq \kappa}} \langle (m, \mu)' | (m, \mu) \rangle^{n_{m\mu}} \right] \quad (3.88)$$

La dégénérescence des orbitales et la disparition de l'électron capturé sont correctement prises en compte. L'échange avec tous les autres électrons de κ identiques est bien considéré, l'échange avec les électrons de κ différents étant interdit.

3.2.4 Création de vacances secondaires

Jusqu'ici, notre vision du processus de capture a été quelque peu simplificatrice car elle considère que les autres électrons atomiques sont spectateurs. Il existe d'autres états atomiques finaux accessibles à la désintégration faible dans lesquels les électrons spectateurs changent d'état. Nous ne considérons pas ici un processus qui aurait lieu lors du réarrangement du cortège électronique. Une transition par interaction faible se produit à l'échelle de temps nucléaire ($\sim 10^{-24}$ s), tandis que la relaxation atomique se produit à l'échelle de temps atomique ($\sim 10^{-18}$ s). On peut donc considérer en toute sécurité que ces processus sont indépendants. La capture laisse l'atome fils dans un état excité et l'énergie atomique est libérée par émission de rayons X ou d'électrons Auger².

Nous considérons bien ici un processus qui a lieu en même temps que la capture et qui ouvre des canaux de désintégration supplémentaires. Comme nous l'avons vu, la modification de la charge nucléaire et la vacance créée par le processus de capture induisent que les recouvrements symétriques $\langle (n, \kappa)' | (n, \kappa) \rangle$ ne valent pas 1. Il existe donc une

2. Notons au passage que si l'électron capturé se trouve dans la couche de valence, la désintégration ne peut être détectée qu'en mesurant le recul du noyau ou le neutrino émis.

probabilité non nulle qu'un électron spectateur soit promu sur une orbitale vide ou éjecté dans le continuum. Ces effets de shaking créent des vacances multiples mais la probabilité de créer plus d'une vacance secondaire est négligeable.

Les effets de *shake-up* (excitation interne) et de *shake-off* (ionisation interne) créent donc des vacances secondaires dans le cortège électronique et sont usuellement traités comme des processus indépendants du temps dans le cadre de l'approximation soudaine. L'utilisation de la relation de fermeture dans l'approche de Bahcall pour déterminer les effets de recouvrement et d'échange prend en compte intrinsèquement ces créations de vacances, mais tend à les surestimer [Bam77]. L'approche de Vatai n'en tient tout simplement pas compte et il est nécessaire d'introduire une correction.

En principe, l'estimation du shake-off requiert de lourds calculs qui dépendent du recouvrement entre les fonctions d'onde des états liés et du continuum. Il est possible de contourner la difficulté en remarquant que chaque électron n'a que trois possibilités dans l'état final : *i*) rester dans son état d'origine ; *ii*) être excité vers un état inoccupé (*shake-up*) ; et *iii*) être ionisé dans le continuum (*shake-off*). En tenant compte du principe de Pauli qui interdit les transitions atomiques vers des états liés occupés, la probabilité totale de shaking pour un électron dans une orbitale (m, κ) est [Cra79] :

$$P_{m\kappa} = 1 - \langle (m, \kappa)' | (m, \kappa) \rangle^{2n_{m\kappa}} - \sum_{l \neq m} \langle (l, \kappa)' | (m, \kappa) \rangle^2 \quad (3.89)$$

Pour chaque électron capturé dans un état (n, κ) , la probabilité de création de deux vacances dans l'état final doit être additionnée à celle pour la capture régulière conduisant à une seule vacance dans l'état final. Il faut donc appliquer la correction suivante :

$$\lambda_{n\kappa} \longrightarrow \lambda_{n\kappa} \left(1 + \sum_{m, \kappa} P_{m\kappa} \right) \quad (3.90)$$

3.2.5 Corrections radiatives

L'énergie d'une transition par capture électronique est partagée entre le neutrino émis et le noyau. Dans ce processus à deux corps, toutes les énergies sont bien définies. Dans le processus de capture radiative, un ou plusieurs photons sont émis et l'énergie est alors partagée entre au moins trois particules, créant un spectre photonique continu : c'est le processus de *bremsstrahlung* interne. La probabilité d'émission d'un seul photon par un tel processus est en général d'environ 0.01% par événement de capture. Les processus à deux photons ou plus sont donc largement négligeables. Avec une probabilité aussi faible, est-il nécessaire de prendre en compte ces corrections radiatives pour calculer les captures électroniques ? En fait, leur contribution est beaucoup plus importante lorsque l'on considère les rapports de probabilité ε/β^+ en raison de l'émission bêta plus. Il faut noter également que le modèle développé ici détermine des rapports de probabilités de capture pour les différentes sous-couches et que les corrections radiatives peuvent être différentes d'une sous-couche à l'autre.

Plusieurs modèles existent dans la littérature pour la capture radiative [Bam77, Pac07]. Ils se limitent cependant aux orbitales les plus liées. Par ailleurs, ces corrections radiatives sont loin d'être aussi précises que dans le cas des transitions bêta. Il faut donc restreindre

les corrections radiatives au même niveau de précision pour les captures et les transitions bêta plus lorsque l'on considère les rapports de probabilités ε/β^+ . Par souci de cohérence globale du modèle que j'ai développé et pour qu'il reste applicable à tous les radionucléides, j'ai privilégié une théorie simple qui néglige l'interaction coulombienne [Mor40]. Le taux total de capture radiative pour un électron dans un état ns par capture K s'obtient en intégrant sur l'impulsion k du photon émis :

$$\frac{\omega_{ns}}{\omega_K} = \frac{1}{\omega_K} \int_0^{q_{ns}} \frac{\alpha \beta_{ns}^2}{\pi \beta_K^2} \frac{k(q_{ns} - k)^2}{q_K^2} dk \quad (3.91)$$

Pour les rapports ε/β^+ , j'ai suivi la formulation dans [Hol79] qui estime la partie capture par cette théorie simple, et la partie bêta plus en ne conservant que la partie dépendant de l'énergie. La correction à appliquer est alors :

$$\varepsilon/\beta^+ \longrightarrow \varepsilon/\beta^+ \times (1 + \delta_{r,\varepsilon}) \quad (3.92)$$

avec :

$$\delta_{r,\varepsilon} = \frac{\alpha}{2\pi} \left(3 \ln \frac{m_p}{m_e} - \frac{27}{4} \right) + \frac{\alpha}{12\pi} (W_0 + 1)^2 - \langle \delta_\beta \rangle \quad (3.93)$$

où $\langle \delta_\beta \rangle$ est la moyenne de la correction radiative appliquée au spectre bêta plus. La correction pour chaque orbitale ns se déduit aisément en remplaçant $(W_0 + 1)^2$ par q_{ns}^2 . Pour estimer la correction pour les orbitales $\kappa \neq -1$, on peut soustraire la contribution de toutes les orbitales ns de la correction totale :

$$\delta_{r,\varepsilon} \lambda_\varepsilon - \sum_n \delta_{r,ns} \lambda_{ns} = \sum_{\kappa_x \neq (ns)} \delta_{r,\kappa_x} \lambda_{\kappa_x} \quad (3.94)$$

puis j'ai considéré une correction radiative moyenne $\delta_{r,\neq ns}$ identique pour toutes les orbitales :

$$\delta_{r,\neq ns} = \left(\delta_{r,\varepsilon} \lambda_\varepsilon - \sum_n \delta_{r,ns} \lambda_{ns} \right) / \sum_{\kappa_x \neq (ns)} \lambda_{\kappa_x} \quad (3.95)$$

Comme ces corrections ont été estimées à partir de la théorie simple de [Mor40], on s'attend à ce qu'elles soient surestimées. Toutefois, comme leur contribution absolue est raisonnablement faible, le biais induit devrait être inférieur aux incertitudes expérimentales actuelles, sauf dans le cas de mesures de grande précision de transitions de basse énergie pour lesquelles une modélisation plus précise devrait être utilisée.

3.2.6 Comparaison aux valeurs expérimentales

J'ai comparé les prévisions théoriques de ce modèle de capture électronique à des mesures précises disponibles dans la littérature. Les valeurs expérimentales sélectionnées sont détaillées dans [Mou18, Mou19]. En utilisant les énergies atomiques de [Des73], il n'a pas été possible de faire la distinction entre les prédictions utilisant les approches de Bahcall ou de Vatai [Mou18]. Avec les énergies atomiques de [Kot97], l'utilisation de fonctions d'ondes plus précises a une influence significative. L'approche de Vatai conduit systématiquement à des prédictions plus proches des mesures que l'approche de Bahcall. Cela semble raisonnable car l'approche de Vatai repose sur une meilleure description physique des effets de

recouvrement et d'échange. L'approche de Bahcall reste utilisée dans le modèle que j'ai développé pour quantifier les incertitudes théoriques [Mou18].

Ces résultats sont présentés en figure 3.8 pour un large éventail de Z et pour des transitions permises, premières et deuxièmes interdites uniques. Il est clair que notre modélisation fournit des prédictions cohérentes avec les mesures, sauf dans deux cas. Le premier est le rapport ε/β^+ dans la désintégration ^{22}Na qui a été discuté dans [Mou18] et pour lequel j'ai souligné l'incohérence des données expérimentales et la nécessité d'une nouvelle mesure précise. Toutefois, la différence absolue, 0.0026(13), est faible. Le second cas concerne le rapport L/K du ^{138}La , dont la valeur mesurée a une incertitude relative inférieure à 0.8%. Une incertitude aussi faible est un défi pour toute modélisation. Là encore, la différence absolue, 0.012(9), est faible et se situe à la limite de la signification statistique.

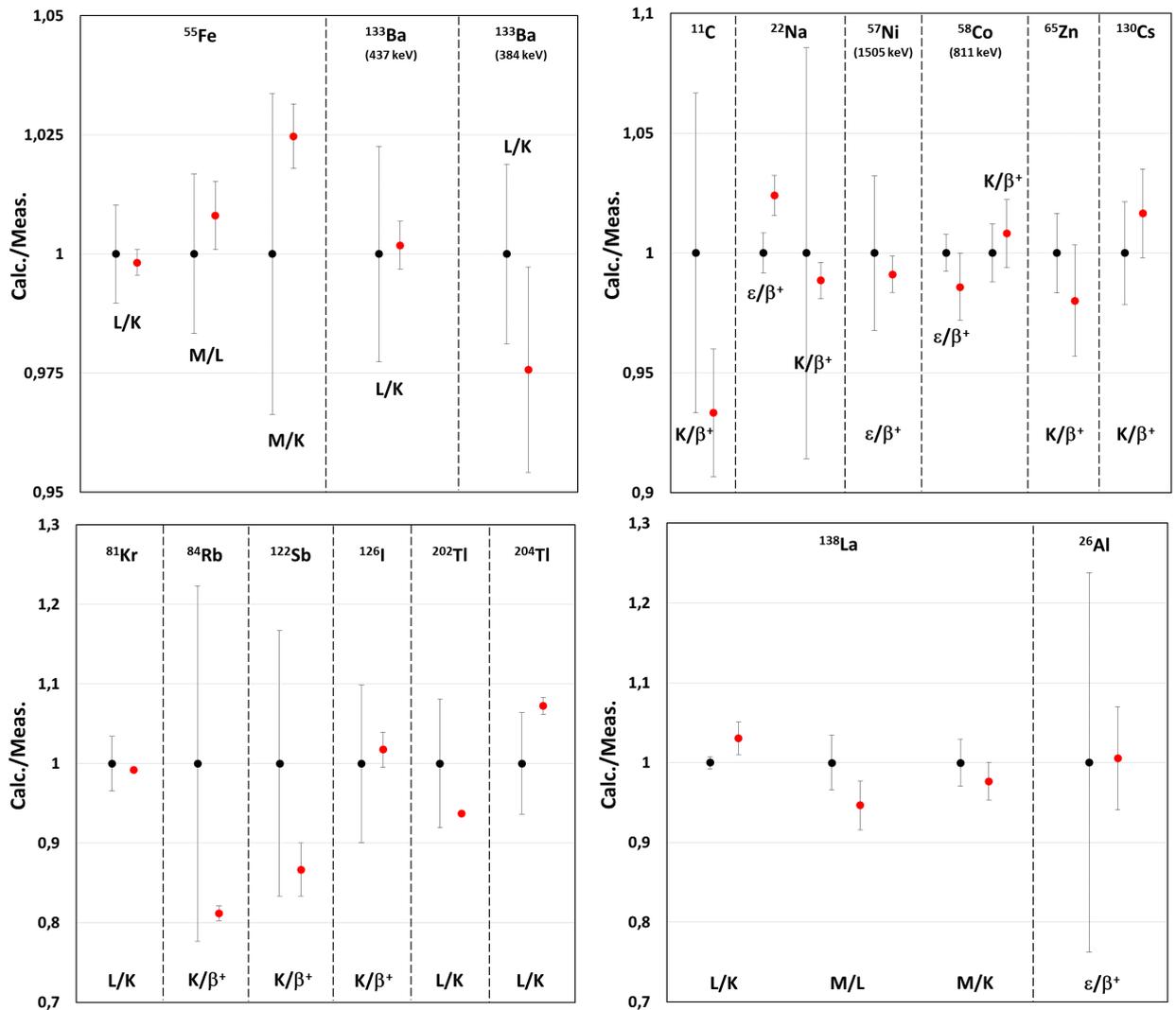


FIGURE 3.8 – Comparaison aux mesures de nos prédictions théoriques pour différents rapports de probabilités de capture. (*Haut*) Transitions permises. (*Bas, gauche*) Transitions premières interdites uniques. (*Bas, droite*) Transitions deuxièmes interdites uniques. Les points noirs illustrent les incertitudes expérimentales. Les points rouges sont des rapports entre les valeurs calculées et les valeurs mesurées, avec des incertitudes théoriques.

Enfin, on peut noter pour certaines transitions une différence de plusieurs pourcents entre théorie et expérience, même si les valeurs restent cohérentes avec les incertitudes. Bien sûr, cette différence peut être due à la précision de la mesure, certaines ayant une incertitude importante. Cependant, je tiens à souligner la grande sensibilité des calculs de capture électronique à la précision des énergies utilisées, tant les énergies atomiques que les énergies d'entrée issues des Q-values et des niveaux nucléaires. J'ai participé récemment à l'analyse d'une mesure de grande précision du Q-value du ^{138}La à l'aide d'un piège de Penning [San19]. La valeur mesurée du rapport L/K est de 0.391(3) [Qua16]. La valeur issue de l'évaluation des masses atomiques la plus récente est $Q_\varepsilon = 1742(3)$ keV [Wan17] et donne la valeur calculée $L/K = 0.403(8)$. La nouvelle valeur mesurée dans [San19], dix fois plus précise, est $Q_\varepsilon = 1748.41(34)$ keV. En ne changeant que ce seul paramètre, j'obtiens une valeur calculée $L/K = 0.3913(26)$ pour cette transition deuxième interdite unique, parfaitement compatible avec l'expérience. Ainsi, une variation inférieure à 0.4% de l'énergie de la transition conduit à une variation de 3% du rapport L/K.

3.3 Applications

3.3.1 Données nucléaires

Rapidement après sa mise à disposition à l'occasion de la conférence ND2016³, le code BetaShape a été officiellement adopté par le DDEP pour les évaluations de données nucléaires. Il a récemment été couplé à la LiveChart⁴ de l'AIEA qui met à disposition l'ensemble des données nucléaires évaluées dans le monde, recommandant ainsi les spectres bêta calculés par ce code. Notons enfin que BetaShape a été utilisé par une équipe américaine pour une étude publiée dans Physical Review Letters à propos des spectres antineutrino issus des réacteurs [Son17].

Je présente maintenant une étude systématique des transitions bêta existantes, ainsi qu'un exemple d'application aux données nucléaires du modèle de capture électronique avec l'évaluation du ^{40}K .

3.3.1.1 Étude systématique de la carte des noyaux

Les résultats de BetaShape ont été comparés aux résultats de LogFT pour l'ensemble des transitions bêta présentes dans la base de données ENSDF⁵. L'étude la plus récente des $\log ft$ a été réalisée par B. Singh *et al.* il y a 20 ans [Sin98]. Cette étude comprenait à la fois les transitions bêta et les captures électroniques et utilisait les données de désintégration présentes dans la base de données ENSDF, dans laquelle un grand nombre de $\log ft$ avait été déterminé avec LogFT.

Notons que le programme LogFT ne vérifie pas la cohérence entre le degré d'interdiction de la transition et les spins et parités des états nucléaires, informations données dans le fichier d'entrée. De plus, les énergies moyennes et les $\log ft$ dans la base de données ne proviennent pas nécessairement de LogFT, en fonction des choix de l'évaluateur. Enfin

3. *International Conference on Nuclear Data for Science and Technology*, Bruges, Belgique, Septembre 2016.

4. <https://www-nds.iaea.org/relnsd/vcharthtml/VChartHTML.html>

5. La version archivée de 2015 a été utilisée pour cette étude.

à l'exécution, LogFT calcule et modifie les intensités ε et β^+ , faisant parfois disparaître ou apparaître certaines transitions par rapport à celles présentes dans la base de données originale. Il faut donc s'assurer que l'on compare des résultats comparables, c'est-à-dire que chaque code utilise les mêmes données d'entrée pour effectuer les calculs. Dans un premier temps, j'ai utilisé BetaShape pour corriger dans la base de données le degré d'interdiction selon l'approximation ξ . Puis, j'ai exécuté LogFT sur les fichiers de sortie ENSDF générés par BetaShape. Finalement, BetaShape a été exécuté à nouveau sur l'ensemble des fichiers de sortie ENSDF généré par LogFT.

Un total de 35 132 transitions associées à 1 551 noyaux pères a été lu dans l'ensemble de la base de données ENSDF : 11 897 β^- , 9 871 β^+ , 13 149 ε et 215 transitions omises. Les états fondamentaux et métastables sont comptabilisés comme un seul et même noyau. Les transitions omises correspondent à des transitions non placées pour lesquelles aucune énergie maximale ne peut être déduite, des désintégrations double bêta et des transitions qui sont énergiquement impossibles. Les calculs ont été effectués uniquement pour les transitions avec $I_\beta > 0$ et $E_{\max} > 0$ keV. Cette sélection très simple diminue le nombre de transitions bêta de 21 768 à 19 602, parmi lesquelles 4 529 ont été classées comme permises par défaut car les spins et les parités des niveaux nucléaires étaient manquants. Après avoir exécuté le programme LogFT sur la base de données, de nouvelles transitions ε/β^+ apparaissent car leurs intensités sont recalculées, ce qui donne un total de 20 066 transitions bêta.

La cohérence des énergies moyennes et des $\log ft$ a été testée à 1σ , 2σ et 3σ , correspondant à des intervalles de confiance de 68%, 95% et 99% respectivement si l'on considère une incertitude-type gaussienne. Dans le tableau 3.2, l'accent a été mis sur les résultats incohérents entre LogFT et BetaShape pour lesquels l'écart entre les énergies moyennes ou les $\log ft$ est supérieur à 1%. Comme attendu, les énergies moyennes de BetaShape et de LogFT sont en excellent accord pour les transitions permises et premières interdites non-unique. Pour les autres types de transition, plus le niveau d'interdiction est élevé, plus le désaccord est important. Ces constatations sont assez similaires pour les $\log ft$, même si les transitions premières interdites uniques présentent le meilleur accord. Cela est dû au traitement différent des deux codes lorsqu'aucune incertitude n'est présente pour les périodes ou les intensités dans les fichiers d'entrée. Cette comparaison valide clairement le code BetaShape pour les transitions permises bien connues et met en évidence les différences avec LogFT provenant des améliorations de la modélisation physique pour les transitions d'ordre supérieur.

Enfin, le calcul approximatif équation (3.32) utilisé par BetaShape pour déterminer les $\log ft$ des transitions ε/β^+ a été testé en examinant les prédictions incohérentes à 1σ . La comparaison des résultats ne peut être faite que pour les transitions calculées comme permises, premières et deuxièmes interdites uniques car les transitions de degrés d'interdiction plus élevés ne peuvent pas être calculées par le programme LogFT. Sur un total de 8 506 transitions, 21 $\log ft$ incohérents ont été trouvés. Pour ceux calculés comme des : *i) permises* – BetaShape a utilisé des facteurs de forme expérimentaux pour trois transitions, et 17 transitions (sur 6 432 permises et 1 257 premières interdites non-unique) n'avaient aucune incertitude sur les intensités et présentaient un écart $\leq 2.5\%$; *ii) premières interdites uniques* – aucun $\log ft$ incohérent n'est apparu parmi les 389 transitions premières interdites uniques et les 289 transitions deuxièmes interdites non-unique; *iii) deuxièmes interdites uniques* – un seul $\log ft$ incohérent est apparu, avec une différence de 1.3%,

TABLE 3.2 – Proportion (en %) de transitions d’une même nature pour lesquelles les énergies moyennes et les $\log ft$ des programmes LogFT et BetaShape diffèrent de plus de 1% à 1σ , 2σ et 3σ . Les transitions interdites uniques et non-unes sont indiquées par nfu and $nfnu$, respectivement.

Nature	$\Delta E > 1\%$			$\Delta \log ft > 1\%$		
	1σ	2σ	3σ	1σ	2σ	3σ
Permisses	0.06	0.05	0.05	1.4	0.53	0.30
1fnu	0.74	0.63	0.63	6.1	3.8	2.9
1fu	5.9	3.1	2.2	0.64	0.18	0.09
2fnu	5.9	3.4	2.5	1.3	0.95	0.95
2fu	8.6	2.0	1.0	1.5	1.5	1.5
3fnu	18	10	6.3	1.3	1.3	1.3
3fu	68	58	47	79	74	74
4fnu	43	36	29	75	71	68
4fu	33	22	22	89	89	89
5fnu	100	100	100	100	100	100
5fu	100	50	50	100	100	100
Total	0.97	0.60	0.48	2.5	1.4	1.1

TABLE 3.3 – Résumé des transitions bêta bien définies dans la base de données ENSDF. C_{exp} indique le nombre de facteurs de forme expérimentaux utilisés par BetaShape.

Nature	β^-	β^+	C_{exp}	Total	%
Permisses	1 127	1 300	36	2 427	62.7
$0^+ \rightarrow 0^+$	5	36	2	41	1.1
$\Delta J = 0$ <i>not</i> $0^+ \rightarrow 0^+$	260	343	16	603	15.6
$0^+ \leftrightarrow 1^+$	265	307	8	572	14.8
$\Delta J = 1$ <i>not</i> $0^+ \leftrightarrow 1^+$	597	614	10	1 211	31.3
1fnu	693	356	50	1 049	27.1
$\Delta J = 0$	294	163	24	457	11.8
$\Delta J = 1$	399	193	26	592	15.3
1fu	197	91	25	288	7.4
2fnu	33	30	8	63	1.6
2fu	12	15	4	27	0.70
3fnu	4	4	1	8	0.21
3fu	1	1	1	2	0.05
4fnu	3	0	1	3	0.08
5fnu	1	0	0	1	0.03
Total	2 071	1 797	126	3 868	100

parmi 109 transitions deuxièmes interdites uniques et 30 transitions troisièmes interdites non-uniques ; il s’agit de la décroissance du ^{205}Po qui avait une très faible incertitude. Cette analyse montre que l’approximation équation (3.32) utilisée dans BetaShape fournit des résultats cohérents avec ceux de LogFT pour les transitions ε/β^+ au niveau de précision des données nucléaires actuelles.

Comme dans l’étude de [Sin98], j’ai sélectionné les transitions bêta bien définies, c’est-à-dire les transitions pour lesquelles les paramètres suivants ne sont pas équivoques : spins et parités, période de désintégration, Q-value, énergies des niveaux nucléaires, intensités et incertitudes. Les désintégrations d’atomes ionisés ou d’états atomiques excités ont été ignorées, de même que les désintégrations entre niveaux nucléaires douteux, les désintégrations avec plus d’un radionucléide père (source mixte), les transitions non placées et les désintégrations double bêta. Le résultat de cette sélection est présenté dans le tableau 3.3 selon la nature des transitions. Le nombre de facteurs de forme expérimentaux C_{exp} utilisés par BetaShape est également indiqué. La distribution des $\log ft$ est présentée en figure 3.9. Une valeur particulièrement faible apparaît pour les transitions premières interdites non-uniques : elle a été déterminée à partir de la mesure très précise du spectre du ^{241}Pu au LNHB [Loi10]. Le comportement général de ces distributions reste le même que dans [Sin98]. Cependant, des différences apparaissent qui ne sont pas uniquement dues à la prise en compte de données plus récentes. En effet, les auteurs de [Sin98] considéraient également les captures électroniques et le nombre de transitions calculées est différent : 2 542 permises (941 β^- , 217 β^+ , 1 384 ε) et 1 342 interdites (599 β^- , 14 β^+ , 729 ε).

Un résumé des distributions des $\log ft$ selon la nature de la transition est donné à la figure 3.10. La comparaison avec la figure 8 dans [Ram73], qui résume les règles d’assignation de spin et de parité selon les valeurs de $\log ft$, met en évidence de nombreuses exceptions pour les transitions au-delà des premières interdites non-uniques. En effet, ces règles sont les suivantes : $\log ft \geq 8.5$ pour les premières interdites uniques, $\log ft \geq 11$ pour les deuxièmes interdites non-uniques et $\log ft \geq 12.8$ pour les deuxièmes interdites uniques. Cette étude confirme clairement la conclusion de S. Raman et N. Gove à ce moment-là :

“La classification univoque des transitions bêta dans des intervalles de $\log ft$ ne se recoupant pas semble sans espoir.”

3.3.1.2 Évaluation du ^{40}K

La modélisation des captures électroniques a été appliquée à la désintégration du ^{40}K [Mou18, Mou19]. Ce radionucléide peut se désintégrer par une transition β^- troisième interdite unique vers l’état fondamental du ^{40}Ca , par une transition ε première interdite unique vers le premier état excité (1460 keV) du ^{40}Ar , et par une transition ε/β^+ troisième interdite unique vers l’état fondamental du ^{40}Ar . Le rapport de branchement vers l’état fondamental du ^{40}Ar n’a jamais été déterminé expérimentalement. Le ^{40}K étant un radionucléide largement présent à l’état naturel, sa contribution peut s’avérer déterminante dans les mesures à faible statistique. Dans une étude récente, il a été montré que l’interprétation des résultats de l’expérience DAMA, visant à mettre en évidence la matière noire, est certainement très sensible au rapport de branchement vers l’état fondamental du ^{40}Ar [Pra13].

L’évaluation des données la plus récente pour ce radionucléide est celle que j’ai réalisée en 2009, et provient donc du DDEP [Be10]. Le fichier de commentaires [Mou09] décrit la

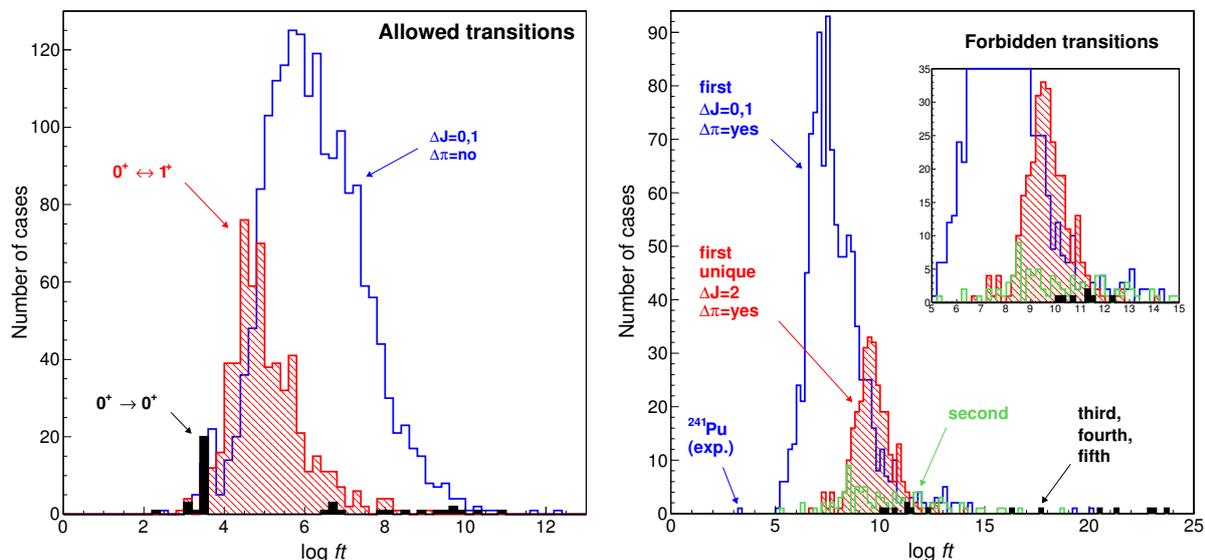


FIGURE 3.9 – Distribution des valeurs de $\log ft$ pour les transitions aux paramètres bien définis, à gauche pour les transitions permises, à droite pour les transitions interdites.

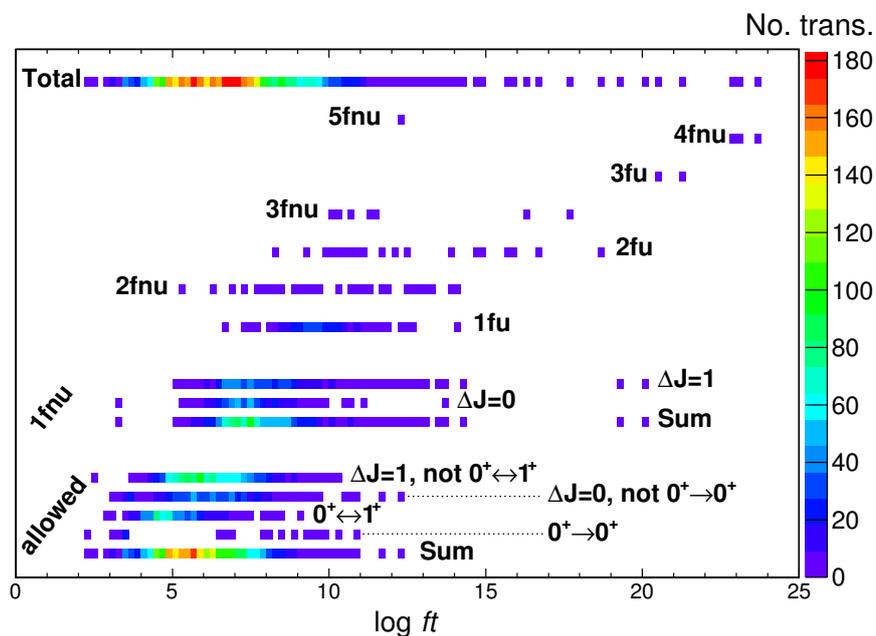


FIGURE 3.10 – Résumé des distributions des $\log ft$ pour les transitions bien définies, selon leur degré d'interdiction. L'échelle de couleur donne le nombre de transitions par bin.

procédure et fournit chaque valeur mesurée. Le schéma de désintégration a été construit à partir des rapports de probabilités suivants : *i*) $P_{\varepsilon,1460}/P_{\beta^-} = 0.1182(12)$ déterminé à partir du rapport des périodes de désintégration partielles correspondantes ; *ii*) $P_{\beta^+}/P_{\beta^-} =$

$1.12(14) \cdot 10^{-5}$ qui vient d'une seule mesure [Eng62]; et *iii*) $P_{\varepsilon,g.s.}/P_{\beta^+} = 200(100)$. Le dernier rapport a été déterminé lors de l'évaluation à l'aide du programme LogFT, bien que ce code ne puisse pas calculer directement une telle transition troisième interdite unique. Je l'ai donc estimé en extrapolant celui calculé pour une transition première interdite unique, à savoir $P_{\varepsilon,g.s.}/P_{\beta^+} = 8.51(9)$, et celui calculé pour une transition deuxième interdite unique, à savoir $P_{\varepsilon,g.s.}/P_{\beta^+} = 45.20(47)$, puis en supposant que ce rapport augmente du même facteur pour une transition troisième interdite unique et en augmentant l'incertitude relative à 50%.

Ma modélisation des captures électroniques permet de calculer exactement cette transition troisième interdite unique. En utilisant le Q-value le plus récent, on obtient $P_{\varepsilon,g.s.}/P_{\beta^+} = 211.8(24)$. Ce rapport reste cohérent avec celui estimé précédemment et conduit aux probabilités de transition suivantes (par rapport aux précédentes) : $P_{\beta^-} = 89.24(13)\%$ (contre 89.25(17)%); $P_{\varepsilon,1460} = 10.55(11)\%$ (identique); $P_{\varepsilon,g.s.} = 0.212(27)\%$ (contre 0.2(1)%); $P_{\beta^+} = 0.00100(12)\%$ (identique). Cette nouvelle valeur plus précise de $P_{\varepsilon,g.s.}$ est également plus rigoureuse pour l'analyse de [Pra13]. Comme les résultats de l'expérience DAMA vers 3 keV semblent cruciaux, il est important de noter qu'une contribution plate du spectre β^- du ^{40}K , telle que retenue dans [Pra13], n'est pas une hypothèse précise car, comme nous l'avons vu précédemment, les effets atomiques modifient sensiblement la forme du spectre à basse énergie.

Lors de l'évaluation de la période de désintégration totale du ^{40}K , une distinction est faite entre les mesures qui ont détecté des particules β ou γ , ou les deux, afin de prévenir d'éventuels biais. De plus, les études mentionnent le plus souvent des périodes de désintégration partielles, soit pour la branche β^- , soit pour la branche ε vers le niveau à 1460 keV du ^{40}Ar . Pour déterminer la période de désintégration totale, toutes ces mesures doivent donc être corrigées de manière cohérente avec les probabilités de transition correspondantes. J'ai pu établir une nouvelle valeur de référence pour la période de désintégration du ^{40}K de $T_{1/2} = 1.2502(23) \cdot 10^9$ a, cohérente avec la précédente valeur $T_{1/2} = 1.2504(30) \cdot 10^9$ a mais avec une incertitude inférieure de 20%.

3.3.2 Métrologie de la radioactivité

La technique de mesure par scintillation liquide est l'une des techniques de prédilection de mesure primaire de l'activité. Les deux méthodes couramment utilisées dans les laboratoires de métrologie internationaux, RCTD et CIEMAT/NIST [Bro07], nécessitent une connaissance préalable du spectre bêta pour l'analyse. Elles y sont d'autant plus sensibles que l'énergie maximale du spectre est faible car le rendement de détection est fortement non linéaire à basse énergie.

Ainsi, nos collègues du National Metrology Institute of South Africa (NMISA) ont analysé le résultat de la mesure d'activité du ^{241}Pu par la méthode RCTD, dans le cadre d'une comparaison internationale pilotée par le BIPM [Wyn12]. Ils ont d'abord utilisé un spectre calculé avec les approximations usuelles, puis le spectre expérimental MMC mesuré au LNHB et que mes calculs reproduisent. Ils ont conclu à un écart très significatif d'environ 7% entre les deux activités, issues d'une même mesure analysée différemment. Les incertitudes relatives typiques associées à ce type de mesures étant de 0.5%, on voit bien l'impact d'une connaissance précise du spectre bêta sur un étalon primaire d'activité.

Avec des collègues du Physikalisch-Technische Bundesanstalt (PTB, Braunschweig), nous avons étudié cette même influence du spectre bêta sur les mesures primaires d'acti-

vité par scintillation liquide pour des radionucléides présentant des énergies maximales plus importantes, 66.977(15) keV pour le ^{63}Ni et 317.06(21) keV pour le ^{60}Co [Kos15, Kos18]. Avec le ^{63}Ni , nous avons démontré que le spectre bêta avec effets atomiques : *i*) permettait d'obtenir des activités cohérentes entre les deux techniques d'analyse RCTD et CIEMAT-NIST, qui sinon présentent un écart supérieur à 1% ; *ii*) mettait en évidence des budgets d'incertitudes sous-évalués dans les anciennes études internationales qui utilisaient un spectre bêta sans effets atomiques, avec une incertitude relative totale donnée inférieure à 0.5% ; *iii*) conduisait à une valeur d'activité plus importante de 0.5% à 1%. Les résultats de cette étude ont été à l'origine du projet européen de métrologie MetroBeta, coordonné par le LNHB et en partenariat avec, notamment, le PTB.

Dans le cas du ^{60}Co , on s'attend a priori à un effet négligeable car les électrons sont bien plus énergétiques, ce qui diminue proportionnellement l'influence d'une probabilité d'émission plus importante à très basse énergie sur le rendement total de détection. L'avantage avec ce radionucléide, c'est qu'il est possible de vérifier les mesures d'activité par scintillation liquide à l'aide d'une autre méthode de mesure primaire, le comptage en coïncidence $4\pi\beta - \gamma$, qui est indépendante de la forme du spectre bêta. La mesure $4\pi\beta - \gamma$ sert donc de référence, et nous avons observé à la fois une dispersion des mesures par scintillation liquide, jusqu'à 1%, et une sous-estimation de l'activité d'environ 0.25%. Lorsque le spectre bêta du ^{60}Co avec effets atomiques est utilisé, les mesures par scintillation liquide redeviennent cohérentes et l'écart à l'activité de référence devient inférieur à 0.1%. L'incertitude relative totale sur l'activité finale n'est plus que de 0.2%. Même si l'effet est plus faible que pour le ^{63}Ni et le ^{241}Pu , il reste significatif pour établir les étalons primaires d'activité en métrologie.

Il reste encore beaucoup de travail pour améliorer les prédictions théoriques et atteindre des incertitudes inférieures à 1%, en particulier dans le cas des transitions interdites non-uniques. La comparaison avec des mesures de grande précision apportera encore certainement son lot de surprises, et sera nécessaire pour valider les modèles développés. Les précisions actuelles et futures ouvrent de belles perspectives, de la physique fondamentale à des domaines très applicatifs, comme nous allons maintenant le voir.

Chapitre 4

Perspectives

“Vous ne trouverez jamais ce que vous ne cherchez pas.”
— Confucius

Les développements effectués ces dix dernières années dans l'étude des transitions par interaction faible à basse énergie ont permis de tisser des liens avec des groupes de recherche de différents domaines. L'expertise acquise en spectrométrie bêta pour les besoins des données nucléaires et de la métrologie de la radioactivité peut encore être approfondie sur de nombreux aspects. Conjointement aux expertises déjà existantes en son sein, le LNHB peut apporter une contribution significative à différentes thématiques scientifiques, tant en physique fondamentale que pour des applications aux enjeux sociétaux forts.

Aborder en détail l'ensemble de ces thématiques serait particulièrement difficile. Je me contenterai d'évoquer dans ce chapitre les sujets qui me semblent les plus importants, soit parce qu'ils font l'objet de travaux en cours et que des pistes intéressantes mériteraient d'être étudiées, soit parce qu'ils seront très structurants dans les dix prochaines années. Le degré d'implication du LNHB dépendra essentiellement des financements qu'il sera possible d'obtenir, tant pour le matériel que pour la main d'œuvre, sur chacun de ces sujets.

Deux thématiques intéressantes ne seront pas développées ici, mais je souhaite les évoquer malgré tout. La première concerne les recherches expérimentales visant à mettre en évidence l'existence de la matière noire. J'ai été contacté ces dernières années par plusieurs équipes développant des systèmes dédiés et analysant les données recueillies. Ces expériences tentent de mesurer un très faible nombre d'événements au milieu d'un bruit de fond très largement dominant. La modélisation précise de la radioactivité naturelle représente alors un défi majeur, qui va dépendre de la qualité des données atomiques et nucléaires et de certains spectres bêta spécifiques à très basse énergie : ceux du ^{39}Ar , du ^{40}K , du ^{42}Ar ou encore du ^{214}Pb .

La seconde thématique concerne la micro-dosimétrie pour la médecine nucléaire. Il me semblerait intéressant d'étudier l'impact d'une connaissance plus précise des spectres bêta, et plus généralement des électrons émis lors des désintégrations nucléaires, sur la modélisation de la dosimétrie au niveau cellulaire. Cependant, ce sujet dépasse le cadre des expertises de la métrologie de la radioactivité, et des partenariats seraient à trouver afin d'apporter une contribution significative.

4.1 Travaux en cours

4.1.1 Détecteurs silicium

Les développements en cours concernant les mesures par détecteurs silicium entrent dans le cadre de la fin de la thèse de doctorat d'Abhilasha Singh. Comme évoqué au deuxième chapitre en section 2.3.3, nous souhaitons tester un module FASTER afin d'acquérir en parallèle les signaux des deux détecteurs PIPS de notre configuration compacte, et effectuer la reconstruction du spectre bêta par des coïncidences lors de l'analyse des données. De plus, un travail est encore nécessaire autour de la technique de préparation de source dans le cas du ^{99}Tc pour élucider l'écart entre notre mesure et celle par MMC en-dessous de 70 keV, illustré en figure 2.17.

L'évolution suivante consistera à adapter le dispositif à deux détecteurs Si(Li) de 5 mm d'épaisseur. Les porte-détecteurs ont déjà été dessinés et usinés. La figure 4.1 présente la configuration choisie, proche de celle des détecteurs PIPS. Les préamplificateurs de charge choisis sont adaptés aux détecteurs Si(Li) et ne doivent pas être refroidis à la température de l'azote liquide. C'est pourquoi ils seront fixés sur des supports en Téflon (polytétrafluoroéthylène). En ajoutant un capteur thermique lors du développement de la configuration $\simeq 4\pi$ sr, nous avons constaté que les déperditions thermiques étaient trop importantes pour assurer la température requise pour les détecteurs Si(Li), avec une température effective de -50°C . La connexion entre le Dewar et la chambre à vide dans laquelle passe le doigt en cuivre, mise en place lors du développement de la configuration $\lesssim 2\pi$ sr, doit donc être changée. Une nouvelle connexion a été récemment dessinée en concertation avec nos collègues du LNHB experts en cryogénie, et est phase de production. Cette nouvelle configuration du dispositif devra ensuite être caractérisée et étalonnée en énergie. Les mesures des spectres bêta du ^{36}Cl et du ^{90}Y sont prévues, auxquelles viendront s'ajouter ultérieurement d'autres radionucléides selon la disponibilité des sources.

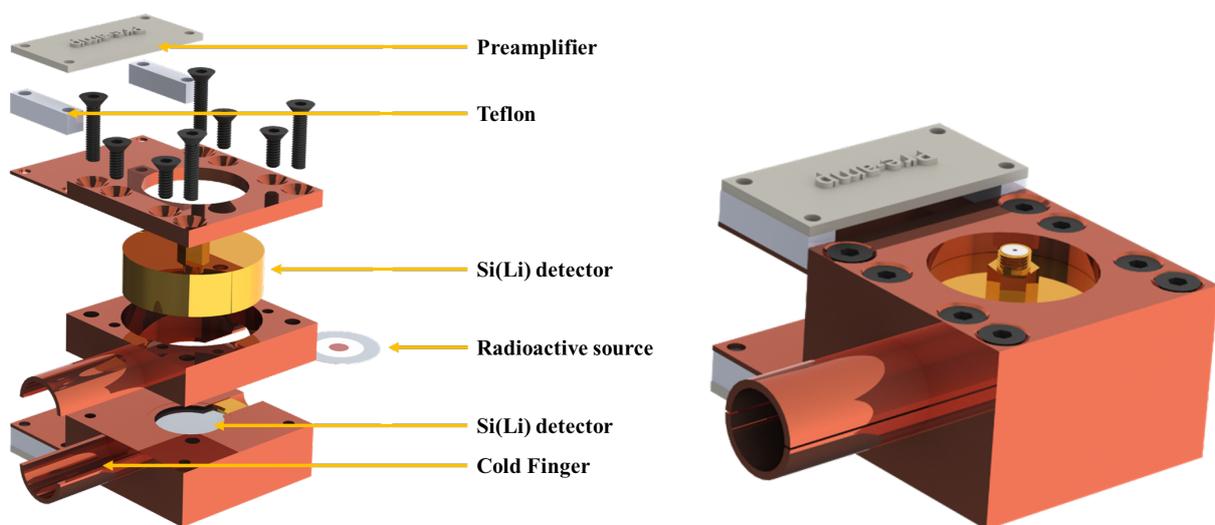


FIGURE 4.1 – Évolution du dispositif de mesure en configuration compacte pour remplacer les détecteurs PIPS par des détecteurs Si(Li) de 5 mm d'épaisseur.

À l’avenir, un tel dispositif pourrait être adapté sans modification trop importante pour ajouter deux détecteurs γ , un à l’arrière de chaque détecteur silicium. Cela permettrait de détecter en coïncidence les particules β et les photons γ lorsque plusieurs transitions bêta sont en compétition vers différents niveaux excités du noyau fils, ou dans le cas de transitions β^+ avec les photons d’annihilation à 511 keV. Cette étape sera importante pour mesurer précisément les spectres bêta de radionucléides se désintégrant autrement qu’entre les états fondamentaux des noyaux père et fils, qui constituent la très vaste majorité des transitions. Les détecteurs idéaux seraient bien évidemment des germanium ultra-purs (HPGe). Cependant, une solution moins coûteuse et plus facile à mettre en œuvre pourrait être d’utiliser des détecteurs au bromure de lanthane dopés au cérium ($\text{LaBr}_3:\text{Ce}$) [Loe01]. Ce scintillateur cristal est un bon compromis entre les deux détecteurs γ les plus couramment utilisés, le $\text{NaI}(\text{Tl})$ et le HPGe. Le premier a l’avantage de fonctionner à température ambiante, mais possède une mauvaise résolution en énergie. Le second possède une excellente résolution en énergie, mais doit être refroidi à la température de l’azote liquide. Le $\text{LaBr}_3:\text{Ce}$, quant à lui, fonctionne à température ambiante et possède une résolution en énergie intermédiaire entre le $\text{NaI}(\text{Tl})$ et le HPGe, comme l’illustre la figure 4.2. Notons cependant qu’il possède une activité intrinsèque dû au ^{138}La [Qua16].

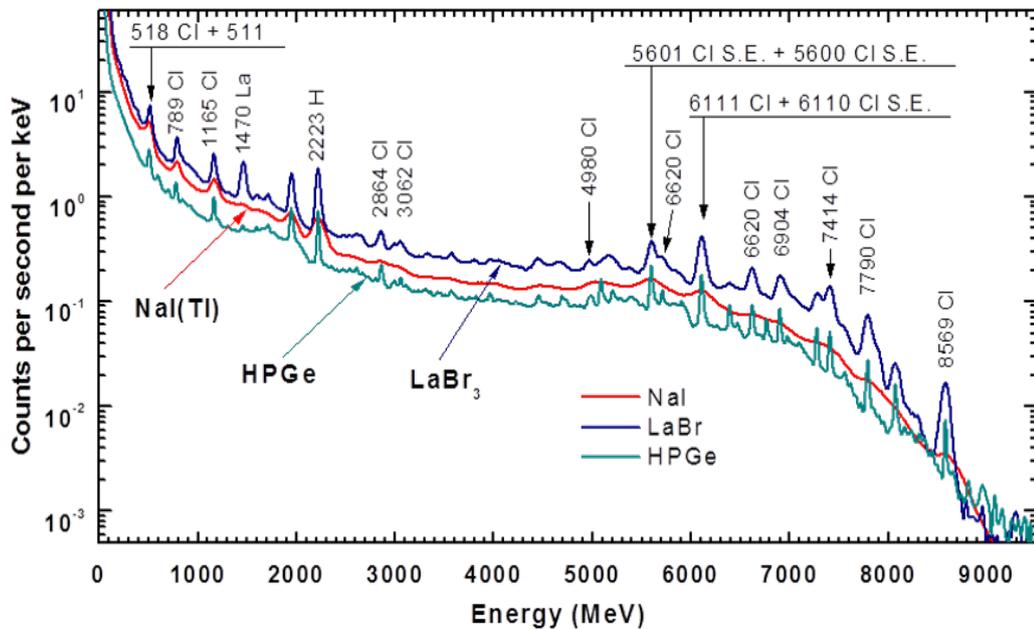


FIGURE 4.2 – Comparaison des résolutions en énergie de détecteurs γ $\text{NaI}(\text{Tl})$, HPGe et $\text{LaBr}_3:\text{Ce}$. Ce dernier représente un bon compromis entre les deux premiers, usuellement utilisés en spectroscopie nucléaire, et a l’avantage de fonctionner à température ambiante.

Il serait également intéressant d’étudier l’application potentielle du silicium noir à la spectrométrie bêta, et d’électrons plus généralement. Ce cristal de silicium présente une surface nanostructurée suite à une préparation spécifique. Depuis sa découverte dans les années 1990, plusieurs techniques de préparation ont été explorées. L’une d’entre elles consiste à placer le cristal de silicium dans une chambre à vide, de la remplir de gaz SF_6 (hexafluorure de soufre) et d’irradier le cristal avec les impulsions ultra-courtes d’un laser femtoseconde [Her98]. La surface obtenue, très noire, présente un ensemble de pointes très

structuré à l'échelle nanométrique. Une surface typique est présentée en figure 4.3. Ses propriétés optiques sont exceptionnelles : la réflectivité du silicium, usuellement autour de 30%, peut baisser jusqu'à seulement 5% dans une large gamme de longueur d'onde, de l'infrarouge à l'ultra-violet. Un champ de recherche particulièrement actif concerne son application à la production de cellules photovoltaïques plus efficaces [Lv18].

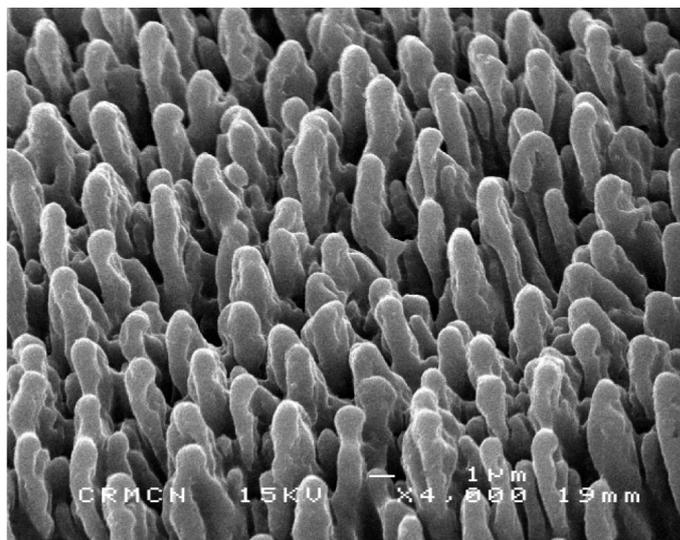


FIGURE 4.3 – Surface nanostructurée d'un silicium noir. Figure extraite de Wikipédia.

Il est raisonnable de penser que la diminution de réflectivité du silicium va concerner également les électrons. Les particules β issues de la source ont une forte probabilité de rétrodiffuser sur le détecteur silicium, et elle est d'autant plus importante que leur énergie cinétique est faible. Ce phénomène est à l'origine d'une déformation majeure du spectre mesuré et sa correction introduit une incertitude importante. C'est pourquoi notre dispositif a évolué vers une configuration géométrique compacte, pour laquelle une déformation, certes beaucoup plus faible, reste malgré tout présente. Or, on peut s'attendre à ce qu'un électron arrivant sur une telle surface nanostructurée ait une probabilité plus faible de rétrodiffuser car : *i*) il va traverser une plus faible quantité de matière au niveau des pointes ; *ii*) s'il repart en arrière, il aura une plus grande chance d'être réabsorbé dans les pointes ; et *iii*) comme il a très peu de chance d'arriver en incidence normale sur une surface, il diffusera préférentiellement vers d'autres pointes. Un tel détecteur aurait donc des propriétés excellentes pour la mesure de spectres bêta, mais aussi d'électrons Auger et d'électrons de conversion interne. Des photodiodes de silicium noir commencent à être disponibles chez certains fabricants de détecteurs. Elles permettraient de tester cette éventualité.

4.1.2 BetaShape 2.0

La première version de BetaShape a été mise à disposition des utilisateurs sur le site internet du LNHB en 2016¹. Une nouvelle version est en cours de finalisation et sera prochainement disponible.

1. <http://www.lnhb.fr/activites-recherche-developpement/logiciels-traitement-spectres/>

La principale nouveauté concerne les transitions par capture électronique. Elles sont maintenant traitées avec le modèle présenté dans le chapitre précédent en section 3.2. Comme pour les transitions bêta, les informations sont lues dans le fichier d'entrée ENSDF et chaque transition trouvée est calculée automatiquement. Des fichiers de sortie sont créés dans lesquels l'énergie et le $\log ft$ de la transition sont donnés, ainsi que les quantités suivantes pour chaque sous-couche et chaque couche : les rapports de probabilités de capture relatives P_{κ_x}/P_K , les probabilités de capture relatives P_{κ_x} , et les probabilités de capture qui, elles, dépendent des intensités de transition. La répartition des intensités entre capture électronique et transition bêta plus est calculée le cas échéant. Ces intensités sont alors utilisées de manière cohérente dans tous les calculs. Une option a été ajoutée pour forcer le code à ne pas mettre à jour les intensités et à utiliser systématiquement celles issues du fichier d'entrée. Cette option est utile lorsque, par exemple, un rapport ε/β^+ a été déterminé à partir de mesures et adopté dans l'évaluation. Le fichier ENSDF est mis à jour avec les nouvelles valeurs de $\log ft$, d'intensités et de probabilités de capture. Notons que le temps de calcul est significativement plus élevé que pour le traitement des désintégrations bêta.

Le seul changement dans la modélisation des transitions bêta concerne les corrections radiatives. Elles sont maintenant calculées selon le formalisme décrit dans [Tow08, Hay18] évoqué dans le chapitre précédent en section 3.1.1.5. La distribution de la densité de charge du noyau, nécessaire à ces calculs, est modélisée par une distribution de Fermi à deux paramètres dont les paramètres sont ajustés pour reproduire les rayons carrés moyens de charge nucléaire évalués par I. Angeli le long de la ligne de stabilité [Ang99]. Ce choix est cohérent avec la tabulation des fonctions d'onde atomiques décrite en section 3.2.2. La base de données de facteurs de forme expérimentaux a évolué avec la mise à jour du ^{36}Cl et du ^{138}La , et l'ajout du ^{14}O . Ces facteurs de forme sont maintenant donnés dans le fichier ENSDF mis à jour en tant *Continuation Record*. Enfin, pour répondre à la demande de nombreux utilisateurs de BetaShape dans sa première version, la possibilité de fixer un pas en énergie constant pour tous les spectres calculés a été ajoutée. Des fichiers de sortie supplémentaires sont alors créés avec ce pas fixe.

Certaines modifications générales ont également été faites, au-delà des correctifs mineurs d'affichage et d'utilisation du code. Le traitement de l'incertitude a été modifié lorsqu'aucune incertitude n'existe dans le fichier d'entrée ENSDF pour une quantité donnée. Dans la première version de BetaShape, une incertitude d'environ 60% de la valeur était estimée à partir d'une distribution plate, ce qui générerait dans certains cas des incertitudes irréalistes, en particulier pour les niveaux d'énergie. Une incertitude nulle est désormais considérée, comme dans le code LogFT, et il est de la responsabilité de l'utilisateur de gérer au mieux un tel cas, selon ses besoins. Par ailleurs, toutes les constantes physiques sont maintenant issues des valeurs recommandées CODATA 2018 [Tie18]. De même, les noms des éléments chimiques sont désormais inclus jusqu'à $Z = 118$ selon les recommandations de l'Union Internationale de Chimie Pure et Appliquée (International Union of Pure and Applied Chemistry – IUPAC). Enfin, une option a été ajoutée pour permettre la mise à jour automatique des Q-values lors de l'exécution du code à partir des dernières valeurs recommandées d'évaluation des masses atomiques AME2016 [Wan17]. Le nouveau Q-value est alors utilisé dans tous les calculs, ce qui assure une meilleure précision sur l'énergie des transitions, et est mis à jour dans le fichier ENSDF.

Cette nouvelle version de BetaShape peut donc remplacer le code LogFT. Des discus-

sions sont en cours depuis le premier semestre 2019 avec le réseau NSDD et une adoption officielle est espérée prochainement. BetaShape deviendrait alors le code de référence pour les transitions par interaction faible pour l'ensemble des évaluations de données nucléaires mondiales. Une adoption de cette nouvelle version par le DDEP, qui avait déjà adopté la première, est également espérée sous peu. Certains utilisateurs des données DDEP trouvant que l'utilisation du code BetaShape reste trop compliquée, des discussions sont en cours pour fournir des spectres bêta recommandés associés à chaque évaluation d'un radionucléide. À plus long terme, cela permettrait de fournir des spectres calculés plus précis, incluant la structure nucléaire et les effets atomiques, mais qui requièrent des temps de calcul beaucoup plus longs.

À court terme, je souhaiterais améliorer la correction d'écrantage dans la modélisation des transitions bêta. Comme nous l'avons vu au chapitre précédent en section 3.1.1.4, BetaShape inclut une correction d'écrantage plus précise que celle couramment utilisée, adaptée de [Buh84]. Cependant, cette correction reste moins précise à très basse énergie que le calcul complet évoqué à la fin de la section 3.1.2. La difficulté principale est que le temps de calcul des fonctions d'onde avec un potentiel d'écrantage devient très important à haute énergie, alors même que la différence avec les fonctions d'onde sans écrantage devient négligeable. La solution envisagée est une hybridation des méthodes avec un calcul exact à basse énergie et un calcul approché avec la méthode de [Buh84] dès que la différence entre les deux solutions devient inférieure à une limite de précision fixée. Il serait également intéressant de calculer la correction d'effet d'échange de manière systématique en utilisant le fait qu'elle est indépendante de l'énergie de la transition, et soit de la tabuler, soit d'effectuer un ajustement en s'inspirant par exemple de [Hay18]. Le code BetaShape pourrait alors prendre en compte l'effet d'échange sans augmenter drastiquement le temps de calcul.

Enfin, la modélisation des captures électroniques, et dans une moindre mesure des effets atomiques dans les transitions bêta, pourrait bénéficier de fonctions d'onde atomiques plus précises que celles de mon modèle. C'est l'un des objectifs du projet européen de métrologie MetroMMC, dans lequel le Pr P.-A. Hervieux de l'IPCMS² développe un code de calcul de structure atomique à partir de la théorie de la fonctionnelle de la densité. L'idée est d'inclure le mieux possible les différents effets pertinents : corrélations des électrons, corrections relativistes, corrections d'électrodynamique quantique, etc. L'objectif est un code rapide, simple d'utilisation et validé par des comparaisons avec des calculs plus complets, mais demandant des mois de calculs pour chaque atome, effectués avec un code Dirac-Fock multiconfigurationnel [Ind90, Ind07, Sam15]. La disponibilité d'un tel code représenterait une étape fondamentale vers des calculs de grande précision des captures électroniques.

4.1.3 Module de décroissance Geant4

Les simulations Monte Carlo sont devenues un outil incontournable pour étudier la réponse d'un détecteur. La simulation du schéma de décroissance d'un radionucléide donné est en général une tâche délicate, qui doit s'appuyer sur des données aussi précises et complètes que possible. Elle est bien évidemment de première importance en métrologie de la radioactivité [Sim07, Kar15]. C'est pourquoi le module PenNuc, une sous-routine Fortran gérant la désintégration radioactive à partir des données DDEP, a été développée

2. Institut de Physique et Chimie des Matériaux de Strasbourg, une unité mixte de recherche du CNRS et de l'Université de Strasbourg.

par le CIEMAT³ en collaboration avec le LNHB [Gar17]. Ce module peut être utilisé indépendamment pour générer les particules issues de la désintégration, ou directement dans le code Monte Carlo PENELOPE [Sal15]. Il est cependant dommage que les spectres bêta soient déterminés à partir d'une simple formule analytique, nécessairement peu précise.

En 2017, Adithya Nair a effectué un stage de Master 2 au LNHB pour six mois, et a été co-encadré par Cheick Thiam et moi-même. Il a été en charge du développement en C++ d'un outil, Nuclide++, spécialement conçu pour fonctionner avec le code Geant4 [Ago03], et dont l'approche est semblable à celle de PenNuc. Un module similaire existe déjà dans Geant4 [Hau13], utilisant les données nucléaires évaluées ENSDF, mais il est connu pour ne pas être fiable, ce que nous avons observé lors de la thèse de C. Bisch. L'objectif est de proposer aux utilisateurs de Geant4 la possibilité d'effectuer des simulations avec les données recommandées par le DDEP et un modèle de désintégration plus détaillé. Le module génère les particules associées à l'émission spontanée de rayonnements ionisants : émissions alpha, bêta et gamma, ainsi que les émissions de rayons X et d'électrons Auger issus du réarrangement atomique. Il simule la chaîne complète de désintégration d'un radionucléide donné en sélectionnant au hasard toutes les voies possibles, à partir des données DDEP : périodes de désintégration, structure des niveaux nucléaires, rapports de branchement, type et énergie des particules, etc. Dans le cas d'une chaîne de désintégration, les noyaux fils en cascade sont traités par le module si leur période de désintégration est supérieure à un seuil fixé par l'utilisateur. Les niveaux métastables sont traités selon la même méthode, ce qui permet de tenir compte de la dépendance temporelle des détecteurs.

En cas d'émission de particules β , les énergies et les probabilités sont échantillonnées à partir des spectres calculés avec le programme BetaShape. Pour une meilleure efficacité de la simulation Monte Carlo, ce code a été appliqué à chaque évaluation DDEP et une bibliothèque dédiée regroupant l'ensemble des spectres bêta a été créée. La cascade de désexcitation due à la relaxation atomique, c'est-à-dire l'ensemble des transitions atomiques successives qui se produisent à partir d'une vacance initiale, est générée à partir des probabilités de transition fournies par la bibliothèque EADL (Evaluated Atomic Data Library) [Per91]. Le réarrangement atomique utilise le modèle détaillé (K,L₁,L₂,L₃,M,N), qui convient bien aux simulations de radionucléides se désintégrant par capture électronique [Gra99, Kos06]. Ce modèle n'utilise pas de valeurs moyennes pour la couche L mais tient compte correctement des différentes sous-couches L à travers leurs énergies, les émissions des électrons Auger et des photons X, et les transitions Coster-Kronig.

La fiabilité de Nuclide++ a été testée en comparant ses résultats avec des cascades de particules détectées en coïncidence générées avec PenNuc et le module de décroissance existant de Geant4. Les intensités d'émission alpha et gamma sont en très bon accord pour les radionucléides testés. Des améliorations significatives de la cohérence des résultats ont été identifiées, en particulier pour les émetteurs bêta grâce aux spectres déterminés par BetaShape, et pour le réarrangement atomique induit par la capture électronique ou la conversion interne grâce au modèle détaillé utilisé. Une publication a récemment été acceptée [Thi19] et des discussions sont en cours avec la communauté Geant4 pour que Nuclide++ soit inclus dans les versions ultérieures. À l'avenir, il bénéficiera de mises à jour régulières concernant les nouvelles évaluations DDEP, les améliorations du code BetaShape et les futures versions de la bibliothèque atomique EADL, dont la précision limitée devient de plus en plus problématique pour de nombreuses applications. Concernant cette dernière,

3. Centro de Investigaciones Energéticas, Medioambientales y Tecnológicas, Espagne.

une des pistes possibles serait de redéterminer l'ensemble des paramètres de la bibliothèque à partir du code atomique développé par l'IPCMS dans le cadre du projet européen de métrologie MetroMMC.

4.1.4 Composante nucléaire dans les captures électroniques

La modélisation des captures électroniques introduite dans la nouvelle version de BetaShape traite les transitions interdites non-unique selon l'approximation ξ , c'est-à-dire comme des transitions permises ou interdites uniques de même variation de moment angulaire total ΔJ . Il s'agit de la même approximation que dans le cas des transitions bêta. Pour traiter ces transitions spécifiquement, il faut là encore introduire la composante nucléaire dans les calculs.

Comme nous l'avons vu dans le chapitre précédent à l'équation (3.80), la probabilité de désintégration par unité de temps des captures électroniques dépend du facteur C_{κ_x} qui joue un rôle similaire au facteur de forme $C(W)$ des transitions bêta. Il contient lui aussi l'information sur la structure des niveaux nucléaires initial et final à travers les quantités $M_K(k_x, k_\nu)$ et $m_K(k_x, k_\nu)$:

$$C_x = \sum_{K, \kappa_\nu} [M_K(k_x, k_\nu) + S_{\kappa_x} m_K(k_x, k_\nu)]^2 \quad (4.1)$$

Pour établir l'expression des M_K et m_K , j'ai suivi la même démarche que dans le cas β^- avec une définition similaire à l'équation (3.68) :

$$\begin{aligned} & \frac{2}{\pi} \frac{1}{\sqrt{2K+1}} \sum_{Ls} (-1)^{K-L-s+1} \int_0^\infty q^2 dq \int_0^\infty r^2 dr \frac{(qR)^L}{(2L+1)!!} j_L(qr) F_{KLs}(q^2) \\ & \times \sqrt{2\pi} \langle \phi_{\kappa_e, e^+} || T_{KLs}(1 + \gamma_5) || \phi_{\kappa_\nu, \nu} \rangle \\ & = \beta_{\kappa_x} \{ M_K(k_x, k_\nu) + S_{\kappa_x} m_K(k_x, k_\nu) \} \end{aligned} \quad (4.2)$$

Comme on peut le voir à l'équation (4.1), il n'est pas nécessaire de calculer séparément $M_K(k_x, k_\nu)$ et $m_K(k_x, k_\nu)$. Il suffit de calculer $[M_K(k_x, k_\nu) + S_{\kappa_x} m_K(k_x, k_\nu)]$ à partir de l'équation (4.2). On définit la nouvelle quantité :

$$F_\varepsilon(r) = (-1)^{1-s} \sqrt{2\pi} \langle \phi_{\kappa_e, e^+} || T_{KLs}(1 + \gamma_5) || \phi_{\kappa_\nu, \nu} \rangle \quad (4.3)$$

Les éléments de matrice leptoniques donnés par l'équation (3.67) dans le cas β^- s'adaptent aisément au cas ε et on obtient :

$$\begin{aligned} F_\varepsilon(r) &= (-1)^{1-s} g_{\kappa_x}(r) [j_{k_\nu}(p_\nu r) G_{KLs}(\kappa_x, k_\nu) + j_{k_\nu-1}(p_\nu r) G_{KLs}(\kappa_x, -k_\nu)] \\ &+ (-1)^{1-s} S_{\kappa_x} f_{\kappa_x}(r) [j_{k_\nu}(p_\nu r) G_{KLs}(-\kappa_x, k_\nu) + j_{k_\nu-1}(p_\nu r) G_{KLs}(-\kappa_x, -k_\nu)] \end{aligned} \quad (4.4)$$

Au final, il faut calculer l'expression suivante :

$$\beta_{\kappa_x} [M_K(k_x, k_\nu) + S_{\kappa_x} m_K(k_x, k_\nu)] = \frac{\sqrt{2}}{\sqrt{2K+1}\sqrt{2J_i+1}} \sum_{Ls} \int_0^\infty \mathcal{A}_{KLs} r^2 dr \quad (4.5)$$

où les expressions (3.74-3.77) des \mathcal{A}_{KLS} restent identiques, en changeant uniquement F^- par F_ε .

Le même modèle nucléaire que celui décrit dans le chapitre précédent en section 3.1.3, décrivant les nucléons à partir d'oscillateurs harmoniques relativistes et non-relativistes, a récemment été appliqué à quelques transitions [Mou19, San19] : ^{11}C , ^{55}Fe , ^{65}Zn , ^{81}Kr , ^{122}Sb , ^{126}I , ^{130}Cs , ^{138}La , ^{202}Tl et ^{204}Tl . Il en ressort que certaines transitions ε sont très sensibles à la composante nucléaire, et les mesures les plus précises excluent clairement le modèle nucléaire trop simple utilisé. Afin d'obtenir des prédictions théoriques d'une précision comparable aux meilleures mesures, il serait donc nécessaire non seulement de considérer des fonctions d'onde atomiques très précises, mais également des modèles nucléaires réalistes tenant compte des corrélations entre les nucléons, des mélanges de configurations et de la déformation du noyau.

4.2 Orientations possibles à moyen terme

4.2.1 Structure nucléaire réaliste

Si la description de la structure nucléaire que j'ai évoquée au chapitre précédent en section 3.1.3 est en général trop simpliste pour des prédictions réalistes, les éléments de matrice à une particule restent d'une importance toute particulière car ils constituent la base sur laquelle des descriptions plus complexes du noyau peuvent être développées.

Les états nucléaires ne peuvent être décrits que très rarement par la fonction d'onde d'un nucléon seul car ils résultent en général d'un mélange de différentes configurations nucléoniques. Dans le cadre du modèle en couches, ces configurations peuvent se décrire à l'aide du schéma de couplage $j-j$ dans lequel les nucléons individuels tendent à se coupler par l'intermédiaire de l'interaction spin-orbite pour former un moment angulaire total collectif, celui de l'état nucléaire considéré. Une transition β ou ε peut alors être décrite comme la somme de plusieurs transitions individuelles, pondérées par les poids respectifs des nucléons initiaux et finaux dans les configurations des états nucléaires. Chaque terme de cette somme est un élément de matrice nucléaire qui s'exprime par [Beh82] :

$$\mathcal{M}_{KLS}^{\text{many part.}}(q^2) = C(K) \times \mathcal{M}_{KLS}^{\text{sing. part.}}(q^2) \quad (4.6)$$

Comme la notation l'indique, le facteur $C(K)$ ne dépend que du paramètre K du développement multipolaire.

Nous avons vu à l'équation (3.66) que l'expression de la matrice de transition fait intervenir un opérateur tensoriel irréductible sphérique à un corps, car il n'agit que sur les coordonnées d'une seule particule à la fois. Il est possible de démontrer qu'un tel opérateur peut être développé sur une base propre [Suh7] :

$$T_{\lambda\mu} = \frac{1}{\sqrt{2\lambda+1}} \sum_{a,b} (a||\mathbf{T}_\lambda||b) [c_a^\dagger \tilde{c}_b]_{\lambda\mu} \quad (4.7)$$

où c_a^\dagger et \tilde{c}_b sont des opérateurs de création et d'annihilation, respectivement. Les éléments de matrice $(a||\mathbf{T}_\lambda||b)$ sont des éléments de matrice réduits à une particule, que l'on sait déjà calculer. Ils contiennent l'information sur les propriétés de l'opérateur à un corps et

le définissent entièrement. La quantité $[c_a^\dagger \tilde{c}_b]_{\lambda\mu}$ contient quant à elle l'information sur les configurations nucléoniques. Ainsi, l'amplitude de transition entre deux états nucléaires s'exprime par :

$$(\xi_f J_f || \mathbf{T}_\lambda || \xi_i J_i) = \frac{1}{\sqrt{2\lambda+1}} \sum_{a,b} (a || \mathbf{T}_\lambda || b) (\xi_f J_f || [c_a^\dagger \tilde{c}_b]_\lambda || \xi_i J_i) \quad (4.8)$$

Les éléments de matrice réduits $(\xi_f J_f || [c_a^\dagger \tilde{c}_b]_\lambda || \xi_i J_i)$ sont les densités de transition réduites à un corps. Si l'on considère les différents paramètres du développement multipolaire à calculer, ces densités réduites ne dépendent que de λ , c'est-à-dire de K dans le formalisme de Behrens et Bühring.

Un modèle de structure nucléaire réaliste doit fournir la liste (a,b) des transitions nucléon–nucléon, les densités de transition réduites à un corps correspondantes, et éventuellement les fonctions d'onde des nucléons individuels. Notons que cette formulation rend possible la comparaison des prédictions de différents modèles de structure nucléaire d'une manière transparente et directe, quelle que soit la méthode de résolution du problème à N corps envisagée.

Récemment, j'ai commencé à apprendre à utiliser le code NushellX [Bro14], largement répandu dans la communauté de structure nucléaire. Le modèle sous-jacent est à symétrie sphérique et utilise des hamiltoniens effectifs ajustés sur des données expérimentales dans des régions de masse d'intérêt. L'utilisation de ce code me permettrait d'avoir une certaine autonomie dans les calculs de transitions β et ε . Cependant, rien ne peut remplacer l'expertise de théoriciens du domaine, et je souhaite développer le plus possible des collaborations avec différents groupes. Mes contacts actuels me permettent d'envisager une collaboration plus approfondie avec des théoriciens de l'IPHC et du CEA Bruyère-le-Châtel.

4.2.2 Spectres antineutrino issus des réacteurs

Une collaboration a débuté il y a quelques années entre l'IRFU et le LNHB concernant la mesure du spectre bêta du ^{144}Pr . Ce spectre est intéressant dans le cadre d'une expérience dédiée à la recherche de neutrinos stériles utilisant une source très intense de $^{144}\text{Ce} - ^{144}\text{Pr}$, d'une activité de l'ordre du PBq [Cri11]. Les mesures d'antineutrinos se font par réaction bêta inverse sur le proton, avec un seuil de sensibilité de 1.8 MeV. Comme le ^{144}Ce se désintègre avec une énergie maximale de 318 keV et une période de 285 jours, seules les deux branches du ^{144}Pr , avec des énergies maximales de 2301 keV et 2996 keV, sont détectables. La branche la plus probable (98%) est la plus énergétique et est une transition première interdite non-unique. La deuxième branche est une transition première interdite unique. Une mesure précise du spectre bêta de la branche principale caractériserait entièrement le spectre antineutrino émis. Un tel type de source permettrait donc une interprétation claire et sans équivoque des mesures du déficit du flux d'antineutrinos, ce qui n'est pas le cas lorsqu'ils sont produits par des réacteurs.

Cette collaboration s'est approfondie en 2018 avec le stage de Master 2, puis le début de thèse de doctorat, de Lorenzo Périssé, co-encadré par Matthieu Vivier du Département de Physique des Particules de l'IRFU et moi-même. Ce travail s'inscrit dans la thématique des antineutrinos issus des réacteurs, dans le cadre du projet NENuFAR⁴ soutenu

4. New Evaluation of Neutrino Fluxes At Reactors.

par la direction des programmes transverses du CEA. Les mesures de flux et de spectre effectuées par les expériences de dernière génération, comme Double Chooz et Daya Bay, cherchant à étudier l'oscillation des neutrinos montrent des désaccords significatifs par rapport aux prédictions [An17]. Le but de la thèse est de réviser et d'affiner les calculs de spectres antineutrino de réacteur, puis de réévaluer les incertitudes associées au regard de la modélisation des branches bêta qui le composent. L'objectif final est de proposer une nouvelle prédiction de référence, telle que celle de 2011 [Mue11, Men11], suivie d'une nouvelle comparaison aux données expérimentales, afin de mieux comprendre l'origine de ces désaccords. Ce travail permettra également d'étendre les prédictions aux basses énergies, sous 1.8 MeV, afin d'approfondir l'étude du processus de diffusion cohérente sans seuil des antineutrinos sur noyaux. Encore inexploité jusqu'à présent, ce processus d'interaction possède une section efficace jusqu'à 100 fois plus élevée que la réaction de désintégration bêta inverse, et pourrait donc ouvrir la voie à une miniaturisation des futurs détecteurs de neutrinos [Aki17].

Comme évoqué dans le premier chapitre en section 1.5, les études des antineutrinos de réacteurs et de la puissance résiduelle du cœur à l'arrêt dépendent de la qualité et de la complétude des bases de données nucléaires. Les mesures effectuées par la technique d'absorption totale TAGS permettent, progressivement, de mieux connaître les schémas de désintégration des produits de fission en s'affranchissant de l'effet Pandémonium [Alg10, Gua17, Gua19]. Cependant, il apparaît de plus en plus clairement à ces deux communautés que la forme des spectres bêta n'est pas aussi bien connue qu'ils le pensaient jusqu'à présent, en particulier pour les transitions interdites non-unique [Est18]. Des dispositifs expérimentaux commencent à se développer pour mesurer ces spectres bêta, le défi étant alors de produire les radionucléides d'intérêt de très courtes périodes auprès d'accélérateurs d'ions lourds et de mesurer des spectres bêta d'énergies maximales très élevées, pouvant aller jusqu'à 10 MeV. Des campagnes de mesures sont en préparation, comme celle résultant de la collaboration entre l'Université de Valence en Espagne, l'Université de Jyväskylä en Finlande, Subatech en France, et l'Université du Surrey au Royaume-Uni. Grâce à notre collaboration informelle avec Subatech sur cette thématique à travers le projet français structurant NEEDS⁵ – NACRE⁶, nous avons récemment pu participer à une expérience préparatoire auprès de l'accélérateur de Jyväskylä visant à caractériser un système de mesure de spectres bêta utilisant des détecteurs silicium et des plastiques scintillants, couplés à des détecteurs γ en coïncidence. Une participation plus approfondie sur les mesures, les analyses et les calculs théoriques est espérée dans les années à venir. Des mesures TAGS sont également conduites aux États-Unis par l'ORNL⁷ et l'ANL⁸ auprès de l'installation CARIBU⁹ avec une instrumentation dédiée très efficace [Ras16, Fij17, Ras17]. Des discussions ont récemment commencé avec ces équipes concernant l'évolution de leur dispositif afin de pouvoir mesurer les spectres bêta des produits de fission. Une collaboration autour de l'analyse et des calculs théoriques est, là encore, espérée.

5. Nucléaire, Énergie, Environnement, Déchets, Société, une initiative visant à fédérer l'effort interdisciplinaire de recherche sur le nucléaire en France afin d'envisager tous les aspects de la relation entre la société, la nature et la technologie nucléaire.

6. Noyau Au Cœur du Réacteur.

7. Oak Ridge National Laboratory, États-Unis.

8. Argonne National Laboratory, États-Unis.

9. Californium Rare Isotope Breeder Upgrade.

4.2.3 Tests du Modèle Standard

Trois des quatre forces fondamentales de la nature sont décrites très précisément par le Modèle Standard de la physique des particules. Avec la relativité générale, il constitue l'une des deux pierres angulaires de notre représentation de l'Univers. La découverte du boson de Higgs au LHC¹⁰ a confirmé de manière spectaculaire le Modèle Standard et met un point final à sa construction. Cependant, ce modèle est connu pour être incomplet : il ne rend pas compte de la gravitation, de la matière noire ou du déficit d'antimatière. Différents modèles théoriques existants s'efforcent d'aller au-delà du Modèle Standard, mais de nouvelles anomalies expérimentales sont nécessaires pour contraindre ces modèles et savoir sur quoi focaliser les développements théoriques.

Dans ce contexte, le développement récent de la théorie quantique des champs effective est particulièrement intéressant [Cir13]. Introduisant différentes échelles physiques, elle fournit une interprétation cohérente des expériences à basses et hautes énergies dans un cadre unifié. Deux stratégies dans la recherche d'une nouvelle physique ont alors été clairement identifiées comme étant complémentaires, voire concurrentes : se tourner vers les énergies toujours plus élevées du LHC, ou réaliser des expériences à basse énergie de haute précision. La deuxième stratégie nous intéresse plus particulièrement car les mesures de basse énergie atteignant une incertitude de 0.1% seraient compétitives par rapport à l'échelle d'énergie du LHC, le TeV, pour sonder certains effets dus à une nouvelle physique [Cir13].

Au cours de la dernière décennie, l'étude des spectres bêta a connu un regain d'intérêt de la part de diverses équipes de physique fondamentale [Daw09, Geo14, Sev14, Gli17, Haa17]. En effet, la forme du spectre bêta est certainement la meilleure observable à basse énergie pour tester le Modèle Standard et mettre en évidence certains effets d'une nouvelle physique [Hay18]. La pertinence de cette sonde très sensible a été identifiée il y a plusieurs décennies [Van87], mais elle reste encore largement inexplorée au niveau de précision requis en raison des difficultés de réalisation des mesures et de leur interprétation, comme nous l'avons vu tout au long de ce mémoire.

Dans les modèles usuels décrivant la désintégration bêta, les nucléons sont considérés comme des particules ponctuelles, mais ils sont en réalité composés de quarks. L'introduction de leur structure interne modifie le formalisme en induisant de nouveaux couplages qui font encore partie intégrante du Modèle Standard. Au premier ordre, l'effet induit le plus important est le magnétisme faible, appelé ainsi en raison d'un comportement mathématique analogue à celui entre le magnétisme et l'électricité pour une transition électromagnétique. L'étude du magnétisme faible est un test très sensible des prédictions du Modèle Standard [Gel58]. Une étude récente a tenté d'évaluer une valeur solide du terme de magnétisme faible, en sélectionnant un ensemble de transitions pertinentes parmi les mieux connues [Hub11]. Cependant, les données sont divergentes et la valeur recommandée présente une incertitude relative de 220%, ce qui ne permet pas de tester le Modèle Standard. Les modèles de nouvelle physique prédisent différentes modifications de l'interaction faible selon les hypothèses considérées. Au premier ordre, l'effet induit le plus important est l'interférence dite de Fierz. La contrainte actuelle la plus forte sur le terme de Fierz est une valeur limite, $b_{\text{Fierz}} = -0.0022(43)$, obtenue à partir de l'étude des valeurs ft des transitions bêta super-permises [Nav13].

10. Large Hadron Collider.

Cette idée est au cœur du projet ERC B-SHAPE que j’ai proposé en 2018 (Consolidator Grant). Même s’il n’a pas été retenu, il permet de fixer des objectifs ambitieux à long terme pour la spectrométrie bêta étudiée dans le contexte de la métrologie de la radioactivité. L’enjeu est de mesurer et comprendre la forme du spectre bêta avec une incertitude de 0.1%, ce qui permettrait une détermination très précise du magnétisme faible et du terme de Fierz. Ces effets de faible intensité sont complètement noyés au milieu des effets atomiques et nucléaires usuels du Modèle Standard, qui doivent être soustraits avec précision avant de quantifier tout écart. Par chance, le magnétisme faible présente une dépendance linéaire en l’énergie de l’électron, tandis que l’interférence de Fierz en dépend de manière inversement proportionnelle [Hay18]. Ces termes peuvent donc être traités presque indépendamment par l’analyse de transitions aux hautes et basses énergies. Cependant, l’extraction du terme de Fierz à partir de la forme d’un spectre mesuré requiert intrinsèquement l’extraction du terme de magnétisme faible avec la même précision.

Certaines transitions bêta spécifiques peuvent présenter une sensibilité exceptionnelle aux termes de magnétisme faible et d’interférence de Fierz. Une telle transition est fortement retardée à cause de l’annulation fortuite des éléments de matrice nucléaires due à la structure nucléaire spécifique du radionucléide. Les termes de magnétisme faible et de Fierz sont alors comparativement renforcés dans ce cas. Ces transitions bêta présentent des périodes de désintégration partielles ou des $\log ft$ exceptionnellement élevés. Pour le projet B-SHAPE, j’ai identifié quatre désintégrations bêta pertinentes de ce type dans le ^{14}C , le ^{32}P , le ^{60}Co et le ^{176}Lu . Leurs énergies maximales les rendent complémentaires pour déterminer avec précision le terme de faible magnétisme [Hay18]. Leurs facteurs de forme sont actuellement connus avec une précision allant de 3% à 16% [Mou15, Sot13, Pro69].

L’étude de la forme de ces spectres bêta avec une précision de 0.1% est un véritable défi. Notons qu’une telle précision nécessite au moins 10^8 coups dans le spectre final qui sera analysé [Gon16]. La stabilité de l’ensemble du système de détection est alors un défi majeur. Des solutions doivent être mises en œuvre pour tester régulièrement la linéarité et corriger tout décalage, car de longues périodes de comptage seront nécessaires. Dans tous les cas, des simulations Monte Carlo très précises et un très bon algorithme de déconvolution seront indispensables.

L’utilisation des MMC est certainement la méthode la plus pertinente pour mesurer les spectres du ^{14}C et du ^{32}P . Cependant, une période d’acquisition d’au moins un an serait nécessaire dans la configuration actuelle pour obtenir plus de 10^8 coups dans le spectre. La stabilité de l’ensemble de l’installation sur une aussi longue période est délicate. Par ailleurs, il est impératif à ce niveau de précision de limiter au maximum l’échappement hors de l’absorbeur des photons induits par fluorescence et par bremsstrahlung dans l’or. Il faut enfin clairement démontrer que le traitement du signal n’induit pas de déformation supplémentaire. L’approche proposée consiste à faire évoluer la technique des MMC sur ces trois points :

- Un absorbeur bicouches serait élaboré pour limiter les fuites des rayons X de l’or et des photons de bremsstrahlung. La technique optimale de préparation de l’ensemble source-absorbeur serait cruciale, la priorité restant l’implantation directe des radionucléides dans les absorbeurs.
- Pour s’affranchir de la limite d’environ 10 Bq sur l’activité de la source, un dispositif multi-absorbeurs serait développé afin de mesurer simultanément une dizaine

d'absorbeurs, réduisant ainsi le temps de mesure à une durée plus praticable de cinq semaines. Le couplage thermique devrait être optimisé pour chaque radionucléide afin de réduire le temps de thermalisation. Les exigences de blindage devraient être précisément évaluées afin d'éviter toute diaphonie physique entre les absorbeurs adjacents, due à des photons s'échappant d'un absorbeur et interagissant dans celui d'à côté.

- Une simulation complète de l'ensemble de la chaîne de détection serait réalisée. Le dépôt d'énergie dans l'absorbeur d'un spectre bêta donné serait simulé par Monte Carlo. Le transfert d'énergie thermique jusqu'au thermomètre serait ensuite simulé par la méthode des éléments finis à partir de la distribution spatiale du dépôt d'énergie dans l'absorbeur. La dernière étape consisterait à simuler la conversion du flux d'énergie thermique en aimantation, puis en courant électrique. Le jeu de données ainsi généré permettrait de tester et d'ajuster le traitement du signal pour s'assurer que le spectre initial est bien reconstruit sans déformation.

Gérer l'influence des photons γ émis à la suite des particules β dans les désintégrations du ^{60}Co et du ^{176}Lu est un défi majeur. Les coïncidences angulaires $\beta - \gamma$ doivent être évitées car elles vont sélectionner préférentiellement certaines portions des spectres bêta. La qualité des sources est également essentielle car elles doivent être aussi minces que possible pour minimiser l'auto-absorption. Ceci est particulièrement délicat pour le ^{176}Lu en raison de sa très longue période de désintégration, $3.76 \cdot 10^{10}$ a. Fabriquer une source de 1 kBq avec du lutétium naturel métallique conduirait à une épaisseur de source de 2.5 cm : seule une fraction négligeable des particules β émises pourrait s'échapper de cette source. Même si l'influence des photons γ sur les spectres bêta devrait rester importante, une attention particulière devrait être accordée à chaque élément de l'expérience afin de minimiser les distorsions :

- Reprenant l'idée déjà évoquée précédemment, un dispositif en géométrie compacte serait conçu afin d'assurer une détection des particules β de 4π sr avec deux détecteurs silicium. Les coïncidences avec les photons γ seraient détectées à l'aide de détecteurs HPGe bas bruit de grande surface, placés immédiatement derrière les détecteurs silicium. Cette configuration serait caractérisée en termes d'énergie et d'efficacité de détection selon les procédures métrologiques habituelles pour atteindre les incertitudes les plus faibles possibles.
- L'idéal serait de pouvoir implanter directement les radionucléides dans les détecteurs silicium, puis de les coller ensemble afin d'atteindre réellement 4π sr et de s'affranchir des difficultés de préparation de source. Dans le cas contraire, la contamination surfacique directe des détecteurs silicium serait envisageable. Un optimum entre activité et épaisseur devrait être déterminé dans le cas du ^{176}Lu . Un dépôt de quelques μm d'épaisseur devrait être possible avec de l'oxyde de lutétium enrichi à 86%, commercialement disponible, permettant d'atteindre une activité de 100 Bq.

La forme du spectre bêta résulte de la combinaison de plusieurs effets normaux dus aux structures atomiques et nucléaires des états initiaux et finaux, et de leur couplage à travers l'interaction faible. Tester le Modèle Standard et trouver des indices d'une nouvelle physique nécessite une quantification précise de tous ces effets, ce qui ne peut être obtenu qu'au

moyen de calculs théoriques. Mais l'extraction des termes de magnétisme faible et d'interférence Fierz à partir des mesures avec une incertitude de 0.1% nécessite des prédictions théoriques d'une précision comparable. Elle est généralement loin d'être réalisable avec les modèles actuels, sauf dans certains cas spécifiques. L'approche proposée serait d'effectuer les calculs de désintégration bêta dans le cadre du formalisme relativiste, très complet, de Behrens et Bühring [Beh82]. Nous avons déjà vu qu'il est parfaitement adapté à des calculs très précis, et j'ajouterais qu'une partie des dérivations mathématiques nécessaires à l'étude d'effets induits, tels que le magnétisme faible et l'interférence de Fierz, est déjà présente dans leur ouvrage. Concernant les fonctions d'onde des électrons, le code de structure atomique développé par l'IPCMS dans le cadre du projet européen de métrologie MetroMMC pourrait inclure à terme le calcul des fonctions d'onde du continuum. Une modélisation cohérente et très précise des effets atomiques serait donc possible. Une excellente description de la structure nucléaire est également nécessaire. L'approche privilégiée, développée par l'IPHC ces 30 dernières années, serait un modèle réaliste de champ moyen nucléaire phénoménologique, dont la précision a été démontrée, et qui inclut la déformation nucléaire et la corrélation entre les nucléons, applicable à tous les noyaux [Cwi87, Dub05, Dud18]. Une collaboration a déjà débuté en ce sens dans le cadre du projet européen de métrologie MetroBeta. Enfin, une attention particulière serait accordée à l'évaluation des incertitudes liées à la modélisation, en privilégiant la méthode Monte Carlo.

Très peu de projets sont prévus ou en cours pour sonder les propriétés d'une nouvelle physique en mesurant la forme des spectres bêta. En comparaison, les MMC sont une technique particulièrement compétitive :

- Le projet miniBeta est mené à l'Université catholique de Louvain, en Belgique, et porte à la fois sur les aspects théoriques et expérimentaux. Des calculs analytiques de haute précision des transitions permises sont développés [Hay18]. Le dispositif expérimental [Sev14] a déjà été décrit brièvement au deuxième chapitre en section 2.1.1. La priorité est la mesure du spectre bêta du ^{45}Ca et des mesures sont prévues dans le futur concernant le ^{14}C et le ^{32}P , mais elles ne devraient pas être compétitives par rapport aux MMC en termes de linéarité et de résolution en énergie.
- Une autre équipe s'intéresse spécifiquement au spectre bêta du ^6He , un noyau exotique ayant une période de désintégration de 807 ms. Les ions ^6He produits par le cyclotron du NSCL¹¹ sont implantés dans des cristaux de CsI(Na) et de NaI(Tl), dans lesquels les particules β sont détectées [Huy16]. Cette méthode permet d'obtenir des statistiques élevées en quelques jours, mais cette désintégration bêta n'est pas retardée ce qui diminue sa sensibilité aux effets recherchés, et la structure spécifique du ^6He , avec un halo neutronique, crée de nombreuses réactions induites qui augmentent significativement la contribution du bruit de fond.
- Enfin, le spectre bêta de la désintégration du neutron libre a été mesuré à l'aide de neutrons ultra-froids produits à l'installation LANSCE¹². L'analyse des données a permis de contraindre le terme de Fierz à $-0.044 < b_{\text{Fierz}} < 0.218$, mais elle a aussi démontré la grande difficulté d'obtenir des résultats plus précis [Hic13]. Une autre

11. National Superconducting Cyclotron Laboratory, États-Unis.

12. Los Alamos Neutron Science Centre, États-Unis.

expérience est également en cours de conception sur le site LANSCE dans le cadre de la collaboration Nab, visant un niveau de précision de 0.3% [Poc09].

Le projet B-SHAPE serait donc parfaitement pertinent dans ce contexte, et apporterait une contribution significative à cette thématique scientifique.

4.2.4 Influence de l'environnement

L'environnement immédiat dans lequel est plongé un radionucléide peut avoir une influence sur sa probabilité de désintégration. Cette influence de la structure atomique sur les processus nucléaires est en général considérée comme négligeable, car elle l'est dans la plupart des cas. Cependant, il est évident qu'une modification des orbitales atomiques va avoir un impact sur le processus de capture électronique. Cette thématique est explorée depuis plusieurs décennies car la possibilité de manipuler en laboratoire la période de désintégration d'un radionucléide ouvrirait d'immenses perspectives en physique fondamentale et dans le domaine du traitement des déchets nucléaires, tant à vie moyenne et qu'à vie longue.

On sait depuis plus de 60 ans que la période de désintégration du ${}^7\text{Be}$ est très sensible à l'environnement chimique dans lequel il est mesuré [Seg49, Bou56, Joh70, Huh99]. Avec seulement quatre électrons dans des orbitales $1s_{1/2}$ et $2s_{1/2}$ faiblement liées, les liaisons chimiques modifient fortement les énergies et les fonctions d'onde atomiques, avec un impact direct sur les deux transitions ε vers le ${}^7\text{Li}$. Des études ont également été menées dans des matrices métalliques [Ray99, Ray02, Voy02] et dans des molécules de fullerène (C_{60}) [Oht04, Oht08, Mor08, Tka10]. En astrophysique, dans certains environnements très chauds et très denses, les périodes de désintégration de certains radionucléides peuvent être modifiées, comme cela a été étudié pour le ${}^7\text{Be}$ au cœur du Soleil [Bah93].

En laboratoire, des études menées dans les années 1970 ont démontré qu'exercer une pression modérément élevée sur un matériau radioactif, de l'ordre de 10 GPa, modifie la probabilité de décroissance pour tous les types de transition, à des degrés divers. Ainsi, la période de désintégration du ${}^7\text{Be}$ varie linéairement avec la pression, avec une pente de $2.2 \cdot 10^{-4} \text{ GPa}^{-1}$ [Hen73]. De même, la variation de la période de désintégration du ${}^{99m}\text{Tc}$ à 10 GPa est de 0.046% [Maz72]. Sous l'effet de la pression, la probabilité de présence des électrons atomiques au sein du noyau augmente et le potentiel coulombien se modifie, affectant directement l'écrantage électronique autour des noyaux. La probabilité des particules α de traverser la barrière coulombienne, ainsi que les probabilités de capture électronique et de conversion interne, s'en trouve affectées [Bel16].

Ces dernières années, la quantité de chaleur générée par les radionucléides présents à l'intérieur de la Terre fait l'objet d'une attention particulière. En effet, différentes mesures des géo-neutrinos émis par le manteau terrestre indiquent que l'ensemble des radionucléides représenterait moins de la moitié du flux de chaleur sortant de la Terre [Kor11]. Ce résultat semble confirmer la thèse selon laquelle ce flux de chaleur provient essentiellement de la chaleur accumulée lors de la formation de la Terre il y a quatre milliards d'années. Mais les partisans de l'autre thèse dominante, à savoir que le flux de chaleur provient essentiellement de la désintégration des radionucléides présents dans le manteau terrestre, tentent de trouver une explication plausible. L'une des raisons avancées serait que les fortes pressions au centre de la Terre, de l'ordre de 300 GPa, modifient les périodes de désintégration des

radionucléides de plusieurs pourcents. Il est cependant difficile d'extrapoler cette influence avec quelques mesures vers 10 GPa.

Une collaboration sur cette thématique est envisagée entre le GANIL et le LNHB. L'idée développée par le GANIL serait de mesurer une série de radionucléides placés dans une cellule à enclumes de diamant afin de quantifier l'influence d'une pression d'au moins 50 GPa sur différents types de désintégrations nucléaires et dans différents matériaux. Cela permettrait de mettre en évidence un effet non linéaire attendu entre pressions et périodes, et d'améliorer significativement la précision des extrapolations jusqu'aux pressions régnant au centre de la Terre. Les échantillons radioactifs seraient préparés au LNHB et par implantation grâce aux accélérateurs d'ions lourds du GANIL. Des mesures de périodes de grande précision pourraient être réalisées grâce à l'expertise en métrologie de la radioactivité du LNHB, et grâce à un nouveau système de détection élaboré par le GANIL pour le ^{19}Ne [Fon17]. En parallèle, des calculs théoriques plus complets, incluant les effets dus à l'environnement, seraient développés par le LNHB en collaboration avec l'IPCMS.

Comme nous venons de le voir, les perspectives de la spectrométrie bêta sont riches et variées, en particulier en physique fondamentale. Elles permettent d'ores et déjà d'envisager plusieurs projets de recherche de haut niveau scientifique. L'expertise ainsi développée sera essentielle au transfert de connaissance que demandent nos utilisateurs pour leurs différentes applications.

Conclusion

L'étude des spectres bêta, tant expérimentale que théorique, a joué un rôle majeur dans notre compréhension des interactions fondamentales au cours du XX^{ème} siècle. Les recherches ont été actives sur cette thématique jusque dans les années 1970, puis sont passées de mode. Les installations de mesure ont été démantelées et les codes de calculs, lorsqu'ils n'ont pas disparu avec leurs auteurs, sont pour la plupart restés inaccessibles.

Cette thématique a connu un regain d'intérêt ces dix dernières années. La précision des simulations Monte Carlo, associée aux puissances de calcul toujours plus importantes, permet d'envisager des études précises pour caractériser un système de détection, évaluer l'impact d'un dépôt d'énergie au niveau cellulaire, ou encore déterminer la contribution de la radioactivité naturelle à des mesures à bas niveau de bruit. Ces simulations sont relativement faciles d'accès et sont de ce fait mises en œuvre au sein de nombreuses communautés scientifiques. Elles restent cependant tributaires des données de décroissance atomiques et nucléaires. La question de la qualité, de la précision et de la complétude de ces données se fait donc de plus en plus pressante. Dans ce contexte, les informations liées aux transitions par interaction faible, désintégrations bêta comme captures électroniques, sont apparues incomplètes et insuffisamment précises.

Le LNHB fait partie des meilleurs laboratoires dans le monde pour la métrologie de la radioactivité, grâce à une grande expertise dans les différentes techniques de mesures et à une forte implication dans les évaluations de données nécessaires à ses activités. Il était donc naturel qu'il se saisisse du problème en définissant une approche expérimentale cohérente. L'expertise présente en calorimétrie a permis de développer une nouvelle technique de grande précision, la calorimétrie métallique magnétique, et de l'adapter aux mesures de spectres bêta. Les résultats obtenus sont les plus précis au monde et ont démontré la pertinence de cette approche. Cette technique n'étant pas encore adaptée à la mesure de spectres bêta de haute énergie, un dispositif complémentaire a été développé à partir de détecteurs silicium. Tous les phénomènes induisant une déformation du spectre mesuré ont été étudiés en détail. Des solutions ont été mises en œuvre pour limiter au maximum la diffusion des électrons, ainsi que l'influence de la source à travers son épaisseur et sa préparation. Les déformations résiduelles sont corrigées à l'aide d'un processus de déconvolution spectrale développé à partir de simulations Monte Carlo de grande précision.

Dans un premier temps, des collaborations ont été activement recherchées afin d'améliorer les prédictions théoriques des transitions par interaction faible. Il est apparu que l'expertise nécessaire n'existait que pour certains cas bien spécifiques, comme les transitions double bêta ou super-permises. Les besoins des utilisateurs des données du LNHB sont plus généraux car ils souhaitent avoir accès aux spectres bêta et aux probabilités de capture pour n'importe quel type de transition. Bien qu'expérimentateur de formation, j'ai alors pris en charge le développement de calculs théoriques en essayant de répondre au

mieux à ces besoins. L'un des résultats obtenus est le code BetaShape, qui a été mis à la disposition des utilisateurs et qui a fortement contribué à faire connaître les travaux du LNHB en spectrométrie bêta. Au fur et à mesure que ma compréhension du formalisme s'affinait, j'ai pu aborder des aspects plus spécifiques. Ainsi, l'étude des effets atomiques, considérés jusqu'alors comme négligeables, a permis de réaliser des prédictions théoriques en excellent accord avec les spectres mesurés par calorimétrie métallique magnétique, jusqu'aux plus basses énergies mesurables. Récemment, j'ai étudié comment introduire la composante nucléaire, étape indispensable pour pouvoir calculer spécifiquement les transitions interdites non-uniquees. Cette première approche reste simple mais est essentielle pour prendre en compte des modélisations plus complexes de la structure nucléaire. Enfin, j'ai développé une modélisation des captures électroniques plus précise que les codes existants utilisés dans les évaluations de données nucléaires, comme l'a montré une comparaison à des données disponibles dans la littérature.

L'objectif initial d'une amélioration de la connaissance des transitions par interaction faible, pour les données nucléaires et la métrologie de la radioactivité, est atteint, mais beaucoup reste à faire. La nouvelle version de BetaShape, incluant les captures électroniques, devrait permettre de rester sur cette dynamique positive. Les résultats obtenus au LNHB ont suscité l'intérêt et initié des collaborations, informelles ou dans le cadre de projets financés, avec plusieurs laboratoires autour des mesures, des calculs ou des données atomiques et nucléaires. Leur impact en métrologie de l'activité a déjà été démontré et d'autres études sont en cours. Ces collaborations devraient permettre d'apporter l'expertise indispensable pour aller plus loin, le LNHB ne pouvant pas envisager d'acquérir une forte expertise théorique en physique atomique ou en structure nucléaire, par exemple.

Je suis convaincu que la métrologie de la radioactivité peut apporter, à son niveau, une expertise forte et complémentaire en physique nucléaire. La communauté de physique nucléaire théorique estime en général que la structure des noyaux autour de la vallée de stabilité est bien connue et ne présente que peu d'intérêt. Or, les incertitudes typiques de leurs prédictions sont de 10%, bien loin des incertitudes de 1% ou moins nécessaires en métrologie. Il est peut-être temps de revisiter notre connaissance de la structure nucléaire autour de la vallée de stabilité. Les spectres bêta et les probabilités de capture sont des observables qui y sont très sensibles. Ils peuvent jouer un rôle important pour contraindre les modèles, et ainsi améliorer notre connaissance des interactions entre les nucléons et dans le traitement du problème à N corps.

Les sujets de recherche fondamentale, en particulier les spectres antineutrino issus des réacteurs et les tests du Modèle Standard avec les transitions bêta, seront à n'en pas douter très structurants dans les années à venir pour la thématique scientifique exposée dans ce mémoire. Fort de l'expertise acquise jusqu'ici, le LNHB peut envisager une contribution significative à des études scientifiques de premier plan, ce qui devrait être l'un des buts de toute recherche en métrologie. Il devra cependant s'en donner les moyens, à travers le financement de projets dédiés pour composer avec des contraintes budgétaires sans commune mesure avec celles de la physique fondamentale. Les études à mener et la diversité des applications possibles, à travers lesquelles le LNHB pourra valoriser cette expertise, posent clairement la question d'un renforcement pérenne de l'équipe actuelle.

Bibliographie

- [Ago03] S. Agostinelli *et al.*, *Geant4 a simulation toolkit*, Nucl. Instrum. Meth. A **506** (2003) 250.
- [Ake19] M. Aker *et al.*, *An improved upper limit on the neutrino mass from a direct kinematic method by KATRIN*, arXiv :1909.06048v1 [hep-ex] (2019).
- [Aki17] D. Akimov *et al.*, *Observation of coherent elastic neutrino-nucleus scattering*, Science **357** (2017) 1123.
- [Alg10] A. Algora *et al.*, *Reactor Decay Heat in ^{239}Pu : Solving the γ Discrepancy in the 4–3000-s Cooling Period*, Phys. Rev. Lett. **105** (2010) 202501.
- [Amb30] V. Ambarzumjan, D. Ivanenko *Les électrons observables et les rayons β* , Comptes Rendus de l'Académie des Sciences **190** (1930) 582.
- [An17] F.P. An *et al.*, *Improved measurement of the reactor antineutrino flux and spectrum at Daya Bay*, Chin. Phys. C **41** (2017) 013002.
- [And68] V. Andersen, C.J. Christensen, *A $4\pi\beta$ -spectrometer with Li(Si) counters*, Nucl. Instr. Meth. **61** (1968) 77.
- [Ang99] I. Angeli, *Table of nuclear root mean square charge radii*, IAEA report INDC(HUN)-033 (1999).
- [Bae10] O. von Baeyer, O. Hahn, *Magnetische Linienspektren von Beta-Strahlen*, Physikalische Zeitschrift **11** (1910) 488.
- [Bae11] O. von Baeyer, O. Hahn, L. Meitner, *Über die β -Strahlen des aktiven Niederschlags des Thoriums*, Physikalische Zeitschrift **12** (1911) 273.
- [Bah65] J.N. Bahcall, *Exchange and overlap effects in electron capture ratios : physical basis and experimental tests*, Nucl. Phys. **71** (1965) 267.
- [Bah93] J.N. Bahcall, *Central temperature of the Sun can be measured via the ^7Be solar neutrino line*, Phys. Rev. Lett. **71** (1993) 2369.
- [Bam77] W. Bambynek *et al.*, *Orbital electron capture by the nucleus*, Rev. Mod. Phys. **49** (1977) 77.
- [Bar94] M. Bardies, J.-F. Chatal, *Absorbed doses for internal radiotherapy from 22 beta-emitting radionuclides : beta dosimetry of small spheres*, Phys. Med. Biol. **39** (1994) 961.
- [Be02] M.-M. Bé, R.G. Helmer, V. Chisté *The “NUCLÉIDE” Database for Decay Data and the “International Decay Data Evaluation Project”*, Journal of Nuclear Science and Technology **39** :sup2 (2002) 481.
- [Be04a] M.-M. Bé *et al.*, *Table of Radionuclides (Vol. 5 - A = 22 to 244)*, Monographie BIPM-5, vol. 1, Bureau International des Poids et Mesures (2004).

-
- [Be04b] M.-M. Bé *et al.*, *Table of Radionuclides (Vol. 5 - A = 22 to 244)*, Monographie BIPM-5, vol. 2, Bureau International des Poids et Mesures (2004).
- [Be06] M.-M. Bé *et al.*, *Table of Radionuclides (Vol. 5 - A = 22 to 244)*, Monographie BIPM-5, vol. 3, Bureau International des Poids et Mesures (2006).
- [Be08] M.-M. Bé *et al.*, *Table of Radionuclides (Vol. 5 - A = 22 to 244)*, Monographie BIPM-5, vol. 4, Bureau International des Poids et Mesures (2008).
- [Be10] M.-M. Bé *et al.*, *Table of Radionuclides (Vol. 5 - A = 22 to 244)*, Monographie BIPM-5, vol. 5, Bureau International des Poids et Mesures (2010).
- [Be11] M.-M. Bé *et al.*, *Table of Radionuclides (Vol. 5 - A = 22 to 244)*, Monographie BIPM-5, vol. 6, Bureau International des Poids et Mesures (2011).
- [Be13] M.-M. Bé *et al.*, *Table of Radionuclides (Vol. 5 - A = 22 to 244)*, Monographie BIPM-5, vol. 7, Bureau International des Poids et Mesures (2013).
- [Be16] M.-M. Bé *et al.*, *Table of Radionuclides (Vol. 5 - A = 22 to 244)*, Monographie BIPM-5, vol. 8, Bureau International des Poids et Mesures (2010).
- [Bec96a] A.H. Becquerel, *Sur les radiations émises par phosphorescence*, Comptes-rendus de l'Académie des sciences **122**, 420, séance du 24 février 1896.
- [Bec96b] A.H. Becquerel, *Sur les radiations invisibles émises par les corps phosphorescents*, Comptes-rendus de l'Académie des sciences **122**, 501, séance du 2 mars 1896.
- [Bec96c] A.H. Becquerel, *Sur les radiations invisibles émises par les sels d'uranium*, Comptes-rendus de l'Académie des sciences **122**, 689, séance du 23 mars 1896.
- [Bec96d] A.H. Becquerel, *Émission de radiations nouvelles par l'uranium métallique*, Comptes-rendus de l'Académie des sciences **122**, 1086, séance du 18 mai 1896.
- [Bec96e] A.H. Becquerel, *Sur diverses propriétés des rayons uraniques*, Comptes-rendus de l'Académie des sciences **123**, 855, séance du 23 novembre 1896.
- [Beh69] H. Behrens, J. Jänecke, *Numerical tables for beta-decay and electron capture*, Landolt-Börnstein, Numerical Data and Functional Relationships in Science Technology, New Series, edited by H. Schopper, Springer-Verlag, Group 1 : Nuclear Physics and Technology, Volume 4 (1969).
- [Beh76] H. Behrens, L. Szybisz, *Shapes of beta spectra*, Zentralstelle für Atomkernenergie-Dokumentation, Physik Daten – Physics Data **6-1** (1976).
- [Beh82] H. Behrens, W. Bühring, *Electron radial wave functions and nuclear beta decay*, Oxford Science Publications (1982).
- [Bel16] F. Belloni, *Alpha decay in electron environments of increasing density : From the bare nucleus to compressed matter*, Eur. Phys. J. A **52** (2016) 32.
- [Bel19] A. Belghachi *et al.*, *A model for ^{63}Ni source for betavoltaic application*, arXiv :1903.09098v2 [physics.app-ph] (2019).
- [Bis14] C. Bisch, *Étude de la forme des spectres β* , thèse de doctorat, Université de Strasbourg (2014).
- [Boh24] N. Bohr, H.A. Kramers, J.C. Slater, *The quantum theory of radiation*, Philosophical Magazine **47** (1924) 785.
- [Bos07] C.A. Boswell, M.W. Brechbiel, *Development of radioimmunotherapeutic and diagnostic antibodies : an inside-out view*. Nucl. Med. Biol. **34** (2007) 757.

- [Bot25a] W. Bothe, H. Geiger, *Experimentelles zur Theorie von Bohr, Kramers und Slater*, Naturwissenschaften **13** (1925) 440.
- [Bot25b] W. Bothe, H. Geiger, *Über das Wesen des Comptoneffekts; ein experimenteller Beitrag zur Theorie der Strahlung*, Z. Phys. **32** (1925) 639.
- [Bou56] P. Bouchez *et al.*, *Nouvelle Détermination de la Différence des Périodes de ${}^7\text{Be}$ Métallique et de ${}^7\text{BeF}_2$* , J. Phys. Radium **17** (1956) 363.
- [Bro07] R. Broda, P. Cassette, K. Kossert, *Radionuclide metrology using liquid scintillation counting*, Metrologia **44** (2007) S36.
- [Bro14] B.A. Brown, W.D.M. Rae, *The Shell-Model Code NuShellX@MSU*, Nuclear Data Sheets **120** (2014) 115.
- [Bru97] R. Brun, F. Rademakers, *ROOT – An Object Oriented Data Analysis Framework*, Proceedings AIHENP'96 Workshop, Lausanne, Sep. 1996, Nucl. Instr. Meth. A **389** (1997) 81. See also <http://root.cern.ch/>.
- [Buh65] W. Bühring, *Beta decay theory using exact electron radial wave functions (III). The influence of screening*, Nucl. Phys. **61** (1965) 110.
- [Buh83] W. Bühring, *Relativistic Scattering Phase Shifts, Bound State Energies, and Wave Function Normalization Factors for a Screened Coulomb Potential of the Hulthén Type : New, Approximate Formulae*, Z. Phys. A **312** (1983) 11.
- [Buh84] W. Bühring, *The screening correction to the Fermi function of nuclear β -decay and its model dependence*, Nucl. Phys. A **430** (1984) 1.
- [Cas92] P. Cassette, *SpeBeta - Programme de calcul du spectre en énergie des électrons émis par des radionucléides émetteurs bêta,*, NT-LPRI/92/307/juillet (1992).
- [Cha14] J. Chadwick, *Intensitätsverteilung im magnetischen Spektrum der β -Strahlen von Radium B+C*, Verhandlungen der deutschen physikalischen Gesellschaft **16** (1914) 383.
- [Cha32] J. Chadwick, *Possible existence of a neutron*, Nature **129** (1932) 312.
- [Cir13] V. Cirigliano, S. Gardner, B.R. Holstein, *Beta decays and non-standard interactions in the LHC era*, Prog. Part. Nucl. Phys. **71** (2013) 93.
- [Com23] A.H. Compton, *A Quantum Theory of the Scattering of X-Rays by Light Elements*, Phys. Rev. **21** (1923) 483.
- [Cow56] C.L. Cowan *et al.*, *Detection of the Free Neutrino : a Confirmation*, Science **124** (1956) 103.
- [Cra79] B. Crasemann *et al.*, *Atomic electron excitation probabilities during orbital electron capture by the nucleus*, Phys. Rev. C **19** (1979) 1042.
- [Cri11] M. Cribier *et al.*, *Proposed Search for a Fourth Neutrino with a PBq Antineutrino Source*, Phys. Rev. Lett. **107** (2011) 201801.
- [Cro83] W.G. Cross, H. Ing, N. Freedman, *A short atlas of beta-ray spectra*, Physics in Medicine and Biology **28** (1983) 1251.
- [Cwi87] S. Cwiok *et al.*, *Single-particle energies, wave functions, quadrupole moments and g-factors in an axially deformed Woods-Saxon potential with applications to the two-centre-type nuclear problems*, Comp. Phys. Comm. **46** (1987) 379.
- [Cza04] A. Czarnecki, W.J. Marciano, A. Sirlin, *Precision measurements and CKM unitarity*, Phys. Rev. D **70** (2004) 093006.

-
- [Daw09] J.V. Dawson *et al.*, *An investigation into the ^{113}Cd beta decay spectrum using a CdZnTe array*, Nucl. Phys. A **818** (2009) 264.
- [Des73] J.P. Desclaux, *Relativistic Dirac-Fock expectation values for atoms with $Z = 1$ to $Z = 120$* , Atomic Data and Nuclear Data Tables **12** (1973) 311.
- [Dil80] L.T. Dillman, *EDISTR - A computer program to obtain a nuclear decay data base for radiation dosimetry*, Tech. Rep. ORNL/TM-6689 (Oak Ridge National Laboratory, 1980).
- [Dor30] J.G. Dorfman, *Le moment magnétique du noyau de l'atome*, Comptes Rendus de l'Académie des Sciences **190** (1930) 924.
- [Dub05] N. Dubray, J. Dudek, N. Schunck, *The problem of universality of nuclear mean-field parametrizations*, Int. J. Mod. Phys. E **14** (2005) 493.
- [Dud18] J. Dudek *et al.*, *Spectroscopic criteria for identification of nuclear tetrahedral and octahedral symmetries : Illustration on a rare earth nucleus*, Phys. Rev. C **97** (2018) 021302(R).
- [Dzh69] B.S. Dzhelepov, L.N. Zyryanova, Yu.P. Suslov, *Beta-processes*, in Russian, Nauka, Leningrad (1969).
- [Ell27] C.D. Ellis, W.A. Wooster, *The Average Energy of Disintegration of Radium E*, Proceedings of the Royal Society (London) **A117** (1927) 109.
- [Eng62] D.W. Engelkemeir, K.F. Flynn, L.E. Glendenin, *Positron emission in the decay of ^{40}K* , Phys. Rev. **126** (1962) 1818.
- [Est18] M. Estienne *et al.*, *Recent advances in beta decay measurements*, EPJ Nuclear Sci. Technol. **4** (2018) 24.
- [Fel52] L. Feldman, C.S. Wu, *Investigation of the Beta-Spectra of ^{10}Be , ^{40}K , ^{99}Tc , and ^{36}Cl* , Phys. Rev. **87** (1952) 1091.
- [Fer34] E. Fermi, *Versuch einer Theorie der β -Strahlen*, Z. Phys. **88** (1934) 161.
- [Fey58] R.P. Feynman, M. Gell-Mann, *Theory of the Fermi Interaction*, Phys. Rev. **109** (1958) 193.
- [Fle05] A. Fleischmann, C. Enss, G.M. Seidel, *Metallic Magnetic Calorimeters*, chapter in *Cryogenic Particle Detection*, Topics in Applied Physics **99**, 151, Springer Berlin/Heidelberg (2005).
- [Fij17] A. Fijalkowska *et al.*, *Impact of Modular Total Absorption Spectrometer measurements of β decay of fission products on the decay heat and reactor $\bar{\nu}_e$ flux calculation*, Phys. Rev. Lett. **119** (2017) 052503.
- [Fon17] C. Fontbonne *et al.*, *High precision measurement of the ^{19}Ne β -decay half-life using real-time digital acquisition*, Phys. Rev. C **96** (2017) 065501.
- [Gam36] G. Gamow, E. Teller, *Selection Rules for the β -Disintegration*, Phys. Rev. **49** (1936) 895.
- [Gar17] E. García-Toraño *et al.*, *Simulation of decay processes and radiation transport times in radioactivity measurements*, Nucl. Instr. Meth. B **396** (2017) 43.
- [Gel58] M. Gell-Mann, *Test of the Nature of the Vector Interaction in β Decay*, Phys. Rev. **111** (1958) 362; Erratum Phys. Rev. **112** (1958) 2139.

- [Geo14] E.A. George, P.A. Voytas, G.W. Severin, L.D. Knutson, *Measurement of the shape factor for the β decay of ^{14}O* , Phys. Rev. C **90** (2014) 065501.
- [Gil72] H.J. Gils, D. Flothmann, R. Lohken, W. Wiesner, *A $4\pi\beta - \gamma$ coincidence spectrometer using Si(Li) and NaI(Tl) detectors*, Nucl. Instr. Meth. **105** (1972) 179.
- [Gla61] S.L. Glashow, *Partial-symmetries of weak interactions*, Nucl. Phys. **22** (1961) 579.
- [Gli17] A. Glick-Magid *et al.*, *Beta spectrum of unique first-forbidden decays as a novel test for fundamental symmetries*, Phys. Lett. B **767** (2017) 285.
- [Gon16] M. González-Alonso, O. Naviliat-Cuncic, *Kinematic sensitivity to the Fierz term of β -decay differential spectra*, Phys. Rev. C **94** (2016) 035503.
- [Gor10] V. Gorozhankin *et al.*, *Construction of beta spectrum on the basis of experimental nuclear decay data*, Proceedings of the LSC2010 International Conference, Advances in Liquid Scintillation Spectrometry, P. Cassette Editor, p. 259 (2010).
- [Gov71] N.B. Gove, M.J. Martin, *Log-f tables for β decay*, Nuclear Data Tables **10** (1971) 205.
- [Gra70] I.P. Grant, *Relativistic calculation of atomic structures*, Advances in Physics **19** (1970) 747.
- [Gra98] A. Grau Malonda, A. Grau Carles, *The Anisotropy Coefficient in Cerenkov Counting*, Appl. Radiat. Isot. **49** (1998) 1049.
- [Gra99] A. Grau Malonda *et al.*, *EMI2, the counting efficiency for electron capture by KL1L2L3M model*, Comput. Phys. Commun. **123** (1999) 114.
- [Gua17] V. Guadilla *et al.*, *Experimental study of ^{100}Tc β decay with total absorption γ -ray spectroscopy*, Phys. Rev. C **96** (2017) 014319.
- [Gua19] V. Guadilla *et al.*, *Total absorption γ -ray spectroscopy of niobium isomers*, Phys. Rev. C **100** (2019) 024311.
- [Gup10] M. Gupta, M.A. Kellett, A.L. Nichols, O. Bersillon, *Decay heat calculations : Assessment of fission product decay data requirements for Th/U fuel*, IAEA, Nuclear Data Section, INDC(NDS)-0577 (2010).
- [Haa17] M. Haaranen, J. Kotila, J. Suhonen, *Spectrum-shape method and the next-to-leading-order terms of the β -decay shape factor*, Phys. Rev. C **95** (2017) 024327.
- [Ham53] D.R. Hamilton, W.P. Alford, L. Gross, *Upper limits on the neutrino mass from the tritium beta spectrum*, Phys. Rev. **92** (1953) 1521.
- [Han49] G.C. Hanna, B. Pontecorvo, *The β -spectrum of ^3H* , Phys. Rev. **75** (1949) 983.
- [Har15] J.C. Hardy, I.S. Towner, *Superallowed $0^+ \rightarrow 0^+$ nuclear β decays : 2014 critical survey, with precise results for V_{ud} and CKM unitarity*, Phys. Rev. C **91** (2015) 025501.
- [Har77] J.C. Hardy, L.C. Carraz, B. Jonson, P.G. Hansen, *The essential decay of pandemonium : A demonstration of errors in complex beta-decay schemes*, Phys. Lett. B **71** (1977) 307.
- [Har92] M.R. Harston, N.C. Pyper, *Exchange effects in β decays of many-electron atoms*, Phys. Rev. A **45** (1992) 6282.
- [Hau13] S. Hauf *et al.*, *Validation of Geant4-based radioactive decay simulation*, IEEE Trans. Nucl. Sci. **60** (2013) 2984.

-
- [Hay14] A.C. Hayes *et al.*, *Systematic Uncertainties in the Analysis of the Reactor Neutrino Anomaly*, Phys. Rev. Lett. **112** (2014) 202501.
- [Hay18] L. Hayen *et al.*, *High precision analytical description of the allowed β spectrum shape*, Rev. Mod. Phys. **90** (2018) 015008.
- [Hay19] L. Hayen, J. Kostensalo, N. Severijns, J. Suhonen, *First-forbidden transitions in reactor antineutrino spectra*, Phys. Rev. C **99** (2019) 031301(R).
- [Hel02] R.G. Helmer, E. Browne, M.-M. Bé, *International Decay Data Evaluation Project*, Journal of Nuclear Science and Technology **39** :sup2 (2002) 455.
- [Hen73] W.K. Hensley, W.A. Bassett, J.R. Huizenga, *Pressure Dependence of the Radioactive Decay Constant of Beryllium-7*, Science **181** (1973) 1164.
- [Her98] T.H. Her *et al.*, *Microstructuring of silicon with femtosecond laser pulses*, Appl. Phys. Lett. **73** (1998) 1673.
- [Hic13] K.P. Hickerson, *The Physics of Ultracold Neutrons and Fierz Interference in Beta Decay*, PhD thesis, California Institute of Technology, Pasadena, California (2013).
- [Hol79] B.E. Holstein, *Electromagnetic corrections to ε/β^+ ratios*, Phys. Rev. C **20** (1979) 387.
- [Hub11] P. Huber, *Determination of antineutrino spectra from nuclear reactors*, Phys. Rev. C **84** (2011) 024617; Erratum Phys. Rev. C **85** (2012) 029901.
- [Hug29] A.Ll. Hughes, V. Rojansky, *On the analysis of electronic velocities by electrostatic means*, Phys. Rev. **34** (1929) 284.
- [Huh99] C.-A. Huh, *Dependence of the Decay Rate of ${}^7\text{Be}$ on Chemical Forms*, Earth Planet. Sci. Lett. **171** (1999) 325.
- [Huy16] X. Huyan *et al.*, *Toward a measurement of weak magnetism in ${}^6\text{He}$ decay*, Hyperfine Interactions **237** (2016) 93.
- [IAEA08] International Atomic Energy Agency (IAEA), *Final report : Focused workshop on antineutrino detection for safeguards applications*, IAEA editor, IAEA Headquarters, Vienna, 28-30 October 2008.
- [Ind90] P. Indelicato, J.P. Desclaux, *Multiconfiguration Dirac-Fock calculations of transition energies with QED corrections in three-electron ions*, Phys. Rev. A **42** (1990) 5139.
- [Ind07] P. Indelicato, J.P. Desclaux, *MCDFGME, A Multi-Configuration Dirac Fock and General Matrix Elements Program*, see <http://dirac.spectro.jussieu.fr/mcdf> (2007).
- [Jau72] W. Jaus, *Electromagnetic corrections of order $Z\alpha^2$ and $Z^2\alpha^3$ to Fermi beta decays*, Phys. Lett. **40** (1972) 616.
- [Joh56] R.G. Johnson, O.E. Johnson, L.M. Langer, *Beta Spectrum of ${}^{36}\text{Cl}$* , Phys. Rev. **102** (1956) 1142.
- [Joh70] H.W. Johlige, D.C. Aumann, H.-J. Born, *Determination of the Relative Electron Density at the Be Nucleus in Different Chemical Combinations, Measured as Changes in the Electron-Capture Half-Life of ${}^7\text{Be}$* , Phys. Rev. C **2** (1970) 1616.
- [Jug19] F. Juget *et al.*, *Development and validation of a double focalizing magnetic spectrometer for beta spectrum measurements*, Nucl. Instr. Phys. Meth. A **942** (2019) 162394.

- [Kar15] L. Karam, J. Keightley, J.M. Los Arcos, *Practical implementation of uncertainty analysis in radionuclide metrology*, Metrologia **52** (2015) S1-S2.
- [Kas04] A.I. Kassis, *The amazing world of auger electrons*, Int. J. Radiat. Biol. **80** (2004) 789.
- [Kaw18] I. Kawrakow *et al.*, *The EGSnrc Code System : Monte Carlo Simulation of Electron and Photon Transport*, National Research Council Canada, Technical Report PIRS-701 (2018).
- [Kel17] M.A. Kellett, O. Bersillon, *The Decay Data Evaluation Project (DDEP) and the JEFF-3.3 radioactive decay data library : Combining international collaborative efforts on evaluated decay data*, EPJ Web Conf. **146** (2017) 02009.
- [Kim16] T. Kim *et al.*, *Enhancement of energy performance in betavoltaic cells by optimizing self-absorption of beta particles*, Int. J. Energ. Res. **40** (2016) 522.
- [Kla85] H.V. Klapdor, *Beta Decay Far from Stability and Its Role in Nuclear Physics and Astrophysics*, Fortschr. Phys. **33** (1985) 1.
- [Kon66] E.J. Konopinski, *The theory of beta radioactivity*, Oxford, Clarendon Press (1966).
- [Kor11] J. Korenaga, *Clairvoyant geoneutrinos*, Nature Geoscience **4** (2011) 581.
- [Kos06] K. Kossert, A. Grau Carles, *The LSC efficiency for low-Z electron-capture nuclides*, Appl. Radiat. Isot. **64** (2006) 1446.
- [Kos10] K. Kossert, A. Grau Carles, O.J. Nähle, *Cerenkov counting and liquid scintillation counting of ^{36}Cl* , Proceedings of the LSC2010 International Conference, Advances in Liquid Scintillation Spectrometry, P. Cassette Editor, p. 161 (2010).
- [Kos15] K. Kossert, X. Mougeot, *The importance of the beta spectrum calculation for accurate activity determination of ^{63}Ni by means of liquid scintillation counting*, Appl. Radiat. Isot. **101** (2015) 40.
- [Kos18] K. Kossert *et al.*, *Activity determination of ^{60}Co and the importance of its beta spectrum*, Appl. Radiat. Isot. **134** (2018) 212.
- [Kos19] K. Kossert *et al.*, *Validation of beta spectra by means of liquid scintillation counting and Cerenkov counting*, Deliverable **D7** of the EMPIR project MetroBeta 15SIB10, Workpackage 4 (2019).
- [Kot97] S. Kotochigova *et al.*, *Local-density-functional calculations of the energy of atoms*, Phys. Rev. A **55** (1997) 191.
- [Kro74] A. Kropf, H. Paul, *Least squares adjustment of the coupling constants in nuclear beta-decay*, Z. Phys. **267** (1974) 129.
- [Kur17] N.A. Kuruoglu, O. Ozdemir, K. Bozkurt, *Betavoltaic study of GaN p-i-n structure grown by metal-organic vapour phase epitaxy with a ^{63}Ni source*, Thin Solid Films **636** (2017) 746.
- [Kuz00] V.V. Kuzminov, N.Ja. Osetrova, *Precise measurement of ^{14}C beta spectrum by using a wall-less proportional counter*, Phys. Atomic Nuclei **63** (2000) 1292.
- [LeB12] C. Le-Bret, *Développement de Calorimètres Métalliques Magnétiques pour la Spectrométrie Bêta*, thèse de doctorat, Université Paris Sud – Paris XI (2012).
- [Lee56] T.D. Lee, C.N. Yang, *Question of Parity Conservation in Weak Interactions*, Phys. Rev. **104** (1956) 254.

-
- [Liu10] J. Liu *et al.*, *Determination of the axial-vector weak coupling constant with ultracold neutrons*, Phys. Rev. Lett. **105** (2010) 181803.
- [Loe01] E.V.D. van Loef *et al.*, *High-energy-resolution scintillator : Ce³⁺ activated LaBr₃*, Appl. Phys. Lett. **79** (2001) 1573.
- [Loi10] M. Loidl *et al.*, *First measurement of the beta spectrum of ²⁴¹Pu with a cryogenic detector*, Appl. Radiat. Isot. **68** (2010) 1454.
- [Loi14] M. Loidl, M. Rodrigues, C. Le-Bret, X. Mougeot, *Beta spectrometry with metallic magnetic calorimeters*, Appl. Radiat. Isot. **87** (2014) 302.
- [Loi18] M. Loidl, M. Rodrigues, R. Mariam, *Measurement of the electron capture probabilities of ⁵⁵Fe with a metallic magnetic calorimeter*, Appl. Radiat. Isot. **134** (2018) 395.
- [Lu71] C.C. Lu *et al.*, *Relativistic Hartree-Fock-Slater eigenvalues, radial expectation values, and potentials for atoms, 2 ≤ Z ≤ 126*, Atomic Data **3** (1971) 1.
- [Lv18] J. Lv *et al.*, *Review Application of Nanostructured Black Silicon*, Nanoscale Research Letters **13** (2018) 110.
- [Mar70] M.J. Martin, P.H. Blichert-Toft, *Radioactive atoms : Auger electron, α-, β-, γ- and X-ray Data*, Nuclear Data Tables **A8** (1970) 1.
- [Maz72] H. Mazaki, T. Nagatomo, S. Shimizu, *Effect of Pressure on the Decay Constant of ^{99m}Tc*, Phys. Rev. C **5** (1972) 1718.
- [McN18] S. McNamee, *Fabrication of a gap nanowire betavoltaic device using ⁶³Ni*, M. A. Sc. thesis, McMaster University (2018).
- [Mei23] L. Meitner, *Über eine mögliche Deutung des kontinuierlichen β-Strahlenspektrums*, Z. Phys. **22** (1923) 307.
- [Mei30] L. Meitner, W. Orthmann, *Über eine absolute Bestimmung der Energie der primären β-Strahlen von Radium E*, Z. Phys. **60** (1930) 143.
- [Men11] G. Mention *et al.*, *Reactor antineutrino anomaly*, Phys. Rev. D **83** (2011) 073006.
- [Mic10b] M. Michel, *Mise en place d'un système de détection pour la mesure des spectres bêta*, Mémoire de Master 2 Physique et Technologie des Rayonnements, Université Blaise Pascal de Clermont-Ferrand (2010).
- [Moh16] P.J. Mohr, D.B. Newell, B.N. Taylor, *CODATA recommended values of the fundamental physical constants : 2014*, Rev. Mod. Phys. **88** (2016) 035009.
- [Mor40] P. Morrison, L.I. Schiff, *Radiative K Capture*, Phys. Rev. **58** (1940) 24.
- [Mor64] R. Moret, *Étude théorique et réalisation d'un spectromètre bêta électrostatique sphérique*, Rapport CEA - R 2420, Centre d'études nucléaires de Grenoble (1964).
- [Mor08] T. Morisato *et al.*, *Electron-capture decay rate of ⁷Be@C₆₀ by first-principles calculations based on density functional theory*, Phys. Rev. B **78** (2008) 125416.
- [Mou09] X. Mougeot, R.G. Helmer, ⁴⁰K - *Comments on evaluation of decay data*, DDEP collaboration (2009) <http://www.lnhb.fr/donnees-nucleaires/donnees-nucleaires-tableau/>.
- [Mou12b] X. Mougeot, M.-M. Bé, C. Bisch, M. Loidl, *Evidence for the exchange effect in the β decay of ²⁴¹Pu*, Phys. Rev. A **86** (2012) 042506.

- [Mou14] X. Mougeot, C. Bisch, *Consistent calculation of the screening and exchange effects in allowed β^- transitions*, Phys. Rev. A **90** (2014) 012501.
- [Mou15] X. Mougeot, *Reliability of usual assumptions in the calculation of β and ν spectra*, Phys. Rev. C **91** (2015) 055504.
- [Mou17] X. Mougeot, *BetaShape : A new code for improved analytical calculations of beta spectra*, EPJ Web of Conferences **146** (2017) 12015.
- [Mou18] X. Mougeot, *Improved calculations of electron capture transitions for decay data and radionuclide metrology*, Appl. Radiat. Isot. **134** (2018) 225.
- [Mou19] X. Mougeot, *Towards high-precision calculation of electron capture decays*, Appl. Radiat. Isot. **154** (2019) 108884.
- [Mue11] T.A. Mueller *et al.*, *Improved predictions of reactor antineutrino spectra*, Phys. Rev. C **83** (2011) 054615.
- [Mun13] D. Mund *et al.*, *Determination of the weak axial vector coupling $\lambda = g_A/g_V$ from a measurement of the β -asymmetry parameter A in neutron beta decay*, Phys. Rev. Lett. **110** (2013) 172502.
- [Mun15] C.E. Munson *et al.*, *Model of ^{63}Ni battery with realistic PIN structure*, J. Appl. Phys. **118** (2015) 105101.
- [Nee38] J. Needham, W. Pagel, *Forty years of physics*, in *Background to Modern Science*, Cambridge, at the University Press (1938).
- [Nav13] O. Naviliat-Cuncic, M. González-Alonso, *Prospects for precision measurements in nuclear β decay at the LHC era*, Annalen der Physik **525** (2013) 600.
- [Nic05] A.L. Nichols, *Beta-decay and decay heat*, International Nuclear Data Committee, Nuclear Data Section, INDC(NDS)-0483 (2005).
- [Oht04] T. Ohtsuki *et al.*, *Enhanced Electron-Capture Decay Rate of ^7Be Encapsulated in C_{60} Cages*, Phys. Rev. Lett. **93** (2004) 112501.
- [Oht08] T. Ohtsuki *et al.*, *Radioactive Decay Speedup at $T = 5\text{ K}$: Electron-Capture Decay Rate of ^7Be Encapsulated in C_{60}* , Phys. Rev. Lett. **98** (2008) 252501 ; Erratum Phys. Rev. Lett. **101** (2008) 219901.
- [Pac07] K. Pachucki, U.D. Jentschura, M. Pfützner, *Radiative orbital electron capture by the atomic nucleus*, Phys. Rev. C **75** (2007) 055502.
- [Pal10] A. Pálffy, *Nuclear effects in atomic transitions*, Contemporary Physics **51** (2010) 471.
- [Pau79] W. Pauli, *Wissenschaftlicher Briefwechsel mit Bohr, Einstein, Heisenberg*, Sources in the History of Mathematics and Physical Science, Springer, p.39 (1979).
- [Per91] S.T. Perkins *et al.*, *Tables and graphs of atomic subshell and relaxation data derived from the LLNL evaluated atomic data library (EADL), $Z = 1 - 100$* , Tech. Rep. UCRL-ID-50400, Lawrence Livermore National Laboratory, Livermore, California (1991).
- [Poc09] D. Pocanic and the Nab collaboration, *Nab : Measurement principles, apparatus and uncertainties*, Nucl. Instr. Meth. A **611** (2009) 211.
- [Pra13] J. Pradler, B. Singh, I. Yavin, *On an unverified nuclear decay and its role in the DAMA experiment*, Phys. Lett. B **720** (2013) 399.

-
- [Pre14] M.A. Prelas *et al.*, *A review of nuclear batteries*, Prog. Nucl. Energ. **75** (2014) 117.
- [Pro69] V. Prodi, K.F. Flynn, L.E. Glendenin, *Half-Life and β Spectrum of ^{176}Lu* , Phys. Rev. **188** (1969) 1930.
- [Qua16] F.G.A. Quarati, P. Dorenbos, X.Mougeot, *Experiments and theory of ^{138}La radioactive decay*, Appl. Radiat. Isot. **109** (2016) 172.
- [Qui65] R. Quivy, J. Franeau, *Étude expérimentale précise des spectres β* , J. Phys. France **26** (1965) 241.
- [Ram73] S. Raman, N.B. Gove, *Rules for Spin and Parity Assignments Based on Logft Values*, Phys. Rev. C **7** (1973) 1995.
- [Ras16] B.C. Rasco *et al.*, *Decays of the Three Top Contributors to the Reactor $\bar{\nu}_e$ High-Energy Spectrum, ^{92}Rb , $^{96\text{gs}}\text{Y}$, and ^{142}Cs , Studied with Total Absorption Spectroscopy*, Phys. Rev. Lett. **117** (2016) 092501.
- [Ras17] B.C. Rasco *et al.*, *Complete β -decay pattern for the high-priority decay-heat isotopes ^{137}I and ^{137}Xe determined using total absorption spectroscopy*, Phys. Rev. C **95** (2017) 054328.
- [Ray99] A. Ray *et al.*, *Observation of Large Change of ^7Be Decay Rate in Au and Al_2O_3 and Its Implications*, Phys. Lett. B **455** (1999) 69.
- [Ray02] A. Ray *et al.*, *Effect of host medium on the L/K ratio in ^7Be electron capture*, Phys. Rev. C **66** (2002) 012501(R).
- [Reg08a] E. Regener, *Über Zählung der α -Teilchen durch die Szintillation und die Grösse des elektrischen Elementarquantums*, Verhandlungen der deutschen physikalischen Gesellschaft zu Berlin **10**, 78, séance du 7 février 1908.
- [Reg08b] E. Regener, *Beobachtung szintillierender Fluoreszenz, hervor gerufen durch β -Strahlen*, Verhandlungen der deutschen physikalischen Gesellschaft zu Berlin **10**, 351, séance du 1^{er} mai 1908.
- [Rei56] F. Reines, C.L. Cowan, *The Neutrino*, Nature **178** (1956) 446.
- [Rei74] M. Reich, H.M. Schüpferling, *Formfaktor des β -Spektrums von ^{99}Tc* , Z. Physik **271** (1974) 107.
- [Ros36] M.E. Rose, *A note on the possible effect of screening in the theory of beta-disintegration*, Phys. Rev. **49** (1936) 727.
- [Ros61] M.E. Rose, *Relativistic electron theory*, Wiley and Sons (1961).
- [Rot08] H. Rotzinger *et al.*, *Beta Spectrometry with Magnetic Calorimeters*, J. Low Temp. Phys. **151** (2008) 1087.
- [Rud79] G. Rudstam, K. Aleklett *Average beta and gamma energies of fission products*, Tech. Rep. NFL-7 (The Studsvik Science Research Laboratory, 1979).
- [Rut08] E. Rutherford, H. Geiger *The Charge and Nature of the α -Particles*, Proceedings of the Royal Society (London) **A81** (1908) 162.
- [Sal15] F. Salvat, *PENELOPE-2014 – A Code System for Monte Carlo Simulation of Electron and Photon Transport*, NEA report NEA/NSC/DOC (2015).
- [Sal59] A. Salam, J.C. Ward, *Weak and electromagnetic interactions*, Il Nuovo Cimento **11** (1959) 568.

- [Sal69] R.C. Salgo, H.H. Staub, *Re-determination of the \hat{a} -energy of tritium and its relation to the neutrino rest mass and the gamow-teller matrix element*, Nucl. Phys. A **138** (1969) 417.
- [Sal87] F. Salvat, J.D. Martínez, R. Mayol, J. Parellada, *Analytical Dirac-Hartree-Fock-Slater screening function for atoms ($Z=1-92$)*, Phys. Rev. A **36** (1987) 467.
- [Sam15] J.M. Sampaio, T.I. Madeira, M. Guerra, F. Parente, J.P. Santos, P. Indelicato, J.P. Marques, *Dirac-Fock calculations of K -, L -, and M -shell fluorescence and Coster-Kronig yields for Ne, Ar, Kr, Xe, Rn, and Uuo* Phys. Rev. A **91** (2015) 052507.
- [San19] R. Sandler *et al.*, *Direct determination of the ^{138}La β -decay Q value using Penning trap mass spectrometry*, Phys. Rev. C **100** (2019) 014308.
- [Sar32] B.W. Sargent, *Energy distribution curves of the disintegration electrons*, Proceedings of the Cambridge Philosophical Society **28** (1932) 538.
- [Sar33] B.W. Sargent, *The Maximum Energy of the β -Rays from Uranium X*, Proceedings of the Royal Society (London) **A139** (1933) 659.
- [Sas72] K.S.R. Sastry, *Investigation of longitudinal polarization and other properties of some beta-transitions*, Massachusetts University Report No. AD-752621 (1972).
- [Sch64] L. Schülke, *Nuclear β -Decay. II*, Z. Phys. **179** (1964) 331.
- [Sch66] H.F. Schopper, *Weak interactions and nuclear beta decay*, Amsterdam, North-Holland Publishing Company (1966).
- [Sch98] E. Schönfeld, *Calculation of fractional electron capture probabilities*, Appl. Radiat. Isot. **49** (1998) 1353.
- [Seg49] E. Segre, C.E. Wiegand, *Experiments on the Effect of Atomic Electrons on the Decay Constant of ^7Be* , Phys. Rev. **75** (1949) 39; Erratum Phys. Rev. **81** (1951) 284.
- [Sev06] N. Severijns, M. Beck, O. Naviliat-Cuncic, *Tests of the standard electroweak model in nuclear beta decay*, Rev. Mod. Phys. **78** (2006) 991.
- [Sev14] N. Severijns, *Correlation and spectrum shape measurements in β -decay probing the standard model*, Journal of Physics G : Nuclear and Particle Physics **41** (2014) 114006.
- [She67] E.B. Shera, M.P. Bedesem, K.J. Casper, *Superconducting magnet beta-ray spectrometer*, Rev. Sci. Instrum. **38** (1967) 1110.
- [Sie55] K. Siegbahn, *Alpha-, Beta- and Gamma-Ray Spectroscopy*, North-Holland Publishing Company (1955).
- [Sim07] B. Simpson, S. Judge, *Special issue on radionuclide metrology*, Metrologia **44** (2007).
- [Sin98] B. Singh *et al.*, *Review Of Logft Values In β Decay*, Nuclear Data Sheets **84** (1998) 487.
- [Sir67] A. Sirlin, *General properties of the electromagnetic corrections to the beta decay of a physical nucleon*, Phys. Rev. **164** (1967) 1767.
- [Sir11] A. Sirlin, *Radiative correction to the $\bar{\nu}_e$ (ν_e) spectrum in β decay*, Phys. Rev. D **84** (2011) 014021.
- [Sla51] J.C. Slater, *A simplification of the Hartree-Fock method*, Phys. Rev. **81** (1951) 385.
- [Sny66] R.E. Snyder, G.B. Beard, *Decay of ^{94}Nb and ^{94m}Nb* , Phys. Rev. **147** (1966) 867.

-
- [Son15] A.A. Sonzogni, T.D. Johnson, E.A. McCutchan, *Nuclear structure insights into reactor antineutrino spectra*, Phys. Rev. C **91** (2015) 011301(R).
- [Son17] A.A. Sonzogni, E.A. McCutchan, A.C. Hayes, *Dissecting Reactor Antineutrino Flux Calculations*, Phys. Rev. Lett. **119** (2017) 112501 .
- [Soo04] P.C. Sood *et al.*, *Unusual features of β transition rates in heavy deformed nuclei*, Phys. Rev. C **69** (2004) 057303.
- [Soo11] P.C. Sood *et al.*, *Characterization of isomers in the neutron-rich odd-odd nucleus ^{156}Pm* , Phys. Rev. C **83** (2011) 027303.
- [Sot13] G. Soti *et al.*, *Performance of Geant4 in simulating semiconductor particle detector response in the energy range below 1MeV*, Nucl. Instr. Meth. A **728** (2013) 11.
- [Spe66] E.H. Spejewski, *Beta-spectrum shape measurements with a 4π semiconductor spectrometer*, Nucl. Phys. **82** (1966) 481.
- [Ste64] B. Stech, L. Schülke, *Nuclear β -Decay. I*, Z. Phys. **179** (1964) 314.
- [Str98] P. Strange, *Relativistic quantum mechanics with applications in condensed matter and atomic physics*, Cambridge University Press (1998).
- [Suh7] J. Suhonen, *From Nucleons to Nucleus – Concepts of Microscopic Nuclear Theory*, Springer-Verlag Berlin Heidelberg (2007).
- [Svi18] A.A. Svintsov *et al.*, *Betavoltaic battery performance : comparison of modeling and experiment*, Appl. Radiat. Isot. **137** (2018) 184.
- [Tai51] S.I. Taimuty, *The Beta-Spectrum of ^{99}Tc* , Phys. Rev. **81** (1951) 461.
- [Thi19] C. Thiam *et al.*, *NUCLIDE++ : A C++ module to include DDEP recommended radioactive decay data in Geant4*, Appl. Radiat. Isot. (2019) accepted.
- [Tie18] E. Tiesinga, P.J. Mohr, D.B. Newell, B.N. Taylor, *The 2018 CODATA Recommended Values of the Fundamental Physical Constants*, Web Version 8.0, Database developed by J. Baker, M. Douma and S. Kotochigova. Available at <http://physics.nist.gov/constants>, National Institute of Standards and Technology, Gaithersburg, MD 20899 (2019).
- [Tka10] E.V. Tkalya, A.V. Bibikov, I.V. Bodrenko, *Electron capture β decay of ^7Be encapsulated in C_{60} : Origin of increased electron density at the ^7Be nucleus*, Phys. Rev. C **81** (2010) 024610.
- [Tow08] I.S. Towner, J.C. Hardy, *Improved calculation of the isospin-symmetry-breaking corrections to superallowed Fermi β decay*, Phys. Rev. C **77** (2008) 025501.
- [Tri67] J.M. Trischuk, E. Kankeleit, *The beta spectrum of ^{207}Tl* , Nucl. Phys. A **90** (1967) 33.
- [Tso69] N. Tsoulfanidis, B.W. Wehring, M.E. Wyman, *The use of an analytical response function for unfolding beta spectra*, Nucl. Instr. Meth. **73** (1969) 98.
- [Ulm09] B. Ulmen *et al.*, *Development of diode junction nuclear battery using ^{63}Ni* , J. Radioanal. Nucl. Ch. **282** (2009) 601.
- [Val89] L. Valentin, *Noyaux et particules : modèles et symétries*, Paris Hermann (1989).
- [Van87] L. Van Elmbt, J. Deutsch, R. Prieels, *Measurement of the ^{20}F beta-spectrum : A low-energy test of the standard electro-weak gauge-model*, Nucl. Phys. A **469** (1987) 531.

- [Vat70] E. Vatai, *On the exchange and overlap corrections in electron capture*, Nucl. Phys. A **156** (1970) 541.
- [Voy02] P.A. Voytas *et al.*, *Direct Measurement of the L/K Ratio in ^7Be Electron Capture*, Phys. Rev. Lett. **88** (2002) 012501.
- [Wan17] M. Wang *et al.*, *The AME2016 atomic mass evaluation*, Chin. Phys. C **41** (2017) 03003.
- [Wei67] S. Weinberg, *A Model of Leptons*, Phys. Rev. Lett. **19** (1967) 1264.
- [Wil67] J.B. Willett, E.H. Spejewski, *A method for resolution correction and shape factor analysis of beta spectra*, Nucl. Instr. Meth. **52** (1967) 77.
- [Wu57] C.-S. Wu *et al.*, *Experimental Test of Parity Conservation in Beta Decay*, Phys. Rev. **105** (1957) 1413.
- [Wyn12] W.M. van Wyngaardt *et al.*, *Absolute standardization of ^{241}Pu by the TDCR technique and effect of the beta spectral shape*, Appl. Radiat. Isot. **70** (2012) 2188.
- [Yak16] E.B. Yakimov, *Prediction of betavoltaic battery output parameters based on SEM measurements and Monte Carlo simulation*, Appl. Radiat. Isot. **112** (2016) 98.
- [Yos07] T. Yoshida, A.L. Nichols, *Assessment of Fission Product Decay Data for Decay Heat Calculations*, Tech. Rep. NEA/WPEC-25 6284 (OECD Nuclear Energy Agency, 2007).

III



Curriculum vitæ

1 Profil de recherche

1.1 État civil

Prénom, Nom : Xavier Mougeot
Date de naissance : 3 mai 1981
Nationalité : Français
Situation familiale : Marié, deux enfants

1.2 Formation

2005–2008 : **Doctorat de physique nucléaire**

Directrice de thèse : Valérie Lapoux

Institution : CEA, IRFU, Département de Physique Nucléaire (DPhN), Saclay, France

Sujet : Spectroscopie des noyaux exotiques ${}^6,{}^7\text{He}$ avec les télescopes à pistes MUST2 et le faisceau SPIRAL d' ${}^8\text{He}$

2002–2005 : **Magistère Interuniversitaire de Physique**

Établissements : École Normale Supérieure de Paris (ENS Ulm)
et Université Paris Diderot, France

1.3 Positions occupées

Depuis 2009 : **Ingénieur–Chercheur en métrologie**
au Laboratoire National Henri Becquerel

Institution : CEA, LIST, Département Métrologie, Instrumentation et Information (DM2I),
Saclay, France

Sujets : Spectrométrie bêta (expérience, théorie), évaluations de données de décroissance
atomiques et nucléaires, spectrométrie gamma

Nominations : **Expert Senior CEA** en spectrométrie bêta (2019)
Expert CEA en spectrométrie bêta (2012)

2008–2009 : **Post-doctorat en métrologie**

au Laboratoire National Henri Becquerel

Institution : CEA, LIST, Département Métrologie, Instrumentation et Information (DM2I),
Saclay, France

Sujet : Évaluations de données de décroissance atomiques et nucléaires

1.4 Résumé

Structure nucléaire

J'ai réalisé ma thèse de doctorat en physique fondamentale sur un sujet de structure nucléaire. L'expérience centrale a été réalisée auprès de l'accélérateur d'ions lourds GANIL en utilisant, pour la première fois, un ensemble de cinq télescopes à particules chargées MUST2 pour étudier la structure des noyaux exotiques ${}^6\text{He}$ et ${}^7\text{He}$. J'ai été très impliqué dans la conception de l'expérience et sa mise en œuvre, et j'étais entièrement responsable de

l'analyse des données et de l'interprétation scientifique. J'ai également participé à d'autres expériences qui ont eu un impact important dans la communauté des noyaux exotiques.

Données de désintégration

Après la thèse, j'ai intégré le Laboratoire National Henri Becquerel (LNHB) pour un post-doctorat d'un an, puis j'ai été embauché à un poste permanent. Mes connaissances en physique nucléaire m'ont été très utiles pour évaluer les données de décroissance atomiques et nucléaires, et pour effectuer des études métrologiques en spectrométrie gamma. Je participe toujours à l'évaluation des données dans le cadre de la collaboration internationale DDEP. Parallèlement, j'ai participé à l'analyse des contextes français et européens actuels en matière de données de la recherche pour définir une stratégie nationale et une politique institutionnelle au sein du CEA.

Spectrométrie bêta

Il y a dix ans, j'ai effectué une revue de l'état l'art en spectrométrie bêta. J'ai constaté que la précision des mesures et des prédictions théoriques d'alors était insuffisante pour les besoins de la métrologie, et plus généralement d'autres communautés scientifiques. J'ai donc entamé une étude de la spectrométrie bêta au LNHB, à la fois expérimentale et théorique. Bien qu'expérimentateur, j'ai abordé les aspects théoriques de la spectrométrie bêta avec des résultats dépassant l'état de l'art de l'époque. Peu après, j'ai encadré ma première doctorante, qui a développé un système de mesure de spectres bêta à partir d'un détecteur en silicium refroidi par azote liquide. Une deuxième doctorante a fait évoluer ce système vers une configuration 4π et achèvera sa thèse dans les prochains mois. En parallèle, les spectres bêta de basse énergie du ^{63}Ni et du ^{241}Pu ont été étudiés en collaboration avec M. Loidl, expert en détecteurs cryogéniques au LNHB. Des mesures de haute précision de ces spectres ont été effectuées pour la première fois à l'aide d'une nouvelle technique expérimentale cryogénique, la calorimétrie magnétique métallique. Une forte déviation par rapport aux calculs usuels a été observée dans les deux. En améliorant la modélisation des calculs de spectres bêta, j'ai pu démontrer que cet écart était dû à l'effet atomique d'échange, obtenant un accord exceptionnel avec la mesure de 0.3 keV à l'énergie maximale.

J'ai également développé un code de calcul spécifique, BetaShape, compatible avec le format standard ENSDF, qui améliore significativement la précision des propriétés des transitions bêta. J'ai clairement démontré que deux approximations largement utilisées dans la littérature sont incompatibles avec des prédictions théoriques précises. Peu de temps après sa mise à disposition, BetaShape a été officiellement adopté par la collaboration DDEP pour les évaluations de données nucléaires. Il a également été utilisé par une équipe américaine pour le calcul des flux d'antineutrinos issus des réacteurs, dont l'étude a été publiée dans Physical Review Letters [Son17]. Par la suite, je me suis intéressé au calcul des désintégrations par capture électronique, améliorant sensiblement les prédictions théoriques par rapport au code de calcul utilisé dans les évaluations de données nucléaire. Tous ces résultats ont donné lieu à des collaborations informelles avec plusieurs groupes de recherche internationaux et au financement de deux projets européens de métrologie. L'AIEA m'a demandé d'apporter mon expertise dans la perspective d'une amélioration des données de structure nucléaire. Le regain d'intérêt pour la spectrométrie bêta au sein de la communauté de la métrologie de la radioactivité a donné lieu à la création d'un groupe de travail

dédié, que je coordonne, au sein du Comité International de Métrologie des Radionucléides (ICRM).

1.5 Encadrement

2018–2021 : **Stage de Master 2 et thèse de doctorat de Lorenzo Périssé**

Directeur de thèse : Matthieu Vivier

Institution : CEA, IRFU, Département de Physique des Particules, Saclay, France

Sujet : Modélisation des spectres antineutrinos de réacteurs

Résumé

Plusieurs expériences ont observé des désaccords dans les mesures de flux et de spectres antineutrinos émis par un réacteur nucléaire. Ces désaccords signeraient-ils l'existence d'une nouvelle physique, comme une quatrième famille de neutrinos, ou bien une méconnaissance des mécanismes à l'œuvre dans la production d'antineutrinos au sein d'un réacteur nucléaire ? C'est dans le cadre de ces questions brûlantes que cette thèse se propose de travailler à une modélisation raffinée des spectres antineutrino de réacteur, en faisant appel à un panel de compétences à la frontière entre physique des particules, physique nucléaire et physique des réacteurs que seul le CEA possède. Ces travaux sont d'un grand intérêt pour la physique fondamentale du neutrino, et pourraient avoir des retombées dans des domaines tels que l'énergie ou la médecine nucléaire.

2017–2020 : **Thèse de doctorat d'Abhilasha Singh**

Directeur de thèse : Abdel-Mjid Nourreddine, Professeur à l'Université de Strasbourg

Institution : CEA, Laboratoire National Henri Becquerel, Saclay, France

Sujet : Étude métrologique de la forme des spectres bêta et validation expérimentale des modèles théoriques

Résumé

Une étude théorique a été entreprise en collaboration étroite avec les théoriciens de l'IPHC de Strasbourg en vue de calculer précisément les spectres bêta, mais la validation de ces calculs ne peut se faire que par la comparaison avec de nouvelles mesures de spectres bêta. Un prototype dédié a donc été développé autour d'un détecteur silicium PIPS et testé avec succès lors d'une thèse précédente. Toutefois, de nombreux développements sont encore nécessaires pour parvenir aux résultats escomptés. L'objectif principal de cette thèse est de pouvoir mesurer des spectres bêta avec une très grande précision et d'en extraire des facteurs de forme expérimentaux de qualité métrologique. Les moyens envisagés pour cela comprennent l'évolution du dispositif expérimental précédent, le traitement des données, les simulations Monte Carlo et l'analyse des spectres mesurés. En particulier, l'utilisation d'un détecteur Si(Li) plus épais permettra de mesurer des transitions de plus haute énergie, et l'implémentation d'une géométrie de détection 4π limitera au maximum l'influence de la rétrodiffusion. Il sera nécessaire d'étudier finement toutes les sources de déformation du spectre liées à la détection et autres phénomènes physiques, puis de déconvoluer le spectre mesuré de ces effets afin d'extraire le facteur de forme expérimental. Le développement d'un processus de déconvolution robuste sera l'un des enjeux majeurs de ce travail. La mesure d'émetteurs bêta purs permettra une comparaison directe entre l'expérience et la théorie.

2017 : **Stage de Master 2 de Adithya Nair**

Institution : CEA, Laboratoire National Henri Becquerel, Saclay, France

Co-encadrant : Cheick Thiam

Sujet : Un module C++ pour la décroissance radioactive utilisant les données recommandées du DDEP issues de la base de données NUCLÉIDE

Résumé

Le module Nuclide++ a été conçu pour fonctionner conjointement avec le code Monte Carlo Geant4. Le module simule le schéma complet de désintégration d'un radionucléide donné en sélectionnant au hasard les voies de désintégration à l'aide des données de décroissance du DDEP, issues de la base de données NUCLÉIDE : période de désintégration, structure nucléaire des noyaux père et fils, rapports de branchement, type et énergie des particules émises. Si les radionucléides sont au sein d'une chaîne de désintégration, la désexcitation des noyaux fils successifs peut également être traitée de la même façon. Les énergies initiales des électrons et des positons dans le cas des radionucléides émetteurs bêta sont échantillonnées à partir de spectres calculés avec BetaShape. La cascade de relaxation atomique, c'est-à-dire l'ensemble des transitions atomiques qui se produisent à partir d'une vacance initiale, est échantillonnée à partir des probabilités de transition fournies dans la bibliothèque de données atomiques évaluées EADL selon les modèles (K,L,M) et (K,L₁,L₂,L₃,M). Ce module propose aux utilisateurs de Geant4 la possibilité d'utiliser les données recommandées du DDEP et un modèle physique plus détaillé comme alternative au module de désintégration radioactive actuellement disponible, dans lequel le modèle de simulation dépend des données extraites de la base de données ENSDF. La fiabilité du Nuclide++ a été démontrée en comparant les cascades de particules détectées en coïncidence à celles obtenues avec les modules PenNuc et de Geant4.

2011–2014 : **Thèse de doctorat de Charlène Bisch**

Directeur de thèse : Abdel-Mjid Nourreddine, Professeur à l'Université de Strasbourg

Institution : CEA, Laboratoire National Henri Becquerel, Saclay, France

Sujet : Étude de la forme des spectres bêta

Résumé

L'objectif de ce travail de thèse est de mettre au point un nouveau dispositif expérimental dédié à la mesure de spectres β avec une précision métrologique. Le dispositif conçu autour d'un semi-conducteur silicium doit tenir compte des phénomènes physiques (diffusion et rétrodiffusion des électrons, auto-absorption dans la source) et de détection (résolution et linéarité) à l'origine de déformations dans le spectre mesuré, afin de les limiter et de les réduire au maximum. Le détecteur est refroidi à la température de l'azote liquide et maintenu sous un vide secondaire. Des simulations Monte-Carlo de la chambre de détection ont permis de déterminer la géométrie et les matériaux à utiliser. La qualité des sources radioactives est déterminante pour obtenir des spectres de qualité. Des sources minces sont fabriquées par lyophilisation d'un dépôt radioactif sur un film de Vyns. L'étalement a été réalisé à l'aide d'une source de ^{133}Ba écrantée. Une résolution de 4.4 keV est obtenue pour le pic à 62.520 keV d'une source de ^{109}Cd . Différents types de spectres β , ^{14}C , ^{60}Co , ^{151}Sm et ^{99}Tc , ont été mesurés avec un détecteur PIPS de 500 μm d'épaisseur de volume actif et 450 mm^2 de surface. Le seuil en énergie est d'environ 10 keV. Un traitement des spectres après la mesure est nécessaire afin de corriger des déformations restantes. Une fonction de réponse doit donc être déterminée pour chaque géométrie de mesure. Cette

détermination peut se faire à l'aide des simulations Monte-Carlo qui ont préalablement été validées par la comparaison entre les spectres simulés et les spectres mesurés, qui présentent un excellent accord. L'analyse de la réponse impulsionnelle simulée du système de détection est la voie la plus prometteuse pour définir cette fonction de réponse précisément. Nos premiers résultats montrent qu'une déconvolution du spectre mesuré avec la réponse du système de détection permet d'obtenir la forme réelle du spectre β avec une grande précision.

2010 : **Stage de Master 2 de Maugan Michel**

Institution : CEA, Laboratoire National Henri Becquerel, Saclay, France

Sujet : Mise en place d'un système de détection pour la mesure des spectres bêta

Résumé

À partir du matériel disponible dans le laboratoire, un dispositif permettant la mesure de spectres bêta a été mis en place. Un détecteur silicium de 500 μm d'épaisseur a été positionné sur un doigt froid en cuivre plongeant dans un Dewar rempli d'azote liquide. La source était placée à l'extrémité d'une traversée de translation à vis micrométrique, insérée dans un compartiment spécifique, puis positionnée à environ 20 mm du détecteur. Les spectres bêta du ^{129}I et du ^{36}Cl ont été mesurés avec des sources disponibles dans le laboratoire, élaborées pour d'autres types de mesure. Le dispositif expérimental et les sources ont été simulés avec le code Monte Carlo Geant4, et le schéma de désintégration du ^{129}I a été implémenté à partir des données du DDEP. Un étalonnage en énergie approximatif a été effectué à partir des simulations. L'accord entre les simulations et les mesures était loin d'être bon mais cela a été analysé comme étant dû à plusieurs facteurs mal connus. Ce travail a clairement démontré que la mesure de spectres bêta avec des détecteurs silicium était pertinente et qu'un dispositif dédié pouvait être développé au LNHB.

1.6 Responsabilités institutionnelles

Depuis 2013

Relecteur d'articles scientifiques pour Physical Review C, Advanced Theory and Simulations, Applied Radiation and Isotopes, évaluations de données de décroissance DDEP (11 articles). Relecteur de résumés soumis aux conférences ICRM (environ 20 par conférence).

Depuis 2014

Membre associé du Comité International de Métrologie des Radionucléides (ICRM). Co-ordinateur du groupe de travail international "Beta Particle Spectrometry" de l'ICRM. http://www.lnhb.fr/icrm_bs_wg/

2019

International Conference on Radionuclide Metrology and its Applications, 22nd ICRM 2019. Salamanque, Espagne. Membre du Comité Scientifique. Audience : environ 150 personnes.

2014–2018

Représentant CEA dans le groupe de travail "Données de la Recherche" BSN10, Bibliothèque Scientifique Numérique. Ministère de l'Enseignement Supérieur et de la Recherche.

2015–2017

- Représentant DRT dans le GTT7 “Archivage des Données Scientifiques” du Groupe de Travail BPAN (Bonnes Pratiques d’Archivages Numériques) du CEA, Direction des Systèmes d’Information.
- Représentant DRT dans le Groupe de Travail CEA “Données de la Recherche”, Copil IST (Information Scientifique et Technique).

2017

International Conference on Radionuclide Metrology and its Applications, 21st ICRM 2017. Buenos Aires, Argentine. Membre du Comité Scientifique. Audience : environ 150 personnes.

2015

International Conference on Radionuclide Metrology and its Applications, 20th ICRM 2015. Vienne, Autriche. Membre du Comité Scientifique. Audience : environ 150 personnes.

2 Publications et communications orales

2.1 Liste des publications

Les difficultés de citation dans le domaine des données atomiques et nucléaires au sens large sont bien connues. Les données sont couramment utilisées dans le travail quotidien, par exemple dans les simulations de Monte Carlo, mais elles sont très rarement citées. Par exemple, j’ai effectué en 2009 l’évaluation du ^{40}K , qui ne figure pas dans Web of Science ou Google Scholar, mais a été consultée plus de 30 000 fois (sans compter les robots d’indexation de sites internet). Parmi d’autres études, une équipe internationale a utilisé cette évaluation pour étudier l’existence de la matière noire dans l’expérience DAMA, publiée dans Physics Letters B [Pra13], mais uniquement citée via un lien vers le site internet du LNHB.

Au 4 octobre 2019 :

- Web of Science : 41 publications, 364 citations, h-index de 11.
- Google Scholar : 77 publications, 939 citations, h-index de 16.

Revue à comité de lecture (47)

1. X. Mougeot, M. Loidl, A. Singh, Étude métrologique des transitions bêta pour les données nucléaires, Chocs Avancées, accepté (2019).
2. A. Singh *et al.*, Experimental Study of β spectra using Si detectors, EPJ Web of Conferences, accepté (2019).
3. C. Thiam *et al.*, NUCLIDE++ : A C++ module to include DDEP recommended radioactive decay data in Geant4, Applied Radiation and Isotopes, accepté (2019).
4. A. Singh *et al.*, Beta spectrum measurements using a quasi- 4π detection system based on Si detectors, Applied Radiation and Isotopes 154, 108897 (2019).
5. X. Mougeot, Towards high-precision calculation of electron capture decays, Applied Radiation and Isotopes 154, 108884 (2019).

6. S. Pierre *et al.*, Simulation of the response of an ionization chamber to ^{214}Bi emission. Application to the measurement of ^{222}Rn , *Applied Radiation and Isotopes* 154, 108886 (2019).
7. R. Sandler *et al.*, Direct determination of ^{138}La β -decay Q value using Penning trap mass spectrometry, *Physical Review C* 100, 014308 (2019).
8. X. Mougeot, Improved calculations of electron capture transitions for decay data and radionuclide metrology, *Applied Radiation and Isotopes* 134, 225-232 (2018).
9. K. Kossert *et al.*, Activity determination of ^{60}Co and the importance of its beta spectrum, *Applied Radiation and Isotopes* 134, 212-218 (2018).
10. L. Hayen, N. Severijns, K. Bodek, D. Rozpedzik, X. Mougeot, High precision analytical description of the allowed β spectrum shape, *Reviews of Modern Physics* 90 (1), 015008 (2018).
11. C. Dulieu, M.A. Kellett, X. Mougeot, Dissemination and visualisation of reference decay data from Decay Data Evaluation Project (DDEP), *EPJ Web of Conferences* 146, 07004 (2017).
12. X. Mougeot, BetaShape : A new code for improved analytical calculations of beta spectra, *EPJ Web of Conferences* 146, 12015 (2017).
13. X. Mougeot, Systematic comparison of beta spectra calculations using improved analytical screening correction with experimental shape factors, *Applied Radiations and Isotopes* 109,177-182 (2016).
14. F. G. A. Quarati, P. Dorenbos, X. Mougeot, Experiments and theory of ^{138}La radioactive decay, *Applied Radiations and Isotopes* 109, 172-176 (2016).
15. C. Thiam *et al.*, Investigation of the response variability of ionization chambers for the standard transfer of SIR-Spheres, *Applied Radiations and Isotopes* 109, 231-235 (2016).
16. X. Mougeot, Reliability of usual assumptions in the calculation of β and ν spectra, *Physical Review C* 91, 055504 (2015); Erratum *Physical Review C* 92, 059902(E) (2015).
17. M.-M. Bé *et al.*, Determination of the ^{151}Sm half-life, *Radiochimica Acta*. Volume 103, Issue 9, Pages 619-626, ISSN (Online) 2193-3405, ISSN (Print) 0033-8230, DOI :10.1515/ract-2015-2393, June 2015.
18. K. Kossert, X. Mougeot, The importance of the beta spectrum calculation for accurate activity determination of ^{63}Ni by means of liquid scintillation counting, *Applied Radiation and Isotopes* 101, 40-43 (2015).
19. X. Mougeot, C. Bisch, Consistent calculation of the screening and exchange effects in allowed beta minus transitions, *Physical Review A* 90 (1), 012501 (2014).
20. X. Mougeot *et al.*, Calculation of beta spectral shapes, *Radioprotection* 49 (4), 269-273 (2014).
21. S. Pommé *et al.*, Lessons learned from nuclear decay data measurements in the European Metrology Research Programme 'Metro Fission', *IEEE Transactions on Nuclear Science* 61 (4), 2066-2070 (2014).
22. M. Loidl *et al.*, Beta spectrometry with metallic magnetic calorimeters, *Applied Radiation and Isotopes* 87, 302-305 (2014).

23. M. Loidl *et al.*, Evidence for the exchange effect down to very low energy in the beta decays of ^{63}Ni and ^{241}Pu , *Journal of Low Temperature Physics* 176, 1040-1045 (2014).
24. X. Mougeot *et al.*, Corrections for exchange and screening effects in low-energy beta decays, *Proceedings of the International Conference on Nuclear Data for Science and Technology 2013*, New-York, États-Unis, *Nuclear Data Sheets* 120, 129-132 (2014).
25. C. Bisch *et al.*, Development of a system for measuring the shape of beta spectra using a semiconductor Si detector, *Proceedings of the International Conference on Nuclear Data for Science and Technology 2013*, New-York, États-Unis, *Nuclear Data Sheets* 120, 95-98 (2014).
26. M. Rodrigues *et al.*, Standardization of xenon-127 and measurement of photon emission intensities, *Applied Radiation and Isotopes* 87, 342-347 (2014).
27. T. Al Kalanee *et al.*, Structure of unbound neutron-rich ^9He studied using single-neutron transfer, *Physical Review C* 88, 034301 (2013).
28. C. Bisch *et al.*, Evaluation of the beta spectral shapes, 16th International Congress of Metrology, (Paris, France, 7-10 October 2013,) EDPSciences, Web of Conferences, 07004 (2013) DOI : <http://dx.doi.org/10.1051/metrology/201307004>.
29. X. Mougeot *et al.*, New excited states in the halo nucleus He-6, *Physics Letters B* 718 (2), 441 (2012).
30. X. Mougeot *et al.*, Evidence for the exchange effect in the beta decay of Pu-241, *Physical Review A* 86 (4), 042506 (2012).
31. C. Le-Bret *et al.*, Study of the Influence of the Source Quality on the Determination of the Shape Factor of Beta Spectra, *Journal of Low Temperature Physics* 167 (5-6), 985 (2012).
32. S. M. Brown *et al.*, Low-lying neutron f p-shell intruder states in Ne-27, *Physical Review C* 85 (1), 011302 (2012).
33. B. Fernandez-Dominguez *et al.*, Emergence of the $N = 16$ shell gap in O-21, *Physical Review C* 84 (1), 011301 (2011) ; Erratum *Physical Review C* 84 (2), 029902 (2011).
34. X. Mougeot *et al.*, Calculation of beta spectra for allowed and unique forbidden transitions, *Proceedings of the LSC2010 International Conference, Advances in Liquid Scintillation Spectrometry*, P. Cassette Editor, p. 249 (2010).
35. V. Gorozhankin *et al.*, Construction of beta spectrum on the basis of experimental nuclear decay data, *Proceedings of the LSC2010 International Conference, Advances in Liquid Scintillation Spectrometry*, P. Cassette Editor, p. 259 (2010).
36. M. Loidl *et al.*, First measurement of the beta spectrum of Pu-241 with a cryogenic detector, 17th International Conference on Radionuclide Metrology and Its Applications (ICRM 2009), *Applied Radiation and Isotopes* 68 (7-8), 1454 (2010).
37. V. Lapoux *et al.*, Resonances of ^6He via the $^8\text{He}(p, t)^6\text{He}$ reaction, *Proceedings of the 12th International Conference on Nuclear Reaction Mechanisms*, F. Cerutti and A. Ferrari Editors, Vol.2, p.345 (2010).
38. D. Suzuki *et al.*, Breakdown of the $Z = 8$ shell closure in unbound O-12, *RIKEN Accelerator Progress Report 2009*, p.9 (2010).

39. A. Ramus *et al.*, Study of the O-20(d,t) reaction with the TIARA-MUST2-VAMOS-EXOGAM setup, Franco-Japanese Symposium on New Paradigms in Nuclear Physics, International Journal of Modern Physics E 18 (10), 2056 (2009).
40. D. Suzuki *et al.*, Breakdown of the $Z = 8$ Shell Closure in Unbound O-12 and its Mirror Symmetry, Physical Review Letters 103 (15), 152503 (2009).
41. M. Loidl *et al.*, Metallic Magnetic Calorimeters for Beta Spectrometry, 13th International Workshop on Low Temperature Detectors, Low Temperature Detectors LTD13, AIP Conference Proceedings 1185, 587 (2009).
42. A. Gillibert *et al.*, Study of $N = 16$ for Ne isotopes, 7th International Conference on Radioactive Nuclear Beams, European Physical Journal-Special Topics 150, 161-163 (2007).
43. A. Gillibert *et al.*, Structure of exotic nuclei from direct reactions, 9th International Conference on Nucleus-Nucleus Collisions, Nuclear Physics A 787, 423c (2007).
44. A. Obertelli *et al.*, Gamma spectroscopy of Ne-25, Ne-27 and Na-26, Na-27, Physical Review C 74 (6), 064305 (2006).
45. P. Dolegieviez *et al.*, A cryogenic target for direct reaction studies with exotic beams, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A 564 (1), 32 (2006).
46. A. Obertelli *et al.*, Shell gap reduction in neutron-rich $N = 17$ nuclei, Physics Letters B 633 (1), 33 (2006).
47. A. Obertelli *et al.*, Shell gap reduction in exotic $N = 17$ nuclei, International Conference on Frontiers in Nuclear Structure, Astrophysics and Reactions (FINUSTAR), AIP Conference Proceedings 831, 177 (2006).

Monographies (5)

1. M.-M. Bé *et al.*, Table of Radionuclides (Vol.8 - $A = 41$ to 198), Monographie BIPM-5, vol.8, Bureau International des Poids et Mesures (2016).
2. M.-M. Bé *et al.*, Mini Table des Radionucléides, EDP Sciences (2015).
3. M.-M. Bé *et al.*, Table of Radionuclides (Vol.7 - $A = 14$ to 245), Monographie BIPM-5, vol.7, Bureau International des Poids et Mesures (2013).
4. M.-M. Bé *et al.*, Table of Radionuclides (Vol.6 - $A = 22$ to 242), Monographie BIPM-5, vol.6, Bureau International des Poids et Mesures (2011).
5. M.-M. Bé *et al.*, Table of Radionuclides (Vol.5 - $A = 22$ to 244), Monographie BIPM-5, vol.5, Bureau International des Poids et Mesures (2010).

Ouvrages (2)

1. Dossier de recommandations pour l'optimisation des mesures du rayonnement bêta, DROP bêta. Chapitre 3 : Le rayonnement bêta et autres rayonnements électroniques, pp. 35–60. Ouvrage collectif CETAMA sous la direction de N. Baglan, P. Cassette, E. Ansoborlo et V. Belin. EDP sciences, 2019. ISBN : 978-2-7598-2307-9.
2. X. Mougeot, Spectroscopie des noyaux exotiques ${}^6\text{He}$, ${}^7\text{He}$ avec les télescopes à pistes MUST2 et le faisceau SPIRAL d' ${}^8\text{He}$, thèse de doctorat, IRFU-08-06-T (2008).

Rapports techniques internes (12)

1. X. Mougeot, Intégration de la structure nucléaire dans le calcul ab initio des transitions nucléaires par interaction faible, Note Technique LNHB 2017/39, 77 p.
2. X. Mougeot, Vérification systématique des transitions bêta dans les évaluations DDEP, Note Technique LNHB 2016/13, 37 p.
3. X. Mougeot, Fonctions d'ondes radiales de l'électron dans les états liés. Application au calcul de l'effet d'échange pour les transitions bêta moins permises, Note Technique LNHB 2014/06, 46 p.
4. X. Mougeot, Calcul des coefficients géométriques dans les éléments de matrice leptoniques, Note Technique LNHB 2013/42, 11 p.
5. X. Mougeot, Fonctions d'ondes radiales de l'électron dans les états du continuum et correction d'écrantage des spectres bêta, Note Technique LNHB 2013/41, 53 p.
6. X. Mougeot, Calcul numérique des spectres bêta et comparaison aux facteurs de formes expérimentaux de 130 transitions, Note Technique LNHB 2012/43, 107 p.
7. X. Mougeot, Remise en route du détecteur GeHP Genix, Note Technique LNHB 2012/42, 46 p.
8. X. Mougeot, Calcul de l'effet d'échange dans les transitions permises, Note Technique LNHB 2012/08, 51 p.
9. S. Pierre, X. Mougeot, Étude de la correction de temps mort du logiciel Maestro sur les détecteurs G8 et G9, Note Technique LNHB 2011/32, 4 p.
10. X. Mougeot, Influence du film Mylar des sources sur la distance de référence en spectrométrie gamma, Note Technique LNHB 2011/24, 5 p.
11. X. Mougeot, C. Dulieu, M.-C. Lépy, Validation du logiciel ETNA pour des sources discoïdales et cylindriques, Note Technique LNHB 2010/69, 20 p.
12. X. Mougeot, BetaShape - Calcul de la forme des spectres bêta, Note Technique LNHB 2010/33, 44 p.

2.2 Liste des communications orales

1. Séminaire invité, 2019, ORNL, Oak Ridge, États-Unis.
2. Nuclear Data Week, 2019, NNDC-BNL, Brookhaven, États-Unis.
3. ISTROS conference, Isospin, STructure, Reactions and energy Of Symmetry, 2019, Castá-Papiernicka Centre, Slovaquie.
4. First MetroMMC Workshop, 2019, CEA Saclay, France.
5. ICRM 2019, 22nd International Conference on Radionuclide Metrology and its Applications, Salamanque, Espagne.
6. 23rd Technical Meeting of the NSDD network, 2019, AIEA, Vienne, Autriche.
7. Les folles journées de la structure nucléaire au CEA, 2019, CEA DAM, Bruyères-le-Châtel, France.
8. Technical Meeting on Improvement of Analysis Codes for Nuclear Structure and Decay Data (NSDD) Evaluations, 2018, AIEA, Vienne, Autriche.

9. JEFF meeting – Decay Data and Fission Yields, NEEDS/NACRE, 2018, NEA, Boulogne-Billancourt, France.
10. Nuclear Data Week, 2018, NNDC–BNL, Brookhaven, États-Unis.
11. Second MetroBeta Workshop, 2018, NIST, Gaithersburg, États-Unis.
12. Decay Data Evaluation Project (DDEP), 2018, NIST, Gaithersburg, États-Unis.
13. First MetroBeta Workshop, 2017, Prague, République Tchèque.
14. ICRM 2017, 21st International Conference on Radionuclide Metrology and its Applications, Buenos Aires, Argentine.
15. Séminaire invité, 2017, ECT* (European Centre for Theoretical Studies in Nuclear Physics and Related Areas), Trento, Italie.
16. Séminaire invité, 2017, Institute for Nuclear and Particle Physics, TU Dresden, Allemagne.
17. Workshop NACRE, 2017, Subatech, Nantes, France.
18. SSNET'16, International Workshop on Shapes and Symmetries in Nuclei : from Experiment to Theory, présentation invitée, 2016, CNRS, Gif-sur-Yvette, France.
19. ND2016, International Conference on Nuclear Data for Science and Technology, Bruges, Belgique.
20. Decay Data Evaluation Project (DDEP), 2016, NPL, Teddington, Royaume-Uni.
21. Technical Meeting on Improvement of Analysis Codes for Nuclear Structure and Decay Data (NSDD) Evaluations, 2015, AIEA, Vienne, Autriche.
22. ICRM 2015, 20th International Conference on Radionuclide Metrology and its Applications, Vienne, Autriche.
23. The Status of Reactor Antineutrino Flux Modelling, Second Workshop, 2015, Subatech, Nantes, France.
24. Séminaire invité, Institut Pluridisciplinaire Hubert Curien (IPHC), 2014, Strasbourg, France.
25. Decay Data Evaluation Project (DDEP), 2014, IFIN-HH, Bucarest, Roumanie.
26. Technical Meeting on Improvement of Analysis Codes for Nuclear Structure and Decay Data (NSDD) Evaluations, 2014, AIEA, Vienne, Autriche.
27. 2nd MetroMRT (Metrology for molecular radiation therapy) Scientific Workshop, 2014, Paris, France.
28. Codes de calcul en radioprotection, radiophysique et dosimétrie, 2014, Paris, France.
29. International Congress of Metrology, 2013, Paris, France.
30. ICRM 2013, 19th International Conference on Radionuclide Metrology and its Applications, Anvers, Belgique.
31. ND2013, International Conference on Nuclear Data for Science and Technology, New-York, États-Unis.
32. Decay Data Evaluation Project (DDEP), 2012, LNE, Paris, France.
33. JEFF – Gedepeon Workshop, Nuclear Data Evaluation, 2011, OCDE, Issy-les-Moulineaux, France.

34. LSC2010, Advances in Liquid Scintillation Spectrometry, Paris, France.
35. Decay Data Evaluation Project (DDEP), 2010, CIEMAT, Madrid, Espagne.
36. EURORIB'08, 2008, Giens, France.
37. RIA Summer School, Exotic Beam Physics, Targets and Ion Sources, 2007, NSCL, East Lansing, États-Unis
38. École Internationale Joliot-Curie, Les réactions nucléaires comme sondes de la structure, 2007, Maubuisson, France.
39. École Internationale Joliot-Curie, Le cycle électronucléaire : de la fission aux nouvelles filières, 2006, Maubuisson, France.

3 Projets déposés

L'étude des transitions par interaction faible a été financée en partie par le réseau français de métrologie à travers le LNE. Plusieurs fiches-études ont été rédigées et suivies annuellement. Cette étude a aussi été en partie financée à travers plusieurs projets, listés ci-dessous. Les projets soumis mais rejetés sont également indiqués.

3.1 Sujets de thèse

Les sujets phares du CEA sont à l'initiative des équipes de recherche. Ils sont tout d'abord sélectionnés en interne par la hiérarchie (Département, Institut, Direction). Ils sont ensuite proposés au Haut-Commissaire du CEA, en charge de la politique scientifique de l'organisme. Le sujet est défendu par son porteur à travers un dossier écrit et une audition. Seuls sont retenus les sujets scientifiques jugés de première importance pour le CEA. Un financement dédié est alors accordé pour une durée de trois ans. Le candidat doit avoir un dossier universitaire de haut niveau pour être lui aussi sélectionné par le Haut-Commissaire.

1. Sujet Phare SL-DRT-17-0683 (2017-2020)
Doctorante : Abhilasha Singh
Sujet : Étude métrologique de la forme des spectres bêta et validation expérimentale des modèles théoriques.
2. Sujet Phare SL-DRF-18-0251 (2018-2021)
Doctorant : Lorenzo Périssé
Sujet : Modélisation des spectres antineutrino de réacteur.
 Co-encadrement Matthieu Vivier (IRFU, Département de Physique des Particules)

3.2 Projets nationaux

1. Institut National du Cancer / INSERM - Appel à projets PHYSICANCER 2011
Nom : BETASFORM, Forme des Spectres Bêta pour les Radionucléides à Usage Médical
Partenaires (coordinateur en premier) : CEA/LNHB, CNRS/IPHC
Durée : 2 ans

- Budget total : 414 667 euros
Contribution : implication majeure dans la rédaction du protocole pour la partie scientifique
Statut : **rejeté**
2. Agence Nationale de la Recherche (ANR) – Appel à projets Défi de tous les savoirs 2014
Nom : BETASHAPE, Calcul des spectres en énergie des transitions bêta à tous les degrés d'interdiction incluant les effets atomiques et de structure nucléaire
Partenaires (coordinateur en premier) : CNRS/IPHC, CEA/LNHB, CNRS/IPCMS
Durée : 2 ans
Budget total : 280 000 euros
Contribution : implication majeure dans la rédaction du protocole pour la partie scientifique
Statut : **rejeté**
3. Agence Nationale de la Recherche (ANR) / Deutsche Forschungsgemeinschaft (DFG) – Appel à projets génériques franco-allemands 2016
Nom : NuSpec, Mesures de précision du spectre neutrino du ^{144}Pr pour l'expérience CeSOX de recherche de neutrinos stériles légers
Partenaires (coordinateur en premier) : CEA/IRFU et TUM/Physics Department, CEA/LNHB
Durée : 3 ans
Budget total : 604 210 euros
Contribution : implication importante dans la rédaction du protocole pour la partie scientifique, coordinateur du Work Package théorique
Statut : **rejeté**; modifié et resoumis en 2017, rejeté à nouveau
4. Appels à projets du programme NEEDS (Nucléaire, Énergie, Environnement, Déchets, Société)
Nom : NACRE, Le Noyau au Cœur du Réacteur
Partenaires (coordinateur en premier) : CNRS/IN2P3 (7 laboratoires), CEA (DAM, DEN, DRF, DRT), IRSN
Durée : 3 ans, 2016–2018
Budget total : 400 000 euros
Contribution : implication dans la rédaction du protocole pour la partie scientifique
Statut : **accepté**
5. Appels à projets du programme NEEDS (Nucléaire, Énergie, Environnement, Déchets, Société)
Nom : NACRE, Le Noyau au Cœur du Réacteur
Partenaires (coordinateur en premier) : CNRS/IN2P3 (7 laboratoires), CEA (DAM, DEN, DRF, DRT), IRSN
Durée : 3 ans, 2019–2021
Budget total : 450 000 euros
Contribution : implication dans la rédaction du protocole pour la partie scientifique
Statut : **accepté**

3.3 Projets européens

1. Projets EURAMET (Réseau européen de métrologie) EMRP
Nom : MetroRWM, Metrology for Radioactive Waste Management
Partenaires (coordinateur en premier) : CMI (Czech Republic), BEV (Austria), BFKH (Hungary), CEA/LNHB (France), CIEMAT (Spain), ENEA-INMRI (Italy), JRC (Europe), MIKES (Finland), MIRS/IJS/F-2,O-2 (Slovenia), NPL (United Kingdom), POLATOM (Poland), PTB (Germany), SMU (Slovakia)
Durée : 3 ans, 2011–2014
Budget total : 4 022 224 euros
Contribution : implication dans la rédaction du protocole pour la partie scientifique
Statut : **accepté**
2. Projets EURAMET (Réseau européen de métrologie) EMRP
Nom : MetroMRT, Metrology for Molecular Radiotherapy
Partenaires (coordinateur en premier) : NPL (United Kingdom), CEA/LNHB (France), CMI (Czech Republic), ENEA-INMRI (Italy), PTB (Germany), VSL (Netherlands), Azienda Unità Sanitaria Locale Latina (Italy), Institute of Cancer Research - Royal Cancer Hospital (United Kingdom), Istituti Fisioterapici Ospitalieri (Italy), Istituto Superiore di Sanità (Italy), Lunds Universitet (Sweden), The Christie NHS Foundation Trust (United Kingdom), University College London (United Kingdom), Velindre National Health Service Trust (United Kingdom)
Durée : 3 ans, 2012–2015
Budget total : 2 575 362 euros
Contribution : implication dans la rédaction du protocole pour la partie scientifique
Statut : **accepté**
3. Projets EURAMET (Réseau européen de métrologie) EMRP
Nom : MetroNORM, Metrology for processing materials with high natural radioactivity
Partenaires (coordinateur en premier) : BEV (Austria), BFKH (Hungary), CEA/LNHB (France), CIEMAT (Spain), CMI (Czech Republic), ENEA-INMRI (Italy), JRC (Europe), IST/LPSR (Portugal), MIRS/IJS/F-2,O-2 (Slovenia), NPL (United Kingdom), NRPA (Norway), STUK (Finland)
Durée : 3 ans, 2013–2016
Budget total : 4 275 111 euros
Contribution : implication dans la rédaction du protocole pour la partie scientifique
Statut : **accepté**
4. Projets IFA-CEA (accords nationaux Roumanie – France)
Nom : ZIRADMET, Metrology research for the standardization of some pharmaceutical and public health interest radionuclides, to ensure radioprotection in hospitals, homes and working places
Partenaires (coordinateur en premier) : IFIN-HH (Roumanie), CEA/LNHB (France)
Durée : 3 ans, 2016–2019
Budget total : 293 600 euros

- Contribution : implication dans la rédaction du protocole pour la partie scientifique
Statut : **accepté**
5. Projets EURAMET (Réseau européen de métrologie) EMPIR
Nom : MetroBeta, Radionuclide beta spectra metrology
Partenaires (coordinateur en premier) : CEA/LNHB (France), CMI (Czech Republic), PTB (Germany), IRA/CHUV (Switzerland), Gonitec B.V. (Netherlands), Ruprecht-Karls-Universitaet Heidelberg (Germany), Uniwersytet Marii Curie-Sklodowskiej (Poland)
Durée : 3 ans, 2016–2019
Budget total : 1 307 951 euros
Contribution : implication majeure dans la rédaction du protocole et dans le montage du projet, coordinateur du Work Package théorique
Statut : **accepté**
6. Projets EURAMET (Réseau européen de métrologie) EMPIR
Nom : MetroMMC, Measurement of fundamental nuclear decay data using metallic magnetic calorimeters
Partenaires (coordinateur en premier) : PTB (Germany), CEA/LNHB (France), NPL (United Kingdom), CNRS/IPCMS (France), Korea Research Institute of Standards and Science (Republic of Korea), Ruprecht-Karls-Universitaet Heidelberg (Germany), Universidade Nova de Lisboa (Portugal)
Durée : 3 ans, 2018–2021
Budget total : 1 697 074 euros
Contribution : implication majeure dans la rédaction du protocole et dans le montage du projet, coordinateur du Work Package théorique
Statut : **accepté**
7. European Research Council (ERC) - Consolidator Grant 2018
Nom : B-SHAPE, Beta spectrum shape with metrological precision to search for new physics beyond the Standard Model
Partenaires (coordinateur en premier) : PTB (Germany), CEA/LNHB (France), NPL (United Kingdom), CNRS/IPCMS (France), Korea Research Institute of Standards and Science (Republic of Korea), Ruprecht-Karls-Universitaet Heidelberg (Germany), Universidade Nova de Lisboa (Portugal)
Durée : 5 ans
Budget total : 2 203 705 euros
Contribution : P.I. (Principal Investigator), montage complet du projet
Statut : **rejeté**
8. Projets EURAMET (Réseau européen de métrologie) EMPIR
Nom : RealBq, Determination of relevant decay data to Realize the unit of activity Bq for radionuclides with complex beta decay
Partenaires (coordinateur en premier) : CEA/LNHB (France), PTB (Germany), IRA/CHUV (Switzerland), Gonitec B.V. (Netherlands), Ruprecht-Karls-Universitaet Heidelberg (Germany), Uniwersytet Marii Curie-Sklodowskiej (Poland)

Durée : 3 ans

Budget total : 1 398 000 euros

Contribution : implication majeure dans la rédaction du protocole et dans le montage du projet, coordinateur du Work Package théorique

Statut : **rejeté**

Résumé

Une connaissance précise des désintégrations par interaction faible, transitions bêta et captures électroniques, est indispensable dans de nombreux domaines scientifiques, des plus fondamentaux aux plus applicatifs : tests du Modèle Standard, détection de la matière noire et du neutrino stérile, métrologie des rayonnements ionisants, caractérisation des détecteurs, médecine nucléaire, puissance résiduelle et surveillance en temps réel des réacteurs nucléaires, ou encore gestion du combustible après irradiation. La question de la qualité, de la précision et de la complétude des données nucléaires est devenue un enjeu important dans ces différents domaines. Ces dix dernières années, le Laboratoire National Henri Becquerel s'est impliqué dans cette thématique, fort de son expertise en métrologie de la radioactivité et en évaluation de données atomiques et nucléaires. Les experts en cryogénie du laboratoire ont développé une nouvelle technique de mesure par calorimétrie et l'ont appliquée avec succès à la spectrométrie bêta. Un système de détection dédié, utilisant des détecteurs silicium, a été élaboré conjointement à une technique de préparation spécifique de source radioactive et à un processus de déconvolution spectrale. En parallèle, une étude théorique a été menée pour améliorer les prédictions, menant notamment à la création du code de calcul BetaShape. Cette étude a permis d'améliorer et de compléter les données nucléaires évaluées. Les résultats obtenus placent le Laboratoire National Henri Becquerel au meilleur niveau mondial sur cette thématique. L'expertise acquise permet d'envisager une contribution significative à des sujets de physique fondamentale qui seront très structurants dans les années à venir.

Abstract

An accurate knowledge of the decays by weak interaction, beta transitions and electron captures, is essential in many scientific fields, from the most fundamental to the most applicative ones : Standard Model tests, dark matter and sterile neutrino detection, ionizing radiation metrology, detector characterization, nuclear medicine, residual power and real-time monitoring of nuclear reactors, or fuel management after irradiation. The question of the quality, the accuracy and the completeness of the nuclear data has become an important issue in these various fields. Over the past ten years, the Laboratoire National Henri Becquerel has been involved in this topic, drawing on its expertise in radionuclide metrology and in evaluation of atomic and nuclear decay data. Cryogenic experts of the laboratory developed a new calorimetric measurement technique, which has been successfully applied to beta spectrometry. A dedicated detection system, using silicon detectors, has been developed in conjunction with a specific radioactive source preparation technique and a spectral unfolding process. In parallel, a theoretical study has been conducted to improve predictions, leading in particular to the creation of the BetaShape calculation code. This study has improved and supplemented the evaluated nuclear decay data. The results obtained put the Laboratoire National Henri Becquerel at the global best level on this topic. The acquired expertise could make possible a significant contribution to some research subjects that will address fundamental issues in the forthcoming years.

Mots-clés

- Métrologie de la radioactivité
- Données atomiques et nucléaires
- Désintégration bêta
- Capture électronique
- Spectrométrie bêta
- Calorimétrie
- Détecteur silicium
- Calculs théoriques
- BetaShape