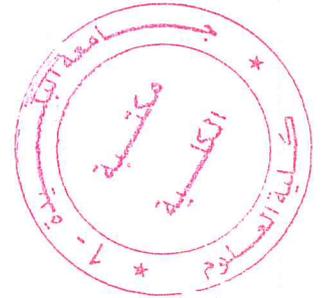


RÉPUBLIQUE ALGÉRIENNE DÉMOCRATIQUE ET POPULAIRE

Université Saâd DAHLAB-Blida 1



Faculté des Sciences  
Département de Physique  
*Laboratoire de Physique Théorique et Interactions Rayonnement-Matière  
(LPTHIRM)*

## Mémoire de Master

*présenté à l'université Saâd DAHLAB-Blida 1  
pour l'obtention du diplôme en :*

PHYSIQUE NUCLÉAIRE

# MONTAGE D'UN SPECTROMÈTRE DE MESURE DU TEMPS DE VIE DU POSITRON :

## OPTIMISATION ET APPLICATION À L'ÉTUDE DE MATÉRIAU IRRADIÉ AUX PARTICULES ALPHA.

MA-530-139-1

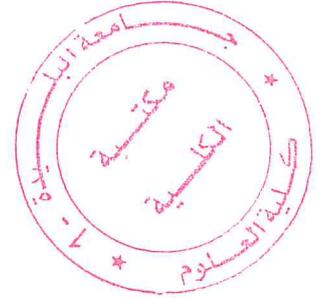
*présenté par :*

Benfekir Asma

Djouabi Fella

présenté le 04 juillet 2017 devant le jury composé de :

*Blida 2017*



Mr. R. KHELIFI	Professeur	U. S. D.-Blida 1	Président
Mr. A. MOUZALI	Maitre de conférences B	U. S. D.-Blida 1	Examineur
Mr. A. GUITTOUM	Maitre de recherche classe A	CRNA	Rapporteur

# Table des matières

<b>Table des matières</b>	<b>iii</b>
<b>Table des figures</b>	<b>v</b>
<b>Liste des tableaux</b>	<b>vii</b>
<b>Remerciements</b>	<b>viii</b>
<b>Introduction</b>	<b>1</b>
<b>1 Généralités sur la spectroscopie d'annihilation du positron</b>	<b>3</b>
1.1 Introduction . . . . .	3
1.2 Le positron . . . . .	3
1.2.1 Historique . . . . .	3
1.2.2 Source d'émission . . . . .	4
1.2.3 Parcours . . . . .	5
1.3 Le positronium (Ps) . . . . .	5
1.4 Processus d'annihilation . . . . .	6
1.4.1 Loi de conservation . . . . .	6
1.4.2 Processus d'annihilation d'une paire électron - positron ( $e^- - e^+$ ) . . . . .	7
1.5 Apport de la spectroscopie de temps de vie du positron ( <i>PALS</i> ) dans l'étude des polymères . . . . .	10
1.6 Le détecteur de traces nucléaires (polymère <i>CR39</i> ) . . . . .	11
1.7 Un état d'art sur la spectroscopie d'annihilation du positron dans le <i>CR39</i> irradié par des particules alpha . . . . .	11
<b>2 Méthodes de spectroscopie d'annihilation du positron</b>	<b>14</b>
2.1 Introduction . . . . .	14
2.2 Techniques classiques de spectroscopie d'annihilation du positron . . . . .	14
2.2.1 Spectroscopie du temps de vie du positron . . . . .	15
2.2.2 Spectroscopie d'élargissement Doppler ( <i>DBS</i> ) . . . . .	16
2.2.3 Technique de spectroscopie du faisceau de positron lent (The slow positron beam) . . . . .	19
<b>3 Expériences, résultats et discussion</b>	<b>21</b>
3.1 Introduction . . . . .	21

<b>I</b>	<b>Montage du spectromètre du temps de vie du positron</b>	<b>22</b>
3.2	Description d'une chaîne de spectroscopie de temps de vie du positron . . . . .	23
3.2.1	Détecteurs à scintillations rapides . . . . .	23
3.2.2	Système électronique . . . . .	25
3.3	Réglage du spectromètre d'annihilation du temps de vie du positron . . . . .	28
3.3.1	Vérification de l'état des deux détecteurs . . . . .	28
3.3.2	Tester des discriminateurs différentielles à fraction constante <i>CFDD</i> . . .	29
3.3.3	Tester du convertisseur temps-amplitude ( <i>TCA</i> ) . . . . .	29
3.3.4	Optimisation des tensions de polarisation pour détecteurs ( <i>A</i> et <i>B</i> ) . . .	30
3.3.5	La sélection des énergies <i>START</i> et <i>STOP</i> . . . . .	32
3.4	La calibration du spectromètre du temps de vie du positron (la détermination de la résolution instrumentale « temporelle ») . . . . .	36
3.4.1	Droite de calibration (la pente de calibration $T_0$ ) . . . . .	40
<b>II</b>	<b>spectres de temps de vie de silicium et de polymère de</b>	
	<b><i>CR39</i> :</b>	<b>41</b>
3.5	Simulation . . . . .	42
3.6	Préparation des échantillons pour la <i>PALS</i> . . . . .	42
3.7	Influence de la résolution . . . . .	43
3.8	Analyse des spectres du temps de vie du positron . . . . .	43
3.9	Analyse du spectre de calibration : correction de source . . . . .	45
3.10	Irradiation <i>alpha</i> et analyse des spectres de temps de vie du <i>CR39</i> : . . . . .	46
3.10.1	Irradiation de <i>CR39</i> par les particules alpha . . . . .	46
3.10.2	Analyse du spectre du <i>CR39</i> non irradié . . . . .	48
3.10.3	Analyse des spectres du <i>CR39</i> pour différentes énergies d'irradiation . . .	49
	<b>Conclusion générale</b>	<b>54</b>
<b>A</b>	<b>Annexe</b>	<b>56</b>
	<b>Bibliographie</b>	<b>60</b>

# Table des figures

1.1	Schéma représentatif du processus de désintégration de la source $^{22}\text{Na}$ . . . . .	5
1.2	La différence entre l'atome de positronium et celui d'hydrogène. . . . .	6
1.3	Schéma représentatif de l'annihilation d'une paire $e^- + e^+$ (lié). . . . .	8
1.4	Représentation des deux états du positronium Ps : a) para-positronium, b) ortho-positronium. . . . .	9
1.5	Représentation schématique des différents états du positron et leurs processus d'annihilation dans les polymères. . . . .	9
1.6	Formule chimique de CR39 dans le plan. . . . .	12
2.1	Schéma représentatif des différentes techniques de positron. . . . .	15
2.2	Dispositif expérimental de temps de vie du positron «coïncidence rapide-rapide». . . . .	17
2.3	Dispositif expérimental de la spectroscopie par effet Doppler . . . . .	18
2.4	Schéma représentatif de principe d'une chaîne de mesure d'élargissement Doppler de la raie d'annihilation à 511 keV. . . . .	19
2.5	Schéma représentatif de principe du faisceau de positrons lents. . . . .	20
3.1	spectroscopie du temps de vie du positron existant au niveau du CRNA. . . . .	24
3.2	a) Scintillateur plastique de type <i>ej 232</i> (vue de face),b) la graisse optique. . . . .	25
3.3	Scintillateur collé à un photomultiplicateur (vue de côté). . . . .	26
3.4	La fenêtre du photomultiplicateur. . . . .	27
3.5	Le principe de fonctionnement d'un photomultiplicateur. . . . .	28
3.6	Détecteur à scintillation : (a) l'embase couplée à un photomultiplicateur,(b) une entrée et deux sorties (anode, dynode). . . . .	29
3.7	Le principe de détection des positrons. . . . .	30
3.8	les différents éléments du système électronique. . . . .	31
3.9	Matériel utilisé lors de la préparation de la source. . . . .	32
3.10	a) Source $^{22}\text{Na}$ avec support de kapton b) support de kapton. . . . .	33
3.11	La courbe d'efficacité du détecteur <i>START (B)</i> . . . . .	34
3.12	La courbe d'efficacité du détecteur <i>STOP (A)</i> . . . . .	35
3.13	Signal dynode du détecteur <i>START</i> avec les paquets d'énergie 1.28 MeV et 511 KeV. . . . .	36
3.14	Spectre énergétique de la source $^{22}\text{Na}$ en fonction d' <i>UPL</i> pour la voie <i>START</i> . . . . .	37
3.15	Spectre énergétique de la source $^{22}\text{Na}$ en fonction d' <i>UPL</i> pour la voie <i>STOP</i> . . . . .	38
3.16	Courbe des cinq gaussiennes de notre calibration. . . . .	39
3.17	Calibration du spectromètre : valeur d'un canal en temps. . . . .	40
3.18	Porte échantillon utilisé dans les expériences du temps de vie du <i>positron</i> . . . . .	42

3.19	spectre de temps de vie du positron. . . . .	44
3.20	Spectre de l'analyse du temps de vie du positron de l'échantillon de <i>silicium</i> : spectre de calibration (correction de la source). . . . .	46
3.21	Résultats d'analyse du spectre de <i>silicium</i> . . . . .	47
3.22	Échantillons de <i>CR39</i> . . . . .	48
3.23	Le collimateur : a) vue de face; b) vue de coté. . . . .	48
3.24	Spectre du temps de vie du positron du <i>CR39</i> non irradié. . . . .	49
3.25	Spectre du temps de vie du positron du <i>CR39</i> irradié à l'énergie 1.5 MeV. . . . .	50
3.26	Spectre du temps de vie du <i>positron</i> du <i>CR39</i> irradié à l'énergie 2.5 MeV. . . . .	51
3.27	Spectre du temps de vie du positron du <i>CR39</i> irradié à l'énergie 4.5 MeV. . . . .	52
3.28	L'évolution du temps de vie de la fraction ortho-positronium en fonction de l'énergie d'irradiation. . . . .	53

# Liste des tableaux

1.1	propriétés intrinsèques du positron [4]. . . . .	4
1.2	propriétés comparatives des atomes Ps et H. . . . .	7
3.1	Temps de vie caractéristiques de la source et sa contribution au spectre du temps de vie du positron. . . . .	45
3.2	Les temps de vie du positron $t_3$ et les intensités respectives $I_3$ des échantillons de CR39 irradiés à différentes énergies. . . . .	51
3.3	Les différentes valeurs du rayon et du volume relatif à la variation de $t_3$ pour les différentes énergies d'irradiation. . . . .	52

# Remerciements

Nous tenons à remercier Allah le tout puissant de nous avoir donné le courage pour réaliser et terminer notre travail. Nous tenons aussi à remercier la Direction Générale du Centre de Recherche Nucléaire d'Alger (CRNA) ainsi que la direction de la Division des Techniques Nucléaires (DTN) pour nous avoir accueillies afin d'effectuer ce travail de mémoire, et aussi pour les facilités et les moyens offerts pendant toute la durée de notre travail et qui nous ont permis de mener à bonne fin ce mémoire. Nous voudrions remercier particulièrement notre promoteur, Monsieur GUITTOUM ABDERRAHIM, Maitre de recherche classe A au centre de recherche nucléaire d'Alger (CRNA), pour nous avoir proposé ce sujet. Il a su nous diriger, aussi pour le soutien prodigué tout au long du parcours de cette étude et lui exprimer toute notre reconnaissance et toute notre gratitude pour avoir encadré ce travail et pour la confiance qu'il nous a accordé, ses conseils et ses encouragements et aussi pour sa patience. Nous exprimons notre profond remerciement au Monsieur KHELIFI RACHID, professeur à l'université Saad Dahleb de Blida 1, pour nous avoir fait l'honneur d'accepter de présider le jury. Nos grands remerciements vont également à Monsieur MOUZALI AZIZ, Maitre de conférence B à l'université de SAAD DEHEB de Blida 1, pour l'intérêt qu'il a témoigné à notre travail, aussi pour ses précieux conseils, son encouragement et surtout pour sa gentillesse, aussi pour son acceptation d'examiner ce travail. Nous remercions également Monsieur BENDJEDDA NOUREDDINE, ingénieur de laboratoire Niveau III au département Laser (CRNA), pour son accueil, ses conseils et pour son aide pour la réalisation de nos expériences dans le laboratoire de spectroscopie du temps de vie du positron. Sans oublier Monsieur HEMMOUS MESSAOUD, Maitre de recherche B au département Laser (CRNA) pour son aide, ses conseils et son encouragement. Nous adressons nos remerciements à l'ensemble des enseignants qui ont contribué à notre formation, que monsieur le président et les membres de jury trouvent ici l'expression de notre profond respect

pour nous avoir fait l'honneur d'examiner ce modeste travail. Notre gratitude va également aux personnels du CRNA, sans oublier tous ceux qui nous ont aidé, encouragé de près ou de loin dans la réalisation de ce modeste travail ...

# Introduction

Durant ces dernières décennies plusieurs techniques nucléaires destinées à l'investigation de la matière ont été mises au point dont plus particulièrement celles faisant appel à l'interaction des particules ou antiparticules chargées avec la matière. Parmi les méthodes employées, celle du positron, entamée aux alentours de 1950, est l'une des moins coûteuses. Elle permet donc son adaptation à un laboratoire de recherche nucléaire. Plusieurs techniques sont utilisées pour étudier les propriétés du volume libre dans les matériaux. Parmi ces techniques : la diffusion des rayons  $X$  à petit angle (*SAXS*), la microscopie électronique à transmission (*TEM*), la diffusion des neutrons aux petits angles (*SANS*) et la spectroscopie du temps de vie du positron (Positron Annihilation Lifetime Spectroscopy, *PALS*). La spectroscopie d'annihilation des positrons est une technique nucléaire, non destructive et très puissante permettant de caractériser les volumes libres dans les solides, des nanopores aux défauts lacunaires. Pour cela elle s'appuie sur deux propriétés essentielles du positron : sa capacité à s'annihiler avec des électrons du milieu permettant ainsi de sonder la structure électronique des matériaux et à être piégé dans ces volumes libres au sein du matériau. En mesurant les caractéristiques d'annihilations qui dépendent de la densité électronique vue par le positron et de la distribution des quantités de mouvement des électrons qui s'annihilent avec le positron, cette technique permet de déterminer les propriétés des défauts lacunaires à l'échelle atomique : nature du défaut (mono-lacune, bi-lacune, tri-lacune...), sa charge et son environnement chimique. La spectroscopie d'annihilation des positrons est une technique qui peut être utilisée pour les matériaux conducteurs ou isolants, cristallins ou amorphes. Elle s'applique à la caractérisation dans le volume d'échantillons massifs, et aussi dans les couches minces près de la surface (quelques premiers  $\mu m$ ) ou aux interfaces peu profondes (quelques 100  $nm$ ) grâce au développement d'implanteurs de positrons lents. Actuellement les détecteurs solides de traces nucléaires (*DSTN*) sont devenus un outil essentiel pour les diverses applications dans tous les domaines de la science et la technologie. On

peut citer : sciences de la vie (dosimétrie, radiologie, ect. . . ), la datation en géologie, ainsi que le nucléaire et l'astrophysique. Parmi ces détecteurs solides de traces nucléaires utilisés pour la surveillance des radiations des particules alpha, flux de neutron et des rayons cosmiques, il y a le matériau *CR39*, connu en chimie comme le Polycarbonate d'AllyleDiglycol (*PADC*) de formule chimique  $C_{12}H_{18}O_7$ . Ce dernier a une très bonne capacité d'enregistrer les particules chargées et les neutrons et a donc connu une large utilisation comme dosimètre de neutrons et de radon.

L'étude de l'endommagement produit dans le *DSTN*, sous forme de traces latentes, a montré un changement du volume libre dans ce polymère, qui influe énormément sur ses propriétés macroscopiques. De ce fait, le challenge est de pouvoir relier les propriétés du volume libre à la profondeur ou à la surface de *PADC* d'ordre nanoscopique aux paramètres macroscopiques relatifs à la particule incidente (alpha, gamma, neutron, proton. . . ).

Nous avons réalisé ce mémoire dans le but d'étudier l'effet des irradiations des particules alpha sur le changement du volume libre dans le matériau *CR39*. Il est composé d'une introduction générale, de trois chapitres et d'une conclusion générale :

Le premier chapitre traite des généralités sur le positron et le positronium, en décrivant leurs principales propriétés et leurs processus d'annihilation. A la fin, on présente un état d'art sur la spectroscopie d'annihilation du positron dans le *CR39* irradié par des particules alpha.

Le deuxième chapitre présente les différentes techniques de spectroscopies classiques d'annihilation du positron (spectroscopie d'élargissement Doppler et la spectroscopie du temps de vie du positron). La spectroscopie du faisceau de positron monoénergétique est aussi présentée dans ce travail.

Le troisième et le dernier chapitre, est destiné en premier à une description du réglage et du montage de la chaîne de mesure et à l'optimisation des différents paramètres avant l'acquisition d'un spectre de temps de vie de positron, puis la méthode d'analyse des spectres de temps de vie de positron à l'aide d'un logiciel *LT.9*. En second nous avons présenté les différents résultats obtenus suite à l'analyse des différents spectres relatifs aux divers échantillons irradiés. Le comportement de la fraction ortho-positronium est discuté en fonction de la dose d'irradiation. Finalement, nous avons terminé ce mémoire par une conclusion générale et des perspectives pour le futur.

# Chapitre 1

## Généralités sur la spectroscopie d'annihilation du positron

### 1.1 Introduction

L'objectif principal de la réalisation de ce travail est de faire le montage d'un spectromètre de mesure du temps de vie du positron, ainsi que son optimisation et son application à l'étude de matériau irradié aux particules alpha. Dans le but d'étudier le processus d'annihilation du positron dans un matériau, nous présentons dans ce chapitre quelques notions de base de notre travail. Nous commençons par le positron, le positronium et le processus d'annihilation du positron dans la matière solide. Par la suite, nous décrivons les différentes techniques de spectroscopie classique d'annihilation du positron (spectroscopie d'élargissement Doppler et la spectroscopie du temps de vie du positron). Nous terminons ce travail par étudier la spectroscopie d'annihilation du positron (*PALS*) dans le *CR39* irradié par des particules alpha afin de déterminer les défauts induits après irradiation de ce polymère.

### 1.2 Le positron

#### 1.2.1 Historique

La découverte du positron est le résultat d'une concordance entre les prédictions théoriques et les analyses expérimentales. En 1930, *Dirac* postula l'existence de cette particule dans le cadre de la théorie des trous en électrodynamique quantique [1]. Grâce à l'étude de l'interac-

TAB. 1.1: propriétés intrinsèques du positron [4].

Masse	$m = 9.1 \times 10^{-28} \text{g}$
Moment magnétique	$\mu = 1(\hbar)$ au spin
Energie au repos	$m_0 c^2 = 0.511 \text{ MeV}$
Rayon classique	$r = 0.28 \text{ pm}$
Charge	$q = 1.6 \times 10^{-19} \text{C}$
Durée de vie (vide)	$\infty$
Spin	$S = \hbar/2$

tion des rayons cosmiques avec la matière, *Anderson* a confirmé expérimentalement en 1932 l'existence du positron ( $e^+$ ) dans la chambre de *Wilson* [2]. Dans cette étude, il analysa une plaque photographique contenant la trajectoire laissée dans un champ magnétique par une particule de masse très proche de celle de l'électron mais de charge opposée. La ressemblance entre les propriétés de l'électron et de cette nouvelle particule fut mise en évidence en 1933[3], de plus cette ressemblance de propriétés a permis d'établir le positron définitivement comme étant l'antiparticule de l'électron. Le tableau 1.1 regroupe les propriétés intrinsèques de cette antiparticule (positron) :

### 1.2.2 Source d'émission

Les positrons n'existent pas naturellement. Mais, ils peuvent être générés par diverses réactions nucléaires, telle que la décroissance radioactive et la production de paires par des rayons gamma avec une énergie supérieur à  $2m_e c^2$ [5]. En pratique, les positrons sont généralement émis (produits) par des sources radioactives présentant un excès de protons par rapport au nombre de neutrons ex :  $^{19}\text{Ne}$ ,  $^{58}\text{Co}$ ,  $^{64}\text{Cu}$ ,..... Pour ces atomes, la désintégration  $\beta^+$  est une voie possible pour tendre vers un état plus stable (d'énergie plus faible). Outre ce positron, un neutrino ( $\nu$ ) est aussi émis lors de la désintégration  $\beta^+$ . La réaction est donnée par :



L'énergie cinétique des particules  $\beta^+$  émises correspond à un spectre continu. D'autre part le spectre d'énergie est en fonction de l'atome émetteur. Mais, la source la plus utilisée est l'isotope  $^{22}\text{Na}$  car elle possède une longue période. La figure 1.1, montre le schéma de désintégration de la source  $^{22}\text{Na}$  émettrice de positrons ( $^{22}\text{Na} \rightarrow ^{22}\text{Ne} + \beta^+ + \nu + \gamma$ ) [6].

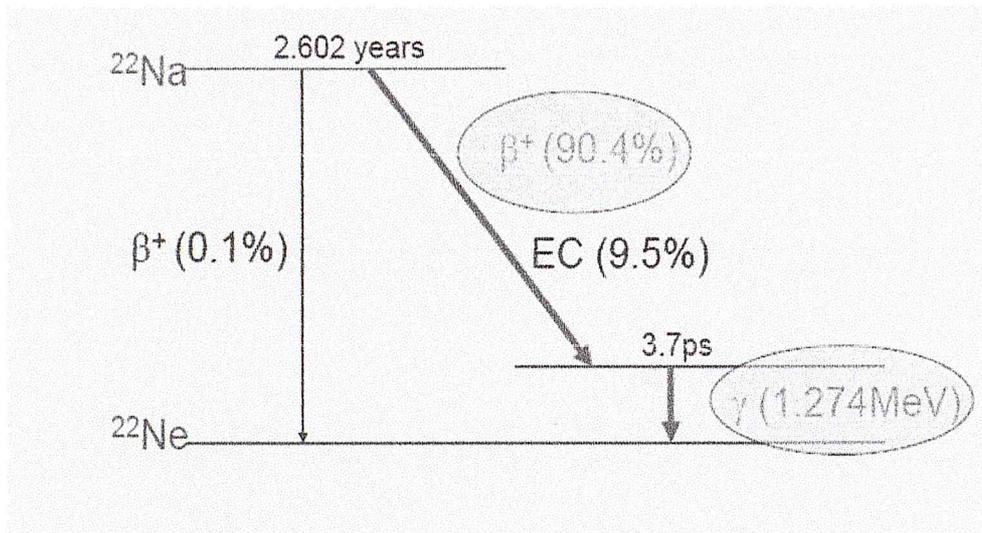


FIG. 1.1: Schéma représentatif du processus de désintégration de la source  $^{22}\text{Na}$ .

### 1.2.3 Parcours

Le positron émis va ensuite se déplacer dans la matière, il est thermalisé d'une façon très rapide par des collisions élastiques, par conséquent il va céder son énergie par excitation et ionisation des atomes du milieu. Du fait de ces interactions et après seulement quelques collisions, la position et la direction du positron deviennent indépendantes de la position et de la direction initiale d'émission. De son point d'émission jusqu'à son point d'annihilation le positron va suivre une marche au hasard. Le positron est stable dans le vide, mais dans la matière son interaction avec un électron conduit rapidement à l'annihilation des deux particules avec émission de photons gamma qui emportent l'énergie et la quantité de mouvement de la paire  $e^- - e^+$  [7].

## 1.3 Le positronium (Ps)

Au cours de son ralentissement dans des milieux à faible densité électronique, le positron peut, dans un intervalle d'énergie bien défini, intervalle *d'Ore* [8], se lier à un électron pour former un atome de nature purement électromagnétique nommé Positronium ( $Ps$ ). L'existence d'un état lié entre un positron et un électron (positronium) a été identifiée peu après la découverte du positron. La stabilité et la structure de l'atome de positronium ( $Ps$ ) ont été discutées pour

la première fois dans le travail de *Pirenne* (1946) et *Wheeler* (1946) commencé en 1944[5]. L'évidence expérimentale de l'existence de l'atome de positronium a été trouvée pour la première fois entre 1949 et 1952 dans le travail de *Deutsch et al.*[9] sur le ralentissement du positron dans l'azote et dans d'autres gaz. Le positronium possède une structure analogue à celle de l'atome d'hydrogène avec une masse réduite et un potentiel d'ionisation deux fois plus faible que celle de l'hydrogène. La différence entre les deux atomes est que dans l'hydrogène le proton reste presque immobile tandis que dans le positronium, lorsque son centre de masse est fixe, le positron et l'électron acquièrent la même vitesse selon l'orientation des spins de la paire électron-positron. La structure du positronium est similaire à celle de l'atome d'hydrogène, en faisant d'une approximation qui considère le *Ps* comme un atome d'hydrogène super léger (Figure 1.2)[6].

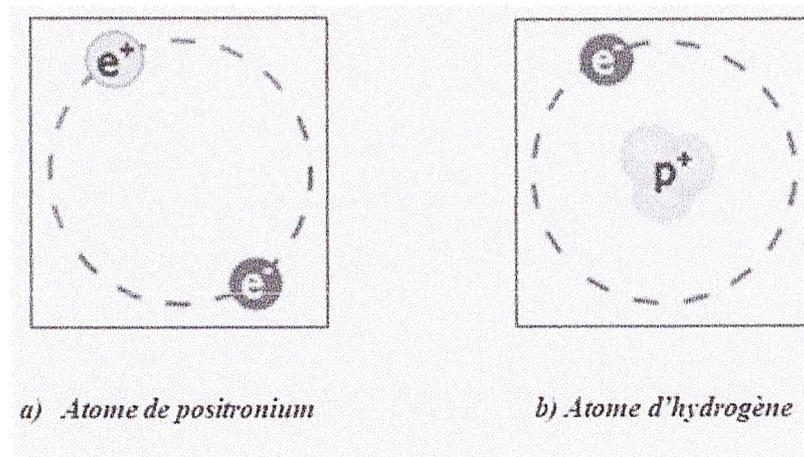


FIG. 1.2: La différence entre l'atome de positronium et celui d'hydrogène.

Le tableau suivant présente les propriétés comparatives des atomes de positronium et d'hydrogène [4].

## 1.4 Processus d'annihilation

### 1.4.1 Loi de conservation

Le processus d'annihilation doit vérifier un ensemble de loi de conservation, notamment :

TAB. 1.2: propriétés comparatives des atomes Ps et H.

Caractéristiques	Positronium ( <i>o-Ps, p-Ps</i> )	Hydrogène
Masse au repos ( <i>MeV</i> )	1.02	938.77
Masse réduite	$\frac{1}{2}m_0$	$m_0$
Rayon de Bohr ( $A^0$ )	1.06	0.53
Charge	00	00
Potentiel d'ionisation ( <i>eV</i> )	6.77	13.6
Vitesse thermique ( $cm/s \times 10^{-5}, 293K$ )	67	2.2
Affinité électronique ( <i>eV</i> )	0.2	0.75
Coefficient de diffusion ( $cm^2/s \times 10^{-5}$ )	30	4.5
Durée de vie intrinsèque ( <i>ns</i> )	140 (0.125)	stable
Mode d'annihilation	$3\gamma$ ( $2\gamma$ )	/

- Conservation de la charge électrique : la charge électrique totale doit être nulle avant et après l'annihilation.
- conservation de l'impulsion et de l'énergie totales.
- conservation du moment cinétique.

### 1.4.2 Processus d'annihilation d'une paire électron - positron ( $e^- - e^+$ )

Le positon est une particule instable en présence d'électrons. Lorsque l'énergie du positron devient faible, en fin de son parcours après de nombreuses collisions, il va s'annihiler. Le processus d'annihilation d'une paire électron-positron conserve l'énergie, le spin et la quantité de mouvement de la paire ( $e^- - e^+$ ). L'annihilation s'accompagne généralement par l'émission d'un rayonnement gamma qui emporte l'énergie ainsi libérée. Le nombre de photons émis dépend de l'état de spin de la paire électron-positron et de la présence d'autres particules ou noyaux au voisinage proche du site de l'annihilation : l'annihilation à un photon se produit pour des positrons d'énergie cinétique élevé ( $> 1MeV$ ) qui peuvent s'approcher suffisamment d'un noyau pour que ce dernier participe à la conservation de l'énergie et la quantité de mouvement. Cet état d'annihilation est quasiment inexistant car l'énergie maximale des positrons utilisés est de 500 à 540 *KeV* pour des sources de  $^{22}Na$ . Le processus d'annihilation du positron résulte en l'émission de deux gamma ( $2\gamma$ ) et/ou trois gamma ( $3\gamma$ ) et dépend bien évidemment du type de matériau étudié. Donc si un positron est implanté classiquement dans un solide avec une énergie de quelques centaines de *KeV*. Il perd ensuite son énergie par interaction avec les noyaux et les électrons du milieu par le processus de thermalisation. Une fois thermalisé, le positron commence à diffuser pour ensuite s'annihiler dans un défaut [10].

## CHAPITRE 1. GÉNÉRALITÉS SUR LA SPECTROSCOPIE D'ANNIHILATION DU POSITRON

Le positron peut exister sous formes de différents états avant son annihilation [7] :

Sous formes de positrons libres (état libre) : le positron s'annihile directement avec un électron du matériau, cet annihilation directe se fait par émission de  $2\gamma$  émis à  $180^\circ$  l'un de l'autre dans le référentiel du centre de masse de la paire ( $e^- - e^+$ ), son temps de vie est de l'ordre de 100 à 500 *ps*.

Sous formes de positronium (état lié) : le positron forme un atome de type hydrogénoïde avec un électron, la paire électron-positron. En effet, au cours de son ralentissement dans les milieux à faible densité électronique (gaz, matériaux .....), le positron peut se lier avec un électron pour former un positronium.

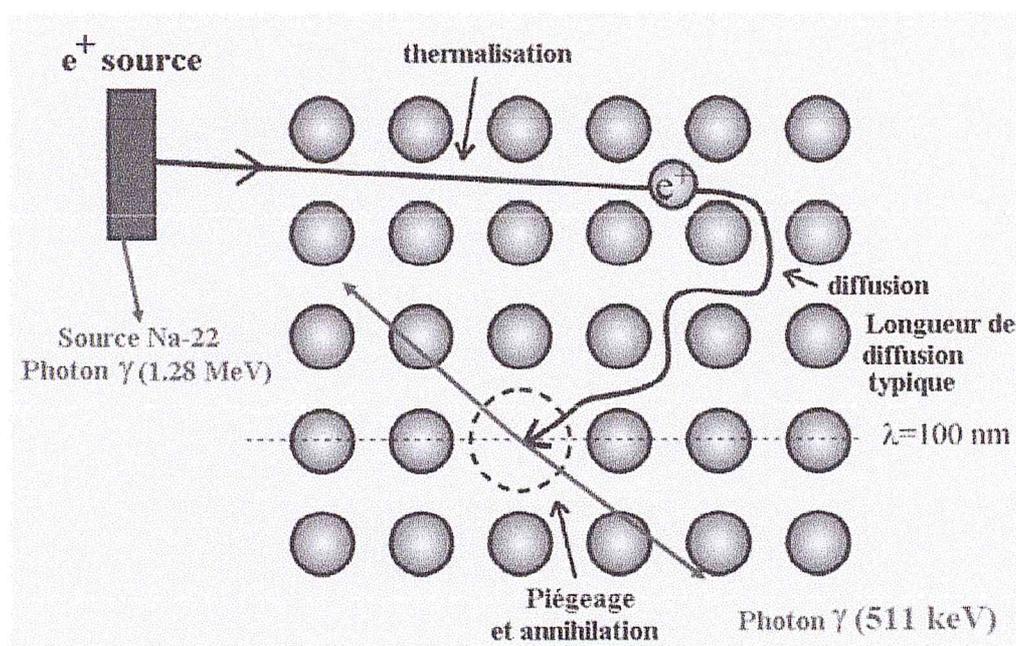


FIG. 1.3: Schéma représentatif de l'annihilation d'une paire  $e^- + e^+$  (liée).

L'atome  $Ps$  possède deux états fondamentaux (Figure 1.4)[11] :

-L'état singulet  $^1S_0$  ( $l=0, S=0$ ) ou le para-positronium ( $p-Ps$ ) dans lequel les spins du positron et l'électron sont antiparallèles.

-L'état triplet  $^3S_1$  ( $l=0, S=\pm 1$ ) ou l'ortho-positronium ( $o-Ps$ ) dans lequel ses spins sont parallèles.

Le para-positronium ( $p-Ps$ ) donne lieu à une auto-annihilation dans le vide avec un temps de vie très court de 125 *ps* sous la forme de deux photons d'énergie égale à 511 *keV*. Dans le vide, l'ortho-positronium ( $o-Ps$ ) s'annihile en trois photons avec un temps de vie de 142 *ns* par consé-

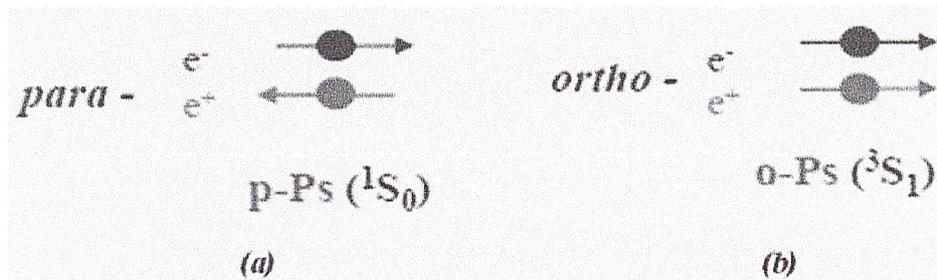


FIG. 1.4: Représentation des deux états du positronium Ps : a) para-positronium, b) ortho-positronium.

quent l'état ortho est trois fois plus abondant que l'état para [12].

Si l'*o-Ps* n'est pas dans le vide, l'annihilation du positronium s'effectue avec le processus « *pick-off* », donc le temps de vie dépend de la probabilité du phénomène « *pick-off* » et pour cela l'annihilation donne lieu à trois rayons gamma et un temps de vie  $\tau$  supérieur à 500 ps [13, 14]. En particulier si un *o-Ps* est formé dans un pore d'un matériau nano-poreux, le phénomène de « *pick-off* » ne pourra se produire qu'à l'occasion d'un choc sur les parois du pore. Les différents états du positron et leurs processus d'annihilation sont montrés sur la figure 1.5[10].

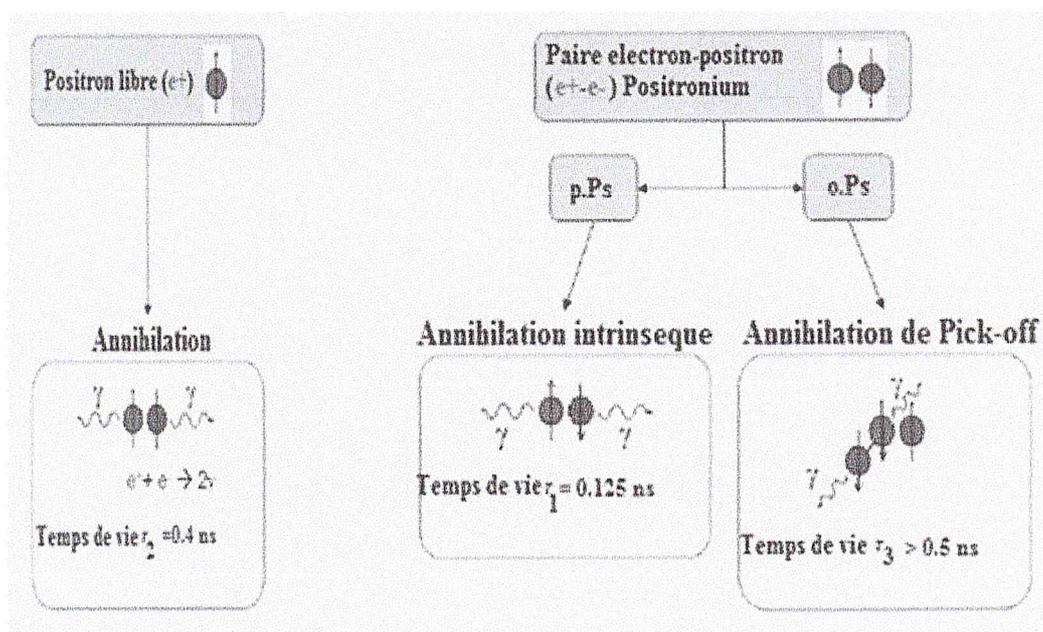
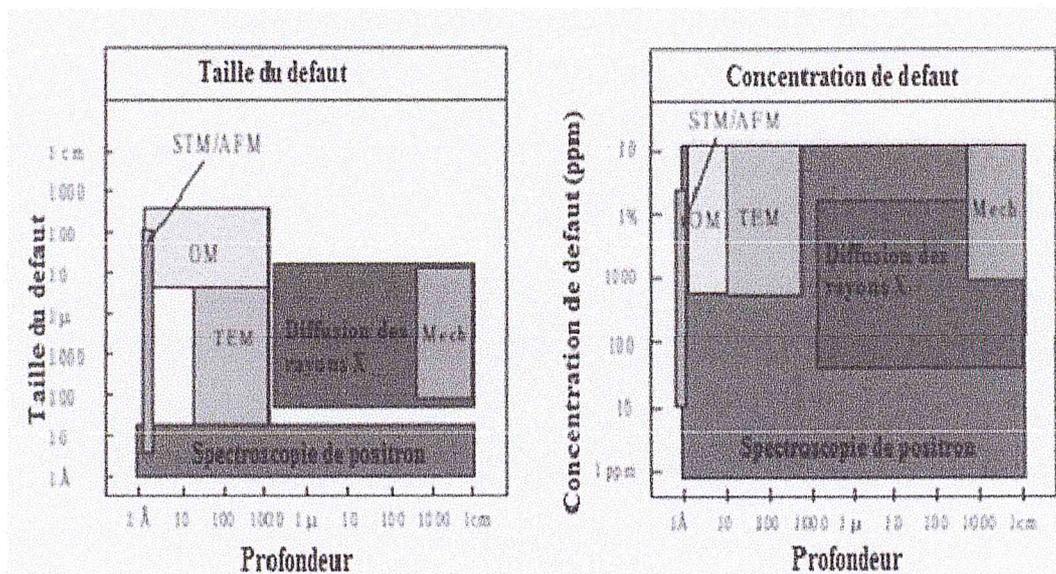


FIG. 1.5: Représentation schématique des différents états du positron et leurs processus d'annihilation dans les polymères.

## 1.5 Apport de la spectroscopie de temps de vie du positron (*PALS*) dans l'étude des polymères

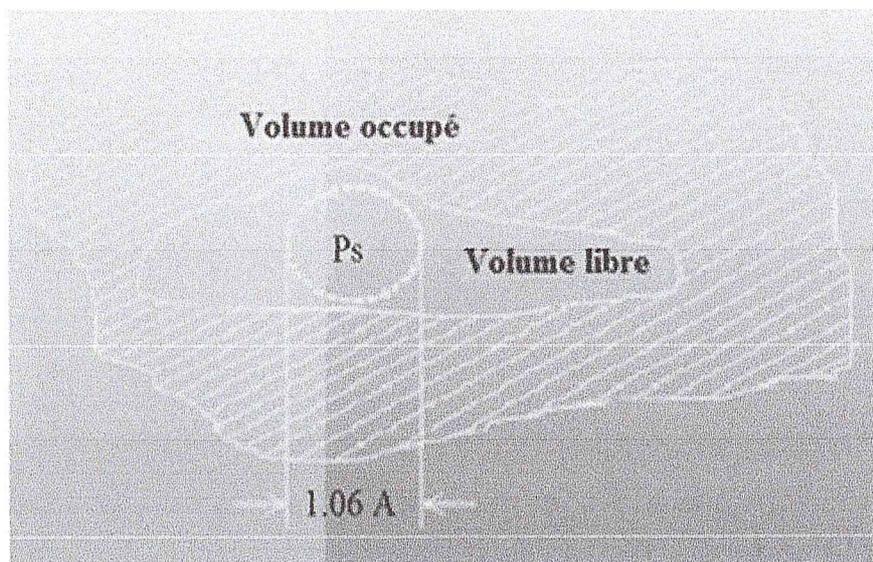
Plusieurs techniques sont employées afin d'étudier les différentes propriétés des polymères. Parmi elles la diffusion des rayons *X* à petit angle (*SAXS*, Small angle *X*-ray scattering, en Anglais) et la diffraction des neutrons qui sont utilisées pour déterminer la densité des fluctuations pour remonter à la taille des distributions du volume libre. Pour sonder les vides et les défauts excitants dans les différents matériaux, d'autres méthodes sont utilisées, comme la microscopie à effet tunnel (Scanning tunneling microscopy – *STM*, en Anglais) et la microscopie à force atomique (Atomic force microscopy – *AFM*, en Anglais) Ces méthodes sont sensibles aux trous ayant la taille d'Angstrom, mais elles sont limitées aux trous statiques sur les surfaces, ce qui restreint leur utilisation dans les polymères. La microscopie électronique (Scanning electron microscopy – *SEM*, en Anglais) et la microscopie électronique à transmission (Transmission electron microscopy – *TEM*, en Anglais) sont plus sensibles aux trous statiques de  $10 A^0$  ou plus. La figure 1.6, donne une comparaison entre ces techniques citées en terme de capacité de mesure la taille et la concentration des défauts [15].



Comparaison entre différentes techniques pour déterminer des défauts et des vides dans les matériaux (*OM*-microscopie optique, *TEM*, *STM*; *AFM*; techniques mécaniques).

En raison de la petite taille du *Ps* ( $1.59 A^0$ ) comparée à d'autres sondes, *PALS* est particulièrement sensible aux petits trous et au volume libre de l'ordre de  $1 A^0$ . Comme la durée de

vie de l'*o*-Ps est relativement courte (environ 2-4 ns dans les polymères), PALS est capable de donner des informations détaillées sur les trous et le volume libre dans l'intervalle 1 à 10 Å sans interférer avec le matériau [9]. En effet, le positronium une fois qu'il est formé peut seulement exister dans l'espace de volume libre du polymère [7] (Fig 1.7).



Vue schématique de la localisation du positronium dans un volume libre.

## 1.6 Le détecteur de traces nucléaires (polymère CR39)

Le détecteur solide de traces nucléaires utilisé lors de cette étude est un polymère plastique thermodurcissable transparent, communément appelé CR39. Son taux de cristallinité est nul. Il est obtenu par polymérisation du liquide monomère diéthylèneglycolbis (allyl carbonate). Sa formule brute est  $C_{12}H_{18}O_7$ . Sa formule détaillée glycol bis (voir figure 1.2) montre la présence de deux groupements allyl capables de polymériser pour donner des chaînes polyallyl par réactions radicalaires [14].

## 1.7 Un état d'art sur la spectroscopie d'annihilation du positron dans le CR39 irradié par des particules alpha

Historiquement de très nombreuses études ont été effectuées sur le détecteur solide de traces nucléaire CR39. Ce détecteur a l'avantage d'enregistrer des particules  $\alpha$  ayant un angle d'inci-

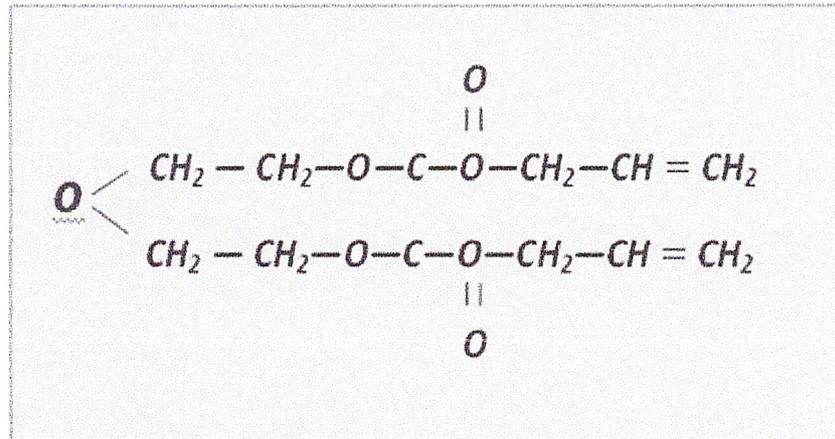


FIG. 1.6: Formule chimique de *CR39* dans le plan.

dence allant jusqu'à  $75^\circ$  et une énergie comprise entre 0 et 20 *MeV*.

*M. Abdel-Rahman* et al représentent une étude sur l'effet des radiations alpha dans le *CR39*, en utilisant la spectroscopie d'annihilation du positron par l'effet Doppler *DBS*. Ils ont montré que le diamètre des traces diminue avec l'augmentation de l'énergie d'irradiation, ceci est lié au transfert linéique d'énergie *LET*, lorsque l'énergie des particules alpha est importante le *LET* ne deviens pas élevé [16].

*M.F. Eissa* a exploité cette étude où il a irradié les échantillons du *CR39* par des rayons alpha à différentes énergie et une influence constante. Il a pu déterminer le gap énergétique et le diamètre des défauts à différent temps de décapage chimique [17]. Une étude réalisée par *F.M Hamdy* et ses collaborateurs, sur l'effet des particules alpha ( $\alpha$ ) sur le détecteur des traces nucléaires *CR39*, en utilisant la spectroscopie d'annihilation du temps de vie du positron (*PALS*). Les résultats obtenus ont montré que le diamètre des traces augmente avec la diminution de l'énergie des particules  $\alpha$ , tandis que leurs densités augmentent avec l'augmentation de la dose d'irradiation [18].

Plus récemment, une autre étude à été menée par l'équipe de *Gavin Gillmore* sur l'effet de temps de révélation chimique des traces créés par les particules alpha dans le détecteur solide des traces nucléaires *DSTN*, ces traces sont analysées par microscopie équipé d'un logiciel puissant de traitement d'image et qui peut donner des images contenant les traces de petite taille et également le nombre de ces traces [19]. Dans notre modeste bibliographie, nous avons remarqué le peu d'articles publiés sur la *PALS* dans le *CR39* irradié par des particules alpha. Ainsi et

## Chapitre 2

# Méthodes de spectroscopie d'annihilation du positron

### 2.1 Introduction

Dans la matière, les positrons qui diffusent peuvent être capturés dans des sites spéciaux de piégeage. Ces centres de piégeage sont les imperfections d'un cristal, par exemple les trous, les lacunes et les dislocations. Le positron capturé dans un tel défaut sera localisé jusqu'à ce qu'il s'annihile avec un électron du milieu environnant. Il s'ensuit que les paramètres caractérisant la réaction d'annihilation refléteront la structure du matériau. En particulier, pour un matériau défectueux, la densité électronique locale change par rapport au matériau sans défaut. Les rayonnements d'annihilation peuvent donc être utilisés pour obtenir des informations sur le site d'annihilation. Par conséquent, le type et la concentration des défauts dans les matériaux peuvent être étudiés par les diverses méthodes [6].

### 2.2 Techniques classiques de spectroscopie d'annihilation du positron

classifiées en deux groupes, on distingue le premier groupe qui est sensible à la densité électronique (spectroscopie de temps de vie de positron, *PALS*), tandis que le second groupe est sensible à la distribution du moment électronique dans l'échantillon (spectroscopie par effet Doppler, *DBS* et la spectroscopie de la corrélation angulaire, *ACAR*). Dans ce chapitre seules

PALS et DBS seront détaillées. Comme la densité électronique et la distribution du moment électronique influent sur le piégeage des positrons dans les différents défauts du matériau, ces techniques représentent un outil d'étude de la concentration, du type et du nombre des défauts dans un matériau donné [10]. Les principes de ces techniques sont schématisés sur la figure 2.1.

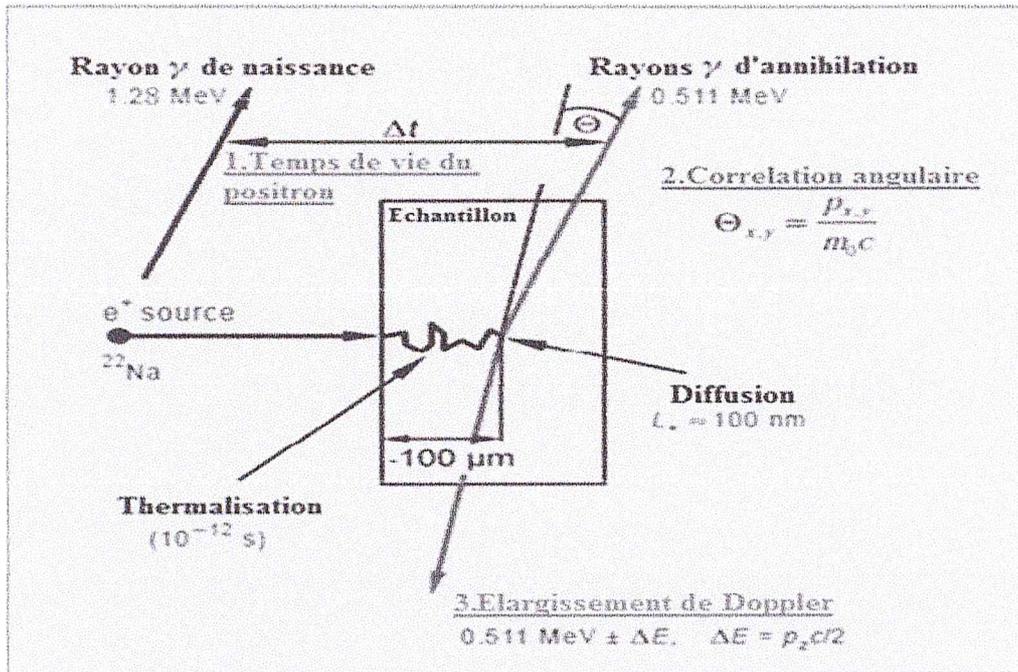


FIG. 2.1: Schéma représentatif des différentes techniques de positron.

### 2.2.1 Spectroscopie du temps de vie du positron

Dans un échantillon donné, les positrons peuvent subir plusieurs états d'annihilation. Chaque état d'annihilation  $i$  est caractérisé par un temps de vie  $\tau_i$ , inversement proportionnel au taux d'annihilation  $\lambda_i = \frac{1}{\tau_i}$  [20], la durée de vie  $\tau$  d'un état quelconque du positron d'un site spécifique est une fonction de la densité électronique de ce site d'annihilation. Lorsque les positrons sont piégés dans le volume ouvert ou dans le volume libre, le temps de vie du positron augmente par rapport à celui de l'échantillon sans défauts. C'est dû à la diminution de la densité électronique locale du défaut. Ainsi apparaît, la plus longue composante du temps de vie, qui est une mesure indirecte de la taille du volume ouvert. Son intensité est directement liée à la concentration des défauts [10]. L'avantage principal de la spectroscopie du temps de vie du positron comparée à la spectroscopie par effet Doppler, c'est qu'elle permet d'obtenir indépendamment le type et la

concentration des défauts par une mesure simple [21].

### Dispositif expérimental

Le dispositif expérimental utilisé dans laboratoire de spectroscopie d'annihilation du positron est d'un nouveau type appelé système *FAST-FAST* ou circuit à coïncidence rapide-rapide. Dans ce système, la discrimination en énergie se fait dans le circuit même de l'information en temps au moyen de discriminateurs différentiels à fraction constante (*CFDD*). La source est placée entre deux échantillons de même nature et de même dimensions. Les deux scintillateurs situés de part et d'autre de l'assemblage source/échantillon détectent les gamma  $1.28 \text{ MeV}$  et  $0.511 \text{ MeV}$ . Les tubes photomultiplicateurs assemblés aux scintillateurs permettent de collecter sur leur anode des impulsions électroniques mesurables. Les signaux anodiques subissent en plus d'une sélection bien déterminée en énergie, une mise en forme appropriée dans deux discriminateurs différentiels à fraction constante (*CFDD*). Les *CFDD* délivrent un signal précis en temps si les amplitudes d'entrée se trouvent à l'intérieur de fenêtres sélectionnées par l'opérateur. L'un des domaines de sélection est situé autour du *front Compton* du gamma  $1.28 \text{ MeV}$  égal à  $1.06 \text{ MeV}$ , l'autre autour de  $\sim 0.34 \text{ MeV}$  ou *front Compton* du gamma  $0.511 \text{ MeV}$ . Les sorties *CFDD* parviennent aux deux entrées *START* et *STOP* du convertisseur temps amplitude (*TAC*). La première reçoit les impulsions dues aux gamma  $1.28 \text{ MeV}$ , la seconde celles nées des gamma  $0.511 \text{ MeV}$ . L'unité *TAC* produit un signal dont la hauteur est proportionnel à la différence de temps existant entre les arrivées des impulsions d'entrée.

Cette sortie du *TAC* est dirigée vers un analyseur multicanaux (*MCA*) qui procède au comptage du nombre d'événements de coïncidence. La figure 2.2 représente à titre d'exemple un spectre de temps de vie typique enregistré sur un *MCA* incorporé dans un micro-ordinateur. Les scintillateurs plastiques de type *ej 232*, de géométrie cylindrique se caractérisent par leur rapidité de réponse au détriment de la résolution ce qui justifie leur utilisation dans les expériences.

### 2.2.2 Spectroscopie d'élargissement Doppler (*DBS*)

Comme le processus d'annihilation est conservatif du moment, alors pendant cette annihilation, le moment  $P$  de la paire électron-positron, est transféré à la paire de photons  $\gamma$ . La spectroscopie par effet Doppler, enregistre l'élargissement  $\Delta E$  des raies d'annihilation de  $0.511$

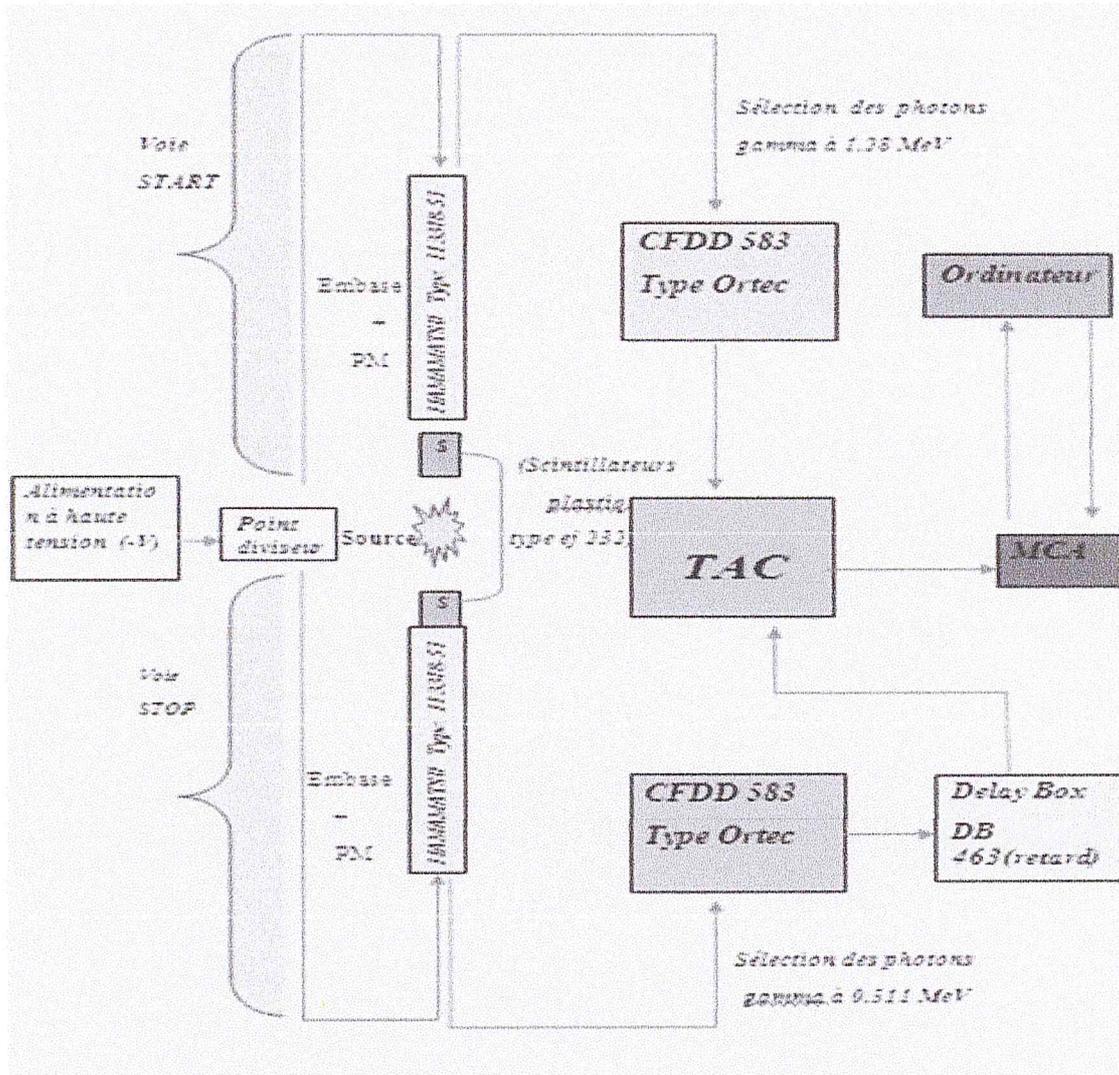


FIG. 2.2: Dispositif expérimental de temps de vie du positron «coïncidence rapide-rapide».

$MeV$  dans un spectromètre basé sur la technique de dispersion en énergie [10,21]. L'élargissement  $\Delta E$  peut être calculé à partir de la composante  $P_z$  du moment électronique dans la direction de propagation des rayons  $\gamma$  de  $0.511 MeV$ .

$$\Delta E = \frac{P_z C}{2} \tag{2.1}$$

La composante du moment dans la direction de propagation  $\pm Z$  du rayon  $\gamma$ , provoque un petit effet Doppler de l'énergie d'annihilation. Plusieurs millions d'événements d'annihilation forment le spectre d'élargissement Doppler de la raie d'annihilation  $0.511 MeV$  dans le spectromètre de dispersion en énergie. Cette méthode est appelée la spectroscopie d'élargissement

Doppler [6].

### Dispositif expérimental

Dans cette technique l'élargissement de la raie d'annihilation Doppler est mesuré par un détecteur en Germanium *Ge* ayant un système d'énergie dispersif à haute résolution (2.3).

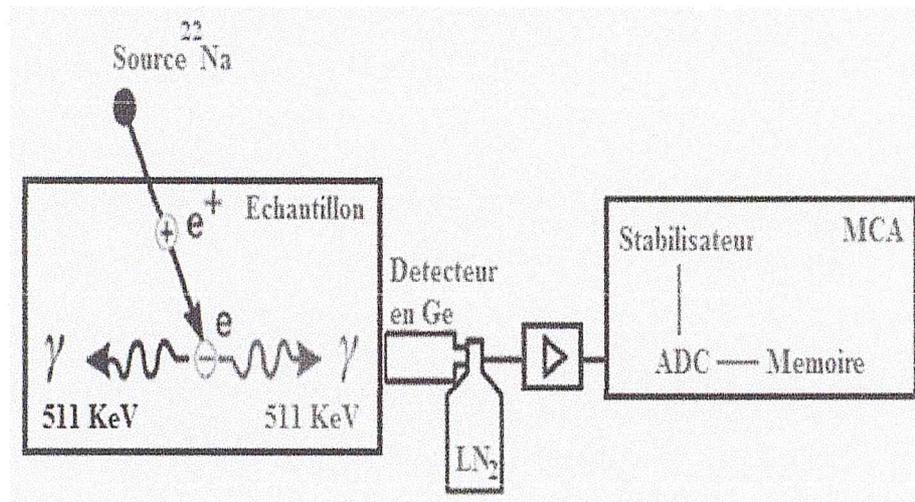


FIG. 2.3: Dispositif expérimental de la spectroscopie par effet Doppler

L'élargissement Doppler de deux photons  $\gamma$  émis lors de l'annihilation de la paire  $e^- - e^+$  est une technique importante et fondamentale. Cette technique est basée sur la mesure avec précision de l'énergie des deux photons gamma émis lors de l'annihilation, en particulier de la raie d'annihilation à 511 KeV. Elle nous permet d'étudier les défauts lacunaires et leurs natures, présents autour du site d'annihilation dans les matières.

La mesure de la distribution d'énergie de la raie d'annihilation, s'effectue à l'aide d'un détecteur en Germanium refroidi avec l'azote liquide ( $\text{LN}_2$ ). Le préamplificateur qui est intégré dans le détecteur permet de traiter le signal du détecteur en *Ge* pur. Un amplificateur fournit les impulsions nécessaires pour le convertisseur analogique-numérique (*ADC*, analog-digital converter, en Anglais). L'événement est stocké dans la mémoire de l'analyseur multicanal (*MCA*, multi-Channel analyser, en Anglais). Un stabilisateur de canal numérique (*peak-stabilizing*, en Anglais) en tant qu'élément du *MCA* permet la collection de plusieurs millions de coups. La période de la mesure est comparable à celle de la collection d'un spectre du temps de vie du positron. Les deux techniques (*PALS* et *DBS*) peuvent facilement être combinées pour donner

lieu à un dispositif expérimental dit *AMOC* (Age Momentum Correlation, en Anglais).

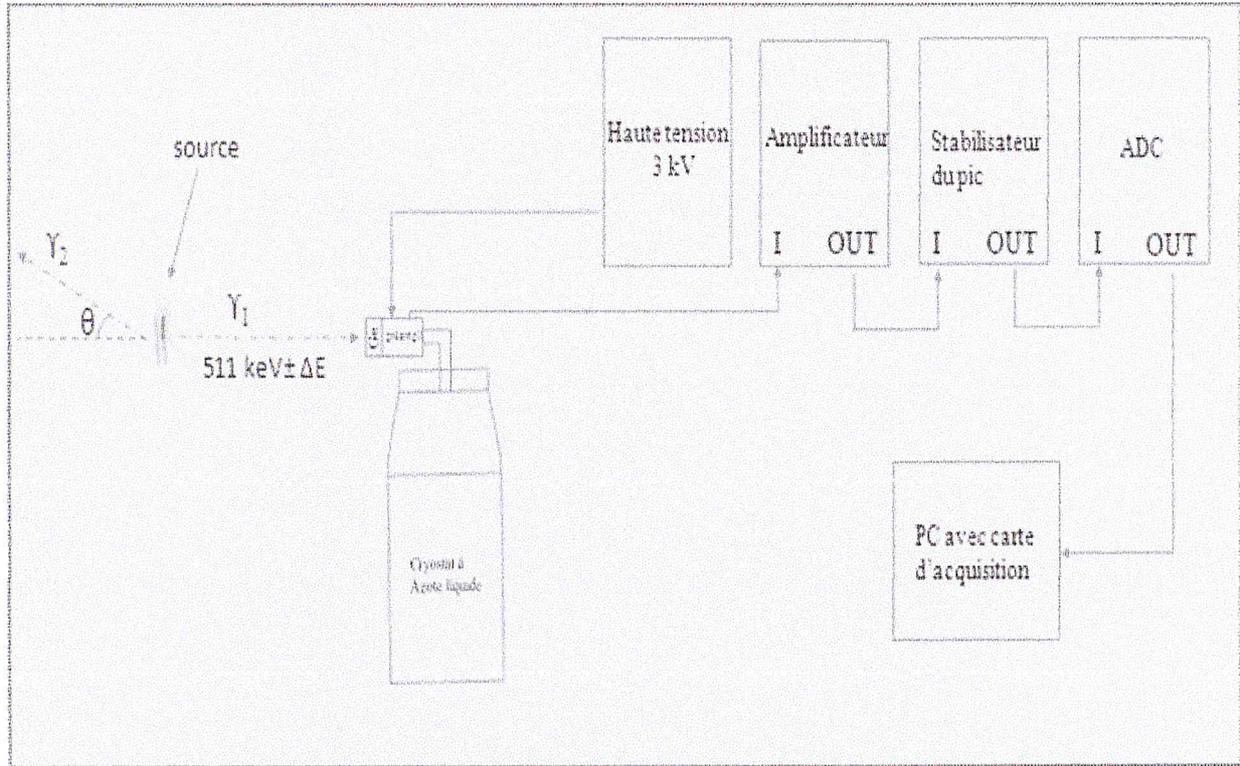


FIG. 2.4: Schéma représentatif de principe d'une chaîne de mesure d'élargissement Doppler de la raie d'annihilation à 511 keV.

### 2.2.3 Technique de spectroscopie du faisceau de positron lent (The slow positron beam)

L'étude des couches minces, des défauts près de la surface ainsi que les interfaces est primordiale. Pour observer les défauts près de la surface, une faible pénétration des positrons dans la matière est nécessaire. Des systèmes expérimentaux schématisés sur la figure 2.5 ont donc été développés pour produire des faisceaux de positrons monoénergétiques de faibles énergies communément appelés positrons lents. Le dispositif expérimental capable de contrôler l'énergie des positrons est appelé accélérateur de positrons lents. Une partie des positrons émis par une source radioactive ( $\approx 50 \text{ mCi}$ ) est thermalisée par un modérateur. Celui-ci est généralement constitué d'une feuille de tungstène  $W(110)$ , de faible épaisseur ( $2 \mu\text{m}$ ) pour laquelle le travail d'extraction du positron est négatif ( $-3 \text{ eV}$ ). Les positrons freinés et thermalisés près de la

surface du modérateur sont spontanément réémis avec une énergie cinétique égale au travail d'extraction,  $3 \text{ eV}$  pour le tungstène, dans une direction perpendiculaire à la surface du modérateur. La petite partie de positrons mono-énergétiques réémis par le modérateur (rendement  $\approx 10^{-4}$ ) doit être séparée de la majeure partie des positrons non modérés avant d'être utilisée pour les expériences. Ceci est réalisé à l'aide d'un filtre en énergie, qui prend la forme d'un coude soumis à un champ magnétique que seuls peuvent suivre les positrons ayant la bonne énergie. Les particules forment alors un faisceau de positrons lents guidé et accéléré vers l'échantillon grâce à des champs magnétiques et électriques. Les positrons monoénergétiques peuvent acquérir des énergies comprises entre  $0 \text{ keV}$  et  $50 \text{ keV}$ , avec une profondeur de pénétration allant de 0 jusqu'à  $5 \mu\text{m}$ . Dans le cas de positrons monoénergétiques continu et/ou pulsé, la spectroscopie par effet Doppler aussi bien que la spectroscopie du temps de vie de positron peuvent être effectuées [21].

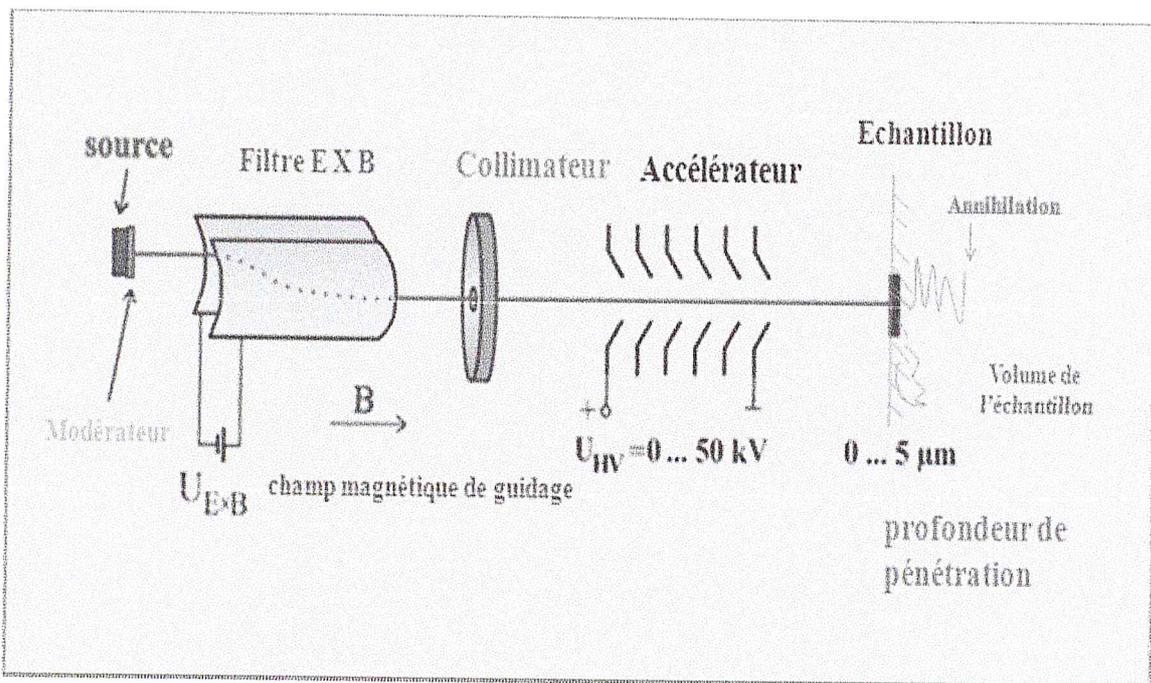


FIG. 2.5: Schéma représentatif de principe du faisceau de positrons lents.

## Chapitre 3

# Expériences, résultats et discussion

### 3.1 Introduction

L'objectif principal de ce chapitre est de décrire en premier, les détails d'assemblage et de montage du spectromètre de temps de vie du positron (rapide-rapide) que nous avons utilisé dans ce travail de mémoire. La source utilisée pour l'obtention des positrons énergétiques est l'isotope  $^{22}\text{Na}$ . En second, nous expliquons les étapes à suivre pour l'analyse du spectre du temps de vie du positron à l'aide du logiciel *LT.9*. Enfin, nous exposerons les différents résultats obtenus suite à l'analyse des spectres du temps de vie du positron des échantillons de silicium (Calibration) et du polymère (*CR39*).

## Première partie

# Montage du spectromètre du temps de vie du positron

## 3.2 Description d'une chaîne de spectroscopie de temps de vie du positron

Lors de la réalisation de nos expériences nous avons utilisé un spectromètre de coïncidence rapide-rapide (*FAST-FAST* coïncidence en Anglais). Ce terme signifie que la mesure du temps aussi bien que la sélection des énergies sont faites dans un canal rapide. La discrimination en énergie des gammas  $1.28 \text{ MeV}$  et  $0.511 \text{ MeV}$  est faite dans des discriminateurs différentielles à fraction constante, utilisant une électronique interne rapide. Le spectromètre comporte deux voies de détection :

- Une voie *START* qui détecte l'émission des photons  $1.28 \text{ MeV}$  qui sont émis simultanément avec les positrons.
- Une voie *STOP* qui détecte l'émission des photons  $0.511 \text{ MeV}$  caractéristique de l'annihilation du positron. Les différentes composantes du spectromètre de temps de vie du positron sont :
  - Deux détecteurs à scintillations rapides.
  - Un système électronique.
  - Un système d'acquisition.

### 3.2.1 Détecteurs à scintillations rapides

Les deux détecteurs à scintillations rapides *START* et *STOP* sont constitués chacun d'un scintillateur plastique de type *ej 232*, d'un photomultiplicateur *HAMAMATSU* de type *H3378-51* et d'une embase (voir les figures de 3.A.2.a jusqu'à 3.A.7).

#### Assemblage de chaque détecteur

Nous avons collé les photomultiplicateurs aux scintillateurs à l'aide d'une graisse optique de viscosité élevée. Ces derniers sont entourés de téflon afin de stopper la lumière de tous les côtés des scintillateurs et de laisser passer seulement les photons d'intérêt ( $1.28 \text{ MeV}$  et  $0.511 \text{ MeV}$ ).

La figure 3.A.3 montre un scintillateur collé à un photomultiplicateur, ce dernier est couplé avec une embase :

Le choix d'utilisation des scintillateurs plastiques est basé sur la rapidité de collecter et de

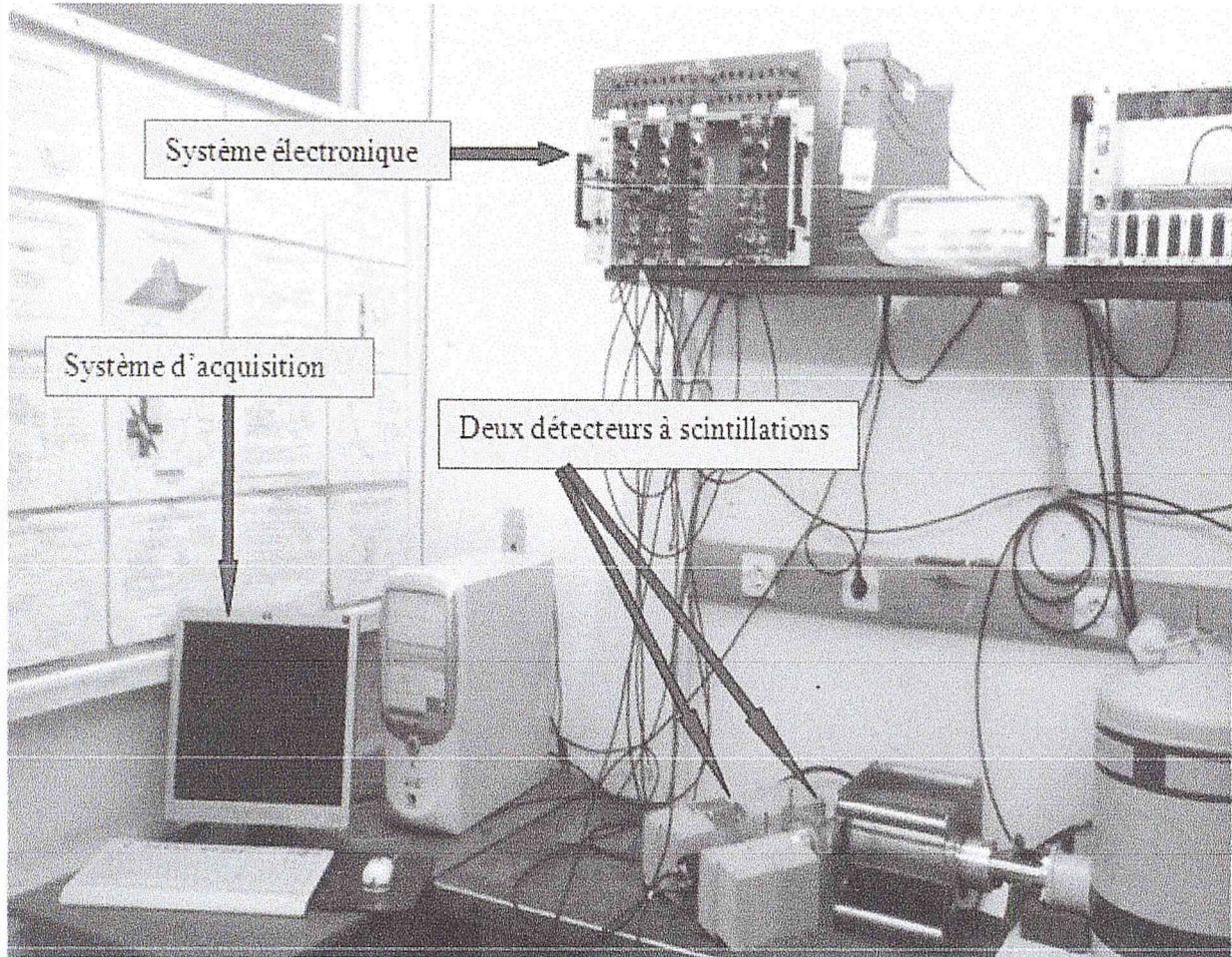


FIG. 3.1: spectroscopie du temps de vie du positron existant au niveau du *CRNA*.

générer un signal lumineux, avec une bonne résolution temporelle (performante). Le rôle des scintillateurs est de transformer les photons gamma émis (par la source radioactive  $^{22}\text{Na}$  1.28  $\text{MeV}$  ou les photons d'annihilation 0.511  $\text{MeV}$ ) en photons visibles susceptibles d'être détectés par la photocathode du photomultiplicateur qui possède une fenêtre en quartz.

### Les photomultiplicateurs

Sous vide, chaque tube photomultiplicateur contient une photocathode qui a le rôle de convertir les photons visibles en un flux d'électrons de très faible intensité. Ces électrons sont ensuite multipliés et accélérés par une série de dynodes qui émettent chacune  $n$  électrons pour un électron incident ( $n > 1$ ). Ainsi, un dispositif comportant  $z$  dynodes présente un coefficient de multiplication  $A = nz$ . Sur l'anode de sortie, un signal électrique est recueilli, son amplitude dépend de l'énergie initiale des photons gamma [7, 22]. Les photomultiplicateurs sont liés aux

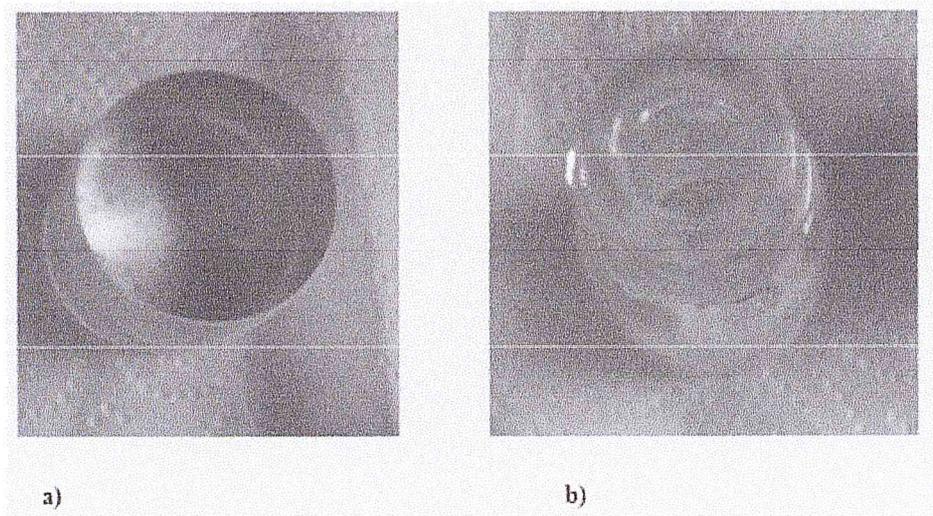


FIG. 3.2: a) Scintillateur plastique de type *EJ 232* (vue de face), b) la graisse optique.

embases à travers des connecteurs électriques. L'embase comporte deux sorties anode et dynode en plus de l'entrée qui sert à l'application de la haute tension négative (Fig 3.5).

La figure suivante présente une description schématique relative au principe de la détection des positrons, que nous avons réalisé au niveau du *CRNA*.

### 3.2.2 Système électronique

Sur la figure suivante, nous avons montrés les différents éléments du système électronique du spectromètre du temps de vie du positron :

*Les discriminateurs différentiels à fraction constante (CFDD 583)*

Le passage du signal d'anode des photomultiplicateurs par les discriminateurs différentielles à fraction constante lui permet de sélectionner des impulsions à l'aide des fenêtres du *SCA*, incorporées dans les *CFDD* en fonction de leur amplitude qui correspondent soit aux photons gamma  $1.28 \text{ MeV}$  pour la voie *START*, soit à celui de  $511 \text{ KeV}$  pour la voie *STOP*. Une impulsion logique va être générée de manière rapide par ces modules, cet impulsion va être utilisée par le circuit de mesure du temps, le convertisseur temps-amplitude.

– *Le convertisseur temps-amplitude (TAC)*

Il est déclenché lorsqu'il reçoit une impulsion logique du discriminateur *START* et il est arrêté à la réception de l'impulsion logique du discriminateur *STOP*. Ces signaux ne correspondent au temps de vie du positron que si un seul positron est présent à la fois dans le matériau, ce

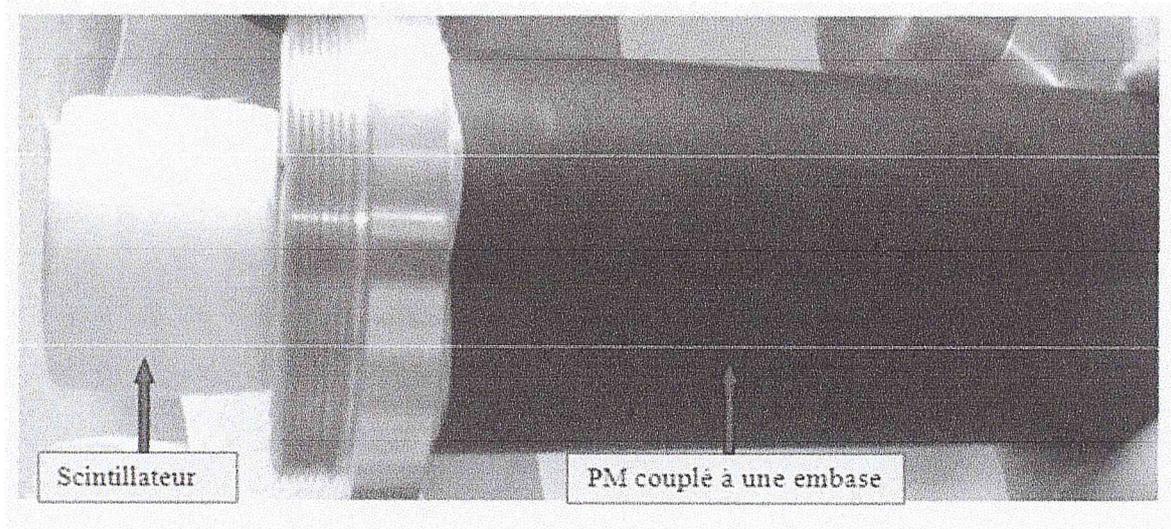


FIG. 3.3: Scintillateur collé à un photomultiplicateur (vue de coté).

qui est le cas pour une source de faible activité. Le convertisseur temps-amplitude génère alors un signal carré lent, dont l'amplitude est proportionnelle à l'intervalle de temps séparant les impulsions *START* et *STOP*. Cet intervalle de temps étant très court (quelques centaines de picosecondes), un retard connu (quelques nanosecondes) est ajouté sur la voie *STOP* afin de se situer dans la meilleure plage d'opération de *TAC*. La voie *STOP* fournit donc les informations temporelles qu'on dirige vers un analyseur multicanaux *MCA*.

– *Delay Box*

On introduit un retard à l'aide d'une boîte à retard (*Delay box*, en Anglais) pour que l'impulsion apparaisse bien et aussi pour retarder le signal *STOP* par rapport au *START* afin de déplacer l'événement d'intérêt dans l'intervalle d'opération du *TAC*.

– *Système d'acquisition des spectres analyseur multicanal (MCA)*

Les impulsions sont collectées à la sortie de convertisseur temps-amplitude (*TAC*) par une carte d'acquisition de type Maestro *MCB25* (*Ortec*) qui est incorporée dans un micro-ordinateur. Elles sont classées et stockées en fonction de leur amplitude, dans des canaux de largeurs  $T_0$  pour former un spectre de temps de vie. Le  $n^{\text{ième}}$  canal correspond ainsi au nombre du positron ayant une durée de vie comprise entre  $n \times T_0$  et  $(n + 1) \times T_0$ .  $T_0$  est le temps par canal, il est propre à chaque système de temps de vie ( $\approx 100$  ns pour notre système).

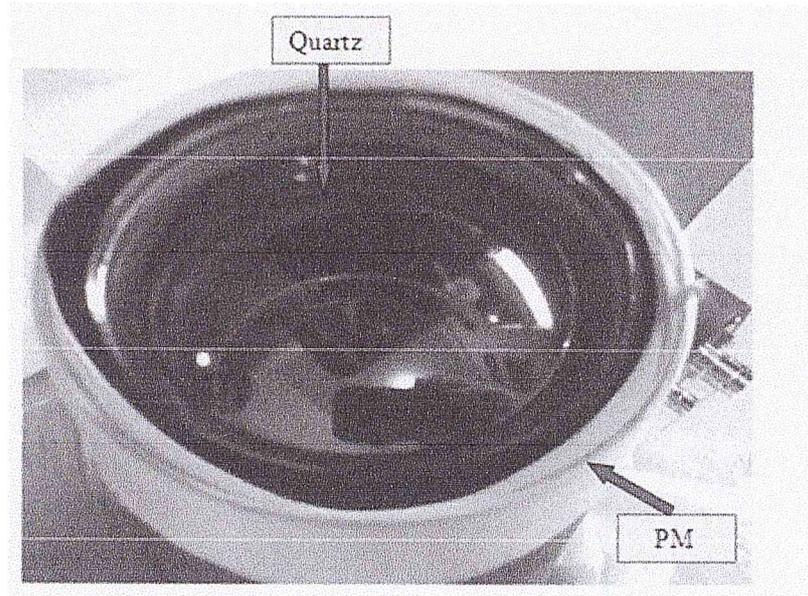


FIG. 3.4: La fenêtre du photomultiplicateur.

### Préparation de la source de sodium $^{22}\text{Na}$

On a utilisé comme source du positron du sodium  $^{22}\text{Na}$  préparée au *CRNA*. La préparation s'effectue à partir d'une solution radioactive mère  $^{22}\text{NaCl}$  saline, aqueuse et transparente d'activité  $2.5\text{ mCi}$ , mise dans une bouteille en verre et stockée dans un conteneur en plomb. Une goutte de quelques microlitres est soigneusement prise de la solution radioactive mère par une micropipette déposée sur une feuille de kapton mince d'épaisseur  $12\ \mu\text{m}$  de telle manière à avoir un point (source ponctuelle). L'activité de la source à préparer dépend bien évidemment du volume choisi et donc du nombre de gouttes déposées.

Après avoir déposé la goutte de sodium ( $^{22}\text{Na}$ ), une opération de séchage est effectuée afin d'évaporer la quantité d'eau que contient cette goutte. Après le séchage, une autre feuille de kapton est collée sur la première (source en forme sandwich). Enfin, l'ensemble (kapton/source/kapton) est découpé sous forme d'un carré de dimension  $0.5\text{ cm}^2$ . La figure 3.10 montre la source  $^{22}\text{Na}$  sur le support de kapton. L'activité spécifique de la source utilisée est de  $40\ \mu\text{Ci}$ .

### Avantage de la source sodium ( $^{22}\text{Na}$ )

Dans les laboratoires de spectroscopie d'annihilation du positron, la source radioactive la plus utilisée est la source de sodium ( $^{22}\text{Na}$ ), car elle possède les avantages suivants [6] :

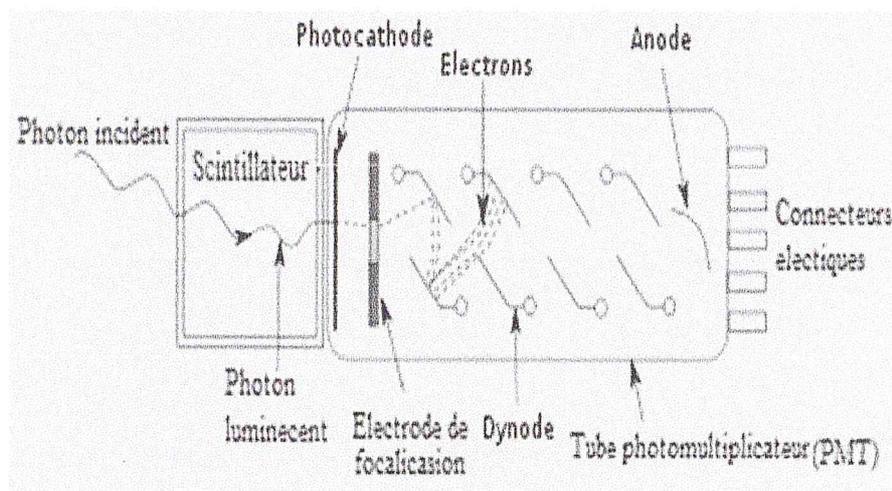


FIG. 3.5: Le principe de fonctionnement d'un photomultiplicateur.

- Emission quasi-simultanée d'un positron et d'un rayon gamma de  $1.28 \text{ MeV}$ .
- Période radioactive de  $2.6 \text{ ans}$ , permettant des mesures de longues durées.
- Activité spécifique élevée ( $2.5 \text{ mCi}$ ). (unité)
- Schéma de désintégration simple, les photons d'annihilation sont aisément distingués de ceux émis par le radio-isotope lui-même.

### 3.3 Réglage du spectromètre d'annihilation du temps de vie du positron

#### 3.3.1 Vérification de l'état des deux détecteurs

Dans cette expérience nous avons utilisé une source radioactive  $^{22}\text{Na}$  ( $3 \mu\text{Ci}$ ) préparée au niveau du laboratoire d'annihilation du positron du *CRNA*, pour tester les deux détecteurs. Chaque détecteur possède deux sorties, anode et dynode. De l'anode sort un signal négatif, destiné aux mesures temporelles, tandis que la sortie dynode amène un signal linéaire faible (positif) pour les mesures énergétiques. La dynode est la voie lente en revanche l'anode est la voie la plus rapide. Les connections entre les détecteurs et les modules électroniques de la chaîne de mesure se font par des câbles *BNC* de différentes longueurs.

Les détecteurs *START* et *STOP* sont polarisés avec des tensions négatives de  $-2387 \text{ V}$  et

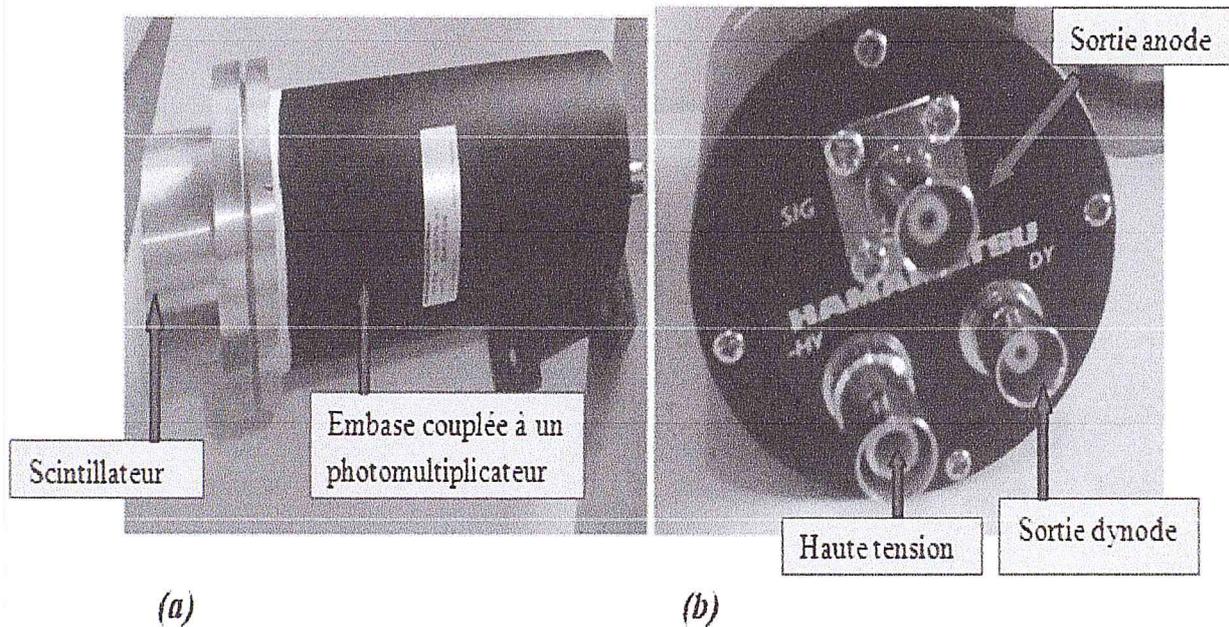


FIG. 3.6: Détecteur à scintillation : (a) l'embase couplée à un photomultiplicateur, (b) une entrée et deux sorties (anode, dynode).

$-2373\text{ V}$  respectivement. Les signaux (anodiques et dynodiques) sont visualisés à l'aide d'un oscilloscope rapide. Le signal dynode est amplifié avant sa visualisation sur l'oscilloscope. Les signaux bipolaires délivrés par les dynodes des détecteurs *START* et *STOP* seront utilisés pour sélectionner les énergies  $1.28\text{ MeV}$  (*START*) et  $0.511\text{ MeV}$  (*STOP*).

### 3.3.2 Tester des discriminateurs différentielles à fraction constante *CFDD*

Le signal anode est amené à l'entrée du *CFDD* dont la sortie est visualisée (observée) sur l'oscilloscope. Les *CFDD 583* de type *Ortec* n'acceptent que les signaux négatifs analogiques.

### 3.3.3 Tester du convertisseur temps-amplitude (*TCA*)

Le *TAC* n'accepte que des signaux positifs carrés d'amplitude visualisée sur un oscilloscope.

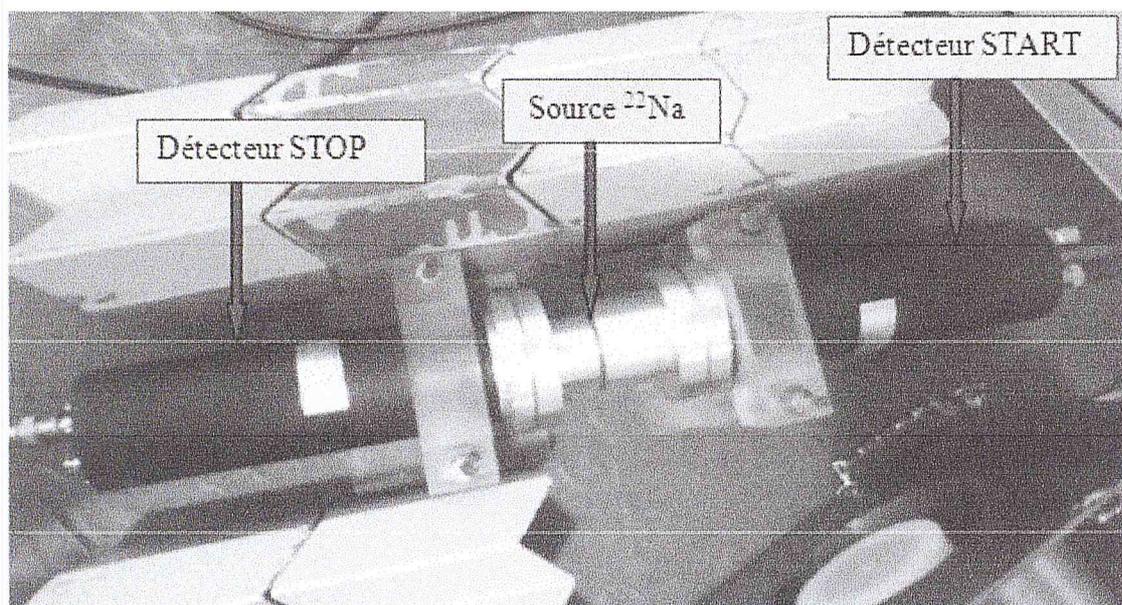


FIG. 3.7: Le principe de détection des positrons.

### 3.3.4 Optimisation des tensions de polarisation pour détecteurs (A et B)

Dans cette expérience nous allons procéder à l'étalonnage des deux scintillateurs. La courbe d'efficacité qui représente le nombre de coups enregistrés par les détecteurs à partir d'une source radioactive de  $^{60}\text{Co}$  (l'activité =  $10 \mu\text{Ci}$ ) en fonction de la tension de polarisation, On cherche dans cette expérience la tension optimale pour l'efficacité des deux détecteurs.

Les détecteurs ont été polarisés avec des tensions négatives variant de  $-1000 \text{ V}$  à  $-3000 \text{ V}$ .

Nous avons mesuré dans cette expérience le bruit de fond  $N'$  pour chaque détecteur sans source. Par la suite, la mesure du nombre de coups  $N$  a été faite pour chaque détecteur avec une source de cobalt ( $^{60}\text{Co}$ ). Enfin, on élimine le bruit de fond (dû aux détecteurs et expérimentateurs) comme suit :  $\Delta N = N - Nt$ .

Les signaux dynodiques pour chaque détecteur ont été visualisés sur un oscilloscope rapide de fréquence  $1\text{GHz}$ .

D'après la courbe d'efficacité, nous avons remarqué que la variation de fonctionnement du détecteur A est identique à la variation du détecteur B (tension dynodique).

– A partir de la courbe d'efficacité qui représente la variation de nombre de coups en fonction

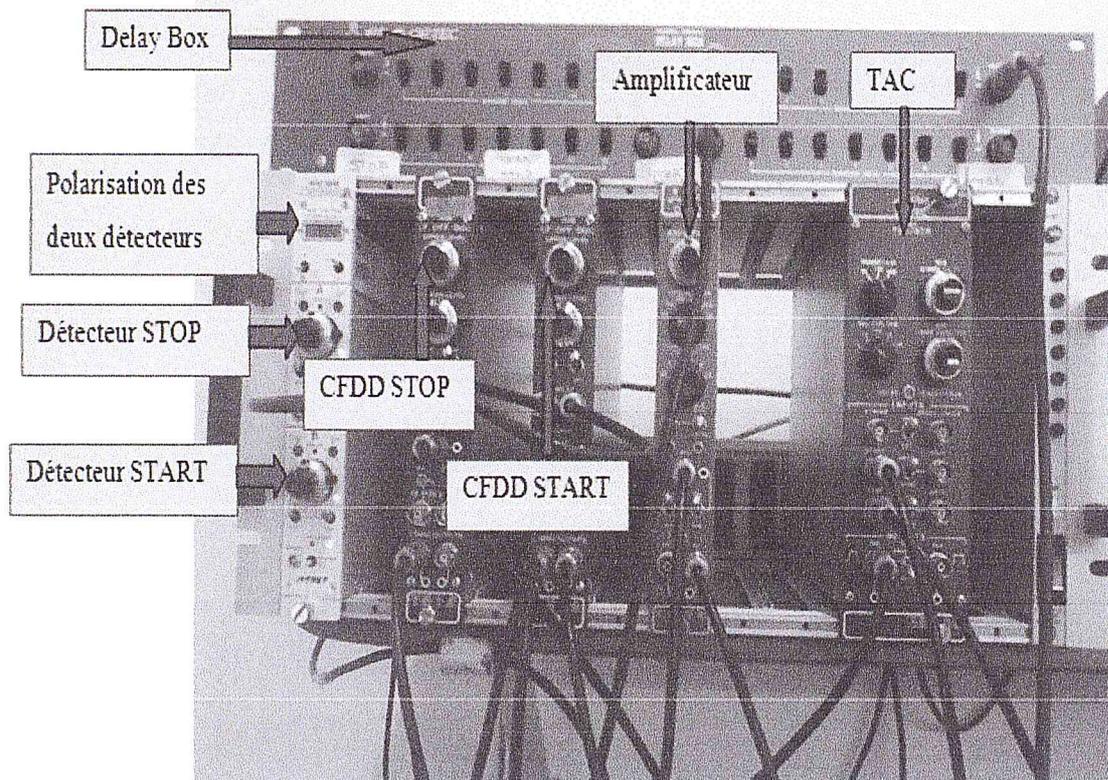


FIG. 3.8: les différents éléments du système électronique.

de la tension (négative), nous tirons les points suivants :

- Les deux détecteurs ne fonctionnent pas pour des tensions de :  $[-1000, -2220]$  V.
- Le palier d'efficacité de chaque détecteur (le bon fonctionnement du détecteur ou la tension optimale) pour des tensions de :  $[-2220, -2720]$  V.
- Les détecteurs ne fonctionnent pas (saturation) pour des tensions  $V > -2720$  V.

La tension de polarisation optimale choisit :  $V_A = -2373$  V et  $V_B = -2387$  V

Chaque détecteur est polarisé selon notre choix basé sur l'obtention d'un meilleur fonctionnement. Cette tension de polarisation est choisie parmi les points d'efficacité au moyen d'un oscilloscope dans le but de créer les deux vois *START* et *STOP* :

- *START* : permet seulement le passage des signaux qui correspond à la naissance du positron ( $1.28$  MeV).
- *STOP* : permet seulement le passage des signaux qui correspond à l'annihilation du positron ( $0.511$  MeV).

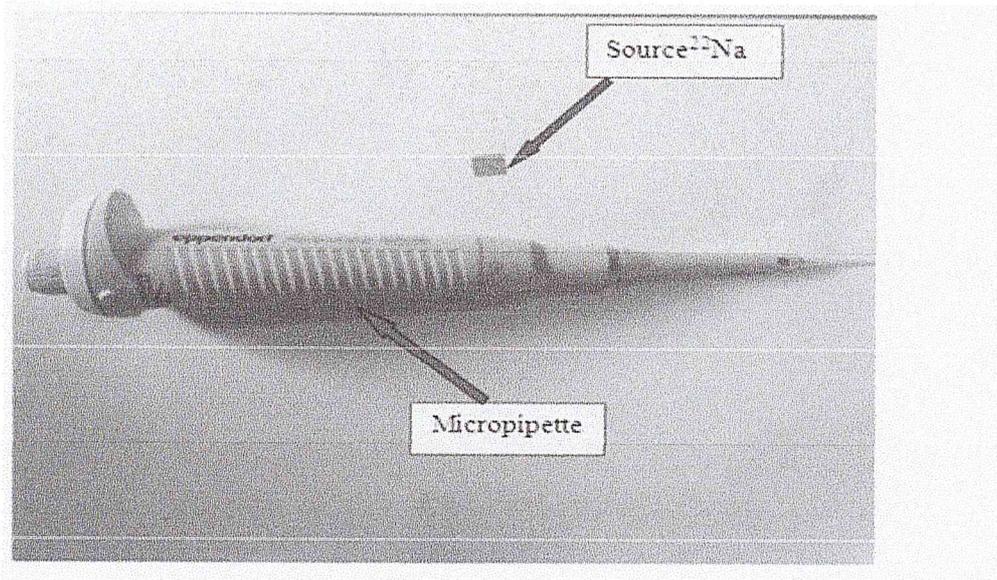


FIG. 3.9: Matériel utilisé lors de la préparation de la source.

La technique de mesure du temps de vie du positron est réalisée à l'aide :

De deux détecteurs à scintillations plastiques de type *ej 232* couplés à deux photomultiplicateurs de type *H3378-51* et deux embases.

D'un module électronique *CFDD 583* de type *Ortec*, un convertisseur amplitude-temps (*TAC*), une alimentation modèle *NHQ205M* et un *Delay Box* modèle *DB 463*

*A* : Détecteur *STOP* (petite dimension). *B* : Détecteur *START* (grande dimension).

### 3.3.5 La sélection des énergies *START* et *STOP*

**Méthode par oscilloscope** La sélection des énergies  $1.28 \text{ MeV}$  (*START*) et  $0.511 \text{ MeV}$  (*STOP*) se fait par le biais d'un analyseur monocanal (*SCA* : signal canal analyser) incorporé dans chaque *CFDD*. La sélection des énergies demandera de faire en premier la visualisation des signaux dynodiques relatifs aux détecteurs *START* et *STOP* en présence de la source de sodium ( $^{22}\text{Na}$ ). La figure 3.A.14, montre le signal visualisé sur l'oscilloscope que délivre la dynode du détecteur *START*. Ce signal comporte deux paquets énergétiques de  $1.28 \text{ MeV}$  et  $0.511 \text{ MeV}$ .

Dans les deux branches *START* et *STOP*, on fait donc cette sélection des énergies consiste à éliminer la contribution des énergies  $0.511 \text{ MeV}$  au signal dynodique du détecteur *START* et celle des  $1.28 \text{ MeV}$  au signal de la dynode du détecteur *STOP*. On sélectionne les deux énergies

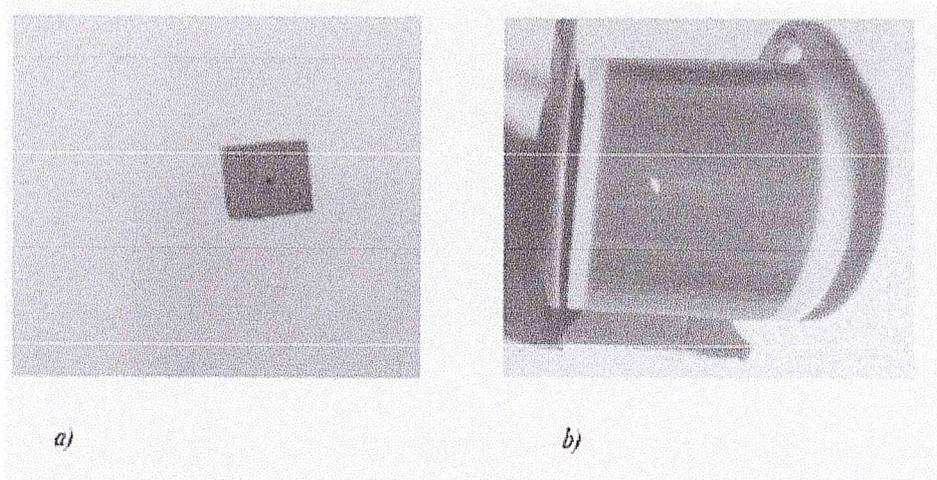


FIG. 3.10: a) Source  $^{22}\text{Na}$  avec support de kapton b) support de kapton.

1.28 MeV et 0.511 MeV tout en tenant en compte des *fronts Compton* d'énergies maximales de 1.06 MeV et 0.34 MeV, respectivement.

- Pour le signal *START*

L'amplitude visualisée sur l'oscilloscope est de 2.5 V.

$$1.28 \text{ MeV} \rightarrow 2.5 \text{ V}$$

$$0.7 \text{ MeV} \rightarrow x = 1.36 \text{ V}$$

On enlève jusqu'à 1.36 V d'amplitude pour éliminer toute énergie inférieure à 0.7 MeV.

- Pour le signal *STOP*

L'amplitude visualisée sur l'oscilloscope est de 1.40 V.

$$0.511 \text{ MeV} \rightarrow 1.40 \text{ V}$$

$$0.34 \text{ MeV} \rightarrow x = 0.93 \text{ V}$$

On enlève jusqu'à 0.93 V d'amplitude pour éliminer toute énergie inférieure à 0.34 MeV.

$$1.28 \text{ MeV} \rightarrow 3.92 \text{ V}$$

$$0.6 \text{ MeV} \rightarrow x = 1.83 \text{ V}$$

On diminue l'amplitude jusqu'à 1.83 V afin d'éliminer toute énergie supérieure à 0.6 MeV.

**Méthode par le comptage (*counter-time*)** Dans cette méthode, la sélection des deux énergies 0.511 MeV et 1.28 MeV ne se fait pas sur l'oscilloscope, pour cela nous avons utilisé un compteur « *counter-time* » modèle *Ortec 776*. Ce compteur mesure le nombre de coups qui correspond aux changements des fenêtres de *CFDD* (*START* et *STOP*). Le réglage des fenêtres

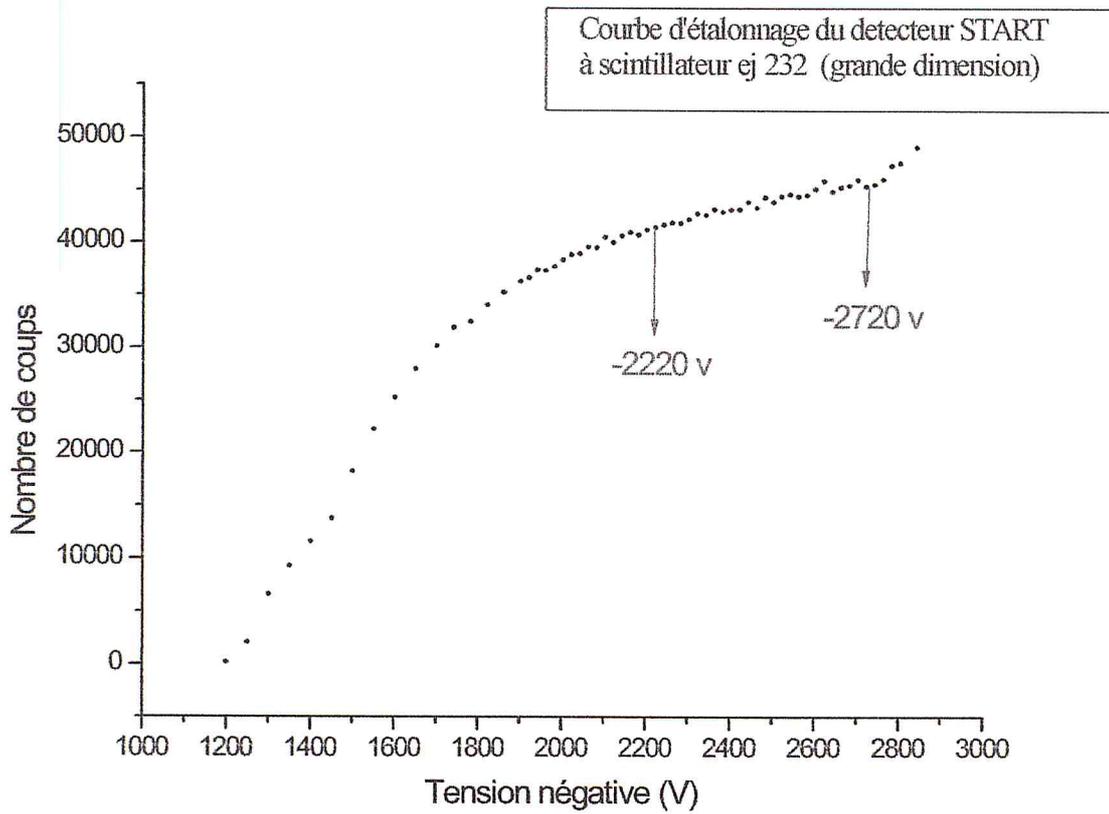


FIG. 3.11: La courbe d'efficacité du détecteur *START* (B).

au niveau des *CFDD* s'effectue à l'aide des potentiomètres *UPL* (*Upper Limit Level*) et *LLW* (*Lower Limit Level*) qui se trouvent au niveau de chaque détecteur. Pour chaque détecteur, la sortie du *CFDD* en provenance de la voie dynode est branchée à un compteur et un nombre de comptage est enregistré à chaque fois que *LLW* change. Ainsi, cette opération permet de reproduire le spectre énergétique de la source de  $^{22}\text{Na}$  et par conséquent de délimiter les régions des énergies  $1.28\text{ MeV}$  et  $0.511\text{ MeV}$  (figure 3.14). Une fois ces régions délimitées, les fenêtres des deux *CFDD* (*START* et *STOP*) sont ajustées, tenant compte, des valeurs respectives des *UPL* et *LLW*. De cette façon, seuls les énergies  $0.511\text{ MeV}$  et  $1.28\text{ MeV}$  sont détectées dans les branches *START* et *STOP* du spectromètre du positron. Cette opération est dénommée sélection des énergies.

Nous avons remarqué que la courbe contient deux pics correspondant aux énergies  $1.28\text{ MeV}$  et  $0.511\text{ MeV}$ . On s'intéresse à la région *START* (des énergies  $1.28\text{ MeV}$ ), donc nous éliminons la contribution d'énergies  $511\text{ keV}$ . La limite inférieure du paquet énergétique  $1.28\text{ MeV}$  (figure 3.15), correspond à une valeur *LLW* égale à  $2\text{ mV}$  et la limite supérieure à la valeur *UPL* =  $4.5$

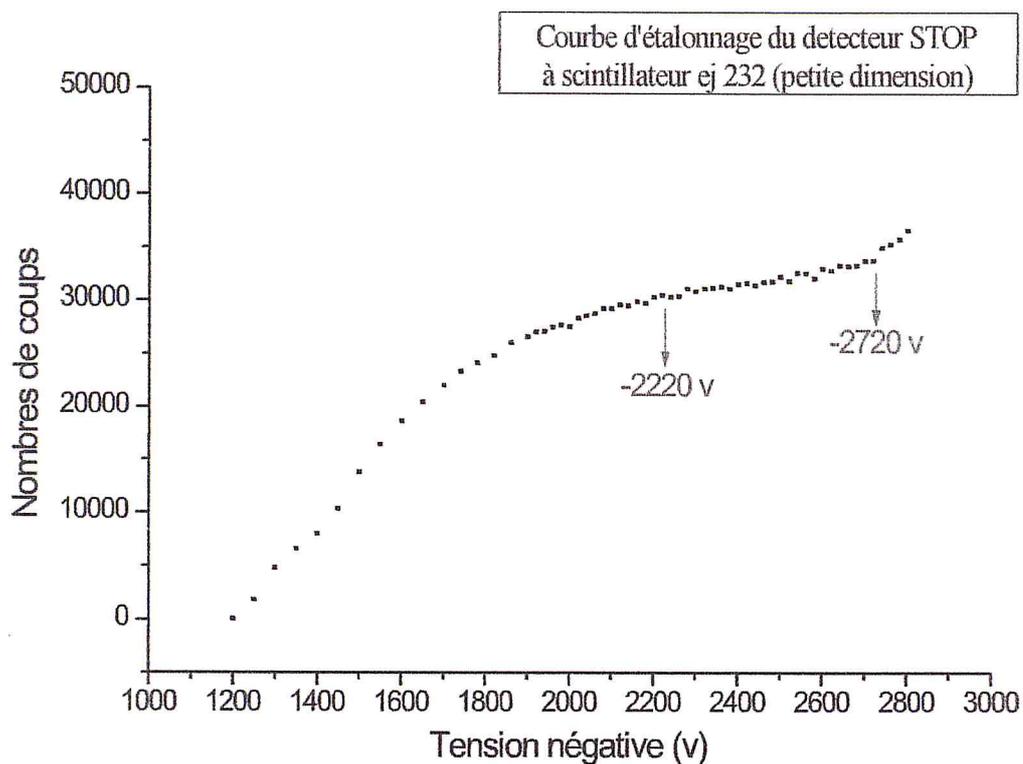


FIG. 3.12: La courbe d'efficacité du détecteur *STOP* (A).

*mV*.

La sélection des énergies dans la branche *STOP*, consiste à éliminer la contribution des énergies  $1.28 \text{ MeV}$  au signal de la dynode du détecteur *STOP*, dans ce cas nous nous intéressons au paquet des énergies  $511 \text{ keV}$ , à partir du spectre énergétique du spectre de la source  $^{22}\text{Na}$  en fonction d'*UPL* pour la voie *STOP* (voir la figure 3.16) qui prend une allure semblable à celle du détecteur *START*. Les valeurs des fenêtres de *LLW* et *UPL* du *CFDD STOP* sont respectivement égaux à  $0.7 \text{ mV}$  et  $1.1 \text{ mV}$ .

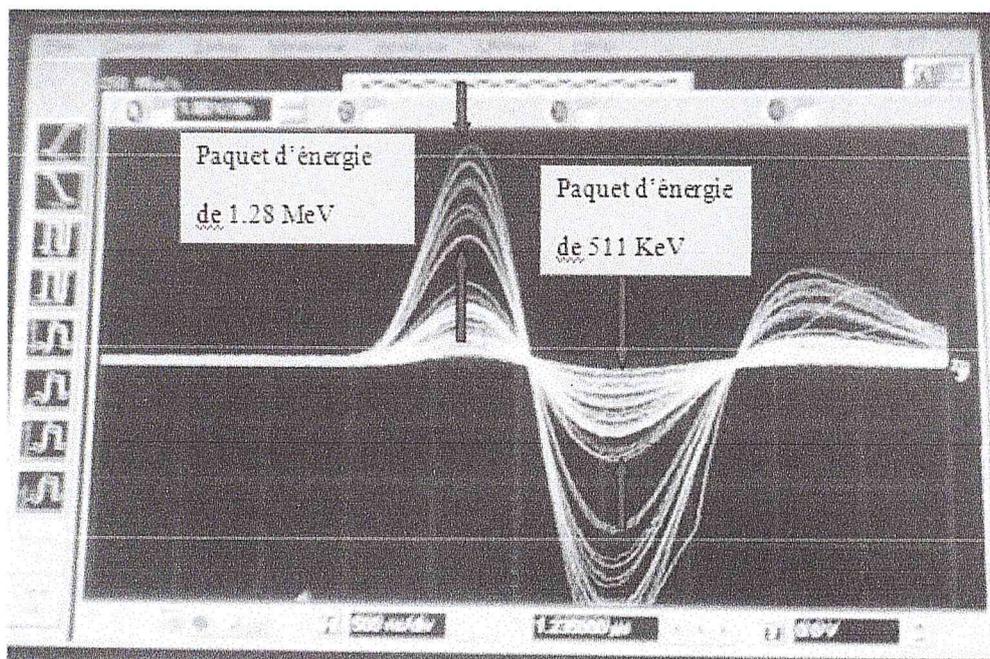


FIG. 3.13: Signal dynode du détecteur *START* avec les paquets d'énergie 1.28 *MeV* et 511 *KeV*.

### 3.4 La calibration du spectromètre du temps de vie du positron (la détermination de la résolution instrumentale « temporelle »)

Nous avons réglé les fenêtres des *CFDD START* et *STOP* puis nous avons relié par des câbles *BNC* les sorties de ces *CFDD* aux entrées *START* et *STOP* du *TAC*. La sortie du *CFDD START* arrive à l'entrée *START* du *TAC*, celle du *CFDD STOP* est connectée à une boîte de retard qui a pour but de décaler le spectre de temps de vie du positron dans une région linéaire du *TAC* et de retarder le signal *STOP* par rapport au signal *START*. Le signal *STOP* retardé est reçu à l'entrée *STOP* du *TAC* qui délivre alors un signal directement lié à l'entrée *ADC* de la carte d'acquisition *Maestro 32* incorporé dans le micro-ordinateur. Cette expérience s'effectue comme les mesures du temps de vie sauf que la source à positrons est remplacée par une autre de  $^{60}\text{Co}$  en l'absence d'échantillons. Le  $^{60}\text{Co}$  émet quasi-simultanément deux gamma d'énergie 1.17 et 1.33 *MeV* qui remplacent dans le circuit de coïncidence les photons 1.28 *MeV* et 0.511 *MeV*. Durant cette expérience de calibration des fenêtres des *CFDD START* et *STOP*

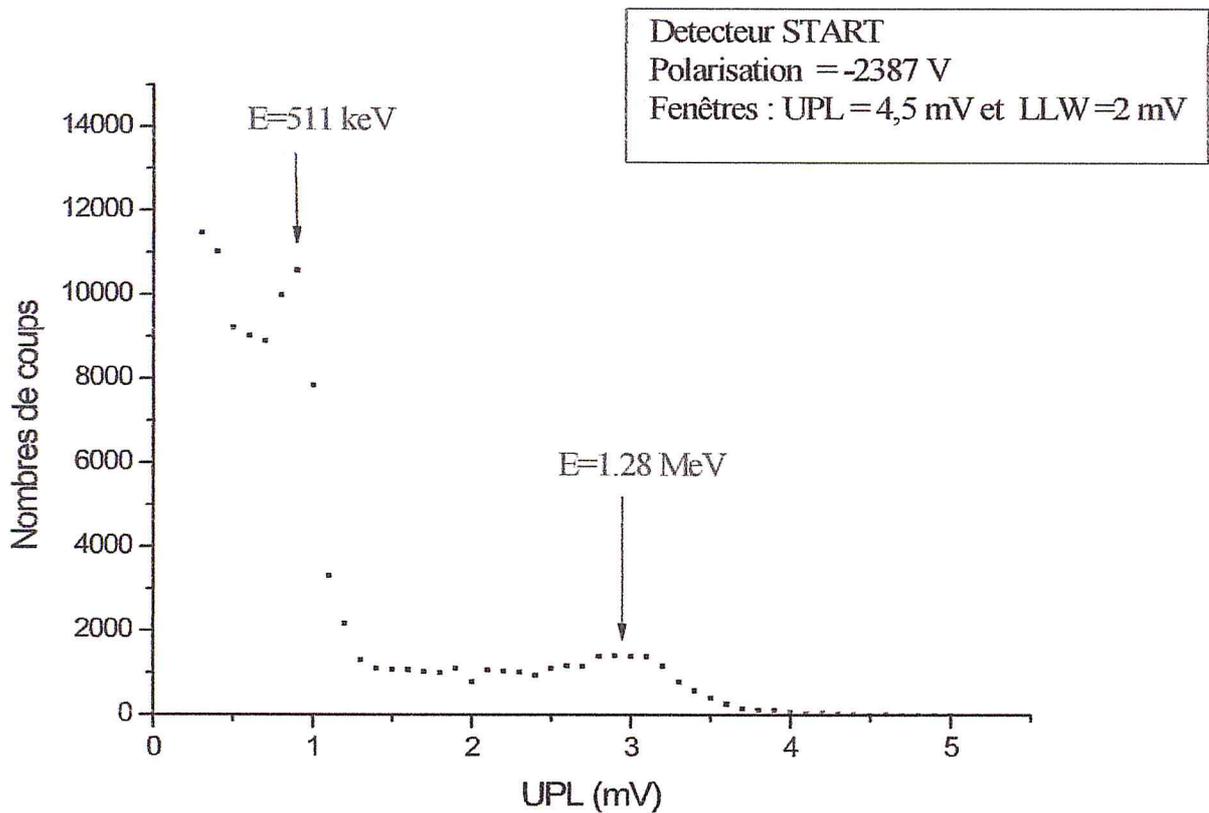


FIG. 3.14: Spectre énergétique de la source  $^{22}\text{Na}$  en fonction d' $UPL$  pour la voie  $START$ .

correspond au même réglage que celui effectué avec la source  $^{22}\text{Na}$  afin d'obtenir une bonne approximation de la courbe de résolution. La calibration consiste à déterminer la valeur de la résolution temporelle du spectromètre (contribution de la source) et de la valeur du canal en temps. Dans la branche  $STOP$  du spectromètre, nous avons inséré cinq valeurs de retard et collecté cinq gaussiennes qui représentent le maximum des événements de *coïncidence* des deux énergies  $1.17\text{ MeV}$   $1.33\text{ MeV}$ .

Les expériences de résolution en temps ont été faites pour plusieurs temps de retard (2, 6, 8, 10 et  $12\text{ ns}$ ) du signal  $STOP$ , le retard inséré est optimisé de façon à avoir la meilleure résolution du système. L'acquisition des spectres a été faite sur la carte d'acquisition.

Afin de calculer la fonction de résolution temporelle et aussi la valeur du canal en temps à partir des cinq gaussiennes collectées pour les temps de retard de 2, 6, 8, 10 et  $12\text{ ns}$ . Nous adoptons la marche suivante : On calcule les valeurs des largeurs à mi-hauteurs des deux gaussiennes  $\Delta Ch$  puis la valeur du canal en temps  $T_0$  qui est égale au rapport :

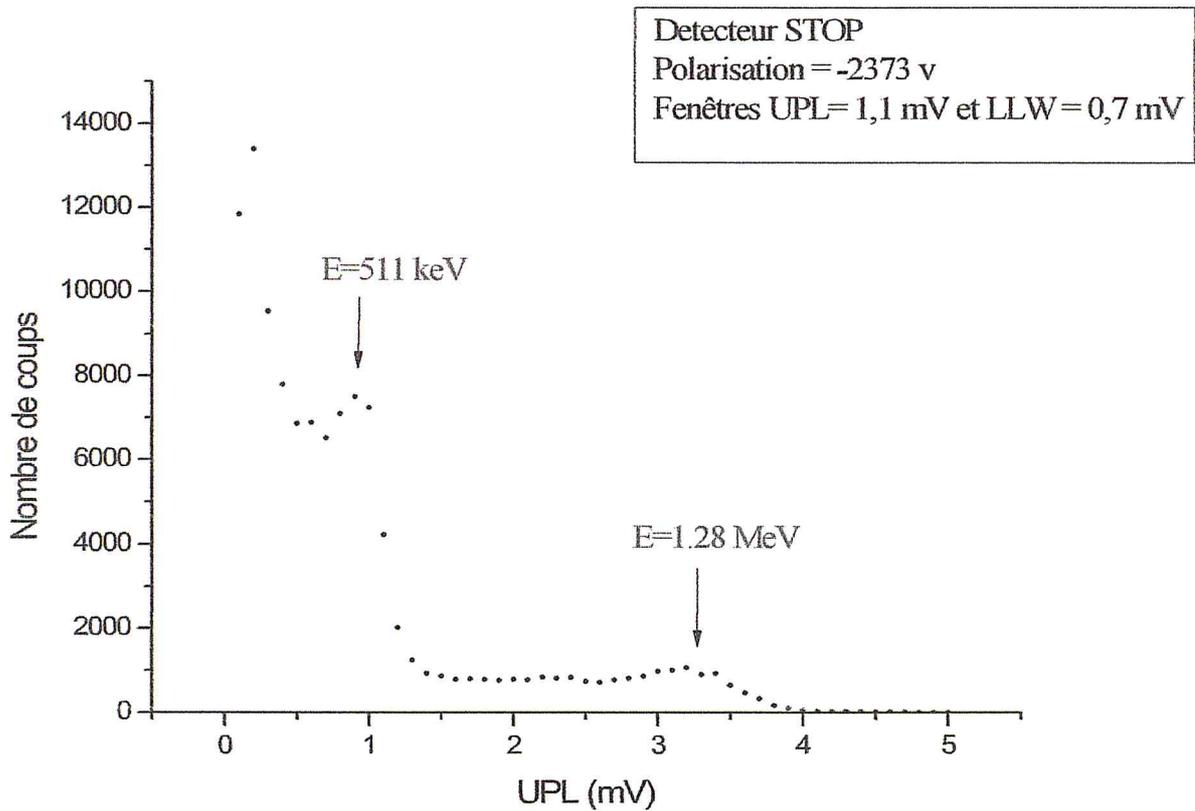


FIG. 3.15: Spectre énergétique de la source  $^{22}\text{Na}$  en fonction d' $UPL$  pour la voie  $STOP$ .

$$T_0 = \frac{\Delta t}{\Delta Ch_{\max}} \quad (3.1)$$

$\Delta t$  : Représente la différence des temps de retard insérés.

$\Delta Ch_{\max}$  : Représente la différence des canaux qui correspondent au maximum de coups dans les deux gaussiennes.

Les étapes de calcul sont les suivantes :

- *Première gaussienne* : le temps de retard vaut  $2/900$  ns :

$Ch_{\max 1} = 225$ ; Nombre de coups = 1540 Coups;  $\frac{1540}{2} = 770$  coups.

$$\left. \begin{array}{l} Ch_1 = 223 \\ Ch_2 = 227 \end{array} \right\} \rightarrow \Delta Ch = 4$$

- *Deuxième gaussienne* : le temps de retard vaut  $6/900$  ns :

$Ch_{\max 2} = 306$ ; Nombre de coups = 1640 Coups;  $\frac{1640}{2} = 820$  coups.

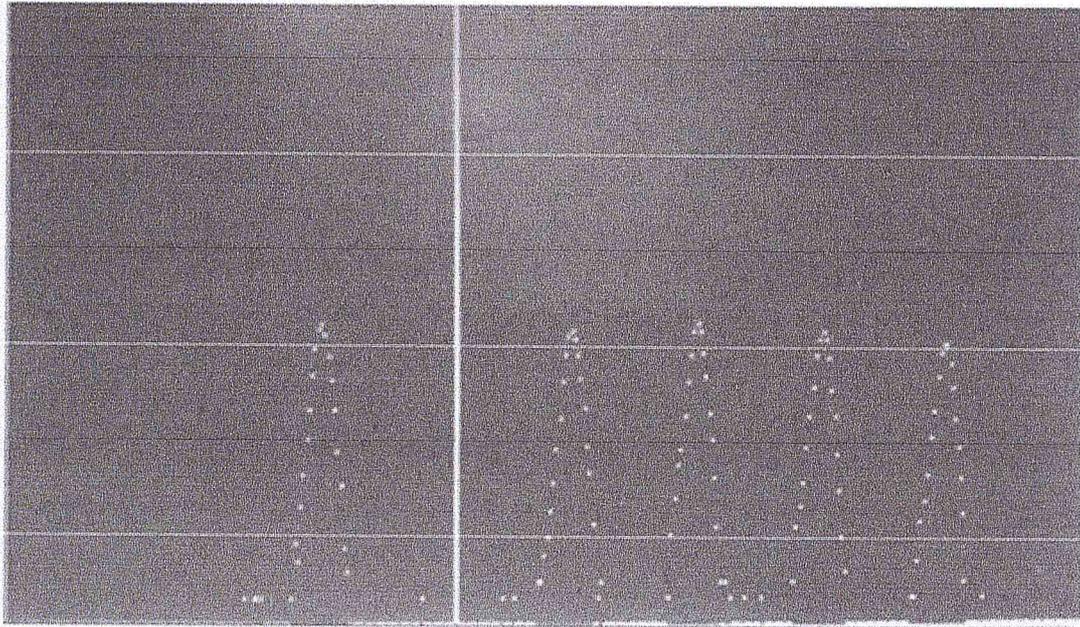


FIG. 3.16: Courbe des cinq gaussiennes de notre calibration.

$$\left. \begin{array}{l} Ch_1 = 304 \\ Ch_2 = 308 \end{array} \right\} \rightarrow \Delta Ch = 4$$

- *Troisième gaussienne* : le temps de retard vaut  $8/900 \text{ ns}$  :

$$Ch_{\max 3} = 347; \text{ Nombre de coups} = 1697 \text{ Coups}; \frac{1697}{2} = 850 \text{ coups.}$$

$$\left. \begin{array}{l} Ch_1 = 345 \\ Ch_2 = 349 \end{array} \right\} \rightarrow \Delta Ch = 4$$

- *Quatrième gaussienne* : le temps de retard vaut  $10/900 \text{ ns}$  :

$$Ch_{\max 4} = 387; \text{ Nombre de coups} = 3477 \text{ Coups}; \frac{3477}{2} = 1738.5 \text{ coups.}$$

$$\left. \begin{array}{l} Ch_1 = 388 \\ Ch_2 = 389 \end{array} \right\} \rightarrow \Delta Ch = 4$$

- *Cinquième gaussienne* : le temps de retard vaut  $12/900 \text{ ns}$  :

$$Ch_{\max 4} = 428; \text{ Nombre de coups} = 1525 \text{ Coups}; \frac{1525}{2} = 762.5 \text{ coups.}$$

$$\left. \begin{array}{l} Ch_1 = 426 \\ Ch_2 = 430 \end{array} \right\} \rightarrow \Delta Ch = 4$$

La valeur d'un canal temps  $T_0$  :

$$T_0 = \frac{\Delta t}{\Delta Ch_{\max}} = \frac{t_2 - t_1}{Ch_{\max 2} - Ch_{\max 1}} = \frac{8-6}{347-306} = \frac{2}{41} = 0.04878 \text{ ns/Ch.}$$

La résolution temporelle du spectromètre (la largeur à mi-hauteur) :

$$FWHM = T_0 \times \Delta Ch = 0.04878 \times 4 = 0.195 \text{ ns}$$

Les paramètres expérimentaux déduits à partir de ces courbes sont :

Le canal en temps  $T_0$  qui est égal à  $0.04878 \text{ ns/Channel}$ .

La résolution temporelle (la largeur à mi-hauteur)  $FWHM$  est de  $195 \text{ ps}$ .

Nous avons assimilé ces valeurs comme des paramètres de calibration qui vont être injectées lors de l'analyse des spectres de temps de vie du positron.

### 3.4.1 Droite de calibration (la pente de calibration $T_0$ )

Dans cette étape, on doit déterminer la valeur d'un canal en temps  $T_0$ , avec une deuxième méthode qui consiste à trouver la valeur du canal maximal pour chaque temps de retard (2, 6, 8, 10 et 12 ns) inséré dans la branche *STOP* du spectromètre. Par la suite, on va tracer la droite de calibration qui est la variation de temps en fonction de canal. Enfin, on détermine la pente de cette droite qui est la valeur du canal en temps égale à  $0.04899 \text{ ns/canal}$ .

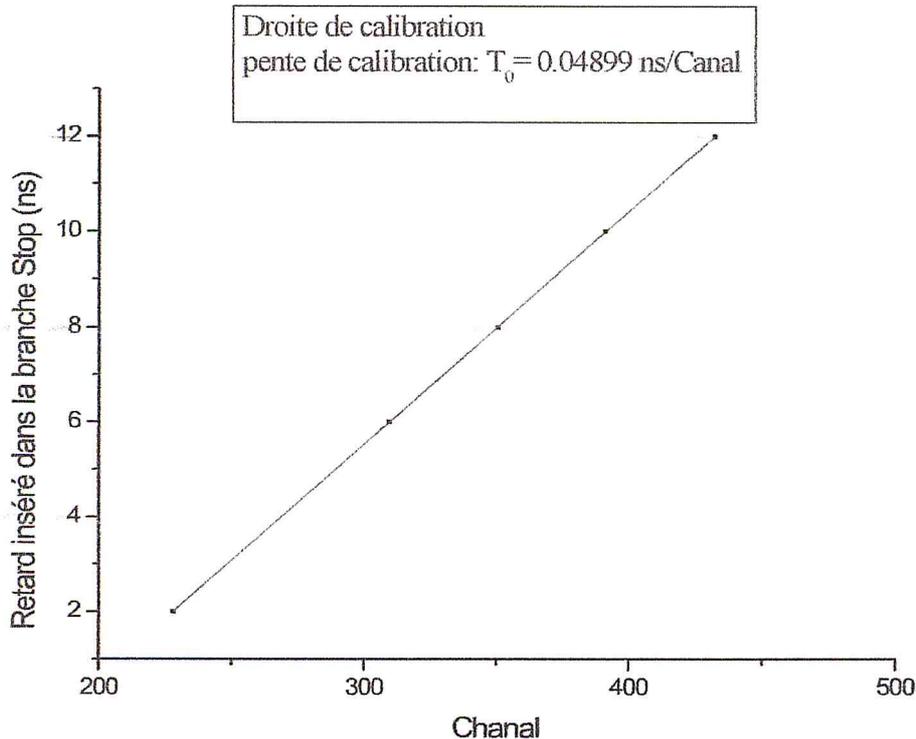


FIG. 3.17: Calibration du spectromètre : valeur d'un canal en temps.

## Deuxième partie

spectres de temps de vie de silicium et  
de polymère de *CR39* :

### 3.5 Simulation

Le programme de simulation utilisé pour l'analyse des spectres de temps de vie des positrons est : *LT\_92*. Dans ce logiciel tous les paramètres obtenus ( $T_0$ , *FWHM* et correction de source) sont fixés. Le nombre de composantes du temps de vie d'un matériau étudié dépend des défauts existants et leurs intensités. Ainsi, on calcule les composantes du temps de vie du positron et leurs intensités respectives avant et après correction de source.

### 3.6 Préparation des échantillons pour la *PALS*

Dans le but d'effectuer les mesures de *PALS*, la source de *sodium* ( $^{22}\text{Na}$ ) est placée en sandwich entre deux échantillons identiques de types *CR39* ou Silicium standard. L'ensemble (échantillon/source/échantillon) est par la suite fixé sur un support en cuivre (figure 3.18) qui contient un orifice circulaire de  $0.5\text{ cm}$  de diamètre et ce pour permettre au *gamma* d'annihilation propres à l'échantillon d'être détectés.

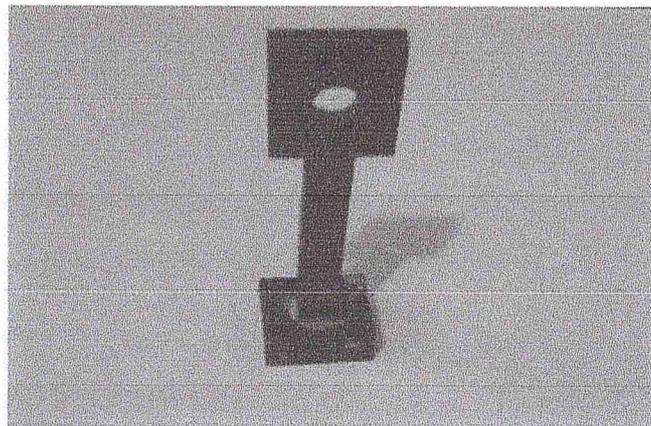


FIG. 3.18: Porte échantillon utilisé dans les expériences du temps de vie du *positron*.

Avant de commencer de faire une acquisition d'un spectre de temps de vie du positron sur un échantillon étudié, on doit faire la collection d'un spectre de temps de vie du positron pour un échantillon standard connu. Dans notre cas, nous avons réalisé l'acquisition d'un spectre à un million de canaux pour le *silicium* ( $\tau = 218\text{Ps}$ ) utilisé comme standard.

### 3.7 Influence de la résolution

En pratique, la technique du temps de vie exige une précision dans la mesure de l'écart de temps séparant la naissance du positron de son annihilation. Pour cela, on utilise une représentation mathématique qui permet de corriger par le calcul le spectre de résolution expérimental. En fait, on construit la convolution de la courbe de résolution  $R(t)$  et d'un nombre fini d'exponentielles représentant chacune une composante de temps de vie :

$$N(t) = R(t) \times \sum_{i=1}^n N_{0i} e^{-\lambda_i t} + B \quad (3.2)$$

La courbe de résolution du spectromètre  $R(t)$  peut être approximée adéquatement par une seule gaussienne ou par la somme de deux ou trois gaussiennes.

$B$  : Bruit de fond considéré comme constant.

$\lambda_i$  : Constante de décroissance propre à la population du positron « $i$ ».

L'analyse du spectre de temps de vie mesuré consiste en premier lieu à calculer les valeurs  $N(t)$  théoriques en présumant certains paramètres physiques et en supposant déjà connu la courbe  $R(t)$ . Ces valeurs calculées sont alors comparées aux données expérimentales. Le calcul est continu jusqu'à obtention d'un bon accord statistique entre le spectre théorique et celui expérimental. Le résultat final est une estimation rigoureuse des intensités  $I_i$  et taux de désintégration  $\lambda_i$  qui dépendent fortement de la fonction  $R(t)$  utilisée.

### 3.8 Analyse des spectres du temps de vie du positron

Le spectre expérimental du temps de vie  $N(t)$ , représente la probabilité d'annihilation du positron à un temps  $t$ . Il est constitué des composantes de déclin exponentielles qui sont données par la relation suivante :

$$N(t) = \frac{-dn(t)}{dt} = \sum_i \frac{I_i}{\tau_i} e^{-\frac{t}{\tau_i}} \quad (3.3)$$

$N(t)$  : Population du positron dans différents états à l'instant  $t$ .

$\tau_i$  : Temps de vie caractéristique de l'annihilation dans l'état  $i$ .

$I_i$  : Intensités correspondantes.

L'équation 3.1 nous montre que le spectre expérimental est la somme du bruit de fond et

du produit de convolution de la distribution statistique des annihilations en fonction du temps. La fonction de résolution  $R(t)$  a la forme d'une gaussienne (figure 3.19) [7].

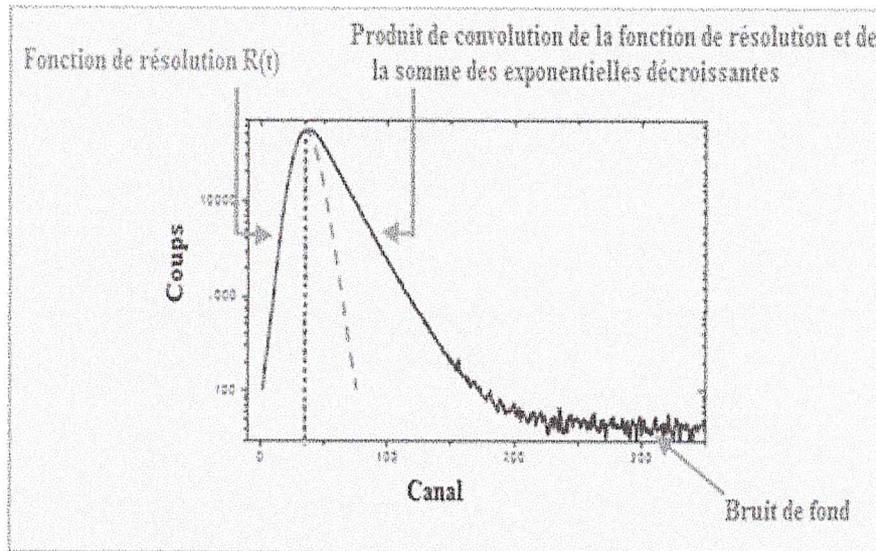


FIG. 3.19: spectre de temps de vie du positron.

Pour faire notre simulation, nous avons utilisé le logiciel *LT.9* (life time version 9) dans le but de réaliser notre analyse des spectres du temps de vie du positron. Avant de déduire les temps de vie du positron pour un échantillon étudié, il faut d'abord déterminer la contribution de la source de *sodium* ( $^{22}\text{Na}$ ) au spectre de temps de vie. Cette contribution est double : la première est liée à l'annihilation des *positrons* dans le support de la source (*kapton*), la seconde à l'annihilation des positrons dans le sel de *sodium* ( $^{22}\text{Na}$ ). L'épaisseur du kapton ainsi que la quantité de sel déposé sont deux paramètres qui influent sur la fraction d'annihilation des positrons dans la source. Afin de déterminer cette contribution, on a utilisé un échantillon sans défauts qui est le *silicium* car il est disponible et on connaît son temps de vie unique  $\tau = 218 \text{ Ps}$ ). Une fois acquis le spectre de temps de vie du positron de l'ensemble (*silicium*/*source*/*silicium*), on procède à son analyse par le logiciel *LT.9*.

TAB. 3.1: Temps de vie caractéristiques de la source et sa contribution au spectre du temps de vie du positron.

Composante de la source <sup>22</sup> <i>NaCl</i>	Temps de vie caractéristique ( <i>ns</i> )	Contribution (%)
$\tau_K$	0.3820	30.7216 (%)
$\tau_S$	2.0646	

### 3.9 Analyse du spectre de calibration : correction de source

Après avoir soustrait le bruit de fond du spectre expérimental, le programme calcule un spectre théorique à partir des données introduites par l'utilisateur : *FWHM*, nombre de composantes  $\tau_i$  (éventuellement leurs valeurs) et les composantes de la source (temps de vie et intensités associées). Il compare alors le spectre expérimental à celui théorique et par itérations successives, recherche le spectre théorique le mieux ajusté. La décomposition d'un spectre de temps de vie dépend essentiellement du nombre de composantes dans le spectre de résolution et des statistiques de mesures [7]. Le choix du canal à partir duquel on commence l'analyse est très important ( l'analyse à partir de 25%, puis 50% du spectre du temps de vie de positron a donné un mauvais fit avec une résolution très élevée). Une bonne décomposition serait de commencer l'analyse en prenant 75% de la partie droite du spectre du temps de vie du positron. Un exemple de spectre de calibration de l'échantillon *Si* après l'extraction de la contribution de la source a été analysé par trois composantes de temps de vie du positron ( $\tau_1, \tau_2, \tau_3$ ) qui sont clairement traduites sur la figure 3.19 par trois déclin exponentielles. Il est bien connu qu'un bon fit est caractérisé par une variance proche de 1. La figure 3.20 montre le spectre de temps de vie du positron.

Les résultats de l'analyse du spectre de *silicium*, après correction de source sont listés ici-bas.

Dans cette étape nous avons analysé le spectre de *silicium* puis extrait le taux de contribution de la source de l'ordre de 30.7216%.  $\tau_K$  et  $\tau_S$  sont les deux composantes de temps de vie caractéristiques du *kapton* et du sel. En fait, leurs valeurs et intensités respectives sont mentionnées sur le tableau suivant :

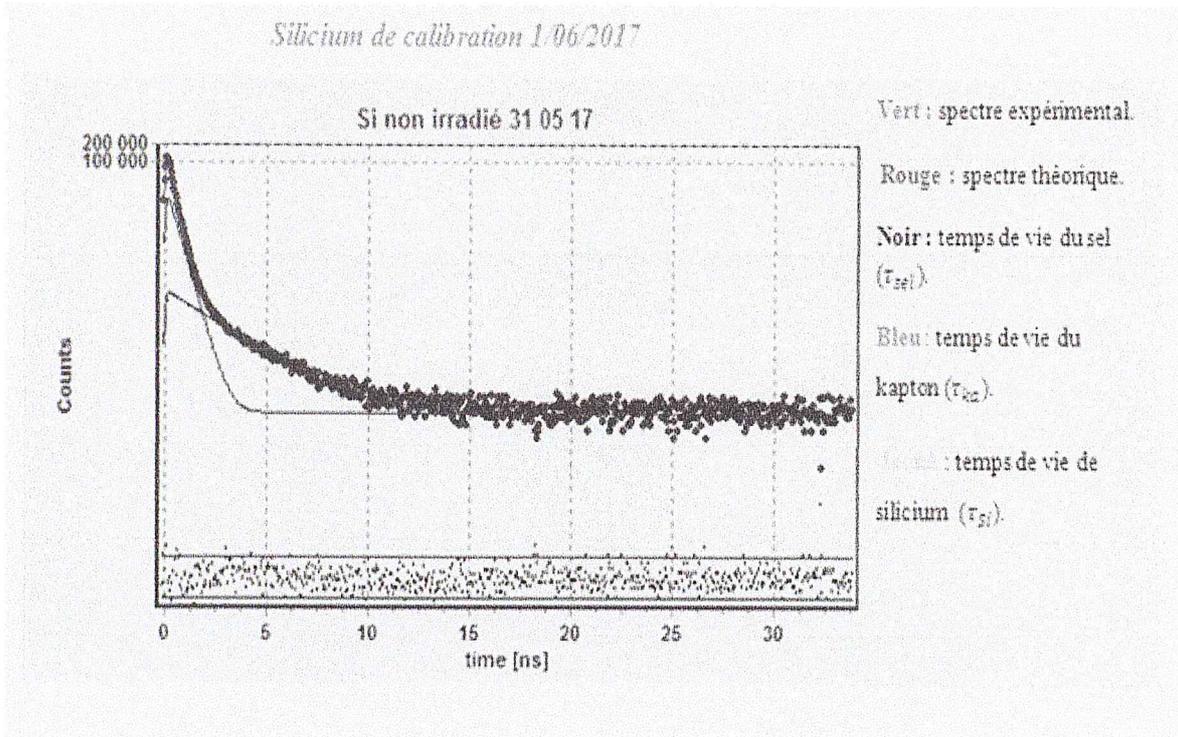


FIG. 3.20: Spectre de l'analyse du temps de vie du positron de l'échantillon de *silicium* : spectre de calibration (correction de la source).

### 3.10 Irradiation *alpha* et analyse des spectres de temps de vie du *CR39* :

#### 3.10.1 Irradiation de *CR39* par les particules *alpha*

Pour la préparation des notre échantillons on a utilisé un film de *CR39* d'épaisseur  $500 \mu m$ . Le découpage du film a été fait par un appareil Laser qui a permis d'avoir des échantillons de dimensions  $1cm \times 1cm$ .

L'irradiation des échantillons de *CR39* par les particules *alpha* a été faite au niveau du centre de recherche nucléaire Draria (*CRND*). Cette irradiation se fait par l'utilisation d'une source d'américium  $^{241}Am$  d'activité  $5 \mu Ci$  ( $T_{\frac{1}{2}} = 432ans$ ) possédant une énergie  $E_{\alpha} = 5 MeV$ .

Le flux incident est calculé par la formule suivante :

$$\Phi = \frac{A_c}{4\pi r^2} \quad (3.4)$$

Si non irradié 31 05 17				
Analysed between channels 305 and 1000. Calibration=0.04899 ns/chann.				
Total counts=1082922		Bkgr./signal=0.52%		
Fit's variance =1.0471		Date: 04/06/2017 15:01:11		
SAMPLE:				
intensities [%]	lifetimes [ns]	dispersions [ns]		
100.0000	0.218(0.016)	0.0000		
SOURCE :				
contribution	30.7216 [%]			
intensities [%]	lifetimes [ns]			
90.1500	0.3820			
9.8500	2.0646			
ZERO CHAN.	307.454(0.014)	BACKGROUND	8.15(0.36) [Counts]	
RESOLUTION CURVE :				
ESG fract. (%)	Shift (chnns)	FWHM (ns)	tau(left) (ns)	tau(right) (ns)
100.0000	0.0000	0.1966	0.0000	0.0000

FIG. 3.21: Résultats d'analyse du spectre de *silicium*.

$r$  : Distance source-échantillon *CR39*.

$A_c$  : l'activité de la source  $^{241}\text{Am}$  en *Bq* (*des/s*).

Si  $r = 1 \text{ cm}$  on trouve  $\Phi = 1.4729 \times 10^4 \text{ des/s}$ .

Pour modérer l'énergie, nous avons utilisé des collimateurs de différentes longueurs. Le calcul du parcours des particules alphas dans le *CR39* a été fait au moyen du code *SRIM*. Nous avons utilisé des échantillons irradiés à des énergies 1.5, 2.5 et 4.5 *MeV*. Analyse du spectre du *CR39* non irradié

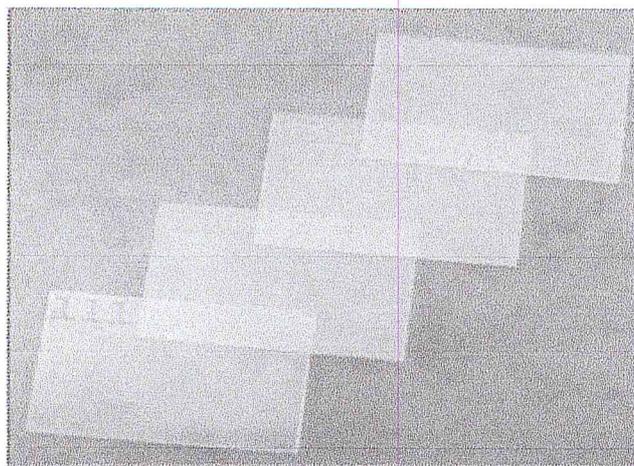


FIG. 3.22: Échantillons de *CR39*.

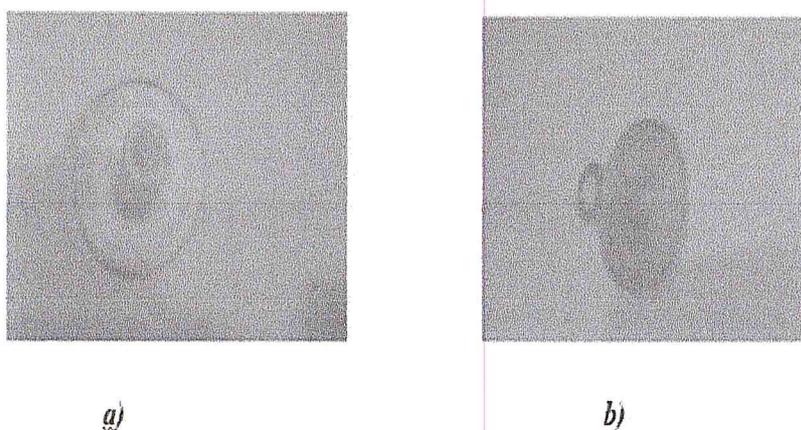


FIG. 3.23: Le collimateur : a) vue de face ; b) vue de coté.

### 3.10.2 Analyse du spectre du *CR39* non irradié

Avant d'exploiter les spectres de temps de vie correspondants aux échantillons *CR39* irradiés, nous avons en premier analysé à l'aide du logiciel *LT.9*, le spectre *PALS* du *CR39* avant irradiation. Ceci nous permettra de distinguer l'effet des irradiations sur la valeur et l'intensité de la fraction ortho-positronium qui s'est formé dans le volume libre du *CR39*.

La décomposition des spectres a été faite avec trois composantes du temps de vie du positron ( $\tau_1, \tau_2, \tau_3$ ). La plus courte  $\tau_1$  possédant une intensité  $I_1$ , a été attribuée à l'annihilation du para-positronium (*p-Pos*); la composante intermédiaire  $\tau_2$  ayant une intensité  $I_2$  est due à l'annihilation du *positron libre*. La plus longue composante,  $\tau_3$  avec l'intensité  $I_3$  est le résultat

de l'annihilation *pick-off* de l'ortho-positronium (*o-Ps*) dans le volume libre du polymère [23-24]. Cette longue composante est très sensible aux changements structuraux de ce polymère. En effet, le temps de vie de l'*o-Ps* est directement corrélé avec la taille des trous du volume libre, tandis que son intensité contient l'information sur la concentration des trous du volume libre [23-24]. Pour chaque énergie d'irradiation du *CR-39*, nous avons extrait, à partir des spectres, la valeur du temps de vie de l'*o-Ps*. Le comportement de l'*o-Ps* sera discuté en fonction de l'irradiation.

A partir du spectre de temps de vie du positron dans le *CR39* non irradié (Figure 3.24), nous avons extrait les trois composantes :  $\tau_1 = 0.190 ns$  correspondant au temps de vie du *p-Ps*,  $\tau_2 = 0.420 ns$  attribué au temps de vie du positron libre et  $\tau_3 = 1.790 ns$  est le temps de vie de la fraction ortho-positronium. Ces composantes possèdent les intensités suivantes :  $I_1 = 32.82\%$  pour  $\tau_1$ ,  $I_2 = 46.53\%$  pour  $\tau_2$  et  $I_3 = 20.65\%$  pour  $\tau_3$ .

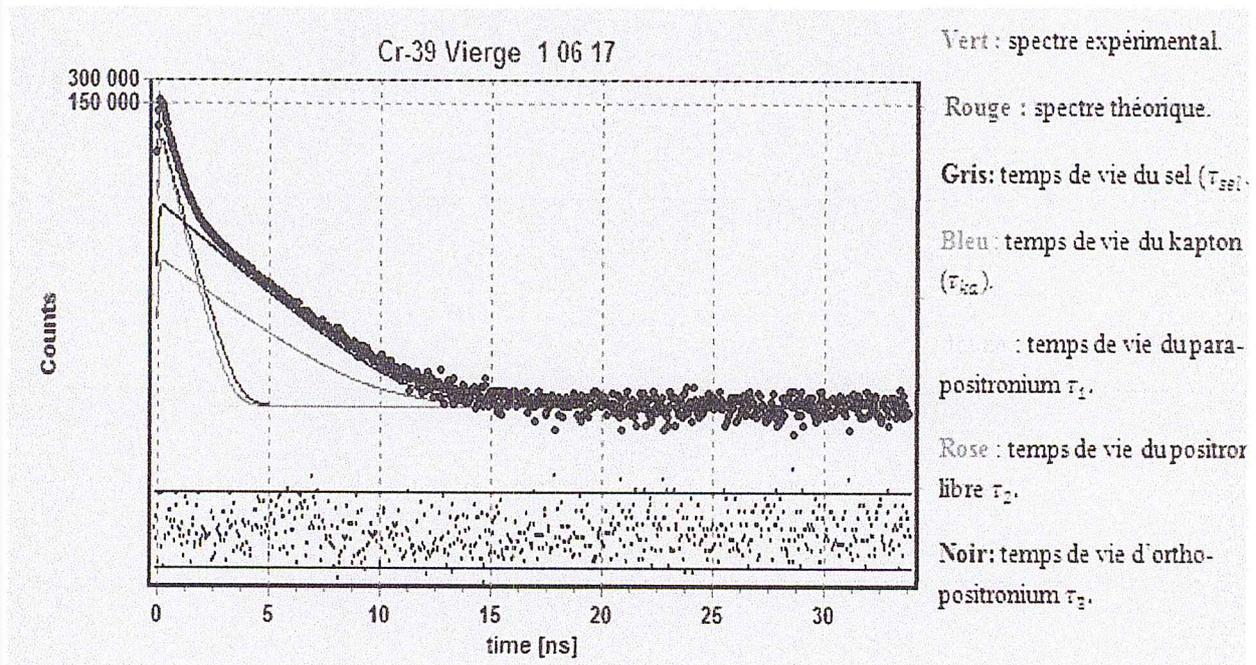


FIG. 3.24: Spectre du temps de vie du positron du *CR39* non irradié.

### 3.10.3 Analyse des spectres du CR39 pour différentes énergies d'irradiation

Les figures 3.25, 3.26 et la figure 3.27, représentent les spectres du temps de vie du positron de nos échantillons *CR39* irradié avec des énergies 1.5 MeV, 2.5 MeV et 4.5 MeV respectivement.

L'analyse a été toujours faite par le logiciel *LT9.2*.

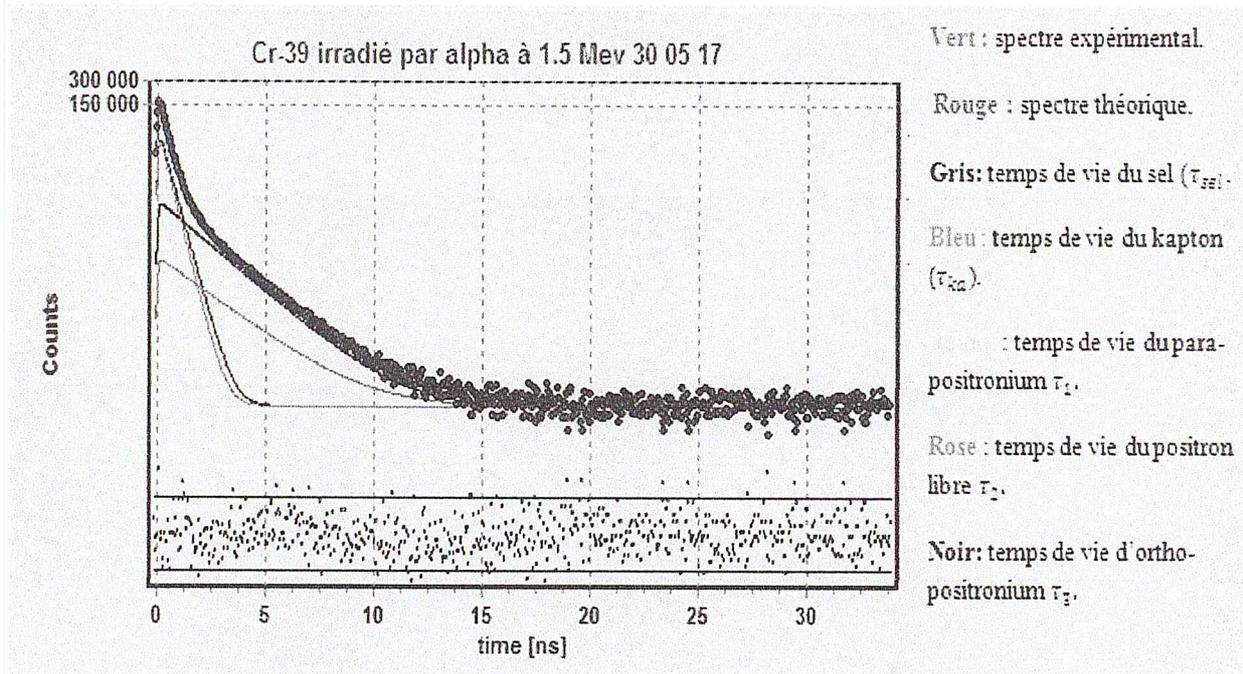


FIG. 3.25: Spectre du temps de vie du positron du *CR39* irradié à l'énergie  $1.5 \text{ MeV}$ .

Dans notre étude, nous nous intéressons, en particulier à l'évolution de la composante du temps de vie  $\tau_3$  de l'ortho-positronium qui peut donner une information sur le changement du volume libre suite aux irradiations. La figure 3.28 montre l'évolution de  $\tau_3$  ( $ns$ ) en fonction de l'énergie des particules alphas pour tous les échantillons. Aussi, le tableau 3.19 récapitule les valeurs de  $\tau_3$  et leurs intensités correspondantes  $I_3$ .

D'après la courbe 3.28, qui représente l'évolution du temps de vie de la fraction ortho-positronium en fonction de la fluence des alphas, on constate la remarque suivante :

On observe une rapide augmentation de la valeur du  $\tau_3$  qui passe de  $1.790 \text{ ns}$  pour  $0 \text{ MeV}$  (échantillon non irradié) à une valeur de  $1.8 \text{ ns}$ , pour une énergie d'irradiation de  $4.5 \text{ MeV}$ .

Plusieurs travaux ont montré que, le changement du volume libre dans les polymères, est géré par les phénomènes de scission et réticulation des chaînes [25]. Dans notre cas, l'augmentation peut être due au phénomène de scission des chaînes qui cause une augmentation du volume libre. Afin d'estimer le rayon  $R$  et le volume libre moyens dans le polymère *CR39*, nous avons utilisé le modèle de *Tao-Eldrup*, en approximation sphérique, donné par la relation suivante

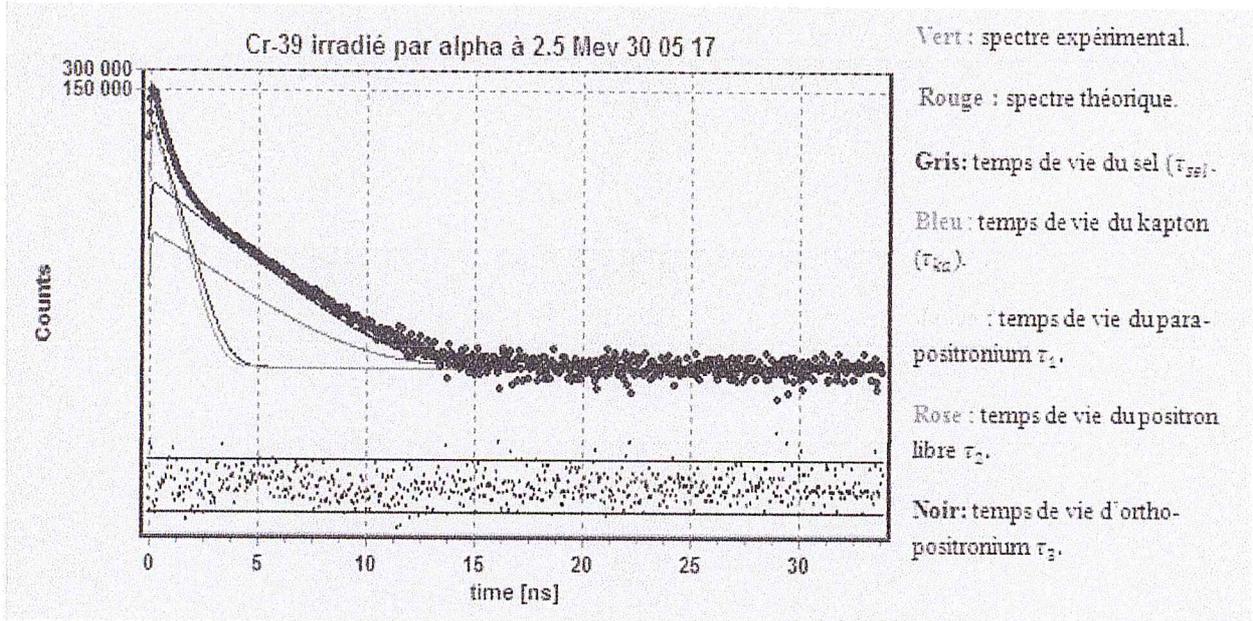


FIG. 3.26: Spectre du temps de vie du *positron* du *CR39* irradié à l'énergie 2.5 *MeV*.

TAB. 3.2: Les temps de vie du positron  $t_3$  et les intensités respectives  $I_3$  des échantillons de *CR39* irradiés à différentes énergies.

Echantillons	$\tau_3(ns)$ ( $\pm 0.001$ )	$I_3(\%)$
Vierge	1.790	20.65
1.5 ( <i>MeV</i> )	1.792	21.15
2.5 ( <i>MeV</i> )	1.797	20.73
4.5 ( <i>MeV</i> )	1.800	20.67

[26] :

$$\tau_3 = 0.5 \times \left\{ 1 - \frac{R}{R_0} + \frac{1}{2\pi} \sin \frac{2\pi R}{R_0} \right\}^{-1} (ns) \quad (3.5)$$

$R_0 = R + \Delta R$ ;  $\Delta R = 0.1656 \text{ nm}$ , l'épaisseur du nuage électronique autour du volume libre.

La taille moyenne du volume libre a été calculée en utilisant l'expression donnée pour le calcul du volume d'une sphère :

$$V = \frac{4\pi R^3}{3} \quad (3.6)$$

Le tableau 3.3, résume les différentes valeurs du rayon et du volume.

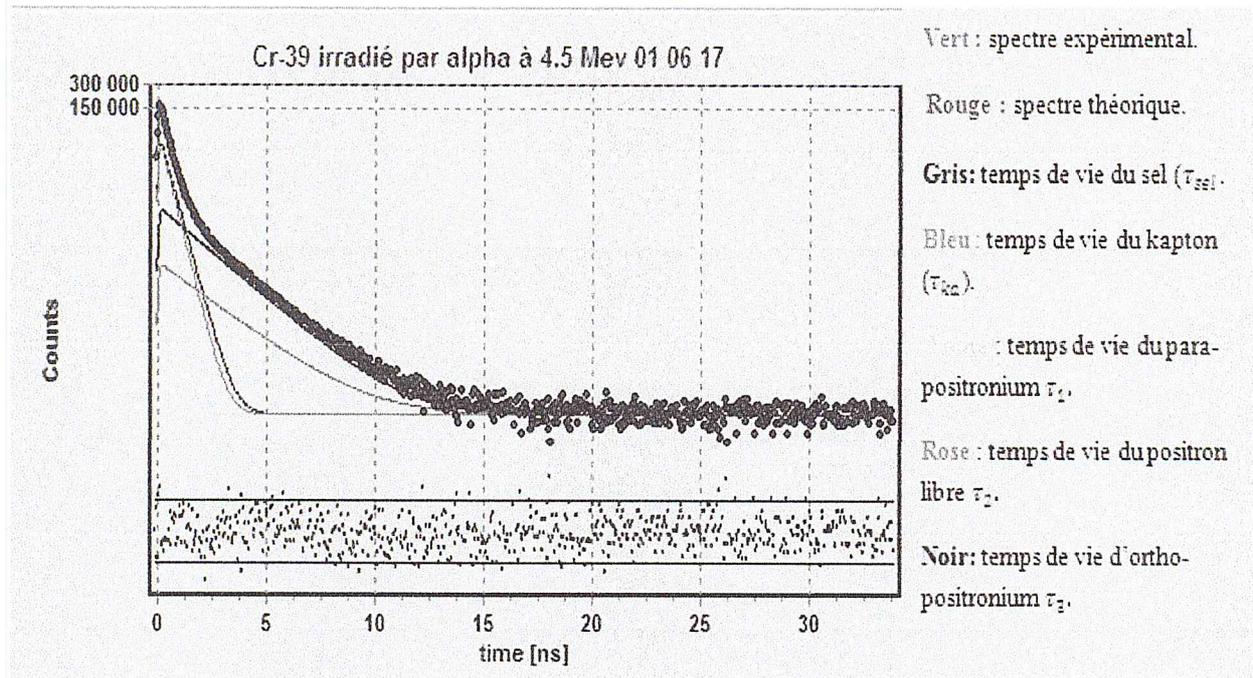


FIG. 3.27: Spectre du temps de vie du positron du *CR39* irradié à l'énergie 4.5 MeV.

TAB. 3.3: Les différentes valeurs du rayon et du volume relatif à la variation de  $t_3$  pour les différentes énergies d'irradiation.

Echantillon	$\tau_3(ns)\tau_3(\pm 0.001)$	Rayon ( $A^0$ )	Volume $A^3$
Vierge	1.790	2.654	78.265
1.5 (MeV)	1.792	2.656	78.442
2.5 (MeV)	1.797	2.661	78.886
4.5 (MeV)	1.800	2.664	79.153

A partir du tableau 3.21, il est clair que le rayon de l'espace libre augmente lentement lorsque l'énergie augmente. Cette augmentation indique que la taille de l'espace libre augmente aussi et confirme le résultat relatif à la variation de  $\tau_3$ .

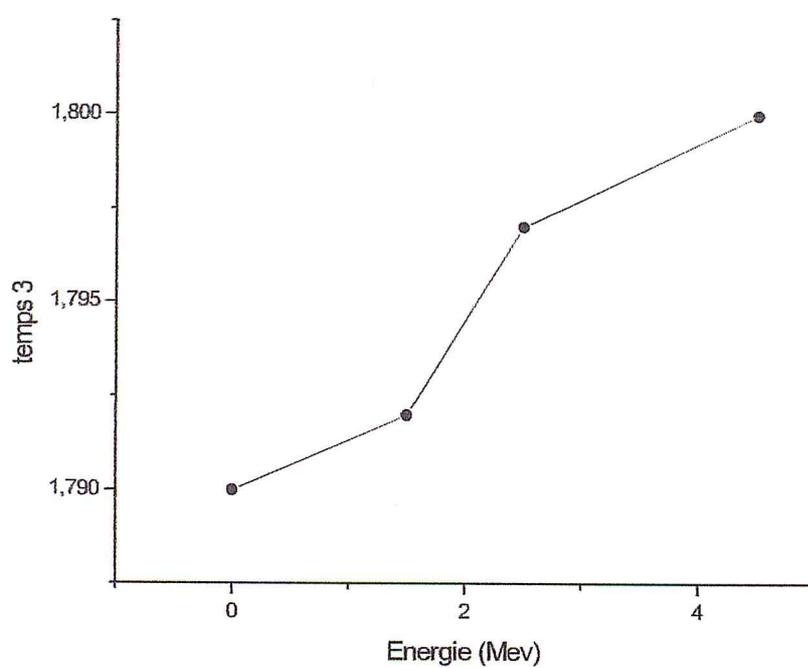


FIG. 3.28: L'évolution du temps de vie de la fraction ortho-positronium en fonction de l'énergie d'irradiation.

## Conclusion générale

Nous avons réalisé dans ce travail de mémoire le montage d'un spectromètre de mesure de temps de vie du positron. Par la suite, nous avons étudié l'effet d'irradiation alpha sur le changement de la microstructure des échantillons *CR39*. Nous avons effectué des expériences de mesure de temps de vie du positron (*PALS*) à l'aide du système de coïncidence rapide qui utilise une source radioactive  $^{22}\text{Na}$  préparée au niveau de centre de recherche nucléaire (*CRNA*). Avant d'effectuer les expériences *PALS* sur les échantillons *CR39*, nous avons optimisé les différents paramètres expérimentaux pouvant donner une meilleure résolution temporelle du spectromètre du positron. Ainsi, dans ce travail de mémoire une valeur de résolution instrumentale égale à 195 *Ps* a été trouvée. Nous avons utilisé le logiciel *LT.9* pour l'analyse des spectres du temps de vie du positron des échantillons *CR39* irradiés aux particules. La décomposition des spectres a été faite en trois composantes du temps de vie du positron ( $\tau_1, \tau_2, \tau_3$ ) avec des intensités respectives ( $I_1, I_2, I_3$ ). La plus courte  $\tau_1$ , possédant une intensité  $I_1$  a été attribuée à l'annihilation du para-positronium ( $p - Ps$ ), la composante intermédiaire  $\tau_2$  ayant une intensité  $I_2$  est due à l'annihilation du positron libre. La plus longue composante  $\tau_3$  avec l'intensité  $I_3$  est le résultat de l'annihilation pick-off de l'ortho-positronium ( $o - Ps$ ) dans le volume libre du polymère. Le temps de vie du para-positronium et du positron libre est constant. Dans notre étude, nous nous sommes intéressés, plus particulièrement, à l'évolution de la valeur de la composante  $\tau_3$  en fonction de l'énergie d'irradiation. À propos de la variation  $\tau_3$ , nous avons observé une rapide augmentation de la valeur de  $\tau_3$  qui passe de 1.790 *ns* pour 0 *Mev* où le temps de vie de l'ortho-positronium augmente rapidement pour atteindre une valeur de 1.8 *ns*, pour une énergie d'irradiation de 4.5 *Mev*. Cette augmentation peut être due au phénomène de scission des chaînes dans le *CR39* qui cause une augmentation du volume libre. Afin d'estimer la taille moyenne du rayon ( $R$ ) du volume libre moyen dans le polymère *CR39*, nous avons utilisé le modèle de *Tao-Eldrup*, en approximation sphérique, où nous avons une augmentation des

valeurs de rayon et du volume. Il est clair que le rayon de l'espace libre augmente lentement lorsque l'énergie augmente. Cette augmentation indique que la taille de l'espace libre augmente aussi et confirme le résultat relatif à la variation de  $\tau_3$ .

Nous espérons que ce travail modeste fournit un plus à la littérature concernant le montage d'un spectromètre de mesure du temps de vie du positron, l'optimisation et l'application à l'étude de matériau irradié aux particules alpha. Nous visons à l'avenir de faire des études et des expériences pour mesurer l'énergie de Fermi pour différents métaux en utilisant l'annihilation des positrons dans la matière et des recherches profondes sur les méthodes de calculs.

# Annexe A

## Annexe

The LT program [J.Kansy, Nucl.Instr&Meth A374(1996) 235] has been designed in the *DELPHI* programming language. The program uses the WINDOWS framework, so it possesses standard appearance and provides familiar operating system.

### THE THEORETICAL MODEL

The shape of the theoretical lifetime spectrum is determined on the basis of the following assumptions :

#### COMPONENTS

The spectrum consists of a sum of a few components - discrete or/and continuous ones :

- *A discrete component*

$$C_{disc} = \frac{I}{\tau e^{\frac{1}{\tau}}} \quad (\text{A.1})$$

It depends on 2 *model parameters* - the component intensity  $I$ , and the parameter  $\tau$ , called here a *lifetime* (not mean-lifetime although, in reality, it is a mean lifetime of positrons).

- *A continuous component*

$$C_{cont} = \int_0^{\infty} L_n(\lambda) d\lambda I \lambda e^{(-\lambda t)} \quad (\text{A.2})$$

It is built-up from a continuous sum of the curves of type (1), taken with

- *the log-normal distribution :*

$$L_n(\lambda) d\lambda = (2\pi)^{-\frac{1}{2}} \sigma^{-1} \exp \left\{ \frac{-[\ln(\lambda) - \ln(\frac{1}{\tau_0})]^2}{2\sigma^2} \right\} \lambda^{-1} d\lambda \quad (\text{A.3})$$

The continuous component depends on 3 model parameters : the component intensity  $I$ , the *mean-lifetime*  $\tau$

$$\tau = \int_0^{\infty} L_n(\lambda) d\lambda \lambda^{-1} = \tau_0 e^{\left(\frac{\sigma^2}{2}\right)} \quad (\text{A.4})$$

and the standard deviation from the mean- lifetime  $\sigma_r$ ,

$$\sigma_r^2 = \int_0^{\infty} L_n(\lambda) d\lambda (\lambda^{-1} - \tau)^2 = \tau^2 [e^{\sigma^2} - 1] \quad (\text{A.5})$$

### RESOLUTION

Each component (discrete or continuous) is involved with the spectrometer resolution function. Two models of the resolution function can be used for approximation of the real shape of this function :

– *A Sum of Gaussians*

In this case, the resolution is expressed by the sum of three terms,

$$R = f_0 G(t, FWHM_0, 0) + f_1 G(t, FWHM_1, \Delta_1) + f_2 G(t, FWHM_2, \Delta_2) \quad (\text{A.6})$$

where  $G(t, FWHM, \Delta)$  is a Gauss function of time, centered at  $\Delta$ . *FWHM* is the *full width at its half of maximum* and  $f_i$  is a *relative fraction* of the  $i$ -th term.

– *Exponential Sided Gaussian function (ESG)*

Alternatively, the resolution function is approximated by the *-Exponential Sided Gaussian function (EFG)*, i.e. by a Gaussian convoluted ( $\otimes$ ) with two exponential functions :

$$R = G(FWHM) \otimes e^{\left(\frac{-t}{\tau_l}\right)} \otimes e^{\left(\frac{-t}{\tau_r}\right)} \quad (\text{A.7})$$

where *FWHM* - is the full width at half of the gaussian maximum and  $\tau_l$ ,  $\tau_r$  - denote some constants called here *tau-left* and *tau-right*, respectively.

### THE COMPONENTS CONVOLUTED WITH THE RESOLUTION CURVES

– *A discrete component convoluted with the "Sum of Gaussians"*

The real shape of a discrete component depends on the type of the *resolution function* taken into account. In the case of resolution function expressed by eq. (6), the discrete component

transforms into :

$$M_{t_k} = I [f_0 F(t_k, \tau, s_0) + f_1 F(t_k - \Delta_1, \tau, s_1) + f_2 F(t_k - \Delta_2, \tau, s_2)] \quad (\text{A.8})$$

where

$t_k$  denotes the time related to the  $k$ -th channel,

$$F(t_k, \tau, s) = \frac{1}{2} [Y(t_k; \tau, s) - Y(t_{k+1}, \tau, s) + \Phi\left(\frac{t_k}{s}\right) - \Phi\left(\frac{t_{k+1}}{s}\right)] \quad (\text{A.9})$$

$$Y(t_k, \tau, s) = e^{\frac{s^2}{4\tau^2}} \Phi\left[\frac{s}{2\tau} - \frac{t}{s}\right] e^{-\frac{t}{\tau}} \quad (\text{A.10})$$

$$s = \frac{1}{2} (\ln 2)^{-\frac{1}{2}} \times FWHM \quad \text{et} \quad \Phi(x) = 1 - \text{erf}(x) \quad (\text{A.11})$$

– A discrete component convoluted with the ESG

Alternatively, a discrete component, modified by the resolution function (7) can be expressed by :

$$M'(t_k) = I [\alpha F(t_k, \tau, s) + \alpha_l F(-t_k, \tau_l, s) + \alpha_r F(t_k, \tau_r, s)] \quad (\text{A.12})$$

Where

$$\alpha = \frac{\tau^2}{[(\tau + \tau_l)(\tau - \tau_r)]}, \alpha_l = \frac{\tau_l^2}{[(\tau + \tau_l)(\tau_r + \tau_l)]}, \alpha_r = \frac{\tau_r^2}{[(\tau_r - \tau)(\tau_r + \tau_l)]} \quad (\text{A.13})$$

– A continuous component convoluted with the "Sum of Gaussians"

A continuous component modified by R of form (6), can be obtained by integration of M(tk) eq. (8) with the log-normal distribution (eq.3) :

$$M_{cont}(t_k) = \int_0^\infty L_n(\lambda) d\lambda M(t_k) \quad (\text{A.14})$$

This integral cannot be integrated analytically, so the program calculates it numerically.

– A continuous component convoluted with ESG

A continuous component, modified by R of form (7) is calculated numerically from an integral similar to that given by eq. (13), but now instead of  $M(tk)$  the  $M'(tk)$  function (eq.11)

is integrated :

$$M'_{cont}(t_k) = \int_0^{\infty} L_n(\lambda) d\lambda M'(t_k) \quad (\text{A.15})$$

### *RESULTANT SHAPE OF THE SPECTRUM*

– A lifetime spectrum consisted of n components is described by the formula :

$$N(t_k) = N_0 \sum M_j(t_k) + B, j = 1 \dots n. \quad (\text{A.16})$$

where  $N_0$  is the total number of counts under the spectrum, B -is the number of counts in the background and denotes a spectrum component of any of the type : M eq. (8), M' eq.(11), Mcont eq.(13) or M'cont eq.(14).

# Bibliographie

- [1] P. A. M. Dirac, Proc. Camb. Phil. Soc. Math. Phys. Sci. 26, 361, (1930).
- [2] C. D. Anderson, Science. 76, 238, (1932).
- [3] M. Eldrup, thèse de Doctorat, Danish atomic energy commission, research establishment Riso (1971).
- [4] A. HAESSER, (thèse), Université louis pasteur de strasbourg, (1982).
- [5] W. Gillard, Thèse de doctorat, Université de Toulouse III – Paul Sabatier, 2008.
- [6] A. Sediri, Mémoire d'ingénieur physicien, Université de Tizi-Ouzou, 2010.
- [7] X. Kerbiriou, Thèse de doctorat, Université d'Orléans, 2006.
- [8] ORE, A. Univ. Bergen Arbok n° 9, n° 12, 1949.
- [9] M. Deusch, Pys. Rev. 83, 207, (1951).
- [10] A. Guittoum, « Rapport sur le séjour de recherche au laboratoire de spectroscopie d'annihilation du positron », Université Martin Luther, Halle, Allemagne, 2009.
- [11] A. Kermad, Rapport de confirmation au poste : Attaché de Recherche, centre de recherche nucléaire d'Alger (CRNA), division du technique nucléaire département laser, 2016.
- [12] R. Chis, Mémoire de Master en physique des rayonnements, Université des sciences et de la technologie Houari Boumediene, 2015.
- [13] E. M. H. Sayed Ahmed, thèse de doctorat, Université Marthin Luther, Halle-Wittenberg, 2001.
- [14] H .L. Li, Y .Ujihira, S. Shukushima, K.Ueon, Polymer. 41, 93, (2000).
- [15] Y.C. Jean, P.E. Mallon, D.M. Schrader, « Principles and Application of positrons & Positronium Chemistry », World Scientific Publishing, 2003.

- [16] M. Abdel-Rahman<sup>1</sup>, M. F. Eissa and N. A. Kamel, Egypt. J. Solids, Vol. (32), No. (1), (2009).
- [17] M. F. Eissa, "Study the effect of etching time on the optical properties of irradiated CR39 polymer", (Egypt), (2014).
- [18] Hamdy F.M. Mohamed, M. Abd El-Hady, E.E. Abdel-Hady, Applied Radiation and Isotopes, Vol. 65, 328–334, (2007).
- [19] G. Gillmore, D. Wertheim and S. Crust, Science of the Total Environment, Effects of etching time on alpha tracks in solid state nuclear track detectors, (2016).
- [20] G. Manuel, A. Zaydouri, « rapport sur l'utilisation de positrons pour l'étude d'un HDPE irradié », Université de Franche-Comté, Lausanne, 2009.
- [21] R. Krause-Rehberg and H. S. Leipner, « positron Annihilation in Semiconductors : Defects Studies », Springer 1998.
- [22] N. Bendjedda, « Rapport de synthèse pour la pose d'ingénieur de laboratoire niveau II », CRNA, 2002.
- [23] Z. Lounis-Mokrani, A. Guittoum, D. Inatoukene, M. Aitziane, A. Badreddineand, M. Mebhah, Radiation Measurements. 50, 26-30, (2013).
- [24] R. Kumar, S.A. Ali, A.K. Mahur, D. Das, A.H. Naqvi, H.S. Virk, R. Prasad, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B. 244, 257–260, (2006).
- [25] R. Prasad, Asian Journal of Chemistry, Vol. 18 (5) (2006) 3399-3407.
- [26] J. Viert, Thèse de doctorat, Université Chembréry de savoie, France, 2003.

