



HAL
open science

**Étude d'une nouvelle génération de dosimètre basée sur
les détecteurs photostimulables type BaFBr(Eu) :
caractérisation et application à la dosimétrie
environnementale et personnelle**

Dounia Mouhssine

► **To cite this version:**

Dounia Mouhssine. Étude d'une nouvelle génération de dosimètre basée sur les détecteurs photostimulables type BaFBr(Eu) : caractérisation et application à la dosimétrie environnementale et personnelle. Physique [physics]. Université Louis Pasteur - Strasbourg I, 2004. Français. NNT: . tel-00390708

HAL Id: tel-00390708

<https://theses.hal.science/tel-00390708>

Submitted on 2 Jun 2009

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

THÈSE

Présentée pour obtenir le grade de

Docteur de l'Université Louis Pasteur-Strasbourg I

Discipline : **Physique**

Présentée par : **Dounia MOUHSSINE**

***Étude d'une nouvelle génération de dosimètre
basée sur les détecteurs photostimulables type
BaFBr(Eu) : caractérisation et application à la
dosimétrie environnementale et personnelle***

Date de soutenance le 16 décembre 2004

Membres du jury

- Directeur de thèse : M. A. NOURREDDINE, Université Louis Pasteur, Strasbourg
Examineur : M. C. BECK, Institut de Recherches Subatomiques, Strasbourg
Rapporteur externe : M. M. FROMM, Université de Franche-Comté, Besançon
Rapporteur externe : M. S. FAKHI, Université Hassan II, Casablanca
Rapporteur interne : M. D. HUSSON, Université Louis Pasteur, Strasbourg
Invité : M. F. FERNANDEZ, Université Autonome de Barcelone

Remerciements

Je tiens à remercier Monsieur D. Huss, Directeur de l'Institut de Recherches Subatomiques (IReS) qui m'a donné l'opportunité de faire cette thèse. De la même manière, je remercie Monsieur A. Nourreddine, de m'avoir accueillie au sein de son équipe de Radioprotection et Mesures Environnementales (RaMsEs) et encadrée tout au long de mon travail.

J'exprime ma profonde gratitude à tous ceux qui m'ont fait l'honneur d'accepter de rapporter cette thèse : Monsieur M. Fromm qui m'a fait l'immense privilège de tenir le rôle de président, Messieurs D. Husson et S. Fakhfi qui ont consacré une partie de leur temps à la lecture approfondie de mon manuscrit. Les connaissances de Monsieur F. Fernandez en radioprotection se sont avérées très utiles et je le remercie encore une fois d'avoir accepté d'être un membre invité de mon jury de thèse. J'exprime mes remerciements et ma profonde et respectueuse gratitude à Monsieur C. Beck, qui a accepté d'examiner cette thèse. Naturellement, j'ai maintenant envie de remercier à nouveau mon directeur de thèse A. Nourreddine.

Merci Messieurs, votre présence fut un grand honneur pour moi et vos remarques ont permis de compléter ce mémoire.

Je tiens également à remercier très chaleureusement Monsieur A. Pape qui a toujours montré une grande disponibilité durant ces trois dernières années. J'ai pu bénéficier de son immense expérience et de ses critiques constructives, conférant son aspect final à ce travail.

Je remercie tous les membres du groupe RaMsEs de l'aide qui m'ont apportée de près ou de loin à la réalisation de ce mémoire. Je voudrais citer, mesdames L. Caillat, S. Kihel, L. Mougin, M.A. Plage, M.A. Saettel et Messieurs N. Busser, O. Courson, T. Foehrenbacher, D. Oster, E. Schaeffer, A. Sellam.

J'exprime mes sincères remerciements à Monsieur A. Nachab, qui a su me faire partager ses connaissances. Qu'il trouve ici le témoignage de mon amitié.

Enfin, je voudrais remercier ma famille qui m'a soutenu et encouragé dans la poursuite de mes études. Un merci spécial à mon cher papa, sans qui cette thèse n'aurait pas pu voir le jour.

Merci à tous ceux que j'ai malencontreusement oubliés !

*Je dédie cette thèse
à mes parents, à mes sœurs et à mon frère
en témoignage de ma reconnaissance*

Table des matières

Introduction.....	5
Chapitre 1 : INTERACTIONS RAYONNEMENT-MATIERE ET GRANDEURS DOSIMETRIQUES	
1.1- Classification des rayonnements	11
1.2- Interaction des particules chargées avec la matière.....	14
1.2.1- Transfert linéique d'énergie (TLE).....	14
1.2.2- Perte d'énergie des particules α	14
1.2.3- Parcours des particules chargées	15
1.3- Interactions photon-matière	17
1.3.1- Effet photoélectrique	18
1.3.2- Effet Compton	18
1.3.3- Effet de création de paires	19
1.4- Sections efficaces d'interactions	20
1.5- Coefficient d'atténuation d'un faisceau de photons	23
1.6- Interactions neutron-matière.....	24
1.6.1- Propriétés des neutrons	24
1.6.1.1- Neutrons thermiques.....	25
1.6.1.2- Neutrons intermédiaires.....	25
1.6.1.3- Neutrons rapides	25
1.6.2- Interactions des neutrons avec la matière.....	26
1.6.2.1- Réactions de fission (n, f).....	26
1.6.2.2- Réactions nucléaires (n, x).....	28
1.6.2.3- Diffusion inélastique (n, n'), (n, n' γ)	28
1.6.2.4- Captures radiatives (n, γ)	29
1.6.2.5- Réactions de capture (n, 2n), (n, p), (n, α)	29
1.6.2.6- Diffusions élastiques (n, n).....	31
1.7- Grandeurs et unités en dosimétrie et radioprotection	33
1.7.1- Grandeurs physiques.....	34
1.7.2- Grandeurs dosimétriques	34
1.7.3- Grandeurs de protection.....	35
1.7.4- Grandeurs opérationnelles	39

Chapitre 2 : DOSIMETRIE ET PRINCIPES DE MESURE

2.1- Dosimètres actifs	48
2.1.1- Dosimètres à gaz.....	48
2.1.2- Dosimètres électroniques à diode.....	49
2.1.3- Détecteurs scintillateurs.....	51
2.2- Dosimètres passifs	52
2.2.1- Détecteur Solide de Traces Nucléaires.....	52
2.2.1.1- DSTN type LR115.....	53
2.2.1.2- DSTN type PADC.....	53
2.2.1.3- Critères de visualisation des traces.....	56
2.2.1.4- Formation des traces latentes.....	56
2.2.1.5- Géométries des traces enregistrées dans les DSTN.....	57
2.2.2- Dosimètres luminescents	58
2.2.2.1- Description des processus de luminescence	59
1- Fluorescence et phosphorescence.....	59
2- Luminescence spontanée.....	60
3- Luminescence forcée.....	60
4- Luminescence de recombinaison.....	60
5- Electroluminescence.....	61
6- Chimiluminescence.....	61
7- Photoluminescence.....	62
2.2.2.2- Lois de la luminescence.....	62
1- Rendement énergétique de luminescence.....	63
2- Rendement quantique de photoluminescence.....	63
2.2.2.3- Dosimètres à films photographiques.....	64
2.2.2.4- Dosimètres thermoluminescents.....	65
2.2.2.5- Dosimètres radiophotoluminescents.....	66
2.2.2.6- Films photostimulables.....	67
1- Principe physique.....	67
2- Principe de lecture.....	68
3- Centres colorés.....	68
4- Critère de sélection.....	69
5- Mécanismes de photostimulation dans le BaFX.....	69
2.3- Système de détection et de lecture.....	72
2.3.1- Détecteur BaFBr:Eu ²⁺	72
2.3.2- Système de mise à zéro.....	73
2.3.3- Système de lecture.....	73
2.3.4- Acquisition du signal.....	74
2.3.5- Traitement des données numériques.....	75

Chapitre 3 : FONCTION DE REPONSE DES DOSIMETRES BaFBr:Eu²⁺ AUX NEUTRONS ET RAYONNEMENTS GAMMA

3.1- Caractéristiques du film BaFBr:Eu ²⁺	79
3.1.1- Homogénéité du signal	79
3.1.2- Effets des lectures successives	81
3.1.3- Reproductibilité du signal.....	82
3.1.4- Evolution du bruit de fond.....	85
3.2- Réponse et seuil de détection des rayons γ	87
3.3- Dosimètre neutronique	88
3.3.1- Configuration du dosimètre BaFBr:Eu ²⁺	88
3.3.2- Définition d'équilibre protonique	90
3.3.3- Analyse par microscope électronique à balayage.....	90
3.3.4 - Simulation Monte Carlo	93
3.3.4.1- Historique	93
3.3.4.2- Codes de Simulation Monte Carlo.....	94
3.3.4.3- Principes généraux du Code MCNP	95
3.3.4.4- Principes du Code ProT.....	98
3.3.4.4.1- Parcours du proton.....	99
3.3.4.5- Exploitation des Résultats	100
3.4- Evolution vers un dosimètre ambiant	102
3.4.1- Homogénéité et reproductibilité du signal.....	102
3.4.2- Correction du fading	104
3.4.3- Réponse et seuil de détection aux neutrons rapides	107
3.4.4- Seuil de détection.....	109
3.4.5- Fading durant l'exposition.....	111
3.4.6- Vérifications avec d'autres sources de neutrons.....	112
3.4.7- Evaluation du seuil de détection en énergie	113
3.5- Evolution vers un dosimètre personnel	115
3.5.1- Dépendance angulaire.....	115
3.5.2- Exploitation des résultats.....	117
3.6- Conclusions	122

Chapitre IV : APPLICATION DES BaFBr:Eu²⁺ A LA DOSIMETRIE ALPHA

4.1- Détection des particules α par le BaFBr:Eu ²⁺	125
4.1.1- Protocole expérimental	126
4.1.2 - Signature de détection des particules α par BaFBr:Eu ²⁺	128
4.2- Probabilité de détection	131
4.3- Angle critique d'enregistrement	132
4.4- Réponse aux particules α	134
4.5- Fading	135

4.6- Application aux mesures du radon	137
4.6.1- Généralités sur le radon	137
4.6.2- Techniques de mesure du radon	139
4.6.2.1- Chambre à ionisation impulsionnelle	140
4.6.2.2- Chambre d'ionisation à Téflon (Electret)	141
4.6.2.3- Mesures préliminaires de l'activité volumique radon	142
4.7- Exploitation des résultats	143
4.7.1- Chambres à ionisation	143
4.7.2- LR115	144
4.7.3- BaFBr:Eu ²⁺	145
4.7- Conclusions	146
Conclusion générale	147
Références	155

Introduction

Un des objectifs de la radioprotection est de déterminer le risque potentiel des rayonnements ionisants de façon à s'en protéger efficacement. La dosimétrie occupe une place importante dans la mission de radioprotection. Elle permet de mesurer le risque lié à l'utilisation des rayonnements directement ou indirectement ionisants en terme de grandeurs telles que l'équivalent de dose ou la dose efficace et de mettre en perspective les résultats de cette quantification avec les limites réglementaires.

La mise en application des nouveaux textes réglementaires relatifs à la protection des travailleurs contre les rayonnements ionisants, nécessite l'utilisation d'appareillages spécifiques de dosimétrie externe de plus en plus performants.

Les dosimètres en usage actuellement se répartissent en deux grandes catégories: ceux qui produisent une mesure de dose intégrée (émulsions photographiques, détecteurs solides de traces nucléaires, détecteurs thermoluminescents, ...), et ceux à mesure impulsionnelle (chambres à ionisation, diodes silicium, ...). Le film photographique est certainement le dosimètre passif le plus connu et permet la mesure de l'exposition externe de plusieurs centaines de milliers de travailleurs en France.

Le sujet de ce travail s'inscrit dans le cadre des activités R & D du groupe Radioprotection et Mesures Environnementales (RaMsEs) de l'Institut de Recherches Subatomiques (IReS). Il concerne principalement la caractérisation et la mise en place d'un nouveau système dosimétrique pour les rayonnements α , γ et neutrons répondant aux nouvelles recommandations de la Commission Internationale de Protection Radiologique (CIPR). Ce système est fondé sur l'utilisation des détecteurs photostimulables, films radioluminescents à mémoire, qui présentent certaines avantages par rapport aux dosimètres classiques.

Le présent manuscrit est scindé en quatre chapitres. Le premier expose un aperçu général sur les processus d'interaction rayonnement-matière (rayonnement γ , neutron et particules chargées) et les principales grandeurs physiques, radiométrique et dosimétriques (protection et opérationnelles) utilisées dans le domaine de la radioprotection et de la dosimétrie.

Le deuxième chapitre fera l'objet d'une brève présentation des diverses méthodes de détection des rayonnements à base de semi-conducteurs, de détecteurs solides de traces nucléaires, et des luminophores (film photographique, détecteur thermoluminescent et film photostimulable). L'accent sera mis principalement sur la technique basée sur des films photostimulables et plus particulièrement sur la description du système constitué d'un film Fuji™ et d'un lecteur DenOptix mis en oeuvre dans le présent travail.

Le troisième chapitre est consacré à la présentation et à la discussion des résultats expérimentaux obtenus avec les dosimètres mis au point au laboratoire, ainsi que des études des différents paramètres caractérisant notre système de détection, notamment des films de BaFBr:Eu²⁺ irradiés par les rayonnements γ et neutrons. Les résultats expérimentaux seront confrontés aux calculs de simulation Monte Carlo réalisés à l'aide du code MCNP (Monte Carlo N-Particles). Cette partie contient des résultats originaux qui peuvent être exploités en dosimétrie passive personnelle et environnementale.

Dans le quatrième chapitre, après une revue générale sur le radon (propriétés, origine et risques sanitaires) et les différentes méthodes actives et passives de mesure des concentrations du radon et ses descendants via les émetteurs α , nous exposerons les premiers tests de l'étude de faisabilité de ce système pour la détection du signal radon. Les résultats préliminaires montrent la faisabilité de ce nouveau type de dosimétrie alpha passive et ouvre des perspectives intéressantes dans le domaine de la métrologie des rayonnements ionisants.

Chapitre 1

INTERACTIONS RAYONNEMENT- MATIERE ET GRANDEURS DOSIMETRIQUES

On peut définir un rayonnement comme un mode de propagation de l'énergie dans l'espace, sous forme de particules ou de photons. Les rayonnements ne peuvent être caractérisés et détectés qu'à travers leurs interactions avec la matière dans laquelle ils se propagent. Ils peuvent céder au milieu traversé, une partie ou la totalité de leur énergie. Sauf pour l'effet photoélectrique toute l'énergie n'est pas déposée sur une cible unique ; des phénomènes d'excitation de la matière ont lieu et conduisent à une perte de l'énergie incidente. Le milieu absorbant subit donc des modifications dues à l'absorption des rayonnements.

1.1- Classification des rayonnements

On peut classer les rayonnements en deux catégories selon leur nature et selon leurs effets sur la matière. La **figure** ci-dessous résume les différents types de rayonnements.

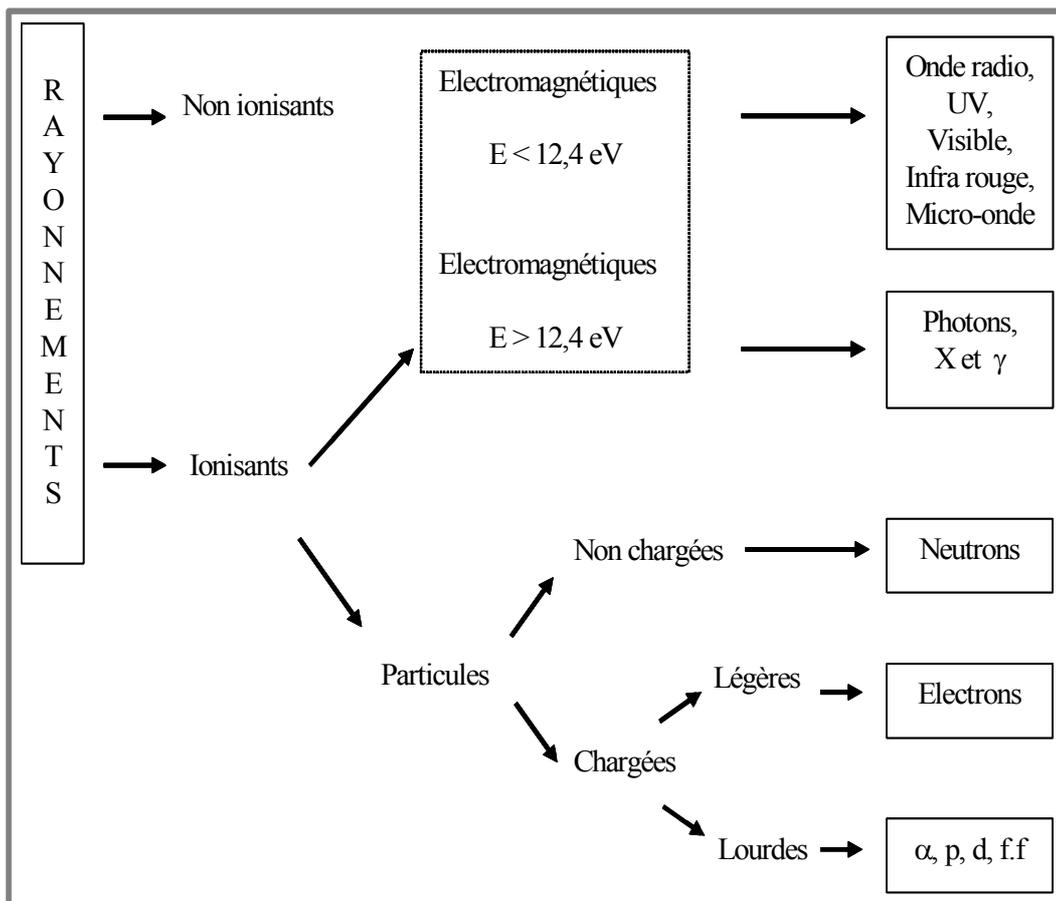


Figure 1.1 : Classification des rayonnements

Dans le domaine de la radioprotection et de la dosimétrie, on distingue :

a) Les rayonnements ionisants dont l'énergie est suffisante pour arracher un électron aux atomes du milieu absorbant et les transformer en ions positifs. L'atome le plus facilement ionisable est le potassium, avec une énergie d'ionisation de 4,3 eV. L'énergie de liaison des électrons les moins liés des atomes de la matière vivante (H, C, N, O) est 12,4 eV. Tout rayonnement d'une longueur d'onde inférieure à 288 nm peut donc être considéré comme ionisant.

Les rayonnements ionisants sont constitués, soit d'ondes électromagnétiques, soit de particules massives. Ces rayonnements peuvent être, selon leur nature, directement ou indirectement ionisants :

- **Les rayonnements directement ionisants** sont des particules chargées qui délivrent leur énergie directement à la matière, par le jeu des forces coulombiennes s'exerçant avec les atomes du milieu. Les transferts d'énergie dépendent des masses des particules en mouvement et il y a lieu de distinguer les particules chargées lourdes (proton, deuton, alpha, ions lourds) des électrons.
- **Les rayonnements indirectement ionisants**, électriquement neutres, sont susceptibles de transférer une fraction ou la totalité de leur énergie en une seule interaction à des particules chargées. Ce sont ensuite ces particules secondaires qui ionisent le milieu. Dans ce cas, l'ionisation se fait en deux étapes.

Les rayonnements électromagnétiques (X et γ) et les neutrons entrent dans cette catégorie, mais leurs modes d'interaction sont différents.

L'étude quantitative de l'action des rayonnements ionisants entre dans le domaine de la radioprotection et de la dosimétrie. Elle est fondée sur la mesure de l'ionisation que ces rayonnements produisent dans le milieu traversé, par le biais de l'exposition, soit par la mesure de l'énergie qu'ils communiquent à la matière en la traversant soit par la dose absorbée. Si les rayonnements ionisants cèdent, en totalité ou en partie, leur énergie à la matière traversée, cette dernière subit en retour des modifications physiques, chimiques et thermiques.

b) Les rayonnements non ionisants qui sont les ondes électromagnétiques n'ayant pas une énergie suffisante pour ioniser les atomes. Le rayonnement non ionisant utilisé dans ce travail est le LASER hélium-néon.

Les LASERs présentent la particularité d'émettre un faisceau de lumière cohérente et dirigée. Lorsqu'un rayon LASER touche un objet, l'énergie de rayonnement est concentrée sur un point d'impact. Les LASERs peuvent émettre de la lumière dans l'ensemble du spectre lumineux visible ou invisible, allant de l'infrarouge lointain à l'ultraviolet lointain (longueur d'onde: 180 à 10^6 nm (**Tableau 1.1**)).

Type de LASER	Longueur d'onde principale
Argon fluorure	193 nm
Xénon chlorure	308 nm
Argon ion	488-514,5 nm
Cuivre vapeur	510-578 nm
Or vapeur	628 nm
Hélium-néon	632,8 nm
Krypton ion	568-647 nm
Neodymium-YAG	1064 nm
Carbone dioxyde	1334- 10^6 nm

Tableau 1.1 : Longueur d'onde de la lumière émise par différents LASERs

Ces dernières années, l'utilisation des LASERs dans le domaine médical et scientifique a connu une expansion importante. Ils sont également classés en quatre catégories, selon le niveau de risque encouru (**Tableau 1.2**).

Classe	Dangers	Description	Exemples
1	pas de danger	intrinsèquement sûrs	lasers munis d'un blindage
2	faible, le réflexe des paupières protège les yeux, puissance limitée	rayonnement totalement visible, puissance < 1mW, l'exposition des yeux lors d'une illumination de 0,25 s est inférieure aux seuils admissibles	système de scanner de supermarchés
3A	modéré, en l'absence d'instruments d'optique (p.ex lentilles convergentes), les dommages possibles sont limités	le rayon n'est pas focalisé la puissance est limitée à 5 mW	
3B	important, le rayonnement peut causer des lésions oculaires, même après un bref temps d'exposition	puissance maximale de 0,5 W	
4	critique, le rayonnement direct ou réfléchi est très dangereux pour la peau et les yeux	lasers n'entrant pas dans les classes 1 à 3B, pas de limite de puissance	lasers à usage thérapeutique

Tableau 1.2 : Classification des LASERs

1.2- Interaction des particules chargées avec la matière

1.2.1- Transfert linéique d'énergie (TLE)

En traversant la matière, les particules chargées perdent leur énergie selon différents types d'interactions : les interactions élastiques et inélastiques se font avec les électrons orbitaux et les noyaux atomiques du milieu ralentisseur.

Pour mesurer le ralentissement des particules chargées, on utilise la grandeur TLE qui représente la perte d'énergie, par unité de longueur de trajectoire des particules incidentes, consécutivement à leurs chocs avec les électrons.

L'expression de TLE en mécanique relativiste, est donnée par la formule de Bethe [Bet33] :

$$TLE = \left| -\frac{dE}{dx} \right| = \frac{z^2 e^4}{4\pi \epsilon_0^2 m_e v^2} N Z \left[\log \left(\frac{2m_e v^2}{I} \right) - \log \left(1 - \frac{v^2}{c^2} \right) - \frac{v^2}{c^2} - \frac{C_K}{z} \right] \quad 1-1$$

z , la charge de la particule incidente ; v , sa vitesse ;

m_e , la masse au repos de l'électron ; e , sa charge ;

ϵ_0 , la permittivité du vide : $8,854 \cdot 10^{-10} \text{ F} \cdot \text{cm}^{-1}$;

c , la vitesse de lumière dans le vide : $3 \cdot 10^8 \text{ m/s}$

N , le nombre des noyaux cibles par unité de volume du matériau absorbant de numéro atomique Z ;

C_K , un terme de correction qui dépend de l'énergie et de Z lorsque l'on tient compte de la structure complète des noyaux de la matière ;

I , la valeur moyenne du potentiel d'ionisation tenant compte de l'ionisation et de l'excitation des atomes ralentisseurs, donnée par la formule semi empirique (en eV) :

$$I = 9,1 \times Z \left(1 + 1,9 \times Z^{-2/3} \right) \quad 1-2$$

Bien que les effets biologiques varient d'un rayonnement à un autre, en règle générale, l'effet d'une particule chargée croît proportionnellement au TLE [Att86].

1.2.2- Perte d'énergie des particules α

Pour le cas des particules α de vitesse v_1 , émises durant la désintégration des noyaux et d'énergie comprise entre 2 et 10 MeV, la perte d'énergie se réduit à :

$$TLE = \frac{16 \pi e^4}{m_e v_1^2} N Z \left[\log \frac{2m_e v_1^2}{I} - \frac{C_K}{Z} \right] \quad 1-3$$

Cette expression est valable si les trois conditions suivantes sont réunies :

- il n'y a pas de capture ou de perte d'électrons pendant le passage de la particule,
- le terme $\frac{z_1 e^2}{m_e v_1^2}$ est assez petit pour que la diffusion nucléaire et le rayonnement de freinage puissent être négligés,
- il n'y a pas de polarisation du milieu traversé.

Cette formule donne de bons résultats pour l'évaluation des pertes d'énergie par unité de longueur lorsque l'énergie est supérieure à 1 MeV/u.m.a. Cependant, lorsque la vitesse de la particule devient très faible devant la vitesse de l'électron orbital, par exemple en fin de parcours, la perte d'énergie par interaction dite nucléaire n'est plus négligeable (**Figure 1.2**).

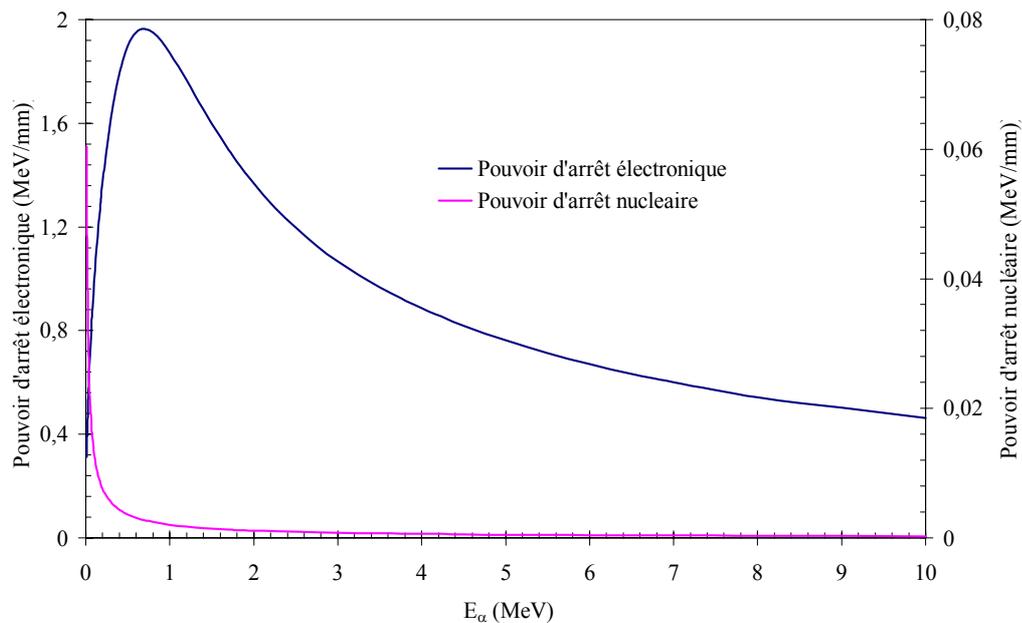


Figure 1.2 : Pouvoirs d'arrêt électronique et nucléaire des particules α dans l'air [Bie03]

1.2.3- Parcours des particules chargées

Le parcours d'une particule chargée dans un matériau donné est le trajet nécessaire pour que cette particule perde complètement son énergie cinétique. Considérons un faisceau de particules chargées initialement monocinétiques d'énergie

E_0 qui pénètre dans un matériau absorbant. Chaque particule incidente a un parcours individuel. Les parcours individuels diffèrent et fluctuent autour d'un parcours moyen \bar{R} , qui est défini par la relation :

$$\bar{R} = \int_0^{\bar{R}} dr \quad 1-4$$

Puisque l'énergie incidente de la particule et l'épaisseur du matériau cible sont interdépendantes, alors on peut les interchanger dans l'équation 1-4 ; on aura donc :

$$\bar{R} = \int_{E_0}^0 \frac{dr}{dE} dE = \int_0^{E_0} \left(-\frac{dE}{dr} \right)^{-1} dE = \int_0^{E_0} \frac{1}{TLE} dE \quad 1-5$$

\bar{R} s'exprime en cm (g/cm^2) si TLE est en MeV/cm ($\text{MeV} \cdot \text{cm}^2/\text{g}$).

La distribution des parcours individuels autour de \bar{R} pour des particules de même énergie cinétique est due aux variations statistiques du nombre total de paires d'ions formées : c'est le phénomène de straggling.

Dans les figures ci-dessous [Bie03] on donne les parcours moyens des particules α dans l'air et dans le polyéthylène. On constate, pour une énergie donnée, que le parcours moyen est mille fois plus court dans le matériau le plus dense.

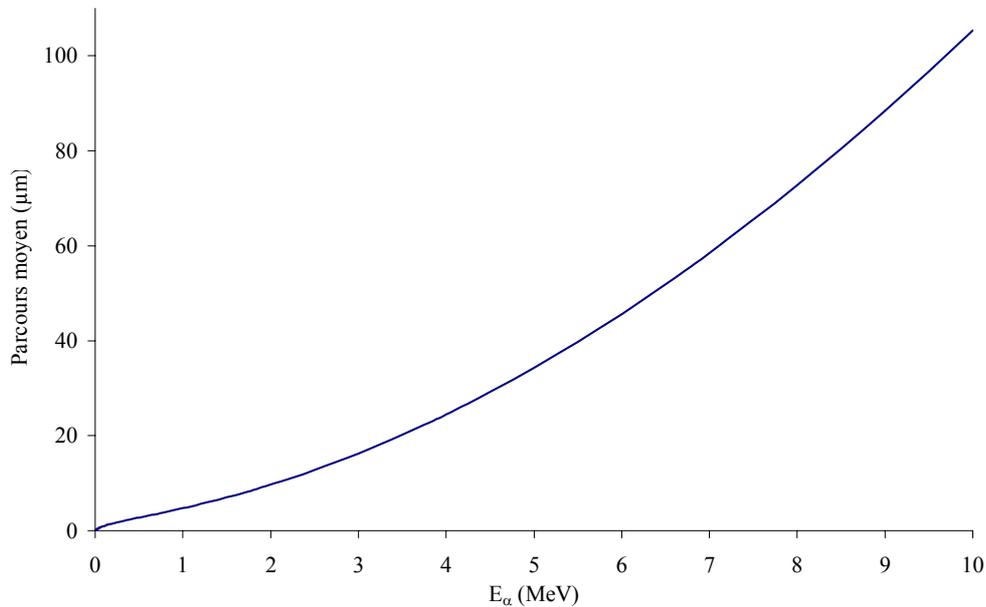


Figure 1.3 : Parcours des particules α dans le polyéthylène [Bie03]

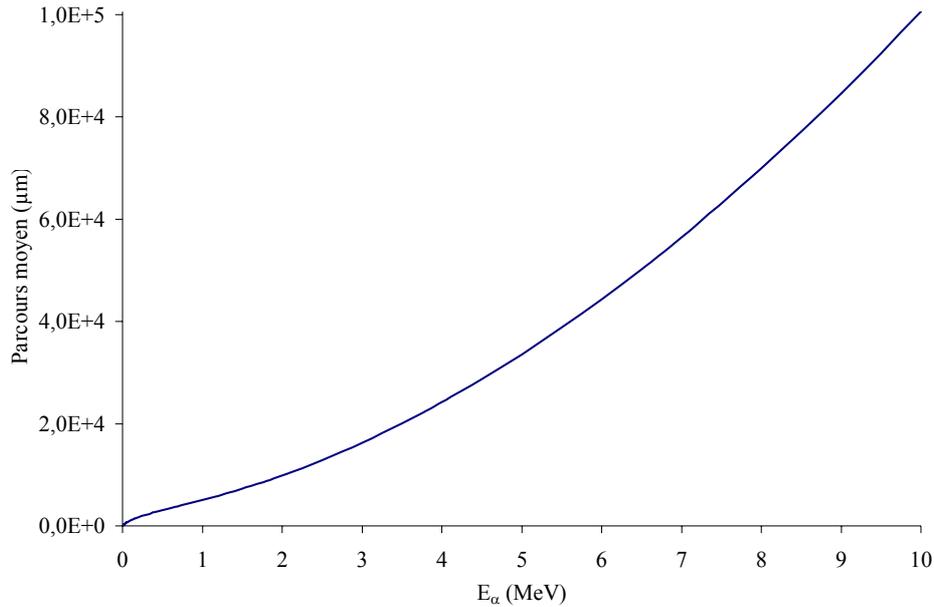


Figure 1.4 : *Parcours des particules α dans l'air [Bie03]*

1.3- Interactions photon-matière

Le terme « photon » s'applique aux rayonnements électromagnétiques émis soit dans les transitions nucléaires « rayons γ », soit dans les transitions atomiques « rayons X ». Lors de la traversée d'un milieu matériel quelconque, tout photon a une certaine probabilité d'interagir avec ce milieu. Cette interaction peut être classée selon :

- la nature d'interaction : photon/électron ou photon/noyau,
- le type de l'événement produit : l'absorption, la diffusion ou la production des paires.

D'autres processus d'interaction moins importants peuvent se produire avec un photon [Coh88], en l'occurrence la diffusion Rayleigh avec un électron lié, la diffusion Thomson avec un électron libre ou la diffusion Delbruck avec le champ Coulombien du noyau.

Dans les trois principaux processus (**Figure 1.5**), il y a toujours émission d'électrons. Le ralentissement de ces électrons le long de leur parcours à travers la matière se traduit par la création de paires de charges électron-trou ou électron-ion. C'est la détection de ces charges qui permet de remonter à l'énergie du photon impliqué dans l'interaction.

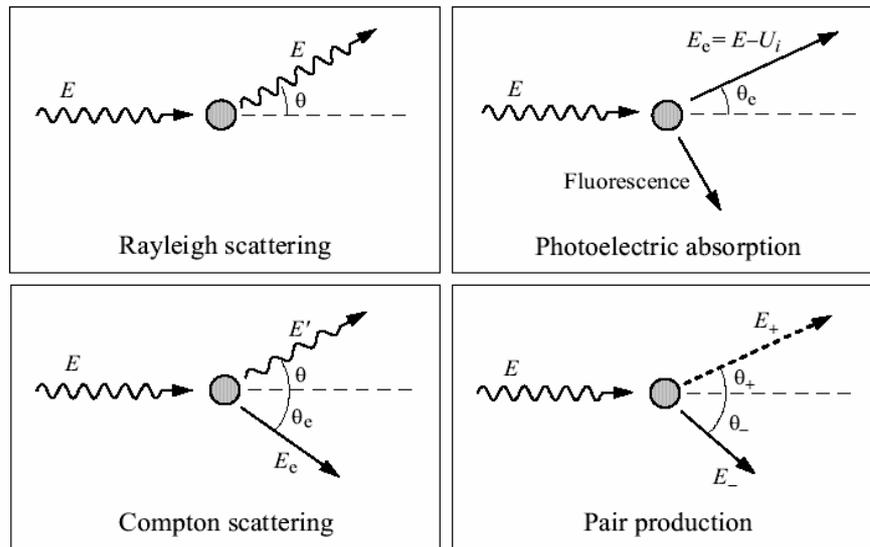


Figure 1.5 : Principaux processus d'interaction photon-matière

1.3.1- Effet photoélectrique

Au cours de l'effet photoélectrique, le photon interagit avec un électron du cortège du noyau, il lui cède totalement son énergie $E = h\nu$ et disparaît. L'électron cible quitte donc sa couche avec une énergie égale à l'énergie du photon diminuée de son énergie de liaison U_1 (Equation 1-6). Après cet événement, l'atome subit un réarrangement au cours duquel, soit un photon de fluorescence est émis, soit un électron est éjecté avec une énergie cinétique E_e (cet électron est appelé électron Auger). Cet effet ne se produit que si $h\nu \geq U_1$ (effet à seuil).

$$E_e = E - U_1 \quad 1-6$$

1.3.2- Effet Compton

Le photon interagit avec un électron que l'on peut considérer comme libre et au repos : cet électron est lié à un atome, mais avec une énergie négligeable devant l'énergie du photon. Après la diffusion inélastique, le photon est diffusé selon l'angle θ par rapport à la direction du photon incident, l'électron reculant selon l'angle θ_e (**Figure 1.5**). La conservation de l'énergie donne :

$$E = E' + E_e \quad 1-7$$

Dans ce processus, la part de l'énergie initiale transmise à l'électron est absorbée au voisinage du point d'interaction. L'énergie diffusée E' pourra donner lieu à d'autres

diffusions Compton [Sie65]. C'est un point capital en dosimétrie; la part de l'énergie diffusée dépend de l'énergie du photon et du numéro atomique du milieu traversé.

La conservation de la quantité de mouvement donne :

$$p = p' \cos\theta + p_e \cos\theta_e \quad 1-8$$

$$0 = -p' \sin\theta + p_e \sin\theta_e \quad 1-9$$

L'énergie du photon diffusé est alors :

$$E' = \frac{E_0}{1 + \varepsilon(1 - \cos\theta)} \quad 1-10$$

avec $\varepsilon = \frac{E}{E_0}$, $E_0 = 0,511$ MeV étant l'énergie au repos de l'électron.

Dans le cas où les photons incidents sont de haute énergie ($E \gg E_0$), pour tous les angles de diffusion, sauf près de 0° , l'énergie du photon diffusé est :

$$E' = \frac{E_0}{1 - \cos\theta} \quad 1-11$$

A partir de l'expression (1-7), on déduit l'énergie de l'électron Compton :

$$E_e = E \frac{2\varepsilon}{1 - 2\varepsilon + (1 + \varepsilon)^2 \operatorname{tg}^2\theta_e} \quad 1-12$$

Les angles de diffusion de l'électron et du photon sont reliés par la relation suivante :

$$\operatorname{cotg}\theta_e = (1 + \varepsilon) \operatorname{tg}\frac{\theta}{2} \quad 1-13$$

1.3.3- Effet de création de paires

L'effet de matérialisation se produit à énergie élevée ($E > 2E_0$). Le photon pénétrant dans le champ Coulombien d'un noyau se matérialise sous forme d'une paire électron-positron (e^-, e^+). L'électron et le positron sont ralentis dans la matière environnante. A la fin de son parcours, le positron interagit avec un électron et s'annihile ce qui engendre l'émission de deux photons de 511 keV. Les lois de conservation du moment cinétique font que ces deux photons sont émis dans des directions opposées.

La conservation de l'énergie s'écrit :

$$E = 2E_0 + E_{e^-} + E_{e^+} \quad 1-14$$

E_{e^-} et E_{e^+} sont respectivement les énergies cinétiques de l'électron et du positron.

1.4- Sections efficaces d'interactions

A chacun de ces modes d'interaction est associé une section efficace, qui dépend de l'énergie des photons incidents et du numéro atomique Z du matériau traversé [Sie65]. L'importance relative de ces trois modes en fonction de E et Z est représentée sur la **figure 1.5**, avec σ_{ph} , σ_c et σ_{pair} les sections efficaces des effets photoélectrique, Comptons et création de paires respectivement.

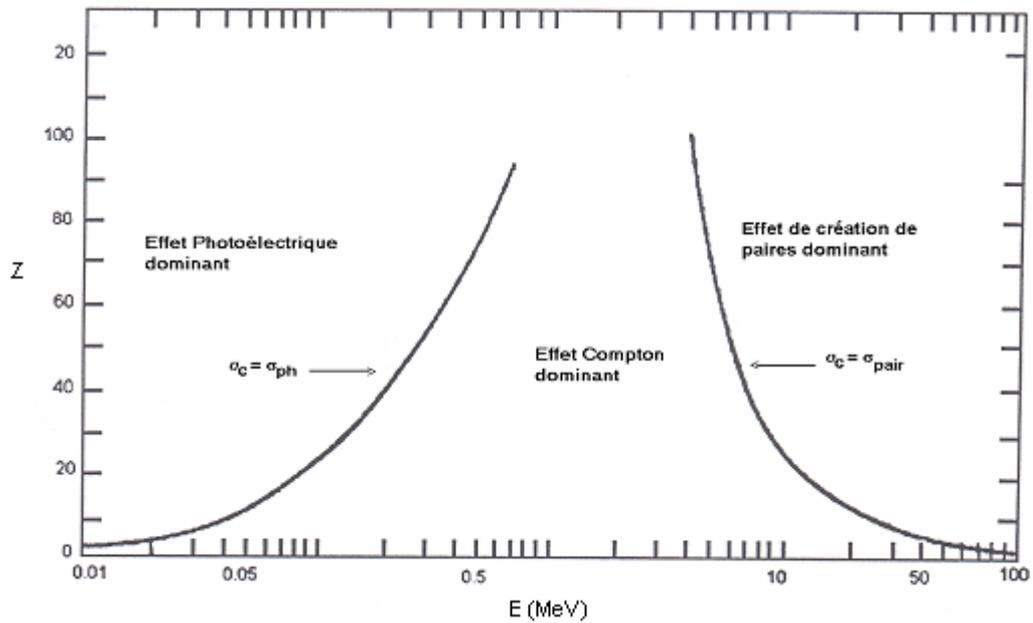


Figure 1.5 : Importance relative des modes d'interaction des rayonnements γ avec la matière

L'interaction des photons avec la matière a comme section efficace la somme de toutes les sections efficaces des différents processus. Elle est donnée par :

$$\sigma_{tot} = \sigma_{ph} + \sigma_c + \sigma_{pair} \quad 1-15$$

o Le processus photoélectrique

Il est prédominant pour des photons de basse énergie, en particulier pour les éléments de Z élevé (**Figure 1.5**). La section efficace pour la couche K est de la forme:

$$\sigma_{Kph} = \frac{8\pi r_0^2}{3} \frac{Z^2}{(137)^4} 4\sqrt{2} (\varepsilon)^{-7/2} \quad 1-16$$

$r_0 = 2,818$ fm est le rayon classique de l'électron.

Quelque que soit la couche, on peut estimer cette section efficace comme suit :

$$\sigma_{\text{ph}} \propto \frac{Z^{4,35}}{E^3} \quad 1-17$$

Pour un élément donné, l'effet photoélectrique diminue lorsque l'énergie du photon incident augmente (**Figure 1.5**).

o Le processus Compton

Pour un traitement complet, la détermination des sections efficaces théoriques, impose d'utiliser pour l'électron la théorie relativiste de Dirac et les équations de Klein et Nishina [**Sie65**]. La section efficace différentielle par angle solide en fonction de l'énergie E du photon incident et de l'angle de diffusion θ est :

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \frac{1}{2} r_0^2 \left\{ \frac{1}{[1 + \varepsilon(1 - \cos\theta)]^2} \left[1 + \cos^2\theta + \frac{\varepsilon^2(1 - \cos\theta^2)}{1 + \varepsilon(1 + \cos\theta)} \right] \right\} \quad 1-18$$

Dans le cas d'interaction à haute énergie, l'électron peut être considéré non lié. La section efficace intégrée est :

$$\sigma_c = 2\pi r_0^2 Z^2 \left[\frac{\varepsilon^2 + 2\varepsilon}{2\varepsilon^3} \log(1 + 2\varepsilon) + \frac{\varepsilon^3 + 9\varepsilon^2 + 8\varepsilon + 3}{\varepsilon^2(1 + 2\varepsilon)} \right] \quad 1-19$$

La **figure 1.6** représente l'allure de la section efficace Compton, composée de deux contributions : la section efficace d'absorption σ_a , représentant la fraction moyenne de l'énergie totale de l'électron diffusé et, la section efficace de diffusion σ_d , représentant l'énergie moyenne transférée à l'électron de recul.

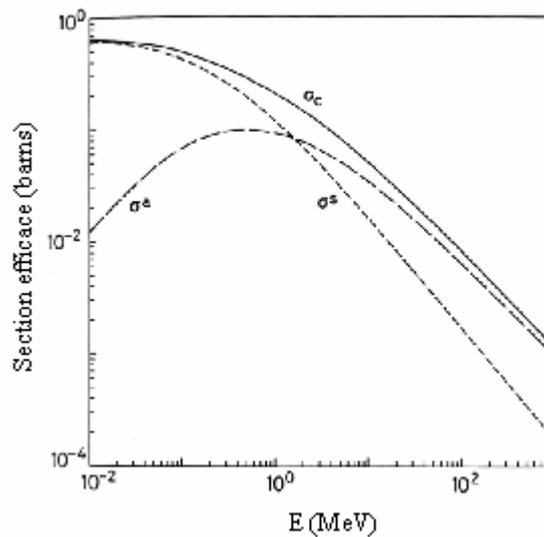


Figure 1.6 : Section efficace totale de la diffusion de Compton

La section efficace différentielle par angle solide de diffusion est donnée par l'expression suivante :

$$\left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right)_d = \frac{E'}{E} \left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right)_c \quad 1-20$$

Après intégration, on en déduit :

$$\sigma_d = \pi r_e^2 \left[\frac{1}{\varepsilon^3} \log(1+2\varepsilon) + \frac{2(1+\varepsilon)(2\varepsilon^2 - 2\varepsilon - 1)}{\varepsilon^2(1+2\varepsilon)^2} + \frac{8\varepsilon^2}{3(1+2\varepsilon)^3} \right] \quad 1-21$$

Dans de nombreux cas, le spectre d'énergie des électrons Compton est important. Si on désigne par f le rapport de l'énergie cinétique de l'électron Compton sur l'énergie du photon incident et en utilisant les équations de Klein et Nishina, on peut remonter à la section efficace totale par unité d'intervalle d'énergie dE_e :

$$\frac{d\sigma_e}{dE_e} = \frac{\pi r_e^2}{m_e c^2 \varepsilon^2} \left[2 + \frac{f^2}{\varepsilon^2(1-f)^2} + \frac{f}{1-f} \left(f - \frac{2}{\varepsilon} \right) \right] \quad 1-22$$

La probabilité pour qu'un photon interagisse avec un atome est proportionnelle au nombre d'électrons Z . Pour un matériau donné, cette probabilité est proportionnelle à la densité d'électrons. Or la masse atomique A est approximativement proportionnelle au numéro atomique Z . L'effet Compton, pour une énergie donnée, est donc approximativement proportionnel à la densité du matériau.

$$\sigma_e \propto \frac{Z}{E} \quad 1-23$$

o Le processus de matérialisation

La section efficace pour la création de paire est rigoureusement nulle si $E < 2E_0$. Lorsque $E > 2E_0$, deux cas doivent être considérés :

$$\sigma_{\text{pair}} = \begin{cases} \alpha r_0^2 Z^2 \left[\frac{28}{9} \log\left(\frac{2E}{E_0}\right) - \frac{218}{27} \right] & \text{si } 2E_0 \leq E < \frac{E_0}{\alpha} Z^{-1/3} \\ \alpha r_0^2 Z^2 \left[\frac{28}{9} \log(183Z^{-1/3}) - \frac{2}{27} \right] & \text{si } E \geq \frac{E_0}{\alpha} Z^{-1/3} \end{cases} \quad 1-24$$

$\alpha = 1/137$, est la constante de structure fine.

1.5- Coefficient d'atténuation d'un faisceau de photons

L'absorption des photons dans la matière dépend de la nature du milieu ainsi que de l'énergie et de photons incidents. La loi d'atténuation d'un faisceau mono énergétique et parallèle dans un milieu homogène est donnée par la relation :

$$\Phi(x) = \Phi_0 e^{-\mu x} \quad 1-25$$

Φ_0 : le flux de photons du faisceau incident ;

$\Phi(x)$: le flux de photons sortant d'un milieu absorbant d'épaisseur x ;

μ : le coefficient d'atténuation linéaire qui est proportionnel à la section efficace d'interaction :

$$\mu = n\sigma_{\text{tot}} \quad 1-26$$

n est le nombre de noyaux ou d'électrons atomiques par cm^3 .

Les valeurs des coefficients massiques μ/ρ exprimés en cm^2/g sont disponibles dans la littérature [Ber78].

La **figure 1.7** représente la variation du coefficient d'atténuation massique en fonction de l'énergie dans l'eau et dans le plomb.

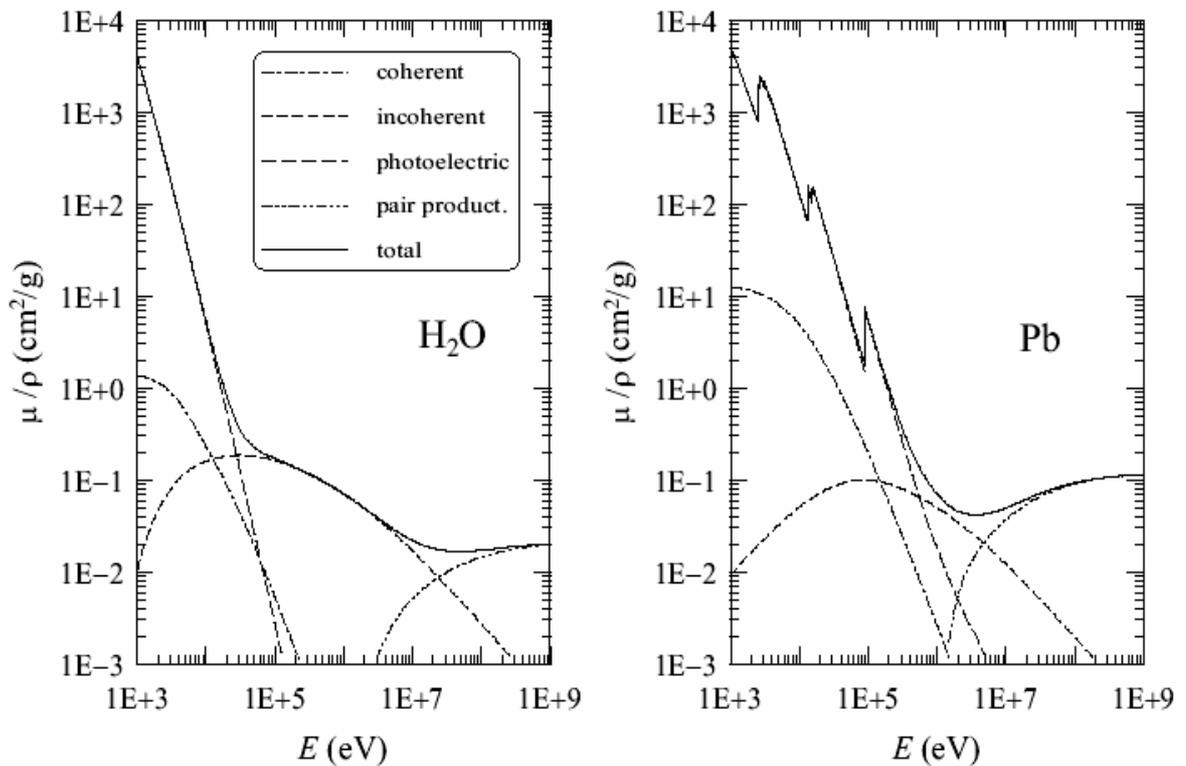


Figure 1.7 : Section efficace d'absorption massique, cas de l'eau et du plomb [Ber78]

En première approximation, pour réduire d'un facteur 10 l'intensité d'un faisceau de photons γ dont l'énergie est comprise entre 1 et 3 MeV, il faut une épaisseur \bar{x} :

$$\bar{x} \approx \frac{35}{\rho} \text{ cm} \quad 1-27$$

ρ étant la masse volumique de la matière irradiée, exprimée en g/cm^3 .

Pour atténuer le faisceau d'un facteur 10^n , l'épaisseur de matière irradiée doit être égale à $n \bar{x}$.

On définit le libre parcours moyen R des photons dans un milieu par :

$$R = \frac{1}{\mu} = 1,44 \times x_{1/2} \quad 1-28$$

$x_{1/2}$ représente l'épaisseur de matière dans laquelle la moitié des photons incidents a disparu.

1.6- Interactions neutron-matière

1.6.1- Propriétés des neutrons

Le neutron est une particule neutre d'énergie au repos 941 MeV, qui est instable lorsqu'elle n'est pas liée, avec une demi-vie de 12 minutes. Les neutrons font partie des rayonnements indirectement ionisants. Ils interagissent avec le noyau sans être gênés par le champ coulombien. Ils sont généralement classés en fonction de leur énergie, qui peut s'étendre sur une dizaine de décades, depuis les neutrons thermiques jusqu'à des neutrons de plusieurs centaines de MeV. Le **tableau 1.3** reprend la classification des neutrons :

Neutron	Énergie
thermiques	$E_n \leq 0,4 \text{ eV}$
intermédiaires	$0,4 \text{ eV} < E_n \leq 200 \text{ keV}$
rapides	$200 \text{ keV} < E_n \leq 10 \text{ MeV}$
relativistes	$E_n \geq 10 \text{ MeV}$

Tableau 1.3 : Classification des neutrons en fonction de leur énergie

1.6.1.1- Neutrons thermiques

Il s'agit des neutrons qui ont une énergie cinétique telle qu'à la température ambiante, ils se trouvent en équilibre thermique avec les noyaux du milieu récepteur en présentant un spectre de vitesses de Maxwell, telle que la densité de neutron en fonction de sa vitesse est donnée par l'expression :

$$n(v) dv = \frac{4nv^2}{\sqrt{\pi}} \left\{ \frac{m}{2kT} \right\}^{3/2} \exp\left(-\frac{1}{2} \frac{mv^2}{kT}\right) dv \quad 1-29$$

où

m est la masse du neutron,

k est la constante de Boltzmann,

T est la température absolue.

L'énergie cinétique la plus probable des neutrons thermiques est :

$$E_n = k \times T = \frac{1}{2} mv^2 \quad 1-30$$

A 20 °C cette énergie est de 0,0253 eV. A cause de la distribution de la vitesse en fonction de la température du milieu dans lequel ils interagissent, il est évident que les neutrons n'ont pas tous la même énergie cinétique. Leur énergie cinétique moyenne se situe autour de la valeur la plus probable. On convient de définir une limite supérieure au-dessous de laquelle ils sont considérés comme des neutrons thermiques. Cette valeur est de 0,4 eV, une valeur correspondante au changement remarquable qui est observé la section efficace d'absorption du cadmium (Cd).

1.6.1.2- Neutrons intermédiaires

Les neutrons intermédiaires résultent de la collision élastique entre des neutrons rapides et un noyau cible léger d'un matériau (un ralentisseur de graphite, de corps humain,...). Ces neutrons engendrés dans la gamme d'énergie 0,4 eV et 200 keV, exhibent un spectre $f(E_n)$, proportionnel à $1/E_n$.

1.6.1.3- Neutrons rapides

Les neutrons considérés comme rapides sont ceux qui ont une énergie supérieure à 200 keV. Cette valeur est utilisée comme limite, en dessous de laquelle les instruments de détection de ces neutrons semblent inadéquats.

Quand l'énergie des neutrons est supérieure à 10 MeV, ils sont considérés comme relativistes.

1.6.2- Interactions des neutrons avec la matière

Les interactions les plus communes des neutrons thermiques avec la matière sont les réactions de capture (n, γ), la diffusion élastique (n, n), les réactions nucléaires avec émission de particules chargées de type (n, p) et (n, α) pour certains éléments légers et la fission. Dans quelques nucléides, comme le ^{10}B , la section efficace d'interaction suit la loi connue de l'inverse de la vitesse du neutron ($1/v$), ce qui permet de mesurer la fluence neutronique en utilisant des techniques d'activation [Iae70].

La perte d'énergie ou le ralentissement des neutrons rapides dans un matériau se fait principalement par diffusions élastiques sur les noyaux des atomes le constituant. Ce ralentissement peut également s'opérer à la suite de diffusions inélastiques ou de réactions nucléaires sur les noyaux du milieu ralentisseur. La perte d'énergie moyenne du neutron rapide par choc élastique est d'autant plus grande que le noyau cible léger. La perte d'énergie maximale est atteinte pour l'hydrogène qui représente le meilleur ralentisseur pour les neutrons rapides.

Il a été montré [Kur53] que l'énergie moyenne des neutrons après une $n^{\text{ème}}$ collision élastique sur des noyaux d'hydrogène est donnée par :

$$\overline{E}_n = \frac{\int_0^{T_1} E \cdot f_n(E) dE}{\int_0^{T_1} f_n(E) dE} = \frac{E_1}{2^n} \quad 1-31$$

$$f_n(E) = \frac{1}{(n-1)! E_1} \left(\ln \frac{E_1}{E} \right)^{n-1} \quad 1-32$$

$f_n(E)$ représente la fonction donnant la forme du spectre des neutrons en fonction de l'énergie.

E_1 est l'énergie initiale du neutron.

1.6.2.1- Réactions de fission (n, f)

Les réactions de fission (n, f) permettent la détection des neutrons par l'intermédiaire des produits de fission. Ces réactions concernent surtout des éléments lourds comme Th, U, Np et Pu. Après avoir interagi avec ces actinides, les neutrons donnent lieu à la

formation d'un noyau composé qui se scinde ensuite en deux fragments et un ou plusieurs neutrons rapides. Dans les nucléides ^{233}U , ^{235}U et ^{239}Pu , la fission a lieu pour toutes les énergies du neutron, la section efficace est considérablement plus grande pour les neutrons thermiques (**Figure 1.8**). Au contraire pour les nucléides ^{232}Th et ^{238}U , la fission n'a pas lieu pour des énergies du neutron inférieures à 1 MeV (**Figure 1.9**). Cette propriété est mise à profit dans les dosimètres de neutrons, basés sur l'utilisation de ces éléments fissiles, capables de séparer le composant rapide du composant thermique.

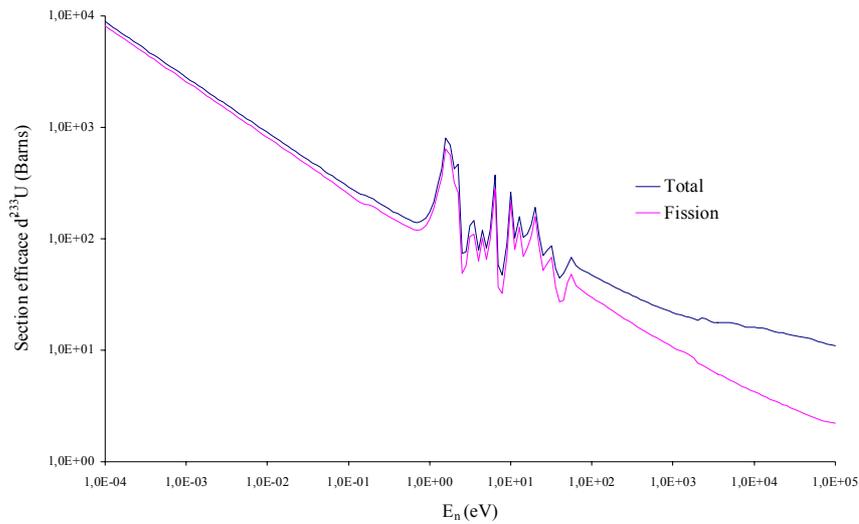


Figure 1.8 : Section efficace d'interaction des neutrons avec les noyaux ^{233}U [Jef97]

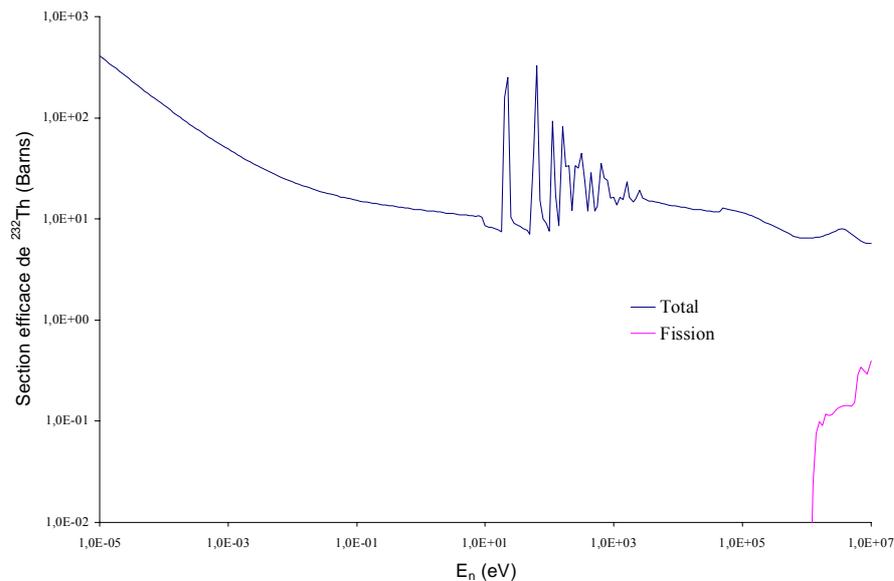


Figure 1.9 : Section efficace d'interaction des neutrons avec les noyaux ^{232}Th [Jef97]

1.6.2.2- Réactions nucléaires (n, x)

La plupart des réactions nucléaires (n, x) sont endoénergétiques. Le neutron doit disposer de l'énergie suffisante (l'énergie seuil) pour que la réaction se produise. L'énergie cinétique du neutron incident doit être supérieure à 10 MeV dans l'exemple de la réaction (n, 2n). Cependant certaines de ces réactions sont exoénergétiques et peuvent se produire avec des neutrons thermiques. La réaction nucléaire ${}^7\text{Li} (p, n) {}^7\text{Be}$ sera traitée dans le chapitre 3.

1.6.2.3- Diffusion inélastique (n, n'), (n, n'γ)

Dans la diffusion inélastique, le noyau de l'atome cible est porté dans un état d'excitation. Ce processus n'est possible que pour des neutrons rapides car l'énergie des neutrons lents n'est, en général, pas suffisante pour exciter le noyau. Dans certains cas, l'énergie d'excitation est immédiatement émise sous forme d'un photon (n, n'γ). Dans les autres cas, le noyau reste dans l'état métastable. Il s'agit des réactions à seuil qui auront, dans notre domaine d'énergie (neutrons rapides) et pour des radiateurs organiques, beaucoup moins d'importance [Gar76] que les diffusions élastiques. Dans le **tableau 1.4** sont données les seuils d'énergie de diffusion inélastique pour quelques éléments [Bar85].

Élément	Seuil de diffusion inélastique (MeV)
C	4,40
O	6,10
Al	0,85
Si	1,30
Fe	0,85
Pb	0,60

Tableau 1.4 : *Seuil d'énergie de diffusion inélastique*

Si nous nommons E_i l'énergie correspondante à l' $i^{\text{ème}}$ niveau excité du noyau résiduel, en appliquant au système les lois de conservation de l'énergie et du moment et en tenant compte des relations géométriques existantes, nous obtenons pour l'énergie du neutron diffusé la relation suivante :

$$E'_n(E_i, \omega, E_n) = \frac{1}{(1+B)^2} \left[\omega \sqrt{E_n} \pm \sqrt{E_n (\omega^2 + B^2 - 1) - (B(B+1)E_i)} \right]^2 \quad 1-33$$

ω est donné par l'expression :

$$\omega = \frac{1}{2} \left[\sqrt{\frac{E'_n}{E_n}} (B+1) - \sqrt{\frac{E_n}{E'_n}} (B-1) + \frac{BE_i}{\sqrt{E_n E'_n}} \right] \quad 1-34$$

où B est le quotient entre la masse du noyau cible et celle du neutron.

Étant donné que l'énergie du neutron doit être réelle et positive, une valeur seuil existe pour l'énergie du neutron incident en dessous de laquelle la diffusion inélastique ne se produit pas. Cette énergie seuil comme indiqué dans le **tableau 1.4** s'étend de quelques MeV pour les noyaux légers à quelques keV pour les noyaux lourds [**Bau85**]. La section efficace de diffusion inélastique augmente en général avec l'énergie du neutron et la masse du noyau cible, comme on peut le déduire du **tableau 1.4**.

1.6.2.4- Captures radiatives (n, γ)

Dans ces de réactions, la capture du neutron incident par le noyau conduit à la formation d'un noyau de nombre de masse (A+1) dans un état excité. L'énergie d'excitation est comprise entre 5 et 10 MeV.

Ces réactions qui se produisent dans une large gamme d'énergie du neutron incident, présentent une section efficace relativement élevée pour la majorité des nucléides, en étant, dans le cas de neutrons thermiques et pour certains nucléides proportionnels à 1/v.

1.6.2.5- Réactions de capture (n, 2n), (n, p), (n, α)

En général ces réactions sont endoénergétiques, le neutron doit disposer de l'énergie suffisante pour que la réaction se produise, comme la réaction (n, 2n), où l'énergie cinétique du neutron incident doit être supérieure à 10 MeV. Cependant certains de ces réactions sont exoénergétiques et peuvent se produire avec des neutrons thermiques. Il s'agit des cibles ^3He , ^6Li , ^{10}B et ^{113}Cd dont les sections efficaces de capture d'un neutron thermique sont importantes (**Tableau 1.5** et **figure 1.10**). C'est pourquoi ils sont très utilisés pour la dosimétrie personnelle (Chapitre 3). Pour les énergies supérieures, des pointes de résonance correspondantes se produisent aux états excités du noyau composé.

Noyau	Réaction	Bilan énergétique (MeV)	Energie cinétique (MeV)	Section efficace (barns)
^3He	$^3\text{He}(n, p)^3\text{H}$	0,765	$E(p) = 0,574$ $E(^3\text{H}) = 0,191$	5330
^6Li	$^6\text{Li}(n, \alpha)^3\text{H}$	4,78	$E(\alpha) = 2,05$ $E(^3\text{H}) = 2,73$	940
^{10}B	$^{10}\text{B}(n, \alpha)^7\text{Li}^*$ (94 %)	2,79	$E(\alpha) = 1,78$ $E(\text{Li}) = 1,01$	3840
	$^{10}\text{B}(n, \alpha)^7\text{Li}$ (6 %)	2,31	$E(\alpha) = 1,47$ $E(\text{Li}) = 0,84$	

Tableau 1.5 : Réactions de capture avec leurs sections efficaces pour des neutrons thermiques

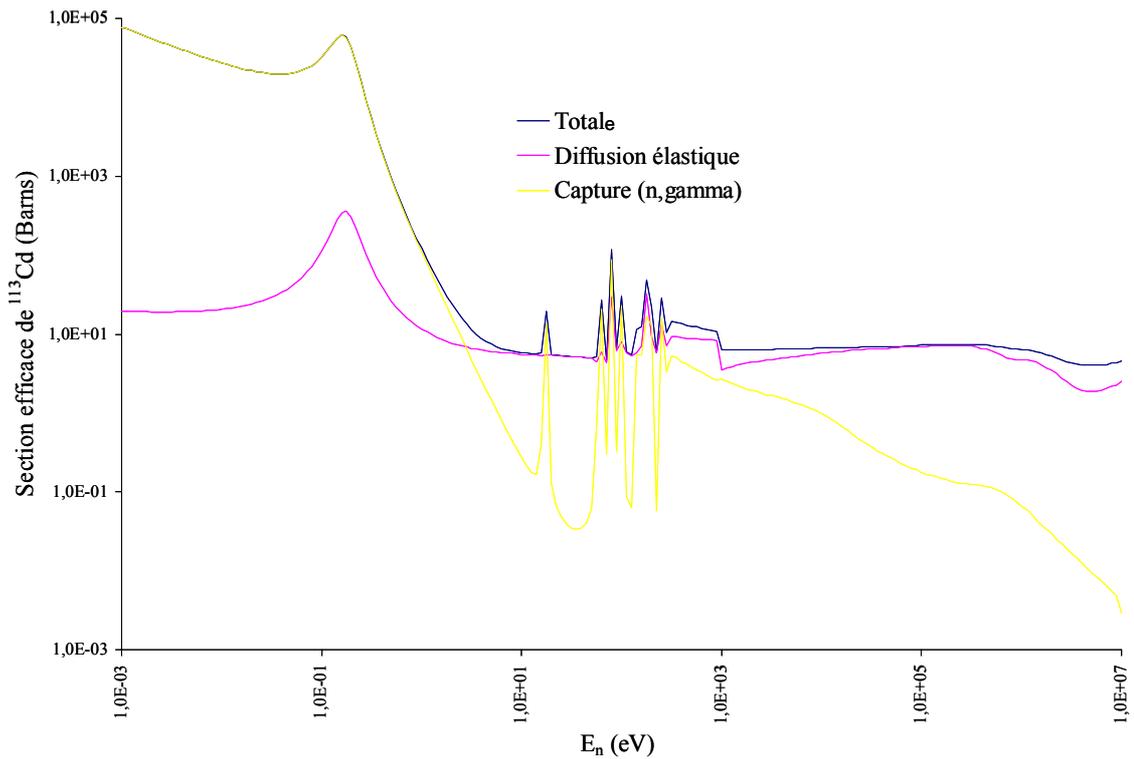


Figure 1.10 : Section efficace d'interaction des neutrons avec les noyaux ^{113}Cd [Jef97]

1.6.2.6- Diffusions élastiques (n, n)

Dans une diffusion élastique, les neutrons incidents cèdent une partie de leur énergie cinétique aux noyaux des atomes du milieu en produisant un noyau de recul qui reste dans un état excité.

La relation entre les énergies du neutron incident E_n et l'énergie cédée au noyau de recul E_r peut se déterminer à partir des lois de conservation de la quantité de mouvement et de l'énergie. Si l'angle de diffusion du neutron dans le système du laboratoire est θ_n et celui du noyau de recul est θ_r , la relation entre E_n et E_r est la suivante :

$$E_r = \alpha E_n \cos^2 \theta_r \quad 1-35$$

$$\alpha = \frac{4m_n m_r}{(m_n + m_r)^2} \quad 1-36$$

avec :

m_n est la masse du neutron,

m_r est la masse du noyau de recul.

Si E'_n est l'énergie cinétique du neutron après la diffusion, la relation entre E_n , E'_n , et θ_n est donnée par la relation :

$$E'_n = \frac{m_n E_n}{(m_n + m_r)^2} \left[\cos \theta_n + \sqrt{\left(\frac{m_r}{m_n}\right)^2 - \sin^2 \theta_n} \right]^2 \quad 1-37$$

La dépendance entre θ_n et θ_r est donc :

$$\sin \theta_n = \sqrt{\frac{\alpha m_r}{(1 - \alpha \cos^2 \theta_r) m_n}} \cos \theta_r \sin \theta_r \quad 1-38$$

D'après **1-35**, pour une énergie cinétique donnée du neutron incident, l'énergie du noyau de recul E_r varie seulement en fonction de l'angle de diffusion θ_r . Pour un noyau d'hydrogène, ($\alpha = 1$, équation **(1-36)**) et $\theta_r = 0$ (le noyau de recul sort dans la même direction que le neutron incident), la valeur maximale de cette énergie, comme il en est déduit de l'expression **(1-35)**, coïncide avec celle du neutron incident. Dans son interaction avec un noyau d'hydrogène, le neutron perd la moitié de son énergie

cinétique, en fournissant au noyau assez d'énergie pour casser sa liaison chimique et pour se déplacer à travers le milieu comme particule ionisante (proton de recul).

L'énergie maximale cédée par le neutron incident décroît avec la masse atomique du noyau cible (**Tableau 1.6**) ce qui montre que l'hydrogène est le meilleur ralentisseur. Ce comportement de l'hydrogène joue un rôle primordial dans la définition d'un dosimètre capable d'évaluer la contribution de la dose neutronique.

Dans le **tableau 1.6** sont donnés les transferts maximaux $(E_r)_{\max}/E_n$ par différentes cibles. On constate que ce rapport peut être réduit à 3 % par une masse typique $A = 152$ d'où l'intérêt d'utiliser l'hydrogène comme ralentisseur.

noyau cible	$(E_r)_{\max}/E_n$
^1H	1
^4He	0,640
^{12}C	0,284
^{16}O	0,221
^{19}F	0,190
^{80}Br	0,049
^{137}Ba	0,029
^{152}Eu	0,026

Tableau 1.6 : Energie maximale cédée par un neutron dans une diffusion élastique

Energie (MeV)	H		C		O		N	
	$\sigma_{\text{dif.el.}}$	σ_{total}	$\sigma_{\text{dif.el.}}$	σ_{total}	$\sigma_{\text{dif.el.}}$	σ_{total}	$\sigma_{\text{dif.el.}}$	σ_{total}
0,1	12,774	12,774	4,390	4,390	3,573	3,573	4,401	4,403
0,2	2,995	2,995	4,096	4,096	3,463	3,463	3,582	3,583
0,3	9,671	9,671	3,829	3,829	3,502	3,509	3,038	3,040
0,4	7,987	7,987	3,589	3,589	6,203	6,203	2,793	2,795
0,5	6,897	6,897	3,372	3,372	4,773	4,773	2,325	2,401
0,6	6,143	6,143	3,178	3,178	2,955	2,955	1,626	1,655
0,7	5,584	5,584	3,000	3,000	2,710	2,710	2,171	2,224
0,8	5,148	5,148	2,833	2,833	2,684	2,684	1,798	1,813
0,9	4,797	4,797	2,691	2,691	3,259	3,259	1,413	1,421
1	4,506	4,506	2,562	2,562	8,217	8,217	2,364	2,385
2	4,261	4,261	1,677	1,677	1,562	1,562	1,493	1,556
3	2,293	2,293	1,255	1,255	1,216	1,216	1,308	1,575
4	1,907	1,907	1,905	1,905	1,998	2,054	1,506	1,952
5	1,635	1,635	1,158	1,206	0,856	1,036	0,823	1,153
6	1,430	1,430	0,887	1,110	1,341	1,358	1,069	1,371
7	1,269	1,269	0,569	0,730	0,691	0,886	0,892	1,222
8	1,139	1,139	1,342	1,907	0,571	0,810	0,943	1,401
9	1,032	1,032	0,663	1,114	0,796	1,230	0,882	1,260
10	0,943	0,943	0,607	1,171	0,983	1,344	0,934	1,386

Tableau 1.7 : Sections efficaces élastiques et totales (en barns) d'interaction des neutrons avec les noyaux H, C, O et N [Bou98]

1.7- Grandeurs et unités en dosimétrie et radioprotection

Définir des règles de radioprotection est une priorité. La Commission Internationale de Protection Radiologique (CIPR) a été créée en 1928 à Stockholm à l'occasion du deuxième Congrès International de Radiologie. Sa mission était d'éditer les premières réglementations en matière de protection contre les effets immédiats des rayonnements ionisants. Regroupant des experts de toutes nationalités, ses travaux, complétés par ceux de l'UNSCEAR (United Nations Scientific Committee on Effects of Atomic Radiation) servent aujourd'hui encore à l'établissement des réglementations en vigueur dans tous les pays. Elles sont reprises sous un aspect pratique par les directives d'Euratom qui obligent les états signataires à les appliquer. La réglementation française, conformément aux Directives Communautaires, fixe les limites d'équivalent de dose annuelle.

1.7.1- Grandeurs physiques

En métrologie et en dosimétrie des rayonnements ionisants, les grandeurs physiques sont des grandeurs accessibles quantitativement par le calcul ou par la mesure. On distingue :

- l'énergie,
- l'intensité d'émission,
- l'activité,
- le taux d'émission,
- les grandeurs radiométriques, servant à caractériser le champ de rayonnements : le kerma dans l'air K_{air} (énergie cinétique initiale libérée dans le volume élémentaire d'air de masse dm) qui caractérise généralement les faisceaux de photons, la fluence ϕ de particules (nombre de particules par unité de surface) plus généralement employée pour les neutrons, la dose absorbée à une profondeur nominale de 7 mg/cm², correspondant à la couche basale de l'épiderme et qui caractérise le rayonnement β .
- les grandeurs dosimétriques, servant à caractériser l'effet physique des rayonnements sur la matière en terme d'énergie transférée.

1.7.2- Grandeurs dosimétriques

La dose absorbée D donnée en Gray (Gy) est une grandeur macroscopique recommandée par la CIPR [Icr77-Icr91-Icr96]. Cette grandeur est définie comme étant le rapport de l'énergie moyenne communiquée par les rayonnements ionisants à la matière dans un volume ΔV , à la masse Δm de la matière contenue dans cet élément de volume.

$$D \text{ (Gy)} = \frac{\Delta E \text{ (J)}}{\Delta m \text{ (kg)}} \quad 1-39$$

L'énergie E communiquée au volume V de masse m est donnée en joule (J) :

$$E = R_{\text{in}} - R_{\text{ex}} + \Sigma Q \quad 1-40$$

avec:

R_{in} , l'énergie radiante incidente, correspondante à la somme des énergies (hors énergie de masse) de toutes les particules ionisantes (chargées ou non), qui pénètrent dans le volume.

R_{ex} , l'énergie radiante sortant du volume, correspondante à la somme des énergies (hors énergie de masse) de toutes les particules ionisantes (chargées ou non), qui sortent du volume.

ΣQ , la somme de toutes les modifications de l'énergie de masse des noyaux et des particules, qui résultent de toutes les transformations se produisant dans le volume.

Le débit de dose absorbée \dot{D} (Gy/h) est défini comme étant le rapport entre la dose absorbée et le temps d'irradiation.

1.7.3- Grandeurs de protection

L'équivalent de dose H en un point donné, est utilisé pour indiquer les implications biologiques de l'exposition aux rayonnements, à des niveaux de doses absorbées rencontrées en radioprotection. Cette grandeur limitative est donnée en sievert (Sv) par la formule suivante :

$$H \text{ (Sv)} = D \cdot Q \quad 1-41$$

avec:

D , la dose absorbée,

Q , le facteur de qualité (sans dimension).

Le débit d'équivalent de dose \dot{H} (Sv/h) est défini comme étant le rapport entre l'équivalent de dose et le temps d'irradiation.

La valeur de Q , qui dépend du TLE relatif aux particules chargées, est fonction du type de particule. Dans la **figure 1.11** sont présentés les TLE des protons et des particules α dans le muscle, calculés par le code SRIM [**Bie03**]. La composition chimique du muscle est donnée par les organismes CIPR et CIUR (Commission Internationale des Unités Radiologiques et des mesures).

Une nouvelle situation a été créée par la CIPR qui, dans sa publication 60 [**Icr91**], modifie la relation $Q(\text{TLE}) - \text{TLE}$ [**Icr73**] afin de refléter les valeurs plus élevées de l'efficacité biologique correspondant aux neutrons d'énergie intermédiaire (**Tableau 1.9**). Quant à la détermination des grandeurs limitatives, la CIPR recommande [**Icr93**] l'utilisation de nouveaux facteurs de pondération W_R (**Tableau 1.10**). Ce nouveau facteur rend compte de la nocivité du rayonnement, qui dépend de la densité des ionisations créées le long de la trajectoire de la particule.

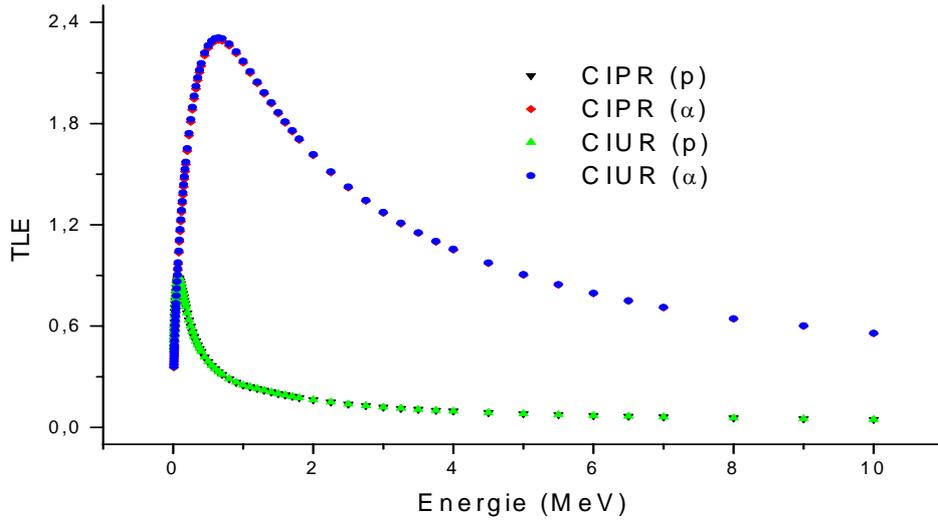


Figure 1.11 : TLE en fonction des énergies E_p et E_α dans le muscle, calculé par le code SRIM

CIPR 21		CIPR 60	
TLE (keV μm ⁻¹) dans H ₂ O	Q	TLE (keV μm ⁻¹) dans H ₂ O	Q
3,5 ou moins	1	< 10	1
7	2	10 – 100	0,32 TLE – 2,2
23	5	> 100	300/√TLE
53	10		
175 ou plus	20		

Tableau 1.9 : Facteur de qualité Q en fonction de TLE dans l'eau, donné par la CIPR 21 [Icr73] et la CIPR 60 [Icr91]

Rayonnement et gamme d'énergie		Facteur de pondération radiologique W_R
Photons, toutes énergies		1
Electrons, toutes énergies		1
Neutrons	$E < 10$ keV	5
	10 keV $< E < 100$ keV	10
	100 keV $< E < 2$ MeV	20
	2 MeV $< E < 20$ MeV	10
	$E > 20$ MeV	5
Protons, autres que les protons de recul, d'énergie > 2 MeV		5
Particules α , fragments de fission, ions lourds		20

Tableau 1.10 : Facteurs de pondération de la qualité de rayonnement [Icr93]

Contrairement à Q , W_R dépend exclusivement de la nature et de la qualité du rayonnement incident, indépendamment de l'organe atteint. Pour les neutrons, la fonction d'approximation suivante peut être utilisée [Icr93] :

$$W_R = 5 + 17 \left(\frac{E(\text{MeV}) \times \ln 2}{6} \right)^2 \quad 1-42$$

Pour les types et les énergies de rayonnement n'étant pas inclus dans le **tableau 1-10**, une valeur de W_R est obtenue en calculant \bar{Q} à 10 mm de profondeur dans la sphère CIUR :

$$\bar{Q} = \frac{1}{D} \int Q(\text{TLE}) \cdot D(\text{TLE}) d(\text{TLE}) \quad 1-43$$

avec :

$Q(\text{TLE})$, le facteur de qualité fonction de TLE,

$D(\text{TLE})$, la distribution de dose fonction de TLE.

L'équivalent de dose intégré sur le volume du tissu ou de l'organe est noté H_T « dose équivalente à l'organe ». Pour un organe exposé à plusieurs rayonnements, H_T s'exprime par la relation ci-dessous :

$$H_T (\text{Sv}) = \sum_i W_i \cdot D_{T,i} \quad 1-44$$

où

$D_{T,i}$ est la dose absorbée dans le tissu T due au rayonnement i.

L'équivalent de dose effectif H_E est une grandeur relative au corps entier qui tient compte des sensibilités individuelles de chaque organe. Cette grandeur introduite par la CIPR, a été récemment redéfinie [Icr91] « dose effective E » (Equation (1-45)). La dose équivalente à l'organe H_T est pondérée par un facteur W_T pour les tissus, indépendant de l'énergie et du type de rayonnement, représentant la radiosensibilité de l'organe envisagé. La somme de ces facteurs W_T , correspondant au corps entier est égale à l'unité.

La dose effective est définie par :

$$E(\text{Sv}) = \sum_T W_T \cdot H_T = \sum_T W_T \sum_i W_i \cdot D_{T,i} = \sum_i W_i \sum_T W_T \cdot D_{T,i} \quad 1-45$$

avec :

H_T , la dose équivalente à l'organe ou au tissu T,

$D_{T,i}$, la dose absorbée moyenne dans un tissu T délivrée par le rayonnement i.

Les valeurs de W_T , regroupées dans le **tableau 1.11**, résultent des dernières modifications réalisées par la CIPR dans son rapport 60.

Les expositions des individus, résultant d'un certain nombre de pratiques et caractérisées par E et/ou H_T (exposition locale), sont soumises à des limites de dose dont le but est d'assurer qu'aucun individu ne soit exposé à des risques biologiques jugés inacceptables dans le cadre de ses activités habituelles. En ce qui concerne les expositions professionnelles et du public, la CIPR dans son rapport 60 annonce de nouvelles valeurs (**Tableau 1.12**).

Tissus ou organes	W_T (%)
Gonades	20
Moelle osseuse, Colon, Poumons, Estomac	12
Vessie, Sein, Foie, Œsophage, Thyroïde	5
Peau, Surface des os	1
Autres	5

Tableau 1.11 : Facteurs de pondération W_T [Icr91]

Application	Limite de dose	
	Travailleurs	Public
<u>Dose efficace E</u>	20 mSv/an en moyenne sur 5 ans 50 mSv maxi. sur une année donnée	1 mSv/an en moyenne sur 5 ans 5 mSv maxi. sur une année donnée
<u>Dose équivalente annuelle H_T</u>		
cristallin	150 mSv	15 mSv
peau (profondeur 7 mg.cm ⁻²)	500 mSv	50 mSv
mains et pieds	500 mSv	—

Tableau 1.12 : Limites de dose recommandées par la CIPR 60 [Icr91]

La dose annuelle moyenne, qui se rapporte aux expositions professionnelles passe de 50 mSv [Icr73] à 20 mSv [Jou92], soit une réduction de 2,5 par rapport aux anciennes valeurs. De même, celle pour le public chute de 5 mSv à 1 mSv.

Les valeurs qui s'appliquent à la dose équivalente annuelle par organe restent par contre inchangées entre les anciennes et les nouvelles recommandations : 15 mSv pour le cristallin, 50 mSv pour la peau et les extrémités (mains, pieds, chevilles, avant-bras).

Ces grandeurs limitatives ne sont pas mesurables dans la pratique. La CIUR, parallèlement et en accord avec la CIPR, a développé des grandeurs opérationnelles disponibles pour les mesures pratiques dans les environnements radiatifs.

1.7.4- Grandeurs opérationnelles

Par définition, une grandeur opérationnelle doit pouvoir être utilisée en métrologie et doit présenter, par conséquent, les caractéristiques suivantes [Die94] :

- être définie en un point d'un fantôme approprié,
- être unique quel que soit le rayonnement, et additive pour plusieurs rayonnements incidents,
- être mesurable par les détecteurs existants et servir de grandeur de référence au cours des étalonnages,
- être suffisamment proche, tout en lui restant supérieure, de la grandeur limitative qu'elle représente ; cela, pour toute énergie et tout angle d'incidence du rayonnement afin que le non dépassement des limites qui lui sont appliquées garantisse celui des limites établies précédemment pour les grandeurs limitatives.

Dans la pratique, la solution idéale est loin d'être évidente et des compromis sont réalisés. Plusieurs grandeurs se sont succédées avant d'aboutir aux grandeurs actuelles. Les index d'équivalent de dose en surface $H_{1,s}$ et en profondeur $H_{1,p}$, définis par la CIPR 26 (1977) [Icr77] sont applicables respectivement à l'équivalent de dose effectif H_E et à l'équivalent de dose à l'organe H_T définis dans la sphère de la CIUR pour chaque type de rayonnement, H_E et H_T se révèlent être des grandeurs non additives et difficilement mesurables expérimentalement [Sie94]. Dans son rapport 39, la CIUR définit une liste

plus exhaustive de grandeurs donnant une bonne approximation de la dose effective E et de la dose équivalente à la peau [Icr85].

Pour la surveillance de l'environnement et des zones de travail, la CIUR [Icr88], définit comme grandeurs opérationnelles :

- l'équivalent de dose ambiant $H^*(d)$ c'est-à-dire l'équivalent de dose qui serait produit par le champ unidirectionnel et expansé correspondant, dans la sphère CIUR à une profondeur d , sur le rayon qui fait face à la direction du champ unidirectionnel. Il convient pour les rayonnements fortement pénétrants (photons, neutrons, $\beta > 14$ MeV). La profondeur recommandée est de 10 mm. La définition de $H^*(d)$ suppose un instrument conçu pour que la rétro-diffusion soit prise en compte.
- l'équivalent de dose directionnel $H'(d)$ est l'équivalent de dose qui serait produit par le champ expansé, correspondant dans la sphère CIUR à une profondeur d , sur un rayon dont la direction est spécifiée. Il convient pour les rayonnements faiblement pénétrants (photons < 15 MeV, neutrons, $\beta < 3$ MeV). La profondeur recommandée est 0,07 mm (couche basale de l'épiderme). Cette grandeur correspond à la lecture d'un instrument ayant une réponse iso-directionnelle, c'est-à-dire un rapport $R/H'(d)$ (R lecture du détecteur) invariable avec l'angle d'incidence du rayonnement.

Pour la surveillance individuelle sont définis,

- l'équivalent de dose individuel pénétrant $H_p(d)$ correspond aux organes et aux tissus situés en profondeur dans le corps humain, irradiés par des rayonnements fortement pénétrants,
- l'équivalent de dose individuel superficiel $H_s(d)$ correspond aux organes et aux tissus superficiels, irradiés à la fois par les rayonnements fortement et faiblement pénétrants.

La profondeur de pénétration d est de 10 mm pour les rayonnements fortement pénétrants et 0,07 mm pour les autres. Une valeur de 3 mm est admise dans certains cas de surveillance de la dose reçue par le cristallin. Dans l'un de ses derniers rapports (n°47) [Icr92], la CIUR propose de combiner les définitions de $H_s(d)$ et $H_p(d)$ en une seule :

- l'équivalent de dose personnel noté $H_p(d)$, destiné à la surveillance individuelle et défini aux profondeurs 0,07 mm et 10 mm suivant le type de rayonnement considéré. Cette grandeur peut être mesurée avec un détecteur porté à la surface du corps, recouvert de l'épaisseur adéquate d , de matériau équivalent au tissu. On doit ainsi réaliser la calibration dans des conditions simplifiées, sur le fantôme équivalent au tissu CIUR qui convient.

Les modifications portent également sur la mise en application de $H_p(d)$ qui, défini dans le corps humain, ne peut être mesuré dans son sens le plus strict. La CIUR (publication n°47) a ainsi donné des recommandations plus pratiques quant au choix du fantôme à utiliser pour la dosimétrie individuelle : il est recommandé d'utiliser le parallélépipède de $30 \times 30 \times 15 \text{ cm}^3$ en poly méthacrylate de méthyle (PMMA) [Boh93] (**Figure 1.12**). On lui reconnaît :

- une masse proche de celle de la sphère CIUR,
- une fabrication simple et peu coûteuse,
- une surface de $30 \times 30 \text{ cm}^2$, à la fois large pour permettre l'irradiation simultanée de plusieurs dosimètres et suffisamment petite, garantissant un champ de radiation uniforme pour les détecteurs, aux distances conventionnelles (50 à 75 cm) de la source d'étalonnage,
- des caractéristiques du rayonnement rétro-diffusé raisonnablement proches de celles du tronc humain pour les neutrons et les photons.



Figure 1.12 : Fantôme $30 \times 30 \times 15 \text{ cm}^3$ en PMMA

Les grandeurs opérationnelles étant de bons estimateurs majorant les grandeurs de protection, elles peuvent être reliées aux limites annuelles de dose efficace et de

l'équivalente de dose à la peau et au cristallin définies dans la réglementation française en vigueur (**Tableau 1.13**).

Grandeurs de protection	Limites annuelles (définies dans le décret n°2003-296 du 31 mars 2003)	Grandeurs opérationnelles correspondantes
Dose efficace	20 mSv	$H_p(10)$
Equivalente de dose: - peau - cristallin	500 mSv 150 mSv	$H_p(0,07)$ $H_p(3)$

Tableau 1.13 : Dernières limites annuelles établies des grandeurs de protection

La figure ci-dessus résume les diverses grandeurs utilisées dans le domaine de la radioprotection :

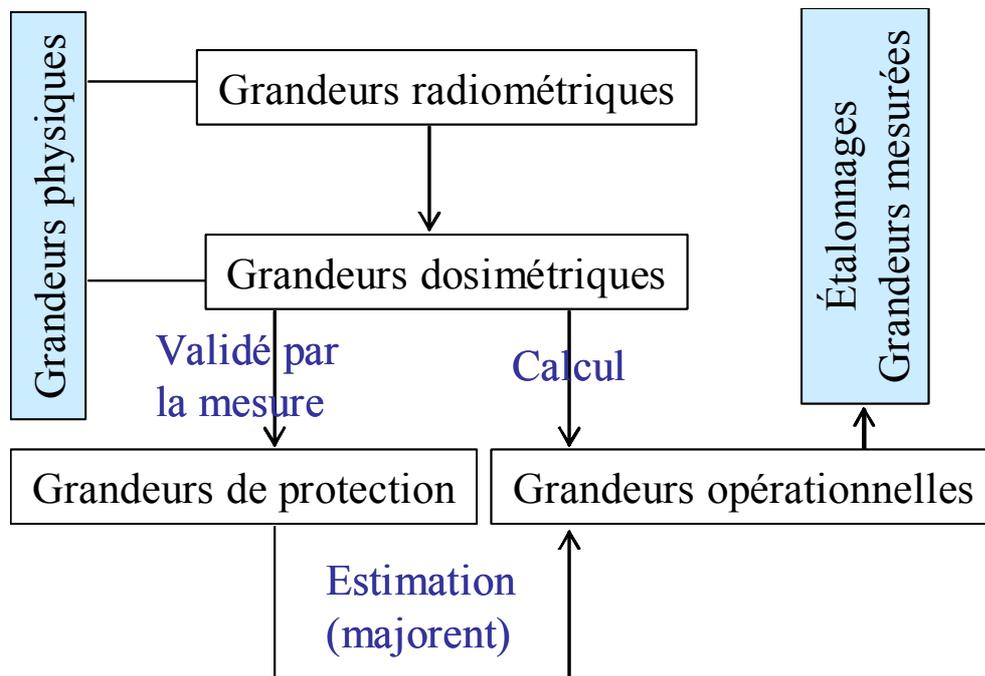


Figure 1.13 : Diverses grandeurs utilisées en radioprotection

Les grandeurs employées par les laboratoires d'étalonnage nationaux pour caractériser un champ de rayonnements sont les grandeurs physiques. Il existe des facteurs de conversion entre la fluence ϕ de neutrons et les grandeurs dosimétriques

définies ci-dessus. Ces facteurs sont établis principalement par des calculs de Monte Carlo qui simulent le comportement des neutrons dans un modèle de corps humain et déterminent la distribution spatiale de la dose absorbée, l'équivalent de dose absorbée et l'équivalent de dose, pour des neutrons mono-énergétiques en incidence normale.

Pour ce qui est des facteurs de conversion $H^*(10)/\phi$ relatifs à la CIPR 60, les valeurs utilisées sont déduites des travaux de SCHUHMACHER [Sch92] et SIEBERT [Sie94]. Les fonctions analytiques (Equation (1-46)), proposées d'après les valeurs publiées, associent la dose ambiante et l'équivalent de dose ambiant à l'énergie des neutrons incidents. Les valeurs numériques sont rassemblées dans le **Tableau 1.15**.

$$A(x) = \frac{a_1}{1 + (b_1 + c_1 x)^2} + \sum_{j=2}^{j_{\max}=4} \frac{a_j}{1 + \exp(b_j - c_j x)} \quad 1-46$$

avec :

$$x = \log_{10}(E_n(\text{eV}))$$

$$A(x) = \log_{10}\left(\frac{H^*(10)}{\Phi} (\text{pSv.cm}^2)\right) \quad \text{ou} \quad A(x) = \log_{10}\left(\frac{D^*(10)}{\Phi} (\text{pSv.cm}^2)\right)$$

j	a _j	b _j	c _j
Coef. Pour H*(10)/φ			
1	1,173	0,006367	0,1744
2	2,233	11,32	2,365
3	0,08197	224,5	31,43
4	- 0,2877	107,6	1,379
Coef. Pour D*(10)/φ			
1	0,5296	- 0,123	0,3133
2	1,912	7,461	13,71
3	- 0,2838	161,9	20,54

Tableau 1.14 : Constantes appartenant à la fonction analytique (1-46) qui relie les facteurs de conversion $H^*(10)/\phi$ et $D^*(10)/\phi$, fonctions de la CIPR 60, à l'énergie neutronique

Énergie neutron (eV)	H*(10)/φ (pSv.cm ²) (a)	D*(10)/φ (pGv.cm ²) (a)	Q*(10) _{eff} (a)	H*(10)/φ (pSv.cm ²) (b)	D*(10)/φ (pGv.cm ²) (b)	Q*(10) _{eff} (b)
2,50E-01	14,511	3,042	4,77	10,156	2,925	3,47
1,00E+00	14,893	3,333	4,47	10,473	3,077	3,40
1,00E+01	13,683	3,277	4,18	9,437	2,912	3,24
1,00E+02	11,083	2,750	4,03	7,444	2,486	2,99
1,00E+03	8,877	2,413	3,68	6,14	2,264	2,71
5,00E+03	9,593	2,606	3,68	7,235	2,504	2,89
1,00E+04	12,165	2,918	4,17	9,447	2,830	3,34
2,00E+04	19,225	3,489	5,51	14,708	3,414	4,31
5,00E+04	49,975	4,954	10,09	34,122	4,904	6,96
1,00E+05	113,426	7,025	16,15	70,178	7,016	10,00
1,44E+05	166,853	8,638	19,32	100,475	8,669	11,59
1,50E+05	173,616	8,847	19,62	104,386	8,884	11,75
2,00E+05	224,521	10,502	21,38	134,688	10,587	12,72
2,50E+05	266,273	12,029	22,14	161,016	12,162	13,24
3,00E+05	300,380	13,450	22,33	183,821	13,632	13,48
3,50E+05	328,387	14,780	22,22	203,632	15,012	13,56
4,00E+05	351,580	16,033	21,93	220,933	16,313	13,54
5,00E+05	387,301	18,339	21,12	249,563	18,714	13,34
5,70E+05	406,173	19,819	20,49	265,910	20,259	13,13
5,75E+05	407,371	19,921	20,45	266,982	20,365	13,11
6,00E+05	413,098	20,424	20,23	272,171	20,891	13,03
7,00E+05	432,286	22,325	19,36	290,402	22,881	12,69
7,88E+05	445,346	23,871	18,66	303,718	24,501	12,40
8,00E+05	446,908	24,073	18,56	305,370	24,713	12,36
9,00E+05	458,274	25,689	17,84	317,850	26,411	12,03
1,00E+06	467,253	27,191	17,18	328,391	27,991	11,73
1,20E+06	480,261	29,906	16,06	345,163	30,853	11,19
1,50E+06	492,156	33,407	14,73	363,068	34,552	10,51
2,00E+06	501,822	38,145	13,16	381,914	39,575	9,65
2,50E+06	505,667	41,934	12,06	393,416	43,606	9,02
3,00E+06	506,875	45,065	11,25	400,969	46,944	8,54
3,30E+06	506,919	46,704	10,85	404,318	48,695	8,30
3,50E+06	506,766	47,714	10,62	406,195	49,775	8,16
4,00E+06	505,961	49,996	10,12	409,971	52,217	7,85
4,50E+06	504,779	51,992	9,71	412,825	54,356	7,59
5,00E+06	503,395	53,756	9,36	415,105	56,250	7,38
6,00E+06	500,382	56,752	8,82	418,924	59,469	7,04
7,00E+06	497,332	59,213	8,40	423,045	62,119	6,81
8,00E+06	494,420	61,283	8,07	428,886	64,351	6,66
9,00E+06	491,819	63,055	7,80	437,803	66,265	6,61
1,00E+07	489,966	64,596	7,59	450,876	67,930	6,64
1,10E+07	490,121	65,951	7,43	468,471	69,396	6,75
1,20E+07	495,161	67,154	7,37	489,851	70,699	6,93
1,40E+07	530,000	69,205	7,66	536,381	72,923	7,36

Tableau 1.15 : Facteurs de conversion neutronique d'après :
SIEBERT et SCHUHMACHER (CIPR 60)
WAGNER et al (CIPR 21)

$$Q^*(10)_{eff} = H^*(10)/D^*(10) = \text{facteur de qualité effectif moyen}$$

Chapitre 2

DOSIMETRIE ET PRINCIPES DE MESURE

La dosimétrie fait partie des outils de la radioprotection. Elle a pour objet de mesurer le dépôt d'énergie par unité de masse, pour déterminer au mieux les rayonnements en un lieu (dosimétrie de zone) ou sur une personne (on parle alors de dosimétrie individuelle) et, ainsi, pour fournir une estimation de l'équivalent moyen de dose et de dose efficace.

La dosimétrie des neutrons est plus délicate que celle des photons ou des particules chargées : alors que ces derniers provoquent une ionisation (les photons en interagissant avec les électrons de la matière ou en se convertissant au passage dans la matière), les neutrons se détectent essentiellement par leurs interactions avec des noyaux atomiques. Ces interactions donnent naissance à des particules chargées que l'on détecte par des détecteurs passifs ou actifs auxquels on a ajoutés des écrans sensibles aux neutrons. Ces écrans doivent être choisis selon les énergies cinétiques des neutrons.

On doit distinguer les détecteurs utilisés pour la dosimétrie active, qui mesurent la dose en temps réel, de ceux employés en dosimétrie passive pour laquelle la mesure de la dose est différée.

a) Les dosimètres actifs sont en fait des dosimètres électroniques qui exploitent l'ionisation ou l'excitation atomique lors de l'interaction avec la matière permettant l'analyse du signal électronique correspondant à l'énergie des rayonnements. Ils peuvent donner une information en temps réel, non seulement en dose intégrée, comme les stylos dosimètres, mais aussi en débit de dose, paramètre très important à connaître en cas d'irradiation accidentelle. Ils peuvent être équipés d'alarmes réglées à différents seuils, selon les besoins. Ils peuvent également être lus par télétransmission, ce qui permet de surveiller toute une zone ou une équipe en continu. Enfin, l'électronique associée peut enregistrer de nombreux paramètres (comme l'identité du porteur) et, la possibilité de relecture des informations acquises facilite le traitement informatique et donc le suivi. Les dosimètres électroniques sont en continuelle évolution ; ils tendent à intégrer dans un même boîtier différents éléments des dosimètres décrits ci-après, afin d'en faire des outils de grande sensibilité et de manipulation aisée.

b) Les dosimètres passifs, initialement issus des techniques photographiques qui ont permis la découverte de la radioactivité par Becquerel en 1896, sont les premiers à avoir été développés. On appelle « dosimètres passifs » des dosimètres n'ayant pas besoin de source externe d'énergie pour fonctionner. Ce sont des dosimètres intégrateurs, c'est-à-dire qu'ils ne donnent qu'une mesure d'une dose globale accumulée. Ils ne permettent pas d'estimer les doses instantanées. Ils ont de plus en plus tendance à être remplacés par des dosimètres actifs, mais gardent une place importante dans la surveillance des travailleurs soumis à des rayonnements ionisants.

L'originalité du présent travail porte sur l'intérêt d'introduire le film photostimulable en tant que dosimètre passif personnel et de zones (accélérateurs de particules, réacteurs nucléaires, laboratoires de radiochimie, services de préparation de sources radioactives) pour les champs mixtes (n , γ) ainsi que pour la mesure du radon et de ses descendants. Pour compléter cette étude, d'autres détecteurs ont été mis en oeuvre : Détecteurs Solides de Traces Nucléaires (LR115, CR-39 et PN3), détecteur à barrière de surface et chambres d'ionisation (Electrets, AlphaGUARD)

2.1- Dosimètres actifs

2.1.1- Dosimètres à gaz

Ces dosimètres sont historiquement les premiers dosimètres électroniques individuels. Ils utilisent un compteur proportionnel du type Geiger Muller : dans une chambre remplie de gaz, un fil porté à haute tension récolte et amplifie les signaux électriques issus des électrons produits par un rayonnement ionisant dans ce gaz. Ces dosimètres peuvent simuler un tissu vivant « CPET » Compteur Proportionnel Equivalent Tissu. Ils donnent directement l'équivalent de dose, et la dose absorbée, mais ils ne donnent pas d'indications sur la nature du rayonnement détecté (X , γ , β , neutrons ...). Ils ont la taille d'une calculatrice et tendent à être remplacés par leurs successeurs les dosimètres à diodes.

2.1.2- Dosimètres électroniques à diode

Une dizaine de marques se partagent le marché de dosimètres aujourd'hui. Un seul modèle se sert d'une chambre d'ionisation. Leurs caractéristiques, en particulier la sensibilité, étant variables, il faut choisir le dosimètre en fonction des rayonnements que l'on veut mesurer. Les plus couramment utilisés pour la détection des rayonnements ionisants incorporent des détecteurs de silicium (Si), de germanium (Ge), de la famille du tellure de cadmium (CdTe et $Cd_xZn_{1-x}Te$ alias CZT) et de l'arséniure de gallium (GaAs). On trouve aussi quelques détecteurs à base d'iodure de mercure (HgI_2).

Les dosimètres électroniques à diode sont environ mille fois plus denses que les détecteurs à gaz. Ils ont un excellent avantage pour la détection des particules de haute énergie. S'il faut environ 30 eV dans un gaz pour créer une paire électron-ion, environ 3 eV sont suffisants pour créer une paire électron-trou dans un semi-conducteur. Les semi-conducteurs sont donc des détecteurs sensibles pour les faibles énergies.

Dans la structure cristalline d'un semi-conducteur, les niveaux d'énergie se composent d'une succession de bandes d'énergies interdites et de bandes d'énergies permises totalement peuplées à l'exception de la dernière, la bande de conduction. Son remplissage partiel varie en fonction de la nature du semi-conducteur et de la température. La bande de valence (l'avant-dernière bande permise) et la bande de conduction sont séparées par une bande interdite dont la hauteur (E_{gap}) s'appelle le « gap ». Au zéro absolu (0 K), la bande de valence est complètement peuplée, le semi-conducteur est isolant. Lorsque la température croît, les électrons qui subissent une agitation thermique peuvent ainsi acquérir une énergie suffisante pour passer de la bande de valence à la bande de conduction. Il y a alors génération d'électrons libres et de trous libres qui sont les porteurs de charge responsables d'une conduction. La probabilité par unité de temps, qu'une paire électron trou soit générée dépend de l'agitation thermique, donc de la température. Elle est donnée par :

$$p(T) \propto T^{3/2} \exp\left(-\frac{E_{gap}}{2kT}\right) \quad 2-1$$

Avec T (K) la température absolue, E_{gap} le gap de la bande interdite et k la constante de Boltzmann.

Un matériau de faible gap, comme le germanium, a une faible résistivité à la température ambiante. Les fluctuations du courant d'obscurité sont alors trop importantes pour que ce matériau soit utilisé comme détecteur sans être refroidi. Le CdTe, le GaAs, le Si et le HgI₂ ont un gap suffisamment grand pour être utilisés à température ambiante. Le Si de plus faible gap est généralement utilisé dans une structure à jonction (P-N, P-I-N,...) pour bloquer les courants d'obscurité.

Le modèle des bandes décrit précédemment correspond au cas idéal d'un matériau intrinsèque et pur. Théoriquement, on peut décrire les propriétés d'un tel matériau, mais, en pratique, elles dépendent fortement des défauts présents dans le matériau. Ces défauts, de structures ou d'impuretés, engendrent la création d'états d'énergie discrets localisés dans la bande interdite. Ces niveaux forment des pièges qui agissent sur le processus de transport des charges. Ces défauts peuvent être introduits volontairement dans le cas d'un dopage [kno00]. Si on introduit des niveaux accepteurs proches de la bande de valence (semi-conducteur dopé P) à l'aide d'atomes trivalents en position interstitielle dans le réseau, les porteurs majoritaires sont alors les trous. On peut aussi introduire des niveaux donneurs près de la bande de conduction à l'aide d'atomes pentavalents (semi-conducteur dopé N) : les porteurs majoritaires sont alors les électrons. Un dopage revient en fait à créer un semi-conducteur avec un gap réduit. Le dopage permet de créer des structures à jonction couramment utilisées pour les détecteurs de rayonnements. Ces structures P-N polarisées en inverse présentent une haute résistivité apparente, supérieure à celle du matériau de base. La résistivité d'un semi-conducteur va donc être liée à son gap, à la structure employée et à la température. Une forte résistivité est recherchée pour les détecteurs de rayonnements afin de minimiser le bruit lié aux fluctuations du courant d'obscurité. C'est pour cette raison que le germanium de faible gap est refroidi.

Pour détecter les particules chargées (α , p, d et ions lourds), le silicium est le matériau semi-conducteur le plus utilisé. De volume assez faible, les détecteurs silicium ne dépassent pas 5 cm³ (quelques mm d'épaisseur suffisant pour arrêter des particules de plusieurs dizaines de MeV). On peut également utiliser des volumes plus grands pour détecter les rayons X dans le domaine de 1 à 50 keV ou les rayons γ de basse énergie jusqu'à 100 keV. Ces détecteurs sont très efficaces pour la détection des rayonnements électromagnétiques de faible énergie. Ils sont maintenus dans une enceinte sous vide de 10⁻³ Pa et refroidis à la température de l'azote liquide (77 K) pour diminuer le bruit thermique (passage des électrons à travers du gap). Leur

volume peut aller jusqu'à 200 cm^3 , la haute tension de polarisation de ces détecteurs va de 1500 à 4000 V. D'autres structures permettent d'obtenir des effets similaires : détecteur semi-conducteur à barrière de surface, à jonction diffusée.

La jonction à barrière de surface SBD (Surface Barrier Detector) est formée d'un semi-conducteur et de certains métaux, comme par exemple un silicium de type N avec de l'or ou un silicium de type P avec de l'aluminium.

Les SBD sont relativement faciles à fabriquer et peuvent avoir de nombreuses épaisseurs. Si le détecteur n'est pas trop épais ($300 \mu\text{m}$ max), on peut avoir une zone de déplétion qui recouvre entièrement sa dimension. Ainsi on pourra utiliser ce détecteur pour mesurer l'énergie déposée par une particule chargée qui le traverse. On mesure toujours l'information dE/dx , et parfois la combinaison dE/dx et E . Un désavantage est leur sensibilité à la lumière.

2.1.3- Détecteurs scintillateurs

Les scintillateurs sont des milieux dans lesquels une fraction non négligeable de l'énergie absorbée lors d'une interaction est transformée, par luminescence, en photons. Après conversion en un signal électrique et traitement par une électronique appropriée, l'énergie déposée par le rayonnement incident est déduite. En fonction des matériaux scintillants, il faut 20 eV au minimum d'énergie déposée pour créer un photon visible. Le rendement lumineux (photons/MeV) des scintillateurs est donc faible. La conversion photons/électrons doit être effectuée à l'aide d'un photodétecteur sensible tel qu'un photomultiplicateur. Les scintillateurs sont utilisés dans le domaine de l'imagerie gamma pour le médical, l'astrophysique et le nucléaire. Ils existent en matériau inorganique (solide) ou organique (solide ou liquide).

Les scintillateurs inorganiques sont constitués de cristaux dopés par une impureté. Ils se déclinent en trois familles : les halogénures d'alcalins, les fluorures et les oxydes. Parmi eux, l'iodure de césium dopé au thallium CsI(Tl) est le détecteur qui a le plus haut rendement lumineux et, l'iodure de sodium dopé au thallium (NaI(Tl)) est le plus largement employé.

Les détecteurs organiques se déclinent en plusieurs familles : des plastiques, des cristaux d'anthracène, de stilbène et des solutions cristallines d'anthracène dans le naphthalène. Ces détecteurs émettent de la lumière lorsqu'ils reçoivent des radiations ionisantes. Ces scintillateurs sont généralement peu chers et peuvent avoir

des temps de réponse très rapides. Ils sont donc largement employés en physique des hautes énergies où ils permettent d'obtenir des surfaces de détection de dizaines de mètres carrés avec une résolution temporelle de 1 ns.

Les dosimètres opérationnels présents sur le marché français, sont censés répondre à la norme internationale de la Commission Electrotechnique Internationale n°61526 [Ce98], norme s'appliquant aux dosimètres individuels électroniques pour la mesure des rayonnements X, γ et β , étalonnés en équivalents de dose individuels Hp(10) et Hp(0,07). Ce qui montre le manque des dosimètres neutroniques sur le marché. Les dosimètres passifs restent les outils les plus utilisés par les laboratoires de recherches à l'heure actuelle.

2.2- Dosimètres passifs

2.2.1- Détecteur Solide de Traces Nucléaires

Les particules chargées peuvent être détectées par l'observation de traces nucléaires, zone de dommages créée le long des trajectoires de ces particules dans le matériau détecteur. Toutefois, l'enregistrement du passage d'une particule chargée dans un solide n'est pas réalisé d'une façon systématique pour toute particule et pour tous les matériaux. Les Détecteurs Solides de Traces Nucléaires (DSTN) mémorisent le passage de particules chargées, lorsque leurs propriétés sont en corrélation avec les seuils de détection.

Historiquement, Price et Walker en 1962 [Pri62-Fle63-64-65] ont mis au point la technique d'observation en microscopie optique de traces individuelles des fragments de fission créés en profondeur dans les milieux condensés. Ils ont montré qu'une attaque chimique différentielle par un acide ou par une base s'effectue préférentiellement le long de la trajectoire des particules dans le détecteur. Ces traitements élargissent les traces jusqu'à atteindre 0,5 micron et les rendent ainsi observables au microscope. Les travaux de Fleischer, Price et Walker réalisés en 1975 [Fle75] ont décrit les mécanismes du développement chimique et de la formation des traces. Ils ont ainsi étendu le champ d'application de l'étude des traces nucléaires à des domaines aussi variés que la géologie, la biologie, l'archéologie, la physique nucléaire, l'étude des météorites ou des échantillons lunaires [Fle98].

On distingue deux grandes différences entre les traces latentes présentes dans deux classes majeures de solides qui sont, soit des minéraux (verre, mica, apatite, quartz,

feldspath, ...) soit des matériaux organiques polymères tels que les dérivés cellulosiques (nitrate de cellulose, di-acétate et tri-acétate de cellulose) et les polycarbonates (CR-39, Lexan, ...).

Tous les résultats (nombre de traces, diamètres, bruit de fond, ...) d'un DSTN dépendent des conditions de traitement chimique ou électrochimique et du système de comptage. Dans le présent travail, nous avons utilisé deux types de DSTN : LR115 et CR-39.

2.2.1.1- DSTN type LR115

Il s'agit d'un film en couche mince de marque Kodak. Il est constitué d'une couche de nitrocellulose ($C_6H_8N_2O_9$) de 12 μm d'épaisseur moyenne, teintée en rouge et d'un support inerte de 100 μm en polyester.

Le nitrate de cellulose est parmi les DSTN les plus sensibles aux particules alpha. Il peut enregistrer des particules α d'énergie comprise entre 1,4 et 4,7 MeV avec un angle d'incidence allant jusqu'à 50°.

L'insensibilité du LR115 aux rayonnements électromagnétiques et aux électrons présente un grand intérêt pour son utilisation en champs mixte de rayonnements. Pour la dosimétrie α , sa révélation chimique se fait pendant 2 heures dans une solution de NaOH de molarité 2,5 M à une température de 60 °C. Après traitement chimique, chaque impact de particule α laisse un micro-trou de 1 à 15 μm de diamètre dans la couche rouge.

2.2.1.2- DSTN type PADC

De formule chimique brute $C_{12}H_{18}O_7$, ce polymère massif de Poly-Carbonate d'Allyle Diglycol, commercialisé sous le nom de CR-39 [**Car78**], est transparent, amorphe, isotrope et beaucoup plus sensible aux particules ionisantes que le LR115.

Il présente l'avantage d'enregistrer des particules chargées d'énergie comprise entre 0,5 à 20 MeV avec un angle d'incidence allant jusqu'à 75°.

Une nouvelle génération de ces films est conditionnée et codée par le fournisseur pour avoir une identification unique (**Figure 2.1**). Ils sont commercialisés sous le nom de PN3 (NE Technologie, Beenham, Angleterre) avec les dimensions 20 × 25 × 1,5 mm, alors que les films CR-39 classiques sont commercialisés sous forme de feuilles de différentes épaisseurs.

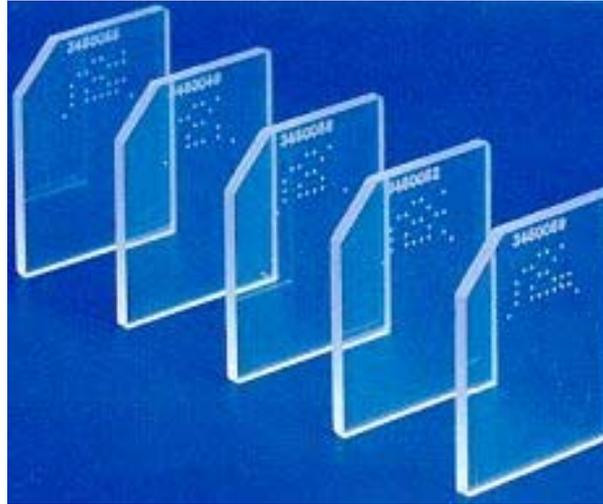


Figure 2.1 : Détecteurs de type PN3

Dans le **tableau 2.1**, on regroupe les caractéristiques du détecteur polymérique (CR-39, PN3).

Composition chimique	$(C_{12}H_{18}O_7)_n$
Densité	PN3 : $1,32 \text{ g cm}^{-3}$ CR-39 : $1,29 \text{ g cm}^{-3}$
Poids moléculaire	274 g mol^{-1}
Nombre des électrons / molécule	146
A / Z	1,877
Potentiel d'ionisation	70,19 eV
Densité électronique	PN3 : $1,24 \times 10^{23} \text{ e}^- \text{cm}^{-3}$ CR-39 : $1,11 \times 10^{23} \text{ e}^- \text{cm}^{-3}$
Chaleur spécifique	$0,55 \text{ cal } ^\circ\text{C}^{-1} \text{ g}^{-1}$
Indice de réfraction	1,5
Seuil d'enregistrement Z / β	10

Tableau 2.1 : Principales caractéristiques du CR-39

La lecture des films ainsi développés, a été réalisée à l'aide d'un système automatique (**Figure 2.2**), récemment acquis par le groupe RaMsEs, composé d'une caméra CCD reliée à un microscope optique et d'une table traçante (X,Y,Z) pilotée par le logiciel Visilog. La **figure 2.3**, montre deux détecteurs tels qu'ils se présentent sous un microscope ($\times 100$) après l'exposition et le développement.



Figure 2.2 : *Système d'exploitation des DSTN utilisé pour la numérisation et le comptage des traces alpha*

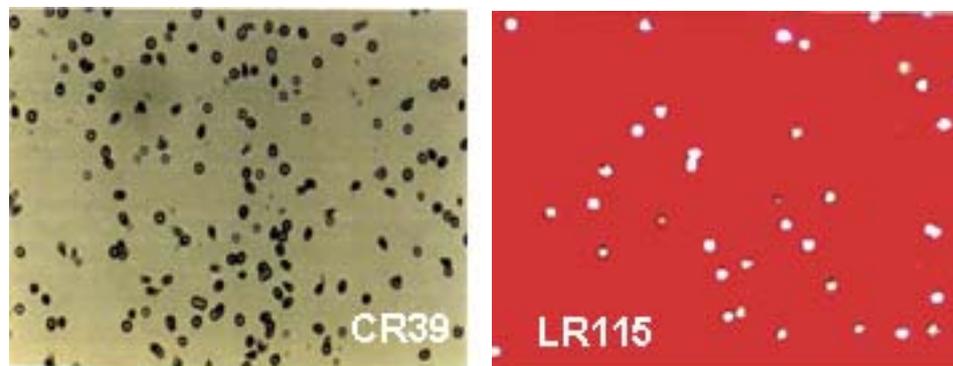


Figure 2.3 : *Traces de particules α révélées dans les DSTN CR-39 et LR115*

La **figure 2.4** montre des traces révélées dans le CR-39, les différentes formes elliptiques des traces résultent de variations des angles et des énergies des particules incidentes. Dans la **figure 2.5** on présente des traces révélées des protons dans le PN3.

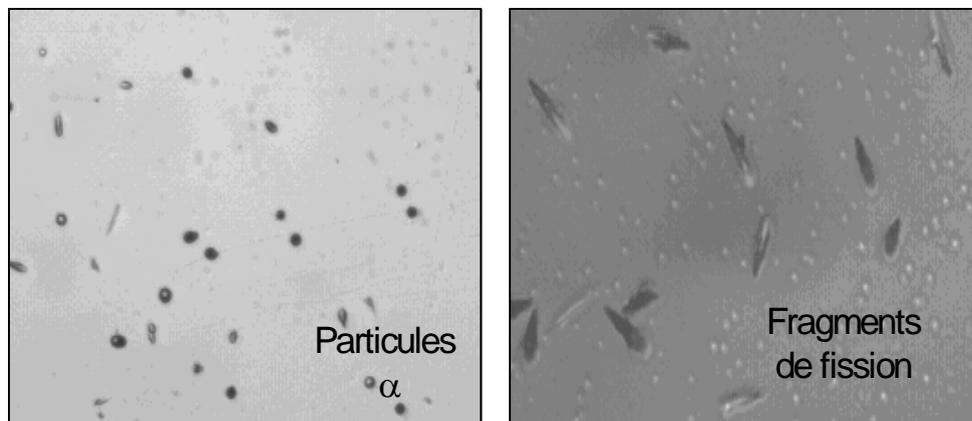


Figure 2.4 : *Relevé de traces dans le CR-39 par une caméra CCD numérique montée sur un microscope*

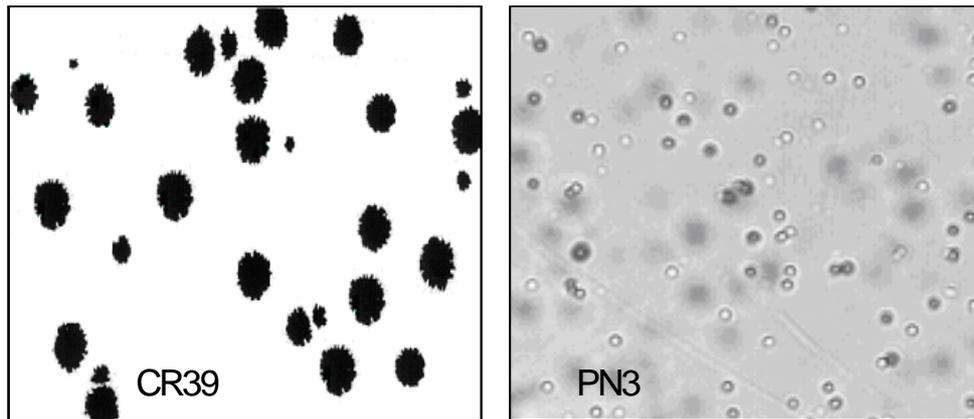


Figure 2.5 : Relevé de traces des protons par développement électrochimique du CR-39, et chimique du PN3

Si le comptage reste aisé pour les LR115, l'analyse détaillée des traces dans le PN3 et CR-39 transparent par traitement d'image est plus délicat par manque de contraste.

2.2.1.3- Critères de visualisation des traces

La visualisation d'une trace latente se réalise qu'à un ensemble de conditions pour plusieurs paramètres. Chaque DSTN est caractérisé par une perte d'énergie critique à la surface du détecteur en dessous de laquelle les traces ne sont pas observable [Dur87]. Si ce critère est satisfait pour des particules habituellement rencontrées, on a cependant remarqué que les ions de fer relativistes n'étaient pas détectés dans le nitrate de cellulose tandis que le TEL est supérieur à la perte d'énergie critique. Cette observation a montré que l'enregistrement des traces dépend non seulement de la nature du matériau mais aussi de la nature des particules incidentes. L'apparition d'une trace dépend des trois paramètres complémentaires suivants :

- l'angle d'incidence,
- l'énergie de la particule incidente,
- les conditions de développement.

2.2.1.4- Formation des traces latentes

Durant les dernières décennies, plusieurs travaux ont été effectués afin de comprendre la distribution spatiale du dépôt d'énergie d'une particule incidente sur un détecteur et les modèles de formation d'une trace dans un DSTN.

Parmi ces modèles nous citons plus particulièrement le modèle de la pointe thermique et le modèle d'explosion ionique. Ces modèles disent que la zone entourant l'axe de la trajectoire de la particule subit un maximum de dégâts créés par l'ionisation primaire. Les électrons issus de cette ionisation créent à leur tour des dommages le long de leur parcours. La trace est donc constituée de deux zones de perturbations:

a) une zone cylindrique de rayon r_0 dite cœur de la trace, dans laquelle les perturbations sont créées par le passage de la particule chargée (ionisation primaire),

b) une zone appelée halo de dommages, où les perturbations créées au cœur de la trace se propagent par les électrons secondaires (électrons δ) issus de l'ionisation primaire.

L'ensemble des dégâts, y compris une augmentation du nombre de chaînes par cassure induite et la formation de nouvelles espèces chimiques, rendent possible la mise en évidence des traces par développement chimique.

En fait, la structure d'une trace révélée est complexe mais elle peut être assimilée à un volume de révolution autour d'un axe de rayon r compris entre 1 à 150 angströms et de 10^5 angströms de longueur pour les fragments de fissions dans les polymères. Pour les particules α , les dimensions radiales sont de l'ordre de l'angström, nous pouvons donc assimiler la trace latente à un segment puisque le diamètre de la trace est petit par rapport à sa longueur.

2.2.1.5- Géométries des traces enregistrées dans les DSTN

La forme des traces révélées est régie par la dissolution chimique du matériau le long du canal selon les deux paramètres suivants:

- **la vitesse d'attaque surfacique chimique V_B du détecteur vierge**, qui correspond à la vitesse avec laquelle l'épaisseur du détecteur est décapée lorsqu'il est soumis à un traitement chimique,
- **la vitesse d'attaque chimique V_T propre aux traces latentes**, qui traduit l'érosion interne le long de la trace.

Plusieurs études ont été effectuées sur ces deux paramètres qui permettent d'interpréter l'évolution de la forme des traces dans le DSTN [Hen71-Som80-Mey97].

Les figures 2.7 et 2.8 donnent respectivement le modèle de révélation pour une incidence normale et inclinée des particules alpha incidentes.

pouvons voir la vie en couleur: éclairage fluorescent, écran de téléviseur ou d'ordinateur....

2.2.2.1- Description des processus de luminescence

On appelle luminescence le rayonnement lumineux des corps excédentaire sur le rayonnement thermique à la même température et ayant une durée caractéristique qui permet de distinguer luminescence et phosphorescence. Ce rayonnement est dû au bombardement de la substance par électrons et autres particules chargées, au passage d'un courant électrique (action non thermique) à travers la substance, à l'éclairement de la substance en lumière visible ou ultraviolette, par les rayons X et γ , ainsi qu'à certaines réactions chimiques se produisant dans la substance.

A la différence du rayonnement thermique en équilibre la luminescence n'est pas équilibrée. Elle est provoquée par une quantité relativement petite d'atomes, de molécules ou d'ions. Sous l'action de la source lumineuse ils passent à un état excité, et leur retour à l'état normal ou à un état moins excité s'accompagne d'un rayonnement lumineux. La durée de la luminescence est déterminée par la durée de l'état excité, qui dépend non seulement des propriétés de la substance lumineuse, mais aussi du milieu environnant. Si l'état excité est métastable, la demi-vie du maintien de la particule en cet état peut atteindre 100 μ s.

La luminescence qui cesse presque immédiatement après la disparition de l'excitation lumineuse est appelée fluorescence. La luminescence qui persiste un temps appréciable après qu'a cessé l'excitation lumineuse est dite phosphorescence.

1- Fluorescence et phosphorescence

La fluorescence est due aux passages des atomes, des molécules et des ions d'un état excité à l'état normal. La phosphorescence est conditionnée par l'existence d'états excités métastables des atomes et des molécules tels que le passage de ceux-ci à l'état normal soit rendu difficile par des règles de sélection. Le passage de l'état métastable à l'état normal n'est possible que dans le cas d'une excitation complémentaire (excitation thermique, par exemple). La délimitation entre la fluorescence et la phosphorescence est assez conventionnelle. La luminescence sous l'effet de la lumière est dite photoluminescence, sous l'effet du bombardement par électrons luminescence

cathodique, sous l'action du champ électrique électroluminescence, sous l'action de transformations chimiques chimiluminescence.

Suivant le caractère des processus élémentaires produisant le rayonnement luminescent on distingue les processus de luminescence spontanés, forcés et de recombinaison, ainsi que la fluorescence de résonance. On observe la fluorescence de résonance dans les vapeurs atomiques. Elle consiste en l'émission lumineuse spontanée s'opérant à partir du même niveau énergétique sur lequel s'est trouvé l'atome émetteur ayant absorbé d'énergie de la source luminescente. Lors de l'excitation de la fluorescence de résonance par la lumière, un rayonnement de résonance à lieu, qui se transforme en diffusion de résonance avec l'augmentation de la densité de la vapeur.

2- Luminescence spontanée

La luminescence spontanée consiste en ce que sous l'action de la source luminescente s'opère d'abord l'excitation des atomes (ou molécules ou ions) passant à des niveaux énergétiques excités intermédiaires. Ensuite à partir de ces niveaux ont lieu des transitions, le plus souvent non radiatives, vers des niveaux à partir desquels est émise la luminescence. Un tel genre de luminescence est observé dans les molécules complexes de la vapeur et des solutions, dans les centres d'impuretés des corps solides. Elle est observée également lors de transitions à partir d'états excitoniques.

3- Luminescence forcée

La luminescence forcée ou métastable : sous l'action de la source luminescente a lieu un passage à un niveau métastable, suivi de transition vers un niveau radiatif de luminescence. La phosphorescence des substances organiques en est un exemple.

4- Luminescence de recombinaison

La luminescence de recombinaison est le rayonnement qui se produit au cours de la recombinaison des particules qui étaient séparées lors de l'absorption d'énergie de la source luminescente (dans les gaz, les radicaux ou les ions ; dans les cristaux, les électrons ou les trous).

La luminescence de recombinaison peut avoir lieu dans les centres d'impuretés (centres luminogènes) lorsque le trou est capturé sur le niveau fondamental du centre et l'électron, sur son niveau excité.

Lors de l'excitation de la luminescence par les électrons, l'énergie incidente est transmise aux électrons des molécules et des ions et les excite. Le transport d'énergie n'est possible que si l'énergie cinétique de l'électron satisfait la relation :

$$T \geq E_e - E_n \quad 2-2$$

où E_n et E_e sont l'énergie totale de l'atome (de la molécule, de l'ion) à l'état normal et à l'état excité le plus proche. L'atome (la molécule, l'ion) revient de l'état excité à l'état normal en émettant un photon d'énergie :

$$h\nu = E_e - E_n \quad 2-3$$

Pour des énergies d'excitation suffisamment grandes le retour de l'atome (de la molécule, de l'ion) de l'état excité à l'état normal peut s'opérer en plusieurs étapes, en passant par des états de moins en moins excités. A ce phénomène correspond l'émission de quelques photons de différentes fréquences et leur énergie totale est alors égale à l'énergie d'excitation initiale.

5- Electroluminescence

L'électroluminescence dans les gaz provient d'une décharge électrique. Ici l'énergie d'excitation est transmise aux molécules gazeuses par choc électronique ou ionique. L'état excité dans l'électroluminescence est toujours provoqué par le passage d'un courant quelconque et donc dû à la présence du champ électrique. Dans les corps solides on observe l'électroluminescence, en particulier dans la jonction p-n des semi-conducteurs.

6- Chimiluminescence

La chimiluminescence se manifeste dans certaines réactions chimiques exothermiques. Les transformations chimiques dans la substance s'accompagnent de réorganisation des couches électroniques externes des atomes. L'émission lumineuse conduit à la formation d'un composé chimique avec une configuration électronique plus stable dans des conditions physico-chimiques données. La chimiluminescence

accompagne souvent les processus d'oxydation avec formation de produits de combustion plus stable.

La chimiluminescence est provoquée par les molécules (les atomes, les ions) des produits de la réaction se trouvant en états excités électroniques, vibratoires et rotatoires. La luminescence des flammes aux températures élevées et aux températures basses, la luminescence accompagnant la recombinaison des radicaux peroxydes lors de l'oxydation en chaîne de hydrocarbures liquides sont des exemples de chimiluminescence.

7- Photoluminescence

La photoluminescence provient d'une excitation lumineuse dans le domaine du visible ou de l'ultraviolet du spectre. Pour les substances luminescentes complexes (molécules polyatomiques, milieux condensés) la composition spectrale de la photoluminescence ne dépend pas de la longueur d'onde de la lumière excitatrice et obéit à la règle de Stokes.

La photoluminescence donne des spectres de raies, de bandes et continuum. Le caractère de la photoluminescence dépend essentiellement de l'état d'agrégation de la substance. Le rendement quantique de certains cristaux phosphorescents s'élève avec l'augmentation de la fréquence de la lumière excitatrice si $h\nu > 2 \Delta w$, où Δw est la largeur de la bande interdite (multiplication photonique dans la photoluminescence).

2.2.2.2- Lois de la luminescence

Règle de Stokes : la longueur d'onde de la photoluminescence est supérieure à la longueur d'onde de la lumière excitatrice. Sous une formulation plus générale cette règle s'inonce : le maximum du spectre de luminescence est toujours déplacé du côté des longues ondes par rapport au maximum du spectre d'absorption. Du point de vue quantique, la règle de Stokes signifie que l'énergie $h\nu$ du quantum de lumière excitatrice est dépensée en partie dans des processus non optiques :

$$h\nu = h\nu_{lum} + W \text{ si } \nu_{lum} < \nu \quad 2-4$$

W est l'énergie dépensée dans différents processus autres que la photoluminescence.

Dans certains cas, le spectre de photoluminescence contient des longueurs d'onde inférieures à la longueur d'onde de la lumière excitatrice (raies anti-Stokes ou

émission anti-Stokes) [Mon66]. Ce phénomène s'explique par le fait qu'à l'énergie d'excitation du photon peut parfois s'ajouter l'énergie d'agitation thermique des atomes, des molécules ou des ions du luminophore :

$$h\nu_{\text{lum}} = h\nu_{\text{abs}} + \alpha k T, \quad 2-5$$

où α est un coefficient dépendant de la nature du luminophore, k la constante de Boltzmann et T la température absolue du luminophore. Les raies anti-Stokes s'aperçoivent de plus en plus distinctement à mesure que s'élève la température du luminophore.

1- Rendement énergétique de luminescence

On appelle rendement énergétique de luminescence le rapport de l'énergie de luminescence à l'énergie absorbée dans des conditions stationnaires par le luminophore de la source excitant la luminescence.

2- Rendement quantique de photoluminescence

On appelle rendement quantique de photoluminescence le rapport du nombre de photons émis du rayonnement luminescent au nombre de photons absorbés de la lumière excitatrice (à une énergie fixe de cette dernière). Le rendement énergétique de photoluminescence croît proportionnellement avec la longueur d'onde λ du rayonnement absorbé et, ensuite, atteignant dans un certain intervalle de $\lambda \sim \lambda_{\text{max}}$ sa valeur maximale. Il décroît rapidement jusqu'à zéro lors de l'augmentation ultérieure de λ (loi de Vavilov). Avec l'accroissement de la longueur d'onde de la lumière excitatrice augmente le nombre de photons d'énergie $h\nu$ contenus dans une énergie donnée du rayonnement primaire. Etant donné que chaque photon peut provoquer l'apparition d'un quantum $h\nu_{\text{lum}}$, l'augmentation de la longueur d'onde fait croître le rendement énergétique de photoluminescence. La baisse brusque du rendement énergétique, lorsque $\lambda > \lambda_{\text{max}}$, s'explique par le fait que l'énergie des photons absorbés devient insuffisante à l'excitation des particules du luminophore.

Selon la loi de Vavilov, le rendement quantique de photoluminescence ne dépend pas de la longueur d'onde de la lumière excitatrice dans le domaine de Stokes ($\nu_{\text{exc}} > \nu_{\text{lum}}$) et baisse de façon brusque dans le domaine de raies anti-Stokes ($\nu_{\text{exc}} < \nu_{\text{lum}}$).

Les valeurs des rendements quantique et énergétique dépendent sensiblement de la nature du luminophore et des conditions extérieures. Ceci est lié à la possibilité de transitions non radiatives des particules de l'état excité à l'état normal (extinction de la luminescence). Les chocs de seconde espèce jouent un rôle fondamental dans les processus d'extinction par suite desquels l'énergie d'excitation se transforme en énergie interne d'agitation thermique non radiative. Une baisse brusque de l'intensité de la fluorescence a également lieu pour une concentration excessivement grande des molécules du luminophore (extinction par concentration). Dans ce cas, du fait de la liaison forte entre ces particules la formation de centres luminogènes n'est pas possible.

L'intensité de la luminescence spontanée d'un état métastable varie dans le temps d'après la loi exponentielle :

$$I_t = I_0 e^{-t/\tau} \quad 2-6$$

où I_t est l'intensité de la luminescence à l'instant t , I_0 l'intensité de la luminescence à l'instant auquel cesse l'excitation lumineuse, τ la durée moyenne de l'état excité des atomes ou des molécules du luminophore. La grandeur τ est habituellement de l'ordre de 1 à 10 ns. En l'absence de processus extincteurs, τ dépend faiblement des conditions et est déterminé principalement par les processus intramoléculaires.

L'intensité de la luminescence de recombinaison varie avec le temps d'après la loi hyperbolique :

$$I_t = \frac{I_0}{(1-qt)^n} \approx \sqrt{I_0} \quad 2-7$$

Où I_0 est l'intensité de la luminescence de recombinaison à l'instant de l'excitation, q et n sont des constantes.

La grandeur q est comprise dans les limites de fractions de s^{-1} à plusieurs milliers de s^{-1} et n est comprise dans les limites de 1 à 2.

2.2.2.3- Dosimètres à films photographiques

Le film photographique est un système de détection à image latente, basé sur le bromure d'argent. Les rayonnements X absorbés dans le film réduisent les atomes d'argent à l'état métallique, qui sert de centre pour un processus de multiplication lors du développement chimique. Certains grains se développent spontanément ce qui donne un niveau de bruit de fond uniforme appelé brouillard chimique.

Les films photographiques sont sensibles à la lumière. Celle-ci transforme par ionisation les ions d'argent Ag^+ , dispersés dans la gélatine du film, en argent métallique. Les rayonnements α et β ont le même effet. Mais les sensibilités doivent être adaptées. Les plus sensibles arrivent à mesurer une dose de 0,1 mSv, ce qui les rend utiles pour surveiller des doses cumulées mais non pour des doses instantanées.

En disposant ces films derrière un écran composé d'un certain nombre de plages d'épaisseurs ou de matériaux différents, on peut estimer la répartition en énergie des photons qui composent la dose reçue derrière chaque plage.

Parmi les inconvénients de ces dosimètres :

- Ils doivent être développés, le plus souvent tous les mois en raison de leur faible sensibilité, et donc le résultat est connu avec retard ; c'est un outil de surveillance a posteriori, qui ne sert qu'une fois.
- Ils sont sensibles aux conditions extérieures (humidité, chaleur, agents chimiques) et ne peuvent être stockés très longtemps avant utilisation.
- Leur sensibilité dépend du nombre de plages d'écran utilisées, ce qui peut rendre l'exploitation de ces dosimètres assez lourde.

Parmi les avantages :

- Leur faible coût de fabrication.
- Leur faible poids et encombrement qui en font un outil bien adapté au port individuel. Les badges standard font environ 12 cm². Ils peuvent, après développement être conservés très longtemps.
- Munis d'écran en cadmium, ils sont sensibles aux neutrons thermiques.

2.2.2.4- Dosimètres thermoluminescents

Dans des matériaux à structures cristallines, l'énergie des rayonnements ionisants peut être absorbée pour créer des défauts dans cette structure. Lorsque l'on chauffe, l'agitation thermique détruit ces défauts et la structure cristalline se rétablit. Au cours de ces «réparations», il y a émission d'une lumière, c'est le phénomène de thermoluminescence. La quantité de lumière restituée, dans des conditions données, est proportionnelle à la dose reçue. La lumière émise devient une mesure électronique de la dose.

Ces dosimètres sont très répandus car on peut adapter le matériau thermoluminescent à la sensibilité requise pour l'utilisation prévue, ce qui rend leur

utilisation assez souple : ils sont utilisés aussi bien en dosimétries individuels que pour la surveillance de zones ou des études sur l'environnement.

Parmi les avantages de ces dosimètres :

- Leur sensibilité est meilleure que celle des films photographiques.
- Leur réponse en énergie est linéaire, c'est-à-dire que la quantité de lumière émise est proportionnelle à la dose.
- Avec des écrans on peut étendre cette sensibilité ; certains matériaux ont une densité avoisinante celle des tissus vivants, et permettent une bonne estimation de la dose effective.
- Ils ont une grande dynamique, c'est-à-dire qu'ils sont sensibles à des doses aussi bien faibles que fortes. Ils peuvent mesurer des doses de l'ordre du mSv, et donner des ordres de grandeurs pour des doses au-delà du Sv (correspondant à des accidents de criticité).
- Ils se prêtent à une lecture automatisée grâce à un étalonnage individuel.
- Ils sont réutilisables jusqu'à plusieurs centaines de fois. Leur lecture les remet à zéro. La courbe de lumière enregistrée (le thermogramme) peut être stockée facilement.
- Ils sont très robustes, insensibles à l'humidité ou aux chocs ; certains matériaux sont également sensibles aux neutrons.

Parmi leurs inconvénients :

- Leur lecture n'est possible qu'une fois.
- Leur stockage avant emploi nécessite de les placer dans des châteaux de plomb, pour les soustraire à l'action des rayonnements cosmiques qui engendrent un bruit de fond. (c'est ce même bruit de fond qui permet l'utilisation de la thermoluminescence pour la datation d'objets archéologiques chauffés lors de leur fabrication ou de laves).

2.2.2.5- Dosimètres radiophotoluminescents

Ces dosimètres utilisent la propriété de RPL (Radio-Photo-Luminescence) qu'ont certains verres : lors de leur fabrication ou sous l'action de rayonnements ionisants, des électrons peuvent être arrachés aux atomes et piégés dans des défauts de la structure du verre. Lorsqu'on illumine le verre avec de la lumière ultraviolette, ces électrons s'excitent, et produisent ensuite par désexcitation une luminescence

caractéristique orange. L'intensité de celle-ci est proportionnelle aux nombres de défauts dans l'échantillon et sa mesure permet donc d'estimer la dose reçue.

La lecture n'est pas destructive, le dosimètre après lecture peut continuer à être utilisé, les doses se cumulant : il peut ainsi servir de dosimètre intégrateur personnalisé, mais en dehors des périodes d'utilisation, ou pour un archivage, il est nécessaire de le stocker dans un château de plomb. On peut également les remettre à zéro par chauffage.

Ces dosimètres ont des réponses différentes suivant l'énergie des photons, ce qui peut se corriger à l'aide d'écrans adaptés. Ils sont aussi sensibles que les films, mais ont une grande dynamique, ce qui permet de les utiliser en complément des films pour estimer des fortes irradiations accidentelles.

Ils sont également, mais avec une réponse plus faible, sensibles aux neutrons thermiques.

2.2.2.6- Films photostimulables

1- Principe physique

Lorsqu'un détecteur photostimulable (couramment appelé Imaging Plate 'IP') est exposé à un flux de particules ou à un faisceau de rayonnements électromagnétiques (γ et X), il retient de l'énergie absorbée pour former une image latente, au lieu de la libérer immédiatement comme dans le cas des écrans renforçateurs classiques. L'énergie emmagasinée peut être ensuite libérée en différé sous l'effet d'une stimulation optique sélective des électrons piégés. La densité de la population de ces derniers est corrélée à la fois dans l'espace et en amplitude avec l'intensité du rayonnement incident. Cette population est métastable et peut rester dans cet état plusieurs jours, bien qu'une recombinaison progressive des électrons piégés se produise, provoquant une diminution de l'énergie stockée. La recombinaison peut être accélérée par stimulation optique sélective, entraînant l'émission d'une luminescence visible caractéristique.

Le détecteur photostimulable agit comme un transducteur d'énergie, permettant de convertir le spectre des rayonnements incidents en un motif optique visible. Ce processus est électronique et non chimique comme dans le cas des films classiques. Il est entièrement réversible et le détecteur peut subir un grand nombre de cycles de mesure sans dégradation notable.

La lecture et la numérisation de l'information stockée sur le détecteur photostimulable s'effectuent par balayage à l'aide d'un laser (**Figure 2.9**). La dimension du faisceau laser détermine la résolution du système. La luminescence émise par chaque élément est capturée et envoyée dans un tube photomultiplicateur, où il est converti en un signal électrique. Ce signal analogique est amplifié, numérisé et stocké en mémoire d'ordinateur en fonction de la position du laser sur le détecteur. Lorsque la totalité du détecteur est balayée, l'image finale numérisée est affichée sur un moniteur.

2- Principe de lecture

L'image latente stockée par le détecteur est transformée en une image numérique par l'unité de lecture. Un balayage point par point des lignes de l'écran est effectué par un faisceau laser finement focalisé He-Ne de longueur d'onde $\lambda = 633 \text{ nm}$, réfléchi par un miroir tournant polyédrique ou miroir oscillant.

La luminescence stimulée par le laser, dont l'intensité est proportionnelle au nombre de rayonnements ionisants absorbés, est collectée par un miroir et un faisceau de fibres optiques positionné en regard de la ligne balayée par le laser. Un filtre sépare la lumière de stimulation (laser rouge) de la luminescence (bleu-pourpre $\lambda = 390 \text{ nm}$) pour éviter toute interférence. Le signal lumineux est converti en signal électrique puis amplifié grâce à un tube photomultiplicateur jusqu'alors analogique. Le signal est échantillonné et numérisé par un convertisseur analogique numérique.

3- Centres colorés

Une lacune d'ion négatif possède une charge positive et peut attirer un électron. Le centre obtenu se comporte alors comme une sorte d'atome d'hydrogène, où l'électron peut occuper différents états excités. L'expression "centre F" est synonyme de centre coloré. (Le "F" provient de l'allemand "*Farbe*" qui signifie "couleur".) De tels défauts sont généralement obtenus par irradiation au moyen de rayons X ou γ , ou par l'introduction d'impuretés dans le réseau cristallin. Il existe plusieurs sortes de centres colorés. Les centres V dérivent de l'association d'une lacune d'ion positif et d'un trou positif, et les centres H de l'association d'un anion interstitiel et d'un trou positif. On

connaît aussi les centres Z formés de l'association d'un ion étranger de valence différente avec un électron.

4- Critère de sélection

Les matériaux photostimulables, susceptibles d'être utilisés comme phosphore à mémoire pouvant conserver en latence une image issue d'une exposition à un rayonnement (UV, X, ...) doivent satisfaire à un certain nombre de critères [Von89].

Le matériau doit :

- Contenir une fraction importante d'éléments ayant un numéro atomique élevé de façon à garantir une absorption efficace des rayons X par une couche peu épaisse du produit, et permettre ainsi une bonne résolution spatiale,
- Présenter une séparation spectrale suffisante entre le rayonnement de stimulation et celui de la lumière émise, pour éviter toute interférence pouvant entraîner des erreurs de mesure,
- Convertir l'énergie des rayons UV ou X en paires électron/trou photostimulable avec un bon rendement. Cette qualité permet de limiter la dose de rayonnement reçue par le sujet lors de son irradiation aux fins médicales,
- Posséder un temps de piégeage des paires électron/trou sensiblement supérieur au temps d'excitation et de lecture de l'image,
- Posséder une luminescence de courte durée de vie afin de permettre la restitution de l'image en un minimum de temps,
- Etre réutilisable après que toutes les informations résiduelles aient été extraites ou effacées optiquement.

Le matériau photostimulable qui répond le mieux aux critères de sélection cités auparavant est incontestablement un fluorohalogénure de baryum BaFX ($X = \text{Cl}, \text{Br}, \text{I}$) dopé à l'euprium divalent et en particulier BaFBr:Eu²⁺.

5- Mécanismes de photostimulation dans le BaFX

Nous rappelons que, la luminescence est un phénomène commun à certains sels minéraux cristallins dits luminophores. Leur excitation par absorption d'énergie d'un rayonnement incident est suivie d'une émission lumineuse visible ou proche du visible.

Cette capacité est liée à la présence d'atomes activateurs situés au sein du réseau matriciel cristallin, atomes d'impuretés présents dans le cristal en faible proportion. Il s'agit de métaux lourds : Mn, Cu, Pb, Eu, Sr (**Figure 2.10**). Les détecteurs photostimulables que nous avons étudiés dans le présent travail est le fluoro-halogénure de baryum (BaFX: Eu²⁺) dopé par une faible concentration d'ions europium divalent qui jouent le rôle d'activateur. Il a été choisi en raison de sa forte luminescence.

L'énergie absorbée est restituée après stimulation par un balayage laser dont la longueur d'onde est située dans la lumière rouge (**Figure 2.11**). Les électrons chassés par le rayonnement initial de leur niveau énergétique stable (bande de valence), atteignent un niveau d'énergie supérieur (bande de conduction), puis sont piégés par les halogénures monovalents (Cl, Br, ou I) : ils se retrouvent dans un état métastable. Sous l'effet de cette stimulation secondaire, les électrons sont libérés. Le retour à l'état fondamental s'accompagne de l'émission d'un quantum d'énergie sous forme de luminescence (**Figure 2.12**) de longueur d'onde $\lambda \approx 390$ nm.

La luminescence photostimulée PSL (Photo-Stimulated Luminescence) dans le type de phosphore BaFBr:Eu²⁺, est causée par la libération de paires électron/trou. Les électrons sont piégés dans des lacunes de fluor ou de brome et les trous vont se recombiner avec les ions Eu²⁺ donnant ainsi naissance à des ions à l'état trivalent (Eu²⁺ → Eu³⁺) [**Tak84**]. Le piégeage d'un électron dans une lacune anionique entraîne la formation d'un centre coloré de type centre F. Ainsi on a une luminescence stimulée grâce aux ions Eu²⁺. Ce mécanisme est résumé dans le diagramme des niveaux d'énergie présenté sur la **figure 2.13**.

D'une manière générale, il est admis que les centres F qui sont formés par les électrons piégés par les lacunes soit d'ions bromure F(Br⁻) ou d'ions fluorure F(F⁻) sont responsables du mécanisme de stockage des électrons (ce sont des réservoirs d'électrons).

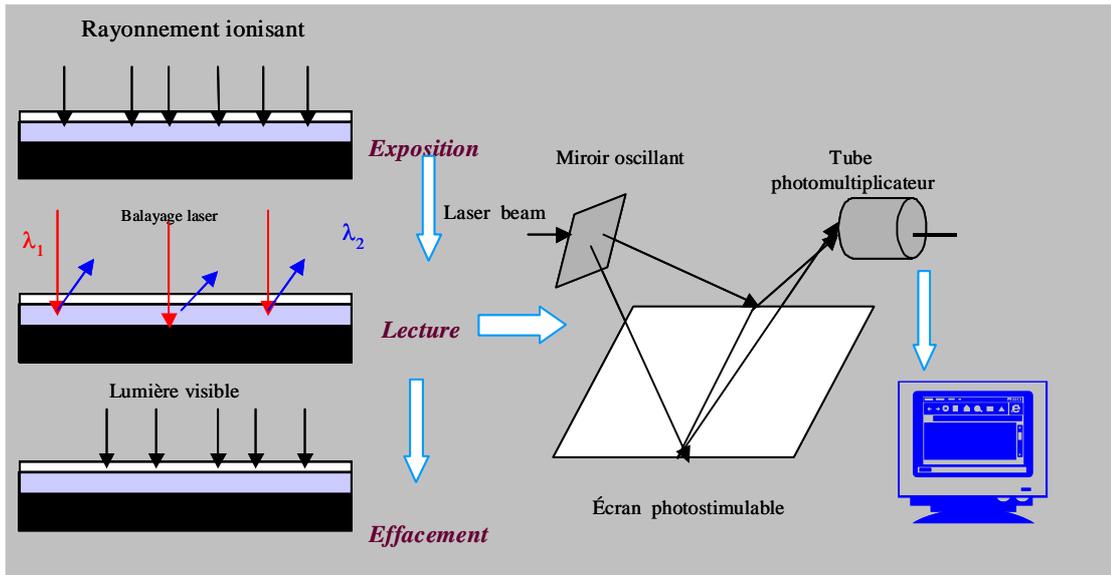


Figure 2.9 : Principe de fonctionnement des écrans photostimulables

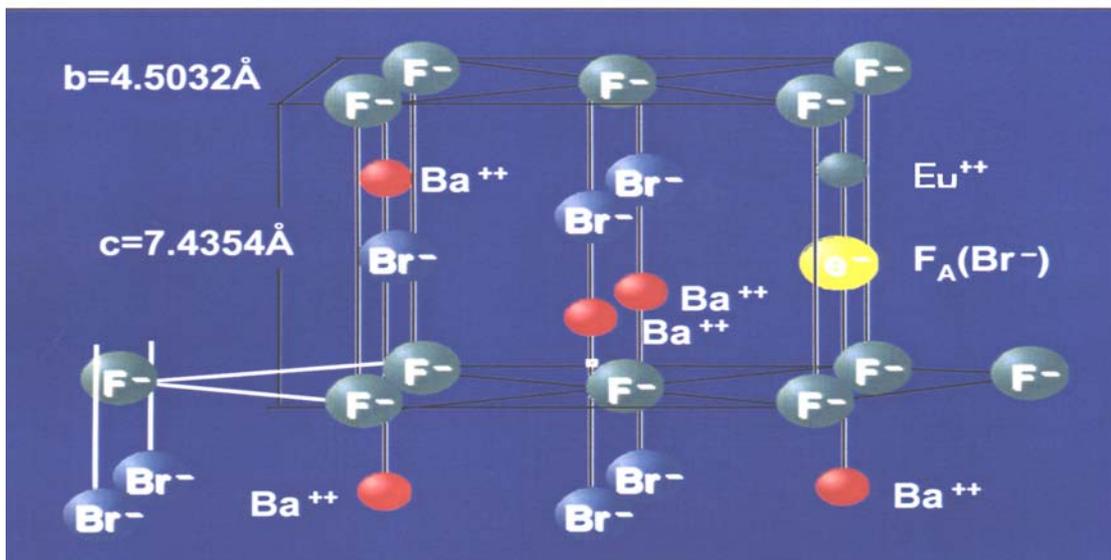


Figure 2.10 : Structure du cristal de $BaFBr:Eu^{2+}$ [Tak02]

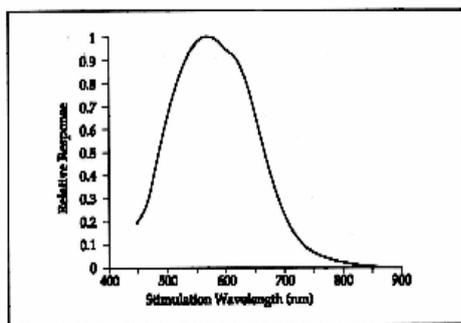


Figure 2.11 : Spectre de stimulation [Tak02]

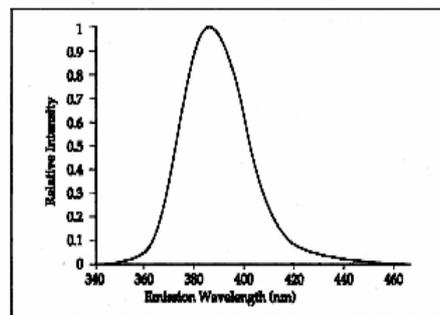


Figure 2.12 : Spectre de luminescence [Tak02]

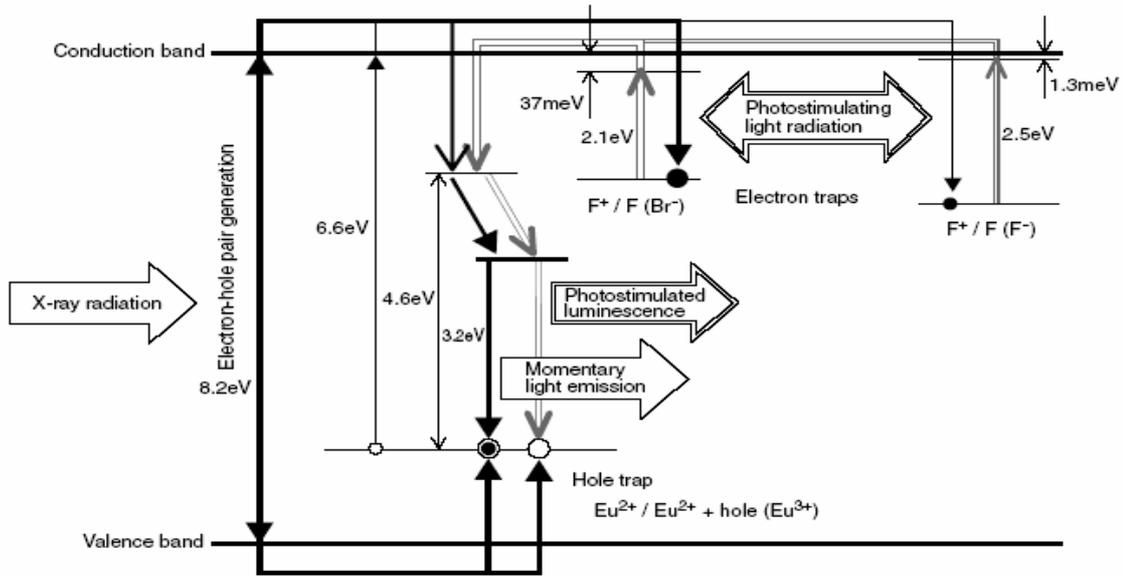


Figure 2.13 : Mécanisme de la luminescence photostimulée [Tak02]

2.3- Système de détection et de lecture

2.3.1- Détecteur BaFBr:Eu²⁺

Actuellement, les détecteurs photostimulables sont introduits dans des secteurs variés et trouvent des applications pratiques, dans le milieu médical pour l'imagerie et dans le milieu industriel pour les contrôles non destructifs (CND). Dans l'avenir, ils pourront remplacer les films conventionnels à base d'AgBr comme détecteur de rayons X. Le présent travail a été consacré à l'étude et la caractérisation des films photostimulables BaFBr:Eu²⁺ pour des nouvelles applications à la dosimétrie passive. Les détecteurs photostimulables mis en œuvre, sont constitués d'écrans souples de dimensions 31 × 41 mm et de 360 μm d'épaisseur. Ils sont composés de 4 couches distinctes (Figure 2.14). La couche sensible est colorée afin d'éviter la diffusion lumineuse. Le support en polyéthylène soutenant et protégeant la couche sensible, est noirci au carbone pour prévenir la réflexion du laser sur sa face supérieure et empêcher sa rétrodiffusion.

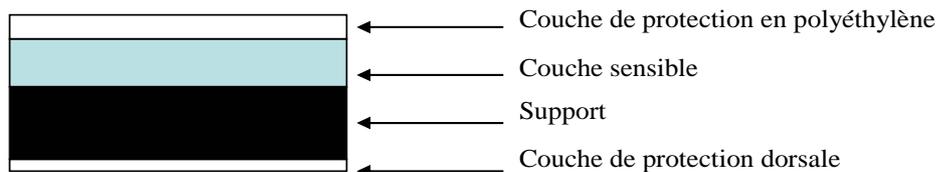


Figure 2.14 : Schéma d'un détecteur photostimulable vu en coupe

Pour des besoins de simulation, les détecteurs photostimulables ont été analysés et caractérisés, en collaboration avec l'IPCMS, par microscope électronique à balayage (MEB) afin de déterminer à leur composition et leur profil. Cette étude sera détaillée par la suite.

2.3.2- Système de mise à zéro

Une durée d'une dizaine de minutes d'exposition à la lumière blanche est suffisante pour effacer le signal résiduel après exposition à une source de rayonnements ionisants ainsi que celui du bruit de fond dû aux rayonnements ambiants. Tout le long de cette étude, nous avons utilisé un négatoscope REX de la Société Erlanger en Allemagne (**Figure 2.15**).



Figure 2.15 : *Effaceur de l'énergie résiduelle des films photostimulables*

2.3.3- Système de lecture

Le groupe RaMsEs est équipé d'un système de lecture (**Figure 2.16**) de type DenOptix commercialisé par la Société Dentsply [Den97]. Ce système est couramment utilisé pour le diagnostic par rayons X dans le domaine dentaire. Une partie de ce travail a consisté à la caractérisation de cet appareil pour de nouvelles applications en dosimétrie et pour la détection d'autres rayonnements ionisants (γ , neutrons et α). Il est équipé d'un tambour vertical permettant de fixer plusieurs détecteurs de différentes tailles (**Tableau 2.2**). La diode laser se déplace le long d'une fente verticale, le pas de la tête de lecture peut être sélectionné par le logiciel d'acquisition.



Figure 2.16 : Système de détection et de lecture

Taille	0	1	2	3	4
Dimensions (mm)	22×35	24×40	31×41	27×54	57×76

Tableau 2.2 : Différentes tailles de détecteur utilisées en diagnostic dentaire

2.3.4- Acquisition du signal

Pour l'acquisition du signal, nous avons utilisé le logiciel VixWin 2.3 livré avec le lecteur DenOptix. Ce logiciel, fonctionnant sous environnement Windows, est conçu initialement pour l'imagerie et la radiographie X. Il contrôle la capture, l'affichage, le traitement et l'analyse ainsi que l'archivage d'images radiologiques provenant des systèmes d'imagerie numérique radiologique. Il peut gérer aussi d'autres types d'images, par exemple celles numérisées par un scanner optique ou provenant d'une caméra vidéo.

Nous avons utilisé la fonction « *scanner* » pour lancer la procédure de lecture du carrousel. Une autre fenêtre permet de choisir la zone du carrousel à lire (**Figure 2.17**). Une sélection de la zone utile permet de réduire le temps d'acquisition. Il est possible de modifier la résolution d'acquisition. Le doublement de la résolution de 300 dpi (dots per inch) à 600 dpi par exemple, permet d'améliorer la définition de l'image mais multiplie par 4 la taille du fichier image et par 2 le temps d'acquisition.

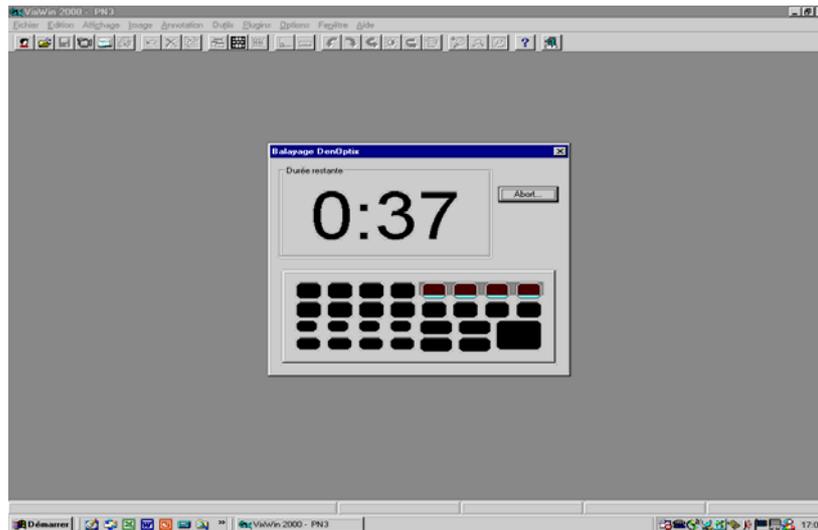


Figure 2.17 : Acquisition du signal

2.3.5- Traitement des données numériques

Les outils de traitement d'images dans le logiciel VixWin sont principalement orientés vers la radiographie X. Pour nos besoins d'analyse nous avons eu recours à un logiciel plus approprié. Notre choix s'est fixé sur le produit « Quantity one » de la société Bio-Rad [Qua99]. Ce logiciel, a été développé pour la quantification et l'analyse d'une large gamme de données biologiques. Il est adopté par la plupart des systèmes d'acquisitions utilisés en biologie (densitomètres, imageurs phosphores et imageurs de fluorescence, ...). Il comporte une variété d'outils de traitement de l'image numérique (sélection de volumes, de bandes, reconnaissance de forme, extraction de profils, soustraction du bruit de fond, traçage de courbe, ...).

Après l'acquisition de l'image par le logiciel VixWin et son exportation en format TIF (Targged Image File), nous avons utilisé l'outil « *volume* » du logiciel Quantity one pour la quantification du signal obtenu par lecture des films photostimulables.

Dans la fenêtre du « *rapport d'analyse* » il est possible de sélectionner les paramètres à visualiser ou à quantifier. La densité PSL est la somme des intensités des pixels dans la zone délimitée, normalisée par la surface de cette zone :

$$D = \frac{\sum I}{S} \quad 2-8$$

I : Intensité du pixel en PSL, S : surface sélectionnée en mm². La surface du pixel est de 0,0018 mm².

Sur l'image numérisée (**Figure 2.18**), les intensités des pixels sont présentées par différents niveaux de gris.

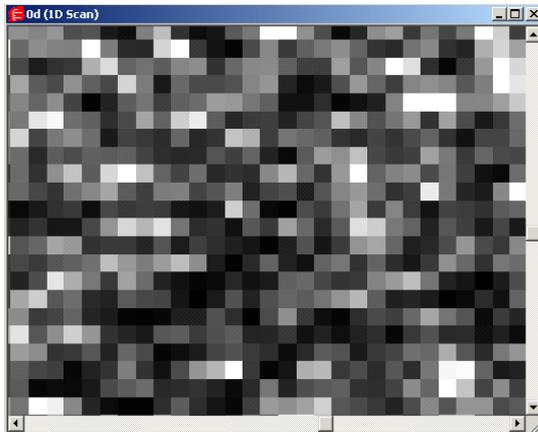


Figure 2.18 : *Visualisation de pixels avec différents niveaux de gris après exposition aux rayonnements*

Chapitre 3

REPONSE DES DOSIMETRES BaFBr:Eu²⁺ AUX NEUTRONS ET RAYONNEMENTS γ

Ce chapitre regroupe les expériences menées sur les films photostimulables BaFBr:Eu²⁺ dans le but d'évaluer leurs performances dans divers champs mixtes neutrons et γ . Il était tout d'abord indispensable de vérifier par l'expérience, la sensibilité aux photons, l'homogénéité du signal, la reproductibilité, la linéarité de réponse et l'évolution du bruit de fond, ... Donc nous nous sommes proposés d'exploiter ces films en réalisant un dispositif expérimental qui nous permet d'effectuer des évolutions vers un dosimètre neutronique ambiant. Destiné à la dosimétrie neutronique individuelle, ce dispositif expérimental est irradié conformément au CIUR, sur un fantôme en PMMA.

3.1- Caractéristiques du film BaFBr:Eu²⁺

3.1.1- Homogénéité du signal

L'étude de l'homogénéité de la réponse des films photostimulables est primordiale pour leur caractérisation dans le domaine de la dosimétrie. Pour cette étude nous avons utilisé l'irradiateur pneumatique de type CEA-STEP de l'IREs/RaMsEs de Strasbourg (**Figure 3.1**). Il est équipé d'une source de ⁶⁰Co, non colimatée, de 3 mm de diamètre, gainée par de l'acier inoxydable pour faire une bille de 7 mm de diamètre. L'activité de la source est de 80,45 mCi. Un programme de calcul de décroissance permet de tenir compte de l'activité de la source à la date de l'exposition. Nous avons procédé selon le protocole expérimental suivant : les films photostimulables sont placés dans des enveloppes étanches à la lumière, et sont fixés sur des porte-échantillon en Plexiglas. La face sensible du détecteur est orientée vers la source. La distance entre source et détecteur est variable de 30 à 120 cm. La salle d'irradiation est maintenue à température constante lors des mesures. Les expositions ont eu lieu à des équivalents de dose uniformes de 0,18 mSv. La **figure 3.2** représente les profils vertical et horizontal. Afin d'éviter les effets de bords, nous avons traité les images à partir d'une centaine de pixels des marges. Les amplitudes des profils ont été calculées à partir de l'intensité moyenne des pixels regroupés dans une bande de 2,46 mm de largeur. Cette largeur est équivalente à 58 pixels.

En superposant les deux intensités PSL (**Figure 3.3**) on déduit qu'elles sont distribuées autour d'une seule valeur moyenne. Les moyennes de ces distributions sont de (427 ± 22) et (427 ± 18) PSL/pixel pour les mesures effectuées dans les deux directions de déplacement de la tête de lecture.

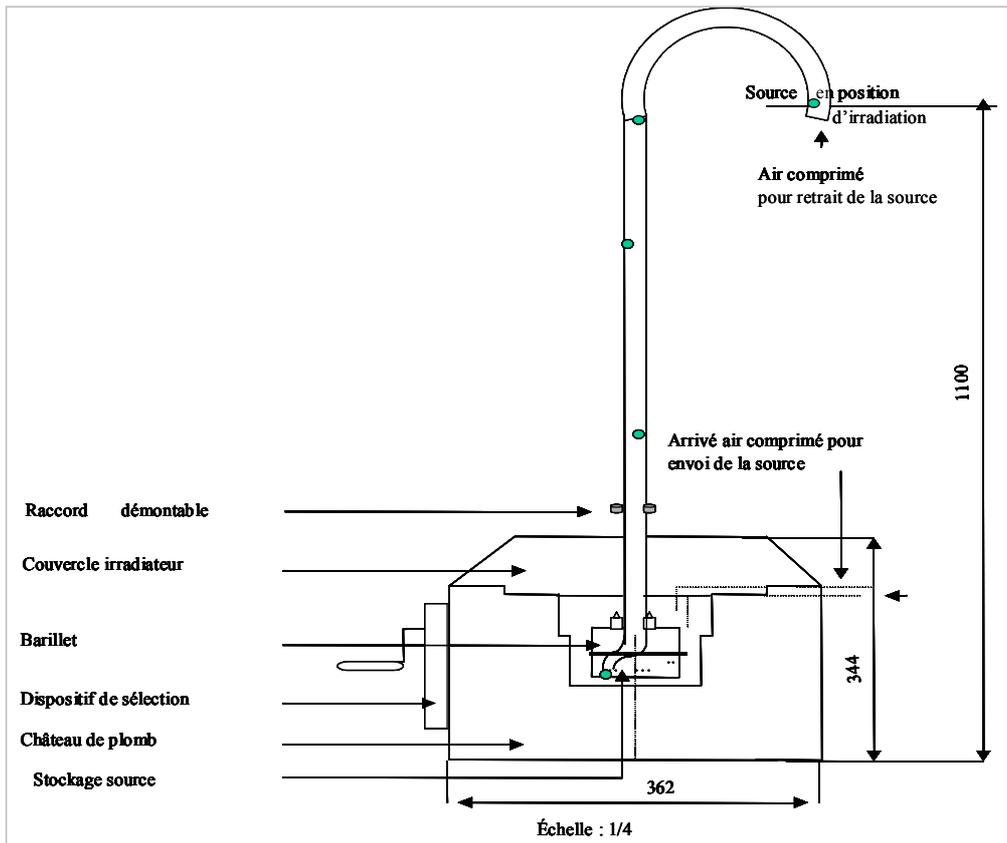
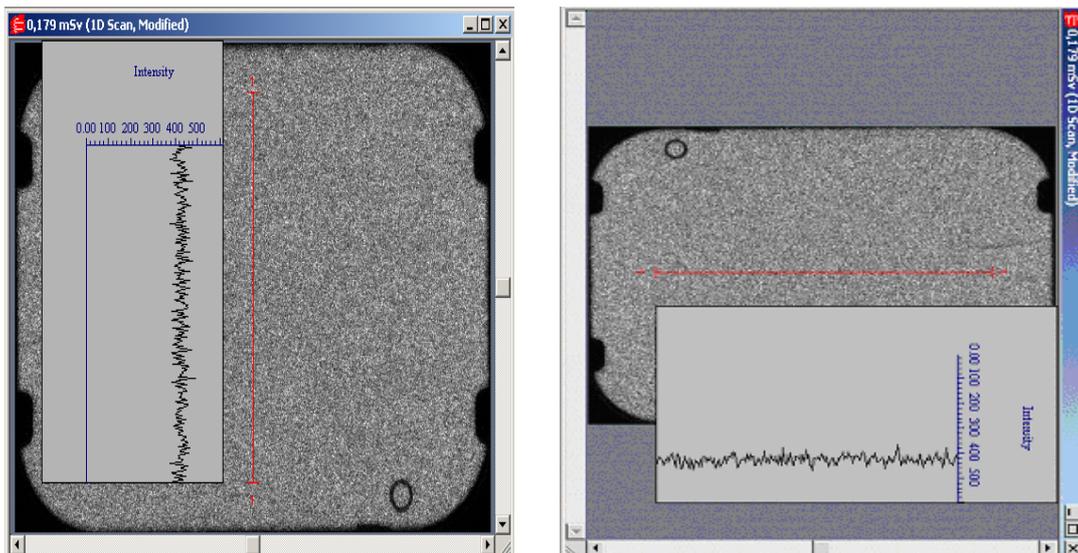


Figure 3.1 : Irradiateur au ⁶⁰Co



profil vertical

profil horizontal

Figure 3.2 : Perte du signal dans le sens du balayage Laser

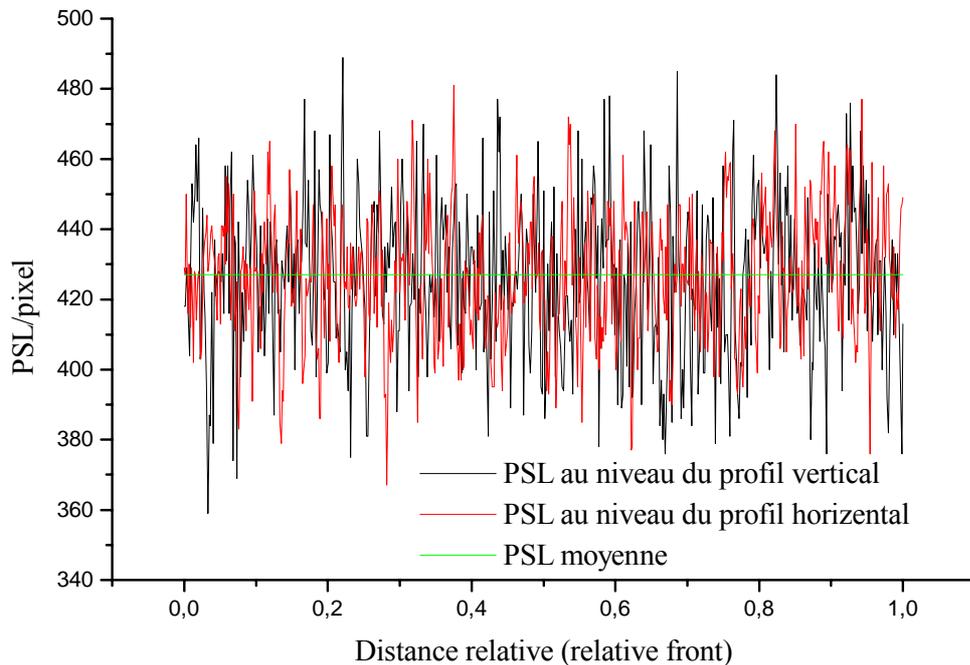


Figure 3.3 : *Homogénéité du signal*

De ces premières mesures, nous pouvons également déduire l'importance de la largeur choisie : plus cette largeur augmente plus les fluctuations visualisées sur la **figure 3.3** diminuent et s'approchent de la valeur moyenne 427 PSL/pixel qui reste constante.

3.1.2- Effets des lectures successives

Les lectures consécutives d'un même film après une première lecture pourraient s'avérer intéressantes si des signaux accumulés fournissent une réponse plus significative et un seuil de détection amélioré. Nous avons exposé deux films à deux doses différentes : 0,9 et 0,009 mSv. Les résultats expérimentaux sont représentés sur la **figure 3.4**.

On constate que la perte du signal due à une lecture pour les doses étudiées est presque identique. Soient 40 % du signal restant pour la forte dose et 43 % pour la plus faible à la deuxième lecture et respectivement 24 % et 28 % à la troisième lecture. Nous n'avons pas pu poursuivre les relectures aux signaux plus faibles à cause du seuil d'affichage du système de lecture. Un cumul des signaux pour l'amélioration du seuil

de détection est donc possible dans le cas de notre système film photostimulable-lecteur (Gendex-DenOptix).

Comme nous allons le traiter dans les parties suivantes, le film photostimulable est soumis au phénomène de la perte de signal ou « fading ». Ce phénomène est du à la décroissance spontanée du signal accumulé pendant l'exposition du film. La perte du signal observée dans la **figure 3.4** est une décroissance provoquée par le laser (633 nm).

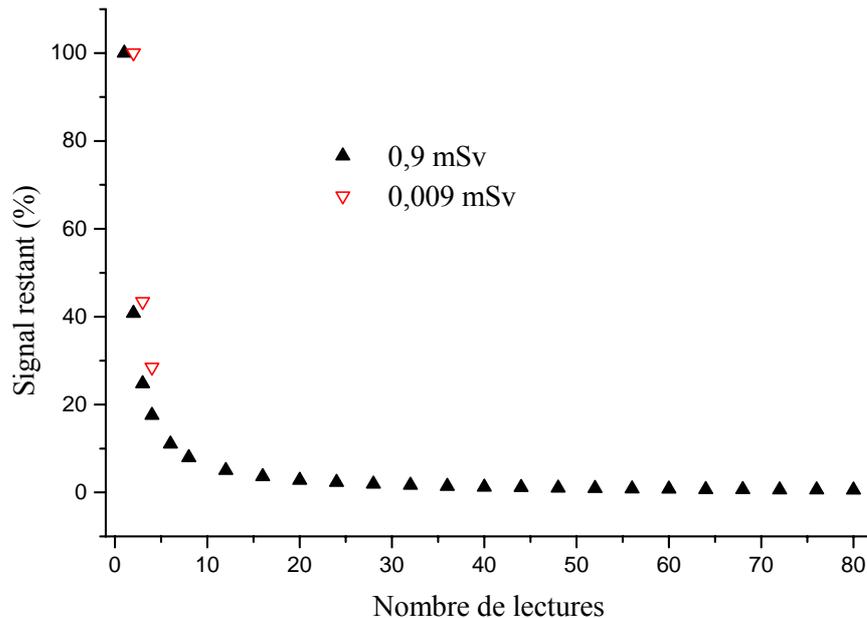
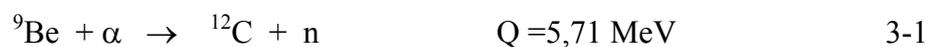


Figure 3.4 : Perte de signal lors des lectures successives des photostimulables exposés à deux équivalents de dose de rayonnement γ (0,9 et 0,009 mSv) du ⁶⁰Co. Les résultats relatifs à l'équivalent de dose 0,009 mSv sont déplacés une lecture à droite pour faciliter la visualisation

3.1.3- Reproductibilité du signal

Quelque que soit la radiation et la série des films utilisée, un film destiné à la dosimétrie des rayonnements ionisants doit donner des résultats reproductibles. Il semble alors pertinent d'effectuer cette étude sur une dizaine de films BaFBr:Eu²⁺ dans un champ mixte (n , γ) en utilisant la source ²⁴¹Am-Be. Cette source produit des neutrons par la réaction nucléaire (α , n). Elle est constituée d'un mélange de l'isotope radioactif ²⁴¹Am (émetteur α , T_{1/2} = 433 ans) et d'une poudre de Béryllium (⁹Be) en vue de produire la réaction nucléaire exoénergétique :



Le flux de neutrons produit est de $2,2 \cdot 10^6$ n/s par Ci de ^{241}Am . Le débit d'équivalent de dose est de $22 \mu\text{Sv/h}$ à 1 m par Ci.

Si on désigne par M_α , M_n et M_C respectivement les masses de particules α , neutron et ^{12}C , d'après le calcul de la cinématique des réactions, l'énergie cinétique du neutron émis dans la direction θ est donnée par l'expression :

$$\sqrt{T_n} = \frac{\sqrt{M_n M_C}}{M_C + M_n} \cos \theta + \sqrt{\frac{M_\alpha M_n}{(M_n + M_C)^{1/2}} \cos^2 \theta + \frac{M_C + T_\alpha (M_C - M_\alpha)}{M_n + M_C}} \quad 3-2$$

Pour $T_\alpha = 5,44$ MeV, l'énergie cinétique maximale correspondant à $\theta = 0$ est $T_n = 10,9$ MeV.

En réalité, le spectre des neutrons est complexe et variable d'une source à une autre, la **figure 3.5** montre la distribution en énergie des neutrons émis par la source $^{241}\text{Am-Be}$ utilisée.

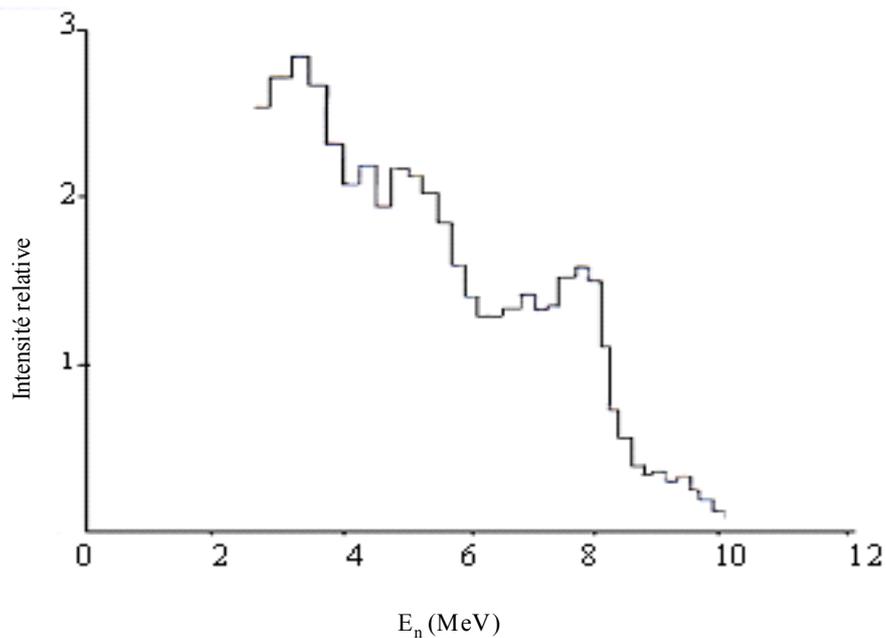


Figure 3.5 : Spectre énergétique de la source d' $^{241}\text{Am-Be}$ [Lor73]

Les faits suivants expliquent la complexité de ce spectre :

- les particules α ne produisent pas uniquement la réaction $^9\text{Be} (\alpha, n) ^{12}\text{C}$. Il existe d'autres réactions parallèles,

- le noyau ^{12}C peut être laissé dans un état excité et le neutron est alors émis avec une énergie inférieure à la valeur prévue. On trouve dans le spectre plusieurs groupes de neutrons, chaque groupe correspondant à un état excité de ^{12}C ,
- en général, la cible de ^9Be , même lorsqu'elle est pulvérisée, garde une épaisseur assez grande par rapport au parcours (environ 28 μm) des α incidents dans le béryllium. Par conséquent, les particules α peuvent donc perdre une partie de leur énergie avant d'interagir avec un noyau de ^9Be . Les neutrons émis vers l'avant auront théoriquement des énergies comprises entre le maximum et une valeur correspondante à une particule α d'énergie nulle,
- la section efficace varie en fonction de l'énergie des particules α , et diminue d'une manière significative quand l'énergie incidente décroît.

La source utilisée dans la présente étude, est composée d'un mélange de 0,37 g d'oxyde d'américium AmO_2 et de 4,6 g d'une poudre de Béryllium. Le tout est encapsulé dans un cylindre en acier inoxydable. Deux morceaux d'éponge sont placés en haut et en bas du cylindre afin de maintenir l'ensemble dans un godet en plomb. Les rayonnements γ de faible énergie générés par ^{241}Am sont fortement absorbés par le godet permettant ainsi de diminuer le bruit de fond.

Le **figure 3.6** donne le schéma de la réaction $^9\text{Be}(\alpha, n)^{12}\text{C}$. Selon l'énergie du neutron émis, l'état fondamental ou les états excités du ^{12}C peuvent être atteints. Les photons émis par la source sont principalement ceux d'énergie 4,43 MeV, en effet la contribution de l'état situé à 7,65 MeV est inférieure car la probabilité de l'atteindre est bien plus faible.

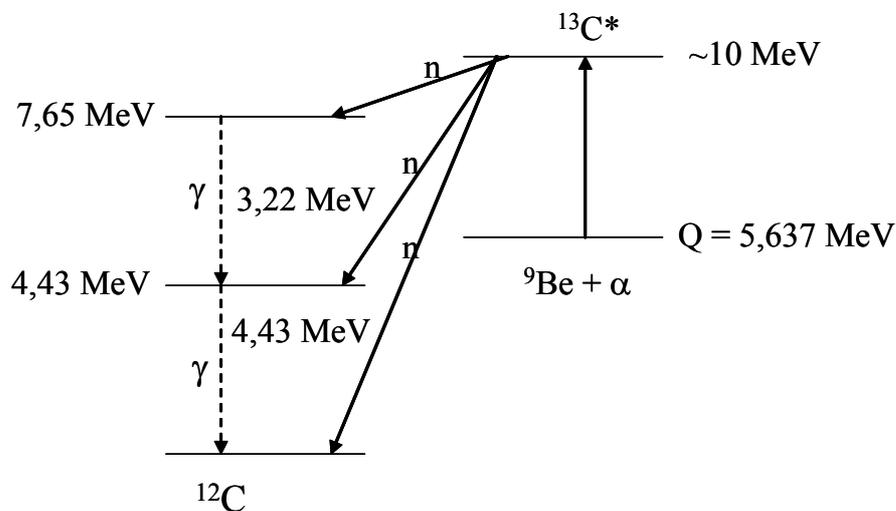


Figure 3.6 : Schéma de la réaction $^9\text{Be} + \alpha \rightarrow ^{12}\text{C} + n$

Nous avons irradié dix dosimètres dans des conditions expérimentales identiques à un équivalent de dose de 0,85 mSv correspondant à une activité $A = 100$ mCi de ²⁴¹Am. A la lecture, pour chaque film nous avons sélectionné une même zone élémentaire (65,39 mm²) choisie au centre du détecteur. Dans le **tableau 3.1** sont données les fluctuations de densités PSL lues par le logiciel Quantity One. On conclut que le détecteur Fuji Gendex présente une assez bonne reproductibilité avec une variance de 3,43 %.

Dosimètre γ	PSL/mm ²
1	34178
2	36914
3	34078
4	34856
5	36485
6	37934
7	35896
8	36318
9	35670
10	35064

Tableau 3.1 : Valeurs des densités PSL lues pour différents détecteurs BaFBr:Eu⁺² exposés dans les mêmes conditions expérimentales

3.1.4- Evolution du bruit de fond

De par sa nature, le film photostimulable accumule un signal croissant dû aux rayonnements ambiants (rayonnements cosmiques et radioactivité naturelle). Pour cette raison, il est nécessaire de procéder à une remise à zéro (exposition à la lumière blanche) avant toute utilisation. Pour évaluer ce signal, on doit tenir compte du bruit électronique propre du lecteur et du bruit intrinsèque du détecteur lui-même. La **figure 3.7** illustre le rapport signal/bruit.

Nous avons étudié l'évolution du bruit de fond de notre système, en fonction du temps d'exposition aux rayonnements ambiants dans une chambre noire pendant un mois (durée de port d'un dosimètre personnel). Les résultats sont reportés dans la **figure**

3.8. On constate que le problème du bruit de fond du système (lecteur, détecteur) ne se pose que pour des durées d'expositions très longues (supérieure à 10 heures).

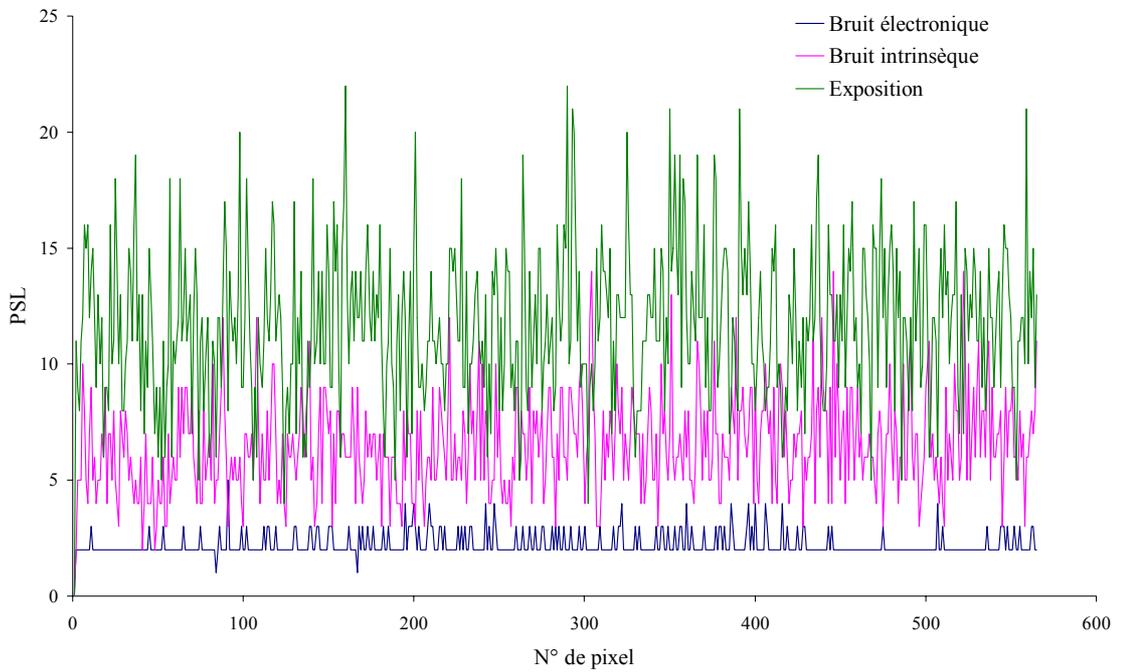


Figure 3.7 : Représentation des différents bruits de fond associés au système (film, lecteur)

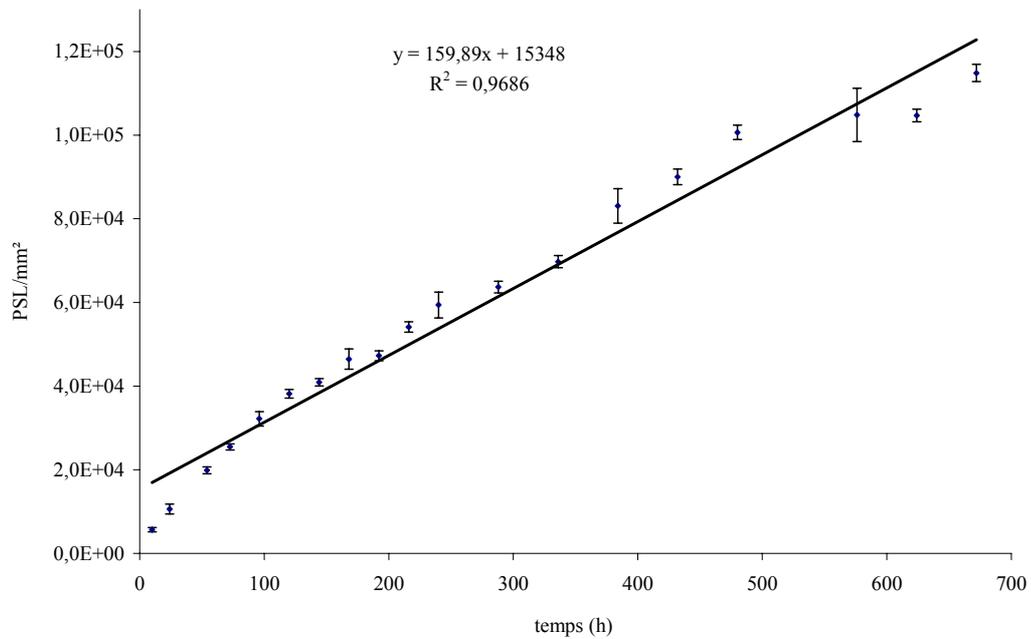


Figure 3.8 : Evolution du bruit de fond cumulé en fonction du temps

Compte tenu de tous les points expérimentaux présentés sur la **figure 3.8**, la corrélation (PSL/mm², temps (h)) montre une assez bonne linéarité du système. En ne prenant que les points de 10 à 120 heures, la pente n'est plus la même. Dans une première approche, nous avons tenté d'évaluer les origines possibles de cette dégradation du signal en mesurant la radioactivité ambiante dans le lieu de travail. Les résultats assurent que ce phénomène est lié au comportement du film (fading) pendant l'accumulation du signal. Nous reviendrons plus tard sur la procédure de correction. Ceci n'est pas très important dans ce contexte, car un dosimètre témoin est exigé pour l'estimation de l'équivalent de dose.

3.2- Réponse et seuil de détection des rayons γ

Dans le but de déterminer la fonction de réponse, nous avons exposé des dosimètres à l'irradiateur ⁶⁰Co (Figure 3.1) à des équivalents de doses ambiants décroissants de 0,8994 à 0,0015 mSv [Mou02]. Bien que le seuil de notre détecteur se situe encore plus bas, nous étions limités par les dimensions de la salle d'irradiation. L'ajustement des résultats (Figure 3.9) par la méthode des moindres carrés, montre que la fonction de réponse suit une loi linéaire avec un facteur de corrélation de 0,994.

$$\text{PSL/mm}^2 = (6476 \pm 1262) + (1,41 \cdot 10^6 \pm 0,03 \cdot 10^6) \times H^*(10) \quad 3-3$$

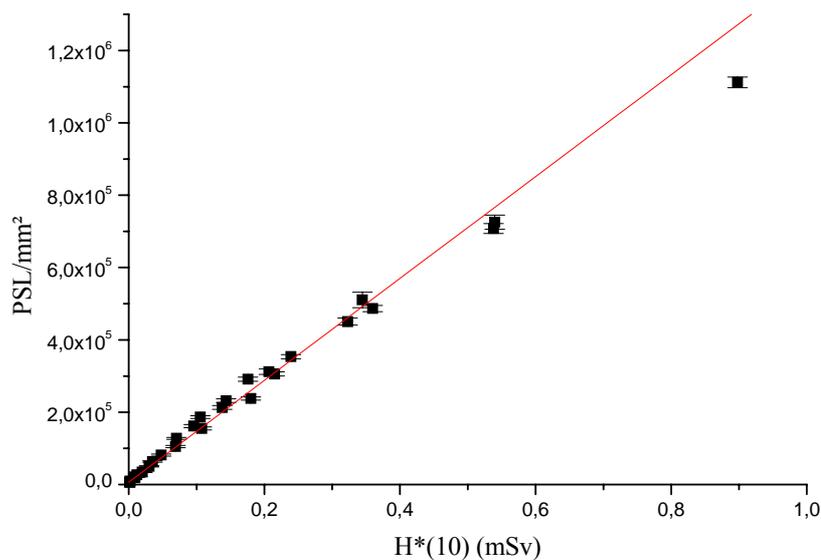


Figure 3.9 : Fonction de réponse du dosimètre γ

En se basant sur cette fonction de réponse, durant un mois, l'équivalent de dose accumulé du bruit de fond est équivalent à 77 μSv pour des rayonnements γ d'énergie moyenne de 1,250 MeV.

3.3- Dosimètre neutronique

Pour approfondir notre étude concernant un nouveau dosimètre neutronique à base des photostimulables, nous avons opté pour le protocole expérimental suivant : une dizaine de dosimètres ont été irradiés simultanément en les faisant tourner à une distance de 21 cm autour d'une source de neutrons. L'angle d'incidence des neutrons sur le dosimètre était donc de $90^\circ \pm 5^\circ$ (**Figure 3.10**). Une vitesse angulaire $\omega = 1$ tr/min assure que chaque dosimètre reçoit le même équivalent de dose ambiant lors de l'exposition. Les irradiations ont été réalisées à température ambiante dans une grande pièce avec un minimum de matériel à proximité, pour réduire les diffusions des neutrons.

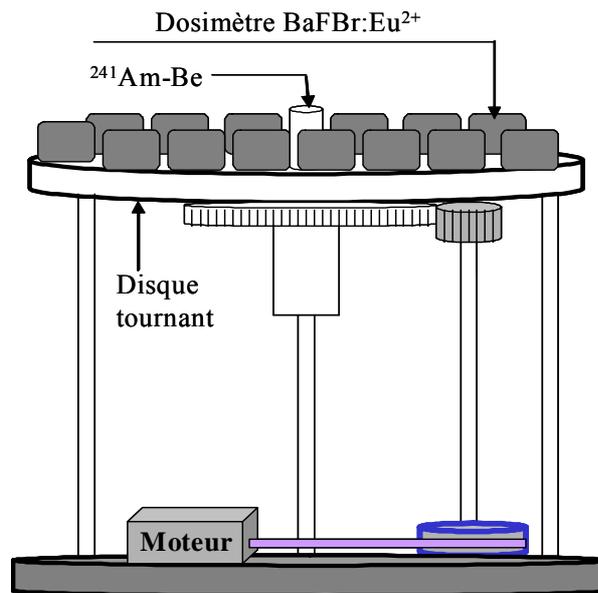


Figure 3.10 : Dispositif pour l'exposition des dosimètres photostimulables aux neutrons rapides

3.3.1- Configuration du dosimètre BaFBr:Eu²⁺

La configuration du dosimètre neutronique mis en oeuvre dans ce travail est présentée sur la **figure 3.11**. Il est composé de deux films photostimulables identiques

séparés par un convertisseur riche en hydrogène. Notre choix s'est porté sur un convertisseur en polyéthylène (CH₂)_n dont la densité d'atomes d'hydrogène est de 80,8 10²¹ atomes/cm³. Sa section efficace d'interaction totale avec les neutrons de 0 à 14 MeV varie de 10³ à quelques barns (**Figure 3.12**). Cette courbe est obtenue à partir de la base de données de JEF de l'Agent Nationale de l'Energie Atomique [**Jef97**]. Ce convertisseur permet ainsi la détection des neutrons d'énergies intermédiaires et rapides par des protons de recul issus de la diffusion élastique des neutrons sur l'atome d'hydrogène. Sur sa face orientée vers la couche sensible du IP₂, du ¹⁰B, ³H ou ⁶Li peuvent être incorporés pour permettre la détection des neutrons thermiques (voir chapitre 1).

Les images latentes dans le IP₂ sont dues non seulement aux protons de recul mais aussi aux photons γ et au bruit de fond du détecteur. Le film IP₁ placé avant le convertisseur, joue le rôle de film témoin qui permet la soustraction du bruit de fond et les rayonnements γ de 4,4 MeV. Le montage comprend également deux plaques de plomb d'épaisseur 1 mm afin d'absorber les rayonnements γ d'énergies inférieures qui accompagne le champ neutronique et deux plaques d'aluminium d'épaisseur 1 mm pour absorber les β produits lors de la capture neutronique dans le plomb.

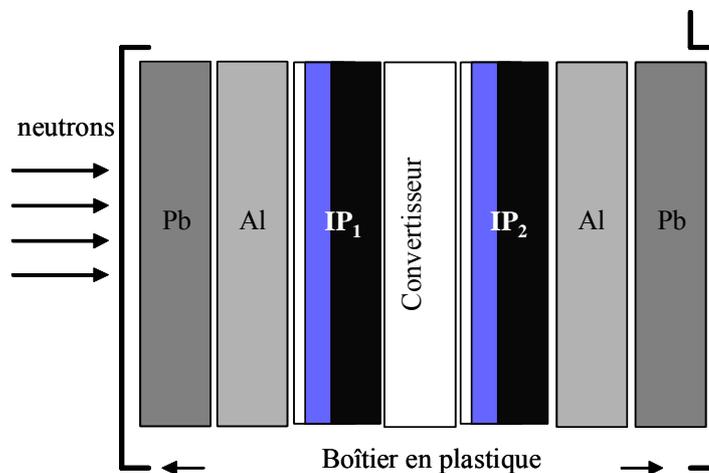


Figure 3.11 : Configuration du dosimètre neutronique photostimulable

Les signaux dus aux protons de recul, c'est-à-dire les différences I_0 des PSL lues par ces dosimètres, sont calculés par la méthode différentielle :

$$I_0 = I_0^{\text{IP}_2} - I_0^{\text{IP}_1} \quad 3-3$$

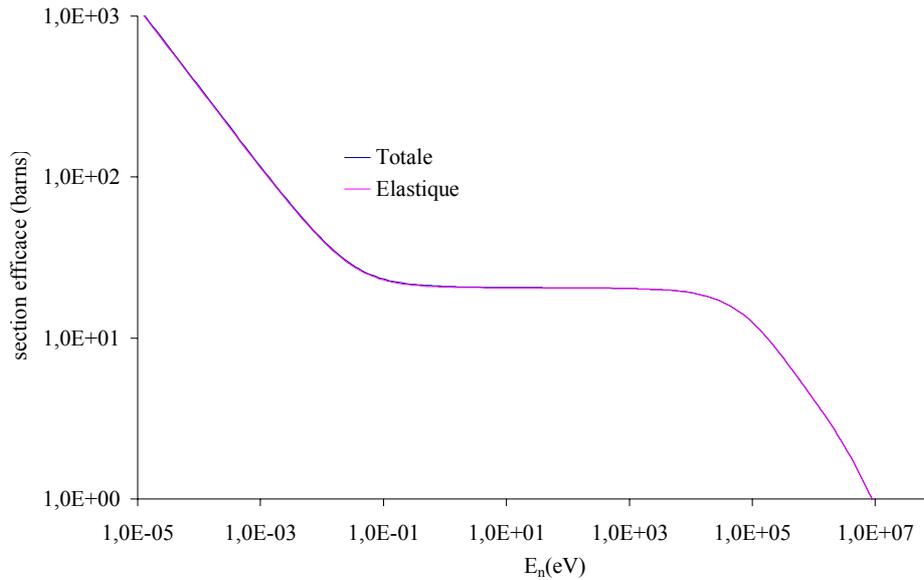


Figure 3.12 : Section efficace d'interaction (n, p) [Jef97]

3.3.2- Définition d'équilibre protonique

D'une manière générale, l'équilibre protonique correspond à une épaisseur d'un convertisseur permettant d'assurer un rendement stable. De ce fait, l'équilibre protonique est réalisé lorsque la création de protons est compensée par leur absorption dans le milieu. Vérifié expérimentalement [Var85], l'équilibre protonique existe pour tout convertisseur à chaque énergie et quelque soit l'angle d'incidence. Afin de respecter les conditions usuelles d'exposition d'un dosimètre dans un faisceau de neutrons, un calcul d'optimisation d'épaisseur du convertisseur utilisé est donc à réaliser. On procède par la méthode Monte Carlo.

Pour des besoins de simulation, les films photostimulables BaFBr:Eu²⁺ ont été analysés et caractérisés par microscope électronique à balayage pour remonter à la composition multi-élémentaire et au profil structural.

3.3.3- Analyse par microscope électronique à balayage

Le microscope électronique à balayage (MEB) permet d'obtenir des images de surface des matériaux solides, à des échelles allant de celle de la loupe ($\times 10$) à celle du microscope électronique en transmission ($\times 500\,000$). Ces images sont caractérisées par leur relief et leur grande profondeur de champ. Le MEB conventionnel fonctionne dans

un vide ordinaire (10^{-5} à 10^{-6} mbar); les échantillons peuvent être massifs, de dimensions allant de quelques μm à une dizaine de cm de diamètre. Ils doivent supporter le vide et être conducteurs. Equipé de détecteurs appropriés, le MEB permet de faire de la microanalyse X, analyse élémentaire locale. L'image MEB est une image reconstituée : une sonde, le faisceau d'électrons, balaye la surface de l'échantillon, un détecteur récupère de manière synchrone un signal induit par la sonde pour en former une image, une cartographie de ce signal. La microanalyse X permet une analyse élémentaire, par détection des raies caractéristiques X (K, L, M) des éléments en présence. Lorsqu'un faisceau d'électrons interagit avec l'échantillon à analyser, des électrons de niveaux de cœur sont éjectés. La désexcitation de l'atome ainsi ionisé se fait par une transition d'un électron d'un niveau plus externe vers la lacune. L'énergie disponible est libérée par l'émission soit d'un photon X, soit d'un électron Auger.

La microanalyse X se pratique sur le MEB en mode spectromètre à sélection d'énergie (EDS), parfois en spectromètre à dispersion de longueur d'onde (WDS). L'appareil est constitué d'une source d'électrons, d'énergie primaire choisie entre 5 et 35 keV, et focalisés sur l'échantillon. Un analyseur associé à un ordinateur collecte les photons X. En EDS une diode Si dopée au Li fait un classement des photons X en fonction de leur énergie. Il détecte les éléments du bore ($Z=5$) ou du sodium ($Z=11$), selon le type de la fenêtre d'entrée de la diode, à l'uranium ($Z=92$). En WDS un monochromateur fait un tri séquentiel en longueur d'onde selon la loi de Bragg. Il détecte les éléments du béryllium ($Z=4$) à l'uranium ($Z=92$).

Une série de mesures a été réalisée à l'Institut de Physique et de Chimie des Matériaux de Strasbourg (IPCMS) pour caractériser nos films photostimulables. Les résultats montrent trois couches distinctes (**Figure 3.13**) : la première couche correspond à la couche protectrice de 10 μm d'épaisseur, la seconde est la couche sensible de 130 μm d'épaisseur est composée de cristaux de phosphore photostimulables, de diamètre compris entre 5 et 10 μm , inclus dans un polymère organique antistatique permettant une répartition homogène, et enfin la dernière couche constitue le support en polyéthylène de 215 μm d'épaisseur. On distingue bien sur les spectres (**Figure 3.14**) des éléments C, O, F, Br, Ba et Eu. La composition multi-élémentaire est donnée dans le **tableau 3.2**.

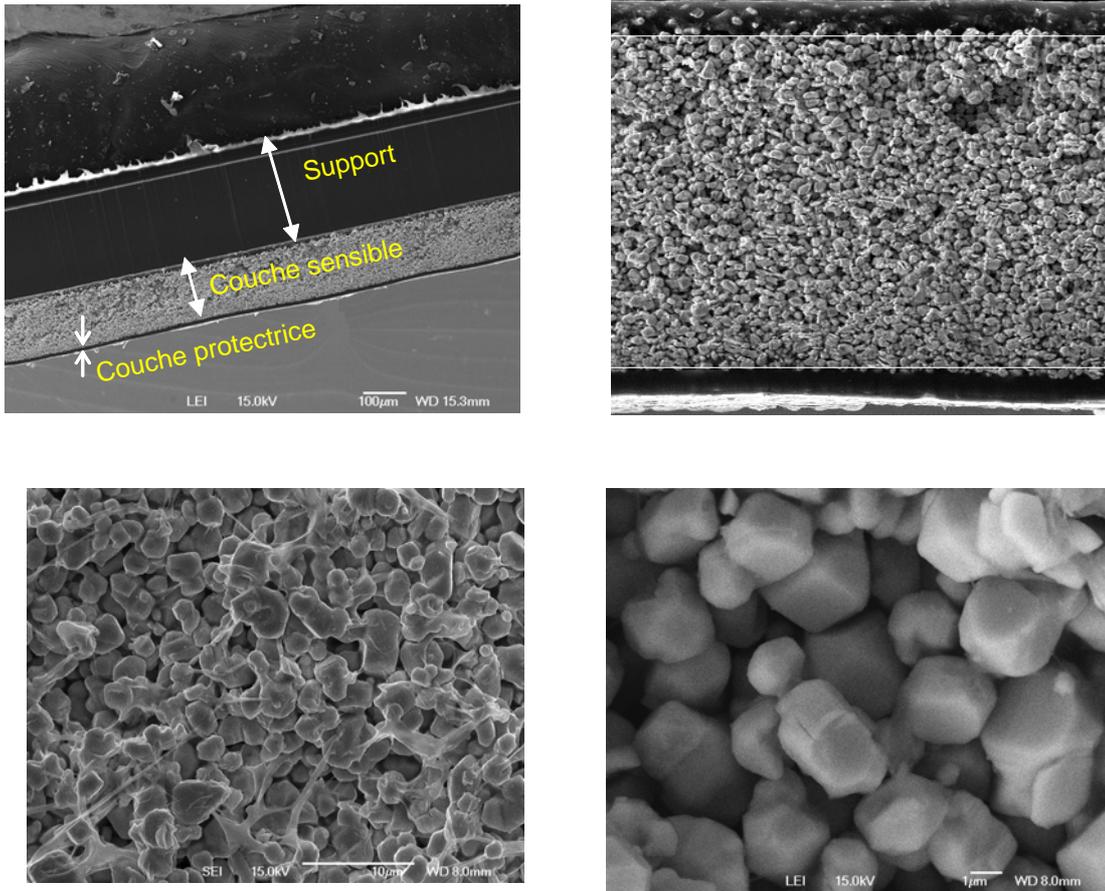


Figure 3.13 : Images MEB du film BaFBr:Eu²⁺ représentant les différentes couches et la taille des grains

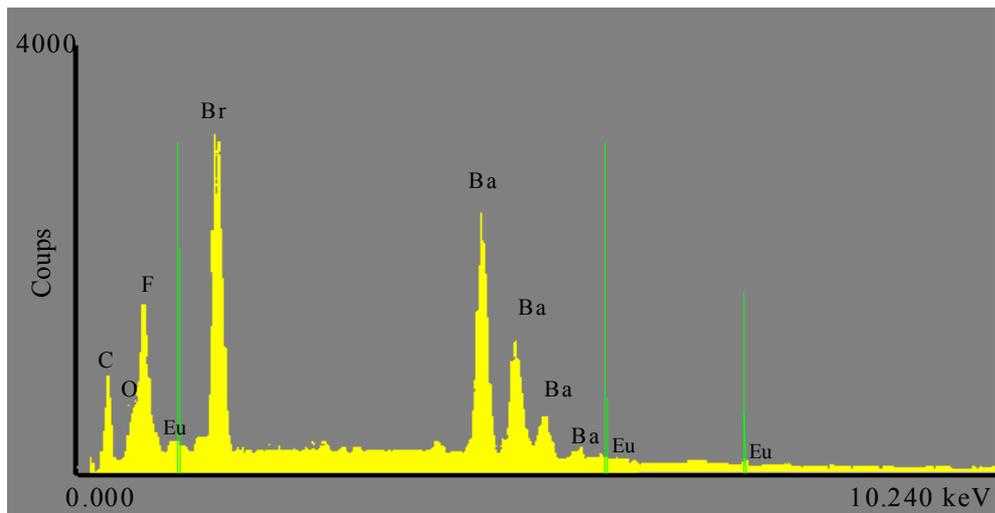


Figure 3.14 : Spectre de raies du film BaFBr:Eu²⁺ obtenu par MEB

Elément	Composition (%)
Br	27,93 ± 0,41
Ba	16,09 ± 0,78
F	55,83 ± 0,39
Eu	0,15 ± 0,02

Tableau 3.2 : Composition multi-élémentaire du détecteur photostimulable BaFBr:Eu²⁺

3.3.4 - Simulation Monte Carlo

3.3.4.1- Historique

La méthode de Monte Carlo peut être utilisée pour simuler des processus aléatoires tels que le mouvement thermique des particules ou pour obtenir une approximation d'une opération mathématique. Et ainsi, des résultats obtenus lors de ces simulations, on peut déduire, par des procédés qui seront exposés dans la suite, les solutions des problèmes les plus complexes.

La méthode Monte Carlo doit son nom à Nicholas Métropolis et Stanislaw Ulam qui les premiers ont décrit l'utilisation de cette méthode dans le cadre de calculs liés au projet Manhattan de conception des premières bombes atomiques. Son appellation date des années 1944 et fait référence à la principauté de Monaco et à son casino, haut lieu des jeux de hasard.

Au cours de l'immédiat après-guerre, Von Neumann, Fermi et Ulam ont introduit la possibilité d'application de la méthode de Monte Carlo dans le domaine scientifique ; à titre d'exemple, pour l'approximation des valeurs propres de l'équation de Schrödinger.

L'étude systématique en fut faite par Harris et Khan en 1948. Après une éclipse due à une utilisation trop intensive pendant les années 1950, la méthode de Monte Carlo est revenue en faveur par de nombreux problèmes: en sciences physiques, en sciences économiques, pour des prévisions électorales, ..., partout où il est fructueux d'employer des procédés de simulation. La technique de Monte Carlo est particulièrement adaptée au calcul des intégrales quelle qu'en soit la dimension. En effet, la force de cette méthode est que l'erreur de calcul ne dépend pas du nombre de variables du problème.

Les méthodes de modélisation Monte Carlo permettent de simuler "l'histoire" d'une particule individuelle dans un milieu atténuateur, en tenant compte du caractère probabiliste des différents processus physiques pouvant être rencontrés lors de sa traversée. Cet historique prend en compte les éventuelles particules secondaires et s'arrête dès lors que l'énergie de la particule est en dessous d'un niveau seuil ou atteint une zone de réjection.

3.3.4.2- Codes de Simulation Monte Carlo

Les codes Monte Carlo deviennent un outil essentiel en physique de l'interaction rayonnement matière, tant dans le domaine de la radioprotection que dans celui de la physique médicale, en particulier la radiothérapie. La possibilité d'y inclure une grande partie de la physique de l'interaction élémentaire sous la forme de modèles numériques de plus en plus élaborés les rend à la fois plus prédictifs, précis et fiables. Ils permettent en outre la détermination de grandeurs inaccessibles par l'expérience. Parmi ces codes on peut citer : GEANT, PENELOPE et MCNP

Le code MCNP (Monte Carlo N-Particles) [Bri00] est l'un des codes de calcul de transport de particules et d'interaction avec la matière les plus utilisés pour les calculs de modélisation. Ses domaines d'application sont variés, que ce soit la radioprotection, la dosimétrie, l'imagerie médicale, les calculs de réacteurs ou toute autre installation nucléaire. Les calculs de simulation s'appuient sur le transport des neutrons, des photons et des électrons seuls ou combinés dans des configurations tridimensionnelles complexes composées des matériaux divers. Dans notre cas, nous nous sommes intéressés à la dosimétrie des neutrons rapides par les films photostimulables BaFBr:Eu²⁺ via la simulation des protons générés par la diffusion élastique dans un radiateur riche en hydrogène et dans le détecteur lui-même.

Devant l'impossibilité du code à suivre le transport de particules chargés autres que les électrons, nous avons adapté un programme pour le transport de protons basé aussi sur la méthode Monte Carlo baptisé ProT (Proton Tracking) [Bou98]. Ce dernier a été développé en langage Fortran pour le suivi des protons issus du radiateur et de la couche protectrice du détecteur. Les coordonnées du point d'émission et l'angle d'incidence du proton sont produits aléatoirement en considérant une répartition uniforme en volume dans le milieu riche en hydrogène. Chaque neutron cède la place à

un proton, tous les protons sont générés via une collision élastique et leur émission est isotrope dans le système du centre de masse.

La combinaison des deux programmes nous a permis de simuler le transport des neutrons et des protons dans le dosimètre. L'histoire d'un neutron commence dans le programme MCNP et après la production d'un proton, ce dernier est suivi en utilisant le programme ProT (**Figure 3.15**). Dans cette partie, nous exposons les bases fondamentales du code MCNP et du programme ProT nécessaire pour le développement de nos calculs.

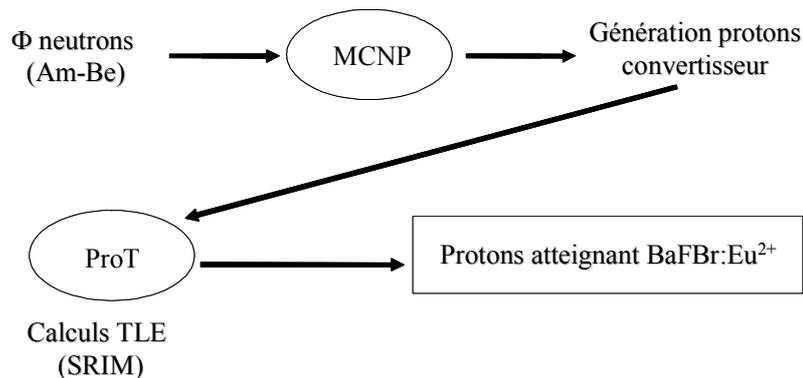


Figure 3.15 : Organigramme de simulation neutronique

3.3.4.3- Principes généraux du Code MCNP

Le code MCNP a été conçu initialement et développé pour des applications militaires aux États-Unis d'Amérique. Originellement le programme était conçu seulement pour des neutrons. On s'aperçut ensuite qu'il pouvait aussi être appliqué aux autres particules, en y faisant quelques ajouts ; ils furent faits dans les années cinquante. Le programme a ensuite été constamment amélioré et a été généralisé progressivement aux transports des électrons et des photons pour aboutir à celui que nous utilisons aujourd'hui. Actuellement ces trois particules peuvent être traitées individuellement ou en combinaison. Il intègre des énergies jusqu'à 1 GeV pour les électrons et les photons et jusqu'à 20 MeV pour les neutrons [Bri00]. Par les considérations ci-dessus, nous comprenons que le champ d'application de ce programme est très vaste et qu'il s'applique à d'innombrables problèmes de transport tridimensionnel neutronique et photonique basé sur la méthode probabiliste Monte Carlo. Ce code est actuellement étendu à certaines particules lourdes chargées dans sa version MCNPX. Le principe de

la méthode Monte Carlo est de simuler le transport individuel des neutrons, des photons et des électrons puis d'enregistrer leurs interactions dans le milieu étudié. La géométrie de l'expérience est décrite sous forme de cellules adjacentes et homogènes délimitées par des surfaces. L'historique de chaque particule est suivi depuis sa naissance jusqu'à sa disparition (par absorption ou sortie du milieu). Une particule est définie par ses coordonnées, son vecteur de position et son énergie. Son interaction avec les atomes du milieu se traduit sous formes de probabilités discrètes ou de densité de probabilité à partir des sections efficaces totales, partielles ou différentielles des neutrons avec le milieu. La simulation avec le code MCNP requiert les données suivantes: la géométrie du système, la source neutronique et les sections efficaces d'interactions. Le code MCNP utilise des spectres énergétiques continus disponibles dans différentes bibliothèques, ENDF (Evaluated Nuclear Data Files); ENDL (Evaluated Nuclear Data Library) qui ont été élaborées par le Centre de Données du Laboratoire de Brookhaven, New York [Bri00]. Pour son exécution, l'utilisateur doit définir un fichier d'entrée où sont spécifiés: la géométrie, les matériaux utilisés, la source d'irradiation et la réponse que lui-même veut obtenir.

La structure générale du fichier d'entrée est la suivante :

- Titre du problème,
- Définition des cellules (contenant les surfaces et la spécification des matériaux),
- Ligne vide,
- Définition des surfaces,
- Ligne vide,
- Définition des données (définition entre autres des matériaux et des estimateurs),

Le titre du problème est une ligne de huit caractères au maximum. Les données placées après la ligne vide finale ne sont pas lues par le programme. Il peut s'agir de versions différentes du problème traité, ou de commentaires supplémentaires. Il est possible également d'en ajouter à l'intérieur du problème même, soit en plaçant un « c » au début de la ligne pour mettre la ligne entière en commentaire, soit en plaçant un symbole « \$ » à la fin d'une ligne pour ne mettre que ce qui vient après en commentaire. La **figure 3.16** représente le schéma synoptique du fonctionnement du code MCNP.

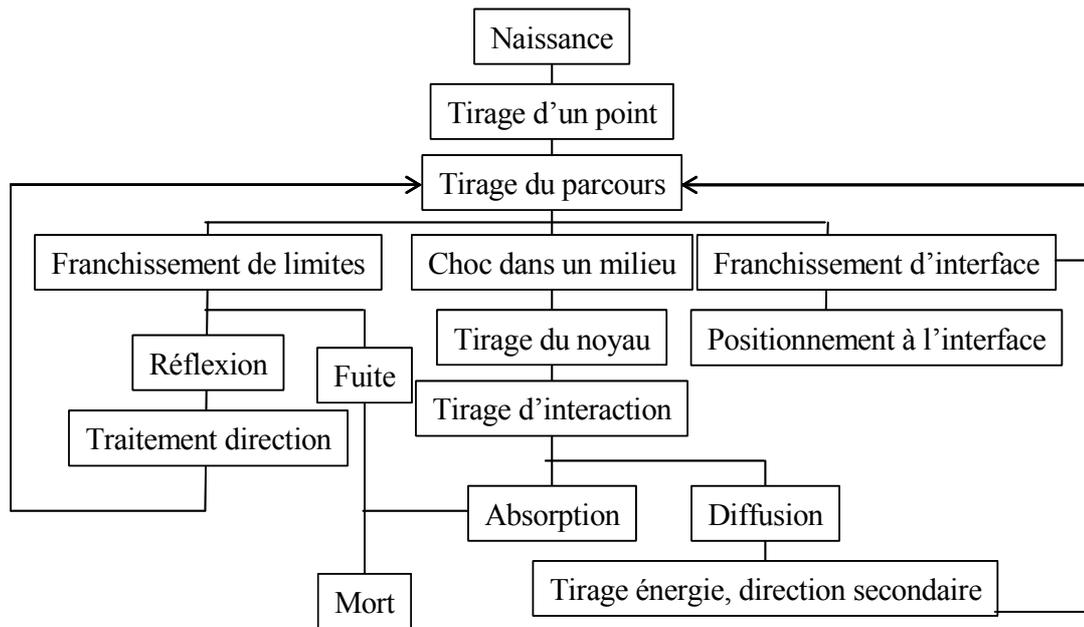


Figure 3.16 : Organigramme de simulation Monte Carlo (MCNP)

Le programme fonctionne de la manière suivante: après avoir défini une géométrie particulière, les positions des sources, ainsi que la composition de chacun des matériaux, le programme génère, lors de son exécution, une particule en une position aléatoire de la source et la suit ensuite jusqu'à sa « mort ». Cette dernière peut survenir par absorption, par fuite, par fission, etc. suivant la nature de la particule en question. Les événements durant la durée de vie de la particule sont simulés séquentiellement.

Il est possible de définir différents estimateurs dans le code MCNP en fonction du résultat qu'on souhaite obtenir, c'est-à-dire le courant au travers d'une surface, le flux en un point, ... Habituellement, seule une carte est utile pour définir les estimateurs recherchés ; les autres paramètres sont optionnels. Dans ce qui suit, nous ne parlerons que des cartes F_n , E_n et FM_n . La carte F_n est la plus importante ; il en existe sept différentes pour les neutrons, six pour les photons et quatre pour les électrons. Elles sont différenciées par leur n qui va de 1 à 8, sauf le 3. Lorsque l'on souhaite définir plusieurs estimateurs du même type, il est possible de placer des autres nombres avant le numéro de l'estimateur. Ainsi, les appellations F_4 et F_{74} sont toutes deux des appellations pour l'estimateur 4. Un astérisque * placé avant le nom de l'estimateur change son unité. Voici maintenant les différents types d'estimateurs (les deuxièmes unités mentionnées correspondent à celles obtenues par adjonction d'un astérisque) :

- **F1**, pour un neutron (N), un photon (P) et un électron (E) est le courant intégré à travers une surface. Son unité est un nombre de particules ou des MeV.
- **F2**, pour N, P ou E est le flux moyenné sur une surface, en particules par cm² ou en MeV par cm².
- **F4**, pour N, P ou E est le flux moyenné sur une cellule, en particules par cm² ou en MeV par cm².
- **F5**, pour N et P est le flux en un point, en particules par cm² ou en MeV par cm².
- **F6**, pour N, P ou E est l'énergie déposée moyennée sur une cellule, en MeV par g ou en jerks par g.
- **F7**, pour N est l'énergie de fission moyennée sur une cellule, en MeV par g ou en jerks par g.
- **F8**, pour N, P, E ou PE (photon/électron) est la distribution d'énergie des impulsions déposées dans un détecteur, en impulsions ou en MeV.

On définit le jerk comme ceci : $1 \text{ jerk} = 1 \text{ GJ} = 10^9 \text{ J}$.

Si l'estimateur concerne une surface ou une cellule, on note le numéro de la surface ou de la cellule après le nom de l'estimateur.

Si les résultats d'un estimateur doivent tous être multipliés par une constante, par exemple pour convertir les unités, il est possible d'utiliser la carte FMn k, où n est le numéro de l'estimateur et k le facteur multiplicatif.

3.3.4.4- Principes du Code ProT

Avant de traiter les points principaux du programme, nous présentons certaines considérations générales.

- Chaque neutron donne lieu à un seul proton,
- Tous les protons sont créés par la diffusion élastique,
- L'émission des protons est isotrope dans le système du centre de masse.

Ce programme nécessite pour chaque simulation les définitions suivantes :

- L'énergie des neutrons incidents donnée par une valeur unique pour les neutrons monoénergétiques, ou par une série de valeurs, dans le cas d'un spectre.
- Le nombre de protons à simuler.
- L'extension spatiale (cellule) occupée par différents matériaux à travers lesquels le proton se produit et se déplace. Dans notre cas toutes les cellules sont des

parallélépipèdes d'épaisseurs différentes mais avec la même base située l'une après l'autre. Cette description géométrique est elle-même complétée par le choix de l'origine des coordonnées au centre de la première face du parallélépipède qui constitue le milieu hydrogéné, selon la direction des neutrons incidents.

- Les tableaux qui contiennent les valeurs du parcours des protons dans chaque matériau en fonction de l'énergie, ces valeurs ont été obtenues à l'aide du code SRIM-2003 de Ziegler et Biersack [**Bie03**].

3.3.4.4.1- Parcours du proton

Selon la direction du proton, la distance est calculée entre le point d'interaction et le point d'intersection avec le plan limitant le milieu hydrogéné. Si la distance calculée est plus grande que le parcours du proton, il est conclu que celui-ci ne quitte pas le milieu. Dans le cas contraire, on considère que le proton passe au milieu suivant, où il subira un traitement similaire. La procédure est répétée jusqu'à ce qu'il trouve le milieu désigné comme le détecteur.

A la suite de tout ce qui a été exposé précédemment, on conclut que le programme ProT, dont l'organigramme est représenté dans la **figure 3.17**, fournit principalement : le nombre des protons sortant du radiateur et l'énergie déposée.

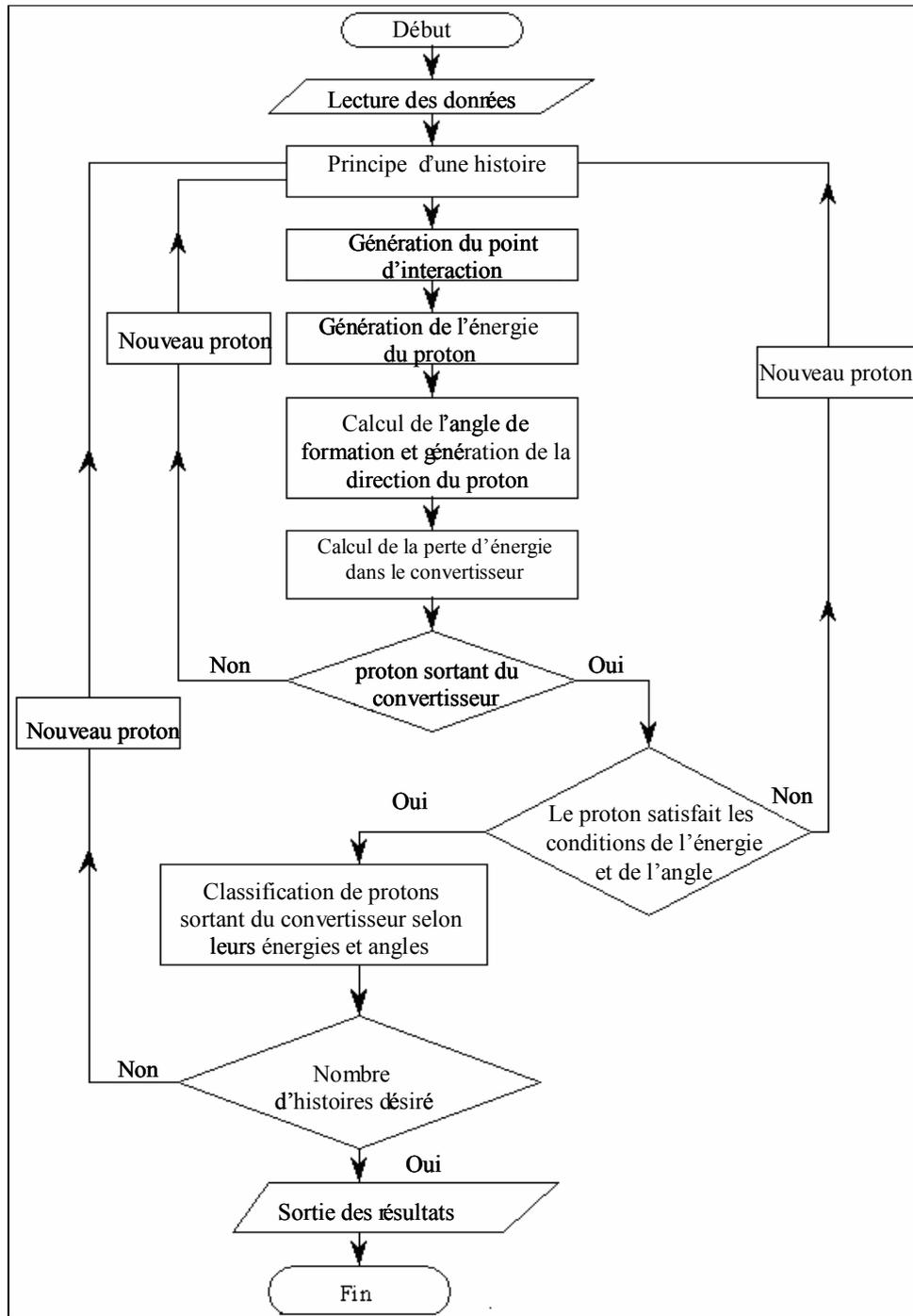


Figure 3.17 : Organigramme du programme ProT

3.3.4.5- Exploitation des Résultats

La **figure 3.18** montre les courbes vérifiant l'équilibre protonique par modélisation Monte Carlo, ramenés à des neutrons monoénergétiques de 10 MeV et de 3,6 MeV. D'après ces deux courbes, on constate que si l'équilibre protonique est réalisé dans une telle épaisseur pour une énergie donnée il l'est, forcément réalisé pour une

énergie inférieure. Pour les neutrons de 10 MeV l'équilibre protonique commence à 1 mm de polyéthylène et à partir de 200 μm pour les neutrons de 3,6 MeV [Mou04]. Cette dernière valeur est donnée par Fernandez et al [Fer91] utilisant le CR-39 comme détecteur. Donc l'équilibre protonique ne dépend que de l'énergie du neutron incident et du matériau convertisseur.

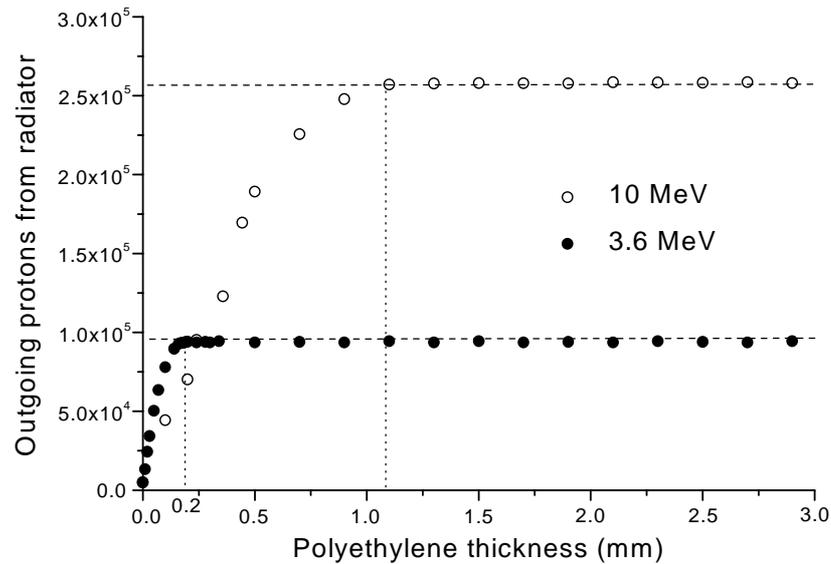


Figure 3.18 : Optimisation de l'épaisseur du convertisseur de polyéthylène [Mou04]

La **figure 3.19** illustre les schémas simulés par MCNP de la source et de notre dosimètre neutronique. Les différentes couleurs correspondent aux différentes densités des matériaux constituant le système.

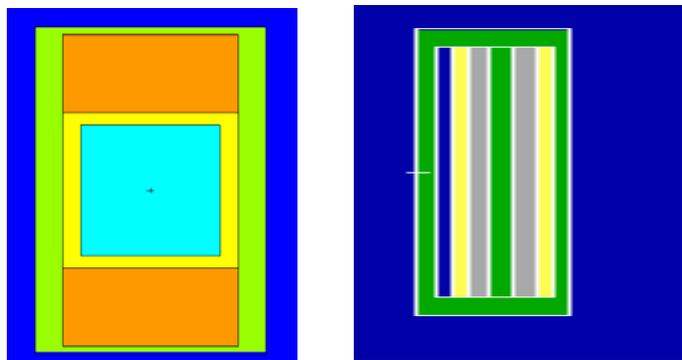


Figure 3.19 : Schéma simulé par MCNP de la source ²⁴¹Am-Be (gauche) et du dosimètre neutronique (droite)

Une étude par modélisation Monté Carlo de la fonction de réponse du détecteur photostimulable aux neutrons rapides a été effectuée par une combinaison du code MCNP et du code ProT (**Figure 3.20**). Cette réponse en terme de nombre de protons (N_p) détectés montre une bonne linéarité.

$$N_p = 58456 \times H^*(10)$$

3-4

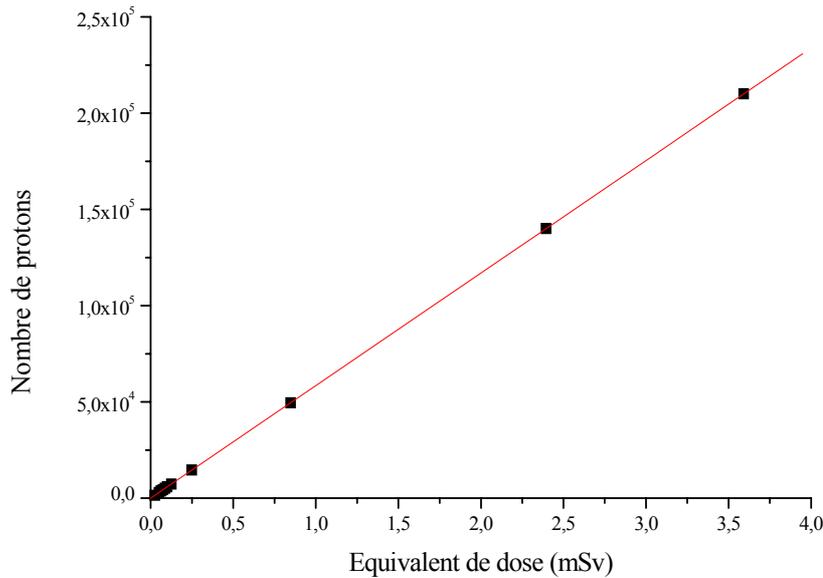


Figure 3.20 : Fonction de réponse du dosimètre aux neutrons rapides d'²⁴¹Am-Be simulée par MCNP

3.4- Evolution vers un dosimètre ambiant

3.4.1- Homogénéité et reproductibilité du signal

La reproductibilité des dosimètres illustrés schématiquement sur la **figure 3.11** est étudiée avant leur utilisation. Pour cela, dix-sept dosimètres ont été exposés sur l'intervalle des équivalents de dose ambiants 0,25-100 mSv. Ces équivalents de dose $H^*(10)$ sont délivrés par une source d'²⁴¹Am-Be dix fois ($A = 1$ Ci) plus intense que celle présentée auparavant. Toutes les incertitudes statistiques sont évaluées à 1σ . Nous avons pris soin d'effectuer les lectures immédiatement après les expositions, afin d'éviter le problème du fading entre la fin d'irradiation et la première lecture. Une durée de 3 min a été imposée par le système de lecture. Les résultats obtenus par les dix-sept

dosimètres sont indiscernables. A titre d'exemple, nous présentons dans le **tableau 3.3** les différences de densités PSL (I_0) de deux dosimètres D1 et D2. On constate que les réponses neutroniques sont quasi identiques, ce qui assure l'application de cette technologie en dosimétrie passive. Le pourcentage de déviation est calculé par la formule suivante :

$$\xi(\%) = \frac{(I_{0,D_1} - I_{0,D_2}) \times 100}{I_{0,D_2}} \quad 3-5$$

$H^*(10)$ (mSv)	I_{0,D_1}	I_{0,D_2}	$\xi(\%)$
0,25	5388 \pm 1455	5724 \pm 1526	- 6,2
0,50	13169 \pm 2067	12635 \pm 2205	+ 4,1
0,75	17705 \pm 2410	17786 \pm 2172	- 0,5
1	23252 \pm 2856	22780 \pm 2892	+ 2,0
1,5	33356 \pm 3283	33578 \pm 3017	- 0,7
3	60397 \pm 4464	61832 \pm 5067	- 2,4
8	137614 \pm 6832	130405 \pm 7795	+ 5,2
18	280650 \pm 9735	280024 \pm 11492	+ 0,2
20	312865 \pm 14495	345159 \pm 13143	- 10,3
48	771767 \pm 28186	760211 \pm 39114	+ 1,5
100	1052337 \pm 43727	1006087 \pm 38156	+ 4,4

Tableau 3.3 : Comparaison des densités PSL dans deux dosimètres D1 et D2 exposés à la même source ²⁴¹Am-Be (1 Ci)

De même il nous est possible de vérifier l'homogénéité du signal dans chacun des IP rassemblés dans le même dosimètre (**Figure 3.11**). Pour un dosimètre exposé à $H^*(10) = 10$ mSv, l'homogénéité a été étudiée par des lectures le long des grands et petits axes (profil horizontal et vertical) de ses deux IP. Ces lectures sont respectivement (2201 \pm 54) et (2203 \pm 53) PSL/pixel pour IP₁. Pour IP₂ ces valeurs sont respectivement (3750 \pm 74) et (3745 \pm 86) PSL/pixel, respectivement. Ces valeurs représentent la PSL moyenne des pixels dans une bande de largeur de 2,46 mm de chaque axe.

3.4.2- Correction du fading

Malgré les avantages offerts par les détecteurs photostimulables (sensibilité, rapidité de lecture, numérisation de l'image, remise à zéro, aucun traitement chimique) par rapport aux autres détecteurs visuels tels que les DSTN, ils présentent un inconvénient majeur lié au fading. Ce dernier est dû à la décroissance spontanée des états métastables. Le fading est un phénomène dans lequel les électrons pris au piège ou les trous produits par l'excitation de rayonnements ionisants disparaissent progressivement. Il aboutit à une diminution de la luminescence photostimulée conformément au temps écoulé entre l'excitation et la lecture. Pour quelques applications, ce phénomène n'est pas un problème important. Cependant, pour la dosimétrie, si on ne tient pas compte du fading dans le dosimètre IP, cela changera l'interprétation de sa réponse. Pour le calibrage des IP, une approche a été appliquée pour les irradiations courtes. En effet, il s'agit d'effectuer toutes les lectures avec un même temps de latence après l'irradiation. Quand les lectures sont effectuées à différents temps de latence après l'irradiation, le signal peut être corrigé en utilisant une courbe de décroissance prédéterminée. Taniguchi et al. [Tan99] ont combiné ces deux approches en faisant des lectures à 24 h après l'irradiation des films photostimulables aux rayons X, et ont appliqué une correction de fading pour apporter d'autres lectures au même temps de latence (24 h). Quelle que soit la procédure appliquée, on peut parvenir à une évaluation d'équivalent de dose.

Pour évaluer ce phénomène, utilisant le même dispositif expérimental décrit précédemment (**Figures 3.10 et 3.11**), nous avons exposé 14 dosimètres à un équivalent de dose ambiant $H^*(10) = 12$ mSv de ²⁴¹Am-Be (1 Ci). Les dosimètres neutroniques IP ont été lus après différentes durées de latence allant de 3 minutes à 15 jours. Les réponses en PSL relatives (PSL/PSL_0) de IP₁ et IP₂ de chaque dosimètre sont montrés sur la **figure 3.21**. PSL_0 est la luminescence lue 3 minutes après irradiation. Il peut y avoir une composante rapide dans la décroissance, dont la détermination précise n'était pas évidente à cause d'un délai de 2,25 minutes, le temps imposé pour une lecture, plus les quelques minutes nécessaires à la mise en place des films dans le lecteur (récupération, ouverture des dosimètres, ...). Si nous considérons seulement les huit dernières lectures commencées à partir de 15 minutes après l'irradiation (**Figure 3.19**), nous constatons que le meilleur ajustement à une équation de la forme

$\sum_{i=1}^n A_i \exp(-\lambda_i t)$ est obtenu pour deux composantes (**Tableau 3.4**). Ce résultat est compatible avec le nombre de transitions électroniques proposées par Salis [**Sal03**]. Avec ces deux composantes, nous pouvons calculer les signaux corrigés $I_0^{IP_1}$ et $I_0^{IP_2}$ à la fin d'irradiation ($t = 0$) en appliquant les équations (3-6) et (3-7). Les signaux $I_t^{IP_1}$ et $I_t^{IP_2}$ sont respectivement, les densités PSL (PSL/mm²) mesurées par IP₁ et IP₂ après une durée de latence t :

$$\frac{I_t^{IP_1}}{I_0^{IP_1}} = A_{1,IP_1} \exp(-\lambda_{1,IP_1} t) + A_{2,IP_1} \exp(-\lambda_{2,IP_1} t) \quad 3-6$$

$$\frac{I_t^{IP_2}}{I_0^{IP_2}} = A_{1,IP_2} \exp(-\lambda_{1,IP_2} t) + A_{2,IP_2} \exp(-\lambda_{2,IP_2} t) \quad 3-7$$

La constante de décroissance $\lambda = \ln 2/T$, T étant la période. Les constantes A_j, IP_i sont les amplitudes des deux composantes ($j = 1,2$) caractérisant le fading, IP₁ ne peut être que IP₁ ou IP₂ regroupés dans chaque dosimètre. La correction du fading est réalisée dans chaque IP, en utilisant les équations (3-6) et (3-7) et les valeurs du **tableau 3.4**. Par conséquent, le signal I_0 de proton de recul est donné par la méthode différentielle $I_0 = I_0^{IP_2} - I_0^{IP_1}$.

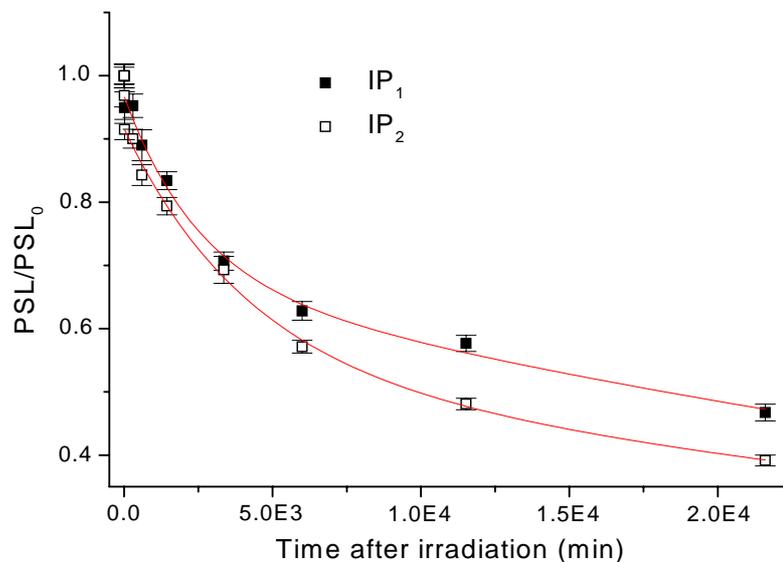


Figure 3.21 : Fading dans IP₁ et IP₂ après l'irradiation par neutrons d'²⁴¹Am-Be. Les valeurs données par les ajustements sont portées au Tableau 3.4

	A_{1,IP_i}	T_{1,IP_i} (min)	A_{2,IP_i}	T_{2,IP_i} (min)
IP ₁	$0,31 \pm 0,02$	2296 ± 436	$0,65 \pm 0,01$	43967 ± 10406
IP ₂	$0,36 \pm 0,02$	2296 ± 436	$0,57 \pm 0,01$	43967 ± 10406

Tableau 3.4 : Valeurs décrivant le fading dans les IPs rassemblés dans le dosimètre neutronique (données expérimentales de la figure 3.24)

Cette procédure de correction de fading a été appliquée aux données de la **figure 3.21** et les résultats sont présentés sur la **figure 3.22**. On constate que la correction du fading mène à une valeur constante. Cette constante est confondue avec la densité PSL lue 3 minutes après l'irradiation. Donc on peut conclure que le fading dans les trois premières minutes de latence est non considérable.

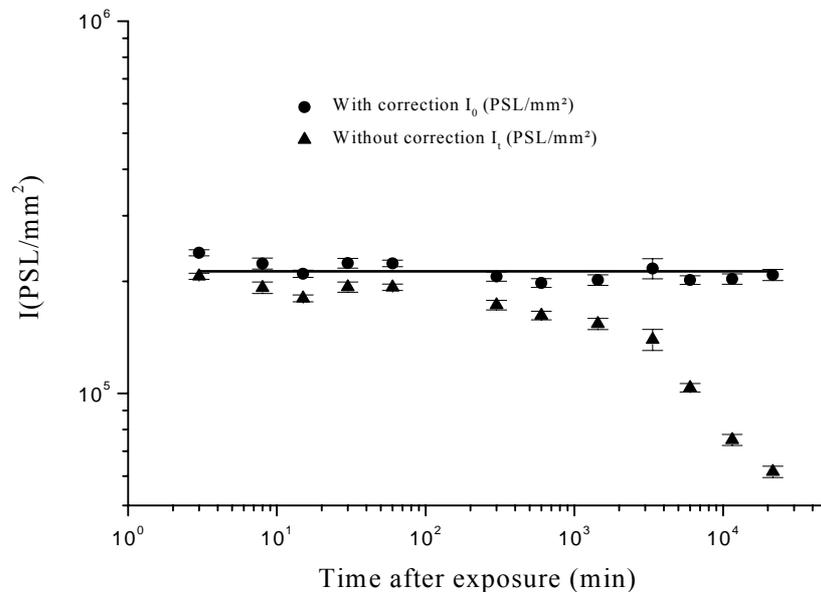


Figure 3.22 : Réponses du dosimètre sans et avec correction du fading

D'autres mesures sur le fading dans le IP à BaFBr:Eu²⁺ à la température ambiante ont été effectuées avec d'autres rayonnements. À cette fin, nous avons utilisé une source d'²⁴¹Am non scellée, qui émet les rayons α de 5,48 MeV et des rayons γ de 60 keV. Pour détecter uniquement les rayons γ , la source a été couverte par une simple feuille de papier pour arrêter les particules α . Cependant, cette détection de rayons γ n'était possible qu'à partir de 2 heures d'irradiation à cause de la faible activité de la source. Après les irradiations, les lectures ont été faites à des temps de latence variant de

15 minutes à 25 jours. Nos résultats et ceux mentionnés par Oikawa et al. [Oik97] utilisant les rayons γ de ⁶⁰Co sont présentés dans le **tableau 3.5**.

A ₁	T ₁ (min)	A ₂	T ₂ (min)	A ₃	T ₃ (min)	Ref.
–	–	0,54	3,3 × 10 ³	0,46	3,5 × 10 ⁴	[Oik97]
–	–	0,54	2,23 × 10 ³	0,46	4,20 × 10 ⁴	[Mou05a]

Tableau 3.5 : Amplitudes A_j et demi-vies T_i des composantes caractérisant le fading après irradiation par des rayons γ dans le BaFBr:Eu²⁺

Comme c'est indiqué dans les **tableaux 3.4 et 3.5**, les demi-vies (T₂ et T₃) de nos deux composantes, contrairement aux amplitudes A_j, I_{PI}, semblent être indépendantes du type de radiation (n et γ).

3.4.3- Réponse et seuil de détection aux neutrons rapides

La **figure 3.23** présente la réponse I₀ du dosimètre aux neutrons rapides d'²⁴¹Am-Be (1 Ci) pour des équivalents de dose ambiants allant de 0,025 à 200 mSv. Les lectures des IP ont été effectuées 3 minutes après l'irradiation. Une dépendance linéaire a été observée pour la réponse du dosimètre aux équivalents de dose H*(10) inférieurs à 50 mSv. Au-dessus de cette valeur la perte de signal pendant l'irradiation devient importante.

Pour les équivalents de dose ambiant inférieur à 1 mSv, la réponse I₀ du dosimètre est linéaire avec :

$$I_0(\text{PSL}/\text{mm}^2) = (23286 \pm 355) \times H^*(10) \text{ (mSv)} \quad 3-8$$

Les mêmes études ont été réalisées avec une source de neutrons rapides ²³⁹Pu-Be. La source est constituée de 80 g de Plutonium (²³⁹Pu) mélangé avec une poudre de Béryllium (⁹Be) en vue de produire la réaction nucléaire exoénergétique :



L'énergie cinétique libérée dans la réaction est Q = 5,708 MeV. Le flux de neutrons produits est d'environ 1,93 10⁶ n/sec par Ci de ²³⁹Pu (T_{1/2} = 24110 ans). Le débit de dose déposée est de 0,032 mSv/h à 1 m par Ci. Le spectre de la source ²³⁹Pu-Be est montré sur la **figure 3.24**. Notons que 33 % du flux de neutrons émis par cette source a une énergie inférieure à 1,5 MeV.

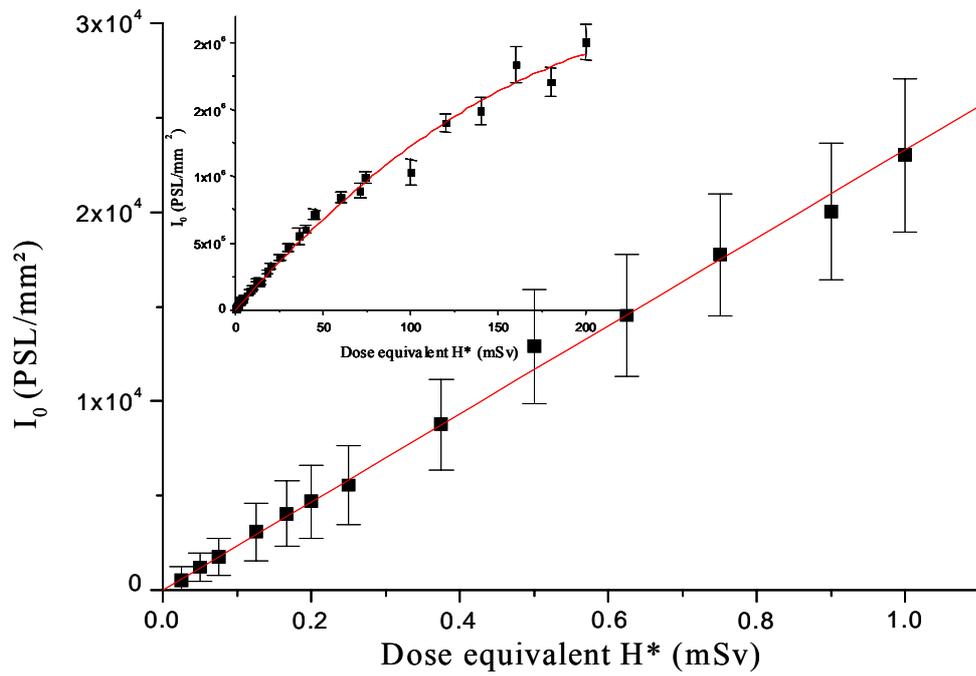


Figure 3.23 : Réponse du dosimètre IP aux neutrons rapides de la source d'²⁴¹Am-Be (1 Ci)

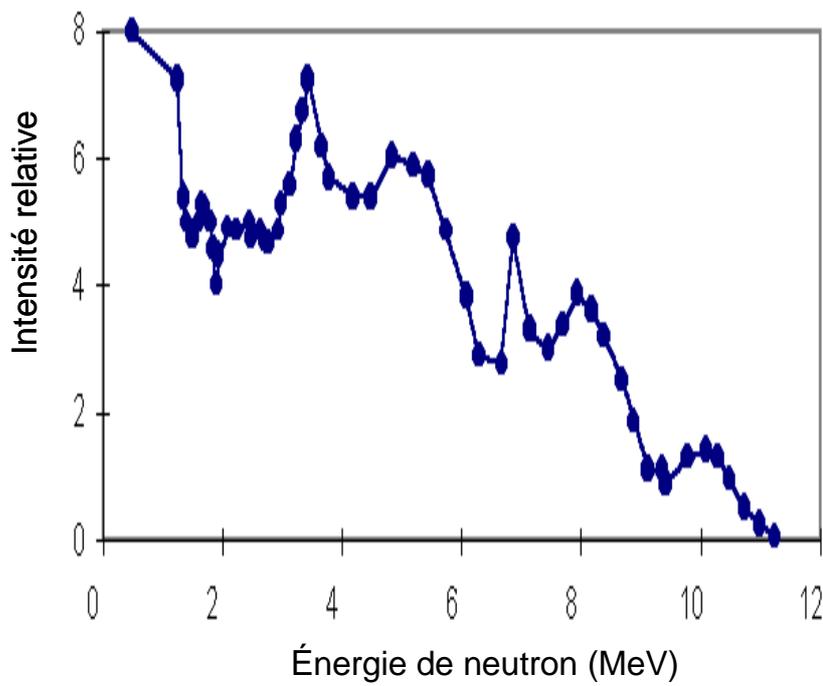


Figure 3.24 : Spectre des neutrons produits par une source de ²³⁹Pu-Be [Phy03]

Etant donné l'allure des courbes des **figures 3.23** et **3.25**, on conçoit assez facilement que, lorsque les irradiations à un flux constant de rayonnements ionisants sont étalées pendant une période longue, la linéarité de la densité PSL est détériorée par le fading selon le temps d'irradiation. Il est donc nécessaire de prendre ce phénomène en considération. A moins que les IP ne soient exposés à des radiations excessives, la linéarité entre la dose et la densité PSL dans un IP est toujours maintenue, permettant ainsi des mesures quantitatives répondant aux normes.

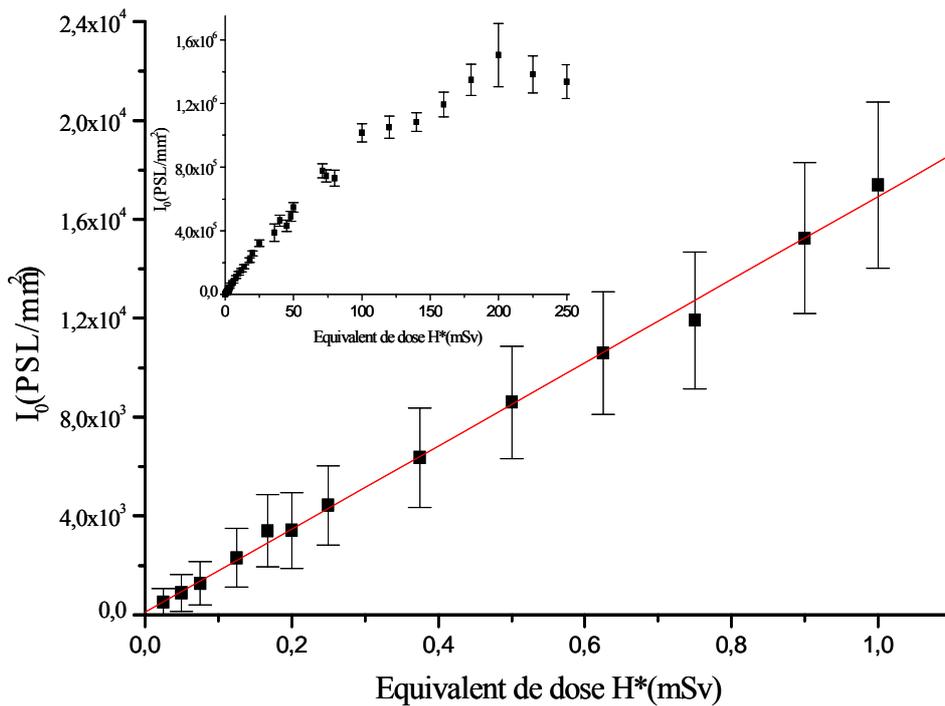


Figure 3.25 : Réponse du dosimètre IP aux neutrons rapides de la source de ²³⁹Pu-Be

3.4.4- Seuil de détection

Les films IP₁ et IP₂ ont un bruit intrinsèque moyen (1379 ± 99) PSL/mm². Cette valeur est obtenue à partir des ajustements linéaires (équations (3-11) et (3-12)) des points expérimentaux des réponses I_{0,IP1} et I_{0,IP2} comme montré sur la **figure 3.26**. Elle correspond à 2,48 PSL/pixel qui est en accord avec la valeur trouvée précédemment (§3.1.4).

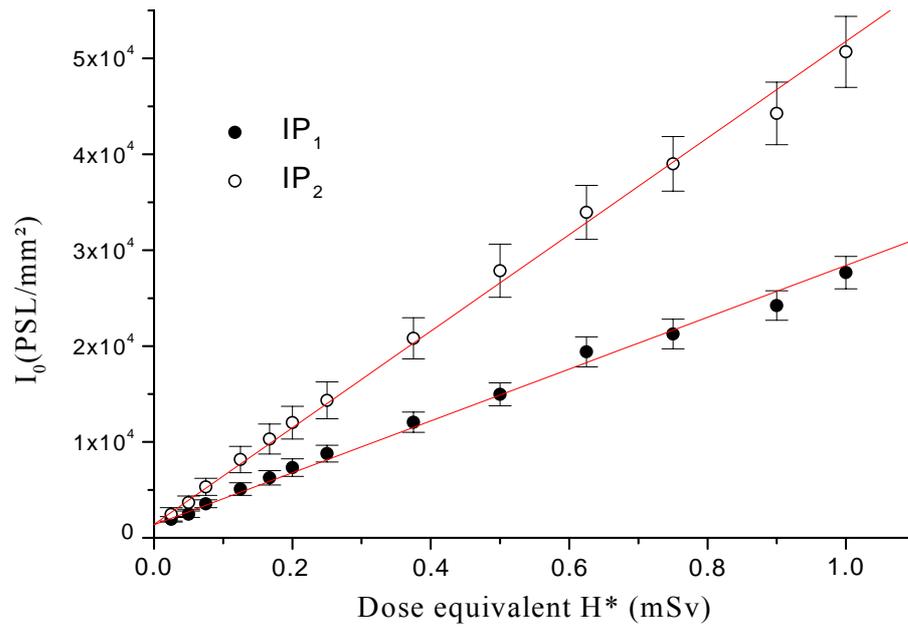


Figure 3.26 : Réponses $I_{0,IP1}$ et $I_{0,IP2}$ du dosimètre aux neutrons rapides de la source d' $^{241}\text{Am-Be}$ (1Ci)

$$I_0^{IP1} (\text{PSL}/\text{mm}^2) = (1367 \pm 122) + (27055 \pm 579) \times H^*(10)(\text{mSv}) \quad R^2 = 0,995 \quad 3-11$$

$$I_0^{IP2} (\text{PSL}/\text{mm}^2) = (1402 \pm 170) + (50382 \pm 755) \times H^*(10)(\text{mSv}) \quad R^2 = 0,998 \quad 3-12$$

En utilisant la définition donnée par Currie [Cur68], la limite de détection L_D de notre dosimètre IP peut être calculée par:

$$L_D (\text{PSL}/\text{mm}^2) = 2,71 + 3,29 \times \sigma_B \quad 3-13$$

Où $\sigma_B = 99 \text{ PSL}/\text{mm}^2$ est l'incertitude statistique de la densité PSL nette (sans radiation). Alors $L_D = 329 \text{ PSL}/\text{mm}^2$, qui correspond à un équivalent de dose ambiant $H^*(10) = 14 \mu\text{Sv}$ selon l'équation (3-8).

Expérimentalement, la plus faible réponse aux neutrons détectée par les dosimètres mis en œuvre est $(533 \pm 194) \text{ PSL}/\text{mm}^2$ qui est compatible avec la limite de détection L_D . Elle correspond à un équivalent de dose égale à $(23 \pm 9) \mu\text{Sv}$, d'après l'équation d'étalonnage (3-8). A l'autre extrême de l'échelle d'équivalent de dose ambiant, la saturation n'est pas observée.

3.4.5- Fading durant l'exposition

Durant l'exposition des films IP, on constate une perte de signal. La situation est similaire à celle opérante pendant les analyses par activation neutronique, où la production de signal qui a eu lieu à un taux constant subit aussi une décroissance concomitant. Dans ce cas, on utilise l'équation suivante :

$$I_0 = I_{1,\infty} [1 - \exp(-\lambda_1 t_{\text{irr}})] + I_{2,\infty} [1 - \exp(-\lambda_2 t_{\text{irr}})] \quad 3-14$$

Où t_{irr} est la durée d'irradiation; $I_{1,\infty}$ et $I_{2,\infty}$ sont les taux de production de signal des deux composantes caractérisée par une constante de décroissance λ_1 et λ_2 , respectivement.

Pour déterminer $I_{1,\infty}$ et $I_{2,\infty}$, nous avons effectué une série d'irradiations aux neutrons d'²⁴¹Am-Be (1Ci) pour différent temps t_{irr} . En effet, $I_{1,\infty}$ et $I_{2,\infty}$ sont les solutions d'un système d'équations (3-14) pour deux temps d'irradiations différents. La **figure 3.27** représente les résultats obtenus de dix couples de temps. Les lignes horizontales présentent les valeurs moyennes de $I_{1,\infty}$ et $I_{2,\infty}$ pour chaque composante. Ces taux de production de signal sont proportionnels au débit d'équivalent de dose ambient $H^*(10)$ de l'²⁴¹Am-Be (1Ci). Par conséquent, on définit deux facteurs de calibration k_1 et k_2 sous la forme suivante :

$$I_0 = k_1 \dot{H}^*(10) [1 - \exp(-\lambda_1 t_{\text{irr}})] + k_2 \dot{H}^*(10) [1 - \exp(-\lambda_2 t_{\text{irr}})] \quad 3-14$$

Où $k_1 = (13 \pm 4) \times 10^6$ h/mSv/mm² et $k_2 = (226 \pm 42) \times 10^6$ h/mSv/mm².

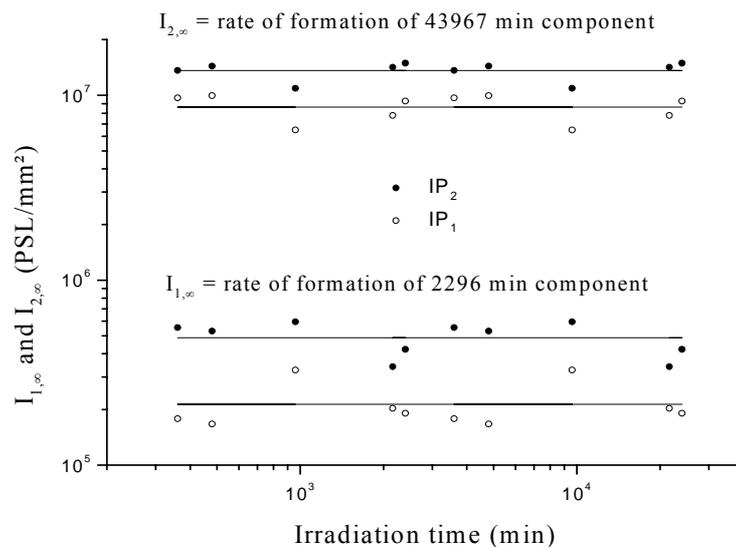


Figure 3.27 : Détermination des taux de formation $I_{1,\infty}$ et $I_{2,\infty}$ des deux composantes du signal dans IP_2 et IP_1 pour les neutrons d'²⁴¹Am-Be (1 Ci)

3.4.6- Vérifications avec d'autres sources de neutrons

Pour le contrôle de la procédure de correction du fading, des irradiations ont été faites avec la source ²³⁹Pu-Be livrant un débit d'équivalent de dose ambiant de 32 ± 1 μ Sv/h à 1 m et avec une seconde source d'²⁴¹Am-Be de plus faible activité (0,1 Ci) et de débit d'équivalent de dose égale à $2,2 \pm 0,3$ μ Sv/h à 1 m. A la même distance, et aux mêmes conditions que l'établissement de la procédure de correction de fading pendant l'exposition, ces sources ont été traitées comme des sources de débits d'équivalent de dose inconnus. Les résultats dans le **tableau 3.6** donnent la comparaison entre les valeurs mesurées par notre méthodologie de travail et les valeurs certifiées par les laboratoires d'étalonnage de ces sources. Les valeurs calculées dans chacune des deux séries de mesure pour des temps d'irradiation largement différents sont tout à fait cohérentes entre eux (**Tableau 3.6**). La moyenne $H^*(10) = (0,0023 \pm 0,0002)$ mSv/h, déterminée pour la source ²⁴¹Am-Be (0,1 Ci), est en accord avec la valeur de référence ($H^*(10) = (0,0022 \pm 0,0003)$ mSv/h). Le débit d'équivalent de dose ambiant moyen $H^*(10) = (0,025 \pm 0,003)$ mSv/h obtenu pour la source ²³⁹Pu-Be est légèrement plus faible que la valeur attendue $H^*(10) = (0,032 \pm 0,001)$ mSv/h. Cette différence peut être expliquée par le fait que les sources ²⁴¹Am-Be et ²³⁹Pu-Be ont des spectres énergétiques légèrement différent.

Temps d'irradiation (min)	I_0 (PSL/mm ²)	$\dot{H}^*(10)$ (mSv/h)
²³⁹ Pu-Be		calculé
123	23163	0,026
164	31932	0,027
328	64210	0,027
1068	158694	0,022
2959	388082	0,022
4110	548680	0,024
5836	774507	0,026
Moyenne = $0,025 \pm 0,003$		
a) ²³⁹ Pu-Be		

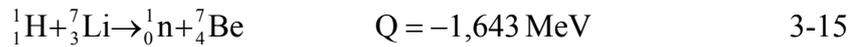
Temps d'irradiation (min)	I ₀ (PSL/mm ²)	$\dot{H}^*(10)$ (mSv/h) calculé
²⁴¹ Am-Be		
120	1881	0,0022
150	2806	0,0026
300	4958	0,0023
1020	15407	0,0022
2880	37025	0,0021
4320	52494	0,0022
5760	72887	0,0024
Moyenne = 0,0023 ± 0,0002		
b) ²⁴¹ Am-Be		

Tableau 3.6 : Débits d'équivalent de dose ambiants donnés par les dosimètres IP exposés aux neutrons de la source de ²³⁹Pu-Be et de la source d' ²⁴¹Am-Be (0,1 Ci)

3.4.7- Evaluation du seuil de détection en énergie

L'évaluation du seuil de détection en énergie nécessite la production de neutrons monoénergétiques. A cette fin, la réaction nucléaire ${}^7\text{Li}(p, n){}^7\text{Be}$ a été réalisée auprès de l'accélérateur 4 MV. Cet accélérateur électrostatique de Van de Graaff, est le plus connu des appareils de cette catégorie. Il est composé d'un conducteur creux ou collecteur, d'une courroie, d'une source d'ions et d'un tube d'accélération maintenu sous un vide à l'aide d'un système de pompage. Les charges positives sont amenées sur la courroie en coton tissé grâce à des décharges provenant de pointes fines A reliées à la haute tension de + 50 kV. A l'aide de pointes fines B, la courroie mobile transporte les charges positives sur le conducteur creux ou collecteur. Les charges négatives sont collectées (pointes fines C reliées à la haute tension de - 50 kV) puis renvoyées au point de départ. Par ailleurs, les ions positifs (les protons dans notre cas) qui seront accélérés sont produits dans la source d'ions : le gaz hydrogène est introduit dans la source par un tube capillaire au palladium. Le champ de radiofréquence fourni par l'oscillateur haute fréquence permet d'ioniser le gaz hydrogène, d'où la création d'un plasma d'ions positifs et d'électrons. Le champ magnétique créé par la bobine de concentration permet d'augmenter les collisions entre les électrons créés et les atomes. La charge positive du collecteur repousse les ions positifs à l'intérieur du tube d'accélération où ils acquièrent

l'énergie cinétique nécessaire pour produire des neutrons monoénergétiques d'énergie variante de l'énergie incidente de 2,5 MeV à l'énergie seuil de la réaction (Equation (3-15)). La cible de ${}^7\text{Li}$ d'épaisseur $150 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ se trouve au centre de la chambre de réaction à 15 cm des dosimètres neutroniques. Elle est réalisée par vaporisation du lithium sur un support de carbone d'épaisseur $30 \mu\text{m}$, l'intensité du faisceau était de 220 nA.



$$E_p^{\text{seuil}} = -Q \frac{M_p + M({}^7\text{Li})}{M({}^7\text{Li})} \quad 3-16$$

Pour $E_p = E_p^{\text{seuil}} = 1,888 \text{ MeV}$ à $\theta = 0^\circ$, l'énergie des neutrons émis est donnée par la relation (3-2). On trouve $E_n = 0,0294 \text{ MeV}$.

Les dosimètres neutroniques placés à des angles de 0° à 40° par rapport à la cible de ${}^7\text{Li}$ bombardée par des protons de 2 MeV donnent un signal lisible en densité PSL. Pour estimer la valeur de l'énergie détectée à chaque position, des calculs cinématiques de la réaction nucléaire ${}^7\text{Li}(p, n){}^7\text{Be}$ ont été effectués (Tableau 3.7). La fluence neutronique a été calculée par le code Target [Tar02] en fonction de l'énergie du neutron et de l'angle d'émission (Figure 3.29). On constate que l'énergie moyenne des neutrons émis diminue avec l'angle croissant et sa valeur est comparable avec celle obtenue par le calcul cinématique (Tableau 3.7). Le seuil en énergie neutrons se situe à 173 keV, correspond à une densité de $349 \text{ PSL}/\text{mm}^2$.

$\theta_{\text{Lab}}(^{\circ})$	0	10	20	30	40
$E_{n,\text{Lab}}(\text{MeV})$	0,230	0,226	0,214	0,196	0,173
$\theta_{\text{CM}}(^{\circ})$	0	15,86	31,61	47,11	62,22
$\theta_{\text{CM}} / \theta_{\text{Lab}}(^{\circ})$	0,3964	0,4015	0,4172	0,4452	0,4887

Tableau 3.7 : Cinématique de la réaction nucléaire ${}^7\text{Li}(p, n){}^7\text{Be}$

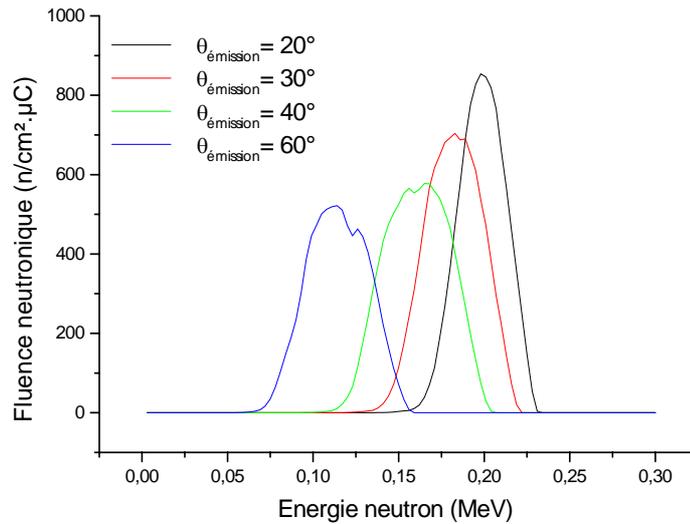


Figure 3.29 : Energie et fluence des neutrons générés dans la réaction ${}^7\text{Li}(p, n){}^7\text{Be}$ en fonction de l'angle d'émission

3.5- Evolution vers un dosimètre personnel

3.5.1- Dépendance angulaire

Les irradiations de nos dosimètres neutroniques à des équivalents de dose personnels ont été réalisées en janvier 2004 auprès des installations de l'IRSN/Cadarache. Dans chaque irradiation, trois dosimètres ont été placés cote à cote sur un fantôme PMMA rempli d'eau de dimensions $30 \times 30 \times 15 \text{ cm}^3$ (**Figure 3.30**). Sous différents angles d'incidence (0° , 30° et 60°), trois sources ISO ont été utilisées (${}^{241}\text{Am-Be}$, ${}^{252}\text{Cf nu}$, ${}^{252}\text{Cf modéré avec Cd}$) et deux sources neutrons réalistes SIGMA et ${}^{252}\text{Cf modéré}$. L'équivalent de dose neutron de référence, $H_p(10, \alpha)$ selon publication 60 d'CIPR, à laquelle les dosimètres ont été exposés s'est étendu entre 0,8 et 3,4 mSv. Le contrôle du bruit de fond de transit a été assuré en effaçant les films avant chaque utilisation, et le bruit de fond accumulé pendant l'irradiation était soustrait par la méthode différentielle ($I_0^{\text{IP}_2} - I_0^{\text{IP}_1}$).

La réponse d'équivalent de dose en termes de $H_p(10, \alpha)$ a été évaluée par la densité PSL nette mesurée et corrigée en tenant compte des facteurs géométriques. Egalement, des films PN3 décrits dans le chapitre 2, ont été utilisés dans le cadre d'un test d'intercomparaison entre les trois laboratoires de recherches : IReS de Strasbourg, IPNO d'Orsay et UAB de Barcelone utilisant différents types de dosimètres. Le **tableau**

3.7 décrit les dosimètres, ainsi que les méthodes chimiques ou électrochimiques de développement suivies par chaque laboratoire. Il est à noter que l'épaisseur de (CH₂)_n est de 3 mm et celle de Nylon est de 100 μ m.

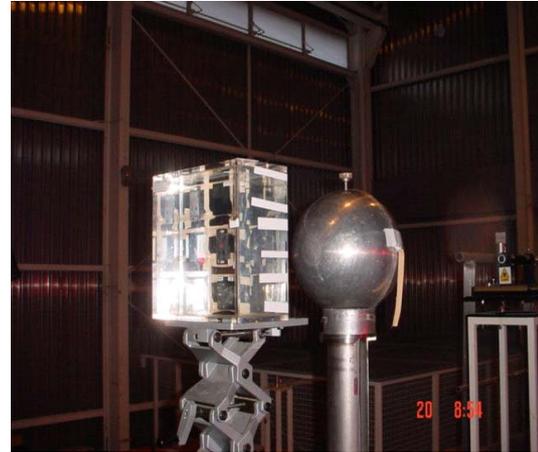
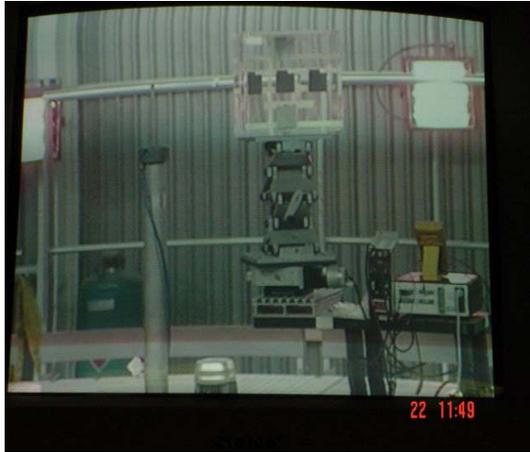


Figure 3.30a : Dosimètres exposés à ²⁵²Cf modéré par D₂O **Figure 3.30b** : Dosimètres exposés à ²⁵²Cf modéré par D₂O/Cd

Laboratoire	Dosimètre	Développement
IReS Strasbourg	PN3 + (CH ₂) _n	Chimique
		1h à 70°C ; (40% 6,25 M NaOH, 60% méthanol) 6h à 70°C ; (6,25 M NaOH) 15 min ; HCl 15 min ; eau distillée
IPNO Orsay	PN3	Chimique
		1h à 70°C ; (40% 6,25 M NaOH, 60% méthanol) 6h à 70°C ; (8 M NaOH) 15 min ; eau distillée
UAB Barcelone	CR-39 + (CH ₂) _n Makrofol + Nylon	Electrochimique
		5h à 60°C ; (6 M NaOH, 20 kV.cm ⁻¹ , 50Hz) 1h à 60°C ; (6 M NaOH, 20 kV.cm ⁻¹ , 2 kHz) 15 min à 60°C ; (6 M NaOH) 15 min ; eau

Tableau 3.7 : Différents types de dosimètres et méthodes de développement utilisés par les trois laboratoires IReS, IPNO et UAB

La source schématisée sur la **figure 3.31** est l'empilement SIGMA de Cadarache. Elle est composée de six sources d'²⁴¹Am-Be réparties à l'intérieur d'un cube de 150 cm d'arête formé à partir de sept lits de graphites superposés. Les sources sont disposées suivant les sommets d'un hexagone régulier centré sur le canal d'irradiation. Cet empilement thermique permet d'obtenir dans la chambre d'irradiation un flux intense et isotrope. Chaque source scellée d'²⁴¹Am-Be a une activité de $5,92 \cdot 10^{11}$ Bq et un taux d'émission entre $3,21 \cdot 10^7$ et $3,55 \cdot 10^7$ neutrons/s sur 4π sr. Les dosimètres IPs sont positionnés à la surface du fantôme.

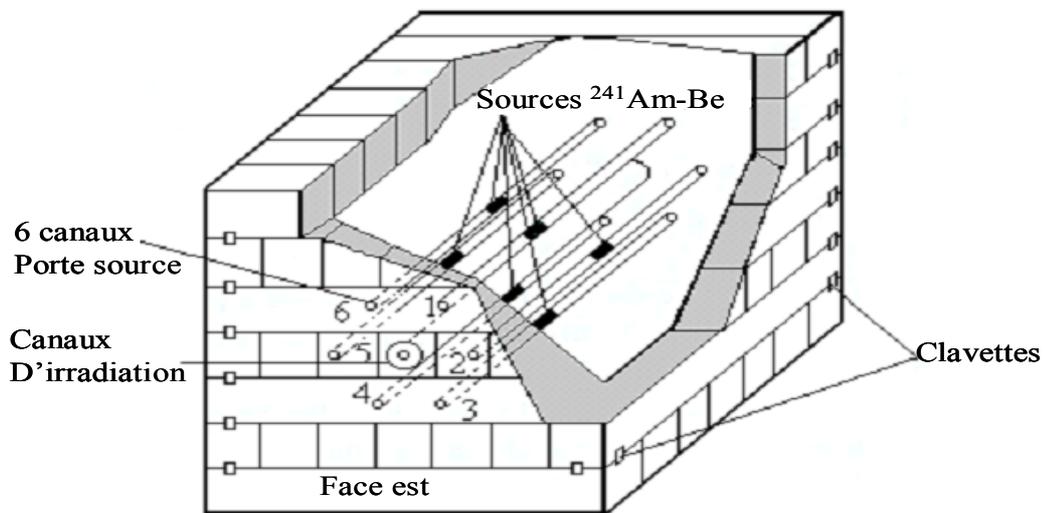


Figure 3.31 : Vue schématique de l'empilement SIGMA montrant les six sources d'Am-Be [Bux86]

3.5.2- Exploitation des résultats

Sur les deux **figures 3.32 et 3.33**, on constate que la dépendance angulaire est moins importante pour la source ²⁴¹Am-Be ($\langle E_n \rangle = 4,4$ MeV) que celle de la source ²⁵²Cf ($\langle E_n \rangle = 2$ MeV). En effet, la réponse ($R_{Hp} = \text{PSL}/\text{mm}^2 / \text{Hp}(10, \alpha)$) de la source ²⁴¹Am-Be diminue de 53% de 0° à 60° . Par contre celle du ²⁵²Cf diminue de 86 %. Cela s'explique par la différence entre les énergies moyennes des deux sources (**Figure 3.34**), donc plus l'énergie augmente moins la dépendance angulaire est importante. La réponse d'équivalent de dose personnel moyenne est $10867 \text{ mSv}^{-1} \cdot \text{PSL} \cdot \text{mm}^{-2}$ et $7650 \text{ mSv}^{-1} \cdot \text{mm}^{-2}$, égaux respectivement à 0,79 et 0,75 de la réponse aux neutrons de ²⁴¹Am-Be et ²⁵²Cf à l'incidence normale. Ces résultats sont en bon accord avec ceux

obtenus par Fernandez et al. [Fer96]. Ils ont trouvé 0,7 pour la source de ²⁵²Cf utilisant des dosimètres à base de CR-39.

Pour utiliser le dosimètre IP avec les radiateurs cités sur les **figures 3.32 et 3.33** dans des mesures ordinaires de neutrons, un facteur de calibration f_c en fonction de l'angle d'incidence et de l'énergie est calculé par $1/\langle R_{Hp} \rangle$ pour les deux sources ²⁴¹Am-Be et ²⁵²Cf. Les f_c pour estimer l'équivalent de dose personnel sont respectivement $9,20 \times 10^{-5}$ et $13,07 \times 10^{-5}$ mSv.PSL⁻¹.mm² pour ²⁴¹Am-Be et ²⁵²Cf [Mou05b].

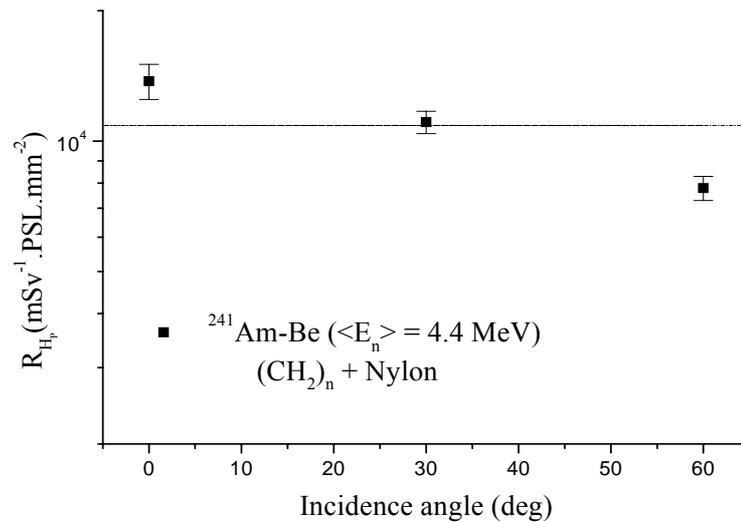


Figure 3.32 : Réponse expérimentale d'équivalent de dose personnel R_{Hp} en fonction de l'angle d'incidence pour la source ²⁴¹Am-Be utilisant les radiateurs $(CH_2)_n$ et Nylon

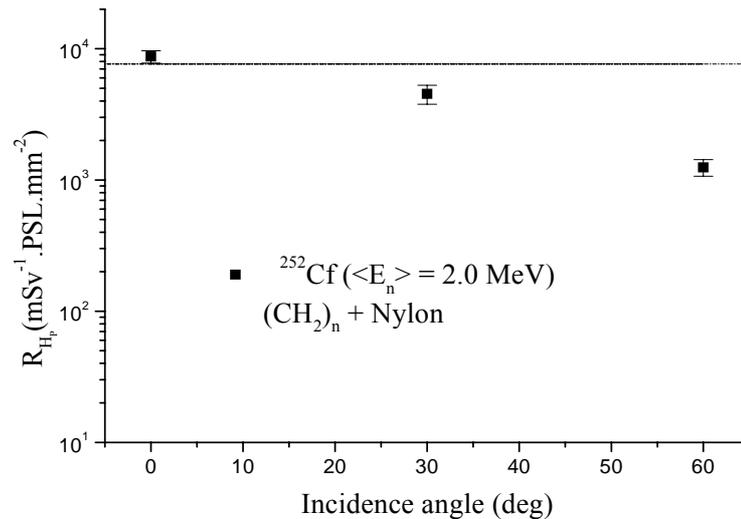


Figure 3.33 : Réponse expérimentale d'équivalent de dose personnel R_{Hp} en fonction de l'angle d'incidence pour la source ²⁵²Cf utilisant les radiateurs $(CH_2)_n$ et Nylon

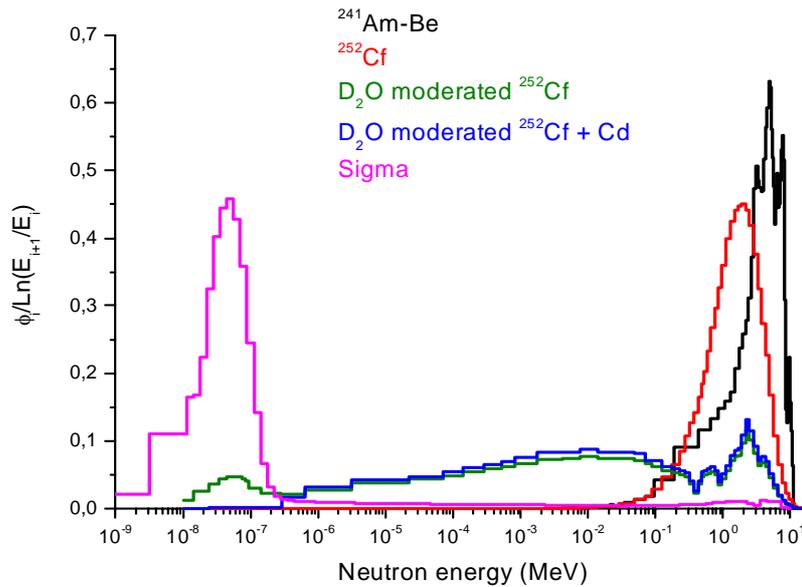


Figure 3.34 : Spectres énergétiques des neutrons disponibles dans le site de Cadarache

Les **figures 3.35 et 3.36** représentent la réponse d'équivalent de dose personnel R_{Hp} pour la même source de ^{252}Cf avec deux configurations de dosimètre différentes. On constate que la réponse avec le Nylon comme seul radiateur est au dessous de la moyenne trouvée avec $(\text{CH}_2)_n$ plus Nylon. Cela est dû à la selection faite par le Nylon car il permet de détecter uniquement les neutrons thermiques et non les rapides via la réaction $^{14}\text{N}(n,p)^{14}\text{C}$. Par contre, sur la **figure 3.36** la réponse R_{Hp} est 17% supérieure à $\langle R_{Hp} \rangle_{\text{Cf}}$. Cette différence est due à la contribution des rayonnements γ créés lors de la capture des neutrons d'albédo (générés par la rétrodiffusion des neutrons rapides dans le fantôme) par la plaque de Cd [**Fer04**]. Cette plaque de 300 μm d'épaisseur a été placée entre le dosimètre et le fantôme.

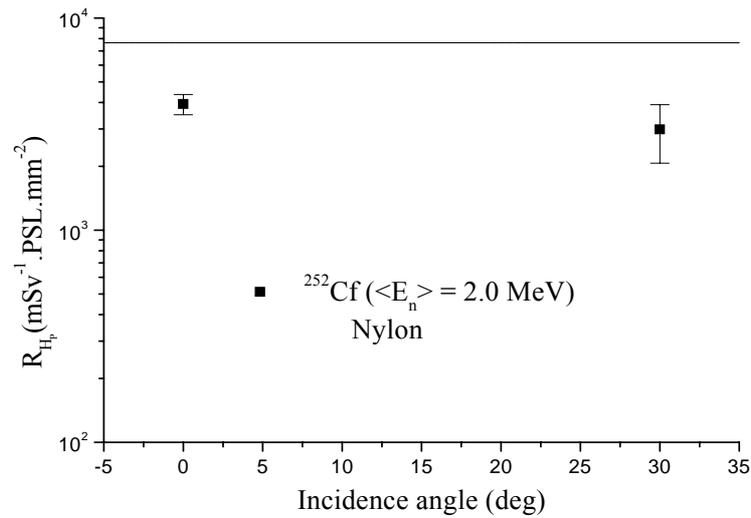


Figure 3.35 : Réponse d'équivalent de dose personnelle expérimentale R_{Hp} comme une fonction de l'angle d'incident des neutrons pour ^{252}Cf source utilisant le radiateur de Nylon

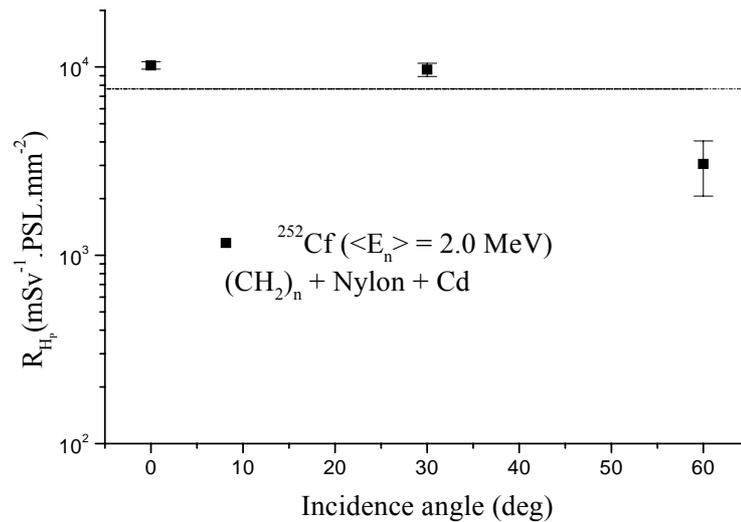


Figure 3.36 : Réponse d'équivalent de dose personnelle expérimentale R_{Hp} comme une fonction de l'angle d'incident des neutrons pour la source ^{252}Cf utilisant $(\text{CH}_2)_n$ et radiateurs de Nylon combinés avec absorbant Cd

La **figure 3.37** présente la réponse en termes de Hp (10, α) pour chaque dosimètre de chaque laboratoire en fonction de la source et de l'angle d'incidence des neutrons. Cette réponse a été évaluée par la densité nette de trace corrigée par l'effet de distance source-détecteur et par la valeur de référence pour chaque source donnée par l'équipe IRSN. Pour les sources de neutrons rapides, on peut expliquer les valeurs de réponse plus hautes des groupes IReS et UAB dans presque tous les cas par la présence

d'un convertisseur à neutrons rapide (voir **tableau 3.7**). En ce qui concerne la source SIGMA (neutrons thermiques) on voit qu'il y a des valeurs plus hautes pour le groupe UAB que l'on peut expliquer par la présence d'un convertisseur à neutrons thermique.

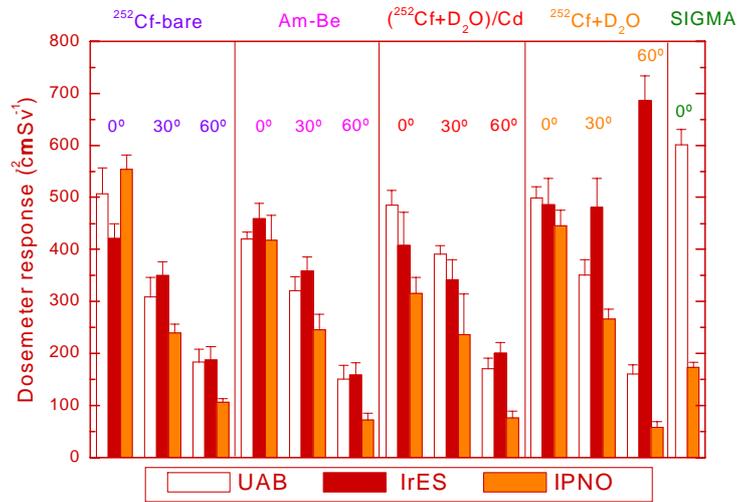


Figure 3.37 : Réponse d'équivalent de dose personnelle expérimentale R_{Hp}

Les réponses angulaires normalisées à l'incidence normale sont montrées sur la **figure 3.38**, à l'exception de la source SIGMA. Le comportement des réponses des dosimètres des trois groupes diverge considérablement de la valeur de référence, mais c'est un fait bien connu pour les DSTN à cause de leur effet angulaire critique qui limite leur efficacité d'enregistrement. La dépendance angulaire semblable entre le groupe Barcelone et Strasbourg montre que l'introduction du Nylon comme un convertisseur de neutrons thermiques n'affecte pas beaucoup la dépendance angulaire de la réponse.

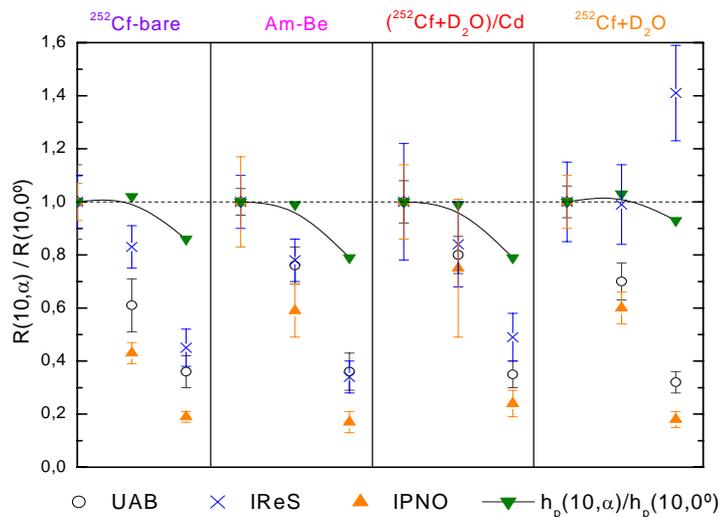


Figure 3.38 : Réponses angulaires normalisées à l'incidence normale

3.6- Conclusions

En tenant compte du phénomène de fading pendant et après l'irradiation le dosimètre IP de neutrons rapides donne des résultats quantitatifs pour les courtes et les longues irradiations. L'équivalent de dose ambiant le plus petit que nous étions capables de détecter est $(23 \pm 9) \mu\text{Sv}$, qui est conformément à la limite de détection calculée de $14 \mu\text{Sv}$. Le dosimètre devrait toujours donner un résultat valable plusieurs mois après la fin d'irradiation grâce à la demi-vie de 30 jours pour la disparition de la composante ayant la plus longue vie. L'effet de fading à la température ambiante a été étudié pour trois types de radiation (n , γ et α). Indépendamment de l'équivalent de dose, de cette étude nous avons trouvé les mêmes décroissances pour les trois rayonnements donc la dégradation de l'image latente est indépendante du rayonnement contrairement aux amplitudes A_i qui dépendent de la source du rayonnement. Après l'irradiation, le stockage des films à d'autres températures peut changer les équations 3-6 et 3-7 qui expriment le phénomène du fading. L'étude expérimentale et les vérifications de la procédure pour corriger le fading pendant irradiation ont été effectuées avec des sources de neutrons rapides $^{241}\text{Am-Be}$ et $^{239}\text{Pu-Be}$. Les neutrons d'autres sources peuvent donner une réponse différente donc elles nécessitent des calibrations expérimentales. La mesure de neutrons thermiques est possible, mais en utilisant une autre combinaison d'IPs, des absorbants ou des radiateurs. Le dosimètre irradié sur un fantôme en PMMA présente une dépendance angulaire par rapport à l'angle d'incidence normale. Les facteurs de calibration obtenus pour les sources $^{241}\text{Am-Be}$ et ^{252}Cf sont respectivement $9,20 \times 10^{-5} \text{ mSv. PSL}^{-1} \cdot \text{mm}^2$ et $13,07 \times 10^{-5} \text{ mSv. PSL}^{-1} \cdot \text{mm}^2$. En fin, cette étude ouvre des applications des films photostimulables pour la cartographie de dose auprès des installations nucléaires.

Chapitre 4

APPLICATION DES BaFBr:Eu²⁺ A LA DOSIMETRIE ALPHA

Dans ce chapitre nous présentons les résultats préliminaires d'utilisation des films photostimulables BaFBr:Eu²⁺ pour la détection des particules alpha. Des tests à l'aide de sources ont été réalisés et appliqués à la dosimétrie alpha et à la mesure du radon et de ses descendants dans l'environnement.

4.1- Détection des particules α par le BaFBr:Eu²⁺

Pour examiner la possibilité de détecter les particules alpha par les films photostimulables BaFBr:Eu²⁺, nous avons utilisé une source ponctuelle d'²⁴¹Am émettrice de particules alpha d'énergie de 5,48 MeV.

Une quantité d'²⁴¹Am a été déposée sur l'extrémité arasée d'un clou cylindrique de tantale de 1 mm de diamètre par la technique d'électrodéposition. La préparation de la source a été effectuée au laboratoire selon le mode opératoire suivant (**Figure 4.1**) :

- déposer l'activité au fond de la cuve et laisser évaporer,
- reprendre avec 1 ml de HClO₄ (0,01 M) + une goutte HCl (1 M),
- compléter avec 4 ml NH₄Cl (1 M),
- ajuster à pH = 1 avec HCl (1 M),
- lancer l'électrodéposition : 25 V et 100 mA pendant 1 h,
- ajouter 1 ml NH₄OH concentré 1 min avant de couper le courant.

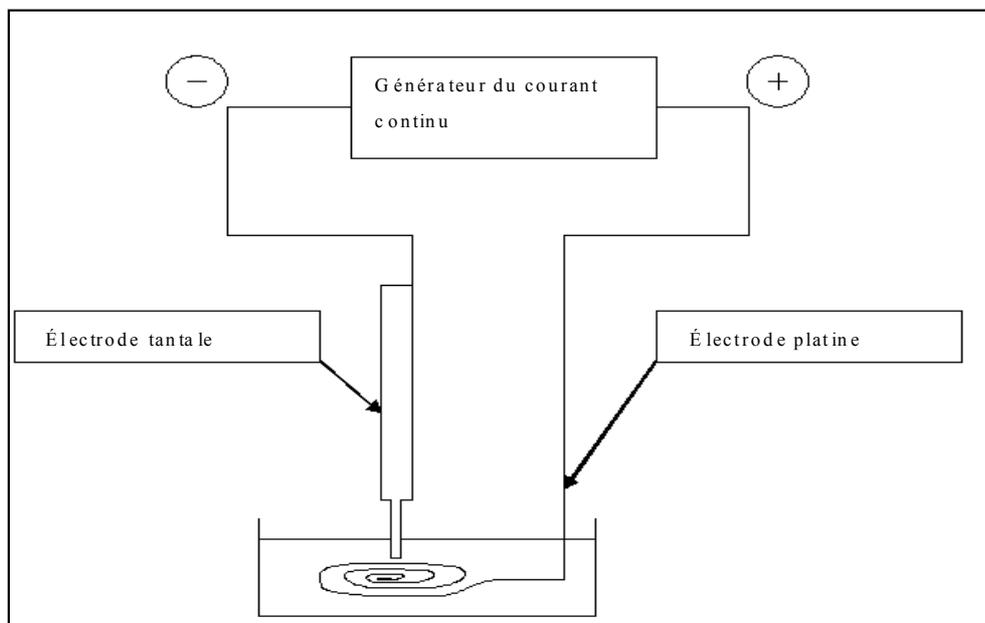


Figure 4.1 : Dispositif de fabrication de la source ponctuelle d'²⁴¹Am par électrodéposition

4.1.1- Protocole expérimental

Les irradiations ont été réalisées dans une chambre cylindrique obscure de 30 cm de diamètre à différente pression. Le détecteur photostimulable est monté sur un support mobile permettant de fixer la distance source-détecteur et de varier l'angle d'incidence des particules α sur le détecteur.

Les étalonnages en énergie ont été effectués en utilisant un détecteur à barrière de surface positionné à la place du film photostimulable et une source étalon circulaire plane composée de ²³⁸Pu, ²⁴¹Am et ²⁴⁴Cm. Dans le **tableau 4.1** sont données les caractéristiques de cette source.

Radioisotope	Période (ans)	E _{α} (MeV)	Rapport d'embranchement (%)
²³⁹ Pu	2,41.10 ⁴	5,103	11
		5,142	15
		5,155	73
²⁴¹ Am	433	5,387	1,6
		5,442	12,5
		5,484	85,2
		5,511	0,2
		5,543	0,34
²⁴⁴ Cm	17,8	5,763	23,6
		5,806	76,4

Tableau 4.1 : Energies des particules α émises par la source tri alpha

Les particules alpha ionisent la zone de déplétion de la diode. Le courant collecté est proportionnel à l'énergie déposée. Sur la **figure 4.2**, est présenté le dispositif expérimental mis en oeuvre. La chaîne de détection est constituée de l'alimentation de la jonction, d'un préamplificateur, d'un amplificateur, et d'une carte d'acquisition ADC pilotée par un ordinateur.

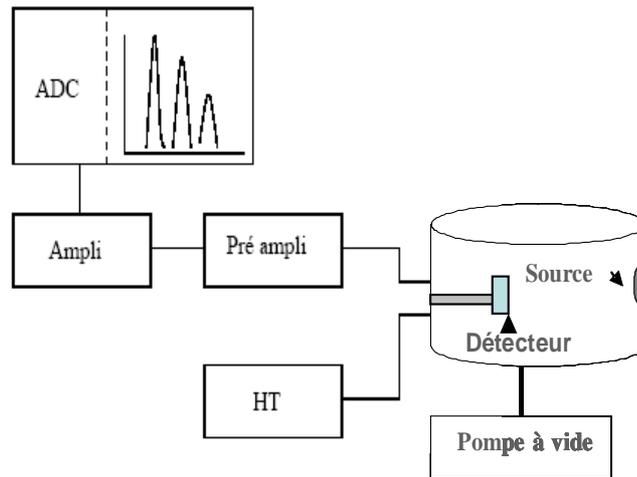


Figure 4.2 : Protocole expérimental utilisé pour la détection des particules α

Le spectre des particules alpha émises par la tri-source est représenté sur la **figure 4.3**. La résolution de la diode est de 15 keV. On a pu ainsi établir les courbes d'étalonnages de la barrière de surface (voir **figure 4.4**) pour différentes distances source-détecteur et à différentes pressions dans la chambre d'irradiation. Ces courbes ont servi à déterminer l'énergie des particules alpha atteignant le détecteur photostimulable placé à la même position que la diode.

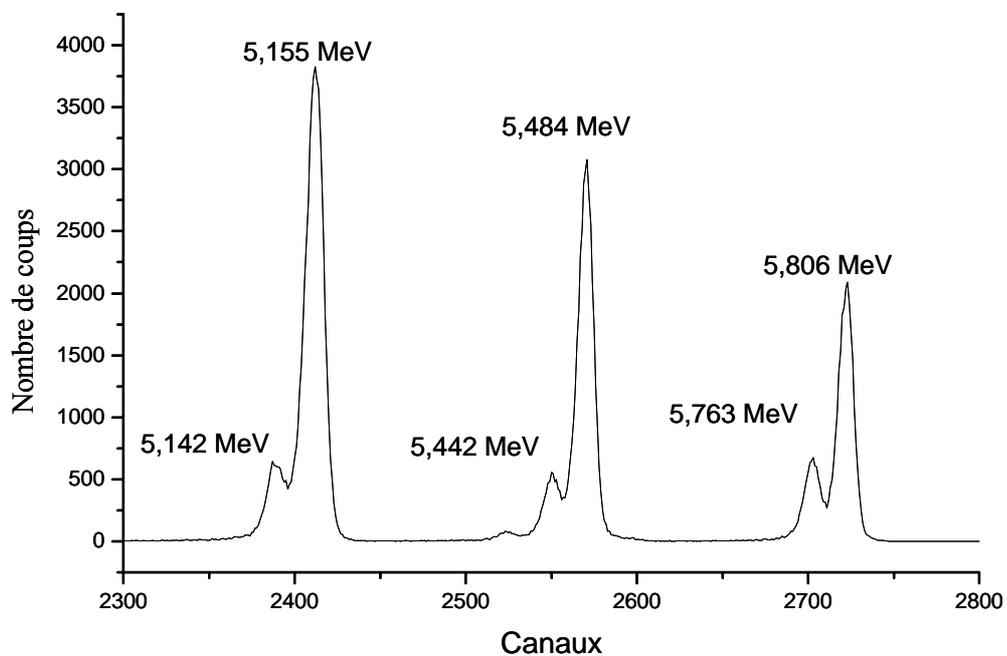


Figure 4.3 : Spectre d'étalonnage

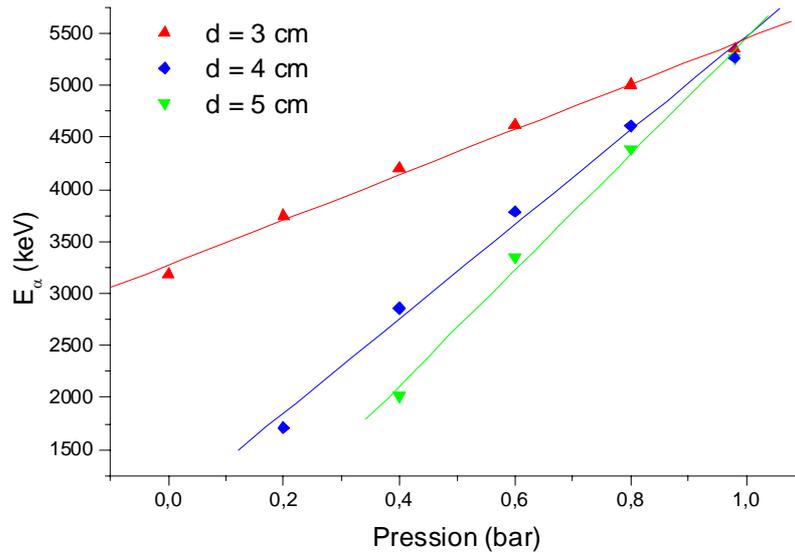


Figure 4.4 : Variation de l'énergie résiduelle E_α en fonction de la pression pour trois distances (3 cm, 4 cm et 5 cm) entre une source ponctuelle d' Am^{241} et le détecteur à barrière de surface

4.1.2 - Signature de détection des particules α par BaFBr:Eu²⁺

En mettant un écran percé d'un trou de 1 cm de diamètre sur le détecteur photostimulable, on observe une différence très nette de l'intensité des pixels entre le signal alpha et le bruit intrinsèque du détecteur. Les résultats sont présentés sur la **figure 4.5**. Compte tenu du temps d'exposition, la raie gamma de 59 KeV n'apporte qu'une très faible contribution (voir § 4.5).

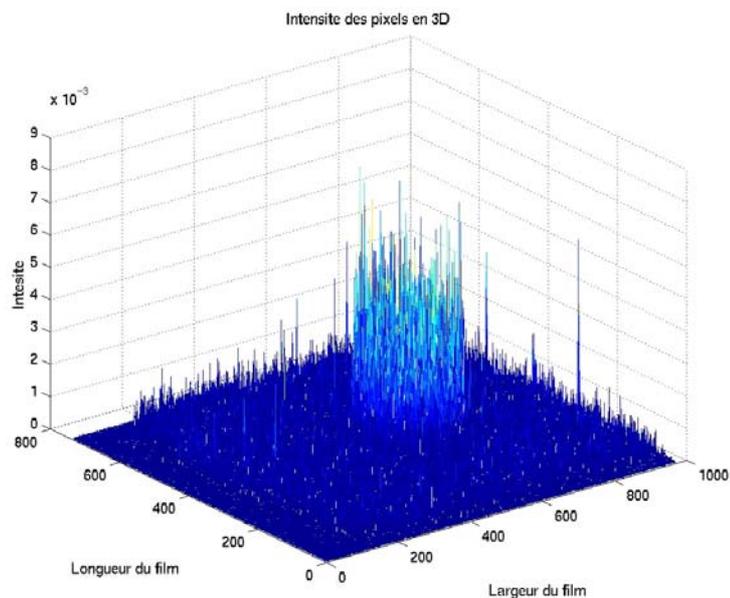


Figure 4.5 : Détection d'un signal alpha émis par la source ponctuelle d' Am^{241} pour une distance source-détecteur de 1 cm.

Les particules alpha étant fortement ionisantes, le nombre de paires électron-trou créées lors de leur passage à travers la couche sensible du détecteur est beaucoup plus important que pour des particules au minimum d'ionisation et ce, pour un bruit électronique quasi-identique, car intrinsèque au détecteur lui-même. Cette propriété confère au détecteur un rapport signal sur bruit très important nous permettant d'identifier sans ambiguïté les signaux dus aux particules alpha. Ce rapport (Eq. 4-1) noté S/N ou encore SNR (*Signal to Noise Ratio*) quantifie le rapport entre le signal utile et le bruit. Il est généralement exprimé en décibels (dB):

$$S / N = 20 \times \log \left(\frac{U_{\text{utile}}}{U_{\text{brut}}} \right) \quad 4-1$$

avec U_{utile} : tension efficace du signal [V]

U_{bruit} : tension efficace du bruit [V]

Dans notre cas U_{utile} et U_{bruit} sont respectivement la densité PSL du signal et la densité PSL du bruit.

La détermination du seuil de détection en énergie des particules α est indispensable pour l'application de ces détecteurs à la mesure de la dose alpha qui est proportionnelle au pouvoir d'arrêt dans le détecteur. Dans la littérature, plusieurs travaux ont étudié le seuil de détection des particules alpha dans les détecteurs solides de traces nucléaires (LR115 et CR-39) pour la dosimétrie alpha du radon et l'analyse de l'uranium [Bou00] dans des sédiments par contact autoradiographique. Dans ce travail, nous nous sommes intéressés au problème de seuil en énergie pour les détecteurs photostimulables. La **figure 4.6**, représente la variation des intensités PSL des profils en fonction de l'énergie résiduelle alpha atteignant le détecteur. On constate que les profils observés sont corrélés aux parcours des alpha dans l'air (**Figure 4.7**) diminuent avec l'énergie résiduelle. Il ressort de cette étude (**Figure 4.8**) que l'énergie seuil alpha est de 1,4 MeV. A titre comparatif le seuil pour le LR155 est de l'ordre 1,4 MeV.

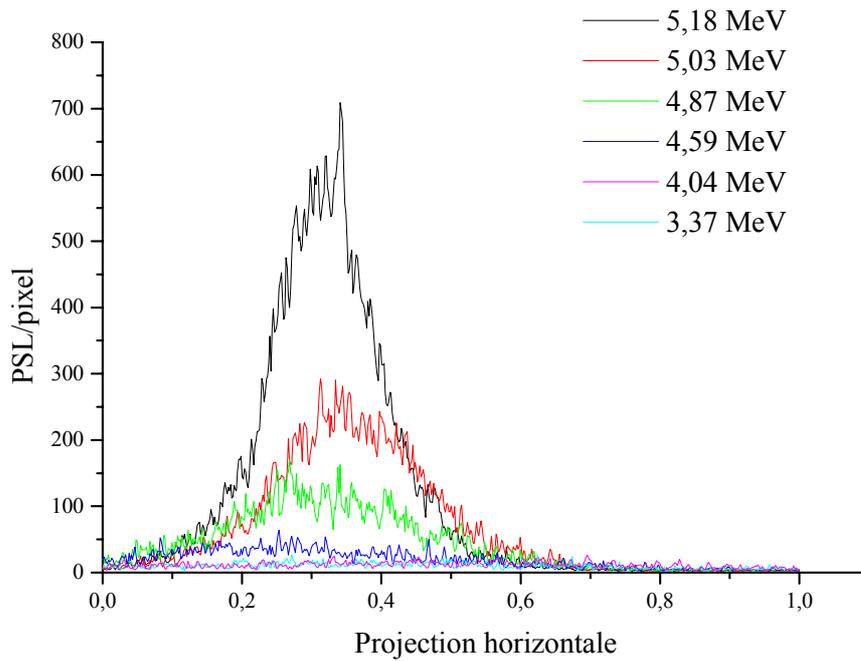


Figure 4.6 : Variation de la densité optique sur toute la surface du film photostimulable $BaFBr:Eu^{2+}$ [Mou04]

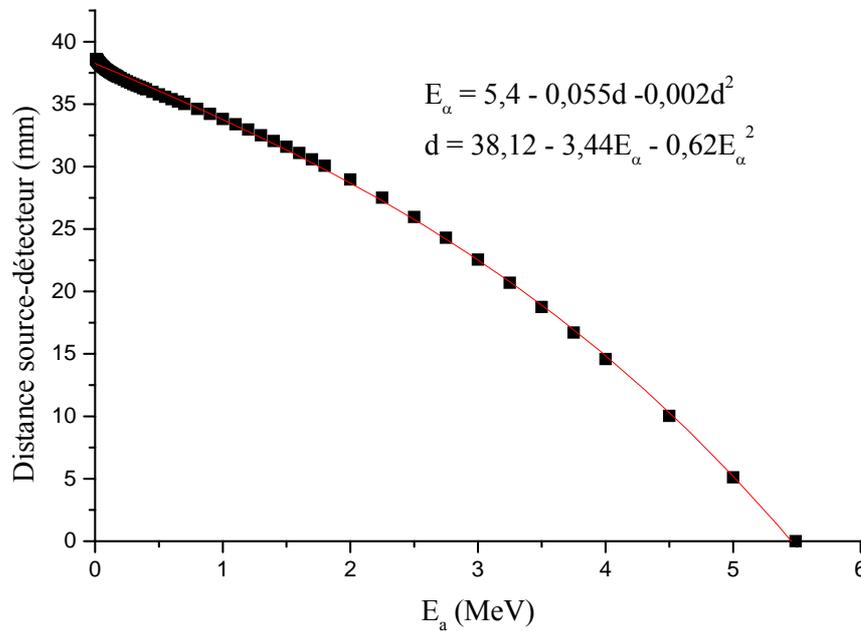


Figure 4.7 : Variation de la distance source-détecteur des particules alpha dans l'air en fonction de l'énergie résiduelle

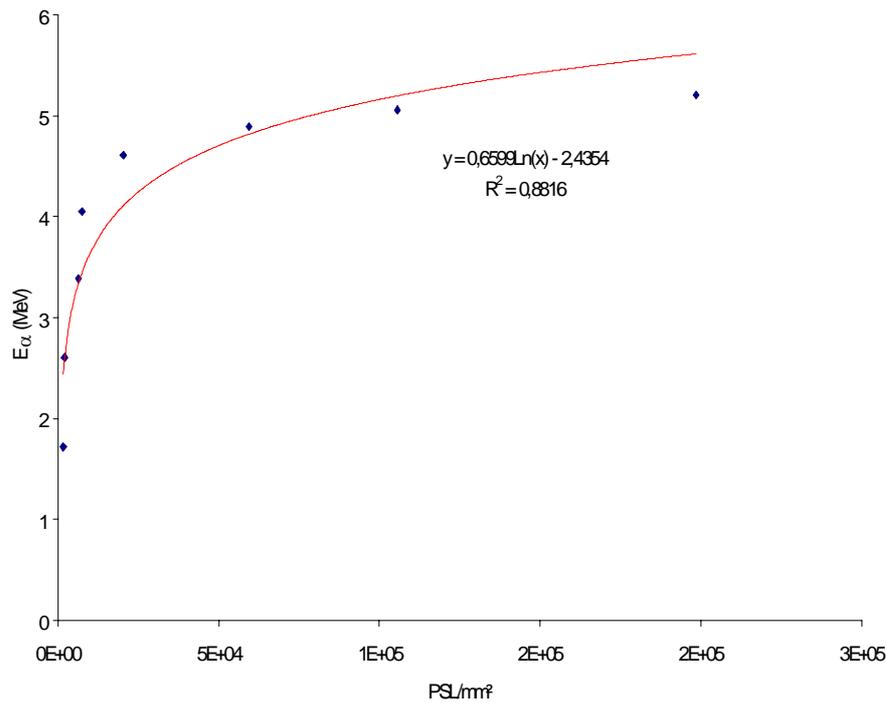


Figure 4.8 : Réponse en énergie du BaFBr:Eu²⁺ aux particules alpha d'²⁴¹Am

4.2- Probabilité de détection

Pour le calcul de la probabilité de détection alpha dans le BaFBr:Eu²⁺, nous avons utilisé la formule suivante [Nou99]:

$$P(E_\alpha) = \frac{2 N_\alpha}{N_0 \left[1 - \frac{x}{\sqrt{x^2 + r^2}} \right]} \quad 4-2$$

avec

- N_\square : nombre de particules alpha détectées,
- N_0 : nombre de particules alpha émises,
- x : distance source-détecteur,
- r : ouverture de l'angle solide sur le détecteur.

En combinant les relations énergie-pression (**Figure 4.4**) et l'équation 4-2 nous avons pu déterminer l'évolution de la probabilité d'enregistrement des particules alpha (**Figure 4.9**) dans le détecteur photostimulable. Cette variation est paramétrée par l'équation suivante:

$$P(E_\alpha) = -0,31 + 2,20 \cdot 10^{-4} E_\alpha - 1,68 \cdot 10^{-8} E_\alpha^2$$

4-3

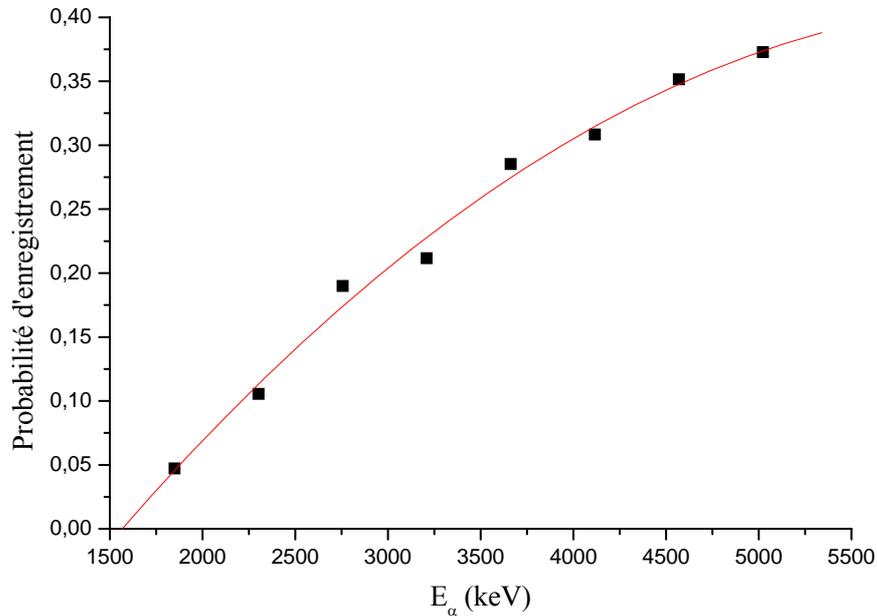


Figure 4.9 : Probabilité d'enregistrement des particules α dans le BaFBr:Eu²⁺ en fonction de E_α

4.3- Angle critique d'enregistrement

L'angle critique d'enregistrement θ_c formé par la trajectoire de la particule incidente et la normale à la surface du détecteur (**Figure 4.10**), est l'angle au-dessus duquel la détection de la particule est impossible. Pour la caractérisation des DSTN, Fleischer [Fle75] a décrit un angle critique θ_c au delà duquel les traces dans un DSTN irradié par des particules chargées ne sont pas observables après révélation chimique bien que les dégâts créés soient importants.

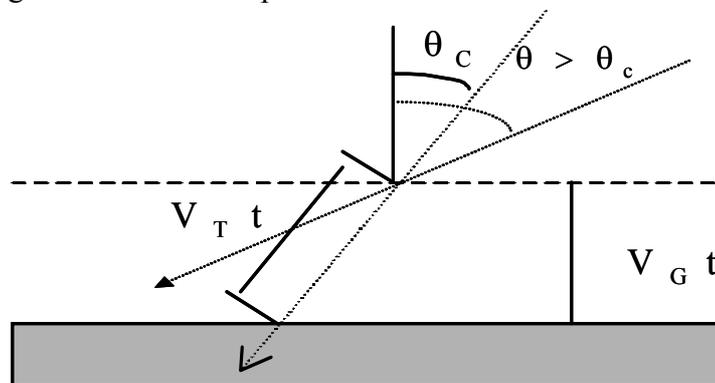


Figure 4.10 : Conditions d'observation d'une trace après développement chimique

Ceci est lié à l'épaisseur de la partie découpée du film. Cette épaisseur résulte des effets simultanés de la dissolution du détecteur non irradié caractérisée par la vitesse V_G et de celle des dégâts le long de la trace caractérisée par V_T . Ce qui se traduit par la condition suivante :

$$\cos \theta \int_0^t V_T dt > V_G t \quad 4-4$$

d'où :

$$\theta_c = \arccos \frac{V_G t}{\int_0^t V_T dt} \quad 4-5$$

D'après cette expression, l'angle critique dépend de plusieurs paramètres tels que la nature du DSTN, l'énergie de la particule chargée incidente et le temps de développement t qui est propre à chaque DSTN. D'autres études ont aussi montré que l'angle critique dépend du temps de développement [Mem93]. En effet, l'allure générale de V_T (**Figure 4.11**) implique que dans certains cas, une trace ne peut devenir observable qu'à partir d'un certain temps de révélation appelé temps différé t_d , on peut alors définir θ_c par :

$$\theta_c = \arccos \frac{V_G (t - t_d)}{\int_{t_d}^t V_T dt} \quad 4-6$$

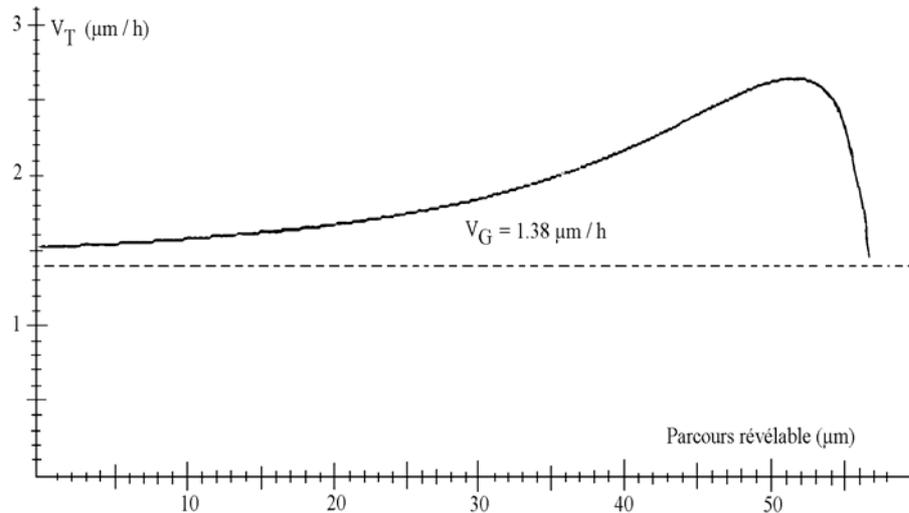


Figure 4.11 : Représentation de la vitesse V_T le long de la trajectoire d'une particule α d'énergie incidente de 7,7 MeV dans le CR-39 [Mem93]

Comme il a été mentionné dans le second chapitre (§2.3), la restitution de l'image latente enregistrée dans le film photostimulable irradié ne nécessite pas un traitement chimique. Par conséquent la contrainte de l'angle critique d'enregistrement θ_c est liée uniquement à l'épaisseur de la couche protectrice du film ($e = 10 \mu\text{m}$). Les études expérimentales de la variation de θ_c en fonction de l'énergie de la particule α dans le BaFBr:Eu²⁺ (**Figure 4.12**) ont abouti aux résultats suivants :

$$\theta_c = -40,823 + 64,013E_\alpha - 9,63E_\alpha^2 + 0,348E_\alpha^3 \quad 4-7$$

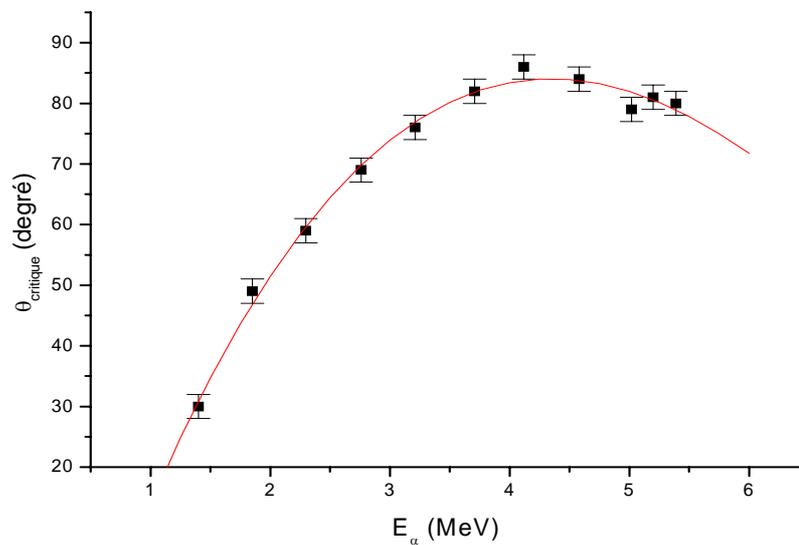


Figure 4.12 : Angle critique d'enregistrement θ_c en fonction de l'énergie E_α dans le film photostimulable BaFBr:Eu²⁺

4.4- Réponse aux particules α

Les mesures faites avec des films photostimulables au contact d'une source circulaire plane ²⁴¹Am ont mis en évidence une fonction de réponse non linéaire. Pour comprendre cette non linéarité nous avons fait une étude théorique fondée, par analogie sur la relation fondamentale utilisée pour l'analyse par activation [**Tem90**].

Cette relation repose sur la transformation d'un noyau stable en un noyau radioactif et sa décroissance pendant l'irradiation. On désigne par ϕ le flux des particules α incidentes, σ la section efficace d'interaction, N_c le nombre centres cibles, λ la constante de désintégration du noyau radioactif formé et θ l'abondance isotopique

du noyau stable. Au cours de l'irradiation il y a formation de $(\phi\sigma N_c \theta dt)$ noyaux instables qui se désintègrent en $(-\lambda.N.dt)$. Alors le nombre de noyaux instables restant sera :

$$dN = \phi\sigma N_c \theta dt - \lambda N dt \quad 4-8$$

$$N = \frac{\phi\sigma N_c}{\lambda} (1 - e^{-\lambda t_i}) \quad 4-9$$

Les résultats théoriques sont en bon accord avec les résultats expérimentaux (**figure 4.13**) pour un temps de décroissance du film photostimulable entre la fin de l'irradiation et la lecture de $T = 2,24$ min.

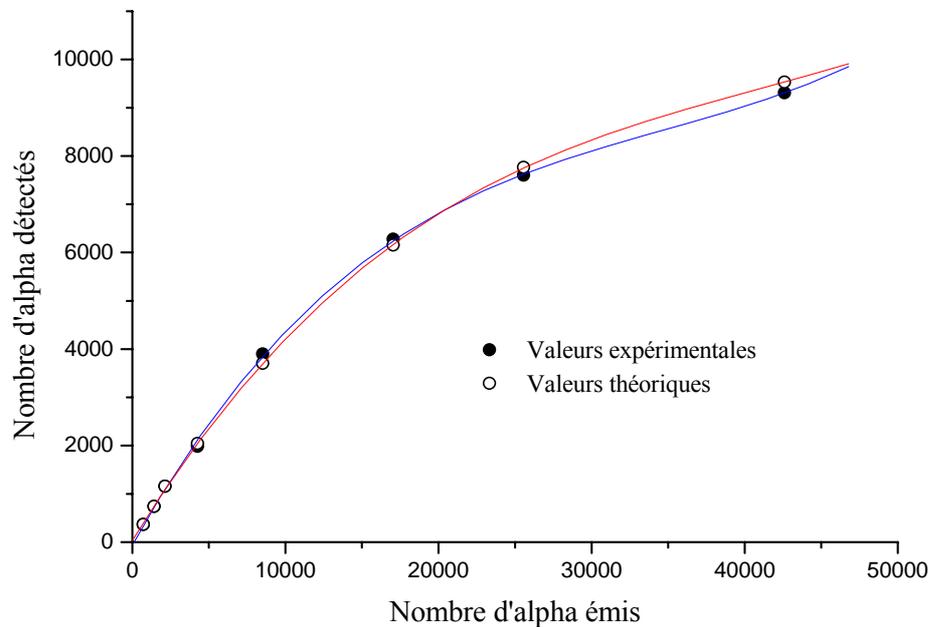


Figure 4.13 : Fonction de réponse des détecteurs BaFBr:Eu²⁺ aux rayonnements alpha

4.5- Fading

Pour mettre en évidence le phénomène de fading, ou perte de signal, des films photostimulables exposés aux particules alpha, nous avons utilisé une source ²⁴¹Am, qui émet des alpha de 5,48 MeV et des rayons γ de 60 keV. Quand le film est exposé à la source nue pendant un temps d'irradiation inférieurs à 2 h, il enregistre principalement des particules alpha seules. Dans cette partie de l'étude, les détecteurs ont été irradiés

pendant 20 minutes au contact de la source. Les lectures ont été effectuées à des durées de latence variables de 15 minutes à 25 jours (**figure 4.14**).

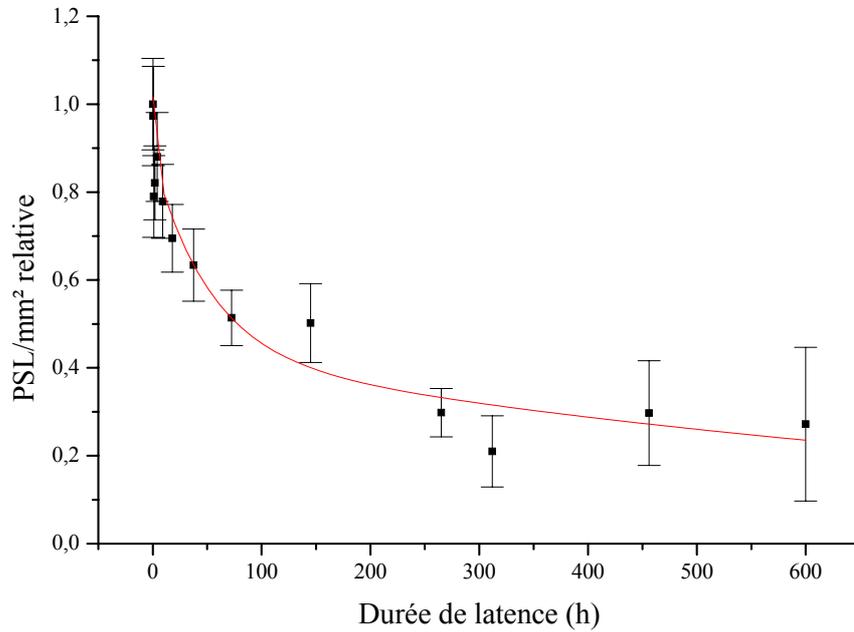


Figure 4.14 : Fading dans un film photostimulable BaFBr:Eu²⁺ irradié par les particules α d'²⁴¹Am

Nous constatons que le meilleur ajustement par une équation de la forme

$\sum_{i=1}^n A_i \exp(-\lambda_i t)$ est obtenu pour trois composantes (**Tableau 4.2**).

A ₁	T ₁ (min)	A ₂	T ₂ (min)	A ₃	T ₃ (min)	Ref.
0,18	8	0,31	250	0,51	7×10^5	[Yam93]
0,17	10	0,36	$2,30 \times 10^3$	0,47	$4,60 \times 10^4$	[Mou05a]

Tableau 4.2 : Amplitudes A_j et demi-vies T_i des composantes caractérisant le fading α dans le BaFBr:Eu²⁺

4.6- Application aux mesures du radon

4.6.1- Généralités sur le radon

Le radon est un gaz d'origine naturelle, émanant du sol. Il est inodore, incolore, insipide et radioactif, d'où l'attention qu'il suscite. Il provient de la désintégration de l'uranium et du thorium, présent en proportions variables dans la plupart des roches (et donc dans la plupart des matériaux de construction). Généralement, ce gaz se dilue rapidement dans l'atmosphère dès qu'il atteint la surface du sol. Mais il n'en va pas de même lorsqu'il s'infiltré à travers les pores et les fissures jusqu'aux caves et pièces d'habitations de nos maisons calfeutrées (**voir figure 4.16**). Piégé, il peut alors s'y accumuler et parfois atteindre des concentrations susceptibles d'augmenter le risque de cancer du poumon.

Le radon se désintègre dans l'atmosphère en donnant successivement et rapidement des atomes de ²¹⁸Po, ²¹⁴Pb, ²¹⁴Bi et ²¹⁴Po sous forme de particules microscopiques (le descendant suivant, le ²¹⁰Pb de période beaucoup plus longue (22 ans) est en concentration négligeable). Ces quatre descendants peuvent être inhalés. Du fait de sa très courte période (16 ms), le ²¹⁴Po ne parvient pas directement dans les poumons par inhalation, mais les trois autres peuvent s'y fixer et s'y désintégrer jusqu'au ²¹⁰Pb (**Figure 4.15**).

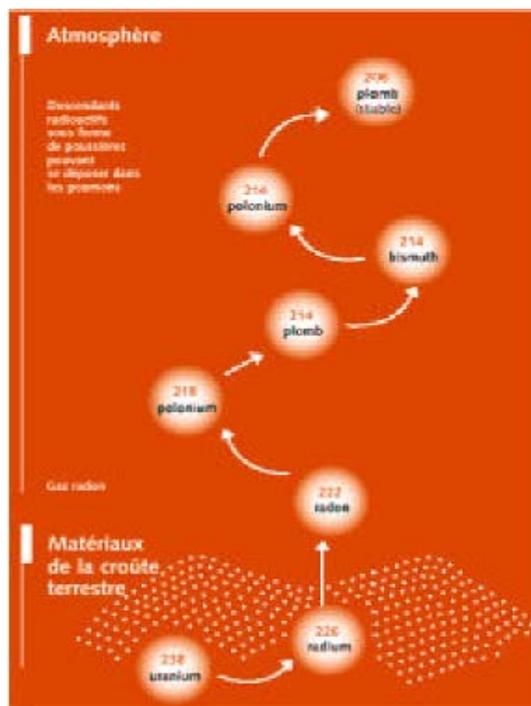


Figure 4.15 : Décroissance de la famille de l'²³⁸U

Un atome de ²¹⁸Po émet une particule alpha de 6,00 MeV. Le ²¹⁴Pb formé conduit par deux désintégrations β successives, au ²¹⁴Bi, puis au ²¹⁴Po pour aboutir au ²¹⁰Pb par désintégration alpha d'énergie 7,69 MeV. La somme de ces deux énergies (13,69 MeV) est l'énergie alpha potentielle (EAP) de l'atome de ²¹⁸Po. L'EAP de chaque atome de ²¹⁴Pb et ²¹⁴Bi n'est que de 7,69 MeV (**tableau 4.3**).

Descendants du ²²² Rn	Période (min)	E _{α} (MeV)	EAP (MeV.Bq ⁻¹)
²¹⁸ Po	3,05	13,69	3620
²¹⁴ Pb	26,8	7,69	17800
²¹⁴ Bi	19,9	7,69	13100
²¹⁴ Po	2,57.10 ⁻⁶	7,69	2.10 ⁻³
Total à l'équilibre par Bq de radon			34520

Tableau 4.3 : Energie Alpha Potentielle des descendants du ²²²Rn

L'EAP volumique pondérée par le nombre de chaque descendant est donnée par l'expression suivante :

$$EAP_V = 13,69 N(^{218}\text{Po}) + 7,69 N(^{214}\text{Pb}) + N(^{214}\text{Bi}) \quad 4-10$$

$N(^{218}\text{Po})$, $N(^{214}\text{Pb})$, $N(^{214}\text{Bi})$ désignent respectivement les nombres d'atomes par mètre cube d'isotopes ²¹⁸Po, ²¹⁴Pb et ²¹⁴Bi.

Le radon présent dans l'air d'une habitation provient essentiellement de deux sources : les matériaux de construction et le sol (**figure 4.16**). La contribution des matériaux de construction ne dépasse généralement pas quelques dizaines de Bq/m³. Par contre, le sol de l'habitation peut être la source de concentrations de radon de quelques centaines de Bq/m³.

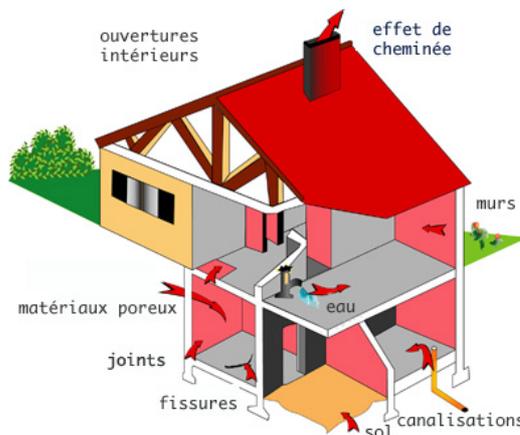


Figure 4.16 : Provenance du radon dans les habitations

La concentration en radon varie d'une maison à l'autre dans une même zone géologique. Elle varie aussi fortement d'une région à l'autre, en fonction de la nature géologique du sous-sol (le granit et le schiste en contiennent plus). En outre, certaines conditions exceptionnelles, liées à la composition du sol sous la maison (facteurs géologiques très locaux ou résultat d'activités humaines antérieures), peuvent engendrer des concentrations en radon élevées. Enfin, la concentration en radon varie au cours de la journée (plus élevée le matin), d'une saison à l'autre (plus élevée en hiver) et aussi en fonction des conditions météorologiques (plus élevée lors des basses pressions et lors du phénomène d'inversion de température). Plus on s'éloigne de la source (de la cave), plus la concentration diminue. Enfin, plus la ventilation est forte et efficace, moins il y a de risques d'avoir de grandes concentrations de radon dans l'habitation.

L'Union Européenne recommande d'agir à partir de concentrations dépassant 400 Bq/m³ pour les maisons existantes, et 200 Bq/m³ pour les nouvelles habitations. Quel que soit le bâtiment (maison, école, lieu de travail), la seule façon de savoir s'il présente une concentration de radon élevée est de faire mesurer le radon par un organisme spécialisé. Un petit nombre de mesures permettront de détecter une concentration excessive de radon. En cas de problème, la pose de détecteurs dans différents locaux pour des durées variables peut être nécessaire afin de mieux cerner la situation. Cela exige une volonté particulière de recherche de détecteurs performants.

4.6.2- Techniques de mesure du radon

Dans la littérature, plusieurs méthodes actives et passives ont été décrites pour mesurer les concentrations volumiques du radon et de ses descendants : détecteurs à semi-conducteur (GeLi, Si), détecteurs solides de traces nucléaires (DSTN), chambres d'ionisation, fioles scintillantes,... Dans ce travail nous avons utilisé deux techniques :

- Méthode active : chambre d'ionisation impulsionnelle (AlphaGUARD).
- Méthode passive : DSTN (LR115 et CR-39) et chambre d'ionisation à téflon (Electret) et pour la première fois des films photostimulables,

Le principe physique de fonctionnement des DSTN est déjà donné au chapitre 2, dans la suite nous présenterons sommairement le principe de fonctionnement des différentes chambres d'ionisation mises en œuvre.

4.6.2.1- Chambre à ionisation impulsionnelle

Les détecteurs actifs sont des dispositifs capables de mesurer en temps réel l'activité volumique du radon dans l'environnement. Ces détecteurs fonctionnent le plus souvent avec une circulation forcée de l'air. Dans ce travail, nous avons utilisé, le système AlphaGUARD [Alp98]. Il s'agit d'une chambre d'ionisation impulsionnelle portable permettant de mesurer en continu l'activité volumique du radon dans l'air tout en enregistrant simultanément les différents paramètres météorologiques tels que la pression, l'humidité et la température du lieu de mesure en fonction du temps (voir figure 4.17).

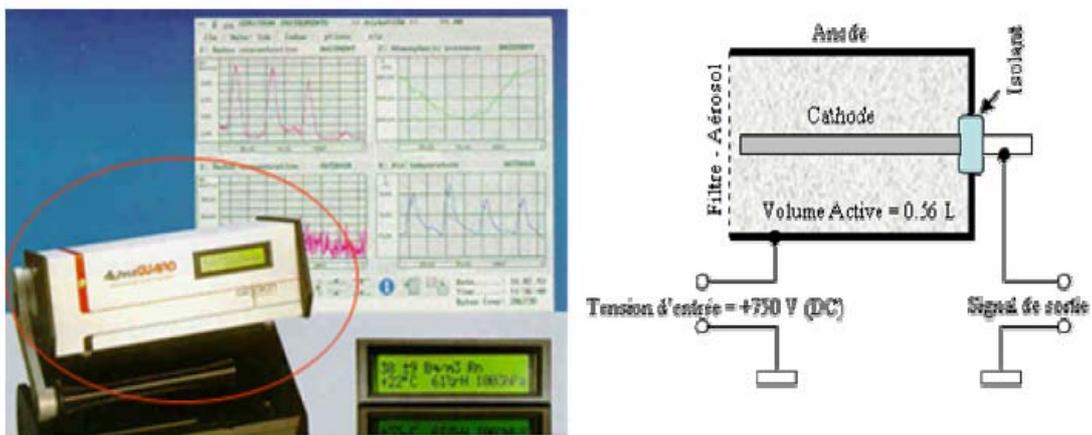


Figure 4.17 : Principe de fonctionnement de la chambre d'ionisation AlphaGUARD

La capacité de la chambre est de 0,56 L et fonctionne sous une alimentation de 750 V. En mode de fonctionnement classique, le gaz étudié pénètre à l'intérieur de la chambre d'ionisation via un large filtre en fibre de verre.

Chaque désintégration est alors convertie en une impulsion de courant analysée par trois types de filtres :

- passe-bas : permet de mesurer le courant de référence,
- passe-bande : permet de mesurer la racine carrée de bruit de fond,
- passe-haut : permet de faire une analyse de la forme de l'impulsion et de son maximum, et de l'éliminer si elle ne correspond pas à une forme d'impulsion due au radon, mémorisée dans l'appareil.

Les caractéristiques techniques de cet appareil sont :

- protection en cas d'exposition à des activités trop importantes (jusqu'à 2 MBq.m^{-3}),
- capacité de stockage de 4 mois de mesures continues,

- erreur de linéarité inférieure à 3 %.

Le dispositif est doté, en outre, d'un système de contrôle interne du bon fonctionnement et de la qualité des mesures.

4.6.2.2- Chambre d'ionisation à Téflon (Electret)

La chambre d'ionisation à électret est un système de détection passif pour la mesure intégrée de la concentration de radon dans l'air. Ce système se compose (**figure 4.18**) d'un disque en Téflon chargé positivement (l'électret), d'une chambre en plastique conducteur sur laquelle se visse l'électret et qui joue ainsi le rôle de chambre d'ionisation, d'un lecteur permettant de déterminer la charge de l'électret utilisé et d'un logiciel d'exploitation qui permet de calculer l'activité volumique du radon dans l'air en se basant sur la différence de tension avant et après exposition.

La chambre est équipée d'un filtre ne laissant passer que le gaz radon et non les descendants solides présents dans l'air ambiant. Tant que la chambre reste fermée, l'électret conserve sa charge initiale mais lorsque qu'elle est ouverte, le radon diffuse à l'intérieur en passant par le filtre et les particules alpha émises lors de sa désintégration ionisent les molécules d'air. Les ions positifs se fixent alors sur les parois de la chambre tandis que les charges négatives sont attirées vers le disque en Téflon où elles se recombinaient avec les charges positives initialement présentes diminuant ainsi la charge de l'électret. Cette dernière est alors mesurée après l'exposition à l'aide d'un lecteur spécifique. La « décharge » de l'électret est proportionnelle au temps d'exposition du détecteur et à la concentration en radon dans la zone analysée, ce qui permet de déterminer l'activité volumique moyenne en radon gaz de cet endroit.



Figure 4.18 : Principe de la chambre d'ionisation à Electret

Il est à noter que le rayonnement gamma ambiant peut aussi entraîner l'ionisation de l'air à l'intérieur de la chambre et par conséquent décharger l'électret. Il faut donc retrancher la contribution de ce rayonnement en le mesurant sur place ou en utilisant une valeur moyenne.

Deux étapes sont nécessaires pour convertir la décharge de l'électret et le temps d'exposition en concentration volumique en radon [Ele95]. Tout d'abord, le coefficient de calibration (CF) doit être déterminé à l'aide de l'équation (4-10).

$$CF = \frac{V}{\left(\frac{\text{pCi}}{\text{L}} \times \text{jour}\right)} = A + B \times \frac{(V_I - V_F)}{2} \quad 4-11$$

Où le facteur $\frac{(V_I - V_F)}{2}$ est la moyenne des tensions initiales et finales, aussi appelé « point de tension moyenne ».

A et B sont de constantes inhérentes à l'électret utilisé.

La deuxième étape consiste à utiliser le résultat obtenu en (4-11) pour déterminer l'activité volumique en radon.

$$A_{\text{Rn}} = \frac{(V_I - V_F)}{CF \times t} - B_{\gamma} \quad 4-12$$

A_{Rn} : activité volumique en radon exprimée en pCi.L⁻¹,

t : durée d'exposition exprimée en jours,

B_{γ} : bruit de fond dû au rayonnement gamma.

4.6.2.3- Mesures préliminaires de l'activité volumique radon

Afin de déterminer la réponse du BaFBr:Eu²⁺ à la dose radon, nous avons exposés des films photostimulables dans un environnement riche en radon. A cet effet, une chambre impulsionnelle (AlphaGUARD), trois chambres d'ionisation passives (Electret) et des DSTN type LR115 sont placés dans une cuve en acier de 224 L. Une fois la cuve hermétiquement fermée, on y injecte le radon obtenu par désintégration d'une source de ²²⁶Ra placée dans une fiole en verre (**Figure 4.19**). Une pompe assure une circulation d'air entre la source de radium et la cuve, permettent la dispersion du ²²²Rn dans celle-ci.

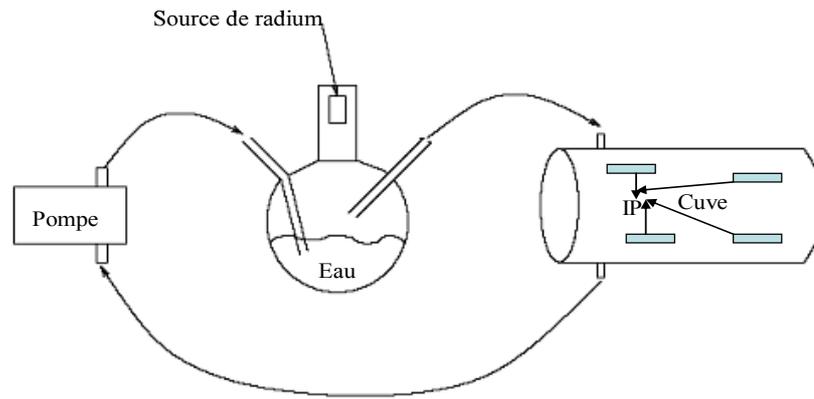


Figure 4.19 : Schéma du dispositif expérimental

4.7- Exploitation des résultats

4.7.1-Chambres à ionisation

Electret

Afin de déterminer l'activité volumique mesurée par chaque électret, nous avons relevé leur tension avant et après l'exposition au radon à l'aide du lecteur prévu à cet effet. L'évaluation de cette activité a été effectuée en appliquant les équations (4-11) et (4-12). Le **tableau 4.4** regroupe les résultats obtenus par les trois électrets utilisés.

Electret	Tension initiale (V)	Tension finale (V)	Activité volumique (Bq.m⁻³)
LK3264	730	575	930 ± 93
LK3327	722	572	900 ± 90
SV9595	723	526	1182 ± 118

Tableau 4.4 : Activités volumiques mesurées par trois chambres d'ionisation à électret

L'activité volumique moyenne ainsi obtenue est donc de $1004 \pm 59 \text{ Bq.m}^{-3}$. Rappelons que ce dispositif permet de déterminer seulement l'activité volumique du radon et non de ses descendants solides.

AlphaGUARD

Cette chambre d'ionisation a affiché une activité volumique moyenne de $957 \pm 33 \text{ Bq.m}^{-3}$ qui correspond au ²²²Rn. Elle est étalonnée pour déterminer la concentration du ²²²Rn en Bq.m^{-3} .

Donc l'activité moyenne du ²²²Rn injectée déterminée par ces deux types de chambres d'ionisation est $980 \pm 34 \text{ Bq.m}^{-3}$.

4.7.2- LR115

Après exposition dans la cuve à Rn, nous avons effectué un développement chimique du LR115, dont les conditions de développement sont décrites au chapitre 2, à savoir 2,5 M NaOH pendant 2 h. Les densités de traces sont obtenues à partir du système de lecture associé (**voir chapitre 2, figure 2.9**). La densité D de traces révélées dans le LR115 par unité de temps d'exposition est liée à l'activité volumique A du radionucléide considéré par :

$$D = \varepsilon(\theta_c, E_\alpha) \cdot A \quad 4-13$$

$\varepsilon(\theta_c, E_\alpha)$ est l'efficacité de détection en fonction de l'angle critique d'enregistrement θ_c et de l'énergie de la particule alpha E_α [**Pap98**] :

$$\varepsilon(\theta_c, E_\alpha) = \frac{1}{2} \int_{R_\alpha(E_{\min})}^{R_\alpha(E_{\max})} \int_0^{\theta_c} \sin \theta \cos \theta dR_\alpha d\theta \quad 4-14$$

E_{\min} et E_{\max} sont les limites des énergies détectées, $R_\alpha(E_{\min})$ et $R_\alpha(E_{\max})$ sont les parcours des particules α correspondant à ces énergies.

Pour remonter à l'activité, il est nécessaire de connaître l'efficacité de détection $\varepsilon(\theta_c, E_\alpha)$. Pour calculer cette efficacité, nous avons utilisé une méthode de calcul numérique basé sur l'intégration de l'équation 4-14 en fonction de l'angle θ_c et du parcours R_α . Les études de la variation de θ_c en fonction de l'énergie de la particule α dans le LR115 nous ont permis de déduire une relation empirique pour l'angle critique en fonction de l'énergie. Elle est de la forme suivante:

$$\theta_C^{LR} = \sum_{n=0}^6 K_{Ln} E_\alpha^n \quad 4-15$$

où : $k_{L0} = -183,13$; $k_{L1} = -95,92$; $k_{L2} = 479,02$; $k_{L3} = -358,37$; $k_{L4} = 117,85$;
 $k_{L5} = -18,32$; $k_{L6} = 1,09$

Pour calculer l'activité volumique du radon et de ses deux descendants solides, on intègre l'équation 4.14 sur la gamme d'énergie en MeV [1,4 ; 4,7] du LR115.

$$D_{LR} = (0,413 a_1 + 2,518 a_2) A_{Rn} \quad 4-16$$

Où:

D_{LR} : densité de traces enregistrée dans le LR115 exprimée en nombre de traces par (m².s)

Les coefficients a_1 , a_2 sont déterminés à partir de l'ajustement des points énergie-parcours (E_α , R_α) obtenus par le code SRIM03 dans l'air.

$a_1 = 2,970 \cdot 10^{-3}$ m et $a_2 = 0,6997 \cdot 10^{-3}$ m.

A_{Rn} : activité volumique du radon et de ses descendants solides exprimée en Bq.m⁻³.

L'activité moyenne déterminée par cette méthode est de 2121 ± 439 Bq.m⁻³. Cette fois, l'activité volumique déterminée est celle du radon et de ses deux descendants, car ces détecteurs ne peuvent pas distinguer les α correspondant à chaque isotope.

4.7.3- BaFBr:Eu²⁺

Pour filtrer les énergies 5,5 MeV, 6,0 MeV et 7,7 MeV correspondantes respectivement au ²²²Rn et à ses deux descendants solides ²¹⁸Po et ²¹⁴Po nous avons mis les films BaFBr:Eu²⁺ dans des enveloppes en Mylar aluminisé. Les épaisseurs de ces filtres sont calculées par le code SRIM (**Tableau 4.5**).

E_α (MeV)	Parcours (μ m) de E_α (MeV) dans le Mylar aluminisé
5,5	33,5
6,0	37,5

Tableau 4.5 : Parcours du ²²²Rn et du ²¹⁸Po dans le Mylar aluminisé [Bie03]

Après la discrimination en énergie, la mesure nette du ²²²Rn en terme de la densité PSL par unité de temps est 21481 PSL.m⁻².s⁻¹. Elle correspond à l'activité moyenne 980 ± 34 Bq.m⁻³. Par conséquent, le facteur estimé de la conversion Activité-PSL est de l'ordre $4,6 \cdot 10^{-2}$ Bq.m⁻³.(PSL .m⁻².s⁻¹)⁻¹.

4.7- Conclusions

Dans ce chapitre nous avons étudié la réponse des films photostimulables aux particules α . Nous avons mis en évidence pour la première fois la possibilité de détecter des particules α émises par une source ponctuelle isotrope d'²⁴¹Am et celles émises par le radon et ses descendants. Les résultats montrent que la densité surfacique du signal PSL suit une loi inversement proportionnelle à la distance source-détecteur. Pour les longues durées d'irradiation l'effet du fading a été observé et étudié pour ce type de particules. Les variations de l'énergie résiduelle en fonction du parcours des particules α dans l'air, nous ont permis de déterminer un seuil de détection en énergie de 1,4 MeV. La probabilité et l'angle critique d'enregistrement ont également été étudiés; les films photostimulables peuvent détecter les particules α d'énergie 4,2 MeV sous un angle critique moyen de l'ordre de 85°. Pour calculer l'énergie détectée des particules α dans le film BaFBr:Eu²⁺, nous avons effectué un étalonnage en utilisant un détecteur à barrière de surface à la place d'un film photostimulable dans les mêmes conditions expérimentales. Des études préliminaires concernant la détection du signal radon et de ses descendants ont été réalisées pour caractériser la sensibilité du système. Elles ont été contrôlées par des détecteurs témoins impulsionsnels et passifs. La détection des particules α ouvre des perspectives prometteuses pour l'application de cette nouvelle technique à la détection du signal radon, qui constitue un sujet d'actualité pour la santé humaine.

Conclusion générale

Les travaux présentés dans ce mémoire contribuent à l'introduction d'une nouvelle génération de détecteurs en métrologie des rayonnements directement et indirectement ionisants. Ils concernent la caractérisation et la mise au point d'un nouveau système de dosimétrie passive à base du composé BaFBr:Eu²⁺, un produit commercialisé sous forme de film par Fuji™ répondant aux nouvelles exigences réglementaires en matière de radioprotection et dosimétrie. L'introduction de ces dosimètres dans le domaine de la métrologie nucléaire, et particulièrement la dosimétrie passive, représentent une alternative intéressante aux films photographiques, DSTN (Détecteurs Solides de Traces Nucléaires) et TLD (Détecteurs thermoluminescents) compte tenu de leur sensibilité, efficacité, large gamme dynamique et la rapidité d'utilisation et la réutilisation sans dégradation physique.

Une étude détaillée des détecteurs photostimulables BaFBr:Eu²⁺ a permis de caractériser nos dosimètres dans différentes conditions d'irradiation à des rayonnements gamma, neutron et alpha. Les principaux résultats concernant la caractérisation des films et leur potentiel d'utilisation dans la dosimétrie passive sont :

- *Homogénéité et reproductibilité de la réponse* : Il ressort de ces résultats que ce type de détecteur présente une bonne reproductibilité avec une variance de 3,43 %, ce qui est recommandé pour un bon dosimètre quels que soient la dose et le rayonnement.
- *Perte de signal entre la fin de l'irradiation et la première lecture (fading)* : En raison de la recombinaison spontanée des électrons et des trous, l'image latente créée pendant l'irradiation dans un détecteur photostimulable est instable. Les études menées ont montré qu'il y a une décroissance très rapide dans les premières secondes suivant l'irradiation mais difficile à quantifier précisément avec notre lecteur et ensuite une décroissance beaucoup plus lente avec deux composantes. L'existence de ces deux composantes réduit le signal et nécessite une durée de latence de quelques minutes entre l'exposition et la lecture du détecteur pour avoir une bonne reproductibilité. Afin de tenir compte de ces effets sur les résultats de lectures, nous avons mené une étude de la décroissance pour des durées de latence allant de quelques minutes à 1 mois. Le signal de la première lecture, 3 min après irradiation, pris comme référence est désigné 100 % de la luminescence photostimulée (PSL) par unité de surface. Cette étude a permis d'évaluer les demi-vies de décroissance (37 heures et 32 jours) des films

photostimulables pour corriger la perte du signal. Les demi-vies sont indépendants de la nature des radiations γ , n et α .

- *Fonction de réponse gamma* : l'exposition des films photostimulables aux rayonnements de référence de 1173,3 et 1332,5 keV à des distances variables de 30 à 250 cm et durant des temps d'exposition de 1 mn à plusieurs jours avec des doses allant de 1 mSv aux valeurs les plus faibles a montré que la fonction de réponse en équivalent dose des films BaFBr:Eu²⁺ suit une loi linéaire avec un seuil de détection de 1,5 μ Sv. Ce très faible seuil prouve la grande sensibilité des films photostimulables (10 fois plus sensible que les films thermoluminescents LiF et 130 fois par rapport aux films photographiques Agfa type PSI), d'où l'intérêt de les introduire en dosimétrie environnementale et personnelle. Au niveau de la réglementation, la norme NF ISO 1757 de décembre 1998 prescrit les caractéristiques physiques des dosimètres photographiques individuels et les méthodes d'essai correspondantes. Elle s'applique aux dosimètres ayant une gamme de mesure minimale de 200 μ Sv à 1 Sv et qui sont utilisés pour déterminer les doses individuelles des travailleurs exposés aux rayons X, γ et β .

- *Fonction de réponse neutrons* : La dosimétrie des neutrons est plus délicate que celle des photons ou des particules chargées. Pour déterminer expérimentalement la fonction de réponse et le seuil en équivalent de dose pour les neutrons rapides des films photostimulables BaFBr:Eu²⁺, des irradiations à l'aide de sources ²⁴¹Am-Be et ²³⁹Pu-Be ont été réalisées. La détection s'est effectuée par l'intermédiaire des particules secondaires émises par un convertisseur en polyéthylène. Il était donc nécessaire de s'assurer que l'épaisseur de polyéthylène utilisée (1,2 mm) placée entre deux films IP₁ et IP₂, réalise un équilibre protonique pour les neutrons de 2 à 10 MeV. Pour ce faire, nous avons réalisé une étude d'optimisation de l'épaisseur du convertisseur par modélisation Monte Carlo en deux étapes : à l'aide du code MCNP (Monte Carlo N-Particles) pour déterminer le nombre de protons générés via les diffusions élastiques (n, p) dans l'épaisseur considérée, puis par le programme « ProT » élaboré au laboratoire pour calculer le nombre des protons sortant de cette épaisseur. Ces résultats sont à comparer avec la nouvelle version du code MCNPX qui inclut l'interaction des particules chargées avec la matière. Les résultats des simulations montrent que, pour les

neutrons de 10 MeV, l'équilibre protonique est obtenu à partir d'une épaisseur de 1 mm de polyéthylène. Cet équilibre est également réalisé pour toutes les énergies inférieures. Les grandeurs physiques d'équivalent de dose ambiante $H^*(10)$ et personnelle $H_p(10)$ sont obtenues en faisant la différence des réponses IP_2 et IP_1 , dans le but d'éliminer une partie du signal détecté dû au bruit de fond provenant des rayons γ , et des interactions neutroniques, dans le détecteur et dans son environnement immédiat.

L'étude comparative de la réponse du dosimètre neutronique à base des films photostimulables $BaFBr:Eu^{2+}$, déterminée expérimentalement et par modélisation Monte Carlo, confirme la linéarité de la fonction de réponse en équivalent de dose aux neutrons rapides d'énergie comprise entre 2 et 10 MeV. Elle montre une meilleure sensibilité par rapport aux détecteurs usuels (DSTN et TLD) : le seuil en équivalent de dose neutrons se situe à 23 μ Sv par rapport à 75 μ Sv pour le PN3 [Bel04].

L'évaluation du seuil de détection en énergie nécessite la production de neutrons monoénergétiques. A cette fin, la réaction nucléaire ${}^7Li(p, n){}^7Be$ a été réalisée auprès de l'accélérateur 4 MV du laboratoire PHASE de Strasbourg en variant l'énergie incidente de 2,5 MeV à l'énergie seuil de la réaction. L'analyse des dosimètres positionnés à différents angles de détection a permis de remonter au seuil en énergie neutron, soit 173 keV. Les distributions angulaires en énergie ont été calculées à partir de la cinématique de réaction et comparées aux calculs Monte Carlo effectués à l'aide du code TARGET développé au PTB (Physikalisch Technische Bundesanstalt) en Allemagne. Ce laboratoire est la référence mondiale en dosimétrie neutrons multiplages.

• *Estimation de l'équivalent de dose personnel* : Dans le but d'introduire ce système de films photostimulables $BaFBr:Eu^{2+}$ dans la dosimétrie passive personnelle, le dosimètre mis au point a été irradié dans des conditions réelles d'utilisation sous faisceaux de neutrons rapides et thermiques auprès des installations de référence ISO de l'IRSN (Institut de Radioprotection et Sûreté Nucléaire) à Cadarache. Les irradiations ont été effectuées à différents angles de 0° à 60° sur un fantôme PMMA qui simule le corps humain selon les normes ISO 4037-3 (1999). Il ressort de cette étude que la dépendance angulaire est moins importante pour la source ${}^{241}Am-Be$ ($\langle E_n \rangle = 4,4$ MeV) que celle de la source ${}^{252}Cf$ ($\langle E_n \rangle = 2$ MeV). En effet, la réponse R_{Hp} en terme de $[PSL/mm^2]/[Hp(10,\alpha)]$ à la source ${}^{241}Am-Be$ diminue de 53 % quand l'angle

d'incidence varie de 0° à 60° , par contre celle au ^{252}Cf diminue de 86 %. Cela s'explique par la différence entre les énergies moyennes des deux sources, donc plus l'énergie augmente moins la dépendance angulaire est importante. Les réponses d'équivalent de dose personnel moyennes sont $10867 \text{ mSv}^{-1}.\text{PSL}.\text{mm}^{-2}$ et $7650 \text{ mSv}^{-1}.\text{PSL}.\text{mm}^{-2}$, égales respectivement à 0,79 et 0,75 de la réponse à des neutrons d' $^{241}\text{Am-Be}$ et du ^{252}Cf à l'incidence normale. Ces résultats concordent avec ceux obtenus par les DSTN, soit 0,7 pour la source de ^{252}Cf utilisant des dosimètres à base de CR-39. Dans des mesures usuelles de neutrons, un facteur de calibration f_c en fonction de l'angle d'incidence et de l'énergie est calculé par l'inverse de la réponse moyenne $1/\langle R_{\text{Hp}} \rangle$ pour les deux sources $^{241}\text{Am-Be}$ et ^{252}Cf . Ces facteurs f_c permettant d'estimer l'équivalent de dose personnel sont donc respectivement $9,20 \times 10^{-5}$ et $13,07 \times 10^{-5} \text{ mSv}.\text{PSL}^{-1}.\text{mm}^2$ pour les sources $^{241}\text{Am-Be}$ et ^{252}Cf .

- *Dosimétrie alpha* : La deuxième partie de ce mémoire concerne l'étude de la réponse aux particules α des films photostimulables. Il a été démontré pour la première fois la possibilité de détecter des particules α émises par une source ponctuelle isotrope d' ^{241}Am . Les résultats montrent que la densité surfacique du signal PSL suit une loi inversement proportionnelle à la distance source-détecteur. Les variations de l'énergie résiduelle en fonction du parcours des particules α dans l'air, nous ont permis de déterminer un seuil de détection en énergie de 1,4 MeV. L'angle critique d'enregistrement a également été étudié; les films photostimulables présentent un angle critique moyen de l'ordre de 85° comparé aux angles critiques des DSTN (45° et 60° respectivement pour CR-39 et LR115). Pour calculer la probabilité de détecter des particules α dans le film $\text{BaFBr}:\text{Eu}^{2+}$, nous avons effectué un étalonnage en utilisant un détecteur à barrière de surface à la place d'un film photostimulable dans les mêmes conditions expérimentales. Des études préliminaires concernant la détection du signal radon et de ses descendants ont été réalisées pour caractériser la sensibilité du système. Elles ont été contrôlées par des détecteurs témoins AlphaGUARD, Electret et DSTN (LR115). La détection des particules α ouvre des perspectives prometteuses pour l'application de cette nouvelle technique à la détection du signal radon, qui constitue un sujet d'actualité pour la santé humaine.

En conclusion, les films photostimulables BaFBr:Eu²⁺ présentent de nombreux avantages : la simplicité et la rapidité d'utilisation. Ils ne nécessitent pas de traitement chimique et la durée de lecture est plus courte (2,5 min) comparativement aux DSTN (7 heures). Les réponses sont reproductibles avec une bonne sensibilité et une large gamme dynamique. De plus, ces films sont flexibles, effaçables et réutilisables, ce qui présente un avantage sur le plan économique. La correction de la décroissance spontanée dans le BaFBr:Eu²⁺ nous a permis de franchir l'inconvénient de la perte de signal qui se produit pendant l'irradiation et entre la fin de l'irradiation et la première lecture. Il est donc concevable d'introduire ces films photostimulables dans le domaine de la dosimétrie ambiante et personnelle ainsi pour les mesures de la radioactivité naturelle comme l'exposition radon.

Références

- Alp98** User Manual,
Portable Radon Monitor AlphaGUARD,
Genitron Instruments, Germany, (1998)
- Att86** H.Frank, Attix,
Introduction to radiological physics and radiation dosimetry.
A Wiley-Interscience Publication, New York Chichester Brisbane Toronto
Singapore (1986)
- Bar85** D. T. Bartlett, J. D. Steel,
AERE R 11926, CENDOS Report 1985-02, UKAEA-Harwell. (1985).
- Bau85** A. Baur,
Protection contre les rayonnements. Aspects physiques et méthode de
calcul.
C.E.A. (1985)
- Bel04** A. Belafrites, D. Mouhssine, A. Nachab, A. Nourreddine, A. Pape, A.
Boucenna, F. Fernández, Radiat. Prot. Dosim., (1-4) (2004) 111
- Ber78** M.J. Berger, J.H. Hubbell,
Report NBSIR 87-3597 National Bureau of Standards, Gaithersburg, MD
(1978)
- Bet33** H.A. Bethe,
Stosstheorie, Handbuch der Physik, 24 (1933) 491
- Bie03** J.P. Biersack, J.F. Ziegler,
Code SRIM-2003. <http://www.srim.org/SRIM/SRIM2003.html>
- Boh93** J. Bohm,
ICRU Report 47 – A breakthrough,
Radiat. Prot. Dosim. 46, 3, (1993) 147
- Bou00** A. Boukhair,
Thèse d'Université Chouaïb Doukkali - El Jadida Maroc, (2000)
- Bou98** T. Bouassoule,
Thèse de doctorat de l'Université Autonome de Barcelone, (Espagne),
(1998)
- Bri00** J. F. Briesmeister,
MCNP – A general Monte Carlo N-Particle transport code, LA-13079-M,
(2000)
- Bux86** M. Buxerolle, M. Massoutie, J. Kurkjian
Rapport IRSN de Cadarache (1986)
- Car78** B. G. Cartwright, E. K. Schirk, P. B. Price,
Nucl. Instr. And Meth. 153 (1978) 457

- Cei98** CEI 61526. Instrumentation pour la radioprotection – Mesure des équivalents de dose individuels Hp(10) et Hp(0,07) pour les rayonnements X, gamma et bêta – Dosimètre à lecture directe d'équivalent de dose et/ou de débit d'équivalent de dose, 1998
- Coh88** C. Cohen-Tannoudji, J. Dupont-Roc, G. Grynberg, Processus d'interaction entre photons et atomes. Savoirs Actuels (1988)
- Cur68** L. A. Currie, Anal. Chem. 40 (1968) 586
- Den97** DenOptix digital imaging system. Dentsply Detrey, Montigny le Bretonneux, France
- Die94** G. Dietze, G. Menzel, Aspects of ICPR 60 and ICRU 47 relevant to individual monitoring. Rad. Prot. Dosim., vol 54, No3/4 (1994) 167
- Dur87** S. A. Durrani, R. K. Bull Solid State Nuclear Track Detection Pergamon Press (1987)
- Ele95** E-Perm® system Manual, Genitron Instruments, Germany, (1995)
- Fer04** F. Fernandez, M. Bakali, K. Amgarou, A. Nourreddine, D. Mouhssine, Radiat. Prot. Dosi. 110 (2004) 701
- Fer91** F. Fernandez, C. Domingo, C. Baixeras, E. Luguera, M. Zamani, M. Debeauvais, Nucl. Tracks Radiat. Meas. 19(1-4) (1991) 467
- Fer96** F. Fernandez, T. Bouassoule, C. Domingo, E Luguera, C. Baixeras, Radiat. Prot. Dosi. 66 (1996) 343
- Fle63** R. L. Fleischer, P. B. Price Science 140 (1963) 1221
- Fle64** R. L. Fleischer, P. B. Price, R. M. Walker, E. L. Hubbard, Phys. Rev. 133A (1964) 1443
- Fle65** R.L Fleischer, P. B Price, R.M Walker, J. Appl. Phys. 36 (1965) 3645
- Fle75** R. L. Fleischer, P. B. Price, R. M. Walker, Univ. of California Press, Los Angeles, (1975)
- Fle98** R. L. Fleischer, Tracks to innovation, nuclear track in science and technology

- Springer (1998)
- Gar76** D. L. Garber, R. Kinsey,
Neutron cross sections, BNL. 325 (1976)
- Hen71** R.P. Henke, E.V. Benton,
Nucl. Instr. Meth. 97 (1971) 483
- Iae70** International Atomic Energy Agency. Nuclear accident Dosimetry systems.
Panel Proc. Series, IAEA, Vienna (1970)
- Icr73** ICRP 21,
Data for protection against ionising radiation from external sources.
Oxford Pergammon Press (1973)
- Icr77** ICRP 26,
Recommendations of the international commission on radiological
protection.
Report 26 (1977)
- Icr85** ICRU 39,
Determination of dose equivalents resulting from external radiation
sources.
Report 39. ICRU publications (1985)
- Icr88** ICRU 43,
Determination of dose equivalents resulting from external radiation
sources.
Part II. Report 43. ICRU publications (1988)
- Icr91** ICRP 60,
1990 recommendations of the international commission on radiological
protection.
Publication 60 (1991)
- Icr92** ICRU 47,
Measurement of dose equivalents from external photon and electron
radiations.
Report 47. ICRU publications (1992).
- Icr93** CIPR,
Recommandations 1990 de la Commission Internationale de Protection
Radiologique.
Pergammon Press (1993)
- Icr96** ICRP 74,
Conversion coefficients for use in radiological protection against external
radiation.
ICRP Publication 74 (1996)

- Jef97** JEF-PC,
O.E.C.D/NEA Data Bank, version 30 Oct. (1997)
- Jou92** Journal officiel de la République française n° 1420 (1992),
Protection contre les Rayonnements Ionisants
- Kno00** G.F Knoll,
J. Wiley and Sons 3rd edition (2000)
- Kur35** Kurtchatov et al,
Zh. Eksp. Teo. Fiz. N°5 (1935) 659
- Lor73** E. A. Lorch,
Int. J. Radiat. Isot. 24 (1973) 585
- Mem93** F. Membrey, M. Fromm, EL Rahamany et A. Chamdaudet,
Nucl. Tracks Radiat. Meas. Vol 21, N° 3 (1993) 417
- Mey97** P. Meyer, M. Jouffroy, F. Membry, M. Fromm, A. Chambaudet,
Rad. Prot. Dosim. 74 (1997) 75
- Mon66** G. Monod-Herzen,
Luminescence l'électron et la lumière matière et photoluminescence,
Ed. Dunod, (1966)
- Mou02** D. Mouhssine, A. Nourreddine, A. Nachab, A. Pape,
Journées des jeunes chercheurs, Aussois 9 au 13 décembre (2002)
- Mou04** D. Mouhssine, A. Nourreddine, A. Nachab, A. Pape,
Phys. Chem. News 16 (2004) 61
- Mou05a** D. Mouhssine, A. Nourreddine, A. Nachab, A. Pape, F. Fernandez,
Nucl. Instr. Meth. B 227 (2005) 609
- Mou05b** D. Mouhssine, A. Nourreddine, A. Nachab, F. Fernandez, C. Domingo, H.
Muller, K. Amgarou, A. pape,
Radiat. Meas. (2005) à paraître
- Nou99** A. Nourreddine, K. Azkour, M. Benjelloun, A. Boukhair, M. Fahad, A.
Pape,
J. Env. Rad. 42 (1999) 101
- Oik97** T. Oikawa, A. Taniyama, D. Shindo,
Ionizing Radiat. 23 (1997) 97
- Pap98** A. Pape, J.C. Adloff, A. Haessler, A. Hoernel, A. Nourreddine, D. Oster, D.
Weidmann,
Nucl. Instr. Meth. B143 (1998) 557
- Phy03** http://physics.sci.geneseo.edu/nuke/gamma_ray_spectra.htm

- Pri62** P. B. Price, R. M. Walker,
J. Appl. Phys.33 (1962) 3407
- Qua99** Quantity-One User Guide, Bio-Rad Technical Service Department, Marnes
La Coquette, France
- Sal03** M. Salis,
J. Lumin. 104 (2003) 17
- Sch92** H. Schuhmacher,
Radiat. Prot. Dosim. Vol. 40, N° 2 (1992) 85
- Sie65** K. Siegbahn,
Alpha, beta and gamma-ray spectroscopy,
North Holland Publishing Company (1965)
- Sie94** B. R. L. Siebert, H. Schumacher,
Radiat. Prot. Dosim. Vol. 54, N° 3-4 (1994) 231
- Som80** G. Somogyi,
Nucl. Inst. Meth. 173 (1980) 21
- Tak02** K. Takahashi,
Imaging plate,
Fujifilm Technical Review 14 (2002)
- Tak84** K. Takahashi, K. Kohda, J. Miyahara, Y. Kanemitsu, K. Amitani, S.
Shinoya,
J. Lum. 266 (1984) 31
- Tan99** S. Taniguchi, A. Yamadera, T. Nakamura, K. Fukuda,
Radiat. Prot. Dosim. 85 (1999) 7
- Tar02** Target code (2002)
Physikalisch Technische Bundesanstalt, Allemagne
- Tem90** R.H. Templer,
Nucl. Inst. Meth. in Physics Research A300 (1990) 357
- Var85** J. C. Vareille, S. Sadaka, J. L. Teyssier,
13th int. Conf. On SSNTD, Rome (1985)
- Von89** H. Von Seggern,
Cryst. Latt. Def. and Amorph. Mat. 18 399 (1989)
- Yam93** Yamadera, E. Kim, T. Miyata, T. Nakamura,
Radioisot. 42 (1993) 676

Imprimé à l'Institut de Recherches Subatomiques
23 rue du Loess
BP 28 - 67037 Strasbourg Cedex 2