



HAL
open science

Nouvelle approche de la dosimétrie des rayonnements ionisants par mesure de fluorescence, selon la technique du comptage de photon unique, corrélé en temps, à l'échelle nanoseconde

Till Sohier

► **To cite this version:**

Till Sohier. Nouvelle approche de la dosimétrie des rayonnements ionisants par mesure de fluorescence, selon la technique du comptage de photon unique, corrélé en temps, à l'échelle nanoseconde. Instrumentations et Détecteurs [physics.ins-det]. Université de Strasbourg, 2011. Français. NNT : . tel-00677732

HAL Id: tel-00677732

<https://theses.hal.science/tel-00677732>

Submitted on 9 Mar 2012

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.

UNIVERSITÉ DE STRASBOURG

THÈSE

pour obtenir le grade de

DOCTEUR de l'Université de Strasbourg

Spécialité : **Physique**

École Doctorale de Physique et Chimie-Physique (ED182)

**Institut Pluridisciplinaire Hubert Curien-Département de
Recherches en Subatomique-Chimie Nucléaire**

présentée et soutenue publiquement

par

Till SOHIER

le 16 décembre 2011

Titre:

**Nouvelle approche de la dosimétrie des rayonnements
ionisants par mesure de fluorescence, selon la technique du
comptage de photon unique, corrélé en temps, à l'échelle
nanoseconde**

Membres du Jury

Dr. Gérard BALDACCHINO, Ingénieur-chercheur CEA Saclay	Rapporteur externe
Pr. Massoud FATTAHI, Professeur à l'École des Mines de Nantes	Rapporteur externe
Pr. Abdel-Mjid NOURREDDINE, Professeur à l'Université de Strasbourg	Examineur
Pr. Jean-Marc JUNG, Professeur à l'Université de Strasbourg	Directeur de thèse
Pr. Rémi BARILLON, Professeur à l'Université de Strasbourg	Co-directeur de thèse
Dr. Nakahiro YASUDA, Senior-Researcher au NIRS (Japon)	Invité

Table des matières

Table des matières	iii
Table des figures	1
Remerciements	5
Introduction Générale	7
1 Les processus de scintillation	11
1 Introduction	11
2 Perte d'énergie des rayonnements ionisants et dose radiale	12
2.1 Interactions photon-matière	12
L'effet photoélectrique	12
L'effet compton	14
2.2 Interactions ion-matière	16
Pic de Bragg et distribution spatiale d'un faisceau d'ions	18
2.3 Interactions électron-matière	21
2.4 Electrons secondaires et dose radiale	23
2.5 Quantité d'électrons secondaires émise par le passage d'une particule ionisante	24
2.6 Dose radiale : différentes approches	25
Approche de Katz	25
Approche de Michaelian et Menchaca-Rocha	26
Approche de Krämer	26
Approche de Voltz	28
3 Mécanismes de luminescence	32
3.1 Relaxation des états excités	32
Nature des états moléculaires excités	32
Composante rapide	34
Composante lente	35
3.2 Autres modèles de scintillation en fonction du TLE	38
4 Rappels sur les scintillateurs organiques	40
5 TLE et effets radiobiologiques (RBE)	42
6 Conclusion	43

2	Approche expérimentale	45
1	Introduction	45
2	Principe de mesure	46
2.1	Mesure par comptage de photon unique corrélée en temps (TCSPC)	46
	Incertitudes	47
2.2	Excitation par particules chargées	48
2.3	Excitation par photons	52
3	Développement d'une plateforme multimodale de mesure	55
	Validation des résultats obtenus par TCSPC	56
4	Application : Etude de la cinétique de recombinaison des charges gé- minées	60
4.1	Discrimination neutron/ γ	60
	Projet Neutromania	60
	Les mécanismes de la discrimination	63
4.2	Influence de la phase sur les déclins de scintillations	64
5	Conclusion	65
3	Dosimétrie par TCSPC	67
1	Introduction	67
2	Radiothérapie et hadronthérapie	70
2.1	Radiation-thérapie	70
2.2	L'hadronthérapie	71
2.3	Dosimétrie existante	72
	Dosimétrie de la radiation-thérapie	73
	Dosimétrie en hadronthérapie	74
	Protocole de dosimétrie utilisé à l'HIMAC	75
3	Dosimétrie par fluorescence sous faisceau continu	77
3.1	Fluorescence mesurée de façon continue	77
	Résultats antérieurs	77
	Limitation de la méthode de mesure directe	79
3.2	Mesure de fluorescence par coïncidence	80
	Prototype et condition expérimentale	80
	Signal type observé	81
	Résultats expérimentaux dans le PMMA	83
3.3	Développement d'un prototype de dosimètre en temps réel	86
	Résultats expérimentaux obtenus par irradiation gamma	87
	Méthode pour supprimer le rayonnement Čerenkov	91
	Résultats expérimentaux obtenus par irradiation X	93
4	Interprétation des résultats obtenus par TCSPC	93
	<i>Discussion-Conclusion</i>	97
	Bibliographie	103

4	Annexe	111
1	Technique du photoélectron unique	111
2	principe de franck-condon	112
3	caractéristique technique du matériel utilisé	113

Table des figures

1.1	Importance relative des différents mécanismes d'interaction en fonction de l'énergie incidente des photons dans l'eau.	13
1.2	Illustration de l'effet compton	14
1.3	Section efficace de l'énergie Compton détectée lors du passage de photons d'énergie initiale de 0.5, 1 et 2 MeV.	15
1.4	Coefficient d'atténuation massique des photons dans le PVT en fonction de leur énergie.	16
1.5	TLE de protons, alphas et électrons dans l'eau et dans un scintillateur de référence (le PVT), utilisé pendant cette étude, obtenus à l'aide de la base de données NIST en fonction de l'énergie	19
1.6	TLE de protons et alphas, obtenus à l'aide de l'application SRIM, en fonction de la distance parcourue, à différentes énergies dans le PVT .	19
1.7	Z_{eff} en fonction de l'énergie de la particule incidente.	20
1.8	Variation de la largeur σ de la distribution radiale en fonction de la profondeur r_{rad} , pour des ions carbone et des photons	21
1.9	Pouvoir d'arrêt des électrons dans l'eau (ESTAR)	23
1.10	Densité de dépôt d'énergie d'ions ^{20}Ne d'énergie 800 MeV dans du CsI en fonction de l'éloignement à la trace initiale selon le modèle développé par MM	27
1.11	Illustration de la dose déposée par les électrons secondaires en fonction de leurs distances à la trace de la particule incidente selon le modèle de Katz (équation 1.31) [1]	28
1.12	Illustration de la dose déposée par les électrons secondaires en fonction de leurs distances à la trace de la particule incidente selon le modèle de Krämer (équation 1.36) [2]	29
1.13	Mécanismes de transfert d'énergie dans un scintillateur plastique composé d'une matrice dopée à l'aide de molécules scintillantes [3]	33
1.14	Illustration du diagramme de Perrin-Jablonski	35
1.15	Molécule de Paraterphenyl	42
1.16	Probabilité de survie d'un type de cellule en fonction de la dose reçue pour des protons et des rayons X [4]	43
2.1	Reconstruction de l'intensité de fluorescence, en fonction du temps, à l'aide de la technique TCSPC	47

2.2	Schéma de principe de fonctionnement du générateur à impulsions	49
2.3	Signal électrique obtenu en analysant le système générateur impulsional dit de "lampe flash"	50
2.4	Illustration de l'expérience par particules chargées menée au sein de l'INESS	50
2.5	Photographies d'illustration de l'expérience menée avec des particules chargées au sein de l'INESS	51
2.6	Codage avec un analyseur multicanal du signal à la sortie des différents PM (<i>start</i> en haut, <i>stop</i> en bas)	53
2.7	Dispersion temporelle du signal du photomultiplicateur	54
2.8	Illustration de l'expérience par excitation continue	55
2.9	Photographie de l'expérience d'irradiation gamma : 1) PM start ; 2) PM stop ; 3) chaîne d'acquisition électronique	55
2.10	Plan en vue isométrique de la plateforme de mesure multimodale	56
2.11	Photographie d'illustration de la plateforme développée pour L'HIMAC : 1) PM stop ; 2) PM start ; 3) échantillon	57
2.12	Comparaison entre les déclin de fluorescence mesurés, selon deux méthodes, du PVT (film $10\mu m$) excité par des particules alphas de 2MeV	58
2.13	Comparaison entre les déclin de fluorescence mesurés, selon deux configuration du Paraterphényle excité par des particules alphas de 2MeV	59
2.14	Analyse de la loi de décroissance de la composante lente	59
2.15	exemple de molécule utilisée	62
2.16	Comparaison du déclin de fluorescence dans différents matériaux sous diverses sources d'irradiation	63
2.17	Déclin de fluorescence du PVT sous différentes sources d'irradiations	64
2.18	Déclin de fluorescence d'un liquide ionique sous différentes phases (liquide-solide)	65
2.19	Analyse de la loi de décroissance de la composante lente	66
3.1	Illustration des différentes échelles de temps sollicitées	69
3.2	Illustration des différents protocoles de la méthode EPID	75
3.3	Photographie de la chambre d'ionisation utilisée au HIMAC	76
3.4	Courbe de calibration pour le faisceau utilisé. Cette courbe est fournie par le NIRS, des dégradeurs de PMMA permettent de réduire l'énergie du faisceau.	76
3.5	Illustration des résultats obtenus par BROGGIO et all. (2007)	77
3.6	Illustration des résultats obtenus avec une méthode directe de mesure de la fluorescence	79
3.7	illustration des mécanismes de saturation du mode de comptage direct	80
3.8	Illustration du dispositif expérimental utilisé au HIMAC	81

3.9	Exemple de déclin brut que l'on a obtenu lors de l'irradiation par des Héliums	82
3.10	Mesure de l'effet Čerenkov en l'absence de scintillateurs	82
3.11	Schéma de l'expérience menée au HIMAC	83
3.12	Photographie du dispositif permettant d'intercaler des plaques de PMMA permettant de reconstruire la dose en profondeur	84
3.13	Déclin de fluorescence du PVT (BC-418) sous irradiation d'hélium à différents dépôts d'énergie	84
3.14	Comparaison des résultats obtenus entre la méthode par TCSPC et une chambre d'ionisation sous irradiation d'un faisceau d'hélium accéléré à 150 MeV/u	85
3.15	Comparaison des résultats obtenus entre la méthode par TCSPC et une chambre d'ionisation sous irradiation d'un faisceau de carbone accéléré à 290 MeV/u	85
3.16	Courbe de calibration obtenue pour une irradiation carbone	86
3.17	Illustration du prototype utilisé pour la dosimétrie	87
3.18	Signal de coïncidence que l'on obtient à l'aide du prototype basé sur les fibres optiques	88
3.19	Résultats obtenus au NIRS avec une source de ^{60}Co	89
3.20	Résultats obtenus au NIRS avec une source de ^{137}Cs	89
3.21	Comparaison de mesure de dose avec trois méthodes différentes.	90
3.22	Comparaison de la cinétique de comptage entre la méthode directe et la méthode en coïncidence	91
3.23	Comparaison des signaux de coïncidence mesurée avec et sans scintillateur	92
3.24	Comparaison de la mesure faite par une chambre d'ionisation et le <i>dosadron</i> par mesure directe et par TCSPC. Pour chaque série de mesure l'intensité appliquée à l'ampoule de rayons X varie : 25, 32, 40 et 50 mA	93
3.25	Analyse de la mesure	94
4.1	Courbes de configuration électronique et de transition électronique $\psi_0 \rightarrow \psi_1$ pour une molécule diatomique	114
4.2	Caractéristique technique du Photomultiplicateur XP2020 (<i>source : photonis</i>)	115
4.3	Caractéristique technique du Photomultiplicateur R3235-01 (<i>source : hamamatsu</i>)	116
4.4	Caractéristique technique du BC-418 sources : http://www.detectors.saint-gobain.com	117
4.5	Mécanismes d'émission de photon de fluorescence au sein d'une fibre scintillante soumise à un flux de particules source : www.detectors.saint-gobain.com	117

4.6 Caractéristique technique des fibres single- et multi- clad *source* :
www.detectors.saint-gobain.com 118

4.7 Caractéristique technique des fibres bcf10 et bcf12 *source* :*www.detectors.saint-gobain.com* 118

4.8 Caractéristique technique de la chambre d’ionisation utilisée pour l’ex-
 position gamma soucre : *www.standardimaging.com* 119

4.9 Monomère couramment utilisé comme matrice dans les scintillateurs
 plastiques 119

Remerciements

Ce travail a été effectué dans le groupe de chimie nucléaire du département de recherches subatomiques au sein de l'Institut Pluridisciplinaire Hubert Curien dirigé par la directrice Christelle Roy.

Je tiens à remercier mon directeur et co-directeur de thèse les professeurs Jean-Marc Jung et Rémi Barillon. Merci de m'avoir fait confiance en m'accueillant au sein du laboratoire de chimie nucléaire. Cette période m'a permis, avec leur aide, de me confronter aux doutes, aux interrogations et à la remise en question que demande le travail de chercheur ; leur présence et leurs conseils m'ont permis de surmonter ces obstacles et prendre confiance en moi.

Merci à mes rapporteurs de thèse le docteur Gérard Baldacchino, le professeur Massoud Fattahi et le professeur Abdel-Mjid Nourreddine pour avoir eu la patience de lire ce manuscrit.

Je tiens à remercier spécialement Mélodie Munier pour sa disponibilité et sa rigueur scientifique.

Merci à l'ensemble de l'équipe de chimie nucléaire : Isabelle Billard pour ses petits pains de victoire après ses week-end d'échec, Olivier Courson pour sa disponibilité, Mireille Delnero pour sa présence et sa sympathie en face de mon bureau, Catherine Galindo pour sa sympathie, Sylvia Georg pour son organisation impeccable de tous les événements festifs du labo, Hubert Gress pour les histoires de la vie du labo, Christophe Hoffmann pour son talent à faire des petites boîtes métalliques, Quentin Raffy pour en avoir suer sur les polymères conducteurs, Valérie Mazan pour ses récits de trekking et Mauricio Torres le nouveau venu de l'équipe (courage plus que trois ans...).

Merci à l'équipe du 4 MeV, Yann Le Gall pour son faisceau impeccable, ses conseils pratiques et les pièces mécaniques et Dominique Muller pour ses conseils avisés.

Merci à Denis Öster du RAMSES de m'avoir fourni un accès aux différentes sources gammas utilisées durant ce travail.

Merci à Philippe Choquet pour sa précieuse collaboration dans les mesures sous irradiations de rayons X.

I would like to express my gratitude to Doctor Nakahiro Yasuda who welcomed me to his research group as a pre-postdoc and gave me the opportunity to learn and acquire new scientific skills in hadronic radiations. Many thanks for giving utmost freedom to perform experiments in your laboratory and also for granting ample time to complete my thesis. I extend my hearty thanks to my present colleagues Dr. Satoshi Kodaira, Hisashi Kitamura, Dr. Yukio Uchihori and to the entire NIRS Group fellows for their constant support and encouragement. I would like also to express my gratitude to Professor Tomoya Yamauchi and all his students from Graduate School of Maritime Sciences in Kobe University, for their nice summer session.

At last but not least, je me dois de remercier ma famille qui m'a permis de garder un équilibre indispensable à la bonne conduite de cette aventure. Merci à ma mère, à mon père et à mon frère qui m'ont apporté leur soutien et leur affection. Une dédicace spéciale à Chacha pour ses gâteaux au chocolat qui m'ont permis de passer l'hiver sans tomber malade. Enfin merci à tous ceux que je ne cite pas ici, et ils sont nombreux, pour m'avoir supporté durant toute cette période.

Introduction Générale

L'étude des rayonnements ionisants et de leurs effets sur la matière trouve son origine dans la découverte des rayons X, par Wilhelm Röntgen, en novembre 1895. Se passionnant pour l'étude des rayons cathodiques (électrons), découverts par Johan W. Hittorf en 1869, et reproduisant l'expérience de William Crookes, il était alors parvenu à rendre luminescent un écran de platinocyanure de baryum. Guère plus d'un mois après cette découverte et après avoir effectué plusieurs expériences montrant l'absorption des rayons X par des matériaux de densités différentes, il réalise le premier cliché radiographique de la main de son épouse. Les résultats de ses travaux furent très rapidement utilisés à des fins d'imagerie médicale, puisque deux semaines après le premier cliché de Röntgen, Otto Wahlkoof réalisa la première radiographie dentaire, suivie deux ans plus tard par l'ouverture du premier laboratoire radiologique hospitalier par le pédiatre Antoine Béclère. Parallèlement aux études menées sur les rayons X, la découverte inattendue de la radioactivité naturelle, par Henri Becquerel, en 1896, aiguise la curiosité des scientifiques, parmi lesquels Marie Curie qui, dès 1897, consacre son travail de thèse à mesurer le pouvoir ionisant des rayons uraniques, s'aidant, pour cela, d'un électromètre piézoélectrique développé par son époux. En 1898, travaillant à la séparation de la pechblende, tous deux, aidés par Gustave Bémont, seront à l'origine de la découverte du Polonium et du Radium.

Dès 1902, la première tumeur radio-induite a été décrite par Frieben chez un travailleur manipulant, à mains nues, des tubes à rayons X. Dans la même période, furent répertoriés les premiers cancers pulmonaires radio-induits chez les personnes travaillant dans les mines d'uranium. Le premier décès, lié à une surexposition aux rayons X, survint en 1904 dans le cadre d'une radio-thérapie. Malgré les dangers évidents liés à l'utilisation des rayonnements ionisants, ce n'est qu'en 1920 qu'a apparu, en France, la première mise en garde contre l'utilisation du Radium (Osteomyélite du maxillaire chez les ouvrières de l'horlogerie) et, en 1928 que la Commission Internationale de Protection Radiologique (CIPR), nouvellement fondée, émit ses premières recommandations en matière de limite d'exposition professionnelle. C'est également à cette époque qu'apparaissent les premières définitions de grandeurs dosimétriques, telle que la dose, ainsi que les premières études mettant en évidence une corrélation directe entre la dose reçue et les effets radio-induits. Depuis cette époque, la notion de dose est restée, à tort ou à raison, la première des grandeurs d'intérêt dans le domaine de la radioprotection, par exemple lors d'études épidémiologiques, mais aussi la grandeur la plus évoquée dans les études liées à la compréhension des effets des

rayonnements à l'échelle microscopique, en radiochimie et en radiobiologie.

En 1930, Hans A. Bethe, jeune physicien théoricien allemand de 24 ans, né à Strasbourg, étudia, pour la première fois et de façon très détaillée, la perte d'énergie dans la matière d'une particule lourde de charge Z lors de son interaction avec un milieu de potentiel moyen d'ionisation I . Il fonde son modèle sur l'existence de deux contributions au ralentissement : d'une part, le ralentissement nucléaire, élastique et à grand paramètre d'impact (Diffusion coulombienne de Rutherford); d'autre part, le ralentissement électronique, inélastique, attribué aux ionisations des atomes cibles. L'évolution de l'énergie, dE , d'un ion primaire, par unité de distance parcourue, dx , dans la matière, est alors décrite par un taux de perte, dE/dx , plus ou moins important, caractérisé par une valeur moyenne appelée pouvoir d'arrêt. Cette première approche, vérifiée pour des énergies initiales supérieures à 0,3 MeV, fut corrigée en 1934, par Félix Bloch, afin de palier à une sous estimation du pouvoir d'arrêt aux basses énergies. Depuis, l'équation de Bethe-Bloch a subi de nombreuses corrections. Le pouvoir d'arrêt reste aujourd'hui encore, la grandeur de référence utilisée dans tous les domaines de l'interaction des particules chargées avec la matière, notamment dans l'étude des relations dose-effet, y compris à l'échelle microscopique. Ceci n'est pas sans poser d'importants problèmes, car le pouvoir d'arrêt reste une valeur moyenne qui ne reflète que très partiellement la valeur de l'énergie déposée localement sur un atome ou une molécule.

En 1934, s'inspirant du modèle de Bethe-Bloch et de sa capacité à prédire le nombre de paires d'ions produits dans un milieu par le passage d'un rayonnement ionisant, William L. Bragg et Louis Gray, établissent la théorie de la cavité (théorie de Bragg-Gray), laquelle stipule que la quantité d'ionisations produite dans une cavité remplie d'un gaz et placée au sein d'un milieu irradié, est proportionnelle à l'énergie absorbée par ce même milieu. Cette théorie est à l'origine du développement de la première chambre d'ionisation dont le principe de fonctionnement repose sur la collecte, à l'aide d'un champ électrique intense, des charges non recombinaisons produites par ionisation. L'observable est alors une charge totale, mesurée à l'aide d'un électromètre, ou encore, un courant de charges s'écoulant au travers d'une résistance. En principe, ces observables ne reflètent que l'énergie absorbée par ionisation et n'intègrent pas celle absorbée par excitation (non-ionisante), ce qui rend les chambres d'ionisation peu performantes aux très basses énergies (pic de Bragg), par exemple pour des ions incidents ou les électrons secondaires de fin de parcours de quelques eV. Très utilisée dans les études épidémiologiques réalisées après les attaques américaines sur les populations civiles d'Hiroshima et Nagasaki, la chambre d'ionisation gazeuse reste, aujourd'hui encore, l'outil de référence de tous les protocoles dosimétriques, aussi bien en radioprotection qu'en dosimétrie médicale. Le détecteur est alors relié à un étalon primaire, souvent calibré par calorimétrie, seule technique absolue de mesure d'énergie.

Depuis les années 50, on assiste à la généralisation de l'utilisation du semi-conducteur dans de nombreux domaines de la physique et plus particulièrement dans celui de la détection et de la caractérisation des rayonnements ionisants. Nous

ne rappellerons pas ici le bond en avant remarquable qu'a permis l'avènement des détecteurs à semi-conducteurs dans la spectroscopie des rayonnements gamma et X. Néanmoins, force est de constater que depuis plusieurs décennies, les principales innovations en matière de détection et de dosimétrie ne concernent plus le capteur ou le matériau détecteur en tant que tel, mais davantage la chaîne de traitement du signal physique qui en découle. Les passages à l'électronique rapide, puis à l'électronique numérique, suivi par les avancées de l'informatique, ont été, dans ces domaines, autant d'éléments de progrès.

De façon plus générale, au-delà de la théorie de Bragg-Gray et du principe de la chambre d'ionisation, nous devons aux études sur les matériaux scintillants et particulièrement à celles réalisées sur les scintillateurs organiques, dans notre laboratoire de Strasbourg, de savoir que la détection des charges libres produites sous irradiation peut également se faire par mesure de fluorescence, rejoignant ainsi les premières expériences de Röntgen. Dans les années 1975 à 1990, René Voltz et ses collaborateurs ont montré que la quantité de photons émise par un scintillateur organique modèle sous irradiation, tel que l'antracène ou le paraterphényle, était l'image de la recombinaison géminée des paires de charges produites par ionisation, c'est-à-dire, selon Bragg-Gray, de la dose déposée. Bien que ces études restent, aujourd'hui encore, parmi les plus abouties du domaine, la relation directe sensée relier la dose déposée à l'intensité de la luminescence émise n'a jamais été clairement établie. Il faut néanmoins noter que la détection d'un rayonnement, voire la mesure de la dose déposée, par émission de luminescence, reste aujourd'hui encore, l'approche instrumentale la plus sensible en comparaison de celle faisant appel à la chambre d'ionisation, donc à la mesure directe d'une charge ou d'un courant. Ceci est une évidence quand on se rappelle qu'aujourd'hui, le courant mesurable le plus faible est de l'ordre du pico-ampère et qu'il correspond à la production d'environ dix millions de charges libres, alors que la recombinaison d'une seule peut, en théorie, être détectée par émission de luminescence. Dans la pratique, l'effet de la densité plaide également en faveur du choix d'une détection par luminescence, car celui-ci sera bien plus important dans un solide scintillant que dans le gaz d'une chambre d'ionisation.

Ce mémoire est consacré à une première étude fondamentale de la dosimétrie des rayonnements chargés et gamma, par mesure de fluorescence résolue en temps à l'échelle nanoseconde, dans la matière organique. L'approche choisie est originale, tant sur le plan de l'observation que sur celui de l'interprétation des résultats; elle permet l'étude en profondeur et en temps réel de la dose déposée, en prenant en compte aussi bien les processus d'ionisation que ceux d'excitation. Afin de pouvoir confronter nos résultats à la théorie, mais aussi à des mesures par chambre d'ionisation, nous avons choisi de porter nos efforts sur des milieux modèles et des protocoles dosimétriques bien connus du domaine. Le premier chapitre de ce mémoire comporte deux grandes parties. La première est consacrée à la description des mécanismes d'interaction et de dépôt d'énergie à la matière dense. L'interaction ion matière y est étudiée en détail, de même que celle des électrons secondaires produits au sein des traces. La deuxième partie porte sur les mécanismes de relaxation

de l'énergie déposée au sein des milieux moléculaires denses et à l'étude des scintillateurs organiques en particulier. On s'intéressera, en premier lieu, à la nature des états excités et, en second lieu, aux différents canaux de relaxation conduisant à l'émission de fluorescence. Le second chapitre porte sur notre nouvelle approche expérimentale. Il se décompose également en deux parties. La première porte sur l'observation expérimentale et, plus particulièrement, sur la reconstitution statistique de la courbe représentant l'intensité de fluorescence émise, au cours du temps et en résolution nanoseconde, par un détecteur scintillant, ceci par comptage de photon unique corrélé en temps (Time Correlated Single Photon Counting – TCSPC). La seconde partie rendra compte de notre travail de développement d'une plateforme expérimentale multimodale pour la dosimétrie par TCSPC. Cette plateforme, spécialement développée dans le cadre de ce travail, permet la mesure de déclins de fluorescence, à la fois sous excitation impulsionnelle (faisceaux d'ions pulsés nanoseconde, par exemple) et sous excitation en flux continu (faisceau non pulsés et sources radioactives). Nous décrirons également les résultats des mises au point et des premiers essais. Le troisième chapitre de ce mémoire est consacré à l'exposé des résultats expérimentaux obtenus par mesure de fluorescence et à leur comparaison aux mesures obtenues par chambre d'ionisation dans les mêmes conditions d'irradiation. Nous y présentons, en premier lieu, la dose déposée par des hélions et des ions carbone de haute énergie (150 MeV/uma) au sein de matériaux modèles tels que le polyvinyle toluène et le polyéthylène téréphtalate. Les irradiations ont été réalisées au Heavy-Ion Medical Accelerator in Chiba – Japon, dans des conditions expérimentales identiques à celles mises en œuvre en hadronthérapie. Cette étude est complétée, en second lieu, par des mesures dosimétriques effectuées à l'aide de fibres optiques scintillantes, sous irradiations gamma du Césium-137 et du Cobalt-60. Nous présenterons également une nouvelle approche expérimentale permettant d'effectuer des mesures dosimétriques en faisant expérimentalement abstraction de la luminescence produite par effet Čerenkov.

"La recherche, c'est ce que je fais quand
je ne sais pas ce que je fais."

Wernher von Braun



Les processus de scintillation

1 Introduction

La description des processus de scintillation que nous développerons ici concernera essentiellement les mécanismes de fluorescence induits par un dépôt d'énergie consécutif à une interaction entre un rayonnement ionisant et la matière organique. Ce chapitre se composera de deux parties : une première partie traitera des interactions primaires avec la matière (section 2). Cette section décrira de manière succincte les mécanismes d'interaction primaires et nous traiterons notamment la notion de *dose radiale*. Cette notion sera à la base des modèles de scintillation que nous aborderons dans la deuxième partie qui (section 3) sera axée sur les mécanismes de production de lumière suite à un dépôt d'énergie. Dans cette étude nous précisons la nature des mécanismes d'interaction qui concernent des photons, à des énergies pouvant aller jusqu'à quelques MeV, et des particules chargées, typiquement des protons, des rayonnements alphas et des ions carbonés à des énergies allant jusqu'au GeV. Notre démarche se basera sur une étude, à l'échelle moléculaire, des mécanismes de relaxation de l'énergie déposée, c'est-à-dire que nous considérerons la matière de manière discontinue. Cela implique que la notion de dose ne sera que très rarement traitée sous l'angle du dépôt d'énergie à l'échelle macroscopique et que nous n'évoquerons que très rarement le *Gray*. Plusieurs modèles de scintillations seront évoqués : modèle de Birks [5], Menchaca-Michaelian [6, 7] (MM), Katz [8] et Voltz [9], qui se fondent, pour la plupart, sur la notion de *dose radiale*. Il est bon de remarquer que ces modèles sont en totale contradiction sur certains points. Cela est dû, notamment, à des approches fondamentalement différentes. Si le modèle de Birks est historiquement précurseur dans le domaine, il n'en reste pas moins très rudimentaire et surtout exclusivement empirique. Les modèles de Katz et MM adoptent une

approche similaire en considérant la matière de manière discontinue et en tentant de séparer deux domaines : le dépôt d'énergie initial et sa relaxation. Ces deux modèles ont donné des résultats satisfaisants avec des particules lourdes ($Z > 12$) mais semblent diverger pour des particules plus légères. Enfin le modèle développé par VOLTZ adopte un angle de recherche résolument différent, dans le sens où il introduit une dimension temporelle dans la relaxation des états excités. Sur le plan fondamental, il s'agit sans doute, du modèle le plus abouti, mais les vérifications expérimentales indispensables à la validation de tous ses aspects posent des problèmes techniques qui ne peuvent être résolus avec les moyens d'investigation actuels. Il est important de rappeler que quelque soit la nature du rayonnement, l'élément ionisant sera toujours une particule chargée et que l'élément qui permettra d'enclencher la scintillation sera toujours un électron.

2 Perte d'énergie des rayonnements ionisants et dose radiale

Nous présenterons dans cette section les interactions photon-matière, ion-matière, électron-matière et nous aborderons également la notion de dose radiale.

2.1 Interactions photon-matière

L'interaction des photons avec la matière dépend de l'énergie initiale de ceux-ci ainsi que de la nature du matériau traversé. Nous ne développerons pas ici tous les processus possibles d'interaction, nous n'évoquerons que les trois principaux : l'effet photoélectrique, l'effet Compton et la création de paires. De manière générale, indépendamment du matériau traversé, l'effet photoélectrique est l'effet dominant pour les interactions en-dessous de quelques dizaines de keV, puis vient l'effet Compton jusqu'à quelques MeV. A des énergies plus hautes, le mécanisme de création de paires devient prépondérant. Cela est résumé dans la figure 1.1¹. Nous pouvons également constater que l'effet Rayleigh (diffusion par le noyau) est, quelque soit l'énergie, négligeable.

L'effet photoélectrique

L'effet photoélectrique correspond à l'éjection d'un électron lié à un noyau par un photon incident qui se trouve intégralement absorbé dans le processus. Notons $E_\gamma = \hbar\omega$ l'énergie du photon incident, E_B l'énergie de liaison de l'électron et E_e , son énergie cinétique après éjection. T est l'énergie cinétique de recul de l'ion et M la masse de l'atome qui reçoit le photon incident. L'expression de la conservation de l'énergie peut s'exprimer suivant :

$$\hbar\omega - E_B = E_e + T. \quad (1.1)$$

1. Monte Carlo dos sistemas de detecção de perfilagem nuclear *Jadir C. da Silva*

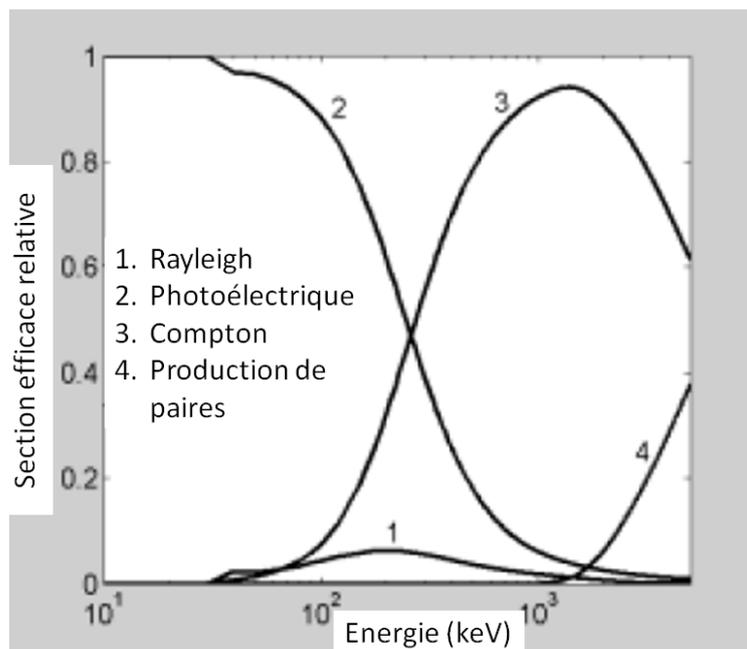


FIGURE 1.1 – Importance relative des différents mécanismes d’interaction en fonction de l’énergie incidente des photons dans l’eau.

Pour des énergies de photons incidents vérifiant $\hbar\omega \ll Mc^2$; ce qui est vérifié dans notre étude ; on peut négliger le recul du noyau, ce qui nous donne :

$$\hbar\omega - E_B = E_e. \quad (1.2)$$

La section efficace σ_{PE} de l’effet photoélectrique, pour un matériau donné, se déduit du fait que l’on suppose une énergie de liaison faible devant celle du photon incident et que l’on ne prend en compte que l’interaction électromagnétique. Elle peut s’écrire :

$$\sigma_{PE} = 64\pi \frac{e^2 \hbar E_B^{3/2}}{mc E_e^{5/2}}. \quad (1.3)$$

Avec m et e la masse et la charge de l’électron respectivement. On peut également l’exprimer en fonction du numéro atomique du matériau traversé :

$$\sigma_{PE} \propto E_\gamma^{3.5} \cdot Z^5. \quad (1.4)$$

Il est important de retenir ici que la section efficace de l’effet photoélectrique décroît avec l’augmentation de l’énergie du photon incident et qu’il augmente avec le numéro atomique du matériau traversé. L’effet photoélectrique est donc prépondérant aux faibles énergies d’excitation, dans la gamme allant de l’eV à la centaine de keV.

L'effet compton

Ce phénomène correspond à une diffusion du photon incident (voir figure 1.2), par un électron faiblement lié, ce qui entraîne l'éjection de celui-ci.

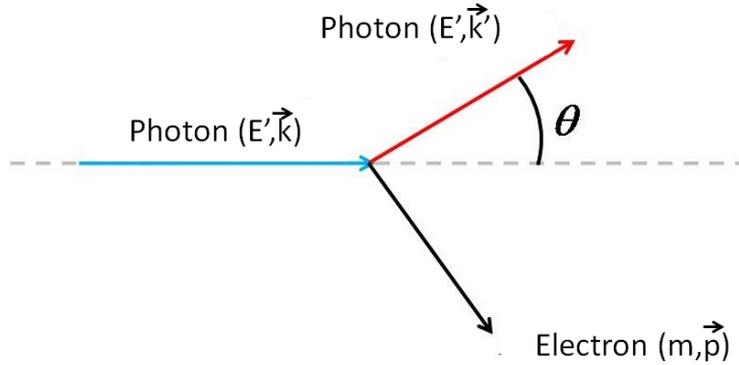


FIGURE 1.2 – Illustration de l'effet compton

En se basant sur les équations de conservation de l'énergie et de l'impulsion, dans le cadre relativiste, nous pouvons écrire :

$$\left\{ \begin{array}{l} \hbar \vec{k} = \vec{p} + \hbar \vec{k}' \\ E + mc^2 = E' + \sqrt{c^2 p^2 + m^2 c^4} \end{array} \right. \quad (1.5)$$

Avec \hbar la constante de Planck normalisée, c la vitesse de la lumière, \vec{k} et \vec{k}' les vecteurs impulsions du photon incident et diffusé respectivement et p la quantité de mouvement de l'électron diffusé. Nous pouvons en déduire que,

$$\lambda' - \lambda = \frac{h}{mc} (1 - \cos \theta). \quad (1.6)$$

avec λ et λ' les énergies du photon incident et diffusé respectivement. La section efficace de diffusion Compton, donnée par la formule de Klein-Nishina (voir équation 1.7), n'est pas isotrope, c'est-à-dire que la probabilité pour un photon d'être diffusé dans un certain angle solide $d\Omega$ n'est pas constante. Le photon a plus de chance d'être diffusé vers l'avant. La section efficace différentielle de diffusion du photon est alors donnée par :

$$\frac{d\sigma_{KN}}{d\Omega}(\alpha, \theta) = \frac{r_0^2}{2} \frac{1}{[1 + \alpha(1 - \cos \theta)]^2} \left[1 + \cos^2 \theta + \frac{\alpha^2 (1 - \cos \theta)^2}{1 + \alpha(1 - \cos \theta)} \right], \quad (1.7)$$

où r_0 est le rayon classique d'un électron ($r_0^2 = 7.940775 \times 10^{-26} \text{cm}^2$) et $\alpha = \frac{E_0}{m_e c^2}$. Il est intéressant de rappeler l'expression de l'énergie T transférée à l'électron :

$$T = \frac{E\alpha(1 - \cos \theta)}{1 + \alpha(1 - \cos \theta)}, \text{ et } T_{max} = \frac{2\alpha}{1 + 2\alpha} E. \quad (1.8)$$

T est maximum pour $\theta = \pi$. Il est également bon de se souvenir qu'en utilisant :

$$1 - \cos \theta = \frac{T}{\alpha(E - T)}; \quad \frac{d\sigma}{d\omega} \frac{d\omega}{dT}; \quad \frac{d\omega}{dT} = 2\pi \frac{E}{\alpha(E - T)^2}, \quad (1.9)$$

on obtient la section efficace de transfert :

$$\frac{d\sigma}{dT} = \frac{\pi r_e^2}{\alpha E} \frac{E - T}{E} \left[2 - \frac{2T}{\alpha(E - T)} + \frac{T^2}{(E - T)E} + \frac{T^2}{\alpha^2(E - T)^2} \right]. \quad (1.10)$$

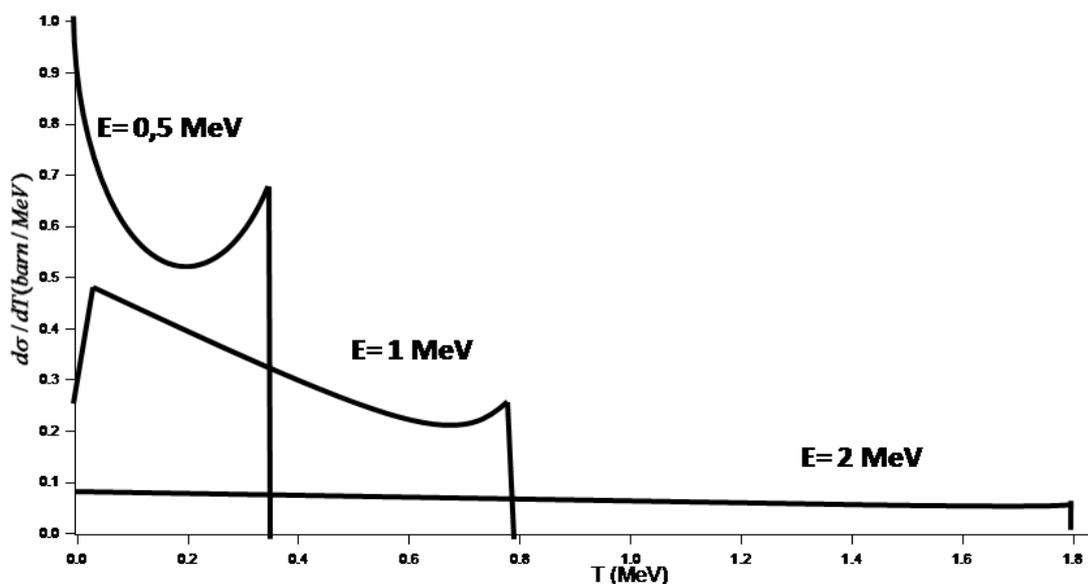


FIGURE 1.3 – Section efficace de l'énergie Compton détectée lors du passage de photons d'énergie initiale de 0.5, 1 et 2 MeV.

Avec r_e le rayon de l'électron. Cette équation (illustrée par la figure 1.3) nous montre que pour un photon incident d'énergie donnée l'énergie transférée à l'électron varie fortement pour des photons incidents de faible énergie (0,5 MeV et en deçà) et que ce transfert tend vers une constante à plus haute énergie. Nous n'explicitons pas ici l'effet de création de paires, effectivement nous n'avons pas utilisé de photons d'énergie supérieure à 1,4 MeV, cet effet peut, par conséquent, être considéré comme négligeable.

Afin de mieux comprendre les propriétés d'interaction des photons X et γ avec le polyvinyltoluène (PVT), matériau qui sera étudié dans la partie expérimentale de ce travail, on peut se référer à la figure 1.4 qui montre les différentes contributions des trois effets principaux d'interactions photon-matière dans le PVT. Ce matériau est largement utilisé dans la dosimétrie parce qu'il est considéré comme très proche des tissus organiques.

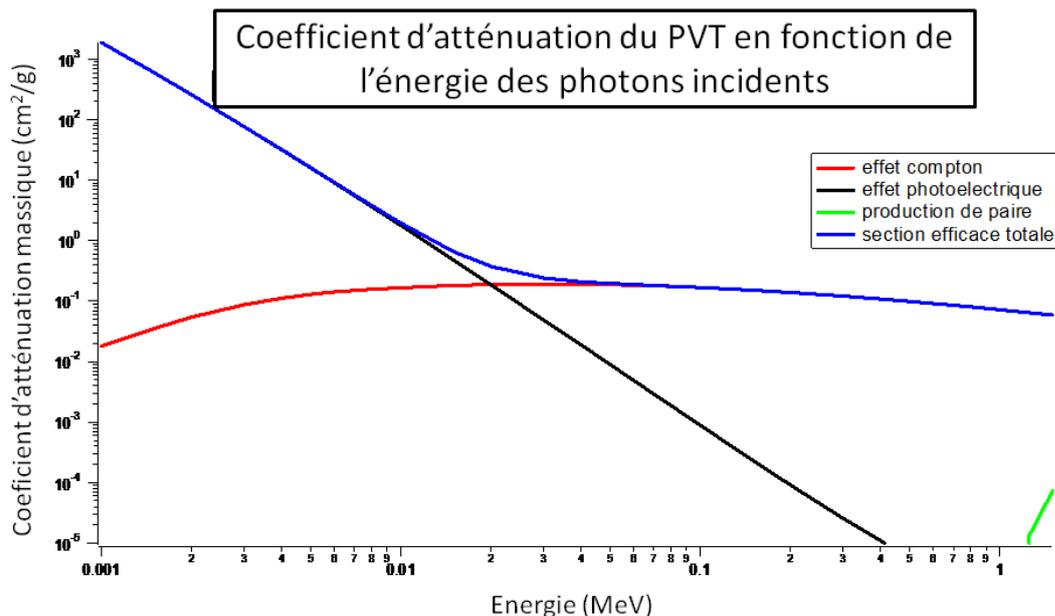


FIGURE 1.4 – Coefficient d’atténuation massique des photons dans le PVT en fonction de leur énergie.

2.2 Interactions ion-matière

Dans cette section nous rappellerons les relations fondamentales qui régissent la perte d’énergie des particules chargées dans la matière. Nous avons volontairement séparé le cas des ions et des électrons vu la spécificité de ces derniers (en termes de masse) et de l’importance qu’ils ont dans les mécanismes précurseurs de la luminescence. Les différents symboles, ainsi que leurs valeurs, sont rappelés dans le tableau 1.1.

L’interaction d’un ion incident avec la matière résulte d’un couplage électromagnétique entre la charge véhiculée par celui-ci et les particules chargées constituant la

symbole	Définition	valeur, unité
$m_e c^2$	Masse de l’électron	0.511 MeV
α	Constante de structure fine	1/137.036
$\hbar c$	Facteur de conversion	197.327 MeV.fm
e	Charge de l’électron	$-1.602 \cdot 10^{-19} C$
r_e	Rayon de l’électron	2.81 fm
uma	Unité de masse atomique	931.494 MeV
r_0	Rayon de Bohr	$0.529 \cdot 10^{-10} m$
β	Facteur de Lorentz	v/c
N_A	Nombre d’Avogadro	$6.022142 \cdot 10^{23} Mol^{-1}$
Z_1	Nombre de charge de l’ion incident	
Z_2	Nombre de charge du milieu cible	

TABLE 1.1 – résumé des symboles employés

composé	\bar{I} (eV)	composé	\bar{I} (eV)
H	19.2	C	81
Al	166	Si	173
Au	790	Pb	823
Eau	75	Air	87.7
CsI	553.1	NaI	451
Polystyrène	68.7	Polyéthylène	57.4
BGO	534.1	Anthracène	68.5

TABLE 1.2 – Potentiels d’ionisation moyens pour quelques matériaux

matière : noyaux et électrons. Nous nous concentrerons plus spécifiquement sur le ralentissement électronique parce que ce phénomène est prépondérant dans la plage énergétique d’étude (particules d’énergie comprise entre quelques MeV et le GeV). D’un point de vue macroscopique, en considérant la matière comme continue, le dépôt d’énergie d’une particule chargée peut être vu comme un TLE², noté $\frac{dE}{dx}$ qui représente la quantité d’énergie dE perdue par unité de longueur dx . Les travaux précurseurs de Bohr, ont ouvert la voie à de nombreuses études pour améliorer la modélisation du pouvoir d’arrêt. Parmi eux, Bethe et Bloch ont fortement contribué au calcul de cette grandeur, en se basant sur le transfert d’impulsion. En adoptant la notation de Ziegler [10] de façon à obtenir $\frac{dE}{dx}$ en $keV/(mg/cm^2)$, nous rappelons l’équation de Bethe-Bloch :

$$\left. \frac{dE}{dx} \right|_{ion} = \frac{\kappa}{\beta^2} Z_1^2 Z_2 [L_0(\beta) + Z_1 L_1(\beta) + Z_2^2 L_2(\beta)], \quad (1.11)$$

avec :

$$\kappa = \frac{4\pi r_0^2 m_e c^2 N_A}{10^{21} M_A}; \quad (1.12)$$

où M_A est le nombre de masse du milieu cible en *uma*. On remarque que le membre de droite de l’expression 1.11 contient trois termes indépendants. Plus de 95% de la perte d’énergie est contenu dans le nombre d’arrêt primaire L_0 , aussi appelé facteur de Fano [11]. Ce facteur s’exprime à l’aide du potentiel moyen d’ionisation du matériau cible \bar{I} , tel que :

$$L_0(\beta) = \ln \left(\frac{2m_e c^2 \beta^2}{1 - \beta^2} \right) - \ln(\bar{I}) - \frac{C}{Z_2} - \frac{\delta}{2}; \quad (1.13)$$

où $\frac{C}{Z_2}$ représente un terme correctif prenant en compte le fait que les ions incidents se déplacent plus vite que les électrons constituant le cortège électronique. Il est maximal pour les énergies comprises entre 5 et 30 MeV/uma. Au maximum, il représente 6% de la perte d’énergie totale. Le terme $\frac{\delta}{2}$ prend en compte la permittivité relative du milieu ; il est négligeable aux énergies mises en jeu dans cette étude.

Energie(MeV)	L_0	L_1 (Barkas)	L_2 (Bloch)
1	95.95	5.24	-1.19
5	98.84	1.31	-0.15
10	99.25	0.81	0
100	99.79	0.21	0
1000	99.93	0.07	0

TABLE 1.3 – Contribution des différents nombres d’arrêts en % pour un proton dans l’aluminium

Le potentiel d’ionisation moyen \bar{I} est, avec l’énergie incidente, un des deux paramètres principaux qui vont régir les mécanismes de perte d’énergie dans un milieu. Le tableau 1.2 rappelle quelques potentiels d’ionisation moyens déduits des mesures du pouvoir d’arrêt dans divers matériaux. Ces données, fournies par L’ICRU³ [12], correspondent à la meilleure estimation actuelle de ce potentiel.

Les deux autres termes $L_1(\beta)$ et $L_2(\beta)$ qui sont respectivement la correction de BARKAS [13] et la correction de BLOCH, qui prennent en compte la polarisation du milieu et les interactions à grands paramètres d’impact. Ces contributions sont négligeables aux énergies de notre étude. Le tableau 1.3 récapitule l’importance relative des différentes contributions.

En pratique pour obtenir un TLE théorique, dans un matériau donné, nous pouvons utiliser deux bases de données : celle développée par le NIST⁴ qui nous donne directement le TLE en fonction de l’énergie incidente des ions (voir figure 1.5), ou celle développée par Ziegler dans le logiciel libre SRIM⁵ [14]. SRIM nous donne une "ionisation" ou DLI⁶ par unité de longueur en fonction de la profondeur, cette DLI est proportionnelle au TLE, selon :

$$TLE = DLI \cdot w_i; \quad (1.14)$$

où w_i est l’énergie moyenne transférée pour chaque ionisation. Il est indispensable de garder à l’esprit que ces modèles ont leurs domaines de validité. Ces formules ne sont valables que pour des particules chargées d’énergies comprises entre quelques dizaines de keV et quelques GeV. En deçà de ces énergies, la modélisation du dépôt d’énergie d’une particule chargée reste très hasardeuse, dans le sens où on ne peut plus considérer les dépôts d’énergies comme continus mais comme discrets.

Pic de Bragg et distribution spatiale d’un faisceau d’ions

En analysant chacun des termes de l’équation 1.11, nous pouvons également la présenter comme suit :

-
2. Transfert Linéique d’Energie
 3. International Committee on Radiation Units
 4. National Institute of Standards and Technology
 5. Stopping and Range of Ions in Matter
 6. Densité linéique d’ionisation

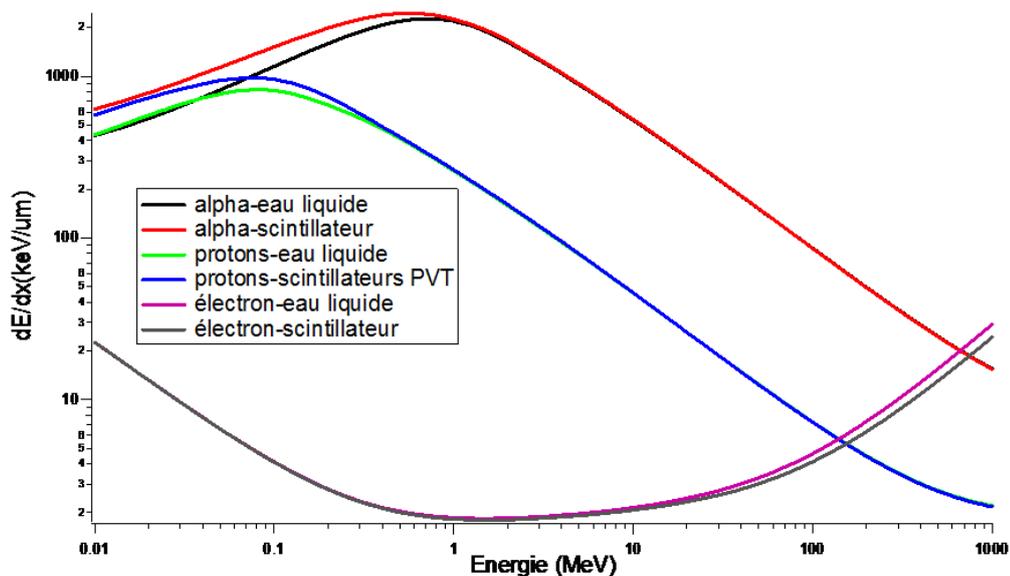


FIGURE 1.5 – TLE de protons, alphas et électrons dans l'eau et dans un scintillateur de référence (le PVT), utilisés pendant cette étude, obtenus à l'aide de la base de données NIST en fonction de l'énergie

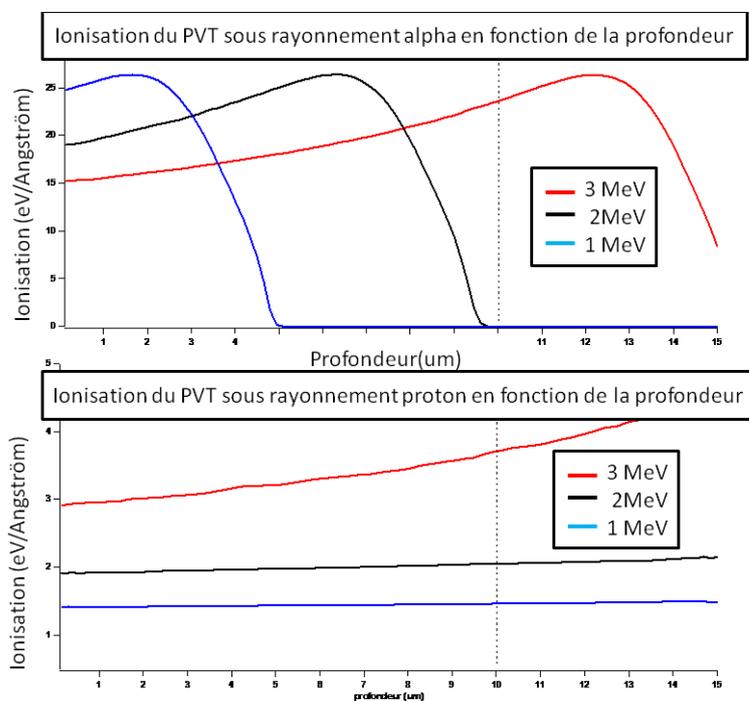
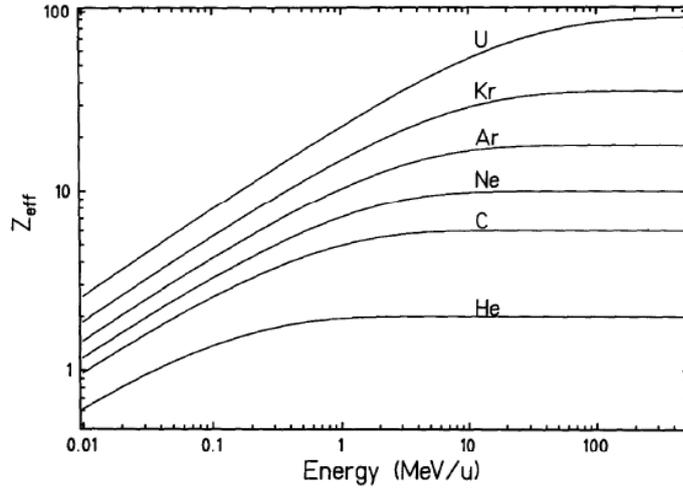


FIGURE 1.6 – TLE de protons et alphas, obtenus à l'aide de l'application SRIM, en fonction de la distance parcourue, à différentes énergies dans le PVT


 FIGURE 1.7 – Z_{eff} en fonction de l'énergie de la particule incidente.

$$\frac{dE}{dx} = \frac{4\pi e^4 Z_{eff} Z N}{m_e v^2} \ln \frac{2mv^2}{I} + \text{termes relativistes}, \quad (1.15)$$

et peut en déduire que plus l'ion incident est ralenti, plus sa vitesse devient faible, plus les transferts d'énergie avec le milieu incident augmentent. Ce qui entraîne un profil de dépôt d'énergie très caractéristique des particules chargées plus connu sous le nom de "courbe de bragg". Cette courbe illustre le fait que le dépôt d'énergie d'une particule chargée n'est pas constant, cette spécificité trouve des applications très intéressantes, notamment dans le cadre de l'hadronthérapie. A titre d'illustration, la figure 1.6 montre l'énergie transférée par unité de longueur, pour des protons et des particules alphas, dans un matériau scintillant de référence : le PVT. Selon Barkas [15] la charge effective Z_{eff} de la particule incidente évolue en fonction de son énergie selon :

$$Z_{eff} = Z(1 - \exp(-125\beta Z^{-2/3})); \quad (1.16)$$

avec v , la vitesse de la particule (voir figure 1.7). Les parties dominantes de l'équation 1.15 sont $\frac{1}{v^2}$ et Z_{eff} . Pour une particule donnée la perte d'énergie maximum se situe toujours en fin de parcours et sur une distance faible en regard du parcours total. Lorsque l'on tente de mesurer cette perte d'énergie, l'on est confronté à deux problèmes majeurs : le premier est dû à l'intégration inévitable de la quantité $\frac{dE}{dx}$ dans le dosimètre. On peut minimiser cet effet en utilisant des volumes sensibles ayant une section fine (typiquement quelques μm). Le second, lorsque l'on travaille avec un faisceau réel, est dû à des phénomènes de diffusion (aussi appelé "straggling") inhérent à un flux de particules qui implique une certaine distribution en énergie ($f\Delta E$). Ces phénomènes de diffusion ont un comportement gaussien, comme l'a démontré Ahlen [16] :

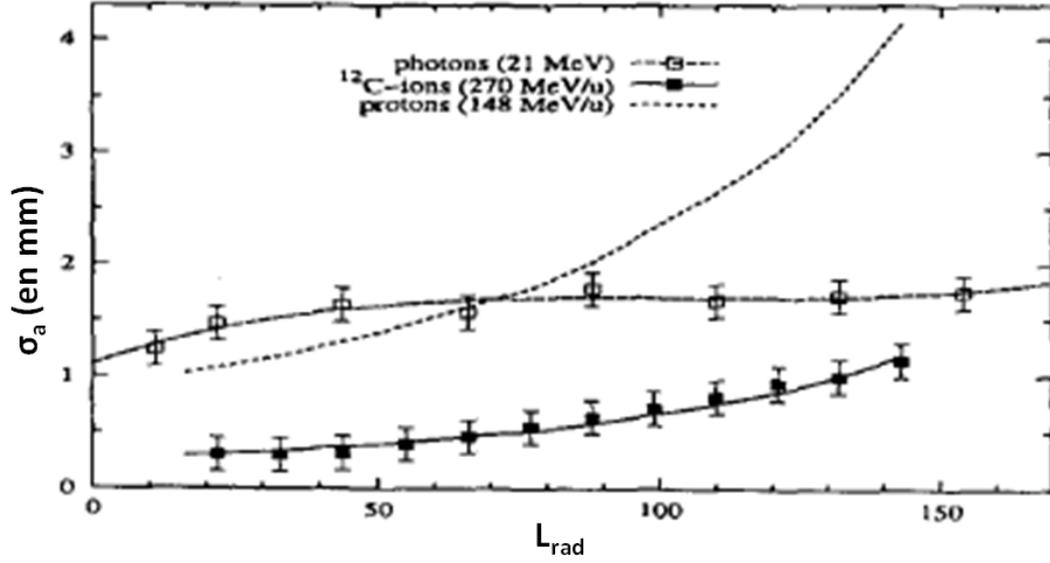


FIGURE 1.8 – Variation de la largeur σ de la distribution radiale en fonction de la profondeur L_{rad} , pour des ions carbone et des photons

$$f(\Delta E) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}\sigma} \exp\left(-\frac{(\Delta E - \langle \Delta E \rangle)^2}{2\sigma^2}\right), \quad (1.17)$$

avec :

$$\sigma^2 = 4\pi Z_{eff}^2 Z_2 N \Delta x \left[\frac{1 - \frac{\beta^2}{2}}{1 - \beta^2} \right]. \quad (1.18)$$

Nous allons maintenant évoquer les travaux de Gottschalk [17] qui a mis en évidence le caractère gaussien de la distribution angulaire, à faible angle de diffusion, d'un faisceau de particules chargées. Si nous définissons comme $f(\alpha)$ la distribution angulaire d'un flux de particules chargées, il apparaît que :

$$f(\alpha) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}\sigma_a} \exp\left(-\frac{\alpha^2}{2\sigma_a}\right), \quad (1.19)$$

avec

$$\sigma_a = \frac{14.1 \text{ MeV}}{\beta pc} Z_p \sqrt{\frac{d}{L_{rad}} \left(1 + \frac{1}{9} \log_{10} \frac{d}{L_{rad}}\right)}; \quad (1.20)$$

où σ_a est la déviation standard, p le moment cinétique, L_{rad} la longueur de pénétration de la particule et d l'épaisseur du matériau traversé : Voir la figure 1.8.

2.3 Interactions électron-matière

L'expression de la perte d'énergie des électrons dans la matière est semblable, à la masse près, à celle des ions, ($m_e \ll m_{ion}$). Il faut également tenir compte

de l'existence d'un rayonnement de freinage⁷. Cette perte d'énergie, résultant de collisions inélastiques, dans un potentiel coulombien a été calculée par Bethe [18], en tenant compte de l'indiscernabilité du spin des électrons. En utilisant l'écriture de Seltzer et Berger [19, 20], on peut montrer l'analogie qui existe entre la perte d'énergie d'un ion et celle d'un électron (equation 1.21) :

$$\left. \frac{dE}{dx} \right|_{electron} = \kappa_e \frac{Z_2}{A_2} \frac{1}{\beta^2} \left[B_0(T) - 2 \ln \left(\frac{\bar{I}}{m_e c^2} \right) - \delta \right], \quad (1.21)$$

avec :

$$\kappa_e = \frac{2\pi N_A e^4}{m_e c^2}. \quad (1.22)$$

Le nombre d'arrêt primaire, B_0 , s'exprime alors en fonction de $\tau = E/mc^2$, selon :

$$B_0(T) + \left(\frac{\tau^2(\tau + 2)}{2} \right) + \frac{1}{(\tau + 1)^2} \left[1 + \frac{\tau^2}{8} - \ln(2) \cdot (2\tau + 1) \right]. \quad (1.23)$$

Tout comme pour les ions, il existe ici une limite inférieure à la validité de cette formule. Ainsi, les erreurs commises, en utilisant les expressions 1.21 et 1.22, peuvent dépasser les 10% pour des énergies inférieures à 10 keV et dans les matériaux de faible Z. Il est bon de rappeler qu'il existe une base de donnée fournie par le NIST sous la forme du programme ESTAR qui donne le pouvoir d'arrêt de l'électron entre 10keV et 1 GeV pour plus de 250 matériaux d'intérêts. La figure 1.9 donne à titre d'exemple quelques résultats obtenus grâce à ce programme. Nous pouvons noter que pour les électrons d'énergie inférieure à 1 MeV le rayonnement de freinage devient très faible. De plus, l'importance de ce rayonnement augmente avec le numéro atomique Z du matériau traversé. Notre étude se limitant à des électrons d'énergie inférieures à 1 MeV, dans des matériaux légers (Z n'excédant généralement pas 16), il sera négligé dans le reste de l'étude.

Comme l'a montré Frelin dans sa thèse [21], au delà du Bremsstrahlung, il ne faut pas négliger l'effet Čerenkov. Effectivement dans des applications utilisant la fluorescence cet effet peut entraîner des biais dans la mesure de la lumière d'intérêt.

Bremsstrahlung Lorsqu'un électron libre subit une décélération, il libère de l'énergie sous la forme d'une onde électromagnétique [22]. Ceci correspond au cas où un électron incident subit une accélération centripète venant d'un noyau. Le champ coulombien de ce dernier impose une force, donc une accélération, qui va nécessairement entraîner l'émission d'un photon dont le spectre peut se situer sur l'ensemble de la gamme d'énergie de l'électron incident. Ce phénomène est à l'origine des générateurs de rayons X et constitue un moyen simple et efficace d'obtenir des photons dans ce domaine spectral.

7. Bremsstrahlung

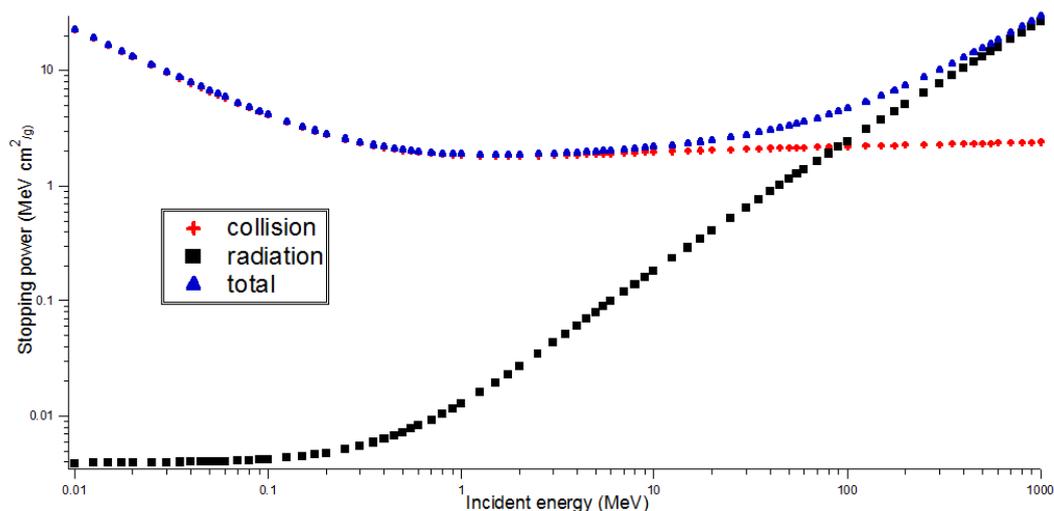


FIGURE 1.9 – Pouvoir d'arrêt des électrons dans l'eau (ESTAR)

Effet Čerenkov Ce phénomène est analogue au passage du mur du son dans l'air (ondes longitudinales de pression acoustiques), mais rapporté à une interaction dipolaire électrique en milieu diélectrique (ondes transversales optiques). Dans le cas d'électrons de plus de 180 keV, énergie typique dans le milieu de la radiothérapie, leur vitesse peut s'écrire :

$$\beta = \frac{v}{c} > \frac{1}{n} \quad (1.24)$$

où c est la vitesse de la lumière dans le vide et n l'indice de réfraction du milieu traversé. Le champ électrique associé à l'électron polarise de manière isotrope le milieu qu'il traverse et, lorsque celui-ci a une vitesse suffisante, il se forme un cône d'angle θ autour de la trajectoire de l'électron. Exactement à l'image d'un cône hypersonique :

$$\cos(\theta) = \frac{1}{\beta n}. \quad (1.25)$$

2.4 Electrons secondaires et dose radiale

Le passage d'une particule chargée dans la matière dense moléculaire va être à l'origine de deux phénomènes globaux : dans le cas d'un transfert suffisant d'énergie, une ionisation dite "primaire" d'un grand nombre de molécules et dans le cas d'un transfert d'énergie plus faible, une excitation des états moléculaires. Les électrons "secondaires" ou " δ rays" seront également à l'origine des mécanismes de scintillation détaillés dans la section 3. Il est intéressant d'étudier leur distribution en énergie, ainsi que leur densité de production en fonction de l'énergie incidente et de la charge de la particule incidente. Nous introduirons, à cette occasion, la notion de *dose radiale*. Nous aborderons ici un aspect central de la scintillation radioinduite. En effet, si les mécanismes fondamentaux d'interaction physique mis en jeu lors d'une

Energie de l'ion incident(MeV)	T(keV)
1	2
10	22
50	112
100	231
145	343
300	764

TABLE 1.4 – Energie maximale transférée aux électrons secondaires en fonction de l'énergie de l'ion incident par nucléon

irradiation sont théoriquement décrits [23], leurs effets aux niveaux microscopiques et à une échelle de temps court (entre 10^{-15} et 10^{-10} seconde) restent largement méconnus et très peu d'expériences peuvent à l'heure actuelle en rendre compte. Néanmoins, nous ferons une description non exhaustive, et nous discuterons des modèles existants les plus intéressants [24–26] décrivant le nombre d'électrons éjectés par unité de parcours et d'énergie d'une particule donnée.

2.5 Quantité d'électrons secondaires émise par le passage d'une particule ionisante

Afin de donner une première approximation des énergies mises en jeu nous prendrons les énergies maximales transmissibles entre un ion et un électron lors d'une interaction. En se plaçant dans le cadre de la mécanique classique, ce qui est justifié tant que les particules ont une énergie inférieure à $200\text{MeV}/uma$, on peut écrire :

$$T = 4 \frac{m_e M}{(m_e + M)^2} \cos^2 \theta E, \quad (1.26)$$

avec M , la masse de la particule incidente; m_e , la masse de l'électron; θ , l'angle de diffusion de l'électron secondaire; T , l'énergie cinétique transmise et E , l'énergie de la particule incidente. Lorsque la particule ionisante est un électron toute son énergie peut-être transférée par choc élastique. On peut également simplifier cette équation en considérant $M \gg m_e$, T est alors maximal lorsque l'angle de diffusion θ est nul. Ainsi,

$$T_{max} = \frac{4m_e}{M} E. \quad (1.27)$$

Le tableau 1.4 donne quelques références quant aux énergies maximales accessibles aux électrons secondaires en fonction de l'énergie des ions incidents (énergie incidente donnée par nucléons). De plus, nous pouvons citer les travaux précurseurs menés par Bradt et Peters [24] qui donnent une approximation du nombre d'électrons secondaires créés en fonction du nombre N_e d'électrons incidents par unité de volume, ayant une énergie comprise entre ω et $\omega + d\omega$:

$$\frac{dN}{d\omega} = \frac{2\pi N_e z^{*2} e^4}{m_e c^2 \beta^2} \frac{1}{w^2} \left[1 - \beta^2 \frac{\omega}{\omega_{max}} + \pi \beta z^{*2} \alpha \left(\frac{\omega}{\omega_{max}} \right)^{1/2} \left(1 - \frac{\omega}{\omega_{max}} \right) \right]; \quad (1.28)$$

où z^* représente la charge effective Z_{eff} de l'ion d'après la relation de Barkas (équation 1.16) et α la constante de structure fine (1/137). De manière générale cette expression surestime le nombre d'électrons créés à hautes énergies ($\beta > 0.7$) spécialement si l'on se concentre sur les transferts d'énergie importants.

2.6 Dose radiale : différentes approches

La détermination de la dose radiale déposée par un rayonnement ionisant au sein de la matière fait appel à diverses approches théoriques et expérimentales. Parmi les approches théoriques les plus citées, nous avons déjà noté celles de Katz, MM et Krämer, qui donnent d'excellents résultats, au regard des expériences, exception faite des régimes de fin de parcours, lorsque les sections efficaces de dépôt d'énergie augmentent, comme dans le pic de Bragg. D'un point de vue expérimental, on note assez peu d'études fiables rendant compte des dépôts d'énergie, tant pour le rayonnement primaire que pour les électrons secondaires de basses énergies. Les approches que nous aborderons dans ce chapitre ont été largement décrites dans la thèse de David Broggio [27].

Approche de Katz

Historiquement le modèle de Katz a été développé afin de rendre compte de l'action des rayonnements ionisants sur des émulsions photographiques [28–35]. En considérant un flux radial d'énergie, Φ_e , Katz et Kobetich établissent l'expression de la dose radiale $\rho(r)$ à la distance r , avec une fraction d'énergie R , comprise entre ω et $\omega + d\omega$, de la trace :

$$\rho(r) = -\frac{1}{2\pi r} \frac{d}{dr} \int_{R_{max}}^{R_{min}} \eta(r, R) W(r, R) dN(R), \quad (1.29)$$

où η représente la fraction d'électrons transmis à travers le matériau, W l'énergie résiduelle de l'électron à une distance r , et dN le nombre d'électrons émis par unité de parcours de l'ion incident. Katz et Kobetich en arrivent à la conclusion que :

$$\rho(r) \sim \frac{Z_{eff}^2}{r^2}. \quad (1.30)$$

Ce premier modèle est assez rudimentaire et ne prend pas en compte : la distribution angulaire des électrons éjectés, le fait que les électrons δ n'ont pas un dépôt d'énergie constant le long de leurs parcours et les excitations moléculaires sur la trajectoire de l'ion incident. Le modèle initial a donc été amélioré par Katz et Cucinotta [1, 36, 37], afin d'obtenir une relation plus complète :

$$\rho(r) = \frac{Z_{eff}^2 N e^4}{\beta^2 m_e c^2 r^2} \left[\exp - \left(\frac{r}{0.37 R_{max}} \right)^2 \right] \frac{1}{c_1 + 1/r}. \quad (1.31)$$

Avec R_{max} le rayon maximum que peut atteindre un électron secondaire lors du transfert d'énergie maximum. Le terme exponentiel explicite le comportement à longue distance tandis que le terme c_1 est un terme correctif décrivant le comportement à courte distance. Pour l'eau, par exemple [27] :

$$c_1 = 0.6 + 1.7\beta. \quad (1.32)$$

Approche de Michaelian et Menchaca-Rocha

La démarche théorique de MM est comparable avec celle de Katz, néanmoins on observe des divergences pour certaines relations fondamentales, notamment celles décrivant la relation parcours/énergie, ou la probabilité de transmission utilisée dans la relation 1.29. Ils définissent la perte d'énergie d'un électron par la relation :

$$-\frac{d\omega}{dr} = \frac{1}{na\omega^{n-1}}, \quad (1.33)$$

où l'exposant n vaut $5/3$ et a est une constante dépendant du milieu. Finalement [38], la relation de MM peut s'écrire :

$$\rho(r) = \frac{D}{nr^2} \left(1 - \frac{r}{R_{max}} \right)^{d+1/n}, \quad (1.34)$$

R_{max} définissant le parcours maximum des électrons secondaires d'une énergie donnée, avec :

$$D = N_a \varrho_{det} \frac{\langle Z_{det} \rangle e^4 Z_{eff}^2}{\langle A_{det} \rangle m_e c^2 \beta_i^2}. \quad (1.35)$$

où ϱ_{det} représente la densité du milieu (en g/cm^3), $\langle Z_{det} \rangle$ le numéro atomique moyen et $\langle A_{det} \rangle$ le nombre de masse moyen. La figure 1.10 illustre le dépôt d'énergie radiale issu des électrons secondaires.

Approche de Krämer

L'approche de Krämer [2], repose sur une simulation de type Monte Carlo (MC) des interactions entre les électrons secondaires et le milieu, en prenant en compte les sections efficaces des collisions élastiques, inélastiques et d'ionisation. La dose radiale est donnée en fonction d'une sommation de la dose volumique $\rho(r^2, z)$ où une symétrie cylindrique est envisagée.

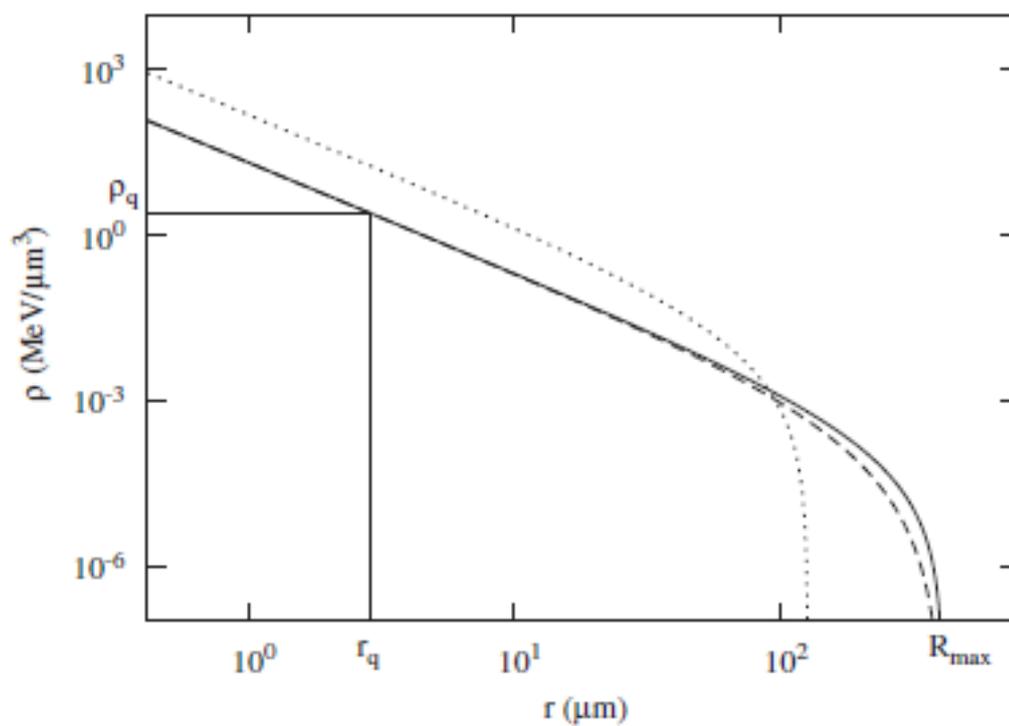


FIGURE 1.10 – Densité de dépôt d'énergie d'ions ^{20}Ne d'énergie 800 MeV dans du CsI en fonction de l'éloignement à la trace initiale selon le modèle développé par MM

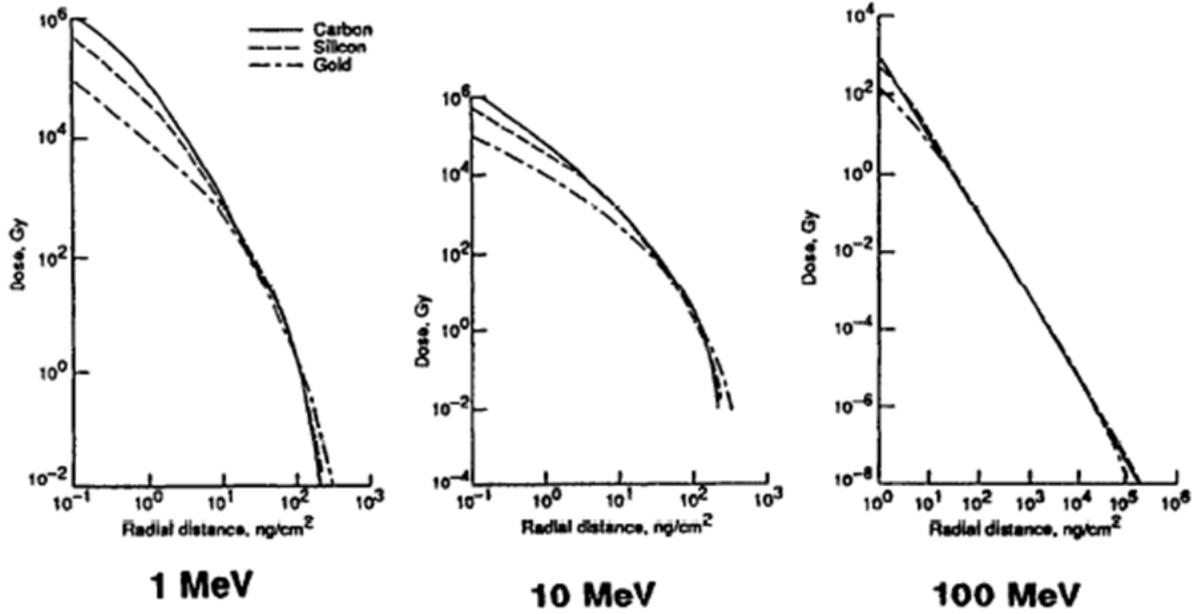


FIGURE 1.11 – Illustration de la dose déposée par les électrons secondaires en fonction de leurs distances à la trace de la particule incidente selon le modèle de Katz (équation 1.31) [1]

$$\rho(r) = \frac{\sum_z \rho(r^2, z)}{2\pi r \Delta r (z_{max} - z_{min}) \rho N_{ions}} * 1.602189 * 10^{-13} \quad (1.36)$$

Cette approche, la plus proche de la réalité dans l'absolu, est très difficilement applicable. En effet, une première approximation, consiste à négliger l'interaction des électrons avec les plasmons du milieu. Une seconde réside dans le fait que les résultats obtenus sont comparés à des extrapolations de résultats obtenus dans des gaz. Nous donnons, à titre d'indication, les doses radiales obtenues à l'aide des différents modèles (voir figure 1.11 et figure 1.12). Il est intéressant de remarquer que les doses prévues sont très élevées sur les premiers nanomètres (lorsque l'on s'éloigne du coeur de trace). Effectivement il faut se rappeler que l'énergie d'un eV transmise à un électron correspond à une dose de quelques $10^9 Gray$. Cela souligne également la difficulté qu'ont les théories existantes de prévoir les effets radiobiologiques induits par le passage d'un faisceau de particules chargées en utilisant le *Gray* comme unité de référence.

Approche de Voltz

Voltz et al. [39] ont travaillé à comprendre les mécanismes de luminescence des matériaux organiques sous rayonnement chargé. Notre étude est très fortement inspiré de leurs travaux. Dans cette section nous allons faire un rappel des modèles qu'ils ont développés dans les années 70-80. Tout d'abord il s'agit d'un modèle assez particulier dans le sens où il s'intéresse à la dynamique de production des électrons

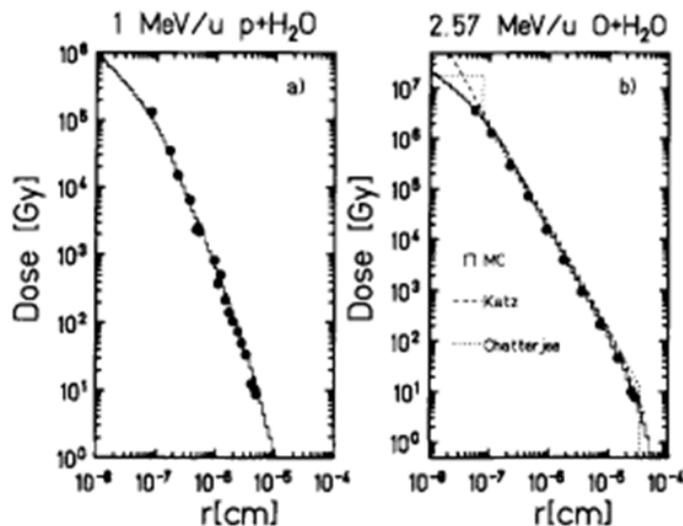


FIGURE 1.12 – Illustration de la dose déposée par les électrons secondaires en fonction de leurs distances à la trace de la particule incidente selon le modèle de Krämer (équation 1.36) [2]

à travers l'étude de l'émission de fluorescence. Il ne va pas considérer la fluorescence comme une quantité indépendante du temps. En ce sens il adopte une démarche novatrice en comparaison avec les modèles existants.

Selon ce modèle, il est nécessaire de considérer les deux composantes d'interaction primaire avec les électrons moléculaires : une première composante, prompte, due à l'excitation des molécules dans un état singulet par le passage direct de la particule primaire et du passage des électrons secondaires. Dans les composés aromatiques cette excitation aboutit généralement à produire des électrons dans un état excité S_n qui en se relaxant mène à l'état S_1 conduisant à la fluorescence. Si nous notons $\frac{dN_s}{dx}$ le nombre, par unité de longueur, de molécules dans l'état excité S_1 , la luminescence spécifique $\frac{dL}{dx}$ correspondant à la partie *prompte* est donnée par :

$$\frac{dL}{dx} = \eta_s \frac{dN_s}{dx} \quad (1.37)$$

où η_s est le rendement quantique de fluorescence de la molécule. La seconde partie, dite "différée", résulte d'interaction bimoléculaire d'états triplets T_1 qui forment un état singulet S_1 . La luminescence spécifique qui en résulte est donnée par :

$$\frac{dL'}{dx} = \eta_s \alpha \frac{dN_T}{dx} \quad (1.38)$$

où $\frac{dN_T}{dx}$ est le nombre de molécules créées dans l'état triplet T_1 le long de la trajectoire de la particule, par unité de longueur ; α est un facteur permettant de rendre compte des états S_1 formés par intercombinaison à partir des états T_1 . La luminescence totale peut alors s'écrire :

$$\frac{dS}{dx} = \frac{dL}{dx} + \frac{dL'}{dx}. \quad (1.39)$$

Pour la partie prompte, deux contributions sont envisagées, une provenant d'une zone de forte ionisation cylindrique de rayon R_d centrée sur la trajectoire de la particule $\left(\frac{dN_s}{dx}\right)_1$, et une seconde correspondant à un "halo" autour de celle-ci $\left(\frac{dN_s}{dx}\right)_2$. Cette démarche permet de traiter indépendamment les particules hadroniques des électrons. En considérant une perte d'énergie linéique $\frac{dE_1}{dx}$, nous pouvons écrire :

$$\left(\frac{dN_s}{dx}\right)_1 = (W_s)^{-1} \frac{dE_1}{dx} \exp\left(-B_s \frac{dE_1}{dx}\right), \quad (1.40)$$

où W_s est l'énergie moyenne nécessaire à la production d'un électron dans l'état S_n et B_s un facteur fixant R_d en fonction du matériau traversé. Pour décrire la production des électrons d'état singulet dans le halo par le passage des électrons secondaires, nous pouvons écrire :

$$\left(\frac{dN_s}{dx}\right)_2 = \int_{T_0}^{T_{max}} n_s(T) \frac{d}{dT} \left(\frac{dn}{dx}\right) dT, \quad (1.41)$$

où T représente l'énergie cinétique des électrons secondaires, T_0 l'énergie minimale que doit avoir un électron secondaire pour s'échapper du coeur de la trace (de la zone de forte ionisation de rayon R_d , T_{max} l'énergie maximale transmise aux électrons, n_s le nombre de molécules dans l'état S_1 formées lors de la thermalisation et la quantité $\frac{dn}{dx}$ est le nombre, par unité de longueur, d'électrons secondaires créés ayant une énergie comprise entre T et $T+dT$. Nous pouvons alors considérer deux cas pour la production de fluorescence prompte :

- Le cas des électrons (ceci est le cas également pour des rayons X et gamma où l'élément ionisant est un électron), où nous considérerons qu'il n'y a pas de halo du fait de la faible masse de l'électron et donc pas de production d'électrons secondaires :

$$\frac{dL}{dx} = \frac{\eta_s}{W_s} \frac{dE}{dx} \exp\left(-B_s \frac{dE}{dx}\right). \quad (1.42)$$

- Le cas de particules hadroniques où du fait de la production d'électrons secondaires, l'expression de $\frac{dL}{dx}$ se voit ajouter un facteur F_s décrivant la contribution des électrons secondaires ; décrit par :

$$F_s = \frac{1}{2} \frac{\ln(4mE/MT_0)}{\ln(4mE/MI)}, \quad (1.43)$$

où $\langle I \rangle$ représente le potentiel moyen d'excitation du matériau traversé. nous pouvons finalement exprimer :

$$\frac{dL}{dx} = \eta_s \left[\frac{1 - F_s}{W_s} \frac{dE}{dx} \exp\left(-B_s(1 - F_s) \frac{dE}{dx}\right) + \frac{F_s}{W_s} \frac{dE}{dx} \right]. \quad (1.44)$$

Nous avons vu que la partie différée de la scintillation était due à un état singulet provenant d'une interaction triplet-triplet dans les régions de fortes densité de dépôt d'énergie. Si nous notons $\Phi_t \frac{dE}{dx}$, l'énergie nécessaire pour produire un état triplet dans ces régions, nous pouvons écrire :

$$\frac{dN_T}{dx} = \frac{\Phi_t}{W_t} \frac{dE}{dx} \exp\left(-B_t \Phi_t \frac{dE}{dx}\right) \quad (1.45)$$

où W_t est l'énergie moyenne nécessaire à produire un état triplet T_1 , B_t un paramètre propre au mécanisme de *quenching*, similaire à B_s , et le facteur $\Phi_t \frac{dE}{dx}$ est l'énergie nécessaire, par unité de parcours, pour créer une ionisation. Cette relation prend la même forme que l'équation 1.40 décrivant $\left(\frac{dN_s}{dx}\right)_1$. Le facteur exponentiel rend compte des mécanismes initiaux de *quenching*. En se reportant à l'équation 1.38, nous obtenons la quantité de luminescence spécifique dite "différée",

$$\frac{dL'}{dx} = \eta_s \alpha \frac{\Phi_t}{W_t} \frac{dE}{dx} \exp\left(-B_t \Phi_t \frac{dE}{dx}\right). \quad (1.46)$$

Le facteur $\frac{\Phi_t}{W_t}$ rend compte de l'efficacité de formation des états triplets dans la zone de forte ionisation.

La luminescence spécifique totale émise, par unité de longueur, peut alors se mettre sous la forme :

$$\frac{dS}{dx} = \eta_s \left[\frac{1}{W_s} \frac{dE}{dx} \exp\left(-B_s \frac{dE}{dx}\right) + \alpha \frac{\Phi_t}{W_t} \frac{dE}{dx} \exp\left(-B_t \Phi_t \frac{dE}{dx}\right) \right] \quad (1.47)$$

Pour une irradiation d'électrons (ou de photons) et pour des particules hadroniques, nous avons la forme générale :

$$\frac{dS}{dx} = \eta_s \left\{ \frac{1 - F_s}{W_s} \frac{dE}{dx} \exp\left[-B_s(1 - F_s) \frac{dE}{dx}\right] + \frac{F_s}{W_s} \frac{dE}{dx} + \alpha \frac{\Phi_t}{W_t} \frac{dE}{dx} \exp\left(-B_t \Phi_t \frac{dE}{dx}\right) \right\} \quad (1.48)$$

En conclusion de ce modèle de déposition d'énergie, nous voyons que l'étude de la fluorescence inoinduite qui fait l'objet de ce travail devra prendre naturellement en compte l'existence de deux contributions : prompte et lente. En outre une étude globale (sans prendre en compte l'aspect temporel de la fluorescence) ne permet pas de distinguer expérimentalement la contribution de la scintillation prompte de la scintillation lente. Nous allons donc développer dans la prochaine section les lois de cinétique de production des photons pour les deux contributions.

Il faut garder à l'esprit que ces modèles sont très difficilement vérifiables avec les moyens d'expérimentation actuels. Plusieurs voies de recherches ont été développées durant ces dernières décennies pour pallier à ce manque de résultats. Une solution pour pouvoir analyser les mécanismes d'émission des électrons secondaires consisterait à collecter les électrons éjectés de la matière, mais pour des raisons évidentes

de faiblesse de signal, de collection des charges et d'échelle temporelle cette solution n'est pas satisfaisante avec les techniques d'analyse actuelles. Une autre solution élégante, actuellement mise en œuvre consiste à analyser chimiquement, à *posteriori*, les dégâts induits par le passage d'une particule [40–43]. Une autre voie que nous développerons dans la sections 3.1 consiste à analyser l'émission temporelle de fluorescence qui est corrélée à la recombinaison géminée des électrons secondaires à travers plusieurs modèles de scintillation.

3 Mécanismes de luminescence

Introduction

Comme l'a bien résumé David Broggio dans sa thèse, les scintillateurs plastiques aujourd'hui utilisés sont composés d'une matrice hôte dopée à l'aide d'un ou plusieurs "dopants" scintillants. Cette configuration permet une grande flexibilité quant à l'adaptation des scintillateurs à leurs utilisations. La matrice utilisée est généralement du polystyrène (PS) ou du polyvinyltoluène (PVT). Leur densité proche de l'eau en font les candidats idéaux pour des applications dans la dosimétrie médicale. Les dopants permettent d'optimiser la longueur d'onde à laquelle les photons de fluorescence seront émis ; il est à noter que la matrice est très faiblement scintillante par rapport aux molécules scintillantes utilisées comme dopants. Une liste non exhaustive des matrices et dopants utilisés est donnée par Vasil'chenko [44]. Les processus de relaxation qui vont nous intéresser sont les processus radiatifs. De tels processus proviennent, essentiellement, dans les matériaux utilisés dans notre étude, de la diffusion de paires électrons-trous et d'excitations directes. En guise de rappel nous présentons les principaux mécanismes qui ont lieu au sein d'un scintillateur plastique, ainsi que leur temps de vie caractéristique (voir tableau 1.5). Il a été montré [45, 46] que cette diffusion peut faire migrer des charges le long des chaînes de polymères. A titre de rappel la figure 1.13 résume les mécanismes de transfert d'énergie possibles.

3.1 Relaxation des états excités

L'interaction d'un rayonnement chargé avec la matière moléculaire dense conduit toujours à l'excitation d'états moléculaires de hautes énergies. La relaxation de ces états se fait à travers différents canaux. Nous nous intéressons maintenant aux modèles liant la création de cascades d'électrons secondaires, notamment leurs répartition spatiale, à la création de photons de fluorescence.

Nature des états moléculaires excités

L'émission d'un photon de fluorescence par une molécule est due à la dés-excitation radiative du premier état singulet S_1 de celle-ci vers l'état fondamental

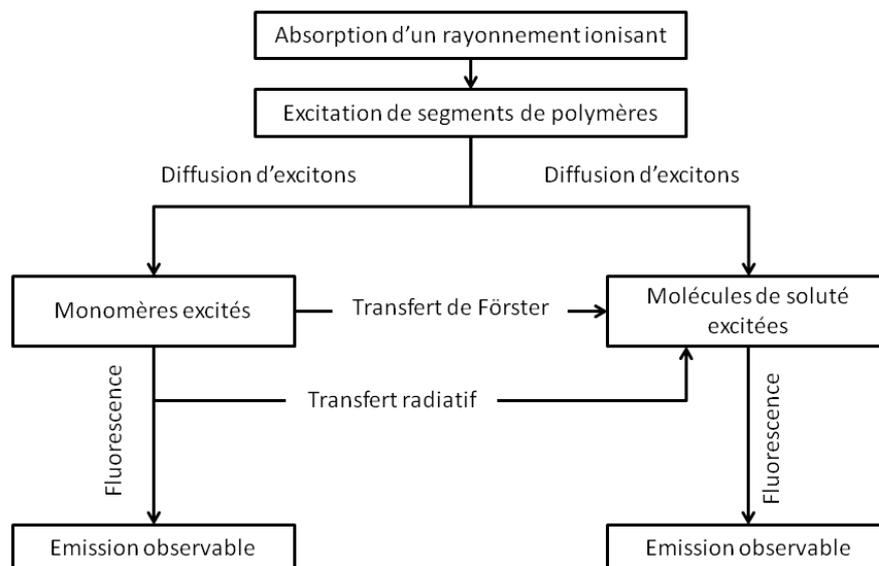


FIGURE 1.13 – Mécanismes de transfert d'énergie dans un scintillateur plastique composé d'une matrice dopée à l'aide de molécules scintillantes [3]

	Processus	constante de vitesse
$S_1 \rightarrow S_0 + h\nu_s$	fluorescence	k_s
$S_1 \rightarrow T_1$	inter combinaison non-radiative	k'_s
$S_1 \rightarrow S_0$	conversion interne	k''_s
$S_1 + D \rightarrow S_0 + D$	Dégradation par une impureté D	k_{sd}
$T_1 \rightarrow S_0 + h\nu_t$	phosphorescence	k_t
$T_1 \rightarrow S_0$	dégradation interne	k'_t
$T_1 + T_1 \rightarrow S_0 + S_1$	annihilation triplet-triplet	k_{tt}
$T_1 + T_1 \rightarrow T_0 + T_1$	annihilation triplet-triplet	k'_t
$T_1 + D \rightarrow S_0 + D$	Dégradation par une impureté D	

TABLE 1.5 – tableau (non exhaustif) récapitulatif des principaux processus possibles de relaxation des porteurs de charges

Processus	Temps caractéristiques (s)
Absorption	10^{-16}
ionisation directe	$10^{-16} - 10^{-15}$
Autoionisation	$10^{-14} - 10^{-13}$
Création des excitons, paires électrons-trous	$10^{-14} - 10^{-13}$
Thermalisation des électrons	10^{-14}
Durée de vie des états S_n ($n > 1$)	$10^{-14} - 10^{-12}$
Relaxation vibrationnelle intramoléculaire	$10^{-13} - 10^{-11}$
Fluorescence ($S_1 \rightarrow S_0$)	$10^{-9} - 10^{-10}$
intercombinaison non radiative	$10^{-10} - 10^{-8}$
Conversion interne	$10^{-11} - 10^{-9}$
phosphorescence	$10^{-6} - 1$ (<i>et plus</i>)

TABLE 1.6 – Temps caractéristique des différents processus consécutifs à une irradiation en milieu organique

S_0 . L'évolution des états S_1 au cours du temps s'effectue selon une loi exponentielle avec une constante de vitesse de décroissance, τ_f , caractéristique du milieu scintillant. Nous rappelons ici que la phosphorescence, correspondant à la désexcitation du premier état triplet ne se situe généralement pas à la même longueur d'onde, et que sa constante de temps τ_p est bien supérieure à celle de la fluorescence (généralement de quelque ms jusqu'à quelques heures pour les composés organiques) [47]. Le tableau 1.6 résume les échelles de temps mises en jeu.

Pour définir l'efficacité de fluorescence d'une molécule scintillante on doit connaître les différents rendements radiatifs et non radiatifs de celle-ci (voir figure 1.14). En effet, s'il existe plusieurs canaux de relaxation de l'énergie emmagasinée lors d'une interaction, tous ne mènent pas à l'émission de photons. Ces différents canaux de relaxation sont consignés dans la figure 1.14 et peuvent être expliqués par le principe de transitions de *franck-Condon* (voir annexe 2). On peut noter pour certaines molécules, telle l'anthracène ou le paraterphényle, une efficacité de fluorescence pouvant aller jusqu'à 80% [48] pour les scintillateurs les plus efficaces. Deux quantités permettent généralement de décrire l'émission de fluorescence : la luminescence spécifique, $\frac{dL}{dx}$, et l'efficacité de luminescence, $\frac{dL}{dE}$. Nous nous concentrerons sur la description de la première quantité qui est beaucoup plus facilement mesurable avec les techniques actuelles et donnant de précieuses informations. Les expériences développées dans cette étude ont comme observable physique, le photon de fluorescence émis après une interaction entre un rayonnement chargé et un milieu fluorescent organique. Il est donc important de définir les dynamiques temporelles des différentes composantes.

Composante rapide

Le signal rapide dépend de la durée de vie du premier état excité S_1 ainsi que du nombre de molécules présentes dans cet état. Les équations 1.44 et 1.42 prédisent

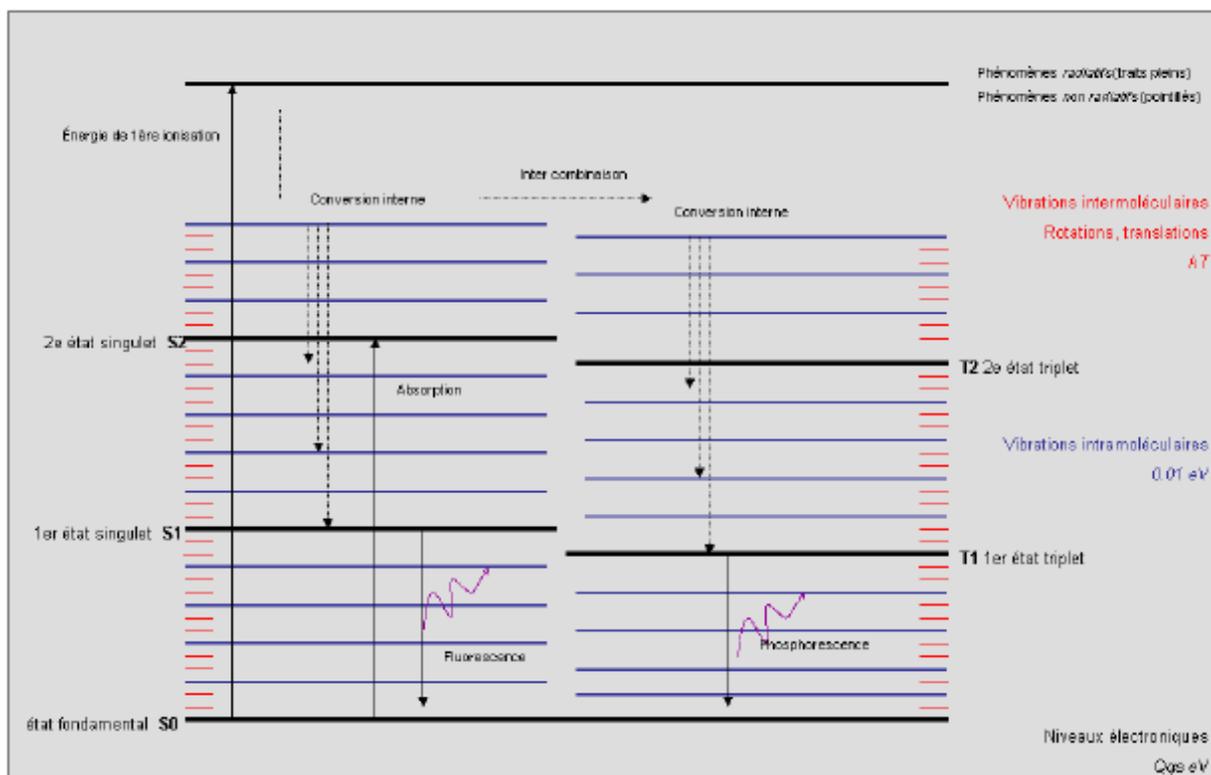


FIGURE 1.14 – Illustration du diagramme de Perrin-Jablonski

déjà leurs nombres ; il faut maintenant expliciter leurs dynamiques de désexcitation temporelle. En notant η_s le rendement quantique de fluorescence de l'état singulet et en introduisant la notion de constante de temps de fluorescence, τ_s , de l'état S_1 , on peut écrire :

$$\eta_s = k_s \tau_s, \quad (1.49)$$

où :

$$\tau_s = [k_s + k'_s + k''_s]^{-1}. \quad (1.50)$$

La loi d'évolution des états singulets S_1 est alors donnée par :

$$N_s(t) = N_s(0) \exp\left(\frac{-t}{\tau_s}\right), \quad (1.51)$$

Ce qui conduit à écrire l'évolution de la fluorescence rapide par :

$$I_p(t) = \eta_s N_s(t). \quad (1.52)$$

Composante lente

L'équation 1.46 explicite le nombre de paires électrons trous formés dans l'état triplet le long du parcours d'une particule ionisante. Notons $R(t)$ le taux de recom-

binaison des paires et $\rho_s(t)$ la probabilité pour que cette recombinaison donne lieu à un état singulet. L'observable physique de luminescence qui en découle peut alors s'exprimer comme :

$$I_d(t) = \exp\left(\frac{-t}{\tau_s}\right) \otimes R(t)\rho_s(t)N_0\eta_s; \quad (1.53)$$

et à temps long ($t \gg \tau_s$) :

$$I_d(t) \simeq \eta_s R(t)\rho_s(t). \quad (1.54)$$

La vitesse de recombinaison différée des paires $R(t)$ est définie par :

$$R(t) = 4\pi \int_a^\infty r^2 \lambda(r) n(r, t) dr, \quad (1.55)$$

où $n(r, t)$ est la densité de probabilité de trouver deux paires séparées par une distance r au temps t , $\lambda(r)$ est la probabilité de recombinaison de deux charges géminées séparées par la distance r [49, 50]. La borne inférieure a de l'intégrale représente la distance de plus proche voisin, ou distance minimale, dans le milieu. Pour exprimer la dynamique temporelle de $n(r, t)$ l'équation cinétique la plus justifiée est une équation de Smoluchowski de transport en champs coulombien mutuel :

$$\frac{\delta}{\delta t} n(r, t) = D_{e,h} \Gamma_r n(r, t) - \lambda(r) n(r, t) - 2kc(t)n(r, t) + n_0(r)\delta(t) \quad (1.56)$$

avec :

$$\Gamma_r = \frac{\delta^2}{\delta r^2} + \left(\frac{2}{r} + \frac{r_c}{r^2}\right) \frac{\delta}{\delta r}, \quad (1.57)$$

et

$$r_c = \frac{e^2}{\epsilon kT}, \quad (1.58)$$

où r_c est le rayon critique d'Onsager et Γ_r l'opérateur différentiel de transport relatif isotrope en champ coulombien mutuel; $D_{e,h} = D_e + D_h$ est la somme des coefficients de diffusion des électrons et des trous [51–55]. Le troisième terme de l'équation représente la neutralisation des paires initiales par les charges environnantes où $c(t)$ représente la concentration des espèces, positives et négatives et k est une constante. Enfin $n_0(r)$ est la fonction de distribution initiale résultant des processus primaires d'ionisation et de relaxation des paires de porteurs chauds (lorsque l'énergie de ces paires est supérieure à l'agitation thermique du milieu). Ainsi, le dernier terme $\delta(t)$ s'annule pour des temps différents de 0. En se reportant à l'équation 1.56 nous pouvons séparer deux régimes : un régime statique dans lequel on considère le mouvement des molécules du milieu comme négligeable par rapport aux mouvements de diffusion des électrons qui se déroulent par "hopping" et un régime où les considérations de mouvement des molécules du milieu peuvent être pris en compte, spécialement à temps long.

- *Le régime statique*

On considère deux zones d'ionisation au sein d'une trace : la zone saturée (forme cylindrique autour de la direction principale de l'ion incident) ; la zone dite de "halo" telle que décrite dans la section 2.6 de ce chapitre.

Pour la zone de faible densité d'ionisation, on néglige le terme diffusif dans l'équation 1.56 ainsi que le terme de recombinaison multipaires ($2kc(t)n(r, t)$). L'équation 1.56 se résume donc à :

$$\frac{\delta}{\delta t}n(r, t) = -\lambda(r)n(r, t), \quad (1.59)$$

laquelle se résout aisément et donne, avec $n(r, t = 0) = n_0(r)$:

$$n(r, t) = n_0(r)e^{-\lambda(r)t}. \quad (1.60)$$

Selon 1.55, on a alors :

$$R(t) = 4\pi \int_a^\infty r^2 \lambda(r) n_0(r) e^{-\lambda(r)t} dr, \quad (1.61)$$

compte tenu de 1.60, on obtient dans la zone de faible densité d'ionisation :

$$R(t) = At^{-(\frac{r_0}{b}+1)}, \quad (1.62)$$

où b est la distance de thermalisation des électrons.

Le régime à forte densité d'ionisation est, quant à lui, décrit par l'équation :

$$\frac{\delta}{\delta t}n(r, t) = -[\lambda(r) + 2kc(t)]n(r, t), \quad (1.63)$$

où $c(t)$ peut se mettre sous la forme de :

$$c(t) = \frac{c_0}{1 + 2kc_0t}, \quad c_0 = c(t = 0). \quad (1.64)$$

L'expression de $R(t)$ devient alors :

$$R(t) = \frac{1}{1 + 2kc_0t} 4\pi \int_a^\infty r^2 \lambda(r) n_0(r) e^{-\lambda t} dr \quad (1.65)$$

soit en considérant :

$$R(t) \propto Bt^{-(r_0/b+2)} \quad \text{et} \quad B = A/(2kc_0). \quad (1.66)$$

- *Le régime diffusif*

Dans ce régime on ne prend en compte dans l'équation 1.56 que les termes de diffusion. D'après les travaux de Munier [56] la vitesse de recombinaison est donnée par :

$$R(t) = \left(\frac{r_c^2}{4\pi D_{e,h}} \right)^{\frac{1}{2}} t^{-\frac{3}{2}} Q_{e,h}, \quad (1.67)$$

où

$$Q_{e,h} = 4\pi \int_a^\infty r^2 n_0(r) e^{-\frac{rc}{r}} dr. \quad (1.68)$$

représente le rendement de non-recombinaison de la paire. Ce facteur a été largement vérifié avec des photons de basses énergies (VUV) irradiant des liquides aromatiques.

3.2 Autres modèles de scintillation en fonction du TLE

De manière générale, tous les modèles de scintillation prédisent une diminution de l'efficacité de luminescence avec l'augmentation du dépôt d'énergie par unité de longueur. Ceci est lié à l'existence d'une zone dite de saturation, centrée autour de la trajectoire de la particule incidente. Historiquement le premier à avoir rendu compte du phénomène est BIRKS, en 1960 [5]. Il met en corrélation de manière empirique l'émission de luminescence spécifique et le TLE, selon une loi du premier ordre :

$$\frac{dL}{dx} = \frac{A \frac{dE}{dx}}{1 + kB \frac{dE}{dx}}, \quad (1.69)$$

où $A \frac{dE}{dx}$ est le nombre d'excitons radiants produits par unité de longueur, $B \frac{dE}{dx}$ la concentration locale de molécules endommagées par molécules actives susceptibles d'émettre un photon de fluorescence et k , la probabilité de capture d'un exciton par une molécule endommagée. Les premières expériences menées par Birks ont donné des valeurs de $A = 82,5$ et $kB = 7,15$ pour des cristaux d'Anthracène. Cette expression, relativement simple et efficace pour les faibles pouvoir d'arrêt, ne rend pas compte de la saturation spécifique à chaque type de particule. En effet, l'émission de luminescence dépend non seulement du dépôt linéique d'énergie, mais aussi de la charge Z_{eff} de la particule incidente [57–59]. Il est intéressant de noter que cette saturation peut avoir lieu dans les scintillateurs inorganiques. Wright [60] et Chou [61] ont amélioré cette équation en tenant compte des réactions bimoléculaires en introduisant un facteur correctif empirique C :

$$\frac{dL}{dx} = A \ln \left(1 + B \frac{dE}{dx} \right), \quad (1.70)$$

$$= \frac{\frac{dE}{dx}}{A + B \frac{dE}{dx} + C \left(\frac{dE}{dx} \right)^2}. \quad (1.71)$$

Une approche moins empirique se devait d'être menée afin de prendre en compte l'effet de la charge effective de la particule incidente. C'est dans ce but qu'a été

développée la notion de *dose radiale* (section 2.6) qui rend compte du nombre d'électrons secondaires créés, de leurs densités de production volumique, ainsi que de leurs énergies. Le modèle développé par Katz et Kobetich, hérité de la théorie de la cible, donne la probabilité d'excitation selon une loi exponentielle dépendante de la dose :

$$\frac{dL}{dx} = C' \int_0^{\infty} \left(1 - \exp\left(\frac{-\rho(r)}{\rho_0}\right)\right) 2\pi r dr \quad (1.72)$$

ρ_0 étant la dose limite d'activation des centres lumineux, $\rho(r)$ la dose reçue par le milieu à une distance r de la trace initiale et C' un facteur empirique de correction. Ce modèle rend compte de l'importance du Z_{eff} mais reste limité aux ions lourds, des divergences expérimentales avec les ions légers ayant été mesurés [32]. Muga et al. [62] ont développé une approche similaire, mais sans prendre en compte la corrélation qui pourrait exister entre le TLE des électrons secondaires et l'activation des centres lumineux dans la matière. Historiquement, c'est en 1994 que Michaelian et Menchacca-Rocha proposent leur nouveau modèle basé, comme pour Birks, sur le TLE, prenant en compte l'émission radiale d'énergie générée par les électrons secondaires. Ce modèle a été largement testé sur des scintillateurs inorganiques ce qui, de fait, le rend plus hasardeux pour décrire la scintillation en milieu organique. Néanmoins les prédictions des résultats de luminescence, notamment concernant le CsI⁸, NaI⁹, BGO¹⁰ et BaF₂¹¹ sont les meilleures à ce jour. Les dernières modifications, qui ont été apportées en 2009 [38], proposent une approche simplifiée du phénomène afin d'être plus facilement utilisable à des fins de simulation. Ils s'appuient sur l'équation 1.34 développée dans la section 2.6. Tout comme les autres modèles, ils prévoient un rayon de saturation r_q , en deçà duquel l'apport supplémentaire d'énergie ne permet pas d'activer davantage de centres luminescents (voir figure 1.10). Dans ce cas on peut alors expliciter la luminescence spécifique selon :

$$\frac{dL}{dx} = C'' \left[\pi \rho_q (r_q^2) + \int_{r_q}^{R_{max}} \rho(r) 2\pi r dr \right]. \quad (1.73)$$

Cette dernière équation ne peut être résolue analytiquement dans le cas des scintillateurs organiques. Pour pallier à ce problème, une approche simplifiée, considérant que la saturation n'apporte qu'une petite modification de la luminescence émise, permet d'obtenir la forme :

$$\frac{dL}{dx} = C'' \frac{dE}{dx} \left(1 - \frac{dI/dx}{C'' dE/dx}\right), \quad (1.74)$$

où $\frac{dI}{dx}$ représente la quantité d'énergie qui est responsable de la saturation, celle qui est "en trop" et C'' un facteur correctif empirique. Dans cette région le dépôt

8. Iodure de césium

9. Iodure de sodium

10. Germanate de bismuth

11. Fluorure de Baryum

d'énergie des électrons secondaires prend une forme différente :

$$\frac{dE_q}{dx} = 4\pi D \left[\ln \left(\frac{(T_{max} T_q)^{1/2}}{I} \right) - \frac{\beta^2}{2} \left(1 + \frac{T_q}{T_{max}} \right) - \frac{\delta}{2} \right]. \quad (1.75)$$

Nous pouvons alors expliciter la seconde partie de l'équation 1.74 en fonction de $\frac{dE_q}{dx}$:

$$\frac{dI/dx}{C'' dE/dx} = \left[\frac{dE_q}{dx} - \pi r_q^2 \rho_q \right] (dE/dx)^{-1}. \quad (1.76)$$

Il est à noter que l'équation 1.75 a besoin d'une correction lorsque l'on quitte le domaine de validité de l'équation de Bethe-Bloch 1.11, c'est à dire aux énergies faibles. Nous pouvons exprimer la luminescence spécifique dans deux domaines de dépôt d'énergie :

- Aux énergies élevées :

$$\frac{dL}{dx} = C'' \left[\frac{dE}{dx} - \left(\frac{dE_q}{dx} - \pi r_q^2 \rho_q \right) \right], \quad (1.77)$$

avec :

$$r_q = \left[\left(\frac{n \rho_q}{D} \right)^{1/2} + \frac{1}{R_{max}} \right]^{-1}. \quad (1.78)$$

- Aux énergies faibles :

$$\frac{dL}{dx} = C'' \left[\frac{dE}{dx} - \left(\frac{dE_q}{dx} - \pi r_q^2 \rho_q \right) (dE_{bb}/dx)^{-1} \right]. \quad (1.79)$$

4 Rappels sur les scintillateurs organiques

Dans cette section, nous nous intéresserons plus particulièrement aux scintillateurs organiques. Nous appelons scintillateurs organiques, tout matériau fluorescent composé, majoritairement, d'atomes de carbone, qui émet, généralement, des photons dans le domaine du visible (typiquement de 350 à 600 nm) lorsqu'il est soumis à une radiation. Il existe trois grandes familles de scintillateurs organiques : les cristaux organiques (Anthracène, Trans-Stilbène, Naphtalène, etc..), les liquides organiques, (Solvant : xylène, toluène, benzène, Soluté : p-Terphényle, PBD¹², PPO¹³, POPOP¹⁴ en concentration classique de quelques $10^{-3} mole/L$) et les plastiques scintillants (Solvant : polivinyltoluène, polyphénylbenzene, polystyrène, Soluté : PBD, p-terphényl, PBO, POPOP en concentration classique de 10g/L). Historiquement, les scintillateurs ont commencé à être utilisés au début du siècle dernier dans les expériences de diffusion de particules α (*Crooks et Geiger 1903*). De manière générale, tous ces composés organiques exploitent les propriétés de la molécule de Benzène et plus précisément les propriétés des électrons délocalisés de la liaison π . On observe

12. 2-phényl-5-(4-biphényle)-1,3,4-oxadiazole

13. 2,5-diphényloxazole

14. 1,4-bis-[2-(5-phényloxazolyle)]-benzène

Cristal	Formule chimique	Densité	Indice optique	Rendement relatif	$\lambda_{\text{émission}}$
Anthracène	$C_{14}H_{10}$	1,25	1,62	100	447
Trans-stilbène	$C_{14}H_{12}$	1,16	1,62	50	410
Naphtalène	$C_{10}H_8$	1,16	1,58	80	430

TABLE 1.7 – résumé des propriétés de différents cristaux organique

généralement que ces composés sont transparents à leur propre lumière d'émission ce qui est rendu possible grâce à l'écart de leurs états vibrationnels à faibles énergies. Le tableau 1.7 rappelle succinctement quelques propriétés physico-chimiques de cristaux organiques. Il est intéressant de noter que pour ce type de cristaux et spécialement pour l'anthracène la production d'un photon visible détectable nécessite l'apport de 60 eV , ce qui en fait une des substances les plus efficaces quant à la production de photons. A dépôt d'énergie égal, il est encore plus efficace que les cristaux inorganiques. Malheureusement l'utilisation de grands volumes d'un tel matériau (monocristaux) n'est pas envisageable et, de plus, ces cristaux sont hydroscopiques et nécessitent le plus souvent un encapsulage pour permettre de les utiliser comme scintillateur. Les plastiques en revanche offrent d'autres avantages : ils sont facilement usinables et peu coûteux. L'obtention de grands volumes ne pose pas de problèmes majeurs (ce qui n'est pas le cas des cristaux inorganiques), leur réponse temporelle est rapide (de l'ordre de la nanoseconde) et on estime généralement qu'il faut un apport de 100 eV par photon visible émis. Ceci en fait un bon compromis pour un usage en dosimétrie médicale.

Le Paraterphényle (p-TP) L'étude qui va suivre portera en partie sur le paraterphényle que nous utiliserons en tant que scintillateur modèle, sous forme cristalline, mais aussi afin d'étalonner nos prototypes de mesure. Ces cristaux ont été obtenus par la méthode de Bridgman après purification du composé par la technique de fusion de zone [63]. Ce composé a un important rendement de scintillation et un temps de vie de fluorescence très court (quelques nanosecondes) en regard des cristaux inorganiques. Cette dernière propriété est essentielle, car l'observation expérimentale résultera de la convolution par une expérience de la réponse du milieu. Plus le temps de vie sera court, plus cette convolution reflètera la réponse intrinsèque du milieu. De plus ce cristal a de nombreuses fois été étudié au sein de notre unité de recherche, notamment des études sous irradiation VUV¹⁵, qui ont permis de déterminer avec précision le temps de vie de fluorescence qui est de $3,8 \text{ ns}$. Voltz et al. ont également pu mettre en évidence une énergie de seuil, à partir de laquelle l'ionisation produit une composante différée, à $8,0 \pm 0,2 \text{ eV}$ pour le p-TP cristallin et à $8,5 \pm 0,2 \text{ eV}$ pour une solution de p-TP à 10^{-3} Molaire . Les auteurs soulignent néanmoins une incertitude quant à l'interprétation de ces résultats notamment liés au fait que le seuil d'ionisation du solvant n'est pas connu avec précision.

15. visible, ultra-violet

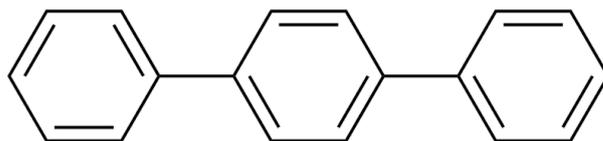


FIGURE 1.15 – Molécule de Paraterphenyl

Scintillateur plastique : le BC-418[©] Il s'agit du plastique scintillant de référence qui sera utilisé lors de nos expérimentations futures (voir chapitre 2). Commercialisé par la société Bicron-St Gobain, il est composé d'une base de PVT¹⁶ (voir annexe 4.9(c)) et contient, à priori, deux solutés scintillants : le p-TP, ainsi qu'un dérivé de la famille des oxadiazoles (2,5-bis(styryl-4)-oxadiazole). Il présente un front d'absorption de 220nm à 240nm, de 266nm à 280nm et autour de 307nm ; le maximum d'émission se situe vers 360 nm [27]. Son temps de vie est relativement court (environ 5ns), sa mise en forme et son polissage facile ainsi qu'un coût de production faible, en fait un bon candidat pour nos expériences. En outre, d'après [64, 65], la combinaison de deux facteurs en font un candidat idéal pour une utilisation en dosimétrie : une densité et une composition chimique similaire aux tissus humains. Ces deux facteurs permettent d'envisager l'étude de la dosimétrie d'un large éventail de rayonnements ionisants. Nous reviendrons, dans le chapitre 3, sur les caractéristiques techniques, ainsi que sur les enjeux qu'offre la dosimétrie utilisant des plastiques scintillants dans le domaine médical.

5 TLE et effets radiobiologiques (RBE)

Il est difficile de prédire les effets qu'auront différents types de radiation sur la matière vivante. Cela est dû aux imprécisions des modèles existants qui s'appuient essentiellement sur le TLE afin de décrire les effets des rayonnements ionisants. Historiquement, les premiers essais menés dans le cadre de l'hadronthérapie l'ont été avec des neutrons. Les premiers résultats obtenus étaient prometteurs quant à l'efficacité des neutrons pour provoquer des dégâts biologiques irréparables. Mais leurs défauts résidaient dans le fait que leurs dépôts d'énergie sont linéaires dans la matière et que par conséquent, pour des protocoles impliquant des tumeurs profondes trop de tissus sains étaient lésés. L'utilisation d'ions carbonés se révéla alors plus prometteuse : Profil de TLE permettant d'épargner les tissus sains et RBE élevé. Quelques équipes [4,66–68] ont tenté d'expliquer les dégâts biologiques engendrés par l'exposition à des rayonnements ionisants. Le problème est complexe pour plusieurs raisons. Tout d'abord la nature des rayonnements peut varier (photons, neutrons, particules chargées), ce qui entraîne un dépôt d'énergie différent pour chaque type de rayonnement. Ensuite le TLE, traditionnellement utilisé pour décrire le dépôt d'énergie d'une particule chargée n'est pas corrélé de manière triviale au RBE. Enfin,

16. Polyvinyltoluène

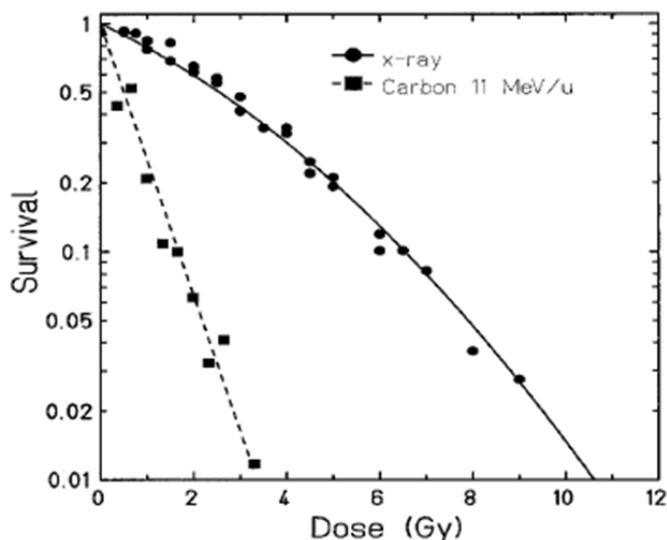


FIGURE 1.16 – Probabilité de survie d’un type de cellule en fonction de la dose reçue pour des protons et des rayons X [4]

le fait d’irradier de la matière vivante implique de considérer les spécificités de la matière biologique : grande variété des tissus, réparation cellulaire, etc... . Ceci rend les protocoles expérimentaux plus complexes car on ne peut se limiter à des expériences sur des échantillons *in situ*.

Kraft et co ont clairement montré (voir figure 1.16) que la nature des irradiations avait un rôle majeur dans le RBE. A dose équivalente, d’un point de vue macroscopique (en J/kg), les effets biologiques peuvent varier sensiblement. Ils ont également mis en lumière la non-linéarité qui pouvait exister entre RBE et TLE pour une particule chargée.

6 Conclusion

Parmi tous les modèles de fluorescence induite par des ions, seul Voltz [39] propose un modèle complet permettant de simuler les composantes rapides et différées. Les quelques données expérimentales présentes dans la littérature [69] confirment que le rapport différée/rapide augmente avec le transfert linéique d’énergie. Par contre, on constate qu’il n’existe aucune donnée sur les plastiques scintillants couramment utilisés (à base de PVT). Les autres modèles proposent une approche globale qui prédit une saturation du rendement de fluorescence avec le TLE. Les nombreuses données expérimentales obtenues sous irradiation continue confirment ce phénomène de saturation.

"Elle se vend aux autres
Braves gens, braves gens
Elle se donne à moi
C'est immoral et c'est comme ça"

Georges Brassens

2

Approche expérimentale

1 Introduction

Historiquement, la *radiolyse*, ou décomposition de l'eau par un rayonnement ionisant, est un phénomène connu depuis le début du XX^{ème} siècle. En 1908, le chimiste André-Louis Debierne démontra que la radiolyse de l'eau peut avoir lieu sans contact avec le radioélément [70–72]. Enfin il émit l'hypothèse que l'eau se décompose en radicaux libres sous l'effet des rayonnements ionisants. La fiabilité et l'essor des possibilités offertes par les accélérateurs, depuis les années 1930, marquèrent le début d'un engouement grandissant pour l'étude des rayonnements ionisants sur la matière (liquide, solide, cristalline, organique). Ces premières observations se faisaient sans prendre en compte l'aspect temporel des mécanismes physiques mis en jeu. C'est à partir de 1952, que des expériences spécifiques, basées sur une irradiation périodique des échantillons ont été développées. Avec les progrès de l'électronique, les premiers dispositifs de radiolyse pulsée virent le jour dans les années 1960 : l'étude temporelle des effets des rayonnements ionisants était née [73, 74]. Birks et Voltz ont beaucoup utilisé ce principe de mesure, pour étudier de manière très fine, la cinétique des phénomènes de scintillation.

Aujourd'hui nous pouvons évoquer les lasers femto-seconde qui permettent de sonder à une échelle temporelle très fine les mécanismes de relaxation de l'énergie déposée dans la matière. Dans ce cas de figure, l'élément limitant de l'expérience se situerait plutôt au niveau du détecteur. Effectivement les meilleurs détecteurs luminescents ont une résolution de l'ordre de la picoseconde (détecteurs basés sur les semi-conducteurs). Un autre facteur limitant dans ce type d'expérience se situe au niveau de la source d'excitation pulsée qui doit répondre à deux contraintes. Un taux de répétition suffisamment élevé afin que le temps d'acquisition se fasse en un temps

raisonnable (de l'ordre d'une semaine dans les cas les plus extrêmes), mais il faut également que la durée d'excitation soit la plus brève possible. Aux faibles énergies (UV, rayonnement X "mou" et particules de quelques MeV), des sources existent : synchrotron et système de pulsing adaptés aux accélérateurs de particules. Mais lorsque l'on souhaite augmenter l'énergie d'excitation, les systèmes permettant de produire un rayonnement périodique ne sont plus adaptés, notamment à cause d'une durée d'excitation beaucoup trop longue. C'est dans cette optique qu'une méthode spécifique de TCSPC utilisant des sources d'excitations continues a été développée. Dans le chapitre précédent nous avons insisté sur le manque de données expérimentales sur les composantes lentes et différées de la fluorescence radioinduite. Il est donc nécessaire de développer des méthodes expérimentales résolues en temps afin de comprendre les mécanismes de recombinaison des paires électrons-trous à l'origine de la fluorescence différée. Nous avons ainsi développé une approche originale permettant d'étudier la fluorescence résolue en temps sous irradiation continue. Cette approche a été validée par comparaison avec une méthode basée sur une irradiation pulsée développée antérieurement au sein de notre unité de recherche par Munier [56]. Cette approche a permis d'étudier la composante différée des matériaux sous irradiation γ , impossible, à l'heure actuelle de pulser, de manière satisfaisante. Nous présenterons alors les conclusions d'une étude sur la discrimination neutron/ γ de nouveaux matériaux, basé sur cette nouvelle plateforme de mesure. Elle a servi à valider, dans le cadre du projet NEUTROMANIA [75], les résultats présentés dans un brevet [76] concernant de nouvelles molécules scintillantes consacrées à la discrimination.

2 Principe de mesure

2.1 Mesure par comptage de photon unique corrélée en temps (TCSPC)

Le principe de la mesure repose sur le fait que la distribution de probabilités d'émission d'un seul photon, à la suite d'une excitation impulsionnelle, reproduit la véritable distribution de l'intensité en fonction du temps de tous les photons émis (figure 2.1). L'échantillonnage d'un grand nombre d'évènements, au cours du temps, permet de reconstruire cette distribution de probabilités. En partant de cette idée, plusieurs contraintes apparaissent, liées à toutes mesures résolue en temps. Tout d'abord, il est nécessaire de disposer d'un bon signal synchrone de l'instant de l'excitation ; ceci afin de bien pouvoir fixer expérimentalement l'instant initial de l'excitation de l'échantillon. Ensuite il est indispensable que la détection soit en mesure de comptabiliser ; de façon individuelle l'émission au cours du temps, de chaque photon issu de l'excitation. Ceci implique l'utilisation d'un PM (Photomultiplicateur) en régime de comptage de photon unique (voir annexe 1).

L'observable mesurée est l'intensité de fluorescence reçue par la photocathode, cette intensité est en fait un produit de convolution de trois fonctions distinctes :

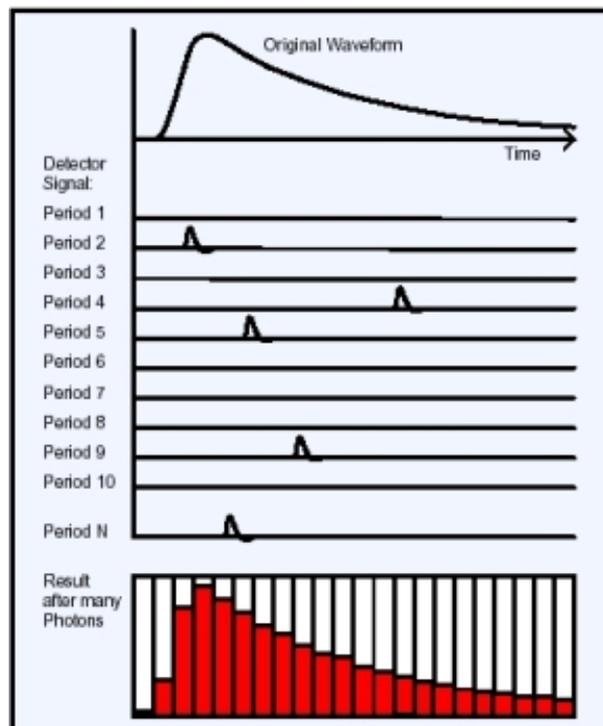


FIGURE 2.1 – Reconstruction de l'intensité de fluorescence, en fonction du temps, à l'aide de la technique TCSPC

$$I(t) = S(t) \otimes i(t) \otimes h(t) \quad (2.1)$$

où $S(t)$ la fonction de réponse à une excitation de l'échantillon, $h(t)$ la fonction de réponse de la chaîne de mesure électronique et $i(t)$ l'intensité de fluorescence effectivement émise. En considérant que les événements de scintillation ne dépassent pas 100 kHz on peut négliger le chevauchement entre deux événements. $h(t)$ est une distribution nanoseconde, néanmoins l'optimisation de ce paramètre sera évoqué dans le chapitre 3. $I(t)$ est l'observable qui nous intéresse, elle reflète le déclin de fluorescence, à conditions que $S(t)$ et $h(t)$ soient courts devant le temps de réponse de l'échantillon, ce qui est le cas :

$$I(t) \simeq i(t) \text{ pour } t > 1ns \quad (2.2)$$

Incertitudes

Les incertitudes entraînées par ce type de méthode de mesure peuvent se résumer à trois points :

- En ce qui concerne les incertitudes en amplitude, et en considérant une distribution poissonnienne, l'écart type σ est défini comme \sqrt{N} avec N le nombre d'évènements dans un canal. Ainsi, l'incertitude relative est de la forme $\frac{\sqrt{N}}{N}$. Par exemple, si l'on compte 1000 évènements dans un canal, l'incertitude re-

relative sera environ égale à 3%. Par contre, si l'on compte 10^6 évènements dans un canal, l'incertitude relative sera de 0.1%.

- Lorsque l'on intègre les différentes composantes, comme c'est le cas dans la section 4.1, l'incertitude relative sera égale à :

$$\frac{\sqrt{\sum_{i=a}^b N_i}}{\sum_{i=a}^b N_i}, \quad (2.3)$$

pour un intervalle d'intégration $k=[a,b]$ et où N_i est le nombre d'évènements dans le canal i .

- Les incertitudes théoriques sur les différents paramètres d'un déclin de fluorescence, à savoir, les ajustements sur les composantes lentes et rapides et les intégrales sur les composantes lentes et rapides, sont définies en tenant compte des calculs qui viennent d'être présentés. Les incertitudes expérimentales ont été déterminées en comparant les résultats obtenus pour plusieurs expériences, réalisées dans les mêmes conditions.

2.2 Excitation par particules chargées

Pour mesurer la fluorescence de recombinaison des paires électrons-trous produites sous un faisceau de particules chargées de quelques MeV il est possible de hacher ce faisceau à l'aide d'un dispositif générateur d'impulsion nanoseconde. Ce montage simple délivre des *impulsions* de particules, avec une dispersion temporelle nanoseconde, et permet l'étude des déclins de fluorescence sur un large domaine temporel allant de la nanoseconde à la microseconde. Le principal avantage d'un montage de ce type est de pouvoir s'adapter sur un accélérateur de particules de façon très simple. La méthode utilisée est une *pulsation externe*. Le faisceau incident est défléchi en permanence à l'aide d'une induction magnétique \mathbf{B} , puis est ramené de manière périodique grâce à un champ électrique \mathbf{E} devant une fente fine (quelques mm), comme le montre la figure 2.2.

Le montage est constitué de 4 parties :

- Un collimateur d'entrée, composé de deux diaphragmes de 0.3 mm de diamètre en tantale. Ce matériau est résistant aux hautes températures engendrées par l'impact et l'absorption locale des particules constituant le faisceau incident. Celui-ci a pour but de produire une dispersion spatiale quasi ponctuelle du faisceau.
- Un électroaimant, délivrant un champ magnétique statique orthogonal à la trajectoire des particules, permettant de diriger le faisceau en dessous de la fente de sortie.
- Une lampe à décharge dans l'hydrogène délivrant une haute tension impulsionnelle sur des plaques de déviation (kV/ns). Ces décharges sont délivrées à une fréquence stable d'environ 30kHz.
- une fente de sortie derrière laquelle est placé l'échantillon à étudier. Cette fente

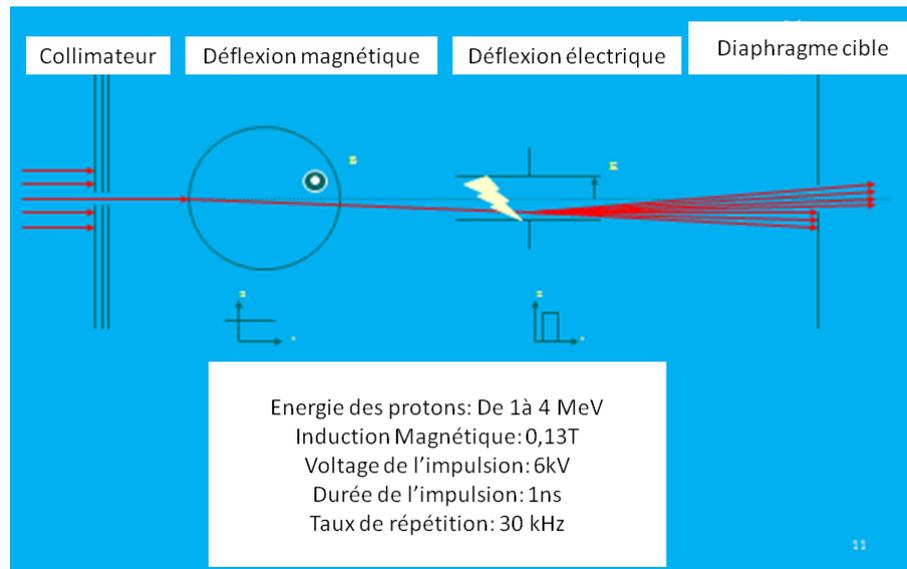


FIGURE 2.2 – Schéma de principe de fonctionnement du générateur à impulsions

est balayée par le faisceau lors du redressement par le champ électrique.

La principale originalité de ce montage repose sur l'utilisation d'une lampe à décharge dans l'hydrogène [77] capable de délivrer une haute tension aux plaques de déflexion en même temps qu'un signal électrique synchrone servant de déclencheur (start) à la mesure par coïncidences. Cette lampe, constituée de deux électrodes asymétriques, contient du dihydrogène à une pression de l'ordre de 4 atmosphères. Lorsque qu'une tension limite, d'environ 6kV, est appliquée à des électrodes, une décharge a lieu par effet d'avalanche. En choisissant les bonnes conditions, il est possible d'obtenir des pics de tensions de largeur temporelle nanoseconde sur les plaques.

Typiquement, lors de cette étude, la source de rayonnements ionisants était un accélérateur de particules électrostatiques de type *Van de Graff* (4MV au sein de l' Institut d'Électronique du Solide et des Systèmes). Très schématiquement son principe de fonctionnement est le suivant : Une source d'ions, placée en amont d'un tube accélérateur sous vide, est ionisée par une électrode appliquant haute tension. Le long du tube, une courroie isolante, entraînée par un moteur, crée une différence de potentiel entre la cuve et le terminal par déplacement de charges, enceinte terminant le tube accélérateur. Cette courroie est placée dans un gaz isolant (SF6) sous pression afin d'éviter les risques de claquage. La focalisation ainsi que l'acheminement des particules jusqu'au dispositif expérimental est assuré par des aimants quadrupôles et des aimants dipolaires.

La résolution de ce genre d'expérience peut être considérée comme nanoseconde. L'utilisation d'un atténuateur permet d'envoyer le signal délivré par la lampe flash (quelques kV) au discriminateur à fraction constante. Il faut noter ici que nous avons accès à la fréquence de répétition des paquets de particules via plusieurs paramètres : l'intensité du champ magnétique appliqué à la déflexion, la valeur de la différence

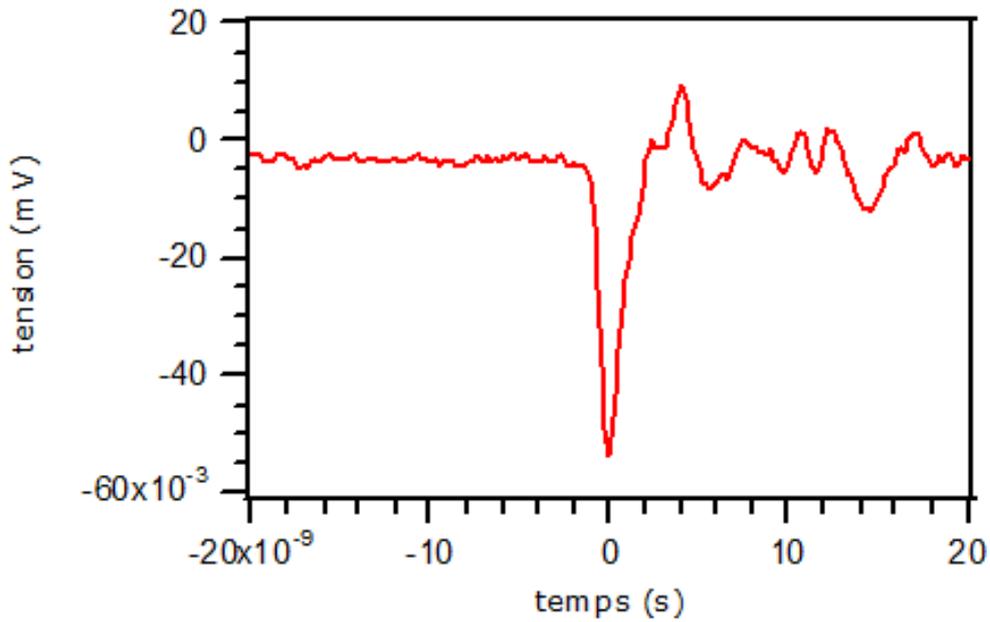


FIGURE 2.3 – Signal électrique obtenu en analysant le système générateur impulsionnel dit de "lampe flash"

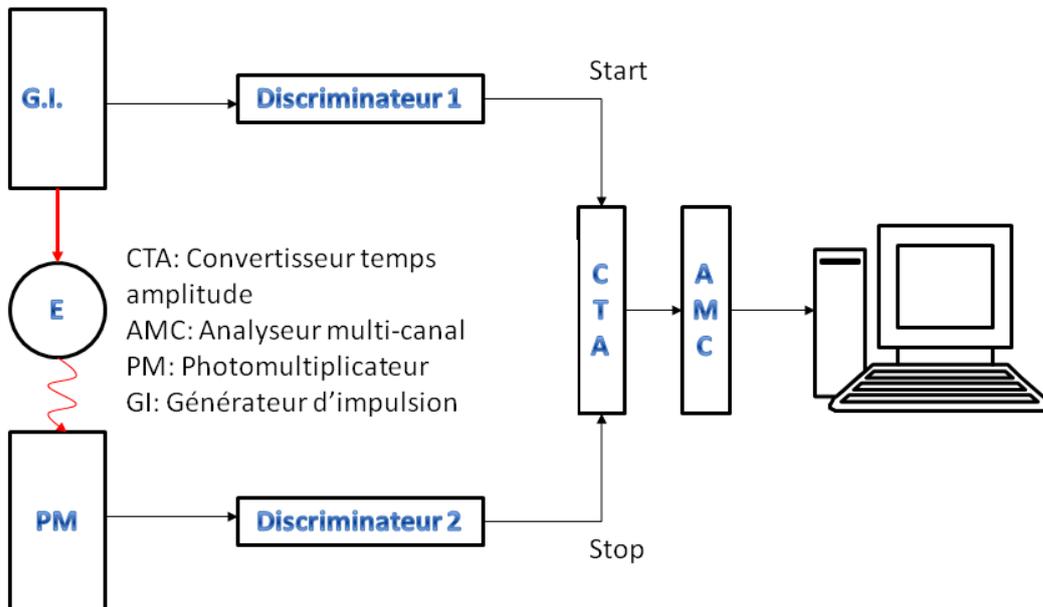
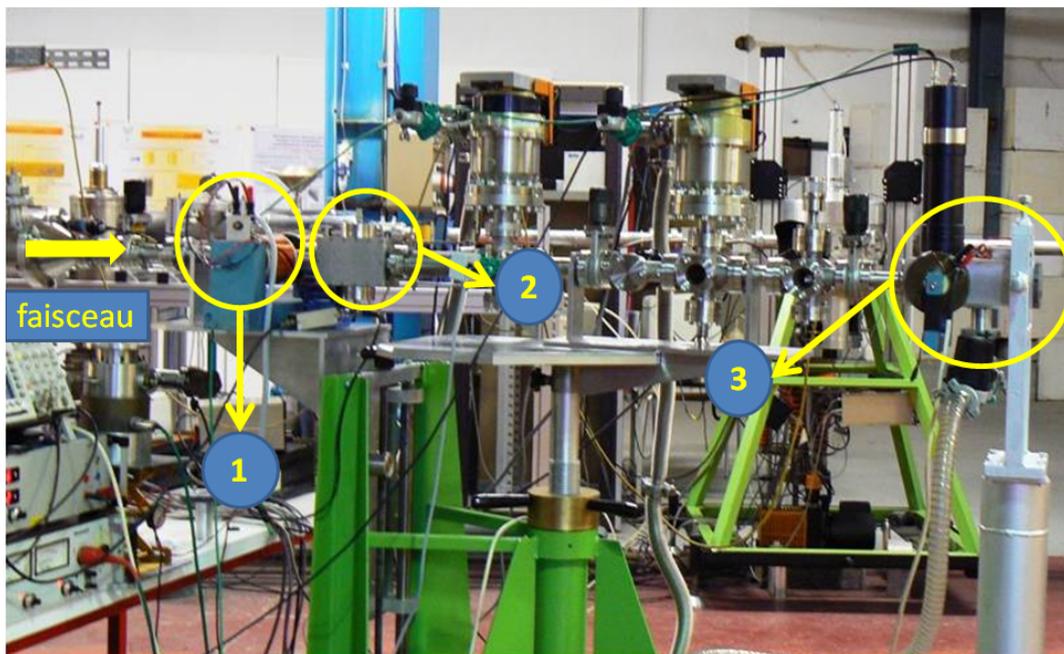


FIGURE 2.4 – Illustration de l'expérience par particules chargées menée au sein de l'INES



(a) Hall expérimental et ligne de faisceau



(b) Expérience : 1) déflexion magnétique ; 2) déflexion électrique ; 3) enceinte de mesure

FIGURE 2.5 – Photographies d'illustration de l'expérience menée avec des particules chargées au sein de l'INESS

de potentiel appliquée aux électrodes de la lampe à décharge et l'écartement des électrodes de celle-ci. Ces paramètres doivent être réglés en fonction de l'énergie (donc de la vitesse) du faisceau de particule ainsi que de la charge des ions qui le compose. Ces réglages, particulièrement longs et délicats, permettent de garantir la reproductibilité des mesures à effectuer.

2.3 Excitation par photons

Les contraintes inhérentes à cette expérience reposent sur le fait que l'on effectue du comptage de photon en corrélation avec un évènement donné d'excitation. L'excitation doit donc être fréquente (source γ à forte activité, par exemple) et l'émission doit être intense (scintillateur très efficace ou de grand volume), de manière à compenser les importantes pertes d'informations liées à l'utilisation d'une technique de coïncidence. Ici, typiquement, la masse du scintillateur, ainsi que sa distance à la source, sont primordiales. La faible quantité de scintillateur généralement utilisée (de l'ordre de 0.5g) nous oblige à employer des sources radioactives dont l'activité est relativement élevée (de l'ordre de $3,7 \cdot 10^7 Bq$). De plus, le fait que le scintillateur soit opaque ou transparent aux photons de fluorescence émis va introduire une contrainte supplémentaire quant au rendement global de celui-ci. De manière générale, une acquisition complète s'effectue en 24h. On estime qu'un stockage de 1 million d'évènements est nécessaire pour reconstruire la courbe de décroissance de manière satisfaisante. La source excitatrice utilisée sera du Cobalt 60, le rayonnement gamma émis par celle-ci possède deux raies caractéristiques de 1173 et 1332 keV. De plus, la section efficace d'interaction ne varie pas de manière notable entre 500 et 1200 keV. Cela nous permettra une bonne approximation de l'efficacité du scintillateur sur une gamme d'énergie assez large. L'échantillon devra se trouver dans une chambre opaque à la lumière du jour afin que les PM ne voient que les photons émis par le scintillateur (figure 2.8). Les deux PM ne sont pas placés de manière symétrique par rapport au scintillateur. Un PM « start » est placé de manière à détecter le maximum d'évènements ayant lieu dans le scintillateur. Le signal électrique délivré correspond à une impulsion intégrant, à la saturation près du PM, l'ensemble de l'émission, de ce fait l'intensité de ce signal permet de reconstruire le spectre en énergie des interactions ayant eu lieu au sein du scintillateur en couplant ces signaux à une carte d'acquisition multicanaux (figure 2.6). Un PM "stop" ne doit voir qu'un seul photon issu de la fluorescence. Il est donc éloigné de l'échantillon et diaphragmé dans sa direction. On a vérifié le fait que ce PM était bien en régime de photon unique en analysant les hauteurs d'impulsions délivrées par celui-ci (figure 2.8).

Le signal électrique brut que nous avons à traiter est celui qui nous est donné par les PM Hamamatsu R-3235 et photonix XP2020 (dont les caractéristiques sont rappelés en annexes 4.2 et 4.3). Ils sont sensibles aux longueurs d'ondes d'émission par nos scintillateurs, typiquement entre 380 et 450nm. Ces PM possèdent une dispersion de temps de transit de leurs signaux de l'ordre de 400ps pour un photon

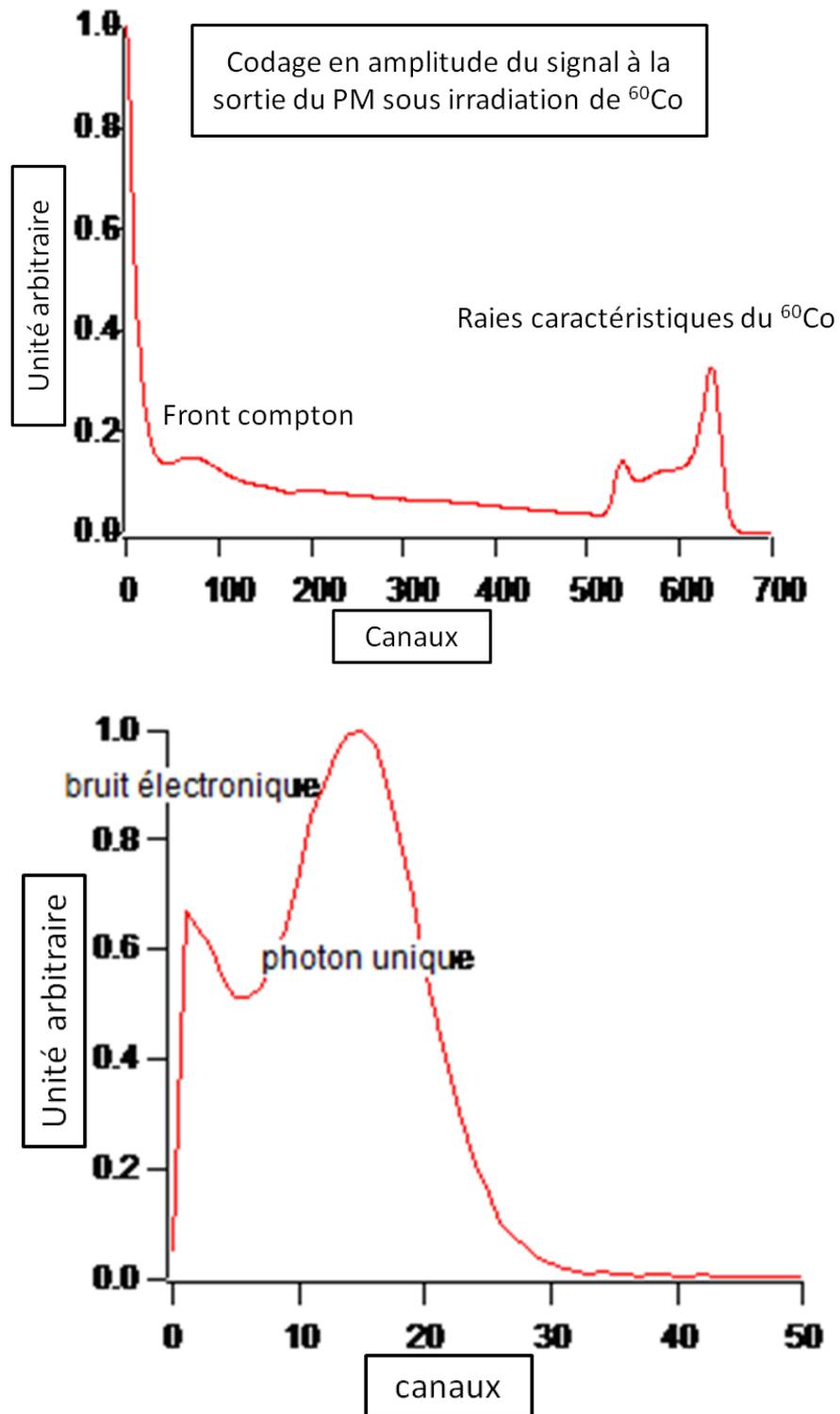


FIGURE 2.6 – Codage avec un analyseur multicanal du signal à la sortie des différents PM (*start* en haut, *stop* en bas)

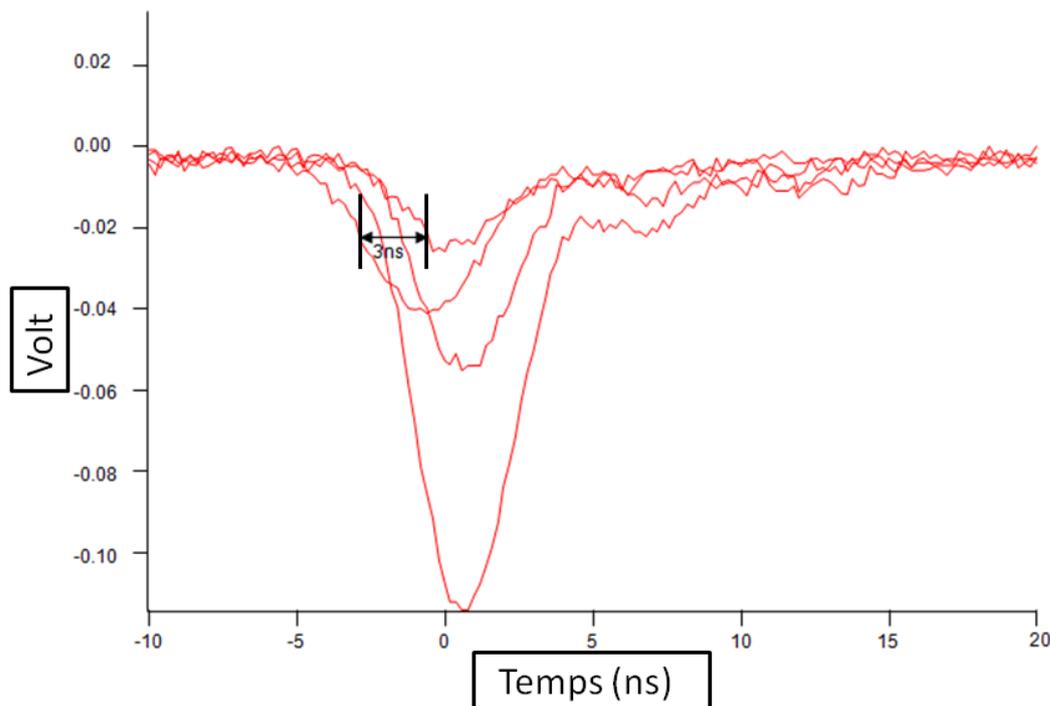


FIGURE 2.7 – Dispersion temporelle du signal du photomultiplicateur

unique reçu. Une utilisation en coïncidence de deux PM impliquera donc une résolution temporelle expérimentale de l'ordre de la nanoseconde. Il faut noter que dans cette configuration la méthode par TCSPC souffre d'une limitation technique : en effet comme l'illustre la figure 2.7, le PM donnant le *start* du chronomètre n'est pas en régime de photon unique afin de pouvoir se déclencher à temps zéro, c'est à dire lorsque l'intensité de fluorescence est la plus élevée. Cela implique une dispersion temporelle plus grande, de l'ordre de 4 à 5 ns. C'est cette limitation qui, lorsque les sources excitatrices nous le permettent, nous pousse à plutôt utiliser la méthode pulsée que celle continue.

Caractéristiques techniques Deux photomultiplicateurs (PM) sont utilisés pour effectuer une mesure de la lumière émise par la méthode dite de TCSPC. Le PM *stop* est un R3235 (voir caractéristiques en annexes 4.3) fabriqué par Hamamatsu dont la fenêtre d'ouverture est d'environ 1cm^2 , le PM *start* est un XP2020 (voir caractéristiques en annexes 4.2) dont la fenêtre d'ouverture est d'environ 24cm^2 . Ces deux PM sont alimentés par une source haute tension de -2kV (ORTEC 556). La coïncidence est enclenchée grâce à des discriminateurs à fractions constantes (ORTEC 584) reliés aux deux PM. Ce temps d'horloge est ensuite convertis (TAC ORTEC 566) en signal interprétable par un analyseur muticanaux (AMC ORTEC). Généralement, pour tenter de pallier à la dispersion temporelle du signal délivré par le PM *start*, le discriminateur à fraction constante dédiée était utilisé en mode *fraction constante*. En effet, l'impulsion start étant très haute (environ 200mV) sa dispersion

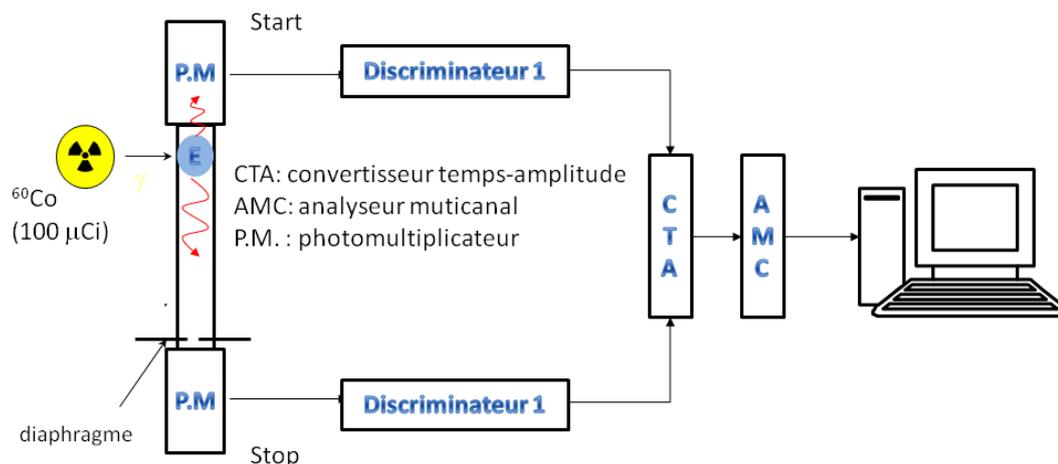


FIGURE 2.8 – Illustration de l'expérience par excitation continue

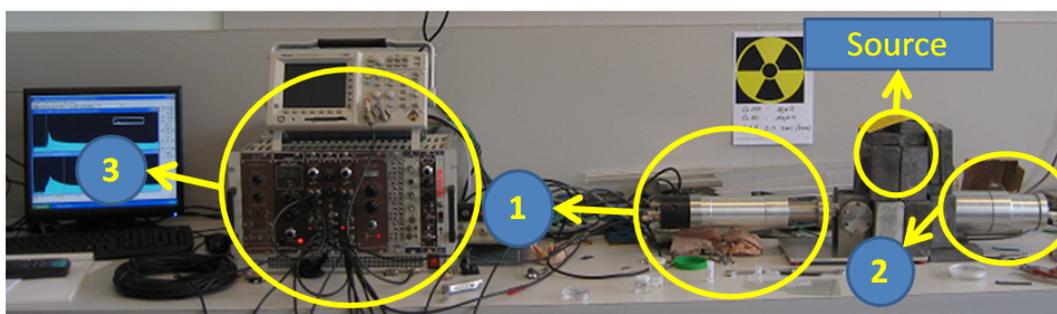


FIGURE 2.9 – Photographie de l'expérience d'irradiation gamma : 1) PM start ; 2) PM stop ; 3) chaîne d'acquisition électronique

temporelle est plus élevée que sur le PM stop qui est en régime de photoélectron unique. Les seuils utilisés sur les discriminateurs variaient généralement entre -10 et -50mV. Cela dépendait de l'intensité du signal lumineux. Les résultats finaux étaient traités avec le programme de traitement IGOR[®]. La photographie 2.9 illustre la première plateforme mise au point au sein de l'IPHC. On peut voir à droite la source radioactive dans son château de plomb et les deux PM. La chaîne électronique d'acquisition est à gauche.

3 Développement d'une plateforme multimodale de mesure

L'utilisation d'une unique méthode de mesure (la méthode sous irradiation continue) pour analyser les déclins de fluorescence sous différents types de rayonnements ionisants a plusieurs avantages :

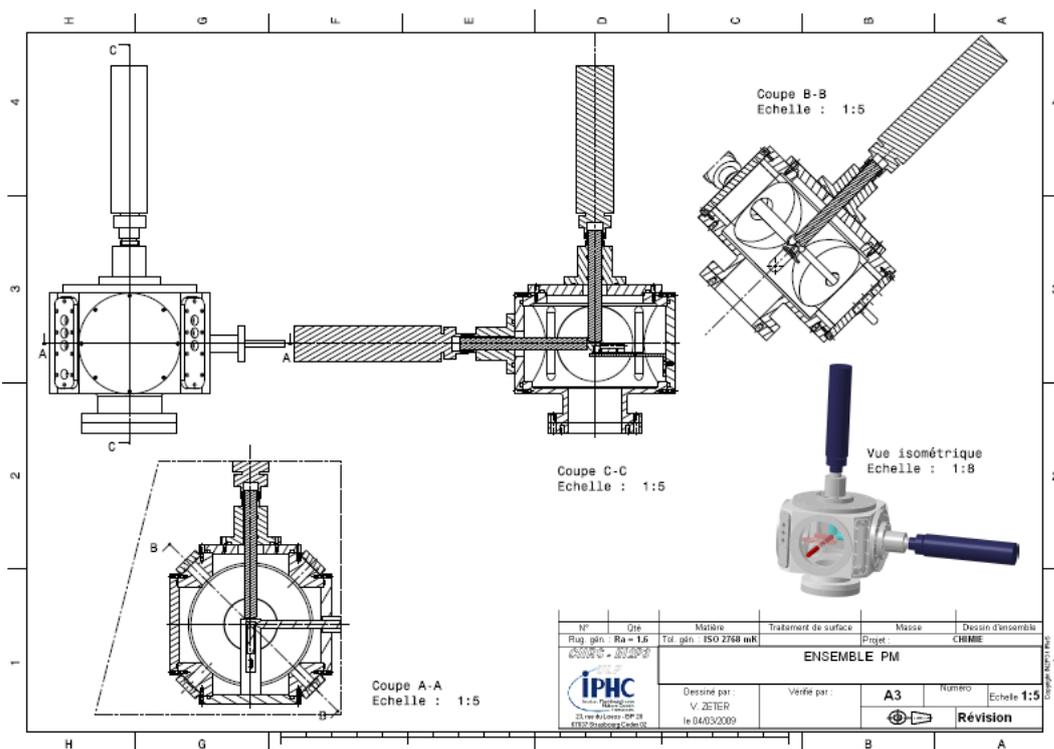


FIGURE 2.10 – Plan en vue isométrique de la plateforme de mesure multimodale

- Cela permet une comparaison directe entre plusieurs sources d'ionisation quelles que soient leur nature (photons, ions, neutrons).
- On peut changer la source d'irradiation sans devoir manipuler l'échantillon, ce qui peut-être critique dans le cas d'échantillon fragile.
- On peut utiliser les deux méthodes de mesure en parallèle (pulsée et continue) afin de profiter de la résolution de la méthode pulsée et de l'universalité de la méthode continue ; notamment dans le cas d'irradiation γ .
- Nous avons de plus ajouté un élément chauffant à cette plateforme. Cet élément permettra d'étudier le comportement de luminescence de certains scintillateurs sous différentes phases (solide-liquide).

L'expérience que nous avons acquise durant l'année 2009 concernant les mesures sous flux continue nous a permis d'optimiser le placement des PM par rapport à l'échantillon, ainsi que l'utilisation optimale du matériel de détection. Cela inclut l'utilisation de diaphragmes judicieusement ouverts, l'utilisation de PM à l'ouverture de fenêtre différente ainsi que des gains différents et l'utilisation du mode *fraction constante* offert par les discriminateurs. La figure 2.10 illustre cette plateforme.

Validation des résultats obtenus par TCSPC

Les premières expériences que nous avons menées avaient pour but de montrer que les résultats que nous obtenions avec cette nouvelle plateforme étaient reproductibles. C'est-à-dire que nous devons vérifier que les différents modes de déclen-

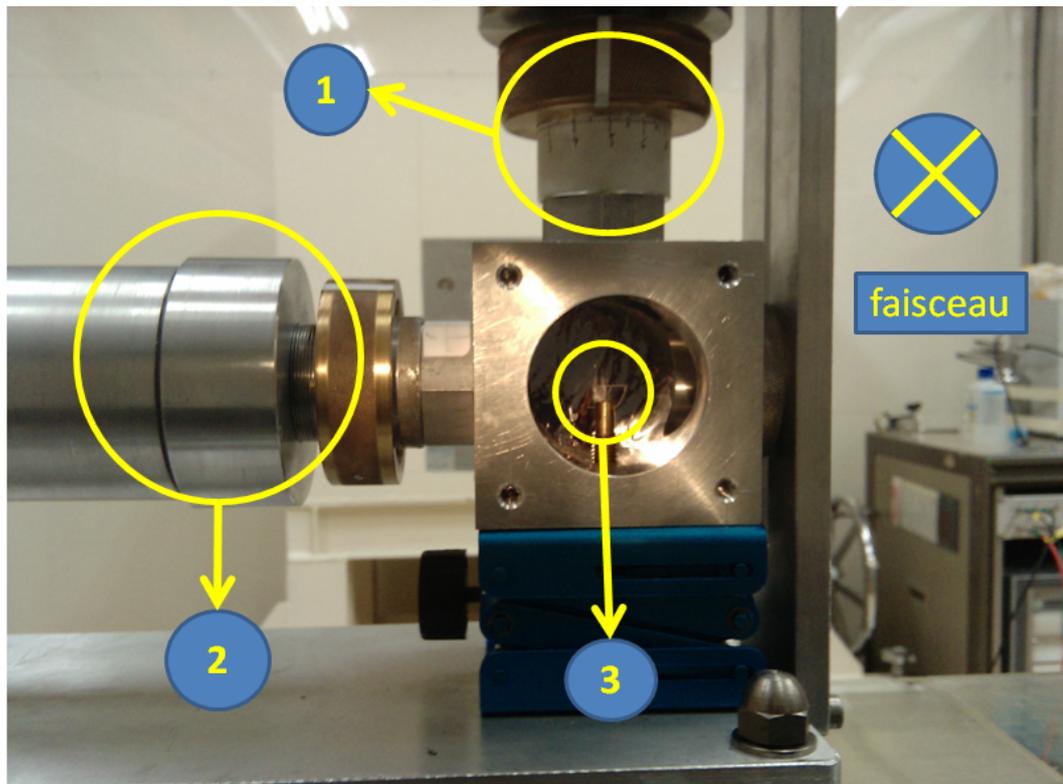


FIGURE 2.11 – Photographie d’illustration de la plateforme développée pour L’HI-MAC : 1) PM stop ; 2) PM start ; 3) échantillon

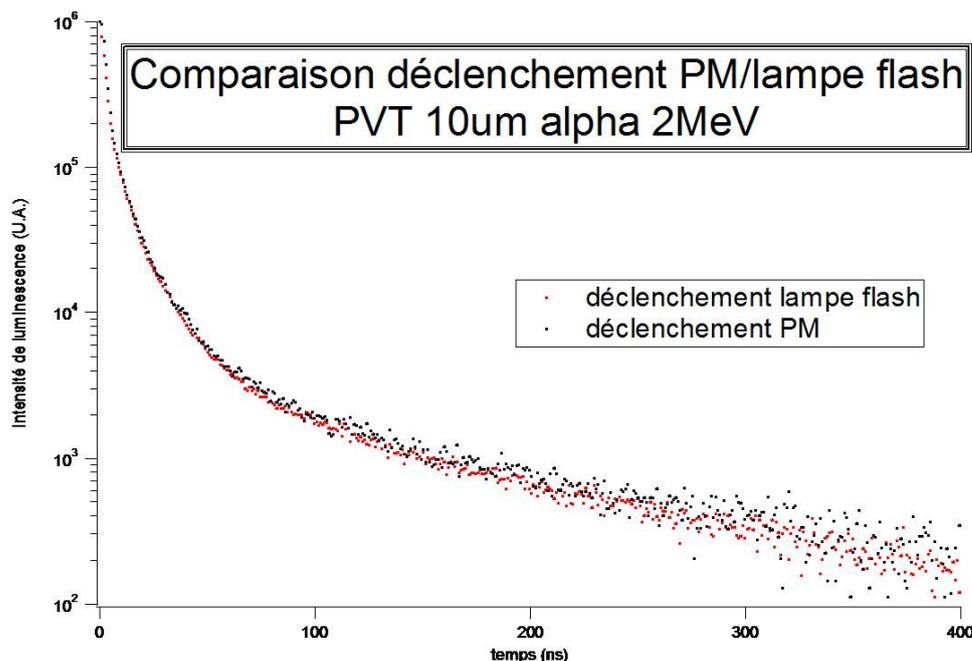


FIGURE 2.12 – Comparaison entre les déclin de fluorescence mesurés, selon deux méthodes, du PVT (film $10\mu m$) excité par des particules alphas de 2MeV

chement (par lampe à décharge et par PM) donnaient les mêmes résultats. La figure 2.12 montre que quel que soit le mode de déclenchement on obtenait le même déclin. Ce qui permettait d'ouvrir la voie à une campagne de mesure tournée sur la comparaison des déclin en fonction de la nature de l'irradiation. Nous avons développé, durant l'année 2010 un modèle réduit de cette première plateforme, en effet nous avons prévu de mesurer les déclin de fluorescence induit par des faisceaux d'ions généralement utilisés dans le cadre de l'hadronthérapie. Cette seconde plateforme (voir photographie 2.11) ne pouvait pas "tenir le vide", donc elle ne pouvait pas être utilisée sur tous les accélérateurs de particules. De plus elle ne comprenait pas de dispositif chauffant permettant d'étudier les changements de phase. Elle a été spécifiquement développée pour une utilisation au HIMAC¹.

Afin de valider les résultats expérimentaux de cette deuxième plateforme, nous avons comparé les résultats obtenus entre les différentes plateformes sous irradiation continue de ^{137}C (figure 2.13). La figure 2.14 provient d'une méthode d'analyse développée par Mélodie Munier durant sa thèse [56]. Elle consiste à ajuster, à l'aide du programme IGOR[®], la composante lente du déclin sur différents intervalles de temps. Ceci permet de mener une analyse plus fine des mécanismes de recombinaison des paires électron-trou. Notamment cela permet d'émettre des hypothèses quant à l'importance des différents phénomènes, développée dans la section 3.1 du chapitre 1, au cours du temps.

1. Heavy Ion Medical Accelerator in Chiba

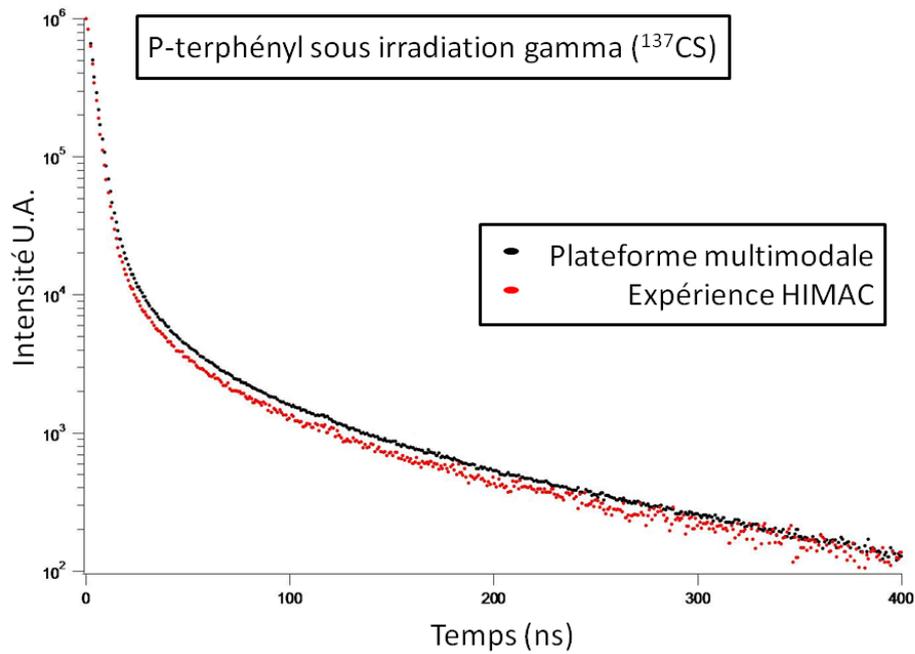


FIGURE 2.13 – Comparaison entre les déclin de fluorescence mesurés, selon deux configuration du Paraterphényle excité par des particules alphas de 2MeV

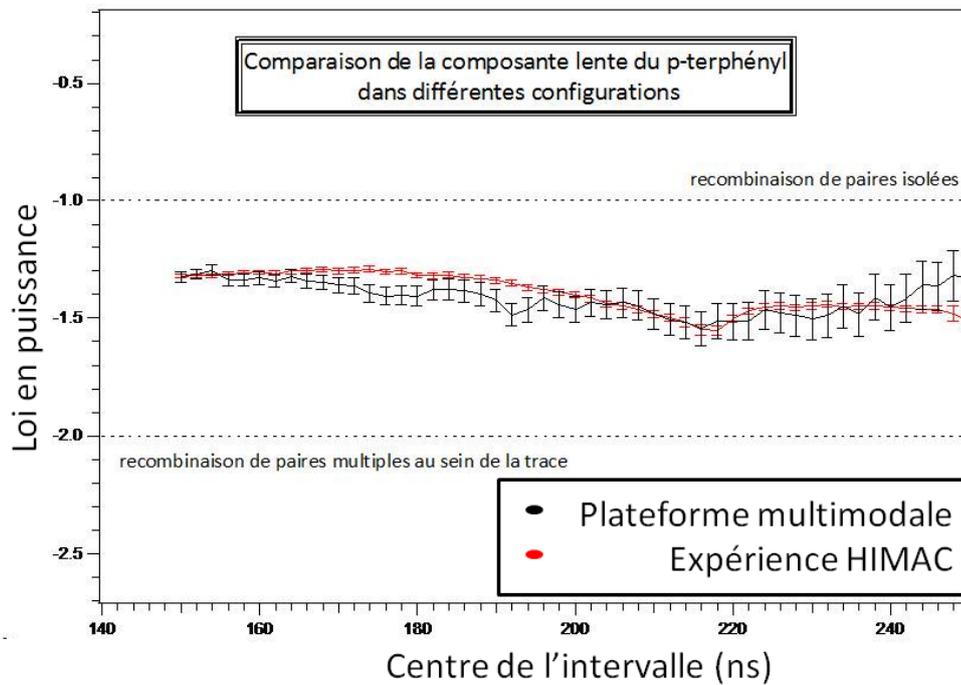


FIGURE 2.14 – Analyse de la loi de décroissance de la composante lente

4 Application : Etude de la cinétique de recombinaison des charges géminées

Le Premier domaine d'application de cette nouvelle plateforme de mesure a été le domaine de la discrimination neutron/ γ . En effet, à travers les déclins de fluorescence, nous avons accès à la cinétique de recombinaison des charges créées dans le milieu, mécanisme qui est à la base de la méthode dite de "Pulse Shape Discrimination" (PSD) couramment utilisée dans le domaine de la physique nucléaire pour discriminer les neutrons des γ .

4.1 Discrimination neutron/ γ

Dans le cadre d'une étude sur la discrimination neutron/ γ , nous avons collaboré, durant cette étude, au projet ANR Neutromania porté par le docteur Louise Stuttgé [75]. Nous résumons ici l'essentiel des résultats obtenus car c'est la plateforme expérimentale développée dans le cadre de cette thèse qui a permis l'étude temporelle de la fluorescence émise sous un rayonnement γ continu. La synthèse et la caractérisation précise des résultats obtenus est détaillée dans le brevet [76] déposé dans le cadre de cet ANR et de deux thèses effectuées sur ce sujet [56, 78].

Projet Neutromania

Ce projet consistait à trouver un matériau scintillant de remplacement aux scintillateurs, habituellement utilisés, typiquement des scintillateurs à base de xylène (NE213 antérieurement commercialisé par Bicron-St Gobain), pour des raisons de sécurité et afin d'augmenter les efficacités de détection et de détection neutron- γ . Ce scintillateur liquide est hautement inflammable et cancérigène. De ce fait son utilisation reste problématique. Le projet initial consistait à développer un scintillateur solide ayant les caractéristiques suivantes :

- Scintillateur solide ;
- Discrimination Neutron-gamma ;
- Rapide (réponse de l'ordre de la nanoseconde) ;
- Bonne efficacité quantique et section efficace haute pour la capture neutronique ;
- Transparent à sa propre lumière ;
- Non hygroscopique ;
- facilement usinable ;
- faible coût de production afin de pouvoir utiliser de larges volumes ;

Ses caractéristiques de scintillation devaient permettre de l'utiliser pour la discrimination neutron- γ grâce à la méthode dite de "pulse shape discrimination" (PSD). Cette méthode permet de connaître la nature des particules ayant interagi dans le scintillateur en étudiant le signal lumineux produit par celui-ci. Dans la pratique le signal électrique du PM est proportionnel aux nombres de photons détectés par

la photocathode, et reflète « l'image » du déclin de fluorescence. La différence de rapport entre la charge totale (Q_{tot}) et la charge due à la composante différée du déclin (Q_{lent}) (cf. chapitre 1 section 2.6), entre les neutrons et les γ peut donc être observée à l'oscilloscope ou à l'aide d'une carte de conversion analogique-numérique. On peut noter quelques tentatives menées au CEA [79], afin de remplacer le NE213, mais qui n'ont, à ce jour, pas abouti. Nous avons pu mettre en évidence, grâce à nos résultats, deux choses : la première est que la phase liquide du scintillateur joue un rôle prépondérant dans la cinétique de recombinaison des paires (voir équation 1.67), la deuxième est que si l'on souhaite un scintillateur solide ayant des capacités de discrimination suffisantes, il faut prendre en compte la conductivité au sein du matériau. Dans la perspective de remplacement du NE213, l'utilisation de scintillateurs à base de liquide ionique (LI) a été explorée. Nos investigations ont été menées en étudiant les déclins de fluorescence émis sous irradiations de sources gammas et sous irradiations de protons d'approximativement quelques MeV d'énergie. Ceci est une approximation acceptable de ce qui se passe dans un scintillateur soumis à un rayonnement composé de neutrons et de gammas, effectivement les neutrons lorsqu'ils interagissent avec le milieu scintillant vont éjecter des protons d'approximativement quelques MeV dans le cas d'une source radioactive d'Amercium-Berillium. Les propriétés spécifiques de solvant des liquides ioniques [80] leur confèrent la possibilité d'y adjoindre une grande variété de chromophores, notamment des cycles benzéniques connus pour leurs propriétés de fluorescences sous irradiation. Il serait donc intéressant de les utiliser comme scintillateurs pour des applications de discrimination neutrons-gammas, notamment pour le fait que sous certaines conditions une phase cristall-liquide apparaît ce qui pourrait induire un changement notable dans les propriétés de conductivité du matériau. Le fait que ces liquides possèdent une tension de vapeur quasi nulle leur permet d'être manipulés dans une large gamme de pression et de température. Les molécules étudiées ont été synthétisées par l'équipe du professeur Laurent Douce de l'IPCMS (Institut de Physique et Chimie des Matériaux de Strasbourg). Elles ont été synthétisées de manière à obtenir un chromophore (composé d'un oxazole) et une chaîne aliphatique de part et d'autre d'une unité d'imidazolium (cation), l'anion correspondant pouvant différer en fonction de l'utilisation souhaitée du LI (voir figure 2.15).

Notre étude a porté sur l'étude de plusieurs liquides ioniques :

- oxadiazole - imidazolium - $C_{16}H_{33}$ + 1 anion hexafluorophosphate (ox-im- C_8H_{33} -PF6)
- oxadiazole - imidazolium - C_8H_{17} + 1 anion hexafluorophosphate (ox-im- C_8H_{17} -PF6)
- oxadiazole - imidazolium - $C_{16}H_{33}$ + 1 anion hexafluorophosphate (ox-im- C_8H_{33} -Br-)
- oxadiazole - imidazolium - $C_{16}H_{33}$ + 1 anion organique (ox-im- C_8H_{33} -SO4-)
- oxadiazole - imidazolium - C_8H_{17} + 1 anion organique (ox-im- C_8H_{17} -SO4-)

La plupart de ces composés se présentent sous la forme d'une poudre blanche. Le fait que le matériau soit opaque aux photons de fluorescence nous fait perdre beaucoup

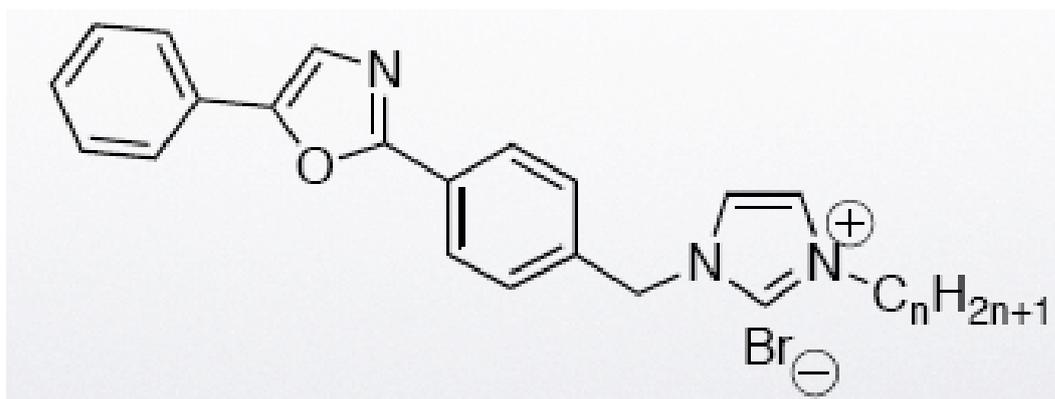


FIGURE 2.15 – exemple de molécule utilisée

Rapport	PF6	SO_4^-	BR^-
Q_{lente}/Q_{tot} (protons)	0.51 ± 0.01	0.35 ± 0.01	0.42 ± 0.01
Q_{lente}/Q_{tot} (photons)	0.17 ± 0.01	0.19 ± 0.01	0.17 ± 0.01

TABLE 2.1 – rapport entre des composante lente sur les composantes totales de plusieurs LI

d'efficacité de comptage. Les temps d'acquisition se situent, pour cette raison, dans la gamme de temps de 24 h. Nous avons également testé des liquides ioniques dissous dans du Polyméthacrylate de méthyle (PMMA) à différentes concentrations. Ce procédé rend notre scintillateur transparent aux photons de fluorescence. Un liquide ionique sous forme liquide a pu aussi être synthétisé. Nous stoppons les acquisitions lorsque nous avons stocké un ensemble de 10^6 évènements au maximum. Une soustraction du bruit de fond, une normalisation à 10^6 et enfin la mise au temps zéro du pic d'émission nous donne une courbe exploitable.

Le rapport entre l'intensité de la composante lente et l'intensité totale de l'émission de photons de fluorescence varie selon que l'interaction est induite par un rayonnement gamma ou à des neutrons. Cela est dû à la différence de TLE qui est plus élevée pour les protons que pour les gammas (les neutrons deviennent des protons au sein du scintillateur à travers une réaction n,p). Un TLE plus élevé va favoriser le mécanisme de création de paires électron trou qui conduit à l'apparition de photons dans la composante différée de fluorescence. La méthode PSD est possible seulement si la différence qui existe entre les rapport Q_{lente}/Q_{tot} est suffisant. Nous avons trouvé que le meilleur produit était le PF6 (voir tableau 2.1).

La figure 2.16, montre quant à elle la différence qui existe entre ce produit et le produit de référence, le NE213. On remarque que la différence d'efficacité pour la discrimination neutron-gamma est toujours importante en faveur du NE213, de plus ce graphique ne prend pas en compte l'efficacité intrinsèque de fluorescence des différents produits de scintillation en raison de la normalisation à un million d'évènements du premier canal du déclin. Nous n'avons pas développé spécialement d'expériences

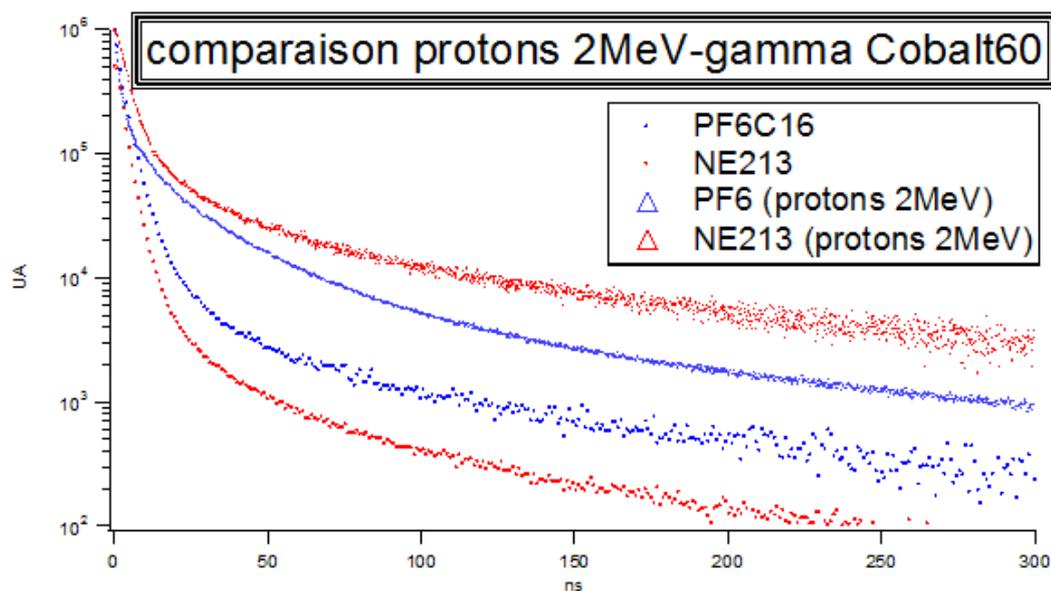


FIGURE 2.16 – Comparaison du déclin de fluorescence dans différents matériaux sous diverses sources d'irradiation

pour mesurer l'efficacité de fluorescence des divers produits notamment en raison de la complexité d'une telle démarche (spécialement si l'on veut être rigoureux). Il faudrait pour se faire avoir une maîtrise totale de l'usinage des scintillateurs, ce qui n'est aujourd'hui pas le cas. Les différents résultats obtenus par PSD montrent que ces nouveaux scintillateurs peuvent être envisagés pour remplacer à terme le NE213, mais que de nouvelles avancées sont nécessaires, notamment dans deux domaines précis. Le premier concerne l'efficacité de fluorescence, effectivement comme toutes expériences impliquant des scintillateurs, la contrainte de temps est essentielle dans ce type d'expériences. Les liquides ioniques souffrent dans ce domaine encore d'un inconvénient majeur : à température ambiante ils sont opaques à leur propre lumière de fluorescence, des essais de dissolution dans une matrice de PMMA ont montré leurs limites dans le sens où les nouveaux matériaux ainsi obtenus perdaient leurs capacités de discriminations. Le deuxième domaine concerne la capacité du scintillateur à être discriminant en fonction de la nature du rayonnement reçu. Ceci nous amène au deuxième résultat significatif :

Les mécanismes de la discrimination

Il faut souligner ici que les propriétés physiques permettant la discrimination d'un matériau restent assez flous. Pour essayer de mieux comprendre les processus mis en œuvre lors de ce mécanisme, nous avons mené une étude avec différentes sources de rayonnement sur divers matériaux. La figure 2.17 représente typiquement les déclinés obtenus lors de nos expérimentations et elle illustre deux choses : la première est la résolution que l'on peut obtenir avec le méthode de TCSPC. Effectivement on constate que malgré le fait que l'on ne puisse observer de différence entre

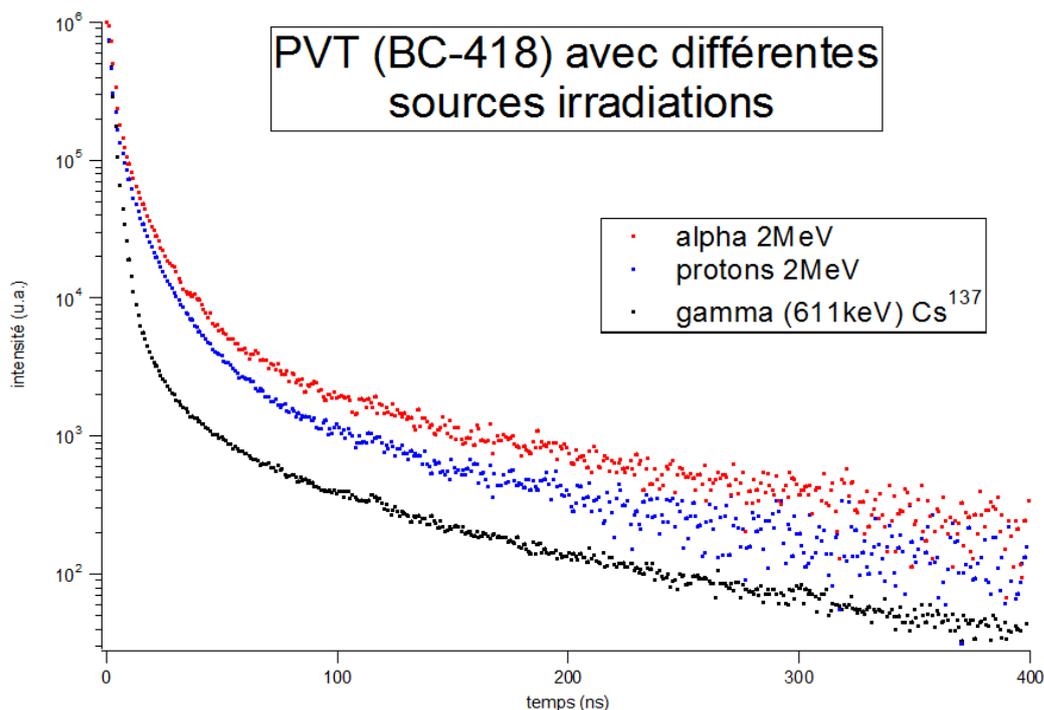


FIGURE 2.17 – Déclin de fluorescence du PVT sous différentes sources d’irradiations

neutron et gamma dans les déclin de fluorescence mesurés par la méthode de PSD classique, nous observons clairement une différence grâce à une mesure par TCSPC. Il faut noter que cette différence est infime (l’échelle de scintillation étant en échelle logarithmique). La deuxième chose concerne la corrélation qui existe entre la nature de la particule (masse et charge) et le déclin de fluorescence qu’elle entraîne. Ce résultat nous a amenés à essayer de comprendre l’importance relative du TLE et de la charge de la particule incidente dans les mécanismes du déclin de fluorescence. C’est dans cette optique que les différentes campagnes de mesures ont été menées au HIMAC, afin de lever cette interrogation.

Les résultats spécifique au HIMAC seront développés dans le chapitre 3.

4.2 Influence de la phase sur les déclin de scintillations

Un autre résultat significatif concerne l’importance de la phase au sein d’un scintillateur organique. La figure 2.18 montre la différence qui peut exister au sein d’un même matériau, mais sous différentes phases. Ces résultats ne peuvent entrainer de conclusion définitive, effectivement il est difficile de conclure quant à l’importance relative de la phase et de l’énergie kT apportée par le changement de température. Effectivement l’importance de la température dans les mécanismes de recombinaison peut avoir son importance dans le sens où elle peut modifier la distance de thermalisation des électrons secondaires, et donc induire un changement dans le profil de dépôt énergétique de ceux-ci. L’écart observé dans la figure 2.18 amène un début de réponse dans le sens où à l’état solide, les processus de recombinaison directe

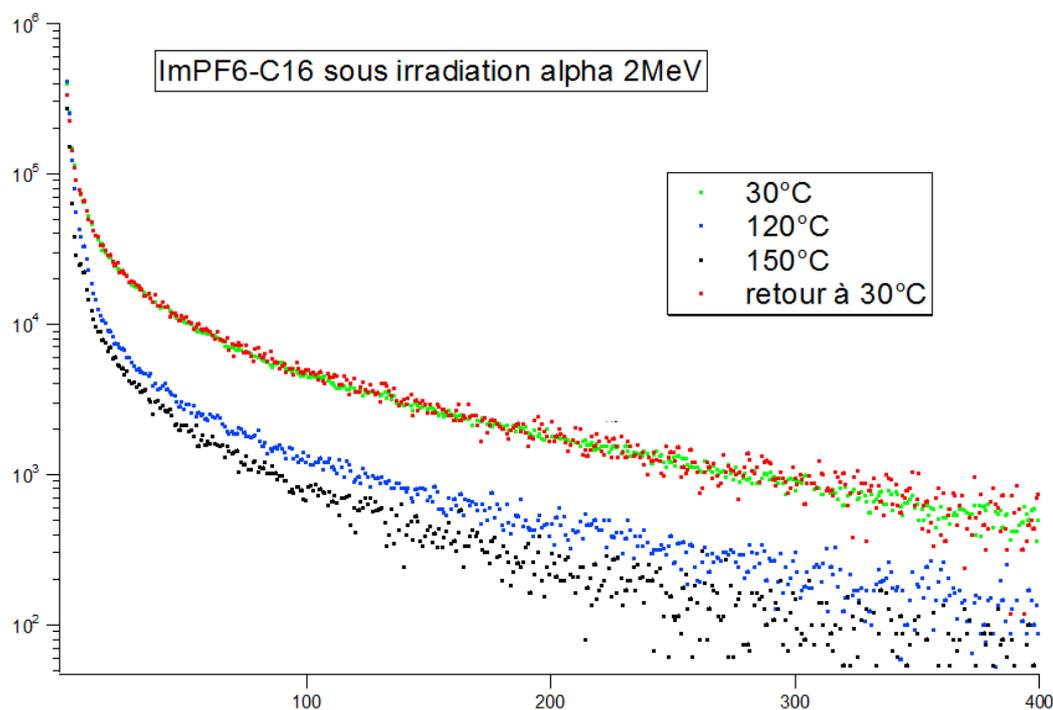


FIGURE 2.18 – Déclin de fluorescence d'un liquide ionique sous différentes phases (liquide-solide)

semblent privilégiés, tandis que sous phase liquide on semble s'approcher d'un régime diffusif. De la même manière que l'analyse menée lors de la comparaison des deux plateformes, la figure 2.19 montre que, à l'état solide, lorsque l'on ajuste le facteur β au cours du temps (cf. section 2.6 chapitre 1) on est plus proche de 1 en phase solide et plus proche de 1.5 en phase liquide. Ces résultats sont en accord avec la théorie qui prédit des recombinaisons isolées dans des zones où la densité d'ionisation n'est pas assez élevée et un mécanisme de diffusion, qui devient prépondérant en phase liquide. Cette analyse, intéressante, ne permet néanmoins pas de conclure ; il faudrait pour cela mener une étude bien plus systématique sur différents matériaux et différents types de rayonnements (photons, particules chargées).

De plus on est obligé d'utiliser un faisceau de particules chargées, les gammas ne permettant pas de voir cette différence, du fait de la très faible densité d'ionisation qu'apporte ce type de rayonnement. Ce qui implique l'utilisation d'accélérateurs de particules dont le temps d'utilisation est coûteux et limité.

5 Conclusion

En conclusion de ce chapitre nous souhaiterions revenir sur quelques points marquants :

- Nous avons, durant cette étude, développé et validé de nouvelles plateformes de mesure des déclins de luminescence. Ces plateformes permettent notamment

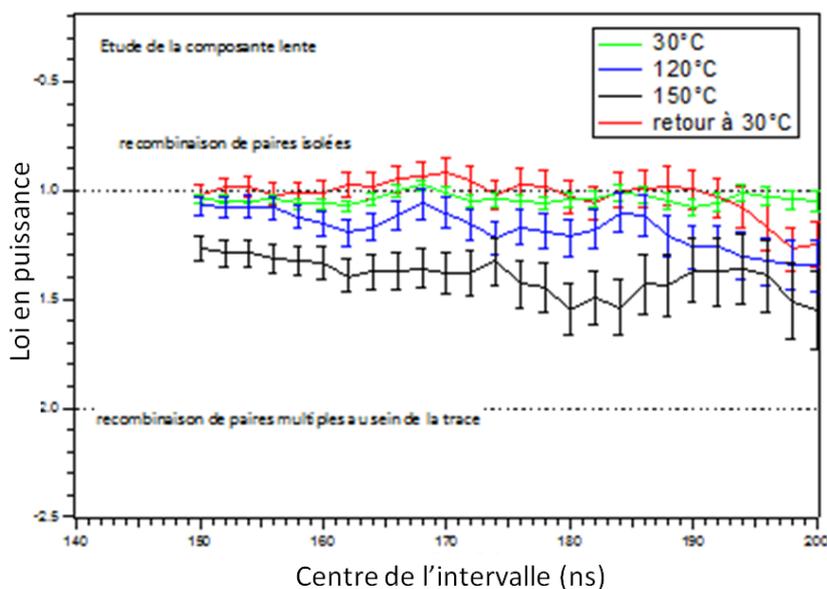


FIGURE 2.19 – Analyse de la loi de décroissance de la composante lente

de mesurer, à différentes températures et sous faisceau continu de radiation ionisante, les déclins de fluorescence.

- Ces plateformes ouvrent de nouvelles perspectives quant à la compréhension des mécanismes de discrimination neutron/ γ au sein des matériaux fluorescents organiques. En effet, elles permettent de mesurer les lois de décroissance de la composante lente de la fluorescence et nous permettent d'émettre des hypothèses quant à la densité d'ionisation le long du parcours d'une particule ionisante.
- Nous avons mis en évidence l'importance de la phase du scintillateur dans le comportement de la composante lente de fluorescence.

" L'homme a besoin de ce qu'il y a de pire en lui s'il veut parvenir à ce qu'il a de meilleur."

Friedrich Nietzsche

3

Dosimétrie par TCSPC

1 Introduction

La dosimétrie des rayonnements ionisant est un sujet qui trouve son origine dans la découverte de la radioactivité et dans l'apparition, presque immédiate dans le temps, de dommages radioinduits auprès des personnes exposées. D'abord sujet d'étude de laboratoire, elle va trouver sa pleine expansion, notamment par des études épidémiologiques, dans les domaines du nucléaire civil et militaire et, de plus en plus, dans les domaines médicaux de l'imagerie et de la radiothérapie. Parallèlement, des études plus fines, dans les domaines de la physique fondamentale, de la biologie moléculaire ou cellulaire (apoptose) apportent des informations supplémentaires quant aux relations effet-dose. A des fins thérapeutiques, plus particulièrement, on assiste à un fort développement des essais sur l'animal, ainsi que des essais cliniques, utilisant tous les types de rayonnements (photons, neutrons, positrons, électrons, particules chargées), sur un spectre en énergie de plus en plus large et avec des fluences variant de plusieurs ordres de grandeur. Les techniques dosimétriques doivent rester linéaires sur toutes les plages possibles d'utilisation. Le fait de travailler sur le vivant entraîne des problèmes spécifiques à la biologie, il y a des mécanismes de réparation cellulaire à prendre en compte, de plus la nature des cellules va influencer sur leur radiosensibilité. D'un point de vue plus technique, les volumes sensibles des dosimètres de référence d'aujourd'hui, que sont les calorimètres et les chambres d'ionisation, ne sont pas de même nature (la densité varie ainsi que la composition chimique) que la matière organique. L'ensemble de ces paramètres est à prendre en compte lorsque l'on veut tenter d'expliquer les interactions entre un faisceau de rayonnement ionisant et la matière. De fait, toutes les échelles de temps, allant de la physique à la biologie, sont sollicitées dans ce type de problématique, comme l'illustre la figure 3.1. Les ou-

tils dont nous disposons aujourd'hui, que sont, les différents modèles de déposition d'énergie, les modèles de mort cellulaire sous rayonnement, etc, sont soit empiriques, soit difficilement vérifiables expérimentalement. En particulier, il n'existe que très peu de modèles faisant le lien entre les électrons secondaires émis et le taux de survie cellulaire, étape dont la compréhension est indispensable afin de pouvoir mieux appréhender les phénomènes mis en jeu.

La première étape indispensable afin d'améliorer nos connaissances dans ce domaine est de développer des appareils de mesure mieux adaptés au domaine biologique. Les scintillateurs organiques offrent, de ce point de vue, de larges avantages. Ils ont une densité comparable à celle du vivant. Il existe des techniques d'analyse fiable permettant d'accéder aux différentes échelles de temps qui nous intéressent : analyse de la fluorescence, analyse des dégâts chimiques, analyse de la létalité cellulaire sur des échantillons *in vitro*.

Au sein de toutes ces études, l'utilisation de sondes fluorescentes pour l'étude de la réponse d'un milieu à une dose déposée est une des plus courantes, bien que le domaine ait assez peu évolué au cours des dernières décennies. L'objet de ce chapitre est d'apporter un éclairage nouveau, à la fois fondamental et applicatif, à l'utilisation de la scintillation dans le domaine de la dosimétrie. L'apport envisagé est celui de la dosimétrie en temps réel par l'utilisation de la technique TCSPC décrite en détail au chapitre précédent et dont on peut espérer qu'elle sera plus à même de refléter un dépôt de dose par des faisceaux d'ions. Un point très fondamental de la mesure d'une dose est l'obtention d'un signal instrumental reflétant, au plus près, l'image de la dose déposée, sans quoi la mesure devra être corrigée (abaques, simulation), ce qui apportera autant d'incertitudes au résultat final. A l'évidence, une simple observation, des pratiques passées et actuelles en dosimétrie, montre que l'utilisation de détecteurs actifs, tels que les chambres d'ionisation, scintillateurs inorganiques ou organiques, semi-conducteurs, associés à une mesure continue, c'est-à-dire intégrée sur le temps d'évolution de l'observable (charge, courant, lumière), ne donne pas entière satisfaction. Ce chapitre tentera de montrer qu'une mesure de dose reposant sur l'observation de la fluorescence par la technique TCSPC donne l'image la plus juste de la quantité d'énergie reçue par un volume sensible donné, ceci sans correction additionnelle et en temps réel. Les points suivants constitueront les étapes de notre démarche :

- Tout d'abord nous rappellerons les principales méthodes dosimétriques actuellement utilisées en radiothérapie (X, hadronthérapie). Nous reviendrons notamment sur leurs avantages et limitations.
- Nous montrerons, ensuite, que la recherche de nouvelles méthodes de mesures permettant la dosimétrie en *temps réel* et avec une haute *résolution spatiale* des faisceaux d'ions utilisés en radiothérapie a besoin de nouvelles méthodes de mesure, permettant, d'une part, une augmentation du rapport signal/bruit, bruit inhérent à une mesure directe de la fluorescence et l'utilisation de scintillateurs équivalent à la matière organique permettant, d'autre part, de rendre compte de la dose exacte délivrée dans le matériau d'intérêt sans facteurs de

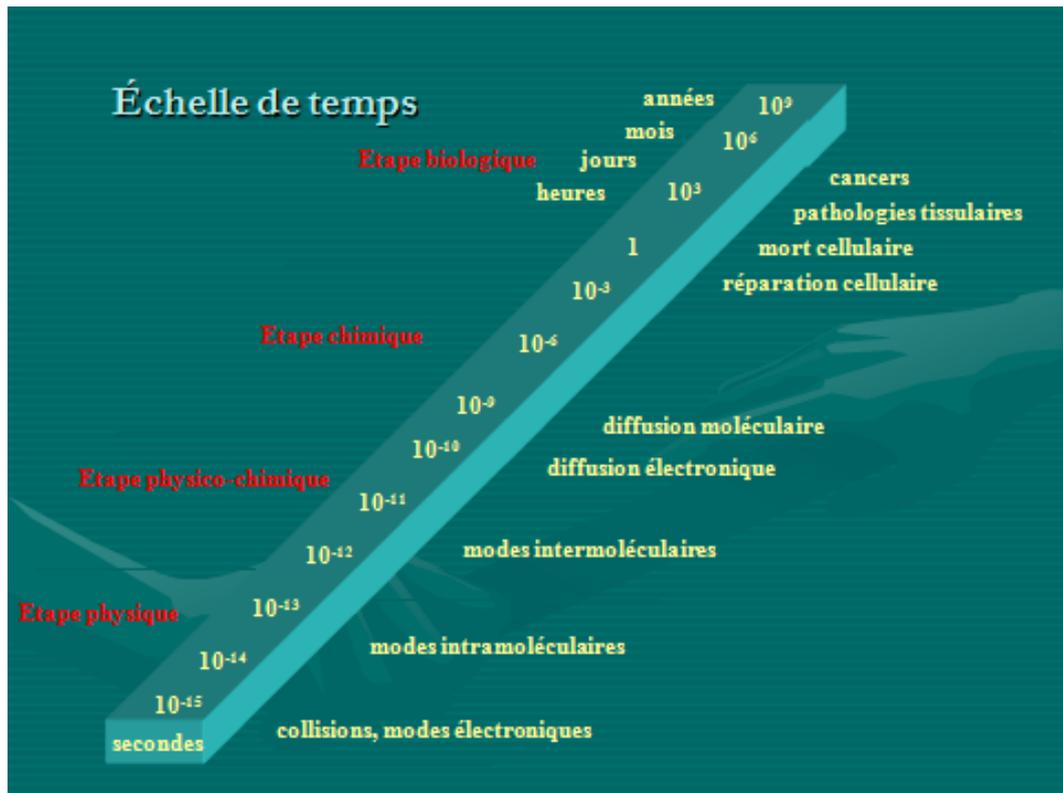


FIGURE 3.1 – Illustration des différentes échelles de temps sollicitées

corrections empiriques.

- Nous détaillerons une nouvelle méthode de mesure actuellement développée en coopération avec les équipes du *NIRS*¹, baptisée méthode par TCSPC, et montrant une résolution spatiale supérieure à celle des chambres d'ionisations. Ces mesures sont d'ailleurs en désaccord avec les théories existantes prédisant de la saturation dans l'émission de fluorescence au sein des scintillateurs.
- Enfin nous présenterons un prototype de dosimètre, reprenant la méthode par TCSPC, utilisant un scintillateur organique. Dans cette partie nous montrerons les limitations qu'impliquent une mesure directe de la fluorescence émise ainsi qu'une méthode originale permettant d'éliminer le rayonnement Čerenkov, responsable d'un biais non négligeable dans la mesure de dose des rayonnements ionisants [21]. Ce nouveau prototype ouvre, notamment du fait de son très faible encombrement spatial, de nouvelles perspectives quant aux mesures de dose *in vivo* (dans l'expérimentation animale et les cultures cellulaires notamment), mais également pour la dosimétrie *in vitro*. Ce dernier point est important à noter car le matériau sensible de notre dosimètre est équivalent au matériau d'étude (contrairement aux chambres d'ionisation).

1. National Institute of Radiobiological Sciences

2 Radiothérapie et hadronthérapie

Cette section ne se veut pas exhaustive quant à la description des différentes techniques existantes en radiothérapie car ce sujet mériterait une étude spécifique à lui tout seul. Nous présenterons, ici, succinctement les enjeux des différentes techniques qui existent en radiothérapie. Tout d'abord nous définissons par radiothérapie toutes techniques qui utilisent des rayonnements ionisants, nous ne ferons donc pas de distinction entre particules chargées et photons lorsque nous utiliserons ce terme. Nous utiliserons le terme de "radiation-thérapie" pour les techniques utilisant les rayons X et le terme de "hadronthérapie" pour les techniques utilisant des hadrons. Les différentes techniques actuellement existantes, utilisant ces différents types de radiation ont chacune leurs avantages et leurs limitations. D'après une étude commandée par le *Royal College of Radiobiologists* [81] en 2003, la radiothérapie est à l'origine de 40% des cas de traitement réussi du cancer, c'est donc un élément majeur et particulièrement efficace des protocoles oncologiques.

2.1 Radiation-thérapie

Historiquement, les débuts de la radiation-thérapie peuvent être associés à la découverte des rayons X par Röntgen en 1895. Les premières traces bibliographiques montrant un essai de traitement clinique utilisant les rayons X se situent dans l'année 1895. Les premières observations des effets des rayonnements ionisants sur la matière biologique montraient alors déjà des caractéristiques bactéricides. Les médecins de l'époque ont donc tenté naturellement des traitements de fortune en plaçant des matériaux radioactifs sur les zones infectées (lupus, ulcère etc...), bien que ces premiers essais de traitements s'avèrentent extrêmement aléatoires quant aux résultats attendus, leur multiplication donna néanmoins des résultats prometteurs sur beaucoup de maladies inguérissables par d'autres traitements. L'engouement pour ce type de traitement fut tel qu'on le retrouve dans des domaines éloignés de la thérapie : esthétique et traitements dit "revigorant". Du radium fut proposé à la vente libre ainsi que du thorium, sous forme de pommade, d'eau buvable, de dentifrice etc... Il faudra attendre les années 1935 pour qu'une démarche plus scientifique prenne le pas sur une utilisation mercantile de la radioactivité. Les prémisses de la radiation-thérapie moderne peuvent être attribuées à Henri Couttard, qui développe, en 1934, une méthode fixant les premiers jalons de ce qui allait être la radiothérapie moderne, notamment en fractionnant les doses délivrées. Aujourd'hui, on divise la radiation-thérapie en trois grandes familles : la brachythérapie (également appelé Curiethérapie), la radiation-thérapie par faisceau externe et la thérapie par radioisotope. Nous nous intéresserons plus particulièrement à l'hadronthérapie dans cette étude.

2.2 L'hadronthérapie

Historiquement [82] nous pouvons faire coïncider les premiers essais cliniques de l'hadronthérapie avec la construction du premier cyclotron, à Berkeley, dans les années 1930. Ernest Lawrence et al. ont tenté pour la première fois, en 1938, de traiter des patients sur un cyclotron de 94 cm à l'aide d'irradiation de neutrons, lesquels venaient d'être découverts (1932). Cette étude pilote permit la construction du *Cockcroft Medical Cyclotron* dédié à la recherche médicale (152 cm). Un total de 226 patients put alors être traité entre 1939 et 1943 avant que celui-ci ne fût réquisitionné pour le programme Manhattan de fabrication de la première bombe atomique. Malgré les résultats encourageants obtenus, il s'avérait que cette technique entraînait beaucoup d'effets secondaires et notamment parce que les neutrons sont de très mauvais candidats pour la radiothérapie externe, ceci en raison d'un profil de déposition de dose continu dans un milieu donné. Les études cliniques furent donc abandonnées, en attendant une meilleure compréhension des mécanismes physiques mis en jeu, ceci jusqu'au milieu des années 60. Chronologiquement les essais furent repris à l'Hammersmith Hospital de Londres, puis dans de nombreux autres établissements. C'est à cette époque que le Japon (1968) commença à maîtriser la thérapie dite de *Boron Neutron Capture Therapy* (BNCT). Cette technique est basée sur l'incorporation ciblée, au niveau cellulaire, d'atomes de bore. Le bombardement ultérieur de neutrons permet la capture neutronique du bore dans la réaction : $[^{10}\text{B}(n, \alpha)^7\text{Li}]$ avec comme résultats l'émission d'Helium et Lithium sur une distance de quelques μm . Cette technique s'avéra particulièrement efficace pour le traitement des tumeurs superficielles du cerveau. Le premier à proposer l'utilisation de particules chargées à des fins thérapeutiques fut Robert Wilson en 1946. Entre 1954 et 1957 des essais furent menés sur un cyclosynchrotron de 467 cm à Berkeley, avec des protons. Des particules plus lourdes firent ensuite leur apparition, jusqu'en 1992 où le centre fut fermé.

C'est à cette période que le Japon ouvrit ses premiers centres sur la recherche clinique à l'aide d'ions carbone. C'est en 1994 que le *Heavy-Ion Medical Accelerator* (HIMAC) fut construit au *National Institute of Radiobiological Sciences* (NIRS). On totalise aujourd'hui environ 4500 patients traités à l'aide de cette technique et plusieurs centres ont vu le jour ou verront le jour dans les prochaines années en Europe et dans le monde. On peut citer de manière non-exhaustive le *Gesellschaft für Schwerionenforschung* (GSI) en Allemagne, le *National Center of Oncological Adrotherapy* (CNAO) en Italie, le projet ETOILE : *Espace de Traitement Oncologique par Ions Légers dans le cadre Européen* à Lyon et ARCHADE : *Advanced Resource Centre for HADrontherapy in Europe* à Caen, en France et le projet MEDAUSTRON *Austrian Ion Therapy & Cancer-Research Centre Project* en Autriche.

En comparaison avec les traitements conventionnels par électrons et radiations de photons, les faisceaux d'ions offrent la possibilité d'une meilleure distribution spatiale pour la radiothérapie externe. En effet, les avancées récentes dans les techniques de focalisation et la maîtrise des faisceaux, permettent une irradiation très précise des zones d'intérêts. Avec l'apparition de nouveaux centres de traitements donnant

la possibilité d'utiliser des ions lourds, de type carbone et Neon, à des fins thérapeutiques, de nombreux problèmes techniques doivent être résolus [83], parmi lesquels la maîtrise des faisceaux (dosimétrie, focalisation) arrive au premier plan. Un des meilleurs atouts de cette technique réside dans l'avantageux profil de déposition de dose, caractérisé par un étroit maximum situé en fin de parcours, plus connu sous le nom de "pic de Bragg", (voir figure 1.5), dont la position en profondeur dépend de l'énergie de la particule, et l'amplitude de sa charge atomique. Une superposition adéquate de différents parcours, via des moyens de dispersion passifs (collimateurs) ou actifs, via des aimants de focalisation et de distribution, permet à l'heure actuelle de couvrir efficacement tout le volume d'une tumeur, tout en minimisant les doses reçues par les tissus sains environnants. Néanmoins, dans la pratique, la précision des faisceaux d'ions à usage médical ne peut être pleinement exploitée pour deux raisons majeures : le parcours des particules n'est pas précisément connu à l'intérieur du patient et les mouvements involontaires de celui-ci peuvent entraîner une incertitude spatiale non négligeable, de l'ordre du centimètre, ceci est inacceptable dans la plupart des cas (irradiation proche de zones vitales). Pour ces raisons, le développement d'une dosimétrie *en temps réel* et avec une haute *résolution spatiale* permettrait d'apporter un gain substantiel quant à l'efficacité et aux possibilités de ces techniques. Elle permettrait d'augmenter l'adéquation du faisceau à la tumeur, ce qui permettrait d'envisager plusieurs géométries pour la délivrance du faisceau et réduirait d'autant la dose délivrée aux tissus sains. De plus on pourrait envisager une redéfinition du plan de traitement basé sur un contrôle en temps réel de la dose déposée. Il est donc un challenge considérable de pouvoir déterminer, en temps réel, la dose que reçoit un voxel d'une zone d'intérêt. Pour ce faire l'on doit se référer à des solutions de calibrage de faisceau, dans un premier temps, puis dans un suivi de la qualité des faisceaux délivrés (dose et distribution spatiale). Ce suivi peut se faire de manière ponctuelle ; dans cette optique, les solutions de calibration dite passives sont envisageables, mais au vu des nouveaux défis que posent des plans de traitements de plus en plus ambitieux (notamment dans le cas d'organes mobiles pendant l'intervention) et de demande de contrôle qualité de plus en plus exigeante, la mesure de la dose délivrée se doit, non seulement d'être effectuée en temps réel (résolution temporelle de l'ordre de la seconde), mais également d'avoir une résolution spatiale accrue (de l'ordre du mm^3 et même en deça), ainsi qu'une résolution en énergie équivalente aux solutions qu'offrent les chambres d'ionisation (une résolution sur les débits de dose de l'ordre du $mGray/s$).

2.3 Dosimétrie existante

La pratique dosimétrique au sens général et plus particulièrement l'utilisation de rayonnements ionisants dans le milieu médical, soulève plusieurs questions, autant fondamentales que techniques. Tout d'abord, les connaissances actuelles ne permettent pas de prédire avec précision, la dose létale à fournir à tout ou partie d'un organisme vivant et ce quelque soit la nature du rayonnement ionisant. Cela

provient du fait que les connaissances fondamentales dans ce domaine ne sont pas encore assez abouties pour fournir un modèle complet compatible avec la nature du rayonnement ainsi qu'avec le type de cellules à irradier. L'unité en vigueur, pour rendre compte au mieux de l'effet d'un rayonnement, est aujourd'hui le Sievert, dépendant de la nature du rayonnement, qui est en corrélation linéaire avec le Gray, selon un facteur de pondération déduit de manière empirique. Ici la problématique est interdisciplinaire car reposant sur le fait que l'on se trouve à la conjonction de trois domaines scientifiques. la physique au travers des mécanismes de relaxation et de dépôt d'énergie ; la chimie, au travers des interactions des radicaux libres sur les tissus vivants ; et la biologie au travers de tous les mécanismes inhérents au bon fonctionnement cellulaire après irradiation. De plus on touche, dans chacun de ces domaines, à des domaines souvent méconnus ou peu maîtrisés. Un apport fondamental à ce domaine consisterait à pouvoir mettre un jour en corrélation toute la chaîne d'évènements qui amène finalement à la mort cellulaire. Dans ce cadre la dosimétrie permettrait aussi de mieux comprendre les mécanismes fondamentaux de transfert d'énergie. En radiothérapie, il existe plusieurs solutions qui sont actuellement utilisées pour mesurer l'énergie déposée par un rayonnement ionisant.

- La dosimétrie dite "passive". De manière très schématique le principe de fonctionnement d'un dosimètre passif repose sur la transformation chimique du volume radiosensible. Cette transformation étant proportionnelle à la quantité de rayonnement reçu, il est possible de révéler la dose à *posteriori*. Nous pouvons énumérer les techniques les plus répandus, qui sont le TLD², l'OSL³, les films radiochromiques [84], l'utilisation de gel radiosensible, le dosimètre de *Fricke*, etc... . De manière générale c'est ce type de dosimétrie qui est utilisé pour calibrer, *a priori*, les différents appareils de radiothérapie [85].
- La dosimétrie dite opérationnelle. Nous pouvons évoquer de manière non-exhaustive les chambres à ionisations [86,87] qui sont très largement utilisées à des fins de calibration ; les calorimètres, qui peuvent être considérés comme des dosimètres absolus dans le sens où il rendent réellement compte de l'énergie déposée, en J/kg dans un volume donné ; les détecteurs basés sur l'utilisation des semi-conducteurs de type germanium ; les détecteurs scintillants, etc... . Globalement, ces détecteurs sont basés sur le fait qu'un rayonnement ionisant va interagir avec le volume de détection en produisant soit des charges électriques, soit des photons visibles.

Dosimétrie de la radiation-thérapie

Nous développerons ici deux solutions de dosimétrie. La première concerne la radiation-thérapie ; elle est basée sur la détection et la mesure en temps réel des rayonnements non absorbés par le patient (acronyme anglais : *EPID* (*electronic portal imaging device*)). La seconde concerne la hadronthérapie et est basée sur la détection des photons gamma de 511keV émis, majoritairement, (voir section 2.3

2. thermoluminescent dosimeter

3. Optically stimulated luminescence

lorsque les particules chargées interagissent au niveau atomique avec l'oxygène, présent dans la matière organique irradiée.

La méthode EPID [88] a d'abord servi à optimiser le placement du patient par rapport à la source de rayonnements X. Son principe de fonctionnement est basé sur l'hypothèse que si l'on connaît avec exactitude l'ensemble des coefficients d'atténuation dans chaque voxel de la zone à traiter, on peut alors en ayant une projection 2D -ce qui est le cas, puisque la plupart du temps le diagnostic est accompagné d'un scanner- de la dose absorbée, remonter à une projection de la dose absorbée par le patient. Si le plan de traitement le permet, on peut aussi, à la manière d'un scanner X, utiliser un nombre défini de coupes afin de minimiser l'exposition des tissus sains. Le schéma 3.2 résume les différentes procédures existantes. Les détecteurs utilisés sont les mêmes que ceux utilisés pour les scanners. Les grandes avancées technologiques de ces dernières années ont été les mêmes (passage au numérique, utilisation de pixels plus petits, optimisation de la qualité de collection du signal). Il faut également noter que plusieurs solutions de détection existent dans ce protocole : l'utilisation soit de détecteurs semi-conducteur type germanium, ou l'utilisation de scintillateurs couplés à des photodétecteurs (cristal-PM). Cette technique est extrêmement séduisante parce qu'elle est non invasive, qu'elle ne nécessite pas d'irradiation supplémentaire du patient. De plus, les outils de détection se modernisent et les coûts d'utilisation baissent. Néanmoins les limitations sont les suivantes : s'agissant d'une méthode basée sur la dose projetée, il est difficile d'avoir une évaluation précise de la dose reçue par les zones d'intérêt avec exactitude, cette donnée n'étant accessible qu'à une reconstruction mathématique basée sur la déconvolution de l'information 2D à l'aide des densités des différents voxels connus par les données obtenues par scanner. Ceci est même très problématique dans les zones où les organes peuvent bouger. D'un point de vue plus fondamental, la densité et la composition chimique des détecteurs utilisés diffèrent de ceux observés, ce qui peut induire un biais entre la dose absorbée par le détecteur et celle qu'absorberait un tissu vivant.

Dosimétrie en hadronthérapie

Une autre méthode, basée sur l'imagerie TEP⁴ [89], suppose une émission gamma qui peut avoir diverses origines et qui serait en corrélation avec le dépôt de dose. Le mécanisme à la base de la dosimétrie par l'imagerie TEP est la production de positon le long du parcours de la particule chargée. Cette émission β^+ est à l'origine de deux photons d'annihilation de 511keV chacun, à 180 degrés l'un de l'autre. On peut supposer deux mécanismes d'activation : fission du carbone en fin de parcours, lequel a plus de chances de se retrouver dans l'état ^{10}C ou ^{11}C en fin de parcours du fait d'un dépôt d'énergie plus important ; réarrangement des atomes d'oxygène, ^{15}O également produits lors du dépôt d'énergie. Cette technique, contrairement à l'EPID, donne directement une information en 3 dimensions. Sa limitation réside plus dans

4. Tomographie par émission de Positons

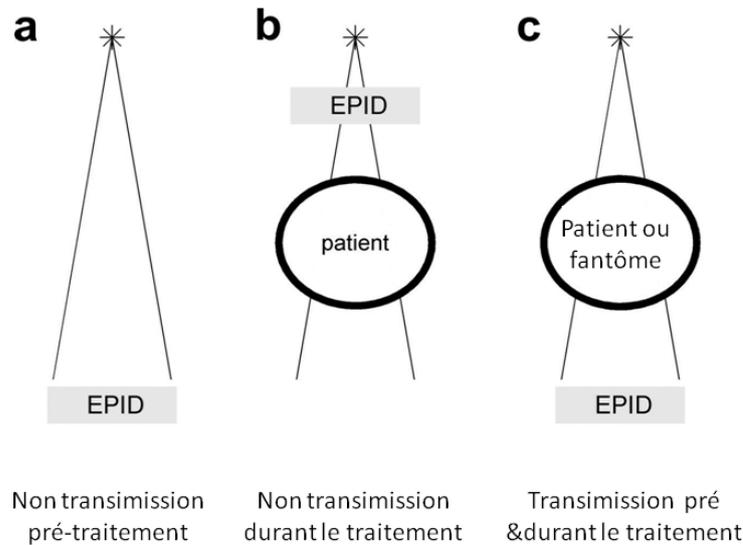


FIGURE 3.2 – Illustration des différents protocoles de la méthode EPID

la faiblesse des activités mises en jeu, de l'ordre de quelques $kBq/cm^3/Gray$. Les expériences qui vont être présentées dans la suite de mémoire ont été essentiellement réalisées au HIMAC. Afin de mieux aborder les résultats qui seront présentés par la suite, il est important de faire le point sur les protocoles dosimétriques actuellement en application dans ce laboratoire de référence.

Protocole de dosimétrie utilisé à l'HIMAC

A l'heure actuelle, les protocoles de calibration de faisceau d'ions au HIMAC [90–92] s'effectuent par une chambre d'ionisation (voir photo 3.3). La chambre utilisée a été spécialement développée par les équipes du HIMAC et n'a pas d'équivalent commercial. Une calibration préalable de cette chambre à l'aide d'un calorimètre a permis de donner une mesure en $Gray/coup$. Cette unité de dose correspond à la mesure du courant générée par la chambre d'ionisation à chaque évènement détecté. Le contrôle du profil énergétique du faisceau s'effectue avant chaque expérience. La chambre d'ionisation est placée en lieu et place de l'échantillon et un système de plaques amovibles en PMMA⁵ permet de simuler un dépôt de dose à différentes profondeurs équivalent tissus de ce matériaux. Typiquement les profils de dose en profondeur que nous avons mesurés sont donnés dans la figure 3.4.

5. Polyméthacrylate de méthyle

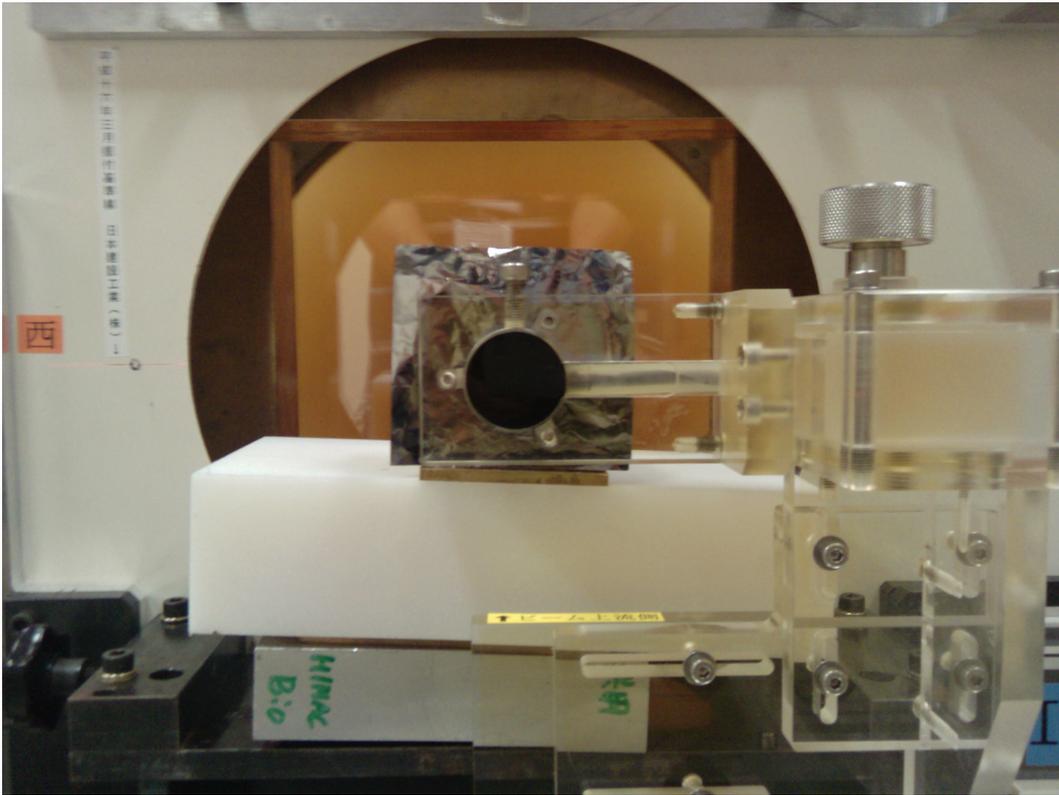


FIGURE 3.3 – Photographie de la chambre d'ionisation utilisée au HIMAC

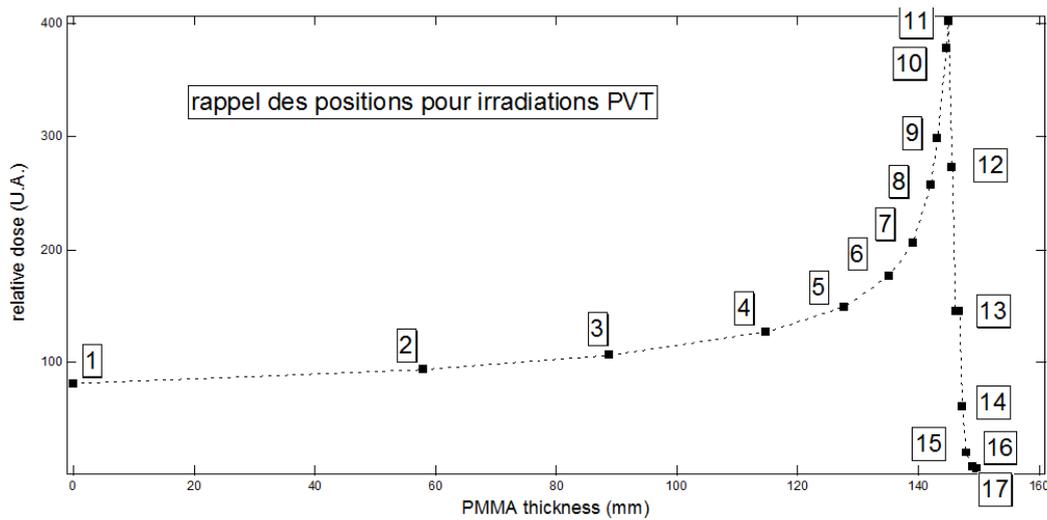


FIGURE 3.4 – Courbe de calibration pour le faisceau utilisé. Cette courbe est fournie par le NIRS, des dégradeurs de PMMA permettent de réduire l'énergie du faisceau.

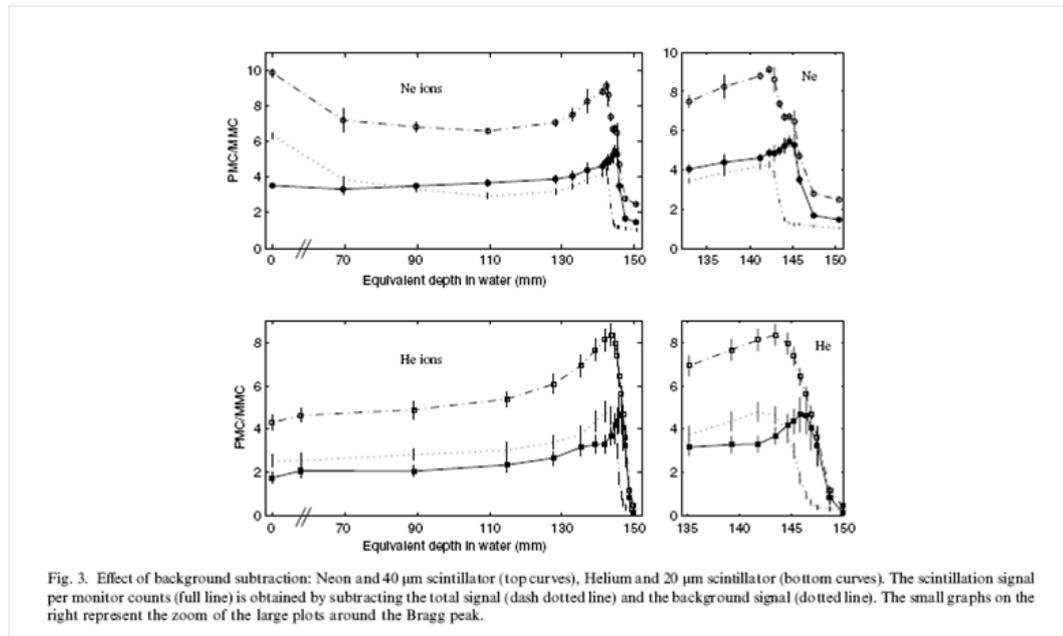


FIGURE 3.5 – Illustration des résultats obtenus par BROGGIO et al. (2007)

3 Dosimétrie par fluorescence sous faisceau continu

3.1 Fluorescence mesurée de façon continue

Comme nous venons de le voir, en prenant l'exemple de l'hadronthérapie, il n'existe pas actuellement de méthode de dosimétrie *en temps réel* et avec une *résolution spatiale* satisfaisante d'un point de vue thérapeutique.

Résultats antérieurs

Dans ce chapitre nous présenterons rapidement les travaux préliminaires menés par Broggio et al. [93] qui ont développé un dosimètre basé sur des scintillateurs dont la lumière est amenée au photomultiplicateur par une fibre optique, puis nous présenterons les premiers résultats que nous avons obtenus à l'aide d'un dosimètre développé durant cette étude et utilisant la méthode de TCSPC. D'après Frelin et al. [21], la lumière émise par un scintillateur est proportionnelle à la quantité d'énergie déposée dans celui-ci, pour des électrons d'énergie inférieure à 200keV. Cette considération est fondamentale, dans le sens où toute dosimétrie basée sur la quantité d'émission de lumière repose sur cette proportionnalité. Les premières mesures (voir figure 3.5) menées au HIMAC à l'aide du prototype de Broggio et al. ont montré deux choses :

- La première est que le signal lumineux transmis au photodétecteur était suffisant pour espérer réaliser une reconstruction du pic de bragg correcte.
- La seconde est que la mesure directe du signal lumineux ne permet pas d'envisager une résolution en dose suffisante dans le cas des ions.

La limitation de la résolution en dose a plusieurs origines [94]. La première réside dans le bruit intrinsèque au photomultiplicateur. Dans la pratique, même si celui-ci n'est pas soumis à un flux de photons, la probabilité d'émission d'un électron par la photocathode n'est pas nulle. Ce bruit, résultant d'un courant d'obscurité, est plus connu sous le terme anglais de "dark current". Une autre limitation provient du fait que la lumière reçue par le photomultiplicateur ne résulte pas exclusivement de la fluorescence du scintillateur. Il faut ajouter à celle-ci le rayonnement *Čerenkov* dans le cas des particules de hautes énergies ($E >$ à quelques MeV). Il faut également prendre en compte le fait que la fibre optique servant de guide de lumière peut émettre de la lumière lorsqu'elle est irradiée, ce qui réduit d'autant la résolution spatiale du dispositif. Pour réduire le bruit induit par le rayonnement *Čerenkov*, Beddar et al. ont récemment proposé un prototype [95] permettant de soustraire celui-ci du signal direct mesuré mais au détriment de l'encombrement du détecteur. Une explication supplémentaire repose sur le fait que les photomultiplicateurs soumis à un flux bref et intense de photons subissent de la saturation dans leurs réponses impulsionnelles. Une amélioration qui a été évoquée par Broggio implique l'utilisation de scintillateurs très fins (de l'ordre de quelques μm). On comprend aisément que plus le scintillateur est épais, plus le signal mesuré sera une intégration de la dose en profondeur reçue. De plus, pour des scintillateurs très efficaces, on constate très rapidement la saturation du photodétecteur par le flux lumineux : physiquement un nombre très important de photons de fluorescence peuvent être émis par le scintillateur, pour une même interaction, mais le PM ne pourra pas en rendre compte directement à haute intensité (temps court). Une expérience menée en 2008 avec du BC-418 (*Bicron*[©]), du PET⁶ (*Goodfellow*[©] voir annexe 4.9(a) et un nouveau scintillateur, à base de liquide ionique (PF6), développé lors de la thèse de Mélodie Munier et objet d'un brevet [56, 76] dans notre laboratoire, avec des ions carbonés accélérés à une énergie de 290MeV/u, ont donné des résultats plus satisfaisants (voir figure 3.6). Le protocole expérimental impliquait, alors, l'utilisation d'un PM (R3235) avec un gain supérieur à celui que Broggio utilisait (H7155-20 de chez hamamatsu[©]). Ces résultats montrent que quelque soit le scintillateur, le ratio qu'il y a entre la radioluminescence la plus faible et la plus forte (au début du pic de bragg et au maximum de celui-ci) reste comparable et ce malgré la nature très différente des scintillateurs utilisés. Effectivement, Munier [56] a clairement montré que le scintillateur PF6 possédait une composante lente relative de scintillation supérieure aux autres scintillateurs.

Nous montrerons dans ce chapitre, que la méthode de mesure directe, avec un PM unique, n'est pas adaptée pour ce type de mesure.

Le décalage que l'on observe entre la radioluminescence du PET et les deux autres scintillateurs, illustrés dans la figure 3.6 provient du fait que les expériences ont été menées à différents moments, le porte échantillon n'étant pas placé dans les mêmes conditions géométriques.

6. Polyéthylène téréphtalate

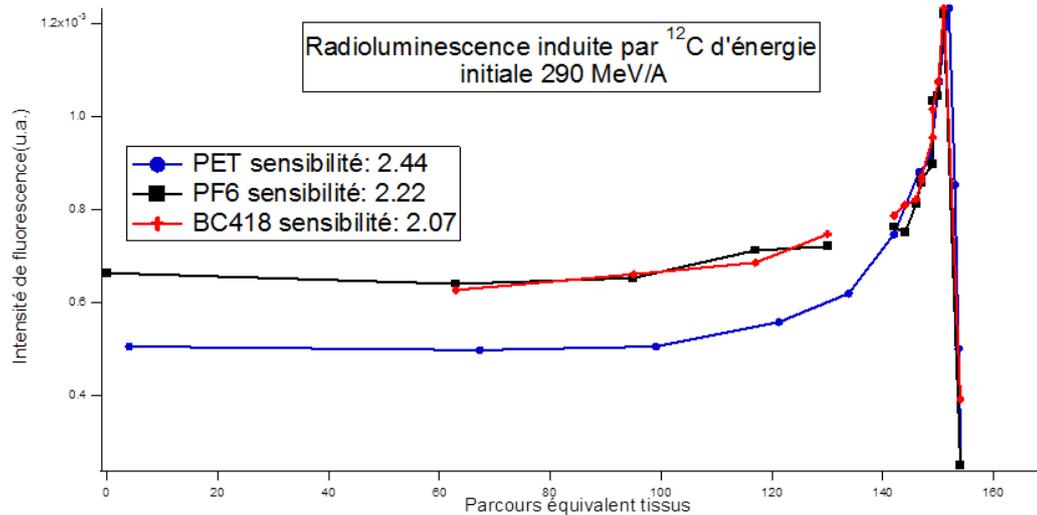


FIGURE 3.6 – Illustration des résultats obtenus avec une méthode directe de mesure de la fluorescence

Limitation de la méthode de mesure directe

Pour mieux comprendre les effets de saturation des photodétecteurs soumis au déclin, très intense à temps courts, de la fluorescence, d'un scintillateur : il est bon de rappeler quelques ordres de grandeur. Habituellement, les plastiques utilisés au cours de cette étude sont des scintillateurs dits rapides (temps de décroissance de quelques ns), ce qui implique une amplitude de 4 ordres de grandeur en quelques ns de déclin. A l'heure actuelle, il n'existe pas de photodétecteurs capables de rendre compte avec précision d'une telle variation d'amplitude. Il faut comprendre que la méthode de comptage direct du nombre de photons émis repose sur l'intégration du signal de comptage de fluorescence et non sur le comptage du nombre de photons émis. Toute la théorie du comptage direct repose sur le fait que la probabilité de compter ces "flash" est en corrélation linéaire avec le nombre de photons émis par unité de parcours, et que le nombre de photons émis est en corrélation linéaire avec le TLE. Mais la saturation induite par la très forte amplitude dans l'émission initiale des photons émis entraîne une perte de linéarité dans la probabilité de comptage des déclins. A flux constant, on peut supposer que le nombre de déclins émis est constant, ce qui va permettre de faire la différence entre les différents TLE c'est que la probabilité de compter un déclin, à l'aide d'un seuil électronique de déclenchement prédéfini, va varier avec la quantité de courant émise par le photodétecteur. Or, l'on vient de voir que cette quantité n'est pas linéaire avec le nombre de photons reçus parce qu'il y a saturation de celui-ci, comme l'illustre la figure 3.7.

De plus, tous les modèles présentés dans la section 2.6, prévoient un phénomène de saturation, dans la trace nucléaire elle-même, lorsque le TLE dépasse un certain seuil.

La dernière limitation de la mesure directe repose sur le fait que cette mesure prend

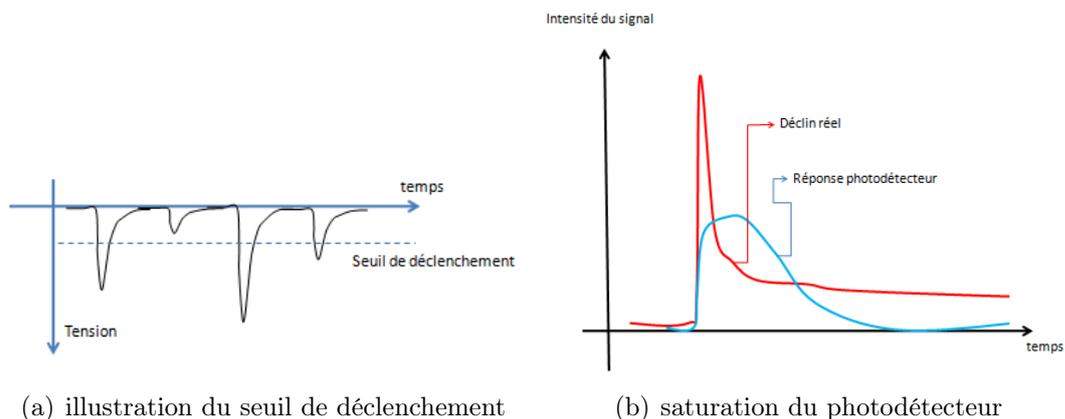


FIGURE 3.7 – illustration des mécanismes de saturation du mode de comptage direct

également en compte le rayonnement Čerenkov qui n'est pas relié de manière linéaire au débit de dose que reçoit le scintillateur, mais à la fluence de celle-ci. Lorsque le rayonnement incident est suffisamment énergétique ($>100\text{keV}$ pour des photons) ce rayonnement peut entraîner jusqu'à 20% d'incertitude [21] dans la mesure du débit de dose.

Ces différentes considérations nous ont amenés à explorer une autre voie que celle du comptage direct des photons émis. Nous montrerons dans la suite de ce chapitre que les conclusions de ces modèles, qui prévoient une saturation au sein de la trace du rayonnement ionisant, basé sur des mesures de radioluminescence directe sont incomplètes. Nous montrerons de plus que nos expériences tendent à montrer, non pas une saturation de l'émission de luminescence au sein des scintillateurs, mais bien au sein de la chaîne de mesure.

3.2 Mesure de fluorescence par coïncidence

Développées dans les années 70 par Voltz and co, les mesures par coïncidence utilisant deux photodétecteurs ont servies à étudier les déclins de scintillation, de molécules organiques modèles, avec une résolution temporelle nanoseconde. Cette méthode est extrêmement efficace dans ce cadre parce qu'elle permet de s'affranchir des problèmes de saturation inhérent aux détecteurs et aussi de se départir d'une déconvolution du signal électrique direct.

Notre première démarche a été d'étudier les déclins de fluorescence de plusieurs scintillateurs de référence, notamment le BC-418 et le PET, afin de pouvoir mettre en évidence une corrélation entre l'importance relative de la partie différée de scintillation par rapport à la scintillation totale.

Prototype et condition expérimentale

Nous avons développé une chambre d'irradiation (voir illustration 3.8) spécialement conçue pour les conditions d'irradiations du HIMAC. Cette chambre d'irradiation, déjà présentée dans la section 3 du chapitre 2, est composée d'une fenêtre

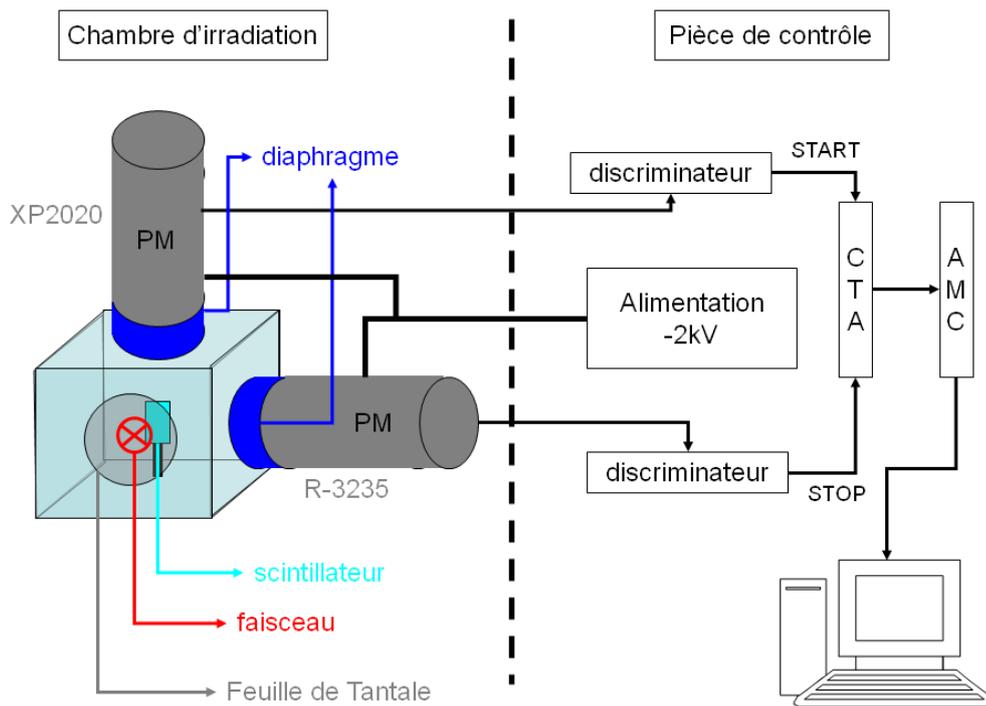


FIGURE 3.8 – Illustration du dispositif expérimental utilisé au HIMAC

d'entrée opaque constituée d'une feuille de tantale de $10 \mu\text{m}$ d'épaisseur, d'un porte échantillon en laiton afin de prévenir la luminescence de celui-ci, et de deux PM. Le scintillateur utilisé était du BC-418, plastique scintillant à base de polyvinyltoluène, produit par la société Bicron[®]). Cet échantillon d'épaisseur de $10 \mu\text{m}$ comprenant une surface irradiée d'approximativement 1cm^2 . La fluence du faisceau d'Helium ($150\text{MeV}/\text{uma}$) était fixée à $1,8 \cdot 10^5 \text{ particules} \cdot \text{cm}^{-2}/\text{impulsion}$. La chambre d'irradiation est centrée dans le champ d'irradiation à l'aide d'un dispositif d'alignement laser.

Signal type observé

La figure 3.9 illustre les déclins que nous obtenions lors de nos expériences. Le médaillon est une représentation en échelle logarithmique. La figure 3.10 illustre le signal que nous obtenions sans scintillateur. Les trois gaussiennes présentes dans le spectre temporelle, dû au rayonnement *Čerenkov*, empêche tout ajustement sur les déclins. L'accélérateur étant un accélérateur synchrotron, il ne délivre pas les particules de manière continue, mais sous forme de "pulse", à la fréquence de 600kHz environ. C'est cette fréquence que nous retrouvons dans ce diagramme de bruit, qui nous a empêché d'ajuster la loi de décroissance de fluorescence sur la partie lente de celle-ci.

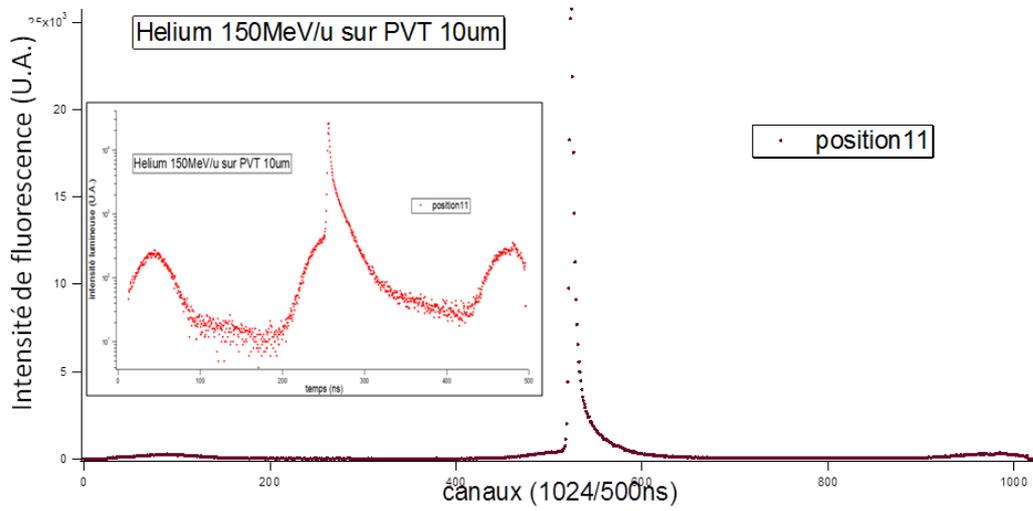


FIGURE 3.9 – Exemple de déclin brut que l'on a obtenu lors de l'irradiation par des Héliums

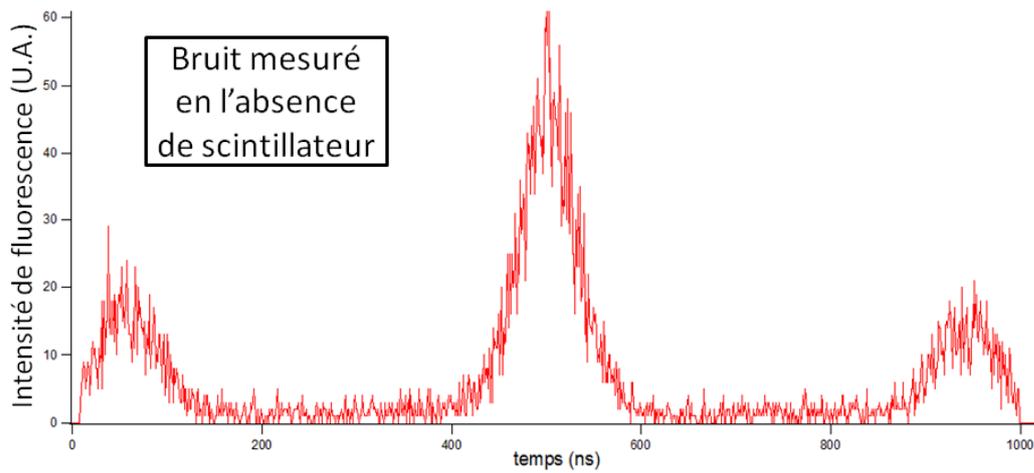


FIGURE 3.10 – Mesure de l'effet Čerenkov en l'absence de scintillateurs

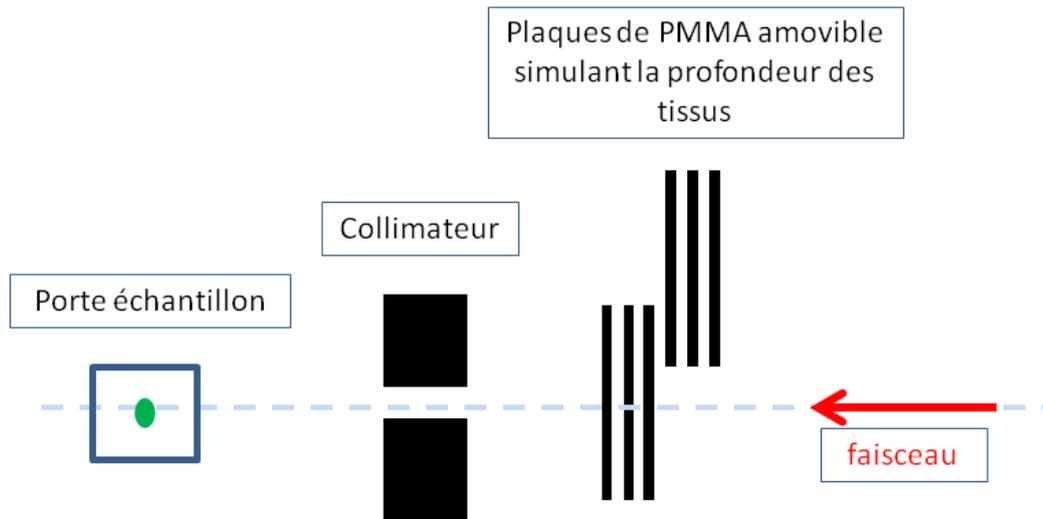


FIGURE 3.11 – Schéma de l'expérience menée au HIMAC

Résultats expérimentaux dans le PMMA

Nous allons présenter ici les premiers résultats expérimentaux d'une dosimétrie en profondeur du PMMA⁷. Ces résultats ont été obtenus à l'aide du dispositif expérimental décrit précédemment et illustré dans les figures 3.11 et 3.12.

L'analyse des déclin de fluorescence mesurés à l'aide des deux PM placés en coïncidence a été menée de la façon suivante : nous avons intégré l'ensemble des signaux de fluorescence, illustré dans la figure 3.13, pour chaque profondeur. L'analyse des résultats que nous avons développée est novatrice, effectivement c'est la première fois que la corrélation entre la mesure de l'émission de fluorescence par coïncidence et le TLE est effectuée. Lorsque l'on analyse pour chaque position (position illustrée dans la figure 3.4), en normalisant au temps d'irradiation, les déclin de luminescence (voir figure 3.13), on s'aperçoit que l'intensité lumineuse mesurée par la méthode de TCSPC semble indiquer une grande linéarité de réponse en fonction du TLE.

Nous avons intégré la totalité des événements de coïncidence et normalisé cette valeur par le temps d'irradiation. La figure 3.14 montre les résultats que l'on obtient.

Ces résultats montrent que la sensibilité de réponse de notre chaîne de mesure est supérieure à la sensibilité que nous donne la chambre d'ionisation. Pour confirmer ce résultat, nous avons mesuré, à l'aide d'un autre scintillateur (le PET) la réponse en scintillation avec un flux de particules ayant une amplitude de TLE supérieure : les carbones (voir figure 3.15). Le protocole de mesure utilisé reste inchangé par rapport au précédent, la courbe de calibration du faisceau obtenue à l'aide de la chambre d'ionisation est illustrée dans la figure 3.16.

Ces résultats sont très intéressants dans la mesure où l'amplitude d'émission de fluorescence est plus importante que l'amplitude de TLE ou "ionisation" prédite

7. Polyméthacrylate de méthyle

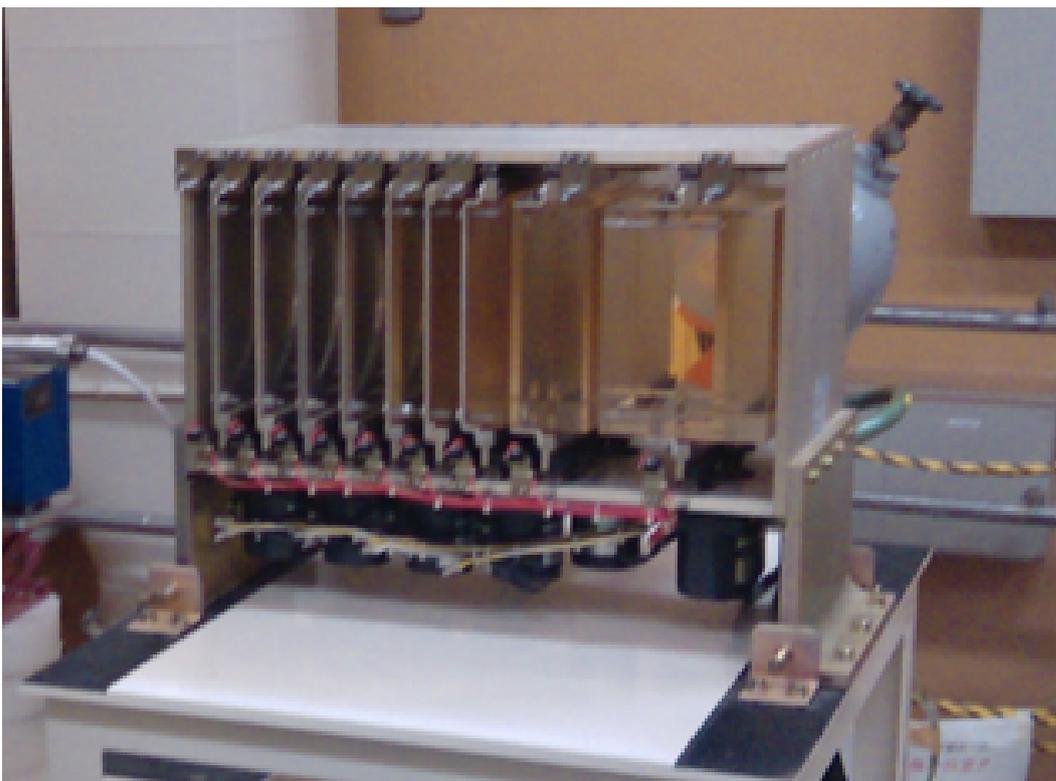


FIGURE 3.12 – Photographie du dispositif permettant d’intercaler des plaques de PMMA permettant de reconstruire la dose en profondeur

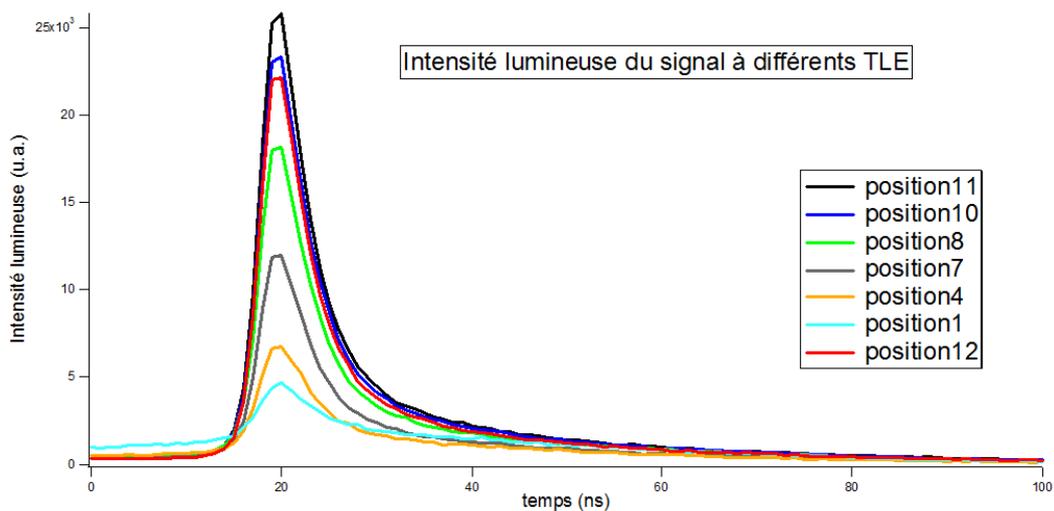


FIGURE 3.13 – Déclin de fluorescence du PVT (BC-418) sous irradiation d’hélium à différents dépôts d’énergie

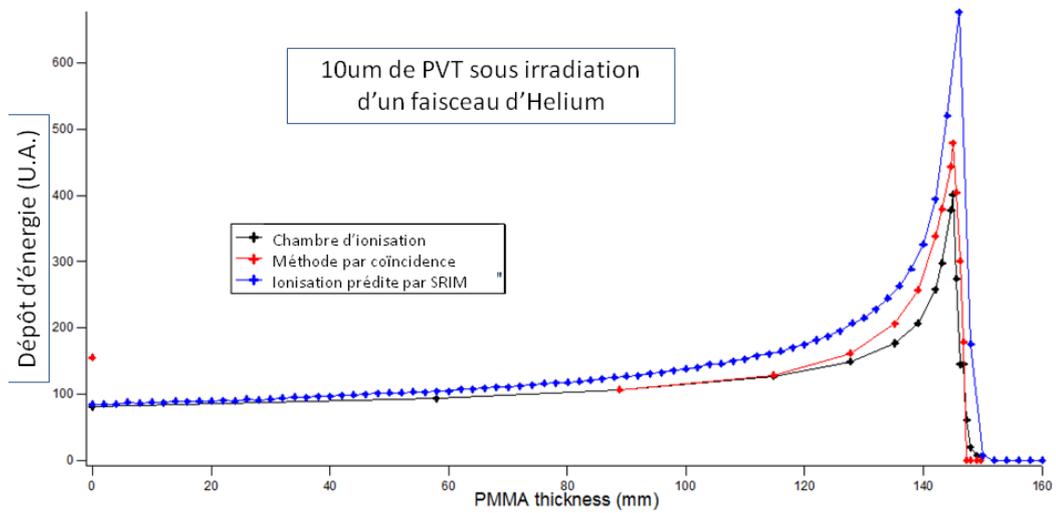


FIGURE 3.14 – Comparaison des résultats obtenus entre la méthode par TCSPC et une chambre d'ionisation sous irradiation d'un faisceau d'hélium accéléré à 150 MeV/u

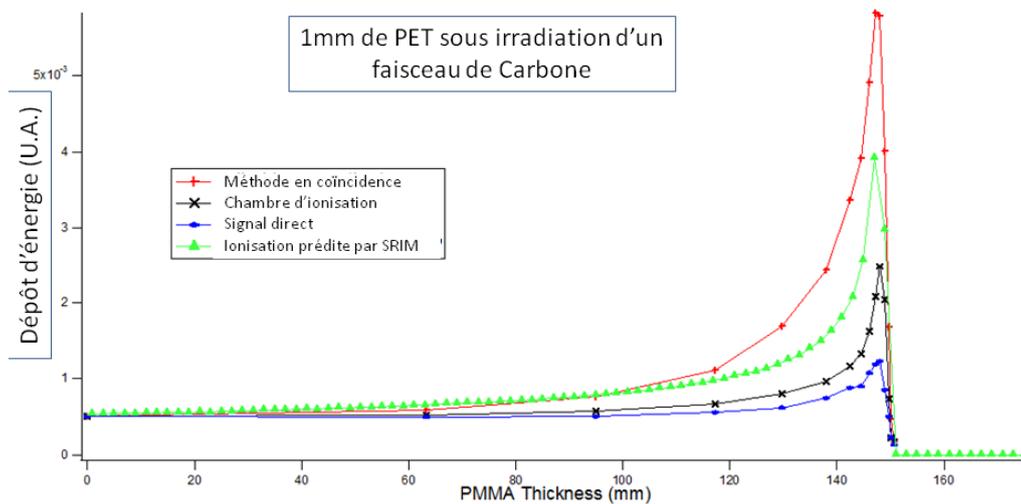


FIGURE 3.15 – Comparaison des résultats obtenus entre la méthode par TCSPC et une chambre d'ionisation sous irradiation d'un faisceau de carbone accéléré à 290 MeV/u

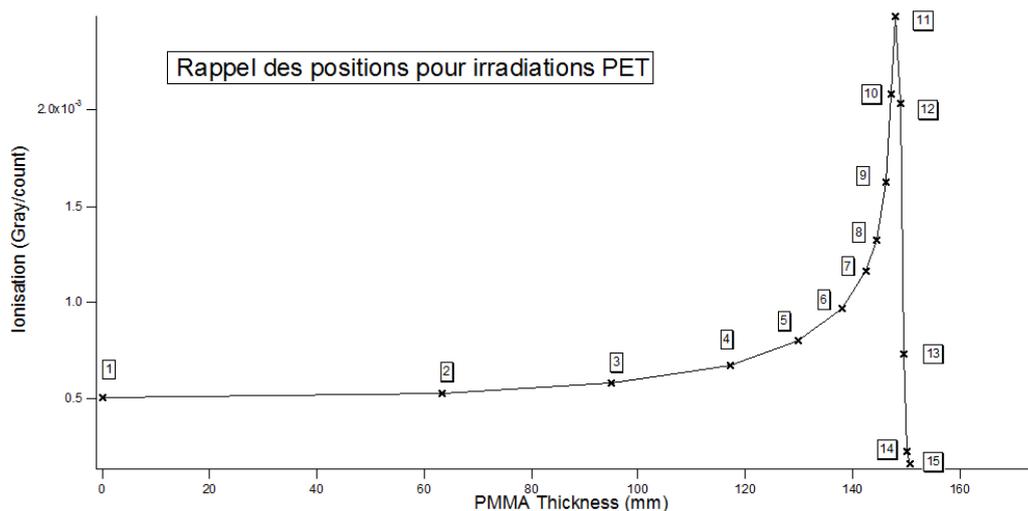


FIGURE 3.16 – Courbe de calibration obtenue pour une irradiation carbone

Méthode utilisée	Comptage direct	Chambre d'ionisation	TCSPC	SRIM
Δ_f carbone	2.44	4.91	11.4	7.27
Δ_f hélium		3.79	4.52	6.38

TABLE 3.1 – sensibilité des différents méthodes de mesure

par SRIM. Le modèle de Bethe-Bloch (utilisé dans SRIM) prédit les ionisations produites par unité de parcours d'une particule chargée à une énergie donnée dans un matériau. Pour mieux quantifier cette amplitude nous définissons une sensibilité Δ_f qui est le rapport du TLE mesuré au maximum du pic de Bragg sur le TLE mesuré sans dégradeur de PMMA. Le tableau 3.1 résume les différentes sensibilités obtenues avec les différentes méthodes de mesure, plus l'amplitude prédite par le modèle de Bethe-Bloch.

3.3 Développement d'un prototype de dosimètre en temps réel

Nous avons vu dans la section 3.2, que la méthode par TCSPC avait l'atout principal de diminuer grandement le bruit de fond inhérent à chaque PM. C'est pourquoi nous avons développé, durant cette étude, une sonde dosimétrique pouvant réunir les atouts d'une détection par scintillation et les atouts d'une mesure par coïncidence. Un brevet portant sur la méthode de mesure en coïncidence afin de mesurer la dose déposée dans le scintillateur a d'ailleurs été déposé (BREVET AF-VC BFF 11P0786). L'idée directrice repose sur le fait que l'émission de lumière à un endroit donné peut être déportée, à travers des fibres optiques, sans pertes significatives d'informations temporelles spectrales et d'intensité. Cette propriété a l'avantage de la miniaturisation de toute la partie capteur de la chaîne de mesure tout en gardant un niveau de bruit négligeable. Le prototype que nous avons développé

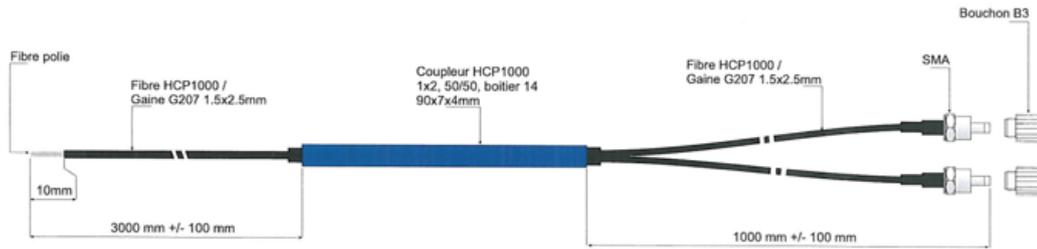


FIGURE 3.17 – Illustration du prototype utilisé pour la dosimétrie

est illustré dans la figure 3.17. Il est composé d'une fibre optique avec à une des ses extrémités le scintillateur, et à l'autre un "diviseur" de lumière. Ce "diviseur", plus communément appelé *splitter*, divise la lumière reçue en deux (ici on a choisi un splitter 50%/50%). Cette lumière va ensuite être acheminée toujours, via les fibres optiques, aux PM.

Cette configuration ne permet plus de mesurer des déclins de fluorescence et l'on perd la possibilité de pouvoir diaphragmer correctement l'ouverture de la fibre optique. Mais ce type de mesure à l'aide de ce système pourrait toujours être envisagé, dans la mesure où des systèmes de splitter 10%/90% existent. On se retrouve donc avec une configuration qui permet uniquement de mesurer la coïncidence temporelle ; mais sur le même événement physique qui est ici l'émission d'un flash lumineux de quelques nanosecondes. Typiquement le scintillateur utilisé est une fibre optique scintillante (BCF-12 ou BCF-10) fournie par la société St-Gobain[®], dont les caractéristiques physiques sont rappelées en annexes 4.6(a), 4.7(a), 4.7(b), 4.5. On peut voir que la longueur d'onde d'émission des photons de fluorescence coïncide avec l'efficacité maximale des PM utilisés pour la détection (annexe 4.3). Typiquement le signal de coïncidence que l'on obtient à l'aide de ce prototype est donné dans la figure 3.18. Nous avons utilisé une fenêtre temporelle sur le module de coïncidence de 100ns.

On peut constater que l'on ne mesure plus de déclin de fluorescence et que le temps de montée du signal se confond avec le temps de déclin. Le nombre d'événements comptabilisé par cette méthode est en fait l'équivalent de l'intégrale totale faite lors de la méthode de traitement des données effectuée dans la section 3.2.

Résultats expérimentaux obtenus par irradiation gamma

Nous avons testé ce nouveau prototype dans différentes configurations. Nous voulons répondre à plusieurs questions : quelle est la plage d'utilisation de ce dosimètre, est-ce que la dose mesurée est bien exacte et à quel point est-elle fiable. Ce dosimètre est-il sensible également au changement d'énergie du rayonnement ou uniquement à sa fluence. Les premières expériences menées afin de répondre à ces questions ont consisté à comparer les doses mesurées par notre dosimètre et un dosimètre de référence : une chambre d'ionisation (dont les caractéristiques techniques sont rappelées

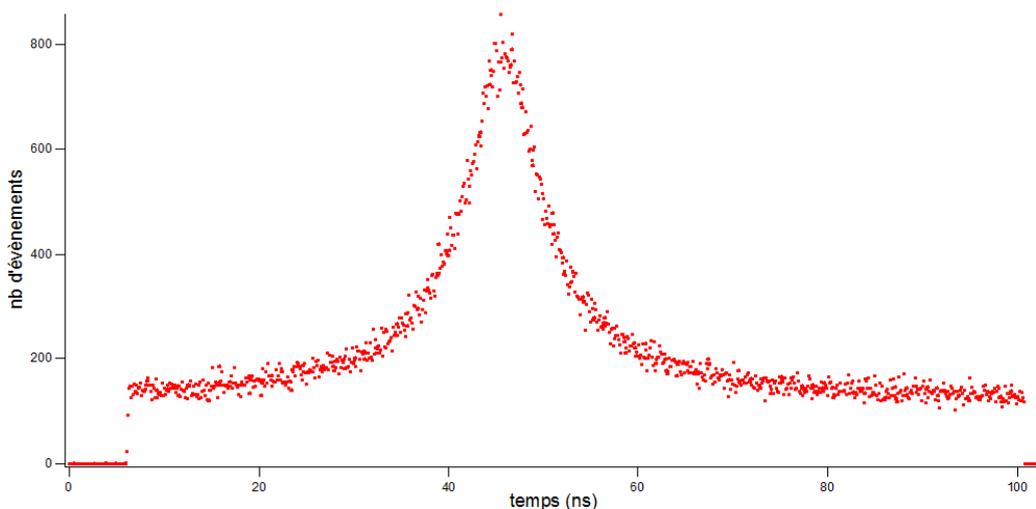


FIGURE 3.18 – Signal de coïncidence que l'on obtient à l'aide du prototype basé sur les fibres optiques

Source	^{60}Co	^{137}Cs
Activité	1,85TBq	3,75 TBq
gamma caractéristique	1,1732 et 1,3325MeV	0,661 MeV

TABLE 3.2 – caractéristique des sources gammas utilisées au sein du NIRS

en annexe 4.8. Pour ce faire nous avons utilisé la chambre d'irradiation gamma du NIRS qui contient deux sources radioactives de Cobalt et Césium. Le tableau 3.2 rappelle leurs caractéristiques.

Le protocole d'expérience est relativement simple, nous avons éloigné, de manière similaire, les deux dosimètres (chambre d'ionisation et notre prototype) de la source d'irradiation, et nous avons mesuré le nombre d'évènements en coïncidence que nous observons. Les figures 3.19 et 3.20 illustrent nos résultats. Le "dosadron" est le nom que nous avons donné à notre prototype.

Tous les résultats ont été normalisés au point le plus proche mesuré avec la source de cobalt. Ce qui signifie que le même facteur de normalisation a été utilisé pour la source de Cobalt et celle de Césium. Cette même normalisation laisse croire que le débit de dose mesuré est indépendant de l'énergie du rayonnement incident. Le scintillateur utilisé lors de cette expérience était un morceau de fibre BCF-10 d'environ 1cm de long pour 1mm de diamètre. Il s'est avéré par la suite que ce scintillateur a été amélioré par St-Gobain[©] par le scintillateur BCF-12. Effectivement le BCF-10 a une tendance naturelle à perdre en efficacité de fluorescence lorsqu'il est stocké trop longtemps à l'air à cause de sa détérioration naturelle due aux rayonnements UV. La dose mesurée suit bien une loi de décroissance inversement proportionnelle au carré de la distance. La normalisation à une énergie donnée de gamma entraîne une perte en linéarité de mesure de dose inférieure à 5%. La déviation que l'on peut observer à

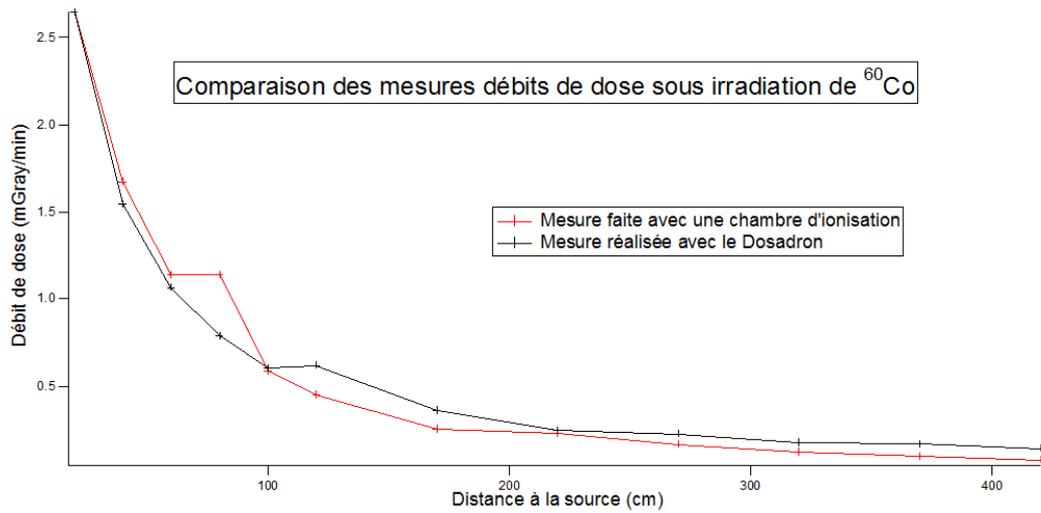


FIGURE 3.19 – Résultats obtenus au NIRS avec une source de ^{60}Co

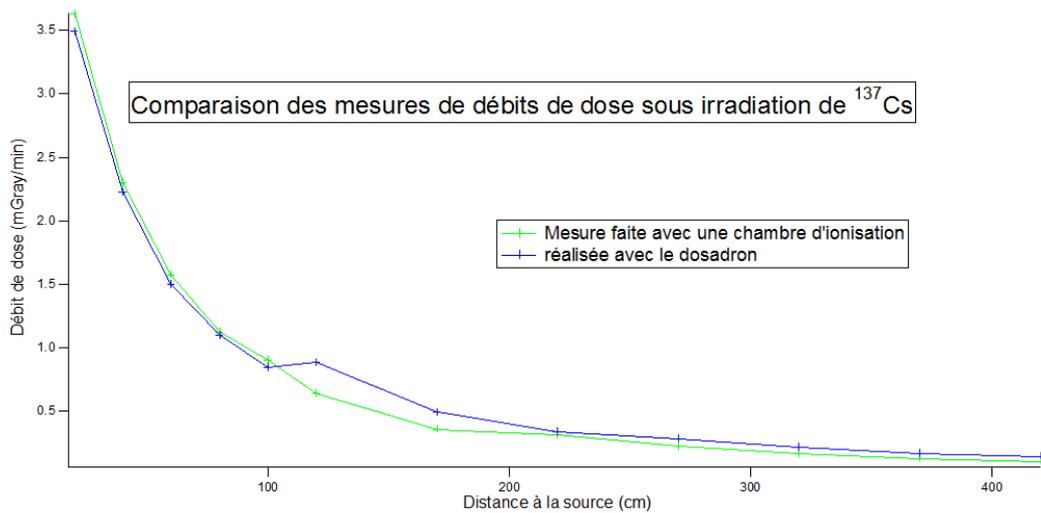


FIGURE 3.20 – Résultats obtenus au NIRS avec une source de ^{137}Cs

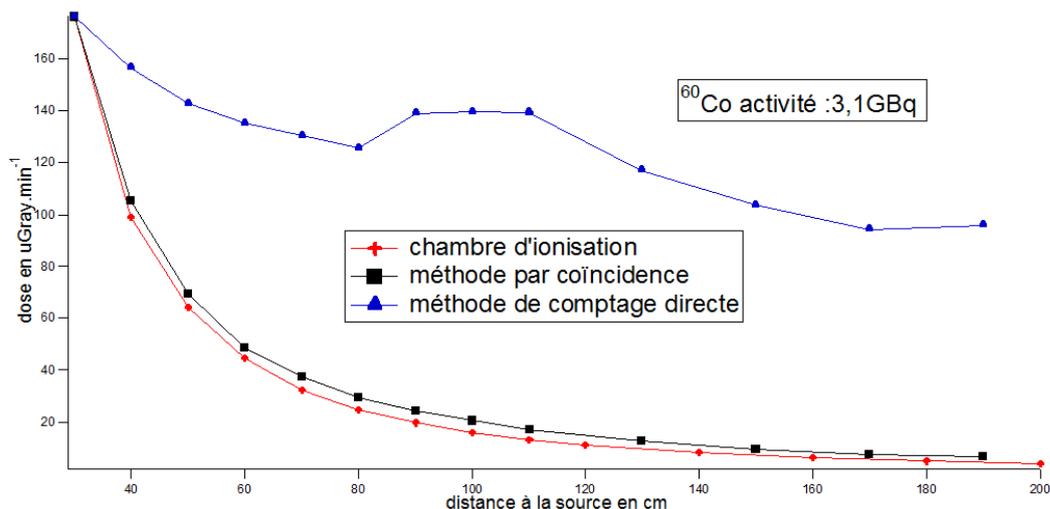


FIGURE 3.21 – Comparaison de mesure de dose avec trois méthode différentes.

1 m de distance peut être expliquée par le fait qu'à cette distance l'ensemble du dispositif de mesure (fibre, PM, chaîne d'acquisition électronique) n'était plus protégé de la source, et que par conséquent un bruit supplémentaire s'ajoute à la mesure. Ce qui n'était pas le cas de la chambre d'ionisation dont la chaîne électronique d'acquisition se situait en dehors de la chambre d'irradiation. Pour confirmer les premiers résultats obtenus au NIRS, nous avons développé un module de comptage à même de rendre compte en temps réel du débit d'évènements que nous mesurerions par chaque méthode de mesure. Effectivement jusqu'à maintenant le protocole de mesure exigeait une intégration du signal de coïncidence *a posteriori*. Donc nous avons du mal à nous rendre compte du débit instantané que pouvait mesurer notre prototype. Ce module est composé de deux compteurs (National Instruments[®]). Un compteur mesure les signaux donnés directement par le discriminateur à la sortie d'un PM. Ce qui revient à compter les évènements par comptage direct, et un compteur mesure le nombre d'évènements sortants du TAC. Au final ce module nous permet de comparer les deux méthodes de mesure et d'estimer où se situent leurs lacunes respectives. Pour ce faire nous avons utilisé la chambre de calibration gamma du RAMSES (Institut Pluridisciplinaire Hubert Curien- FRANCE). Cette chambre est composée d'une source radioactive de Cobalt d'activité de 3,1GBq et d'un automate permettant de manipuler le dosimètre. Nous avons donc utilisé le même protocole qu'au NIRS en effectuant quelques changements. Le scintillateur utilisé a été du BCF-12 (il s'est avéré que son activité lumineuse à dose constante était d'un ordre de grandeur supérieur à celle du BCF-10). Nous avons également utilisé le module de comptage. Les résultats obtenus sont donnés dans la figure 3.21.

Nous pouvons constater que l'utilisation d'un scintillateur plus performant diminue le biais de la mesure (un écart maximum de 5% entre la mesure effectuée par la chambre d'ionisation et notre prototype a été observé). Nous pouvons également constater que la méthode de mesure directe est en dehors de sa plage de dose

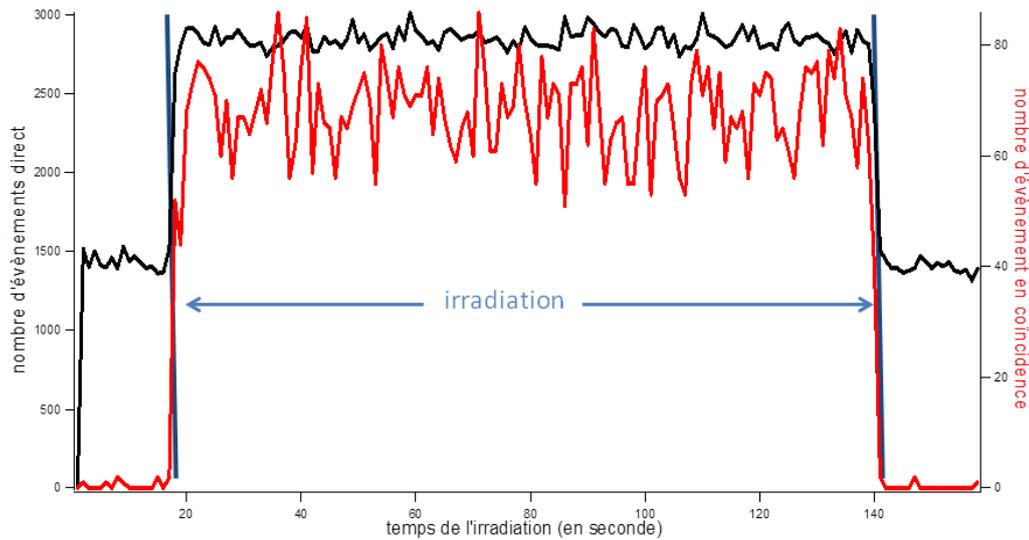


FIGURE 3.22 – Comparaison de la cinétique de comptage entre la méthode directe et la méthode en coïncidence

méthode	facteur a	écart à la valeur réelle (en %)
chambre d'ionisation	-1,99	0,5
méthode par coïncidence	-1,84	8
méthode directe	-0,04	98

TABLE 3.3 – Résultats des ajustements réalisés sur les différentes méthodes de mesures

d'utilisation. En analysant de manière un peu plus fine la cinétique de comptage des évènements des différentes méthodes (voir figure 3.22) nous pouvons constater que la méthode directe souffre de son bruit de fond qui ne peut être réduit du fait de la nature même du détecteur utilisé. Dans le même temps nous pouvons constater que la méthode par coïncidence a un bruit négligeable, néanmoins nous avons constaté que le signal devenait presque inexistant en dessous de $10 \mu\text{Gray}\cdot\text{min}^{-1}$. Nous avons donc pu estimer la valeur minimale du débit de dose que nous pouvons mesurer avec ce scintillateur.

Une analyse menée avec le programme d'ajustement IGOR[®] nous a permis d'ajuster les résultats obtenus. L'ajustement en loi de puissance x^a , nous a donné les résultats donnés dans le tableau 3.3. La colonne *écart à la valeur* donne l'écart (en%) de la valeur mesurée à la valeur théorique -2.

Méthode pour supprimer le rayonnement Čerenkov

En analysant la forme des signaux de coïncidence nous avons mis en évidence qu'il serait possible de procéder à une filtration du signal Čerenkov lorsque le scintillateur est soumis à un rayonnement supérieur en énergie à 100keV (limite au dessus de laquelle le rayonnement Čerenkov apparaît). Effectivement la figure 3.23, montre

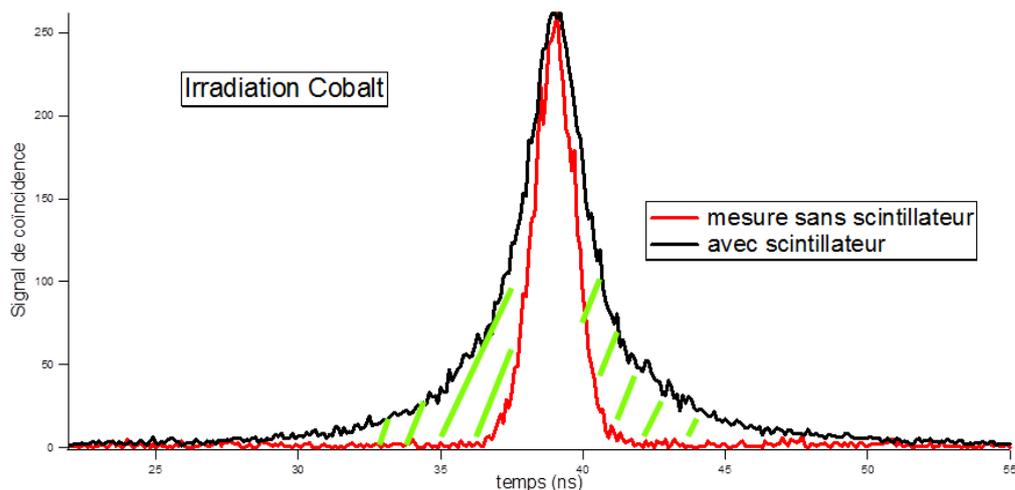


FIGURE 3.23 – Comparaison des signaux de coïncidence mesurée avec et sans scintillateur

le signal en coïncidence que nous obtenons avec le scintillateur, et sans celui-ci. Le signal obtenu sans scintillateur correspond au rayonnement Čerenkov émis dans la fibre et responsable du biais dans la mesure de débit de dose.

Les deux signaux sont normalisés à un maximum commun, cela veut dire que dans la réalité, le signal sans scintillateur représente 10 à 15% du signal observé avec scintillateur, mais pour une meilleure compréhension de la méthode, on a fait correspondre leurs maximums respectifs. La méthode consisterait à intégrer la totalité du signal en omettant les 3ns avant et après le maximum, de façon à éliminer la partie où le signal Čerenkov est présente. Effectivement ce signal a la caractéristique physique d'être extrêmement bref (de l'ordre de la picoseconde), son signal de coïncidence est donc plus resserré. Ici nous avons utilisé un scintillateur ultra rapide dont le temps de décroissance se situe aux environs de la nanoseconde. Il n'est pas exclu d'utiliser un scintillateur avec des caractéristiques de déclin temporel mieux adaptées à ce but précis (avec un temps de décroissance plus long). Dans la figure 3.23, la partie hachurée verte correspondrait au signal restant afin de déterminer le débit de dose, si nous utilisons un scintillateur plus lent, cette partie deviendrait non négligeable devant l'ensemble du signal. Cette méthode originale, permet de s'affranchir des solutions de filtrage par longueur d'onde développées dans la thèse de Frelin and co. [21], et serait une voie intéressante à développer afin d'utiliser cette méthode à des fins de dosimétrie des rayonnements gamma.

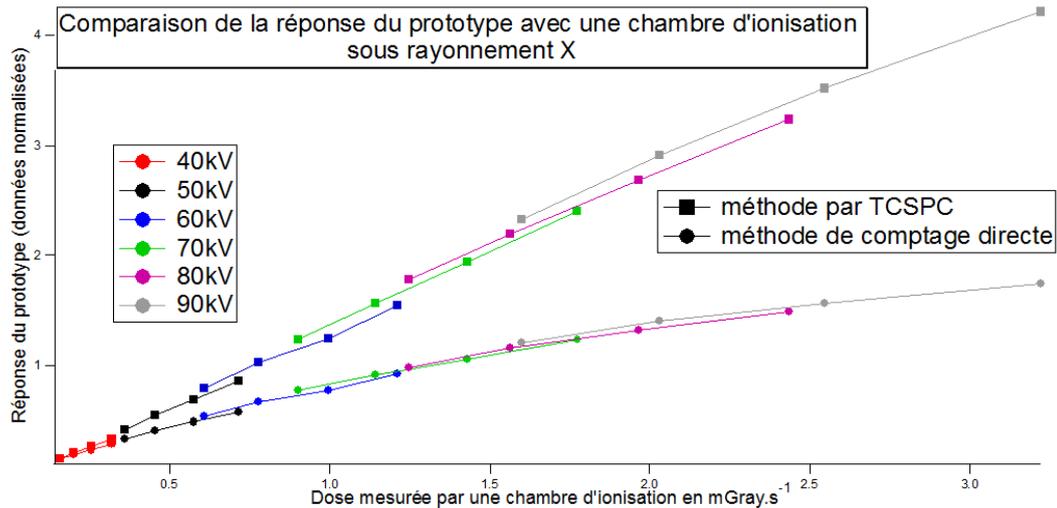


FIGURE 3.24 – Comparaison de la mesure faite par une chambre d’ionisation et la *dosadron* par mesure directe et par TCSPC. Pour chaque série de mesure l’intensité appliquée à l’ampoule de rayons X varie : 25, 32, 40 et 50 mA

Résultats expérimentaux obtenus par irradiation X

Un autre résultat que nous présenterons ici a été obtenu à l’aide d’un scanner dédié au petit animal (CT⁸ GENERAL ELECTRIC Vision CT120⁹). Nous avons voulu comparer la réponse d’un dosimètre de référence (ici une chambre d’ionisation) avec notre prototype. Pour ce faire nous avons placé la fibre scintillante et la chambre d’ionisation dans le champ de vue de l’ampoule émettrice des rayons X.

La figure 3.24 montre les résultats obtenus pour une série de couple courant-tension. La normalisation s’est effectuée sur la valeur la plus faible. Qualitativement on peut constater deux choses (voir figure 3.25) : la première est que la méthode par TCSPC donne une réponse linéaire avec la dose mesurée par la chambre d’ionisation et que lorsque que l’on effectue un ajustement de cette série de points (par une formule linéaire du type $ax + b$), l’ordonnée à l’origine b passe bien par 0 à $50\mu\text{Gray.s}^{-1}$ près. On peut également estimer que la méthode par TCSPC est plus sensible que la mesure par la chambre d’ionisation dans la mesure où le coefficient directeur a n’est pas égal à 1 mais est plus proche de 1,4. Ceci indique que sur cette plage d’utilisation, le prototype a une amplitude de réponse plus large que la chambre d’ionisation.

4 Interprétation des résultats obtenus par TCSPC

Dans cette section nous reviendrons sur l’ensemble des résultats mesurés par TCSPC. Tout d’abord nous reviendrons sur l’interprétation des résultats obtenus

8. computed tomography

9. [http : //www.gehealthcare.com/eu/fr/fun;img/products/pre-clinical/explore-ct-120/explore-ct-120.html](http://www.gehealthcare.com/eu/fr/fun;img/products/pre-clinical/explore-ct-120/explore-ct-120.html)

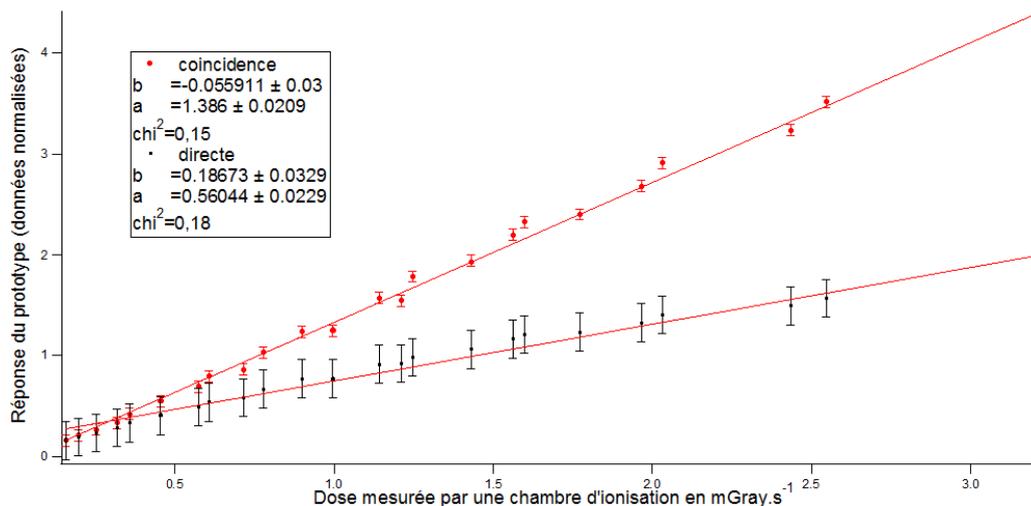


FIGURE 3.25 – Analyse de la mesure

avec des particules chargées.

Résultats avec des particules chargées Ces résultats sont les plus intéressants de cette étude, effectivement nous avons montré qu'il était possible de mesurer un TLE supérieur, dans certaines conditions, au TLE mesuré par le dosimètre de référence actuellement utilisé : la chambre d'ionisation. Nous avons montré en comparant les résultats obtenus par TCSPC et ceux obtenus par un comptage direct, que la saturation généralement observée au sein des scintillateurs pouvait également provenir de la chaîne de mesure. Une étude plus systématique portant notamment sur un panel plus large de scintillateurs de différentes épaisseurs et également de particules chargées de différentes énergies pourrai éventuellement lever les questions que l'on se pose quant à l'interprétation de ces résultats. Notamment cette étude ne permet pas de conclure sur le fait de savoir si la nature du scintillateur utilisé est cruciale quant à la saturation de celui-ci. Également nous souhaiterions savoir quel est le rôle exact de l'épaisseur du scintillateur dans sa réponse lumineuse. Effectivement l'utilisation du prototype de fibre optique sur le faisceau de l'HIMAC n'a pas donné de résultats satisfaisants avec l'utilisation d'une fibre scintillante BCF-12 de 1mm de diamètre. On ne parvenait pas à reconstruire le "pic de bragg" de manière satisfaisante. Dans cette optique une nouvelle campagne de mesure est prévue courant de l'année 2012 afin de lever les incertitudes quant à l'interprétation de ces résultats. Nous voulons nous assurer de la reproductibilité des résultats d'une part, et nous voulons également utiliser des particules plus lourdes afin d'explorer les effets du changement de TLE sur l'émission de luminescence d'autre part. Cette campagne de mesure comportera notamment un volet d'analyse chimique permettant de remonter au rayon initial de la trace de la particule dans le scintillateur. Une mise en corrélation entre ces résultats et la quantité d'émission de photons permettraient de savoir si le TLE est un facteur pertinent pour son interprétation où si il faut

prendre en compte d'autres facteurs, tel que la charge de la particule incidente, ou la composition chimique du scintillateur.

Résultats avec des photons Les résultats avec les photons sont plus conventionnels, dans le sens où leurs interprétations sont plus en adéquation avec les modèles existants (voir section 2 sur l'interaction photon-matière). Nos résultats montrent que l'utilisation de la méthode par TCSPC permet une amélioration sensible quant à la dosimétrie utilisant la fluorescence de scintillateurs plastiques par rapport à une mesure directe des photons émis. Nous pouvons noter trois améliorations majeures :

- La première amélioration réside dans le fait que nous utilisons un matériau sensible (plastique scintillant) très similaire au matériau d'intérêt (matière vivante). Ce point est crucial quant à l'interprétation des doses mesurées : effectivement il n'est pas nécessaire de prendre en compte tous les facteurs correctifs liés au fait que les matériaux sensibles utilisés dans la dosimétrie "traditionnelle" en temps réel (chambre d'ionisation, détecteur semi-conducteur) sont très différents du matériau du vivant. En ce sens on peut estimer que l'utilisation de plastiques scintillants est plus à même de rendre compte des doses absorbées par des tissus vivants parce que les mécanismes d'absorption des rayonnements ionisants sont par nature similaires.
- La deuxième amélioration est apportée par la nature de la mesure. On a montré que la mesure de TCSPC est peu bruitée (en comparaison avec la mesure directe). Cela provient du fait que le bruit inhérent à chaque PM n'étant pas corrélé, la méthode par TCSPC permet de le supprimer. Cette amélioration permet de garder une linéarité de mesure même aux doses faibles (doses néanmoins supérieures à quelques dizaines de $nGray.min^{-1}$).
- Les premières expériences montrent également un effet très intéressant quant à la mesure du rayonnement Čerenkov. Effectivement il a été montré que celui-ci entraînait une erreur non négligeable de la mesure de la quantité de fluorescence émise (de l'ordre de 20% pour les photons X supérieurs à 100 keV [21]). Nos premières investigations tendent à montrer qu'en dessous de 100 keV, on n'a pas à prendre en compte cet effet dans des mesures de débit de dose, ce qui est en accord avec la littérature existante. Néanmoins, passé cette limite, il devient critique de trouver un moyen de la filtrer. Nos premières investigations tendent à montrer qu'un filtrage temporel est possible mais que l'utilisation de scintillateurs plus adaptés à ce but est nécessaire. Les prochaines investigations vont d'ailleurs être orientées dans ce sens.

Un dernier point d'interprétation concerne la normalisation des résultats. Nous avons considéré que les mesures effectuées étaient en relation linéaire avec les mesures réalisées avec des moyens de mesure standard. Nous avons pu remarquer que cette démarche n'était pas forcément triviale. Le facteur de normalisation entre les gammas émis par le cobalt et ceux émis par le césium est sensiblement identique. Il n'en est pas de même pour la mesure des rayons X. Cela pourrait poser un problème si nous souhaitons utiliser cette sonde dosimétrique sur un large panel de

rayonnements ionisants, avec le même facteur de normalisation. Effectivement quels paramètres de normalisation utiliser lorsque le rayonnement que l'on cherche à mesurer est inconnu. L'utilisation de différents scintillateurs et de matériaux de détection différents explique le fait que nous ne pouvons pas encore nous prononcer sur ce point en particulier. Les prochaines campagnes de mesure tenteront également d'y répondre.

Discussion-Conclusion

L'objectif général de ce travail était triple : d'une part fondamental, en s'inscrivant dans la suite de premiers travaux, évoqués en introduction, portant sur les interactions des rayonnements avec la matière, les dépôts d'énergie et l'observation de la dose reçue en profondeur ; d'autre part expérimental, par le développement d'une nouvelle approche dosimétrique fondée sur la mesure, résolue en temps à l'échelle nanoseconde, de la fluorescence induite dans un scintillateur organique agissant à la fois comme une chambre d'excitation et comme une chambre d'ionisation solide ; enfin technologique, par la réalisation d'un dosimètre en temps réel pour la hadronthérapie et l'imagerie (X et gamma), fonctionnant sur le principe de la mesure de fluorescence par fibres optiques scintillantes couplées à un dispositif de comptage de photon unique corrélé en temps.

Dans le premier chapitre de ce mémoire, consacré à l'état de l'art, nous nous sommes essentiellement attachés à présenter les modèles les plus aboutis permettant la description de l'interaction des rayonnements chargés – ions primaires et électrons secondaires – avec la matière dense en général.

Nous fondant, dans un premier temps, sur le modèle de Bethe-Bloch pour décrire l'interaction ion primaire matière, nous avons rappelé la forme générale de la distribution en profondeur du pouvoir d'arrêt moyen, représentée par la courbe de Bragg, obtenue par la double considération des ralentissements électronique (ionisations) et nucléaire (diffusions coulombiennes par les noyaux).

Nous fondant, dans un second temps, sur le modèle de Bethe-Bloch, dans sa forme décrivant le ralentissement des particules légères, nous nous sommes intéressés à la description des électrons secondaires et aux différentes approches théoriques conduisant à la définition et à l'estimation des doses radiales.

Enfin, dans un troisième temps, nous avons rappelé les principes fondamentaux des deux principales techniques actuelles d'observation de la dose déposée dans un matériau, que sont : la mesure par chambre d'ionisation et la mesure par fluorescence.

A ce stade de la conclusion il est important de discuter plus en détail des principes de bases de la mesure de dose, en commençant par rappeler que, aussi bien pour les particules chargées lourdes (typ. ions primaires) que pour les particules chargées légères (typ. électrons secondaires) en interaction avec les électrons du milieu traversé, le modèle de Bethe-Bloch se fonde toujours sur un transfert minimal d'énergie correspondant à l'énergie de liaison de l'électron le plus faiblement lié du milieu. Au-

trement dit, qu'il ne prend pas en compte le domaine d'excitation moléculaire aux énergies inférieures au premier seuil d'ionisation. De ce point de vue, il est naturel que ce modèle serve de base pour expliquer les mesures de doses obtenues expérimentalement par chambre d'ionisation, ceci pouvant être extrapolé à tous les types de rayonnements, du moment qu'il sont ionisants.

La mesure basée sur la détection de luminescence, qu'elle soit intégrale, c'est-à-dire obtenue à l'aide d'un détecteur unique (photomultiplicateur) en sommant tous les photons émis, ou en résolution temporelle, c'est-à-dire en distinguant la part de l'excitation de la part de l'ionisation, est une mesure très différente dans le sens où elle reflète l'intégralité de la chaîne de dégradation de l'énergie déposée, par l'excitation d'abord (composante rapide), ceci jusqu'à l'excitation du premier état S_1 du chromophore, par l'ionisation ensuite (composante lente). La mesure par luminescence est donc, dans son principe, bien mieux susceptible de rendre compte des dépôts de dose aux basses énergies, c'est-à-dire en fin de thermalisation et dans le pic de Bragg, particulièrement pour les électrons secondaires dont on sait, notamment par les études de Léon Sanche [96–98], qu'il sont particulièrement actifs, en termes de dommages biologiques.

Ces points sont particulièrement importants dans une discussion globale des approches dosimétriques actuelles car ils semblent montrer que la mesure de dose par fluorescence permet, de par son principe, d'apporter davantage d'information sur la dose effectivement déposée dans un milieu, par rapport à une mesure par chambre d'ionisation, notamment par la prise en compte des excitations moléculaires, lesquelles sont dominantes en fin de parcours et donc particulièrement importantes dans les effets de radiolyse à basses énergies. Le fait que la mesure de fluorescence s'effectue, en général, dans un scintillateur solide (chambre d'excitation et d'ionisation) permet, de plus, de prédire une plus grande sensibilité de détection, toujours par rapport à une chambre d'ionisation gazeuse, ceci par le simple fait d'un rapport de densité favorable, nonobstant le fait qu'un matériau organique soit directement équivalent tissu.

Dans le second chapitre de ce mémoire, consacré aux aspects expérimentaux, nous explicitons les principes de la détection par mesure de fluorescence corrélée, selon la technique de comptage de photon par coïncidence, en résolution temporelle nanoseconde. Cette technique permet de reconstituer, de façon statistique, la courbe représentative d'un déclin de fluorescence, sur une plage temporelle de l'ordre de la microseconde et avec une résolution temporelle nanoseconde. Développée, à l'origine, pour la physique nucléaire, cette technique découle des techniques de détection, par électronique rapide, d'événements nucléaires corrélés sous excitation de faisceaux accélérés ; elle fut adaptée, pour la première fois aux mesures de fluorescence dans notre laboratoire, au milieu des années 1970, par l'équipe de René VOLTZ. La détection de l'évènement d'excitation impulsioneille de l'échantillon était alors basée sur l'utilisation d'un signal électrique synchrone de cette excitation, délivré par la machine source, ce signal fixant l'instant initial du début de l'expérience de comp-

tage à l'entrée « Start » du convertisseur temps amplitude.

L'originalité de notre travail expérimental a ici consisté à étendre les possibilités d'analyse de cette technique aux excitations continues (non pulsées), en corrélant le signal de fluorescence émis par un scintillateur à lui-même, ceci par la simple adjonction d'un deuxième photomultiplicateur délivrant, en lieu et place d'un signal synchrone, un signal « Start ». Ceci est possible car ce dernier, fonctionnant à pleine ouverture, détectera de façon statistiquement préférentielle, le signal de lumière le plus intense, lequel se trouve être celui émis temporellement en début de déclin de fluorescence, c'est-à-dire à l'instant zéro de l'excitation.

La plateforme multimodale construite dans le cadre de ce travail de thèse nous a permis de mesurer, dans des conditions expérimentalement identiques, les réponses de scintillateurs à des rayonnements continus, issus de sources radioactives (Césium-137 et Cobalt-60) ou d'accélérateurs non pulsés (HIMAC-Chiba, Japon), mais aussi issus de sources pulsées (accélérateur 4 MV de l'InESS de Strasbourg) ou de générateurs de rayons X.

Du point de vue strict de la détection de lumière par photomultiplicateur, nous tenons à préciser ici un point particulièrement important de l'utilisation de ce type d'instrument par les équipes effectuant de la détection nucléaire, de la mesure de dose ou encore de la discrimination de particules différentes par mesure de fluorescence (typ. scintillation liquide).

Dans la pratique instrumentale courante, la plupart des études basées sur la mesure de fluorescence n'utilisent, pour la détection, qu'un seul photomultiplicateur. Dans le cas d'une mesure de dose, celle-ci est alors simplement obtenue par intégration du signal total (courant) issu du photomultiplicateur. Dans le cas d'une expérience de discrimination, l'étude est temporelle (Pulse Chape Discrimination – PSD), mais basée sur une analyse par oscilloscopie, du signal électrique directement issu du photomultiplicateur, celui-ci étant sensé être l'image du déclin de fluorescence. Dans ces deux cas, et ceci est une conclusion particulièrement intéressante de notre étude, les résultats ne peuvent être que fortement entachés d'erreurs.

La plus importante de ces erreurs résulte de la non linéarité de la réponse d'un photomultiplicateur avec l'intensité de la lumière qu'il reçoit. Nos expériences, lesquelles ne sont pas sensibles à cette non linéarité car fondées sur une détection à éclaircissement constant (comptage de photon unique), montrent que l'amplitude d'une émission de fluorescence s'étend typiquement sur quatre décades, c'est-à-dire que le rapport de l'amplitude de la composante rapide sur celle de la composante différée est d'au moins d'un facteurs dix milles. A ce jour, il n'existe aucun détecteur de lumière, y compris pour les photomultiplicateurs, ayant une réponse linéaire en intensité sur quatre décades. Nos expériences ont d'ailleurs mis en évidence cette non linéarité, celle-ci se manifestant tout simplement par un écrêtage de l'amplitude de la composante rapide avec, au final, un rapport d'amplitude, entre composantes rapide et lente, d'un facteur deux à trois seulement.

Une autre source d'erreur est, bien évidemment, celle qui est attachée au bruit in-

trinsèque du photomultiplicateur, dont on sait qu'il peut augmenter considérablement sous éclairage, par rapport au courant d'obscurité. Notre expérience n'est pas non plus sensible à cette source d'erreur car le principe de coïncidence entre événements corrélés élimine naturellement tout artéfact lié au bruit du détecteur (intrinsèque ou induit) ainsi que tout bruit lié au fonctionnement des systèmes électroniques d'acquisition.

Plus fondamentalement, il ressort très clairement de nos études que la détermination d'une dose par mesure de fluorescence utilisant un unique photomultiplicateur ne peut, en aucun cas, être exacte, et que la discrimination de particules par le même type de mesure ne peut être que d'une efficacité très faible en raison de l'écrêtage de la composante rapide. Ce même écrêtage pose d'ailleurs un problème de fond, particulièrement rédhibitoire en dosimétrie par mesure de fluorescence, car il implique la non prise en compte presque totale des excitations, particulièrement de fin de parcours, dans la détermination de la dose déposée.

Dans le troisième chapitre de ce mémoire, consacré principalement aux résultats expérimentaux, nous présentons deux profils de Bragg obtenus dans des scintillateurs plastiques, par notre technique de mesure de fluorescence corrélée en temps. Le premier résulte d'une excitation par des hélions de 150MeV/uma et le second d'une excitation par des ions carbone de 290MeV/uma. Ces résultats sont comparés aux profils de doses mesurés à l'aide d'une chambre d'ionisation reliée à un étalon primaire. Des mesures de débits de doses réalisées dans l'air, avec les rayonnements gamma du Césium-137 et du Cobalt-60, en fonction de la distance à la source, sont également présentées. Ces résultats, obtenus par mesure de fluorescence en coïncidences, mais cette fois en s'aidant de fibres optiques scintillantes, ont été comparés à ceux obtenus par une chambre d'ionisation, de même qu'à ceux obtenus par mesure de fluorescence à l'aide d'un photomultiplicateur unique.

Un premier point de discussion concernera l'étude des profils de Bragg obtenus dans les scintillateurs plastiques sous faisceaux d'hélions et d'ions carbone. Dans les deux cas, on observe que les variations des mesures de dose obtenues à l'aide de la chambre d'ionisation sont inférieures, d'un facteur proche de 1,5, aux variations de la densité d'ionisations prédite par le modèle de Bethe-Bloch dans le pic de Bragg. Dans le cas des ions carbone, les variations de la mesure de la fluorescence à l'aide d'un photomultiplicateur unique sont également inférieures, d'un facteur deux, par rapport aux variations des mesures de la chambre d'ionisation, c'est-à-dire d'un facteur proche de quatre par rapport aux variations de la densité d'ionisations prédites par la théorie de Bethe-Bloch. Nous attribuons cet important écart à la saturation optique à temps court du photomultiplicateur qui se voit, de fait, disqualifié pour ce type de mesure. La mesure en coïncidence, quant à elle, est plus sensible que la chambre d'ionisations dans le cas des ions carbone et des hélions. Les profils de Bragg mesurés par coïncidence ont en effet des amplitudes systématiquement plus élevées que celles mesurées par la chambre d'ionisation, ceci à toutes les profondeurs. Cette

meilleure sensibilité peut être attribuée à la prise en compte, par cette technique, des excitations du milieu, ce qui la rend, de fait, plus apte qu'une chambre d'ionisation gazeuse à mesurer la dose effectivement déposée.

Le second point de discussion concernera les mesures de débits de doses effectuées sous excitations gamma issues de sources radioactives de césium et de cobalt, en fonction de la distance à la source. Là, nous observons un bon accord entre les résultats obtenus par mesure de fluorescence en coïncidence et par mesure avec chambre d'ionisation. Ceci dénote une très faible contribution des excitations dans le processus global de dépôt d'énergie dans ce type de dosimétrie.

Le troisième et dernier point concernera les réponses sous rayonnements X, à différentes énergies, pour lesquelles la méthode de mesure en coïncidence de la fluorescence se révèle plus sensible que celle utilisant la chambre d'ionisation.

L'ensemble des résultats expérimentaux présentés dans ce mémoire, ainsi que les conclusions auxquelles il permet d'aboutir, fait apparaître, de façon très claire, que la mesure d'un dépôt d'énergie par détection de la fluorescence, à condition que cette mesure soit réalisée en résolution temporelle nanoseconde selon la méthode de comptage de photon unique en coïncidence, représente la meilleure alternative à une dosimétrie universelle, c'est-à-dire à une dosimétrie permettant d'accéder à tous les types de rayonnements, ceci quelles que soient leurs énergies et leur nature.

La construction d'une plateforme multimodale, ainsi que du premier prototype de dosimètre par mesure de fluorescence, par technique TCSPC associée à des fibres optiques scintillantes de faible encombrement, a constitué un point important de ce travail. Le succès de ces nouveaux moyens expérimentaux dans l'approche originale de la mesure de dose qui a fait l'objet de ce mémoire, est à l'origine d'un dépôt de brevet (N^0 de soumission INPI : 1000127870 / empreinte électronique du dépôt : EA :3D :82 :C2 :FA :03 :CD :10 :0F :C9 :8F :D3 :22 :27 :21 :7A :F4 :2A :74 :C9), ouvrant de nombreuses perspectives d'applications dans tous les domaines de la dosimétrie.

Au-delà des interprétations développées dans cette conclusion, un point très important de la présente contribution concerne les profils de Bragg mesurés dans le cas des hélions et des ions carbone et le fait que les mesures obtenues par notre nouvelle technique dépassent largement, en amplitude, celle obtenues par les autres techniques. Ceci semble montrer que, contrairement aux idées communément admises du domaine, la saturation du signal de fluorescence, généralement observée par les instruments (photomultiplicateur unique), aux fortes densités d'ionisations, n'est pas liée à une saturation physique au sein de la trace, mais plutôt à la saturation du photomultiplicateur en tant que tel.

Bibliographie

- [1] R. Katz and F. A. Cucinotta. Tracks to therapy. *Radiation Measurements*, 31(1) :379–388, 1999. Cited By (since 1996) : 9.
- [2] M. Krämer. Calculation of heavy-ion track structure. *Nuclear Inst.and Methods in Physics Research, B*, 105(1-4) :14–20, 1995. Cited By (since 1996) : 21.
- [3] A. Hallam and J. B. Birks. Energy transfer in organic systems. xiii. plastic scintillators. *Journal of Physics B : Atomic and Molecular Physics*, 11(18) :3273–3288, 1978. Cited By (since 1996) : 3.
- [4] W. K. Weyrather and G. Kraft. Rbe of carbon ions : Experimental data and the strategy of rbe calculation for treatment planning. *Radiotherapy and Oncology*, 73(SUPPL. 2) :S161–S169, 2004. Cited By (since 1996) : 17.
- [5] J. B. Birks. The scintillation process in organic systems. *IRE Transactions on nuclear science*, pages 2–11, 1960.
- [6] K. Michaelian and A. Menchaca-Rocha. Model of ion-induced luminescence based on energy deposition by secondary electrons. *Phys. Rev. B*, 49(22) :15550–15562, Jun 1994.
- [7] K. Michaelian, A. Menchaca-Rocha, and E. Belmont-Moreno. Scintillation response of nuclear particle detectors. *Nuclear Inst.and Methods in Physics Research, A*, 356(2-3) :297–303, 1995. Cited By (since 1996) : 19.
- [8] Robert Katz. Track physics model of radiation effects. In *First European Conference on Radiation and Its Effects on Devices and Systems - RADECS 91*, pages 558–560, 1992.
- [9] J.L.D. Silva R. Voltz and A. Coche. Influence of the nature of ionizing particles on the specific luminescence of organic scintillators. *J.CHEM.PHYS.*, 45(9) :3306–3311, 1966.
- [10] J. F. Ziegler. stopping of energetic light ions in elemental matter. *J.Appl.Phys.*, 85 :1249–1272, 1998.
- [11] U. Fano. Penetration of protons, alpha particles, and mesons. *Annual Review of Nuclear Science*, 13 :1–66, 1963. Cited By (since 1996) : 19.
- [12] ICRU Repot 49 : Stopping powers and ranges for protons and alpha particles. 1993.
- [13] Barkas. W.H. ; Berger. M.J. TABLES OF ENERGY LOSSES AND RANGES OF HEAVY CHARGED PARTICLES. Technical report, 1964.

- [14] www.srim.org. 2008.
- [15] W. H. Barkas. *Nuclear research emulsions. Vol.1 : Techniques and theory*. 1963.
- [16] Steven P. Ahlen. Theoretical and experimental aspects of the energy loss of relativistic heavily ionizing particles. *Rev. Mod. Phys.*, 52(1) :121–173, Jan 1980.
- [17] B. Gottschalk, A. M. Koehler, R. J. Schneider, J. M. Sisterson, and M. S. Wagner. Multiple coulomb scattering of 160 mev protons. *Nuclear Inst.and Methods in Physics Research, B*, 74(4) :467–490, 1993. Cited By (since 1996) : 77.
- [18] H.A. Bethe. *Handbuch der physik. Berlin, Springer*, 1933.
- [19] S. M. Seltzer and M. J. Berger. Evaluation of the collision stopping power of elements and compounds for electrons and positrons. *International Journal of Applied Radiation and Isotopes*, 33(11) :1189–1218, 1982. Cited By (since 1996) : 51.
- [20] S. M. Seltzer and M. J. Berger. Procedure for calculating the radiation stopping power for electrons. *International Journal of Applied Radiation and Isotopes*, 33(11) :1219–1226, 1982. Cited By (since 1996) : 13.
- [21] FRELIN Anne-Marie. *développement du dodosimap : instrument de dosimétrie pour le controle qualité en radiothérapie*. PhD thesis, Université de Caen, 2006.
- [22] J.D. JACKSON. *Electrodynamique classique*. Dunod, 2001.
- [23] J.M.JUNG. Photoionisation des liquides moléculaires. *HDR*, Université Louis Pasteur, 2003.
- [24] H. L. Bradt and B. Peters. Investigation of the primary cosmic radiation with nuclear photographic emulsions. *Physical Review*, 74(12) :1828–1837, 1948. Cited By (since 1996) : 14.
- [25] E. J. Kobetich and Robert Katz. Energy deposition by electron beams and δ rays. *Phys. Rev.*, 170(2) :391–396, Jun 1968.
- [26] K. Michaelian and A. Menchaca-Rocha. Model of ion-induced luminescence based on energy deposition by secondary electrons. *Phys. Rev. B*, 49(22) :15550–15562, Jun 1994.
- [27] David Broggio. *Scintillation iono-induite dans les solides organiques : élaboration d'un modèle de trace moyenne, dégradation de l'intensité de scintillation et application en dosimétrie*. PhD thesis, L'université Louis Pasteur de Strasbourg, 2004.
- [28] KATZ R and KOBETICH EJ. Formation of particle tracks. *Radiation Effects*, 3(3-4) :169–174, 1970.
- [29] R. Katz and E. J. Kobetich. Response of nuclear emulsion to electron beams. *Nuclear Instruments and Methods*, 79(2) :320–324, 1970.
- [30] R. Katz and E. J. Kobetich. Particle tracks in emulsion. *Physical Review*, 186(2) :344–351, 1969. Cited By (since 1996) : 19.

- [31] E. J. Kobetich and R. Katz. Electron energy dissipation. *Nuclear Instruments and Methods*, 71(2) :226–230, 1969. Cited By (since 1996) : 9.
- [32] R. Katz and E. J. Kobetich. Response of nai(t1) to energetic heavy ions. *Physical Review*, 170(2) :397–400, 1968. Cited By (since 1996) : 5.
- [33] R. Katz and E. J. Kobetich. Formation of etchable tracks in dielectrics. *Physical Review*, 170(2) :401–405, 1968. Cited By (since 1996) : 35.
- [34] E. J. Kobetich and R. Katz. Energy deposition by electron beams and delta rays. *Physical Review*, 170(2) :391–396, 1968. Cited By (since 1996) : 109.
- [35] E. J. Kobetich and R. Katz. Width of heavy-ion tracks in emulsion. *Physical Review*, 170(2) :405–411, 1968. Cited By (since 1996) : 6.
- [36] F. A. Cucinotta, R. Katz, and J. W. Wilson. Radial distribution of electron spectra from high-energy ions. *Radiation and environmental biophysics*, 37(4) :259–265, 1998. Cited By (since 1996) : 21.
- [37] R. Katz, F. A. Cucinotta, and C. X. Zhang. The calculation of radial dose from heavy ions : Predictions of biological action cross sections. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B : Beam Interactions with Materials and Atoms*, 107(1-4) :287–291, 1996. Cited By (since 1996) : 19.
- [38] A. Menchaca-Rocha. A simplified scintillator-response formula for multiple-ion energy calibrations. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 602(2) :421–424, 2009.
- [39] R. Voltz, J. Lopes da Silva, G. Laustriat, and A. Coche. Influence of the nature of ionizing particles on the specific luminescence of organic scintillators. *Journal of Chemical Physics*, 45(9) :3306–3311, 1966.
- [40] Y. Mori, T. Ikeda, T. Yamauchi, A. Sakamoto, H. Chikada, Y. Honda, and K. Oda. Radiation chemical yield for loss of carbonate ester bonds in padc films exposed to gamma ray. *Radiation Measurements*, 44(2) :211–213, 2009. Cited By (since 1996) : 2.
- [41] T. Yamauchi, S. Watanabe, K. Oda, N. Yasuda, and R. Barillon. An evaluation of radial track etch rate in lr-115 detectors exposed to fe ions by means of ft-ir spectrometry. *Radiation Measurements*, 43(SUPPL.1) :S116–S119, 2008. Cited By (since 1996) : 1.
- [42] T. Yamauchi, S. Watanabe, A. Seto, K. Oda, N. Yasuda, and R. Barillon. Loss of carbonate ester bonds along fe ion tracks in thin cr-39 films. *Radiation Measurements*, 43(SUPPL.1) :S106–S110, 2008. Cited By (since 1996) : 6.
- [43] T. Yamauchi, Y. Mori, K. Oda, N. Yasuda, H. Kitamura, and Rémi Barillon. Structural modification along heavy ion tracks in poly(allyl diglycol carbonate) films. *Japanese Journal of Applied Physics*, 47(5 PART 1) :3606–3609, 2008. Cited By (since 1996) : 4.
- [44] V. G. Vasil’chenko, V. G. Lapshin, A. I. Peresyphkin, A. A. Konstantinchenko, A. I. Pyshchev, V. M. Shershukov, B. V. Semenov, and A. S. Solov’ev. New

- results on radiation damage studies of plastic scintillators. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 369(1) :55–61, 1996. Cited By (since 1996) : 11.
- [45] R.Voltz. Radioluminescence des milieux organiques. *Actions chimiques et Biologiques des radiations*, 13 :1–55, 1969.
- [46] F. D. Brooks. Development of organic scintillators. *Nuclear Instruments and Methods*, 162(1-3) :477–505, 1979. Cited By (since 1996) : 26.
- [47] J. Birks. photophysics of aromatic molecules. *Wiley-Interscience*, London, 1970. Cited By (since 1996) : 19.
- [48] F. D. Brooks. Development of organic scintillators. *Nuclear Instruments and Methods*, 162(1-3) :477–505, 1979. Cited By (since 1996) : 26.
- [49] Robin P. Butler and Michael J. Pilling. Long range mechanism for the temperature dependence of the ratio of delayed monomer and delayed excimer fluorescence following triplet-triplet annihilation in liquids. *J. Chem. Soc., Faraday Trans. 2*, 73 :886–894, 1977.
- [50] P. R. Butler and M. J. Pilling. The breakdown of förster kinetics in low viscosity liquids. an approximate analytical form for the time-dependent rate constant. *Chemical Physics*, 41(1-2) :239–243, 1979. Cited By (since 1996) : 7.
- [51] M. Tachiya and A. Mozumder. Decay of trapped electrons by tunnelling to scavenger molecules in low-temperature glasses. *Chemical Physics Letters*, 28(1) :87–89, 1974. Cited By (since 1996) : 33.
- [52] J. Noolandi. Theory of time-dependent geminate recombination. *Journal of Electrostatics*, 12(C) :13–25, 1982.
- [53] J. Noolandi, K. M. Hong, and R. A. Street. A geminate recombination model for photoluminescence decay in plasma-deposited amorphous si :h. *Solid State Communications*, 34(1) :45–48, 1980. Cited By (since 1996) : 7.
- [54] J. Noolandi, K. M. Hong, and R. A. Street. Theory of radiative recombination by diffusion and tunnelling in amorphous si :h. *Journal of Non-Crystalline Solids*, 35-36(PART 2) :669–674, 1980.
- [55] J. B. Webb, D. F. Williams, and J. Noolandi. Observation of dispersive transport in single crystal anthracene. *Solid State Communications*, 31(11) :905–907, 1979.
- [56] MUNIER Mélodie. *Etude de nouvelles molécules organiques scintillantes à base de liquides ioniques pour la détection et la discrimination des rayonnements nucléaires*. PhD thesis, Université de Strasbourg, 2011.
- [57] Myron Luntz. Track-effect theory of scintillation efficiency. *Phys. Rev. B*, 4(9) :2857–2868, Nov 1971.
- [58] S. P. Ahlen, B. G. Cartwright, and G. Tarlé. Return to unsaturated response of polymeric scintillators excited by relativistic heavy ions. *Nuclear Instruments and Methods*, 147(2) :321–328, 1977. Cited By (since 1996) : 4.

- [59] E. Newman and F. E. Steigert. Response of nai(tl) to energetic heavy ions. *Phys. Rev.*, 118(6) :1575–1578, Jun 1960.
- [60] G. T. Wright. Scintillation response of organic phosphors. *Phys. Rev.*, 91(5) :1282–1283, Sep 1953.
- [61] C. N. Chou. The nature of the saturation effect of fluorescent scintillators. *Phys. Rev.*, 87(5) :904–905, Sep 1952.
- [62] L. Muga and M. Diksic. Refined model of luminescence production in plastic scintillators. *NUCL.INSTRUM.METH.*, 122(3) :553–558, 1974. Cited By (since 1996) : 4.
- [63] Patrick MARTIN. *Photoexcitation de la fluorescence de recombinaison différée dans l'ultra-violet lointain et relaxation électronique des états super-excités dans les cristaux moléculaires organiques*. PhD thesis, Université de Strasbourg, 1993.
- [64] F. Lacroix, M. Guillot, M. McEwen, C. Cojocar, L. Gingras, A. S. Beddar, and L. Beaulieu. Extraction of depth-dependent perturbation factors for parallel-plate chambers in electron beams using a plastic scintillation detector. *Medical physics*, 37(8) :4331–4342, 2010.
- [65] L. Archambault, T. M. Briere, F. Pönisch, L. Beaulieu, D. A. Kuban, A. Lee, and S. Beddar. Toward a real-time in vivo dosimetry system using plastic scintillation detectors. *International Journal of Radiation Oncology Biology Physics*, 78(1) :280–287, 2010. Cited By (since 1996) : 6.
- [66] L. M. Persson, M. R. Edgren, B. Stenerlöw, B. K. Lind, I. Hedlöf, A. R. Jernberg, A. E. Meijer, and A. Brahme. Relative biological effectiveness of boron ions on human melanoma cells. *International journal of radiation biology*, 78(8) :743–748, 2002. Cited By (since 1996) : 9.
- [67] H. Paganetti, A. Niemierko, M. Ancukiewicz, L. E. Gerweck, M. Goitein, J. S. Loeffler, and H. D. Suit. Relative biological effectiveness (rbe) values for proton beam therapy. *International Journal of Radiation Oncology Biology Physics*, 53(2) :407–421, 2002. Cited By (since 1996) : 109.
- [68] J. J. Butts and R. Katz. Theory of rbe for heavy ion bombardment of dry enzymes and viruses. *Radiation research*, 30(4) :855–871, 1967. Cited By (since 1996) : 122.
- [69] B. Sipp and R. Voltz. Reactive dynamics in energy transfer problems. *The Journal of chemical physics*, 79(1) :434–442, 1983. Cited By (since 1996) : 15.
- [70] A.-L. Debierne. *Bull. Soc. Chim. FR.*, 32, 1908.
- [71] A.-L. Debierne. *C.R. Acad. Sci. Paris*, 148, 1909.
- [72] A.-L. Debierne. *Ann. Phys.*, 2, 1914.
- [73] J. P. Keene. *Radiation Research*, 22, 1964.
- [74] L.M. Matheson, M.S. ; Dorfman. Detection of short-lived transients in radiation chemistry. : *Journal of Chemical Physics*, 32, 1960.

- [75] M. Hamel, A. Frelin-Labalme, V. Simic, and S. Normand. N-(2,5-di-*t*-butylphenyl)-4-ethoxy-1,8-naphthalimide : A new fluorophore highly efficient for fast neutrons/gamma-rays discrimination in liquid media. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 602(2) :425–431, 2009. Cited By (since 1996) : 1.
- [76] L. Douce E. Bouajila L. Stuttgé J.M. Jung, R. Barillon. Nouvelle famille de molécules discriminantes pour les rayonnements neutron et gamma. *Brevet Français, BFF07P043*, 2008.
- [77] C. Fuchs and R. Henck. Nanosecond hydrogen flashlamp : Spectral and temporal characteristics from the vacuum ultraviolet to the visible red. *Journal of Applied Physics*, 60(1) :427–441, jul 1986.
- [78] A. Al-Abbas. *Synthèse de liquides ioniques : De nouveaux matériaux scintillants à base d'oxaole pour la détection des rayonnements nucléaires. Des matériaux mésomorphes supramoléculaires à base d'imidazolium*. PhD thesis, Université de Strasbourg, 2011.
- [79] M. Hamel, V. Simic, and S. Normand. Fluorescent 1,8-naphthalimides-containing polymers as plastic scintillators. an attempt for neutron-gamma discrimination. *Reactive and Functional Polymers*, 68(12) :1669–1679, 2008.
- [80] Robin D. Rogers and Kenneth R. Seddon. Ionic liquids—solvents of the future? *Science*, 302(5646) :792–793, 2003.
- [81] D. Ash, A. Barrett, A. Hinks, and C. Squire. Re-audit of radiotherapy waiting times 2003. *Clinical oncology*, 16(6) :387–394, 2004. Cited By (since 1996) : 24.
- [82] D.T.L. Jones. Overview of hadron therapy : rationales, present status and future prospects. *Radiochimica Acta*, 89(4-5) :235, 2001.
- [83] U. Amaldi, R. Bonomi, S. Braccini, M. Crescenti, A. Degiovanni, M. Garlasch, A. Garonna, G. Magrin, C. Mellace, P. Pearce, G. Pittá, P. Puggioni, E. Rosso, S. Verd Andrés, R. Wegner, M. Weiss, and R. Zennaro. Accelerators for hadrontherapy : From lawrence cyclotrons to linacs. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 620(2-3) :563–577, 2010. Cited By (since 1996) : 2.
- [84] S. Devic. Radiochromic film dosimetry : Past, present, and future. *Physica Medica*, 27(3) :122–134, 2011.
- [85] J. A. Purdy. Intensity-modulated radiotherapy : Current status and issues of interest. *International Journal of Radiation Oncology Biology Physics*, 51(4) :880–914, 2001. Cited By (since 1996) : 380.
- [86] R. K. Rice, J. J. Hansen, G. K. Svensson, and R. L. Siddon. Measurements of dose distributions in small beams of 6 mv x-rays. *Physics in Medicine and Biology*, 32(9) :1087–1099, 1987. Cited By (since 1996) : 98.

- [87] E. A. Babichev, S. E. Baru, D. N. Grigoriev, V. R. Groshev, V. V. Leonov, P. A. Papushev, V. V. Porosev, G. A. Savinov, V. R. Shayakhmetov, L. I. Shekhtman, Y. A. Tikhonov, Y. G. Ukraintsev, and Y. B. Yurchenko. High-resolution detectors for medical applications and synchrotron radiation research. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 628(1) :440–443, 2011.
- [88] W. van Elmpt, L. McDermott, S. Nijsten, M. Wendling, P. Lambin, and B. Mijnheer. A literature review of electronic portal imaging for radiotherapy dosimetry. *Radiotherapy and Oncology*, 88(3) :289–309, 2008. Cited By (since 1996) : 50.
- [89] K. Parodi, T. Bortfeld, W. Enghardt, F. Fiedler, A. Knopf, H. Paganetti, J. Pawelke, G. Shakirin, and H. Shih. Pet imaging for treatment verification of ion therapy : Implementation and experience at gsi darmstadt and mgh boston. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 591(1) :282–286, 2008. Cited By (since 1996) : 7.
- [90] Tatsuaki Kanai, Masahiro Endo, Shinichi Minohara, Nobuyuki Miyahara, Hiroko Koyama-ito, Hiromi Tomura, Naruhiro Matsufuji, Yasuyuki Futami, Aki-fumi Fukumura, Takeshi Hiraoka, Yoshiya Furusawa, Koichi Ando, Masao Suzuki, Fuminori Soga, and Kiyomitsu Kawachi. Biophysical characteristics of himac clinical irradiation system for heavy-ion radiation therapy. *International Journal of Radiation Oncology*Biology*Physics*, 44(1) :201 – 210, 1999.
- [91] A. Kitagawa, T. Fujita, A. Fukumura, T. Furukawa, T. Inaniwa, Y. Iwata, T. Kanai, M. Kanazawa, N. Kanematsu, Y. Kase, M. Komori, N. Matsufuji, S. Minohara, H. Mizuno, T. Murakami, M. Muramatsu, K. Noda, Y. Ohno, S. Sato, Y. Sato, E. Takada, K. Torikai, M. Torikoshi, S. Yamada, and S. Yonai. Status of a carbon-ion therapy facility and development for advanced treatment. *Journal of the Korean Physical Society*, 53(6 PART 1) :3709–3713, 2008. Cited By (since 1996) : 1.
- [92] A. Fukumura, T. Hiraoka, K. Omata, M. Takeshita, K. Kawachi, T. Kanai, N. Matsufuji, H. Tomura, Y. Futami, Y. Kaizuka, and G. H. Hartmann. Carbon beam dosimetry intercomparison at himac. *Physics in Medicine and Biology*, 43(12) :3459, 1998.
- [93] D. Broggio, R. Barillon, J.-M. Jung, N. Yasuda, T. Yamauchi, H. Kitamura, and P. Bischoff. Polyvinyltoluene scintillators for relative ion dosimetry : An investigation with Helium, Carbon and Neon beams. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, 254 :3 – 9, 2007.
- [94] F. Lacroix, L. Beaulieu, L. Archambault, and A. S. Beddar. Simulation of the precision limits of plastic scintillation detectors using optimal component selection. *Medical physics*, 37(2) :412–418, 2010.

- [95] A. S. Beddar. Plastic scintillation dosimetry and its application to radiotherapy. *Radiation Measurements*, 41(SUPPL. 1) :S124–S133, 2006. Cited By (since 1996) : 17.
- [96] Z. Li, Y. Zheng, P. Cloutier, L. Sanche, and J. R. Wagner. Low energy electron induced dna damage : Effects of terminal phosphate and base moieties on the distribution of damage. *Journal of the American Chemical Society*, 130(17) :5612–5613, 2008. Cited By (since 1996) : 12.
- [97] S. Massey, P. Cloutier, P. Hale, M. Bazin, L. Sanche, D. Mantovani, and D. Roy. Low-energy electron and x-ray degradation of biomedical plasma-fluoropolymer. *Polymer Degradation and Stability*, 93(2) :383–391, 2008. Cited By (since 1996) : 1.
- [98] D. Menzel, P. Cloutier, L. Sanche, and T. E. Madey. Low-energy electron-induced processes in fluorinated copper phthalocyanine films observed by f- desorption : Why so little damage? *Journal of Physical Chemistry A*, 111(49) :12427–12433, 2007.
- [99] F. Heisel, J. A. Miehe, and B. Sipp. Picosecond analysis of trans-stilbene fluorescence. *Chemical Physics Letters*, 61(1) :115–118, 1979. Cited By (since 1996) : 7.

4

Annexe

1 Technique du photoélectron unique

D'un point de vue théorique [99], les dates d'apparitions des photoélectrons émis par une photocathode placés dans un champ optique stationnaire forment un processus stochastique ponctuel dont les caractéristiques peuvent être interprétés par une loi de Poisson composée. Pour une photocathode éclairée par un échantillon fluorescent qui émet des photons après avoir été excité, si la variable aléatoire N_0 représente le nombre de photons de fluorescence émis après excitation (N_0 obéissant à une loi de Poisson uniforme de valeur moyenne $\overline{N_0}$) et $q(t)dt$ la probabilité de trouver un photon dans l'intervalle de temps $[t; t + dt]$, la probabilité $P_r[N(t_1, t_2) = p]$ pour que le nombre de photoélectrons émis par la photocathode, entre les instants t_1 et t_2 soit égale à p est donnée par la loi de Poisson non uniforme :

$$P_r [N(t_1, t_2) = p] = \frac{[\alpha \overline{N_0} Q(t_1, t_2)]^p}{p!} \exp(-\alpha \overline{N_0} Q(t_1, t_2)) \quad (4.1)$$

avec :

$$Q(t_1, t_2) = \int_{t_1}^{t_2} q(t) dt \quad (4.2)$$

où α est le rendement quantique de la photocathode. La suite des instants d'émission des photoélectrons peut être définie par la distribution $S_p(t)$ des intervalles de temps qui séparent les instants d'apparitions lumineuses et du p^{me} photoélectron selon :

$$S_p(t) = \alpha \overline{N_0} q(t) \frac{(\alpha \overline{N_0} Q(0, t))^{p-1}}{(p-1)!} \exp(-\alpha \overline{N_0} Q(0, t)) \quad (4.3)$$

Pour la loi de probabilité correspondante à l'instant d'émission du premier pho-

toélectron, on a :

$$S_1(t) = \alpha \overline{N_0} q(t) \exp(-\alpha \overline{N_0} Q(0, t)) = -\frac{d}{dt} (P_r[N(0, t) = 0]) \quad (4.4)$$

Ce qui permet d'écrire :

$$\exp(-\alpha \overline{N_0} Q(0, t)) = 1 - \int_0^t S_1(u) du \quad (4.5)$$

En remplaçant 4.5 dans 4.4, on obtient :

$$q(t) = \frac{1}{\alpha \overline{N_0}} \frac{S_1(t)}{1 - \int_0^t S_1(u) du} \quad (4.6)$$

La connaissance expérimentale de $S_1(t)$ permet donc de déterminer $q(t)$. Dans des conditions de faible éclairage la photocathode ($\alpha \overline{N_0} < 10^{-2}$), le nombre moyen $\alpha \overline{N_0}$ de photoélectrons est faible, de sorte que l'on a $\exp(-\alpha \overline{N_0} Q(0, t)) \simeq 1$ et $S_1(t)$ devient une grandeur moyenne notée $\overline{S_1(t)}$ telle que :

$$\overline{S_1(t)} = \alpha \overline{N_0} q(t) \quad (4.7)$$

Si le détecteur permet de distinguer les évènements à un, deux ou trois photoélectrons, il devient intéressant de mesurer la distribution des instants d'arrivée du premier photoélectrons sachant que un, deux ou trois photoélectrons ont été émis. La probabilité pour que le premier photoélectrons arrive à l'instant t , sachant que p photoélectrons ont été émis, c'est à dire que les $(p-1)$ arrive ultérieurement s'écrit :

$$S_p(t) = \alpha \overline{N_0} \exp(\alpha \overline{N_0}) q(t) \frac{(\alpha \overline{N_0})^{p-1} [1 - Q(0, t)]^{p-1}}{(p-1)!} \quad (4.8)$$

et

$$S_1(t) = \alpha \overline{N_0} \exp(\alpha \overline{N_0}) q(t) \quad (4.9)$$

Cette fonction est proportionnelle à la fonction d'illumination $q(t)$ quel que soit le nombre de photons incidents, alors que la distribution $\overline{S_1(t)}$ ne lui est proportionnelle que si $\alpha \overline{N_0}$ est petit.

2 Principe de franck-condon

Comme rappelée dans la thèse de Mélodie Munier [56] Le principe de franck-condon peut se résumer comme suit : Une molécule peut être décomposée en deux sous-systèmes :

- le sous-système *lent* comprend les noyaux qui, selon leur position, donnent les symétries de la molécule pour en former son squelette.
- le sous-système *rapide* qui est composé des électrons du cortège électronique.

Les échelles de temps de ces deux systèmes sont très différentes, cependant leur évolution s'effectue en parallèle. Malgré cela on peut émettre l'hypothèse d'un découplage entre les deux systèmes. La fonction d'onde de la molécule peut alors s'approximer grâce à la séparation de *Born-Oppenheimer* :

$$\varphi_{ne}(r, R) = \psi_e(r, R)\chi_{ne}(R) \quad (4.10)$$

où r et R représentent respectivement les ensembles de coordonnées électroniques et nucléaires, le facteur $\chi_{ne}(R)$ caractérise le niveau vibratoire de nombre quantique \mathbf{n} de la molécule dans l'état électronique $\varphi_{ne}(r, R)$. La probabilité d'une transition radiative est proportionnelle au carré du moment dipolaire de transition $\overrightarrow{\mu_{n_1 m_2}}$ entre les états vibronique initiaux et finaux dont les fonctions d'onde sont φ_{n_1} et φ_{m_2} . Ce moment est donné par :

$$\overrightarrow{\mu_{n_1 m_2}} = \overrightarrow{\mu_{12}} S_{n_1 m_2} \quad (4.11)$$

où

$$S_{n_1 m_2} = \int \chi_{n_1} \chi_{m_2} d\tau(R) \quad (4.12)$$

est appelée intégrale de recouvrement des fonctions de d'onde de vibration.

$$\overrightarrow{\mu_{12}} = \int \psi_1^* \left(e \sum_i \vec{r}_i \right) \psi_2 d\tau_e \quad (4.13)$$

représente le moment de transition électronique, où la somme $\sum_i \vec{r}_i$ s'effectue sur le nombre total des électrons moléculaires dont \vec{r}_i désigne le vecteur position, e est la charge électronique et l'intégration se fait sur les coordonnées de position et de spin électroniques. La probabilité de transition radiative entre deux états moléculaires est proportionnelle au carré de l'intégrale de recouvrement. Ceci induit que la transition électronique la plus probable s'effectue sans changement de coordonnées nucléaires. En d'autres termes, pour qu'un saut électronique se produise, la distance internucléaire ne doit pas changer, c'est-à-dire que les fonctions d'ondes associées aux deux états doivent se chevaucher. C'est le principe de *Franck-Condon*.

La figure 4.1 illustre ce principe. Les transitions vers les états d'énergie plus élevée doivent maximiser l'intégrale de recouvrement des orbitales moléculaires de départ et d'arrivée. L'énergie électronique $E(R)$ joue le rôle de potentiel d'interaction entre les noyaux. La transition AB est plus probable que la transition AC car l'intégrale de recouvrement des fonctions de vibration $\chi_{00}(R)$ et $\chi_{12}(R)$ est plus importante que celles des fonctions $\chi_{00}(R)$ et $\chi_{10}(R)$.

3 Caractéristique technique du matériel utilisé

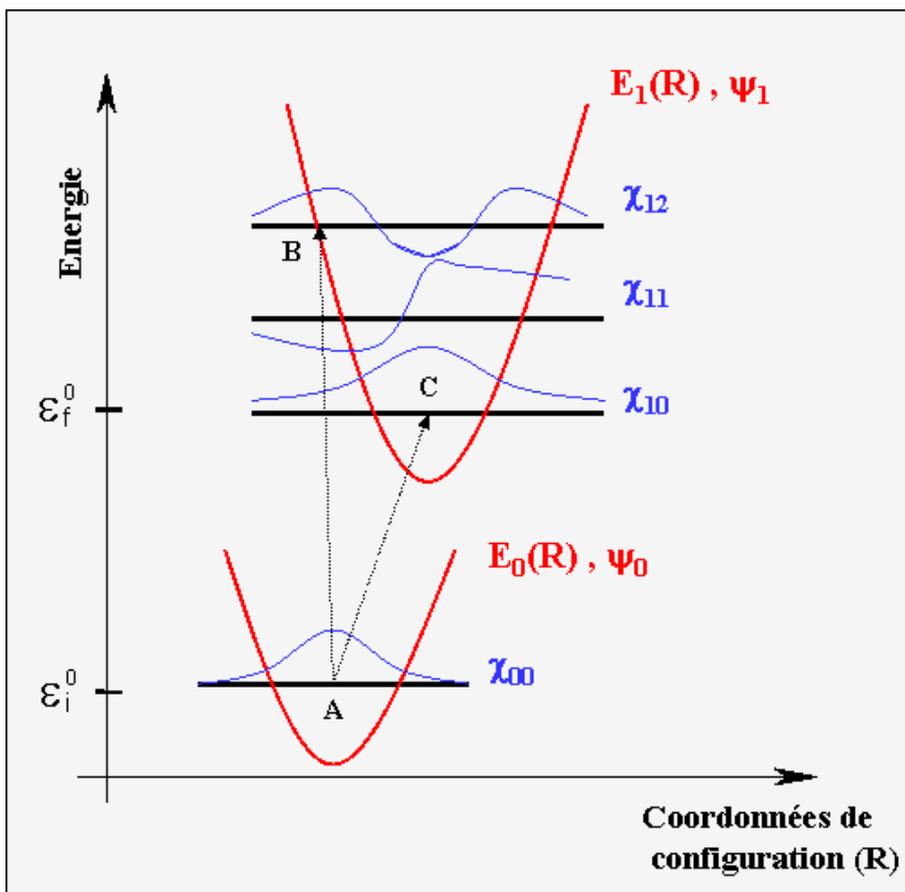


FIGURE 4.1 – Courbes de configuration électronique et de transition électronique $\psi_0 \rightarrow \psi_1$ pour une molécule diatomique

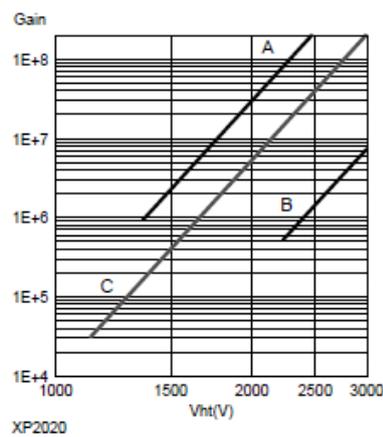
Photocathode characteristics

	Spectral range :		290-650	nm
	Maximum sensitivity at :		420	nm
†	Sensitivity ⊙ :	Luminous :	70	μA/lm
		Blue :	min : 7.5	typ : 10
		Radiant, at 420 nm :	typ : 80	μA/lmF
				mA/W

Characteristics with voltage divider A

	Gain slope (vs supp. volt., log/log)		9	
†	For a gain of :		3×10^7	
	Supply voltage :	max: 2600	typ: 2000	V
		min : 1750		
†	Anode dark current ⊙ :	max: 100	typ : 10	nA
†	Background noise ⊙ :	max : 2500	typ: 900	c/s
	Single electron spectrum ⊙ :			
	resolution		typ: 70	%
	peak to valley ratio		typ. 2.5	
	Pulse amplitude resolution for ^{137}Cs ⊙ :		7.2	%
	Gain halved for a magnetic field of :			
	perpendicular to axis "n" :		0.15	mT
	parallel with axis "n" :		0.12	mT

Typical gain curve



Typical spectral characteristics

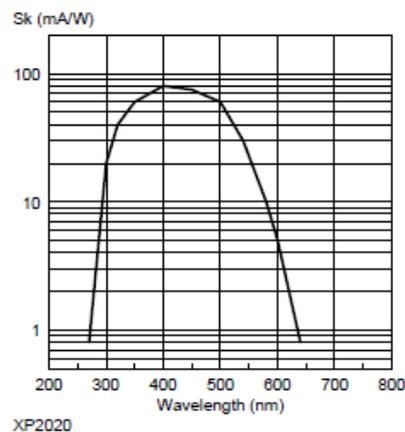


FIGURE 4.2 – Caractéristique technique du Photomultiplicateur XP2020 (source : *photonis*)

GENERAL

	Parameter	Description/Value	Unit
Spectral Response	R3234-01	300 to 650	nm
	R3235-01	160 to 650	nm
Wavelength of Maximum Response		420	nm
Photocathode	Material	Bialkali	-
	Minimum Effective Area	10	mm dia.
Window Material	R3234-01	Borosilicate glass	-
	R3235-01	Synthetic silica glass	-
Dynode	Structure	Linear focused	-
	Number of Stages	12	-
Base		20-pin base (JEDEC No. B20-102)	-
Suitable Socket		E678-20A (supplied)	-

MAXIMUM RATINGS (Absolute Maximum Values)

	Parameter	Value	Unit
Supply Voltage	Between Anode and Cathode	2500	Vdc
	Between Anode and Last Dynode	500	Vdc
Average Anode Current		0.1	mA
Ambient Temperature		-30 to +50	°C

CHARACTERISTICS (at 25°C)

	Parameter	Min.	Typ.	Max.	Unit
Cathode Sensitivity	Luminous (2856K)	60	80	-	μA/lm
	Radiant at 420nm	-	72	-	mA/W
	Blue (CS-5-58 filter)	-	9.0	-	μA/lm-b
Anode Sensitivity	Luminous (2856K)	500	2000	-	A/lm
	Radiant at 420nm	-	2.0 × 10 ⁶	-	A/W
Gain		-	2.5 × 10 ⁷	-	-
Anode Dark Current (after 30min. storage in darkness)		-	1	10	nA
Anode Dark Counts		-	50	150	cps
Time Response	Anode Pulse Rise Time	-	1.3	-	ns
	Electron Transit Time	-	28	-	ns
	Transit Time Spread (FWHM)	-	0.45	-	ns

Figure 2: Typical Spectral Response

Figure 3: Typical Single Photoelectron Pulse Height Distribution

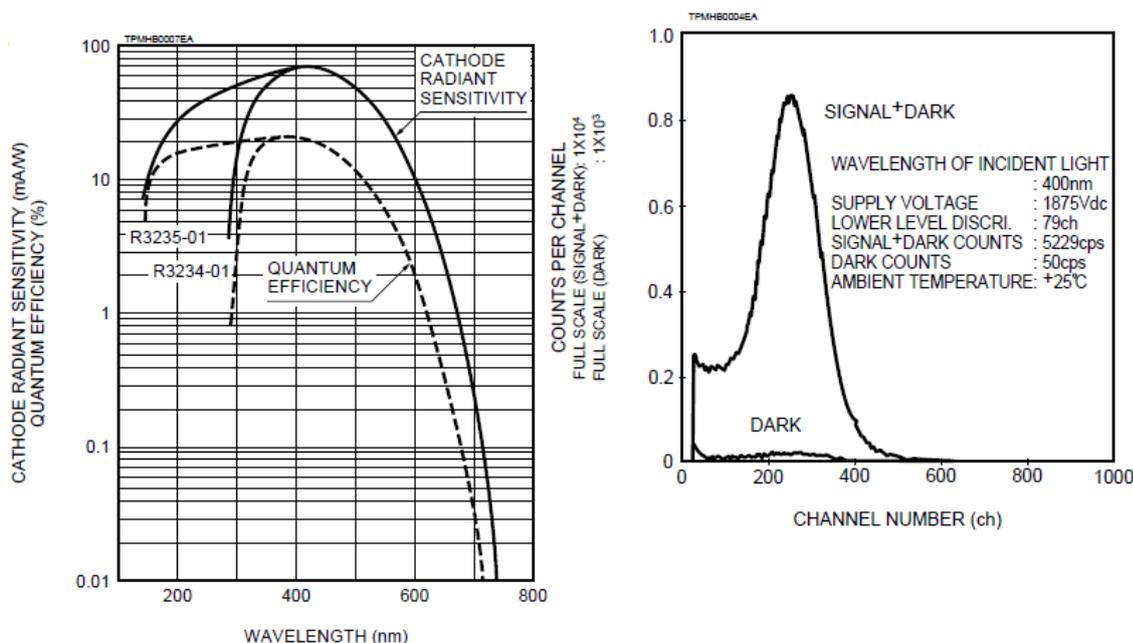


FIGURE 4.3 – Caractéristique technique du Photomultiplicateur R3235-01 (source : hamamatsu)

Physical Constants of SGC Plastic Scintillators								
Scintillator	Light Output % Anthracene ¹	Wavelength	Decay	Bulk Light	Refractive		Density	Softening Point °C
		of Maximum Emission, nm	Constant, Main Component, ns	Attenuation Length, cm	Index	H:C Ratio		
BC-416	38	434	4.0	400	1.58	1.110	1.032	70
BC-418	67	391	1.4	100	1.58	1.100	1.032	70
BC-420	64	391	1.5	110	1.58	1.102	1.032	70
BC-422	55	370	1.6	8	1.58	1.102	1.032	70

¹ Anthracene light output = 40-50% of NaI(Tl) ** Ratio of Cerenkov light to scintillator light = 10:1

FIGURE 4.4 – Caractéristique technique du BC-418 sources : <http://www.detectors.saint-gobain.com>

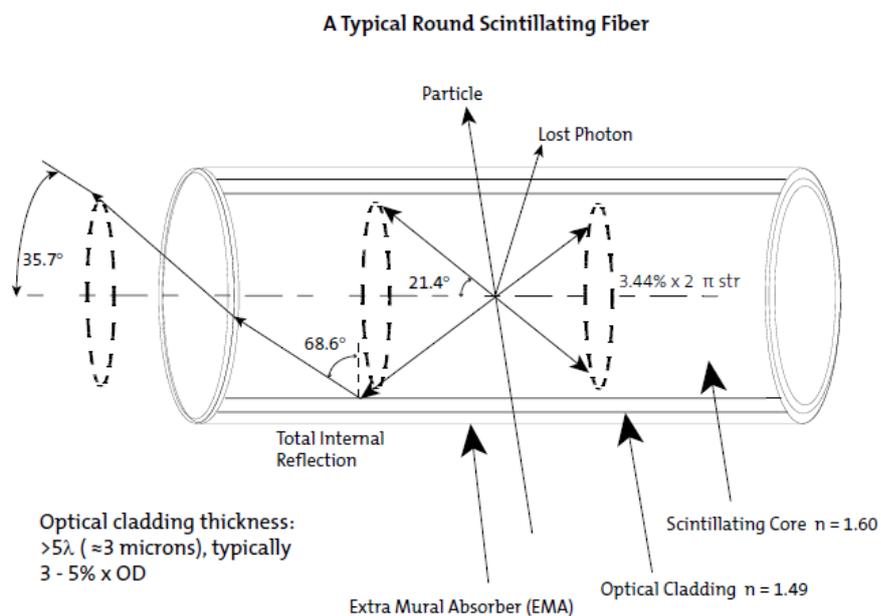


FIGURE 4.5 – Mécanismes d’émission de photon de fluorescence au sein d’une fibre scintillante soumise à un flux de particules source : www.detectors.saint-gobain.com

Multi-clad Fibers Properties		Single-clad Fibers Properties	
Second cladding material	Fluor-acrylic	Core material	Polystyrene
Refractive Index	1.42	Core refractive Index	1.60
Thickness, round fibers	1% of fiber diameter	Density	1.05
Thickness, square fibers	2% of fiber size	Cladding material	Acrylic
Numerical aperture	0.74	Cladding refractive Index	1.49
Trapping efficiency, round fibers	5.6% minimum	Cladding thickness, round fibers	3% of fiber diameter
Trapping efficiency, square fibers	7.3%	Cladding thickness, square fibers	4% of fiber size
		Numerical aperture	0.58
		Trapping efficiency, round fibers	3.44% minimum
		Trapping efficiency, square fibers	4.4%
		No. of H atoms per cc (core)	4.82×10^{22}
		No. of C atoms per cc (core)	4.85×10^{22}
		No. of electrons per cc (core)	3.4×10^{23}
		Radiation length	42 cm
		Operating temperature	-20°C to +50°C
		Vacuum compatible	Yes

FIGURE 4.6 – Caractéristique technique des fibres single- et multi- clad *source* : www.detectors.saint-gobain.com

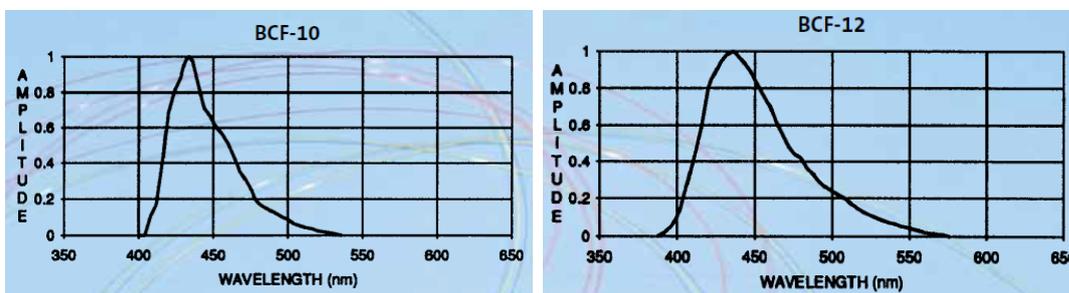


FIGURE 4.7 – Caractéristique technique des fibres bcf10 et bcf12 *source* : www.detectors.saint-gobain.com

Specifications

REF Number	92724
Collecting Volume	100 cm ³
Calibration Factor	0.03 R/nC
Collector Diameter	6.0 mm
Wall Thickness	3.0 mm
Wall, Collector, and Guard Material	Shonka air-equivalent plastic C552
Maximum Polarizing Potential	1000 V
Recommended Bias for Chamber Use	800 V
Nominal Collection Efficiency	100% at recommended bias
Nominal Inherent Leakage Currents	10 ⁻¹⁵ A
Low-Noise Triaxial Cable	50 ohms, 29 pF/ft
Signal Connector	Triaxial BNC plug (2-Lug, male pin); others available upon request
High Voltage Connector	Integral with triaxial connector (shell of chamber is common with connector body)
Vent Holes	Two holes, open to the ambient, are located on the neck of the chamber
Stem	Non-removable 15.9 mm diameter x 22.9 cm, delrin
Buildup Caps Available	8.5 mm wall Delrin
Waterproof	No
Product Standards	CE ₀₄₁₃ ; Designed to meet IEC 60601-1



Model A5 Exradin Shonka-Wyckoff Spherical Chamber

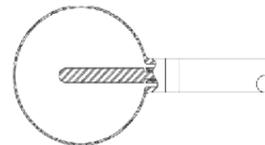


FIGURE 4.8 – Caractéristique technique de la chambre d’ionisation utilisée pour l’exposition gamma source : www.standardimaging.com

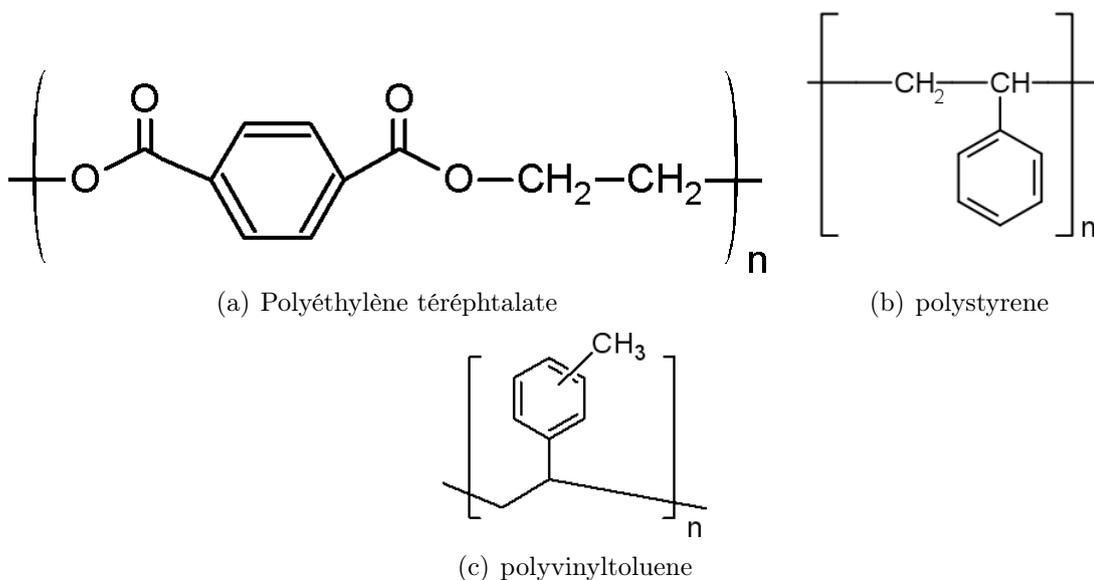


FIGURE 4.9 – Monomère couramment utilisé comme matrice dans les scintillateurs plastiques