

Chimie et neutrinos

Alain de Bellefon, Michel Cribier et Jean-Claude Mialocq

Résumé Cet article illustre la synergie qui existe entre la chimie et la détection des neutrinos, ces particules élémentaires dont l'existence fut confirmée grâce à l'invention des détecteurs à liquide scintillant par des chimistes. Les progrès de ces détecteurs sont issus des recherches des chimistes. La résolution de l'énigme des neutrinos solaires fut rendue possible entre autres par l'obtention d'une extrême pureté radiochimique des différentes cibles utilisées.

Mots-clés Liquides scintillants, détecteurs, physique des particules, neutrinos solaires, basse radioactivité.

Abstract **Chemistry and neutrinos**
Symbiosis between chemistry and particle detection is illustrated in this article. We mostly emphasize on the neutrino case – neutrino is a neutral elementary particle which has been detected thanks to the invention, by chemists, of detectors using liquid scintillators. The solar neutrino problem has been solved by the solar neutrino detection experiments successful thanks to the extremely low radioactive contents of their targets.

Keywords Scintillating liquids, detectors, particle physics, solar neutrinos, low radioactivity.

Depuis une cinquantaine d'années, par tous les moyens techniquement accessibles, les physiciens nucléaires et ceux des particules s'efforcent de mettre en évidence les effets dus au passage d'une particule – chargée ou non – dans la matière, que celle-ci soit sous forme solide, liquide ou gazeuse. Ces effets, visibles directement ou indirectement, permettent la détection du passage de particules qui, sinon, resteraient inconnues.

Parmi les détecteurs possibles, on remarque les liquides organiques qui scintillent lors du passage d'une particule. Dans cet article, nous montrons à quel point des moyens qui relèvent de la chimie ont joué un rôle important dans la détection des particules en physique. Nous développons le cas de la détection des neutrinos de basse énergie, inférieure à une dizaine de MeV (méga electron-volt). Ce domaine d'énergie concerne les neutrinos solaires, ceux qui sont issus de la radioactivité naturelle (comme ceux qui sont émis par la Terre), produits par l'Homme (dans les centrales nucléaires) et même ceux qui sont émis lors des explosions de supernovae.

La détection de particules ou pourquoi détecter une particule ?

Comme les chimistes, les physiciens se représentent la matière comme étant formée de molécules, et les molécules comme étant formées d'atomes. En outre, les physiciens se représentent les atomes comme étant formés de noyaux et d'électrons ; les noyaux sont formés de protons et de neutrons. Les protons et les neutrons sont formés de quarks. En l'état actuel des connaissances, les électrons et les quarks sont des « particules élémentaires ». Pour voir les constituants de la matière à des échelles de plus en plus petites, des instruments ont été élaborés pour suppléer à l'insuffisance de la vue : le microscope optique, le microscope électronique, le microscope à force atomique. Pour des objets plus petits que l'atome, aucun instrument ne permet de les voir au sens habituel du terme. Faute de les « voir », on s'efforce de les détecter et de visualiser leurs trajectoires.

Pour que le passage d'une particule dans un matériau soit détecté, il faut que ce matériau puisse transmettre des informations qui seront recueillies. Concrètement, on détecte les particules chargées électriquement au moyen des traces qu'elles laissent sur leur passage. Ces traces consistent en une piste d'ions (représentés sur la *figure 1* par des points rouges) et d'électrons (représentés par des flèches) ; ces ions et ces électrons peuvent être collectés.

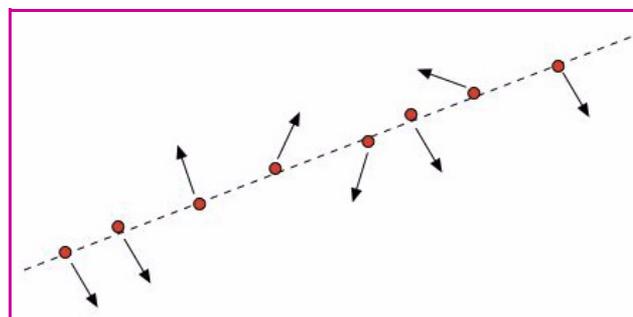


Figure 1 - Trace et ionisation.
Les flèches symbolisent les électrons éjectés, les points rouges correspondent aux ions formés sur la trace.

En laissant une trace, une particule dépose de l'énergie dans le matériau. Si la particule est chargée, nous aurons directement des informations sur sa dynamique décrite par la quantité de mouvement p et l'énergie E grâce à la courbure de sa trace dans un champ magnétique. Si cette particule est neutre, comme un photon, la détection est indirecte ; les électrons ou les ions produits lors de son passage donnent des informations.

Que détecte-t-on ?

Plusieurs effets physiques sont ainsi susceptibles de révéler le passage d'une particule dans la matière. Les détecteurs sont reliés à des ordinateurs qui mettent en forme

les signaux reçus caractérisant les particules. Comme exemple, nous avons choisi la chambre à bulles, très utilisée dans les années 1960 et 1970 (figure 2). L'ionisation produit une trace dont l'image pourra être formée sur une pellicule photographique. Les chambres à bulles ont été remplacées par des détecteurs plus rapides comme les chambres à étincelles ou les chambres à fils ; mais avec ces derniers, la visualisation de l'image passe par un traitement mathématique des données.

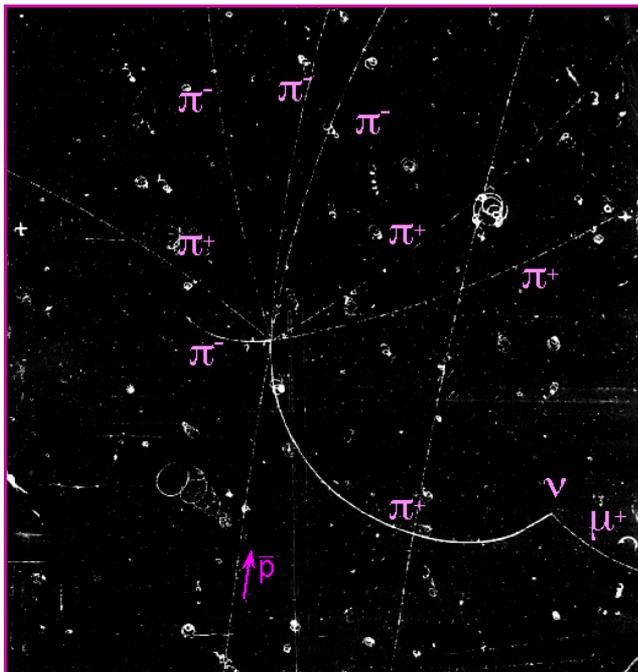


Figure 2 - Principe d'une chambre à bulles (détecteur mis au point en 1953 par le physicien américain Glaser, prix Nobel de physique en 1960).

Un liquide (souvent de l'hydrogène) placé dans une chambre est comprimé par un piston (phase 1, figure ci-contre) ; sa température est supérieure à sa température d'ébullition sous la pression atmosphérique, mais inférieure à sa température d'ébullition sous la pression à laquelle il se trouve placé. Juste après le passage de la particule à détecter, on détend le piston (pendant 1 ms environ, phase 2), et le liquide revient à la pression atmosphérique. L'ébullition débute autour des ions créés par la particule. Si l'on éclaire et que l'on photographie, la trajectoire est matérialisée par un chapelet de petites bulles.

D'autres effets existent et peuvent être utilisés. Lorsque leur vitesse est supérieure à celle de la lumière dans le milieu qu'elles traversent, les particules chargées produisent de la lumière. Cet effet porte le nom de Tcherenkov, son découvreur ; dans les réacteurs nucléaires où l'eau est utilisée pour ralentir les neutrons, il se manifeste par une lumière bleue caractéristique.

Le passage d'une particule chargée dans la matière s'accompagne d'un dépôt d'énergie au cours de collisions inélastiques avec les électrons constitutifs de cette matière. Il en résulte des ionisations et des excitations moléculaires. Le parcours de la particule chargée est fonction de son énergie initiale, de sa perte d'énergie par unité de longueur, de sa masse, de sa charge électrique et des propriétés du milieu.

La loi de Bethe-Bloch décrit la perte d'énergie par unité de longueur pour diverses particules (voir encadré). La détection des particules repose sur les effets d'ionisation et d'excitation induits dans un scintillateur par la perte d'éner-

gie des particules. Dans les scintillateurs organiques ou minéraux, la désexcitation se fait par émission de lumière dans l'ultraviolet ou le visible [1-2] : c'est le principe de la scintillation. Au bout du compte, quel que soit le mécanisme, la technique consiste à collecter les photons et à produire une impulsion électrique, ce qui permet le comptage des particules incidentes. Cette opération s'effectue avec des tubes photomultiplicateurs couplés à des discriminateurs, des convertisseurs temps-amplitude, des analyseurs multicanaux et des systèmes d'acquisition de données par ordinateur.

Scintillateurs liquides organiques

Nous avons survolé le principe de la détection de particules chargées. Détaillons maintenant la création et le devenir des espèces excitées dans les traces d'ionisation, puis les processus photophysiques et photochimiques mis en jeu dans les scintillateurs liquides organiques.

En chimie sous rayonnement, la perte d'énergie par unité de longueur est aussi appelée transfert d'énergie linéique (TEL) [3-5]. Les effets de radiolyse induits par le rayonnement γ , les électrons, les protons, les particules α ou les ions hélium d'un accélérateur, d'une façon plus générale les ions accélérés, les ions lourds... sont différents à cause de l'effet de TEL [3-5]. Dans les liquides, l'énergie déposée provoque l'excitation des molécules ; si l'énergie d'excitation est suffisante, elles sont ionisées, libérant des électrons secondaires qui à leur tour peuvent ioniser d'autres molécules. Le même processus se reproduit jusqu'à thermalisation des électrons. L'électron thermalisé se recombine avec son cation parent ou est piégé dans le solvant. Dans un solvant polaire de constante diélectrique statique élevée comme l'eau ($\epsilon = 80,3$), la réorganisation des molécules de solvant autour de l'électron conduit à la formation de l'électron hydraté tandis que le cation parent H_2O^+ réagit avec une autre molécule d'eau pour donner le radical HO^\bullet . Dans un solvant non polaire de faible constante diélectrique comme le benzène ($\epsilon = 2,28$) ou le toluène ($\epsilon = 2,38$), la recombinaison des ions parents donne une molécule dans un état électronique excité, singulet ou triplet. Ces ionisations et ces excitations sont très locales dans les traces d'ionisation, et la plupart des molécules du liquide ne sont pas affectées, du moins avant leur diffusion dans la masse de la solution.

On sait décrire les processus élémentaires qui accompagnent la désexcitation électronique et vibrationnelle des molécules organiques [6]. Les molécules de solvant portées dans un état électronique excité peuvent se désexciter de façon radiative en émettant une lumière de fluorescence ou par des processus non radiatifs qui conduisent le plus

La loi de Bethe-Bloch

$$-\frac{dE}{dx} = z^2 2\pi r_e^2 m_e c^2 \frac{Z}{A} \frac{1}{\beta^2} \left[\text{Log} \left(\frac{2m_e c^2 \beta^2 T_{max}}{(1-\beta^2)I^2} \right) - 2\beta^2 - K \right]$$

La formule de Bethe-Bloch (formule valable pour des particules autres que l'électron) donne la perte d'énergie unitaire d'une particule de charge z qui traverse un milieu de charge Z et de numéro atomique A avec une vitesse $\beta = v/c$; I est l'énergie d'ionisation, K est un facteur correctif lié aux effets de densité et T_{max} est l'énergie maximale pouvant être transférée.

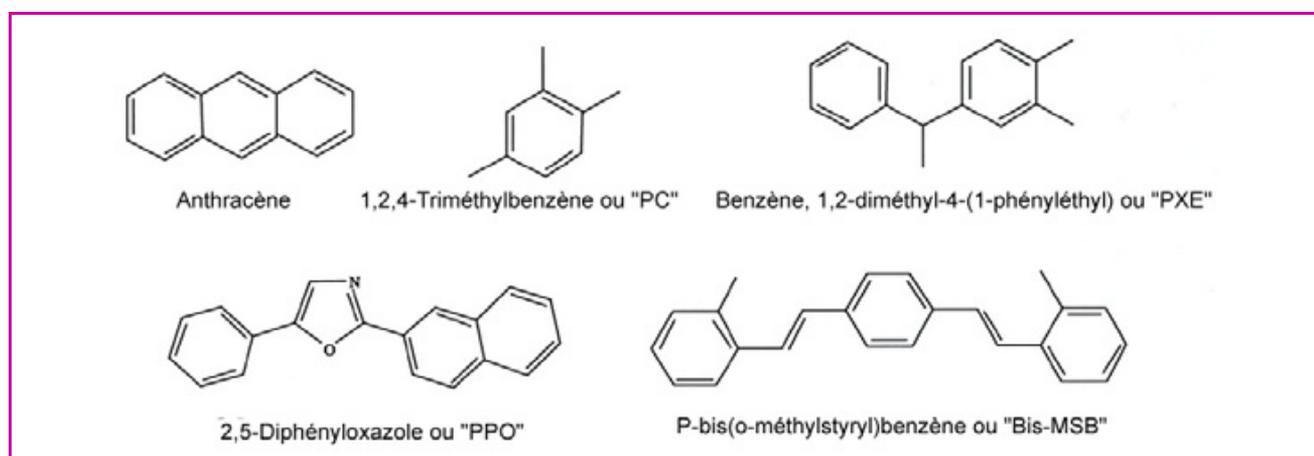


Figure 3 - Les molécules chimiques rencontrées fréquemment dans les liquides scintillants contemporains se divisent en scintillants primaires : 1,2,4-triméthylbenzène ou pseudocumène (PC), 1,2-diméthyl-4-(1-phényléthyl)-benzène (PXE) et en composés fluorescents : 2,5-diphényloxazole (PPO), p-bis(o-méthylstyril)benzène (bis-MSB) qui permettent une émission lumineuse vers le bleu, plus aisée à détecter.

souvent à la transformation de l'énergie électronique en énergie vibrationnelle [6]. Parmi ces processus non radiatifs, le transfert d'énergie des molécules excitées de solvant aux molécules de solutés est parfois efficace sous certaines conditions [6]. L'une des nombreuses applications des transferts d'énergie est celle des scintillateurs liquides [1-2]. Le solvant et un ou plusieurs solutés sont choisis, le solvant parce qu'il est un bon donneur d'énergie et les solutés parce qu'ils sont de bons accepteurs d'énergie et possèdent un rendement quantique de fluorescence élevé dans un domaine spectral, le proche ultraviolet et le visible, où les détecteurs sont plus sensibles.

Dès 1947, H.P. Kallmann en Allemagne découvrit que les scintillations produites par des rayonnements bêta et gamma dans de gros cristaux de naphthalène pouvaient être détectées avec un photomultiplicateur [1]. Le besoin de détecteurs de volumes toujours plus grands pour compenser la rareté des événements amena Kallmann vers des solvants aromatiques dont il démontra le grand pouvoir de scintillation sous l'effet des radiations de haute énergie [1]. Sans entrer dans le détail, les solvants comme le benzène, le toluène, le xylène et le 1,2,4-triméthylbenzène (pseudocumène) furent utilisés dès le départ pour dissoudre de nombreux scintillateurs solides (anthracène, carbazole, naphthalène...). Très rapidement, l'utilité d'ajouter des composés accepteurs d'énergie et capables d'émettre des photons de plus grande longueur d'onde dans le proche ultraviolet et le visible, donc plus faciles à détecter, fut reconnue : dans le jargon des physiciens, on donne à ces composés le nom générique de « fluors » (figure 3).

Tout composé organique fluorescent est un scintillateur potentiel. Les solvants organiques et les scintillateurs liquides d'intérêt contiennent des noyaux aromatiques caractérisés par la délocalisation de leurs électrons π , très favorable aux transitions électroniques en absorption et en fluorescence. Par ailleurs, le caractère aromatique commun à ces solvants et ces solutés permet d'introduire les fortes concentrations de solutés nécessaires à un transfert d'énergie efficace du solvant au soluté. On peut distinguer deux classes parmi les solutés :

- les « fluors » primaires : 2-phényl-5-(4-biphényl)-1,3,4-oxadiazole (PBD) 2-(4-biphényl)-5-(4-tert-butylphényl)-1,3,4-oxadiazole (butyl-PBD), 2,5-diphényloxazole (PPO) et

1-phényl-3-mésityl-2-pyrazoline (PMP), qui sont accepteurs de l'énergie transférée par le solvant ;

- les « fluors » secondaires : p-bis(o-méthylstyril)benzène (bis-MSB), 2,5-bis[5-tert-butyl-benzoxazolyl(2)]thiophène (BBOT), 4,4''-bis(2-butyl-octyloxy)-p-quaterphényl (BiBuQ), qui sont accepteurs de l'énergie transférée par les fluors primaires et permettent de décaler encore plus la fluorescence vers de plus grandes longueurs d'onde, dans le bleu et le vert, où les photomultiplicateurs sont plus sensibles et les solutions plus transparentes sur une grande distance [7].

Les durées de vie de fluorescence de tous ces « fluors » doivent être courtes (si possible inférieures à 2 ns), les rendements de fluorescence élevés et les déplacements de Stokes (écart entre les longueurs d'onde des maximums des spectres de fluorescence et d'absorption) les plus grands possibles pour éviter la réabsorption de la fluorescence. Le bon recouvrement des spectres de fluorescence du donneur et du spectre d'absorption de l'accepteur est la condition nécessaire à des transferts d'énergie efficaces solvant-fluor primaire et fluor primaire-fluor secondaire (figure 4). Les transferts d'énergie non radiatifs prédominent à concentration élevée de l'accepteur, mais dans le cas du transfert fluor

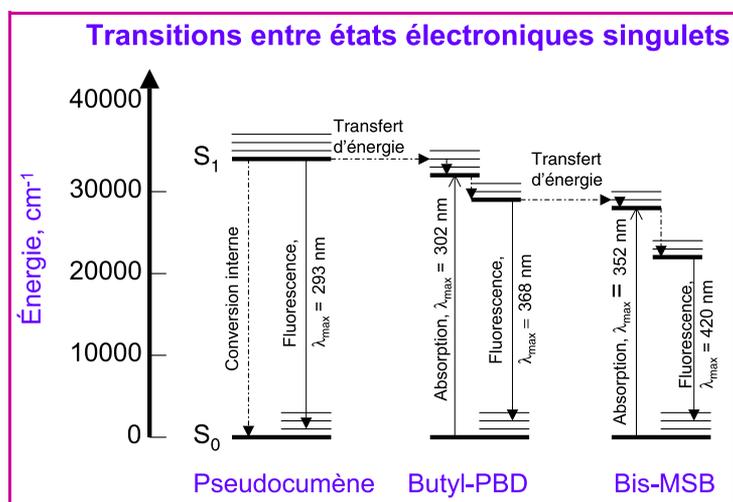


Figure 4 - Schéma des transferts d'énergie dans le mélange scintillant pseudocumène, butyl-PBD, bis-MSB.

primaire-fluor secondaire où le fluor secondaire est utilisé à plus faible concentration, le transfert d'énergie est principalement radiatif.

Lors du choix du solvant, on tient compte de ses propriétés photophysiques, mais d'autres caractéristiques sont exigées : sa transparence dans le domaine spectral de la fluorescence, un point éclair élevé, une faible toxicité, d'excellentes stabilités thermique et photochimique, la facilité de purification, une bonne disponibilité en quantité et un faible coût. Par ailleurs, comme l'oxygène forme des complexes de contact avec des solvants aromatiques qui donnent lieu à de faibles absorptions du côté rouge du spectre d'absorption, il est nécessaire d'éliminer l'air en faisant barboter de l'azote très pur. L'atténuation de la lumière est ainsi nettement diminuée au-dessous de 380 nm [7].

Dans tous les cas, le nombre total de photons émis dépend du nombre de molécules excitées, et *in fine* de l'énergie déposée par la particule. L'énergie émise sous forme lumineuse ne représente qu'une faible partie de l'énergie déposée par la particule dans le milieu, environ 5 % pour les meilleurs scintillateurs liquides (mais jusqu'à 10-15 % pour les cristaux scintillants). Pour rendre maximale l'intensité du signal recueilli, il faut aussi optimiser la transmission des parois du détecteur (acrylique, nylon, quartz) et enfin l'efficacité quantique de la photocathode du photomultiplicateur.

Pour les besoins de la physique, il est souvent souhaitable de combiner au sein du même liquide des cibles sensibles aux neutrinos ou aux neutrons [8]. Il faut donc adjoindre à ce mélange de plusieurs composés chimiques capables de détecter les radiations ionisantes (électrons, protons, rayons γ), d'autres composés qui comportent l'élément, souvent un métal, sensible aux neutrinos ou aux neutrons. Cette dernière étape, difficile à maîtriser, fait actuellement l'objet de recherches [9-10].

La saga du neutrino

Conçu par Pauli en 1930 pour expliquer la radioactivité bêta, baptisé par Fermi, le neutrino ne fut mis en évidence qu'en 1956 par Reines (lauréat du prix Nobel en 1995) et

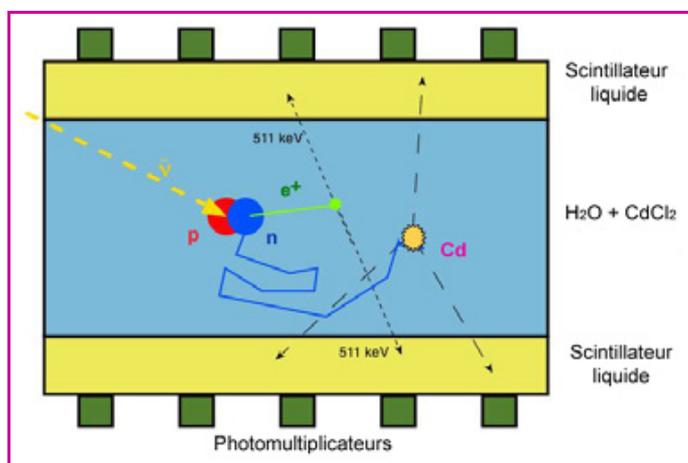
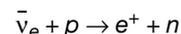


Figure 5 - Schéma du détecteur de Reines auprès du réacteur de Savannah River.

Sur la coupe d'un module, on a représenté l'interaction d'un neutrino avec un proton de la cible (eau cadmiée) qui produit un neutron absorbé par le cadmium pour donner trois photons gamma recueillis par les photomultiplicateurs quelques ns après les deux premiers gamma d'annihilation.

Cowan auprès des premiers réacteurs nucléaires (Hanford [11], puis Savannah River [12]). Leur détecteur de radiation était constitué de trois cuves de 1 400 litres de scintillateurs liquides, chacune entourée par 110 photomultiplicateurs (figure 5), et utilisait la réaction inverse de la désintégration bêta :



où $\bar{\nu}_e$ est l'antineutrino, p le proton, e^+ le positron et n le neutron.

La solution aqueuse de chlorure de cadmium située entre les cuves du détecteur contenait les noyaux d'hydrogène (protons) sensibles aux antineutrinos. Après avoir été ralenti dans l'eau, le positron interagit avec un électron. La réaction d'annihilation de l'électron et du positron produit deux rayons γ de 511 keV qui sont détectés dans les liquides scintillants. Le neutron, par des chocs successifs, perd lui aussi son énergie dans l'eau ; puis, après quelques centaines de microsecondes d'errance, son énergie est devenue suffisamment basse (il est « thermalisé ») pour autoriser sa capture par un noyau de cadmium, suivie de l'émission de plusieurs photons γ , eux aussi détectés dans le scintillateur liquide.

Il est donc à noter, dans ces premières expériences, une séparation totale d'une part, de la solution aqueuse cible avec laquelle l'interaction des antineutrinos conduit à l'émission de photons γ , et d'autre part, des liquides scintillants qui ne servent qu'à détecter ces rayonnements γ .

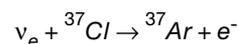
Dans les détecteurs les plus récents, tels que KamLAND [13] ou Double-Chooz [14], cette même réaction est utilisée pour détecter les antineutrinos. Les progrès accomplis dans la réalisation des photocathodes, qui convertissent les photons en électrons dans les tubes multiplicateurs, et l'amélioration de la géométrie de l'ensemble constitué par la cible et les détecteurs, ont permis d'améliorer le rendement de la détection des neutrinos. Un autre progrès d'importance réside dans le mariage des deux fonctions : cible et détection.

Les premières expériences de détection des neutrinos solaires illustrent parfaitement le rôle décisif de la chimie dans la détection des neutrinos. Bruno Pontecorvo eut l'idée d'utiliser la propriété du neutrino de transmuter un élément de la classification de Mendeleïev en un autre ; la réaction nucléaire qui a sa préférence aboutit à la transmutation d'un atome de chlore en un atome d'argon. L'extraction de ce gaz noble et son analyse quantitative par comptage des désintégrations semblaient faire appel à des techniques de chimie assez simples, bien que poussées à leurs limites.

L'expérience chlore

La concrétisation de cette idée fut délicate. Dès 1955, un chimiste américain, Raymond Davis Jr., installa un réservoir de tétrachloroéthylène (C_2Cl_4) auprès d'un réacteur nucléaire ; contrairement à celui de Reines et Cowan, son détecteur ne compte rien. A l'époque, la distinction entre neutrinos (la pierre philosophale) et antineutrinos (émis en abondance par la fission dans les réacteurs) n'était pas bien établie.

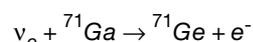
Toutefois, persévérant et améliorant sans cesse sa technique, Davis construisit dans le milieu des années 60 la première expérience pour détecter les neutrinos solaires, en utilisant la réaction β inverse proposée par Pontecorvo (dès 1946) :



Cinq ou six fois par an, l'argon 37 est extrait par entraînement avec un flux d'hélium. Cet isotope radioactif de l'argon se désintègre avec une demi-vie de 35 jours en émettant un rayonnement caractéristique. La section efficace de la réaction de transmutation est très faible ; en outre, elle ne peut se produire que si le neutrino a une énergie supérieure à 814 keV. Davis avait disposé 615 tonnes de tétrachloréthylène au fond d'une mine d'or dans le Dakota du Sud, aux États-Unis. La théorie du Soleil prédit le nombre de neutrinos émis par unité de temps ; compte tenu de la masse du détecteur et de la section efficace de la réaction, un atome d'argon 37 aurait dû être produit chaque jour, or l'expérience ne produisit qu'un atome tous les trois jours [15]. Cette différence importante constitua la base de l'énigme des neutrinos solaires, résolue seulement en 2002. Pendant longtemps, de nombreux physiciens ont été sceptiques sur ce résultat, en partie à cause de ces techniques radiochimiques qui leur étaient étrangères. L'histoire montra qu'ils avaient tort : les expériences GALLEX (décrite ci-après) et SNO (mentionnée plus loin) ont confirmé les résultats obtenus par Davis et résolu l'énigme.

Les expériences utilisant du gallium

L'idée d'utiliser une cible de gallium pour détecter les neutrinos solaires revient à Kuz'min [16] qui, dès 1964, proposa d'utiliser la réaction de transmutation d'un isotope du gallium (^{71}Ga) en un isotope radioactif du germanium (^{71}Ge) :



L'avantage sur l'expérience précédente utilisant le ^{37}Cl est que le ^{71}Ga , grâce au seuil plus bas (233 keV) permet la détection des neutrinos dit primordiaux émis par le Soleil. Comme l'expérience utilisant le chlore, celles utilisant le gallium impliquaient de combiner des techniques chimiques maîtrisées et le comptage d'événements très rares exigeant une parfaite maîtrise du bruit de fond.

Le détecteur GALLEX (rebaptisé GNO⁽¹⁾ et aujourd'hui démonté) a été installé dans le laboratoire souterrain du Gran Sasso, dans les Abruzzes (Italie). Il est constitué de 30 tonnes de gallium [17].

Le ^{71}Ge se désintègre avec une demi-vie de 11,4 jours. Après avoir exposé le gallium pendant plusieurs semaines aux neutrinos solaires, il faut récupérer les atomes de germanium qui ont été produits, puis observer leur désintégration. De la masse de gallium et de la prédiction théorique, on s'attend à ce que les neutrinos solaires produisent un peu plus d'un atome de germanium par jour.

Le gallium est sous la forme d'un composé liquide, le trichlorure de gallium en solution dans l'acide chlorhydrique dans un grand réservoir cylindrique de 8 m de haut et 4 m de diamètre. Le germanium produit est sous la forme de tétrachlorure de germanium, extrêmement volatil en présence d'acide chlorhydrique. Toutes les trois ou quatre semaines, on fait circuler dans ce grand réservoir plusieurs milliers de m^3 d'azote pour entraîner le chlorure de germanium. Un piège, constitué par une colonne de verre contenant des petits torons de verre (*figure 6a*), est placé à la sortie du réservoir pour capturer le tétrachlorure de germanium ; de l'eau pure y circule de haut en bas alors que le courant gazeux y circule de bas en haut. L'eau pure met en solution le tétrachlorure de germanium et laisse l'azote s'échapper.

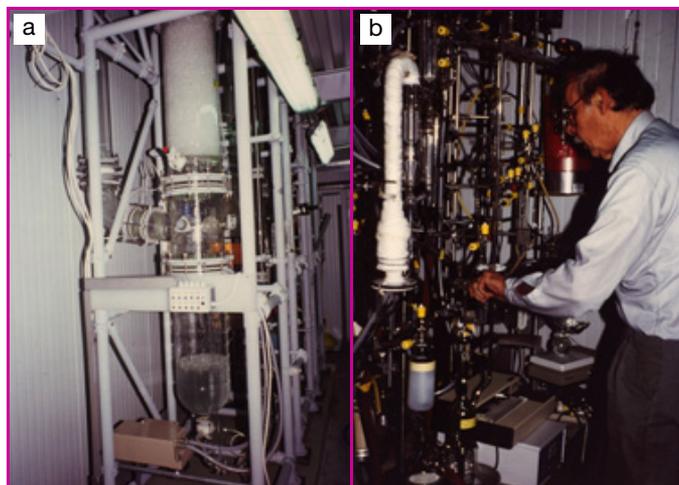


Figure 6 - Le dispositif d'extraction dans Gallex avec sa colonne de verre munie de torons où le chlorure de germanium est piégé.

Sur le banc de synthèse, on transforme ce chlorure en germane (GeH_4) et l'on remplit le compteur proportionnel où l'on détectera la désintégration des ^{71}Ge radioactifs.

L'étape suivante consiste à faire passer le germanium à l'état d'hydrure : GeH_4 . Ce gaz, très semblable au méthane, est placé dans un petit compteur proportionnel (*figure 6b*). Pour ne pas masquer le signal ténu du ^{71}Ge sous un signal dû aux désintégrations du tritium, cette réaction chimique s'effectue avec de l'eau prélevée à 3 000 m de profondeur dans le désert du Neguev, dans laquelle les atomes de tritium sont inexistant. Dans le compteur, on observe la désintégration par capture électronique du germanium qui donne un signal électrique bien caractéristique. Chaque compteur est laissé plusieurs mois dans son blindage de plomb (datant des Romains), lui-même placé dans une cage de Faraday où les rayonnements parasites sont réduits au minimum... Ces compteurs sont des quartz minutieusement taillés et travaillés à la main ; seuls les plus performants, ceux qui induiront le moins de bruit parasite, sont conservés.

Comme dans l'expérience de Davis, malgré un principe simple, il s'agit d'une véritable prouesse expérimentale : extraire quelques atomes d'un réservoir contenant plusieurs dizaines de tonnes de liquide (10^{30} atomes). Il est permis d'être sceptique devant ce résultat... Pour que le doute qui avait porté sur les résultats de l'expérience chlore n'affecte pas ceux de l'expérience GALLEX, il fut décidé de calibrer celle-ci. Au cours de l'été 1994, le détecteur fut exposé à une source artificielle de neutrinos dont le flux est exactement connu. Cette source était constituée de chrome 51, qui est un isotope radioactif.

L'enrichissement isotopique pour les expériences sur les neutrinos

Pour les besoins de la physique des neutrinos en particulier, il a été nécessaire de se procurer des quantités toujours plus grandes d'isotopes stables. Cela a conduit des physiciens et chimistes spécialistes de l'enrichissement isotopique à collaborer car les exigences, quelques kilogrammes avec une grande pureté chimique, étaient assez différentes des exigences pour les combustibles nucléaires. Deux exemples sont illustratifs.

Revenons sur la source de neutrinos de Gallex. Pour obtenir du chrome 51, on doit irradier dans un réacteur

nucléaire du chrome 50 stable, mais peu abondant naturellement (4,3 %). Les données nucléaires montraient qu'avant irradiation, il fallait augmenter la part du chrome 50 afin d'éviter les effets nuisibles des autres isotopes. Le chrome métal a été transformé en fluorure de chromyle gazeux de formule CrO_2F_2 [18] ; 40 kg de chrome ont ainsi été enrichis en chrome 50 par centrifugation gazeuse jusqu'à 38 %.

Par ailleurs, les physiciens des neutrinos cherchent à observer une désintégration extrêmement rare appelée « double désintégration β sans neutrino » qui renseignerait sur la nature intime de cette particule. Ils espèrent l'observer avec les noyaux suivants : molybdène 100, sélénium 82, cadmium 116, tellure 130, néodyme 150, zirconium 96, calcium 48. Pour leurs expériences, ils ont besoin que l'isotope impliqué dans la désintégration recherchée soit séparé des autres isotopes du même élément.

Les quantités d'isotopes séparés nécessaires vont de quelques centaines de grammes à quelques dizaines de kilogrammes et une grande pureté chimique. Dans le cas où il existe un composé gazeux de l'élément dont on veut séparer les isotopes, le procédé de séparation isotopique le mieux adapté est l'ultracentrifugation.

Le détecteur NEMO⁽²⁾ [19], installé au laboratoire souterrain de Modane, contient près de 7 kg de molybdène 100, plus de 900 g de sélénium 82 et quelques centaines de grammes d'autres isotopes (⁴⁸Ca, ⁹⁶Zr, ¹¹⁶Cd, ¹³⁰Te, ¹⁵⁰Nd) qui ont tous en commun d'offrir la possibilité de cette désintégration fort rare : la double désintégration bêta sans neutrino (figure 7).



Figure 7 - Le détecteur NEMO dans le laboratoire souterrain de Modane.

Il est constitué de secteurs de chambres à fils dans lesquels se trouvent des feuilles de molybdène – noyau susceptible de se désintégrer en mode double bêta avec (et peut-être sans) neutrinos – émettrices d'électrons de désintégration.

Retour aux liquides organiques

Reprenant la tradition des premières expériences auprès de réacteurs nucléaires qui ont permis la découverte du neutrino, les physiciens, pour détecter les neutrinos issus du Soleil, ont cherché à utiliser au mieux les performances de détecteurs à base de liquide organique scintillant. Le problème majeur de ce type d'expérience est le nombre très réduit d'événements compte tenu de la très faible probabilité

d'interaction du neutrino dans cette gamme d'énergie. La solution consiste à augmenter considérablement la taille du détecteur et à l'abriter sous terre pour éviter les événements parasites qui se confondent avec ceux que l'on cherche à voir.

Enfin, une difficulté doit être surmontée : abaisser le plus possible la radioactivité du liquide en éliminant ses impuretés chimiques radioactives, notamment l'uranium, afin d'éviter les signaux parasites. En effet, ce sont les électrons diffusés par les neutrinos selon la réaction $\nu_e + e^- \rightarrow \nu_e + e^-$ qui forment le signal ; or ces électrons sont identiques à ceux produits par une désintégration radioactive.

Les sources de radioactivité dans le liquide sont :
- ⁴⁰K, ²³⁸U, ²³²Th et leurs produits de désintégration ²²⁶Ra et ²¹⁰Pb,

- les isotopes radioactifs des gaz nobles ²²²Rn et ⁸⁵Kr,
- les noyaux créés par l'interaction du rayonnement cosmique avec le liquide, dits cosmogéniques ¹⁴C, ⁷Be, ⁸He et ⁹Li.

En ce qui concerne le carbone, il est important d'utiliser des hydrocarbures pétrochimiques dont la résidence souterraine date de plusieurs millions d'années, ce qui a le mérite de ne pas laisser de traces de carbone 14 dont la durée de vie est d'environ 5 000 ans. Les autres impuretés sont chimiquement séparables et peuvent être rangées en deux groupes : les métaux (U, Th, K, Ra, Pb) et les gaz nobles (Rn et Kr). Les impuretés métalliques sont essentiellement ôtées par passage à travers des colonnes de silicagel ; un détecteur de taille réduite a été construit essentiellement pour contrôler et poursuivre la radio-purification du liquide scintillant. Ainsi, un gramme d'uranium produit un milliard de désintégrations par jour à comparer aux quelques événements exprimés en nombre de neutrinos par tonne de détecteur et par jour ; on comprend l'exigence de rendre infinitésimale la teneur en uranium de notre détecteur. Le défi est alors lancé de préparer des tonnes de liquide organique et de mesurer à des niveaux jamais atteints de 10^{-16} g d'uranium ou d'autres éléments radioactifs par gramme de liquide. Pour obtenir de telles performances, il faut de nouveau faire appel à la chimie.

L'expérience BOREXINO [20], installée au laboratoire souterrain du Gran Sasso, est composée d'un ballon de nylon contenant 300 t de scintillateur liquide organique (figure 8). Elle est destinée à détecter les neutrinos solaires ayant une énergie inférieure au MeV. Les électrons produits par la radioactivité des impuretés du liquide scintillant peuvent avoir des énergies du même ordre. Aussi les exigences de pureté sont-elles celles décrites ci-dessus.

L'expérience KamLAND [13], installée dans une mine de fer au Japon, a été conçue initialement pour détecter les antineutrinos produits par les réacteurs nucléaires dont l'énergie est supérieure à 2 MeV. L'énergie permet de discriminer les électrons produits par les neutrinos et les électrons de radioactivité. Aussi, la pureté requise du liquide scintillant est-elle moins sévère que pour l'expérience BOREXINO. Son résultat a néanmoins permis de préciser nos connaissances sur les oscillations des neutrinos.

Aujourd'hui et demain

La piste ouverte par l'expérience pionnière de Reines et Cowan a été suivie quand il s'est agi d'étudier une autre propriété surprenante des neutrinos, leur transformation d'une espèce de neutrino en une autre.

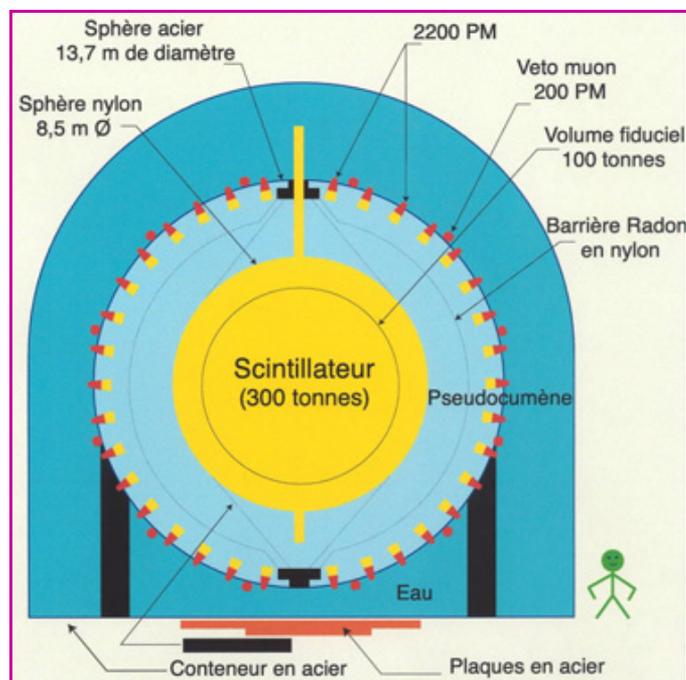


Figure 8 - La sphère du détecteur BOREXINO (schématisée).

Ses 2 200 photomultiplicateurs regardent vers l'intérieur où l'on peut voir les deux enceintes en nylon gonflées et prêtes à recevoir respectivement, pour la plus intérieure, le liquide scintillant constituant la cible et pour l'extérieure, le pseudocumène qui sert de bouclier contre les rayonnements ionisants résiduels. Le volume fiduciel est le volume intérieur de la cible dans lequel on reconstruit par programme le point d'interaction (X,Y,Z).

C'est ainsi que des expériences furent conduites auprès du réacteur à haut flux à Grenoble (Institut Laue-Langevin), des centrales EDF du Bugey et de Chooz, à Gösgen (Suisse), et au Japon (expérience KamLAND [13]). Plusieurs de ces expériences optèrent pour un liquide scintillant homogène assurant aussi la fonction de capture des neutrons. Cela imposa des développements pour trouver les bonnes conditions chimiques permettant que des atomes de bore, cadmium, lithium et gadolinium (éléments neutrophages) soient présents à des concentrations de quelques ‰ en masse tout en préservant les qualités optiques des cocktails scintillants. Ces recherches furent laborieuses et parsemées d'échecs ; au moins pour les physiciens, il ne paraît pas certain que l'on sache réaliser des liquides scintillants présentant les caractéristiques optimales.

Récemment, dans le projet LENS⁽³⁾, plusieurs idées reposaient sur des cibles sensibles aux neutrinos solaires (Yb, Gd, In) [8] ; le noyau résultant de l'interaction du neutrino est produit dans un état nucléaire instable qui se désexcite avec des temps inférieurs à 100 ns, soit un temps comparable à la fluorescence. Pour cette application, les physiciens auraient souhaité dissoudre dans un liquide scintillant des concentrations d'environ 8 à 10 % (g/g) de ces métaux lourds. La quantité totale de ces métaux devait approcher 5 à 10 tonnes au moins pour obtenir un taux d'interaction d'un par jour. De grands progrès ont été faits aboutissant au choix de ligands prometteurs comme des carboxylates ou des β -dicétones qui autorisent la mise en solution de ces métaux sous forme de complexes métalliques dans les liquides aromatiques scintillants (pseudocumène). En dépit de ces progrès, les performances globales sont insuffisantes pour faire une mesure significative des neutrinos solaires.

L'expérience SNO⁽⁴⁾ (au Canada) a grandement contribué à résoudre l'énigme des neutrinos solaires, en démontrant que tous les neutrinos en provenance du Soleil qui semblaient manquer, s'étaient transformés pendant leur voyage en neutrinos d'une autre espèce [21]. Le détecteur est constitué d'une sphère en acrylique de 12 m de diamètre contenant 1 000 t d'eau lourde ultra pure, elle-même immergée dans un réservoir (22 m de diamètre, 34 m de haut) d'eau légère très pure, le tout scruté par 9 600 photomultiplicateurs. Cette expérience est installée dans une mine de nickel en activité à environ 2 000 m sous terre et comme pour l'expérience BOREXINO, les exigences de pureté radioactives sont drastiques ; selon leur espèce, les neutrinos induisent avec le deutérium de l'eau lourde des réactions nucléaires différentes dont certaines créent des neutrons. La détection de ces neutrons a nécessité de dissoudre deux tonnes de chlorure de sodium hautement purifié. La prouesse est de conserver la pureté évoquée ci-dessus pendant l'opération de ce détecteur à eau lourde salée. Il faut aussi être capable de retirer en quelques jours tout le sel dissous pour restaurer la pureté initiale de l'eau lourde de façon à pouvoir entreprendre une autre méthode de détection des neutrons à l'aide de compteurs proportionnels à hélium 3 plongés dans l'eau.

La stabilité chimique des liquides organiques scintillants sur une longue période est une exigence de nombreuses expériences de détection de neutrinos. Les expériences actuelles et futures sont de grandes tailles et durent plusieurs années afin d'enregistrer des données en nombre suffisant pour qu'elles soient statistiquement significatives et contribuent à l'exploration des subtilités de cette physique. Pendant la durée de l'expérience, les caractéristiques physiques et chimiques du détecteur scintillateur liquide doivent être stables, ou au minimum, varier lentement. L'expérience passée montre que les liquides scintillants, cocktails de plusieurs composés, sont soumis à un vieillissement dont la cinétique est difficile à contrôler. Des tests de stabilité réalisés en augmentant la température dans une étuve à 40-50 °C permettent une accélération de ce vieillissement pour mieux l'étudier. De plus, cette stabilité doit être maintenue au contact des parois des réservoirs contenant le liquide organique. Des réactions chimiques de dégradation sont en effet possibles à l'interface solide-liquide. Le choix d'un couple liquide-paroi est donc également l'objet de tests nombreux où il faut non seulement que les propriétés optiques du liquide scintillant (fluorescence, transmission) ne changent pas dans le temps, mais aussi que l'enveloppe (nylon, acrylique) garde sa transparence et ses qualités mécaniques.

Conclusion

En cette année 2005, consacrée à la physique pour commémorer les papiers essentiels d'Einstein écrits en 1905, il est amusant de constater l'apport des techniques chimiques aux recherches les plus pointues sur les neutrinos. Ces recherches communes s'inscrivent dans un contexte plus vaste où la chimie a permis l'isolation et l'identification de nombreux éléments radioactifs pendant une grande partie du XX^e siècle.

La découverte expérimentale des neutrinos se fit à l'aide de liquides scintillants, subtils mélanges d'aromatiques. La saga des neutrinos solaires, initiée par un chimiste, contribua au développement de techniques fort simples, mais aux prouesses incroyables. Les expériences actuelles (SuperKamioKande, KamLAND [13], BOREXINO [20]) ont dû pousser

les techniques de purification en éléments radioactifs à des niveaux jamais atteints auparavant, et, corrélativement, mesurer ces éléments traces avec une sensibilité inégalée.

La chimie aura donc joué un rôle absolument essentiel dans la découverte et l'étude des neutrinos, et c'est fort justement que Raymond Davis Jr., ce grand chimiste, reçut le prix Nobel de physique en 2002.

Notes et références

- (1) GNO : Gallium Neutrino Observatory.
 (2) NEMO : Neutrino Ettore Majorana Observatory.
 (3) LENS : Low Energy Neutrino Spectroscopy.
 (4) SNO: Sudbury Neutrino Observatory.
 [1] Birks J.B., *The Theory and Practice of Scintillation Counting*, Pergamon Press, Oxford, **1964**.
 [2] Horrocks D.H., *Applications of Liquid Scintillation Counting*, Academic Press, **1974**.
 [3] Tabata Y., Ito Y., Tagawa S., *Handbook of Radiation Chemistry*, CRC Press, Boca Raton, FL, États-Unis, **1991**.
 [4] Baldacchino G., Vigneron G., Renault J.-P., Pin S., Rémita S., Abedinzadeh Z., Deycard S., Balanzat E., Bouffard S., Gardès-Albert M., Hickel B., Mialocq J.-C., A nanosecond pulse radiolysis study of the hydrated electron with high energy carbon ions, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, **2003**, B209, p. 219.
 [5] Baldacchino G., Vigneron G., Renault J.-P., Pin S., Abedinzadeh Z., Deycard S., Balanzat E., Bouffard S., Gardès-Albert M., Hickel B., Mialocq J.-C., A nanosecond pulse radiolysis study of the hydrated electron with high energy ions with a narrow velocity distribution, *Chem. Phys. Lett.*, **2004**, 385, p. 66.
 [6] Mialocq J.-C., Fundamentals of interaction between light and matter, *Homogeneous Photocatalysis*, M. Chanon (ed), John Wiley & Sons, **1997**, chap. 2.
 [7] Masetti F., Elisei F., Mazzucato U., Optical study of a large-scale liquid-scintillator detector, *Journal of Luminescence*, **1996**, 68, p. 15.
 [8] Raghavan R., New prospects for real-time spectroscopy of low energy electron neutrinos from the Sun, *Phys. Rev. Lett.*, **1997**, 78, p. 3618.
 [9] Buck C. *et al.*, Development of an optical pure Indium beta-diketonate for the scintillator of an ¹¹⁵In-loaded solar neutrino detector, *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, **2003**, 258(2), p. 255.
 [10] Buck C. *et al.*, Development of In-loaded liquid scintillators for solar neutrino detectors, *Nucl. Phys. B (Proc. Suppl.)*, **2005**, 143, p. 487.
 [11] Cowan C.L. Jr., Reines F., Harrison F.B., Anderson E.C., Hayes F.N., Large liquid scintillation detectors, *Phys. Rev.*, **1953**, 90, p. 493.
 [12] Cowan C.L. Jr., Reines F., Harrison F.B., Kruse H.W., McGuire A.D., Detection of the free neutrino: a confirmation, *Science*, **1956**, 124, p. 103.
 [13] Eguchi K. *et al.* (KamLAND Collaboration), First results from KamLAND: evidence for reactor antineutrino disappearance, *Phys. Rev. Lett.*, **2003**, p. 90021802.
 [14] Ardellier-Desages F. *et al.*, *Letter of Intent Double-Chooz*, **2004**, hep-ph/0405032.
 [15] Cleveland B.T. *et al.*, Measurement of the solar electron neutrino flux with the homestake chlorine detector, *Astrophysical Journal*, **1998**, 496, p. 505.
 [16] Kuz'min V.A., Detection of solar neutrino by means of the ⁷¹Ga(ν_e, e^-) ⁷¹Ge reaction, *Sov. Phys. JEPT*, **1966**, 22, p. 1051.
 [17] Henrich E., Ebert K.H., The chemistry of Gallex - Measurement of solar neutrinos with a radiochemical gallium detector, *Angew. Chem. Int. Ed. Engl.*, **1992**, 31, p. 1283.

- [18] Tikhomirov A., Modern tendencies in the enrichment of stable isotopes and their applications in the USSR and elsewhere, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, **1992**, B70, p. 1.
 [19] Arnold R. *et al.*, Testing the Pauli exclusion principle with the NEMO2 detector, *Nucl. Phys. B (Proc. Suppl.)*, **2000**, 87, p. 510.
 [20] Borexino Collaboration, Measurements of extremely low radioactivity levels in BOREXINO, *Astroparticle Physics*, **2002**, 18, p. 1.
 [21] Ahmad Q.R. *et al.*, Measurement of the rate of $\nu_e + d \rightarrow p + p + e^-$ interactions produced by ⁸B solar neutrinos at the Sudbury Neutrino Observatory, *Phys. Rev. Lett.*, **2001**, 87, p. 071301.

Article soumis le 12/12/2004, accepté le 19/04/2005.

Pour en savoir plus

- Cribier M., Spiro M., Vignaud D., *La lumière des neutrinos*, Éditions du Seuil, février **1995**.
- McDonald A., Klein J., Wark D., L'énigme des neutrinos solaires résolue, *Pour la Science*, octobre **2003**, 312, p. 50.
- Lasserre T., Vignaud D., La mystérieuse identité des neutrinos, *Pour la Science*, octobre **2003**, 312, p. 58.



A. de Bellefon

Alain de Bellefon¹

est physicien des particules au Laboratoire d'astroparticule et cosmologie (APC) de l'IN2P3-CNRS*.



M. Cribier

Michel Cribier²

est chercheur au Commissariat à l'Énergie Atomique et est aussi membre de l'APC*.



J.-C. Mialocq

Jean-Claude Mialocq

est physico-chimiste au Commissariat à l'Énergie Atomique**.

* Astroparticule et Cosmologie, UMR 7164, 11 place Marcelin Berthelot, 75231 Paris Cedex 05.

¹ Tél. : 01 44 27 14 58. Fax : 01 43 54 69 89.

Courriel : bellefon@cdf.in2p3.fr

² Tél. : 01 69 08 35 48. Fax : 01 69 08 64 26.

Courriel : mcriber@cea.fr

** CEA Saclay, DSM/DRECAM/SCM/URA 331 CNRS, 91191 Gif-sur-Yvette Cedex.

Tél. : 01 69 08 55 21. Fax : 01 69 08 34 66.

Courriel : mialocq@drecam.cea.fr

Nouvelle collection d'entretien avec les scientifiques

A l'occasion de l'Année mondiale de la physique, deux nouveaux livres à écouter viennent de paraître aux éditions De Vive Voix, en collaboration éditoriale avec le magazine *La Recherche* :

- *Les objets de mémoire*, avec Pierre-Gilles de Gennes (prix Nobel de physique 1991) : de la matière molle aux objets de mémoire, l'itinéraire d'un des plus grands scientifiques français (75 min, 14,90 €).

- *Atomes et lumières*, avec Claude Cohen-Tannoudji (prix Nobel de physique 1997) : un demi-siècle d'évolution de la physique quantique au travers d'un témoignage unique (77 min, 14,90 €).



• Disponibles en librairie et à la Fnac.

Extraits sonores à écouter sur www.devivevoix.fr