



**HAL**  
open science

# Étude et développement d'une méthode de discrimination des alpha dans les bêta : application à l'analyse des radionucléides émetteurs alpha dans l'eau par scintillation liquide

Grégoire Dougniaux

► **To cite this version:**

Grégoire Dougniaux. Étude et développement d'une méthode de discrimination des alpha dans les bêta : application à l'analyse des radionucléides émetteurs alpha dans l'eau par scintillation liquide. Autre [cond-mat.other]. Université de Strasbourg, 2012. Français. NNT : 2012STRAE026 . tel-00862476

**HAL Id: tel-00862476**

**<https://theses.hal.science/tel-00862476v1>**

Submitted on 16 Sep 2013

**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.



ÉCOLE DOCTORALE  
DE PHYSIQUE ET CHIMIE PHYSIQUE

## THÈSE

Présentée pour obtenir de grade de

Docteur de l'Université de Strasbourg

Discipline : Physique

Présentée par : Grégoire DOUGNIAUX

# Étude et développement d'une méthode de discrimination des alpha dans les bêta

Application à l'analyse des radionucléides émetteurs  
alpha dans l'eau par scintillation liquide

Thèse soutenue le 10 décembre 2012

### Membres du jury

Directeur de thèse	Abdel-Mjid NOURREDDINE, Université de Strasbourg
Tuteur de thèse	Lionel TENAILLEAU, EAMEA/SRD/GEA Cherbourg
Rapporteur externe	Philippe CASSETTE, LNHB Saclay
Rapporteur externe	Jean AUPIAIS, CEA/DAM Bruyères-le-Châtel
Examineur	Jean-Marc JUNG, Université de Strasbourg
Examineur	Patrick MARY, EAMEA Cherbourg
Invité	Marc PICCIONE, DGA/SSF Toulon



# Remerciements

Je voudrais tout d'abord remercier les membres du jury qui m'ont fait l'honneur d'examiner mes travaux : Jean-Marc Jung qui a tenu le rôle de président, Jean Aupiais et Philippe Cassette qui ont consacré une partie de leur temps à la lecture approfondie de mon manuscrit. Merci également à Patrick Mary et Marc Piccione qui ont examiné cette thèse, et bien sûr à Abdel-Mjid Nourreddine et Lionel Tenailleau.

Ce n'est donc pas une surprise pour toi, lecteur, si tu lis ces lignes c'est que tout s'est bien terminé ! Alors il me faut exprimer la reconnaissance qui suit l'euphorie de l'après :

Pour rappel, ces travaux sont issus d'une collaboration entre le GEA<sup>1</sup> et le RaMsEs<sup>2</sup>. Je tiens donc en premier lieu à remercier l'heureux hasard qui a conduit Marc Piccione – directeur scientifique de l'EAMEA<sup>3</sup> – à réaliser un audit COFRAC au RaMsEs. Il y a parlé d'un poste au GEA et hop : un sujet intéressant dans un cadre militaire à 50 m de la plage où l'eau est chaude : j'ai été volontaire !

Merci donc à mon directeur de thèse, professeur Nourreddine, qui après avoir pensé à moi m'a suivi pendant ces trois années et s'est toujours trouvé disponible malgré un emploi du temps de deux ministres. Tant qu'à être du côté strasbourgeois de la collaboration, il me faut remercier les membres du RaMsEs, en particulier Addil Sellam, Abdellatif Nachab, Abderrahim Bensaida, l'infernale Nicolas Spanier et Arthur Pape. Je ne peux pas oublier mes compagnons d'infortune : Samir Dziri, Youba-Ould Salem, Issiaka Traore et Estelle Gasser. Merci à eux tous de toujours avoir été présents, et qui ont fait qu'au RaMsEs on se sente chez soi. Ensuite un grand merci à Jean-Pierre Engel qui a eu le courage et qui a pris le temps de relire l'ensemble du mémoire et d'en corriger les innombrables fautes (et je ne parle malheureusement pas que des fautes d'orthographe...).

De l'autre côté du méridien de Paris, je tiens à remercier très chaleureusement Lionel Tenailleau – chef du GEA – pour m'avoir initié à la pratique de la basse, et bien sûr pour son aide dans mes travaux, précieuse pour ne pas dire indispensable ! Merci aussi aux deux admirables ingénieurs du laboratoire, Marjolaine Mahu et Ronan Salaun, états du laboratoire, à Florent Ricchi, qui aussi était au laboratoire et à son remplaçant Alexis Quentin. Un grand coup de chapeau à Fanny Berthet, désormais docteur, à l'insupportable Gisèle Rezé et à Sophie Mouton. Je voudrais

---

1. GEA : Groupe d'Etudes Atomiques, laboratoire implanté sur le site de l'EAMEA à Cherbourg  
2. RaMsEs : Radioprotection et Mesures Environnementales, laboratoire de l'IPHC à Strasbourg  
3. EAMEA : Ecole des Applications Militaires de l'Énergie Atomique, école formant les personnels de la Défense au nucléaire, à Cherbourg

aussi saluer les différents stagiaires que j'ai eu l'occasion de croiser, en particulier le mien, Aurélien Le Pichon. Trois années d'aquarium se sont terminées, et mon air de mérou est parti... Merci à vous pour m'avoir empêché de tourner en rond ! Onze lignes pour trois ans c'est peu mais merci encore à vous tous.

Au-delà des murs du laboratoire il y a aussi tout un monde et je souhaite eux aussi tous les remercier. Et quand je dis « eux », je pense à Fernande, certes, mais pas seulement à elle. En premier lieu aux deux commandants successifs de l'EAMEA : le capitaine de vaisseau Didier Le Guigot qui m'a accueilli, et le capitaine de vaisseau Frédéric Janci qui m'a décoré, puis aux deux directeur scientifique Marc Piccione et Patrick Mary, enfin au directeur des études Philippe Le Goff. Difficile ensuite de citer tous les permanents de l'école. Je voudrais particulièrement remercier Loredana Manducci et Laurent Mahias, Alban Genre-Grandpierre et Matthieu Bossavit, mon voisin Sébastien Mathon et le géant Amaury Chapelle. Comment ne pas citer Jean-Lionel Trolet, gardien du laboratoire de physique nucléaire de l'école et prêteur sans gage de PM, TAC, etc. Enfin, merci à Aurélie Sunder, Vianney Charpentier et Magalie Gabon, officiers communication successifs.

Il me faut aussi remercier tout spécialement les membres des Zizotops<sup>4</sup> avec lesquels j'ai pu évoluer dans divers instruments : Julien Invernizzi (batter fou, clarinettiste Yom-fan, saxophoniste rêveur et même chanteur peut-être), Matthieu Becmeur (flûtiste en argent et basse à Chicago), Sandrine Cormon (guitariste Gretsch, pianiste tango caliente et chanteuse Bellamy), Florent Ricchi (guitariste alternatif et chanteur lonely), Christophe Roger (chanteur francophone), Patrick de Boisséson (guitariste aérien), Magalie Gabon (chanteuse disco) et Lionel Tenailleau (basse tempérée et guitare british) ; malheureusement tous n'ont pas pu être présents au même moment... Dans une même veine musicale, merci à Nintendo !

Merci à toutes les personnes, elles se reconnaîtront, qui ont contribué à la réussite de ces travaux (on peut penser aux prêteur d'ADC, aux relecteurs, ...); bref, merci à vous.

Après avoir cité toutes ces personnes que j'ai pu apprécier ces trois dernières années, il manque les plus patientes, qui m'aident et me soutiennent depuis toujours et sans qui ni moi ni cette thèse n'auraient pu voir le jour : mes parents, Anne-Marie et Patrick !

Merci à tous de m'avoir supporté et aidé, merci pour ces trois années, de travail certes, mais aussi de musique, jeux et autres !

---

4. Zizotops : groupe de musique de l'EAMEA

# Table des matières

<b>Remerciements</b>	<b>i</b>
<b>Introduction</b>	<b>1</b>
<b>1 Physique des rayonnements</b>	<b>5</b>
1.1 Historique . . . . .	6
1.1.1 Des rayons X à la radioactivité . . . . .	6
1.1.2 De la nature de la radioactivité . . . . .	8
1.1.3 La source et le noyau . . . . .	9
1.2 Interaction rayonnement-matière . . . . .	11
1.2.1 Interaction des photons . . . . .	12
1.2.1.1 Effet photoélectrique . . . . .	13
1.2.1.2 Effet Compton . . . . .	13
1.2.1.3 Effet de création de paire . . . . .	15
1.2.1.4 Autres interactions . . . . .	16
1.2.1.5 Parcours et atténuation . . . . .	16
1.2.2 Interaction des particules chargées . . . . .	17
1.2.2.1 Les particules $\alpha$ . . . . .	18
1.2.2.2 Les particules $\beta$ . . . . .	23
1.2.2.3 Transferts d'énergie . . . . .	30
<b>2 Détecteurs et systèmes de détection</b>	<b>37</b>
2.1 Systèmes de détection $\alpha/\beta$ à gaz et par semi-conducteur . . . . .	38
2.1.1 Les détecteurs gazeux . . . . .	38
2.1.1.1 Chambre d'ionisation . . . . .	39
2.1.1.2 Compteur proportionnel . . . . .	40
2.1.1.3 Geiger-Müller . . . . .	41
2.1.2 Les détecteurs à semi-conducteurs . . . . .	41
2.2 Les détecteurs à scintillateurs . . . . .	44
2.2.1 Les différents scintillateurs . . . . .	45
2.2.1.1 Scintillateurs inorganiques . . . . .	45
2.2.1.2 Scintillateurs organiques . . . . .	47
2.2.2 Les transferts d'énergie en scintillation liquide . . . . .	48
2.2.3 Les systèmes de détection de lumière . . . . .	53
2.2.3.1 Dispositif de détection : le photomultiplicateur . . . . .	53
2.2.3.2 Amplification et mise en forme . . . . .	61
2.2.4 Les montages . . . . .	62
2.2.4.1 La collection des photons . . . . .	63
2.2.4.2 Protection vis-à-vis des phénomènes externes . . . . .	65
2.2.4.3 Protection vis-à-vis des phénomènes internes . . . . .	66

<b>3</b>	<b>Traitement et analyse des spectres en énergie</b>	<b>69</b>
3.1	Spectre en scintillation liquide . . . . .	70
3.1.1	Les différences $\alpha/\beta$ . . . . .	70
3.1.2	Le quenching . . . . .	71
3.1.2.1	Les différents quenchings . . . . .	72
3.1.2.2	La mesure du quenching . . . . .	73
3.1.2.3	Les autres phénomènes perturbateurs . . . . .	75
3.2	Détermination de l'activité $\alpha$ à partir des spectres . . . . .	80
3.2.1	Séparation manuelle . . . . .	80
3.2.2	Analyse automatique à deux fenêtres . . . . .	82
3.2.3	Analyse automatique à trois fenêtres . . . . .	83
3.3	La mesure $^3\text{H}/\alpha$ . . . . .	85
3.3.1	Méthode . . . . .	85
3.3.1.1	Le protocole . . . . .	85
3.3.1.2	Frottis et cocktail de scintillation . . . . .	86
3.3.1.3	Tension et MCA de l'appareil . . . . .	87
3.3.1.4	Influence des $\beta$ autres que le $^3\text{H}$ . . . . .	87
3.3.1.5	Discrimination . . . . .	88
3.3.1.6	Seuil de décision et limite de détection . . . . .	88
3.3.2	Validation de la méthode . . . . .	89
3.3.2.1	Comparaison des méthodes de mesure . . . . .	89
3.3.2.2	Répétabilité et reproductibilité . . . . .	91
3.4	Soustraction du fond $\beta$ . . . . .	92
3.4.1	Description . . . . .	92
3.4.2	Ajustement par une fonction simple . . . . .	93
3.4.2.1	Ajustement . . . . .	93
3.4.2.2	Limite de détection . . . . .	95
3.4.3	Ajustement par un spectre de référence . . . . .	95
3.5	Conclusion . . . . .	98
<b>4</b>	<b>Séparation électronique des signaux</b>	<b>101</b>
4.1	Discrimination des rayonnements $\alpha/\beta$ . . . . .	102
4.1.1	Les rayonnements dans le liquide scintillant . . . . .	102
4.1.2	Méthodes de discrimination . . . . .	103
4.1.2.1	<i>Pulse Decay Analysis</i> . . . . .	104
4.1.2.2	<i>Pulse Shape Analysis</i> . . . . .	106
4.1.2.3	Charge sur énergie . . . . .	106
4.1.2.4	<i>Tail-to-total ratio</i> . . . . .	107
4.1.2.5	<i>Post Impulsion Analysis</i> . . . . .	107
4.1.3	Détermination du facteur de discrimination . . . . .	108
4.2	Auto-détermination du facteur de discrimination . . . . .	108
4.2.1	Analyse spectrale $\alpha$ . . . . .	111
4.2.2	Vérification et premières validations . . . . .	115
4.2.3	Incertitudes liées aux mesures par MLB . . . . .	115

4.2.3.1	Formulation mathématique . . . . .	116
4.2.3.2	Tirages aléatoires . . . . .	118
4.2.4	Paramètres influençant la MLB . . . . .	121
4.2.4.1	Interpolation de la fonction caractéristique $\tau(x)$ . . . . .	121
4.2.4.2	Utilisateur et choix de fenêtre . . . . .	122
4.2.4.3	Nombre de mesures effectuées . . . . .	122
4.2.4.4	Reproductibilité et répétabilité . . . . .	123
4.2.5	Essais sur deux sources particulières . . . . .	125
4.2.5.1	Source de $^{222}\text{Rn}$ . . . . .	125
4.2.5.2	Source d'intercomparaison CETAMA . . . . .	128
4.3	Limites de la discrimination . . . . .	129
4.3.1	Acidité de la source . . . . .	130
4.3.1.1	Source d'intercomparaison IRSN . . . . .	130
4.3.1.2	Lien entre concentration, pH et tSIE . . . . .	133
4.3.2	Limite de détection . . . . .	135
4.4	Conclusion . . . . .	135
<b>5</b>	<b>Séparation numérique des signaux</b>	<b>137</b>
5.1	La discrimination numérique . . . . .	138
5.1.1	Méthodes de discrimination numérique . . . . .	138
5.1.1.1	Critère optimal de Gatti . . . . .	138
5.1.1.2	Critère de Yousefi . . . . .	139
5.1.1.3	Ajustement des impulsions . . . . .	139
5.1.2	Algorithmes des méthodes (LabView) . . . . .	140
5.1.3	Simulation de discrimination numérique . . . . .	141
5.2	Acquisition des données . . . . .	147
5.2.1	Sources étalons . . . . .	147
5.2.2	Démonstration de faisabilité . . . . .	147
5.2.3	Premier montage pour la discrimination . . . . .	149
5.2.3.1	Paramètres de l'acquisition . . . . .	150
5.2.3.2	Spectres . . . . .	151
5.2.4	Second montage pour la discrimination . . . . .	158
5.2.4.1	Paramètres de l'acquisition . . . . .	159
5.2.4.2	Spectres . . . . .	160
5.2.4.3	Fenêtre d'entrée des photomultiplicateurs . . . . .	165
5.3	Analyse multicritère . . . . .	167
5.3.1	Encadrement en tension et charge . . . . .	168
5.3.2	Détermination par encadrement des $\alpha$ . . . . .	170
5.3.2.1	Encadrement estimé . . . . .	171
5.3.2.2	ACP . . . . .	175
5.4	Modèles de simulation . . . . .	177
5.4.1	Modèle en deux exponentielles . . . . .	177
5.4.1.1	Paramètres . . . . .	177
5.4.1.2	Ajustement de signaux $\alpha$ et $\beta$ . . . . .	179



5.4.2	Modélisation en trois et quatre exponentielles . . . . .	184
5.5	Conclusion . . . . .	184
<b>Conclusion</b>		<b>187</b>
<b>A Statistiques de comptage</b>		<b>191</b>
A.1	Distribution d'une mesure . . . . .	191
A.1.1	Moyenne et écart-type . . . . .	192
A.1.2	Seuil de décision et limite de détection . . . . .	192
A.2	Propagation des erreurs . . . . .	193
A.2.1	Variables non-corrélées . . . . .	193
A.2.2	Variables corrélées . . . . .	193
A.3	Méthode statistique d'obtention des résultats de mesure . . . . .	194
A.3.1	Principe . . . . .	194
A.3.2	Exemple d'application : la MLB . . . . .	194
<b>B Manuel de l'utilisateur du logiciel MLB</b>		<b>197</b>
B.1	Mise en place du protocole de comptage . . . . .	197
B.2	Utilisation du logiciel . . . . .	197
B.2.1	Importation des spectres . . . . .	198
B.2.2	Détermination de la fenêtre $\alpha$ . . . . .	198
B.2.3	Lecture de la courbe de $\tau(x)$ . . . . .	198
B.3	Lecture des résultats . . . . .	198
<b>C Filiations radioactives</b>		<b>199</b>
C.1	Décroissance . . . . .	199
C.1.1	Demi-vie . . . . .	199
C.1.2	Filiations . . . . .	200
C.2	Chaînes radioactives . . . . .	201
C.2.1	$^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ . . . . .	201
C.2.2	$^{222}\text{Rn}$ . . . . .	204
<b>D Traitement des images</b>		<b>207</b>
D.1	Détermination des zones d'une image et désignation comme $\alpha$ . . . . .	207
D.2	Algorithmes utilisés . . . . .	208
D.2.1	Méthodes matricielles . . . . .	208
D.2.1.1	Matrice de Gauss (Flou) . . . . .	208
D.2.1.2	Matrice de Laplace (Contours) . . . . .	208
D.2.1.3	Algorithme de Sobel (Contours) . . . . .	209
D.2.2	Transformée de Hough . . . . .	209
D.2.3	Distance morphologique . . . . .	209
D.2.4	Écoulement . . . . .	210
<b>Table des figures</b>		<b>211</b>

<b>Table des matières</b>	<b>vii</b>
<b>Liste des tableaux</b>	<b>221</b>
<b>Liste des abréviations</b>	<b>225</b>
<b>Bibliographie</b>	<b>229</b>



# Introduction

La physique nucléaire concerne en France des domaines variés mais stratégiques, aussi bien en production d'énergie qu'en médecine, en passant bien sûr par les applications militaires. La maîtrise des risques engendrées par ces activités et leurs conséquences concerne à l'heure actuelle les 65 millions de français dont 21 milles travailleurs du nucléaires exposés; elle est donc un enjeu à la fois économique, stratégique et sociétal. L'acceptabilité de l'atome en France, imposé au sortir de la guerre pour des raisons économiques et stratégiques, passe donc par une préoccupation permanente envers la maîtrise des risques liés aux activités nucléaires et la confiance dans les autorités de contrôle. Cette confiance ne peut être instaurée que par une politique rigoureuse d'évaluation des risques, faisant évoluer en parallèle les moyens de sureté, de protection, de mesure et d'analyse. Ainsi, elle occupe une place prépondérante dans les missions de radioprotection, aussi bien en termes de dosimétrie (estimation de l'impact sur la santé) qu'en mesure (au sens de la métrologie des rayonnements ionisants). Dans ce contexte, la baisse des niveaux tolérables de radioactivité artificielle ou naturelle dans l'environnement est devenue une préoccupation sociétale, ce qui nécessite une amélioration constante des moyens d'analyses.

Un des enjeux est la mesure des émetteurs  $\alpha/\beta$ . Régulièrement, des normes sont publiées, préconisant l'emploi de certaines techniques en accord avec les activités et les éléments recherchés. Ainsi, la mesure des activité globale des émetteurs  $\alpha$  et  $\beta$  présents dans les eaux non salines est réalisée par un comptage après évaporation de l'échantillon dans une coupelle. Généralement mesuré par des compteurs proportionnels, cette technique permet une bonne discrimination énergétique des rayonnements mais pose trois contraintes. Premièrement la mesure des activités est faite en fonction d'une référence, généralement  $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$  pour les  $\beta$  et  $^{239}\text{Pu}$  pour les  $\alpha$ , c'est-à-dire que tous les rayonnements  $\beta$  sont comptés comme s'ils étaient issus de la source de référence  $\beta$ , de même pour les  $\alpha$ . Deuxièmement, les rendements sont au maximum de 50% du fait de la géométrie, et bien moindre dans le cas  $\alpha$  du fait de phénomènes d'auto-absorption. Enfin, les  $\beta$  de très faibles énergies, comme le tritium, ne sont pas détectables.

Le sujet de ce travail s'inscrit dans le cadres des activités R&D du Groupe d'Etudes Atomiques (GEA), laboratoire expert de la Marine Nationale rattaché à l'Ecole des Applications Militaires de l'Energie Atomique (EAMEA) à Cherbourg, en collaboration avec l'équipe Radioprotection et Mesures Environnementales (RaMsEs) de l'Institut Pluridisciplinaire Hubert Curien (IPHC) à Strasbourg. Afin de trouver une alternative aux contraintes liées à la mesure sur coupelles, le département GEA et le RaMsEs ont entrepris une étude portant sur la mesure par scintillation liquide des activités  $\alpha/\beta$ -globale dans les eaux. L'étude consiste à

poursuivre et approfondir les actions préalablement menées et s'articule autour de l'abaissement de la limite de détection par la discrimination  $\alpha/\beta$  dans les mesures par scintillation liquide, ce qui s'inscrit directement dans la problématique des laboratoires cherchant à mesurer de très faibles activités sur des eaux pouvant contenir plusieurs radionucléides émetteurs  $\alpha$  ou  $\beta$ .

La scintillation liquide est une technique de mesure  $\alpha/\beta$  permettant l'obtention simultanée des activités des deux rayonnements avec une plage d'énergie de détection de quelques keV ( $E_{det} < E_{\beta_{max}}(^3\text{H})$ ) à une dizaine de MeV ( $E_{det} > E_{\alpha}(^{218}\text{Po})$ ). Cette importante dynamique présente des avantages par rapport aux mesures par dépôt sur coupelle. De plus, cette technique autorise la mesure de l'activité  $\alpha$ -totale de l'échantillon avec un rendement de détection d'environ 100%, quelque soit l'émetteur. Par contre, la scintillation liquide ne permet pas une séparation énergétique des deux types de rayonnements : le spectre  $\alpha$  apparaît à un dixième de son énergie et est donc mêlé au spectre  $\beta$ . Les limites de détection des deux éléments dépendent donc l'un de l'autre : il est nécessaire de discriminer si possible les rayonnements. Certains compteurs à scintillation liquide bénéficient d'une capacité de discrimination entre les deux émissions à l'aide d'un critère fixé par l'utilisateur. La norme NF ISO 11704 définit le mesurage simultané par scintillation liquide des activités  $\alpha$  et  $\beta$  d'un échantillon d'eau mais n'est pas très explicite sur les réglages du paramètre de discrimination  $\alpha/\beta$  et nécessite donc d'être complétée. Mais, actuellement mal connue des laboratoires français, la méthode dispose d'un retour d'expérience insuffisant et présente des difficultés qui retardent son application en routine.

Le présent manuscrit est scindé en cinq chapitres. Le premier passe en revue les différentes découvertes fondamentales jalonnant l'histoire de l'humanité dans le domaine de la radioactivité, de la conception philosophique de la matière de Démocrite à la mécanique quantique. Nous présentons ensuite les trois rayonnements qui nous intéressent plus particulièrement ici :  $\alpha$ ,  $\beta$  et  $\gamma$ . Nous aborderons alors leurs origines ainsi que les différents processus d'interactions rayonnement-matière qui les caractérisent.

Le second chapitre concerne les méthodes de détection des rayonnements  $\alpha$  et  $\beta$  basées sur les semi-conducteurs et les compteurs proportionnels. Puis il décrit les fondements théoriques indispensables permettant d'appréhender la technique d'analyse par scintillation liquide, depuis les interactions entre le rayonnement incident et le liquide jusqu'à la détection du signal par un photomultiplicateur et les traitements. L'accent est mis sur les phénomènes de désexcitation des molécules par fluorescence, phosphorescence et fluorescence retardée directement liés aux dépôts d'énergies, différents selon les  $\alpha$  ou les  $\beta$ .

Le troisième chapitre est consacré à la présentation et à la discussion de résultats expérimentaux obtenus par analyse de spectres bruts issus de comptages par

scintillation liquide. Dans ce cas, la discrimination des  $\alpha$  et des  $\beta$  n'est directement possible que dans la mesure où leurs énergies sont correctement séparées : le spectre  $\beta$  n'empiète pas sur le spectre  $\alpha$ . Il est alors possible d'identifier simplement et systématiquement une fenêtre  $\alpha$  et une fenêtre  $\beta$  à partir des spectres en énergie. Nous présentons une application de ce principe pour la mesure simultanée  ${}^3\text{H}/\alpha$  sur des frottis analysés par le Triathler<sup>5</sup>.

Dans le cas où une lecture directe du spectre ne permet pas de déterminer deux fenêtres indépendantes, il reste possible de faire une soustraction du fond (bruit et  $\beta$ ) et ainsi obtenir les activités, soit par une soustraction du fait de la connaissance du spectre  $\beta$ , soit par interpolation sous le pic  $\alpha$  s'il est visible. Cette partie montre ainsi les limites des méthodes n'utilisant que l'énergie des rayonnements et donc la nécessité de recourir à la discrimination  $\alpha/\beta$ .

Certains systèmes à scintillation liquide intègrent des méthodes de séparation basées sur les différences temporelles en  $\alpha$  et  $\beta$ , seul phénomène physique permettant une discrimination. Celle-ci est faite par la détermination d'un paramètre seuil, inhérent à la méthode mise en place dans l'appareil utilisé, et chaque impulsion est classée comme étant  $\beta$  (inférieure au seuil) ou  $\alpha$  (supérieure au seuil).

Le quatrième chapitre expose les différentes méthodes qui permettent de discriminer les différents rayonnements. Le facteur de discrimination optimal est déterminé à l'aide de source de référence  $\alpha$  et  $\beta$  comme étant celui où les taux de réjection sont minima, c'est-à-dire celui où il y a le moins d'interférence d'un rayonnement dans l'autre spectre (coups  $\alpha$  dans le spectre  $\beta$  et réciproquement). La valeur du facteur de discrimination dépendant de l'activité des rayonnements, de leur énergie et du milieu, nous déterminons le facteur de discrimination optimal propre à chaque échantillon, sans l'aide des références, en réalisant pour chacun plusieurs comptages à différentes valeurs de facteur de discrimination. Nous présentons ensuite les relations entre la qualité de l'échantillon, principalement en termes de pH, et sa discriminabilité.

Le cinquième et dernier chapitre propose une nouvelle approche de la mesure en scintillation liquide en utilisant les nouvelles technologies de convertisseur analogique-numérique. En effet, la numérisation de signaux est désormais possible par des CAN<sup>6</sup> suffisamment rapide pour les signaux de scintillation liquide, soit plus de 1 GHz, permettant donc l'enregistrement de signaux de durée de l'ordre de la dizaine de nanosecondes. Ceci offre la possibilité de traitements numériques, multi-paramètres voire en plusieurs dimensions.

À l'aide de deux montages différents, nous étudions la méthode standard basée sur la détermination d'un critère, puis selon plusieurs simultanément. Les caractéristiques des rayonnements  $\alpha$  permettent de les isoler dans les spectres en tension et charge, à partir de quoi nous étudions le gain en terme de limite de

---

5. Compteur à scintillation liquide simple et portable de Hidex

6. Convertisseur Analogique Numérique

détection par rapport aux méthodes d'analyse discriminatoires. De la même façon, nous voyons la possibilité de définir une fenêtre  $\alpha$  dans les différents spectres et les conséquences pour la discrimination en prenant toutes les analyses en compte. Enfin, la numérisation permet l'ajustement mathématique des impulsions et nous déterminons les paramètres de deux modèles.

# Physique des rayonnements

---

On ne fait jamais attention à ce qui a été fait ; on ne voit que ce qui reste à faire.

Marie Curie

## Sommaire

---

<b>1.1 Historique</b> . . . . .	<b>6</b>
1.1.1 Des rayons X à la radioactivité . . . . .	6
1.1.2 De la nature de la radioactivité . . . . .	8
1.1.3 La source et le noyau . . . . .	9
<b>1.2 Interaction rayonnement-matière</b> . . . . .	<b>11</b>
1.2.1 Interaction des photons . . . . .	12
1.2.2 Interaction des particules chargées . . . . .	17

---



## 1.1 Historique

Au  $IV^{ième}$  siècle avant Jésus Christ, Démocrite<sup>1</sup>, philosophe matérialiste grec, énonce déjà le principe de l'atome, du grec  $\alpha\tau\omicron\mu\omicron\varsigma$ , insécable : *si tout corps est divisible à l'infini, de deux choses l'une : ou il ne restera rien ou il restera quelque chose. Dans le premier cas la matière n'aurait qu'une existence virtuelle, dans le second cas on se pose la question : que reste-t-il ? La réponse la plus logique, c'est l'existence d'éléments réels, indivisibles et insécables appelés donc atomes.* Pour les atomistes, rien n'est dû au hasard, les Moires sont à l'œuvre de toute chose et seule la mécanique quantique contredira ce déterminisme 2500 ans plus tard.

Ce n'est qu'au  $XVII^{ième}$  siècle que la notion de constituants élémentaires du monde refait surface. La philosophie s'y intéresse à nouveau, mais elle reste controversée, *car s'il y avait des atomes dans la nature, cela irait contre les plus grands principes de la raison* dit Leibniz<sup>2</sup>. A partir du  $XIX^{ième}$  siècle, la compréhension du monde se fait plus précise et les découvertes s'enchaînent, au bénéfice et au malheur de la société. Pierre Curie<sup>3</sup> dira, lors du discours qu'il prononce en recevant le prix Nobel en 1903 (avec son épouse Marie Curie<sup>4</sup> et Henri Becquerel<sup>5</sup>) : *On peut concevoir encore que dans des mains criminelles le radium puisse devenir très dangereux, et ici on peut se demander si l'humanité a avantage à connaître les secrets de la nature, si elle est mûre pour en profiter ou si cette connaissance ne lui sera pas nuisible. L'exemple des découvertes de Nobel est caractéristique ; les explosifs puissants ont permis aux hommes de faire des travaux admirables. Ils sont aussi un moyen terrible de destruction entre les mains des grands criminels qui entraînent les peuples vers la guerre. Je suis de ceux qui pensent avec Nobel que l'humanité tirera plus de bien que de mal des découvertes nouvelles.*

### 1.1.1 Des rayons X à la radioactivité

Cette histoire commence en 1833. Faraday<sup>6</sup> étudie les décharges électriques dans des gaz sous faible pression. Le gaz est contenu dans une ampoule de verre avec une électrode de chaque côté. En appliquant une tension suffisante entre les deux électrodes, Faraday observe *que la raréfaction de l'air favorise puissamment le phénomène d'incandescence.* Il nomme en 1838 ce phénomène *électroluminescence.* Après que le phénomène ait été reproduit dans des vides de plus en plus poussés, Plücker<sup>7</sup> démontre que c'est le verre en regard de la cathode qui s'illumine. La cause est identifiée en 1869 par Hittorf<sup>8</sup> : la cathode est la source de rayonnement,

1. Démocrite - Abdère vers -460, Abdère vers -357

2. Gottfried Wilhelm Leibniz - Leipzig 1646, Hanovre 1716

3. Pierre Curie - Paris 1859, Paris 1906

4. Marie Curie - Varsovie 1867, Sallanches 1934

5. Henri Antoine Becquerel - Paris 1852, Le Croisic 1908

6. Michael Faraday - Newington 1791, Hampton Court 1867

7. Julius Plücker - Elberfeld 1801, Bonn 1868

8. Johann Wilhelm Hittorf - Bonn 1824, Münster 1914

et le rayonnement est sensible au champ magnétique. En 1879, Crookes<sup>9</sup> obtient dans une ampoule un vide très poussé, de l'ordre de  $10^{-6}$  atm, et construit un tube, qui porte son nom, permettant la production et l'analyse des décharges dans des gaz raréfiés.

C'est en 1895 que Perrin<sup>10</sup> met en exergue la charge négative de ce rayonnement cathodique en envoyant le rayonnement cathodique dans une cage de Faraday. Cette même année est riche d'autres découvertes notables. Röntgen<sup>11</sup> cherche si une faible portion des rayons cathodiques n'est pas capable de sortir d'un tube de Crookes. Pour détecter la présence de rayons cathodiques en dehors du tube, il le recouvre de papier noir et place devant un écran de platinocyanure de baryum, écran qui devient fluorescent... Cette réaction du détecteur montre la présence de rayons hors du tube, mais sont-ce des rayons cathodiques? Il nomme ces rayons *X*, le même *X* que pour les choses inconnues et en travaux (*X-FLR6*); il les étudie pendant des semaines afin de les caractériser. Le 28 décembre 1895, il envoie aux grands noms de l'époque un mémoire dans lequel il expose ses observations et conclusions. Il y écrit ainsi que ces rayons, de nature différente des rayons cathodiques, ont *une certaine parenté [avec] les rayons lumineux, en ce sens qu'ils présentent certains phénomènes communs*. En 1897 Joseph Thomson<sup>12</sup> découvre l'électron, terme inventé par George Stoney<sup>13</sup> en 1894 pour qualifier les charges donnant la saveur chimique des atomes. D'une maladresse légendaire, Thomson montre cependant en 1891 que les rayons cathodiques ont une masse, en 1895 qu'ils ont une vitesse et en 1897 il mesure le rapport  $e/m$ . C'est la preuve que l'électricité a un support matériel : l'électron. John S. E. Townsend et H. A. Wilson, dans une chambre à brouillard, trouvent sa charge et sa masse<sup>14</sup>, il est 1836 fois moins lourd que l'atome d'hydrogène<sup>15</sup>.

Désirant vérifier l'hypothèse de la relation entre rayons X et fluorescence, Henri Becquerel choisit le matériau dont l'intensité des effets lumineux induits est la plus forte, les sels d'urane. C'est son père, Alexandre Becquerel<sup>16</sup>, qui a classé les différents éléments fluorescents. Il place dans une feuille de papier noir une plaque photographique et deux lamelles recouvertes de sulfate double d'uranyle et de potassium, et sur l'une d'elle il place une pièce en argent. L'ensemble est exposé au Soleil puis la plaque photographique est développée : elle montre la silhouette des lamelles et l'ombre portée de la pièce. Il reproduit cette expérience en intercalant une mince lame de verre entre les sels et la plaque photographique, et le résultat est le même, mais moins intense : le sel d'urane semble émettre un rayonnement

9. William Crookes - Londres 1832, Londres 1919

10. Jean-Baptiste Perrin - Lille 1870, New York 1942

11. Wilhelm Conrad Röntgen - Lennep 1845, Munich 1923

12. Joseph John Thomson - Cheetham Hill 1856, Cambridge 1940

13. George Stoney - Oakland Park 1826, 1911

14.  $e = 1,602\ 176\ 53\ (14)\ 10^{-19}$  C et  $m_e = 9,109\ 3826(16)\cdot 10^{-31}$  kg = 0,510 998 918 (44) MeV/c<sup>2</sup>

15. La masse de l'hydrogène est d'environ  $m_H = 938,8$  MeV/c<sup>2</sup>

16. Alexandre Edmond Becquerel - Paris 1820, Paris 1891

partiellement arrêté par la lame de verre. Le 2 mars 1896, Henri Becquerel écrit : *les mêmes lamelles cristallines [...] maintenues à l'obscurité, produisent encore les mêmes impressions photographiques*. Il suppose dans un premier temps que les sels d'urane emmagasinent de l'énergie qu'ils restitueraient lentement, mais après deux mois puis sept ans de test, il ne constate pas de diminution de l'énergie emmagasinée, alors que les plaques séjournèrent à l'ombre d'un coffre de plomb. L'origine du rayonnement est donc autre. Il montre dans un premier temps que le rayonnement est dû à l'uranium, quelle qu'en soit la forme, et non par les substances fluorescentes non-uraniques.

En 1897, Marie Curie choisit comme sujet de thèse l'étude des rayonnements découverts par Henri Becquerel et recherche d'autres éléments susceptibles de produire le même type de rayonnement. À l'aide d'un électromètre à quadrant perfectionné par son mari Pierre Curie, sorte de chambre d'ionisation permettant de mesurer des courants de l'ordre de  $10^{-11} A$ , elle isole un nouvel élément qu'elle nomme polonium, en l'honneur du pays qui l'a vu naître, puis un second qu'elle appelle radium (du latin *radius*, rayon). Elle montre ainsi que les rayonnements uraniques ne sont pas propres à l'uranium, puisqu'ils existent dans d'autres éléments, et introduit donc le terme de radioactivité. Elle présente sa thèse en 1903, la même année où elle reçoit, avec son mari et Henri Becquerel, le prix Nobel de physique. Cependant, l'interprétation physique de ce rayonnement, ainsi que sa nature, restent un mystère.

### 1.1.2 De la nature de la radioactivité

À l'aide de champs magnétiques, Paul Villard<sup>17</sup> identifie une partie de ces rayonnements comme étant de même nature que les rayons X, mais plus pénétrant. Friedrich Giesel<sup>18</sup> d'un côté, et Pierre et Marie Curie de l'autre, montrent qu'une partie des rayonnements *uraniques* se comportent en tout point comme les rayons cathodiques et sont donc des électrons. Mais à l'aide d'écrans, Henri Becquerel et Pierre et Marie Curie identifient un troisième rayonnement, arrêté par une simple feuille de papier. C'est en 1903 qu'Ernest Rutherford<sup>19</sup>, grâce à un champ magnétique beaucoup plus intense, caractérise ce troisième rayonnement. Celui-ci est plus difficilement dévié, et à l'inverse des électrons : c'est un rayonnement lourd de charge positive. En étudiant le rapport charge sur masse, il conclut sur sa nature : le rayonnement  $\alpha$  correspond à l'émission d'un noyau d'hélium  $^4\text{He}$ , ce qu'il confirme en 1907. Le rayonnement *uranique* est donc composé de trois rayonnements :  $\alpha$  (lourd et positif, hélium),  $\beta$  (léger et négatif, électron) et  $\gamma$  (neutre et sans masse, photon). La composition de la radioactivité est connue, mais pas la cause.

Dans un laboratoire de l'université de Montréal, Ernest Rutherford et Robert

17. Paul Ulrich Villard - Lyon 1860, Bayonne 1934

18. Friedrich Oskar Giesel - Winzig 1852, Braunschweig 1927

19. Ernest Rutherford - Nelson 1871, Cambridge 1937

Owens<sup>20</sup> constatent une variation de l'intensité du rayonnement émis par du thorium en 1899. Celle-ci est due aux aléas et hasards de la science : durant une expérience, Owens, en entrant dans la salle, ouvre la porte, ce qui crée un courant d'air influant l'expérience. Pierre et Marie Curie avaient aussi remarqué ce phénomène en constatant la radioactivité induite d'objets ayant séjournés quelque temps au voisinage de la source. Ernest Rutherford interprète ceci en supposant que le thorium émet un gaz, lui aussi radioactif. Il s'attache alors à comprendre cette émanation, qu'il liquéfie et il mesure alors une décroissance exponentielle de l'activité. Dans le même temps, le thorium duquel il a isolé le gaz et qui avait perdu de son activité, la regagne en même temps que celle du gaz décroît. Il mesure que la somme des deux activités est constante. Il établit avec Frederik Soddy<sup>21</sup> les premières équations de décroissance radioactive. Ils écrivent en 1903 que *les éléments radioactifs sont instables et se transforment spontanément : leur transformation est accompagnée de la production de rayons expulsés de l'atome primitif et de celle d'un nouveau type d'atome radioactif*. La notion de filiation radioactive est donc née. La loi de Soddy-Rutherford permet de prévoir les changements des masses et des numéros atomiques dans les transitions radioactives. L'ensemble de ces équations a été complété par Bateman<sup>22</sup> en 1910.

### 1.1.3 La source et le noyau

Aux *XIX<sup>ième</sup>* siècles avant et après Jésus Christ, l'atome est indivisible et de structure inconnue. L'avènement de l'atomistique moderne avec la découverte des rayons X sonne le glas de l'insécable : il existe désormais des ciseaux et en 1897 Joseph Thomson découvre l'électron. Avec cette découverte le modèle de l'atome doit changer : il est composé de charges négatives, les électrons, et d'une charge positive, associée à la charge négative qu'il contient puisqu'il est neutre et ayant la quasi-totalité de la masse totale. Thomson établit un modèle d'atome, sphérique, composé d'une *distribution d'électricité positive la plus simple pour les calculs mathématiques, c'est-à-dire, répartie dans une sphère où les corpuscules (électrons) sont distribués uniformément* dans une mer de charges positives, les deux éléments étant en quantités égales.

Ce modèle évolue en 1911. Rutherford étudie la diffusion des particules  $\alpha$  dans l'air ou à travers de minces parois, en les détectant à l'aide d'un appareil à scintillation au sulfure de zinc créé par Ruben et Regener en 1908 à Berlin. Cet appareil permet de compter les particules, mais aussi de les situer. Ainsi Hans Geiger<sup>23</sup> montre que les  $\alpha$ , collimatés, sont déviés de quelques centièmes de degré après être passés par une feuille d'or de  $5 \mu\text{m}$  d'épaisseur. Puis il montre avec Ernest Marsden<sup>24</sup> qu'une particule sur huit mille est déviée d'un angle supérieur à  $90^\circ$ .

20. Robert Bowie Owens - 1870, 1940

21. Frederik Soddy - Eastbourne 1877, Brighton 1956

22. Harry Bateman - Manchester 1882, Pasadena 1946

23. Hans Geiger - Neustadt 1882, Potsdam 1945

24. Ernest Marsden - 1889, Wellington 1970

Par rapport au modèle précédent de Thomson, ces résultats sont en contradiction totale. Rutherford propose alors un modèle d'atome où les charges positives et la quasi-totalité de la masse sont concentrées dans un tout petit volume, qu'il nomme noyau. La déviation des  $\alpha$  par le noyau s'explique alors par la répulsion coulombienne entre le noyau et l' $\alpha$ , quand celui-ci passe à proximité. Sinon il traverse des électrons et n'est pas dévié. Rutherford met donc en équation ce modèle, basé sur une répulsion coulombienne d'une charge positive centrale sur les  $\alpha$  incidents, liant l'énergie de l' $\alpha$  avec l'angle de déviation. En fonction de la densité du milieu, il prévoit alors les probabilités de déviation, qui sont en accord avec les expériences. Il met en évidence aussi qu'un atome est principalement composé de vide. Les mêmes expériences de Geiger et Marsden montrent que *le nombre de particules élémentaires composant le centre de l'atome est égal à la moitié de la masse atomique*. Ceci introduit l'identité du nombre atomique  $Z$  et du nombre de charge, remédiant aux irrégularités de la classification périodique des éléments de Mendeleïev<sup>25</sup>, créée à partir de 1868 suivant les propriétés des atomes.

Soddy montre en 1914 que l'émission  $\alpha$  change la nature chimique de l'émetteur, mais aussi que son nombre de masse évolue. Dans la classification de Mendeleïev, l'émission  $\alpha$  décale l'atome fils de deux cases à gauche du père. Il en va de même pour les  $\beta^-$ , avec un déplacement d'une case à droite. Sachant que l' $\alpha$  porte deux charges positives et le  $\beta^-$  une charge négative, il devient évident que ces rayonnements proviennent d'un processus nucléaire spontané.

En 1919, Rutherford détecte des particules positives capables de parcourir un grand trajet dans l'air, plus que des  $\alpha$ . Il interprète ces particules comme étant le résultat d'une transmutation, Graal de l'alchimie, de l'azote en oxygène, telle que :



Ce n'est qu'en 1932 que James Chadwick<sup>26</sup> prouve l'existence du neutron, particule neutre constituante du noyau comme de l' $\alpha$ . Cette découverte fait suite aux expériences de bombardement d' $\alpha$  sur du béryllium, ce qui produit un rayonnement, supposé  $\gamma$ , mais susceptible d'arracher des protons très énergétiques aux substances hydrogénées qu'Irène Joliot-Curie<sup>27</sup> et Frédéric Joliot<sup>28</sup> lui font traverser.



Les constituants de l'atome sont désormais connus (électron, protons et neutrons), seul le modèle planétaire (Rutherford, Perrin) a évolué du fait de ses incompatibilités avec la mécanique classique, connues mais éludées par Rutherford. Elles sont au nombre de deux. Premièrement, en tournant autour du noyau les

25. Dimitri Ivanovich Mendeleïev - Tobolsk 1834, Saint Petersburg 1907

26. James Chadwick - Bollington 1891, Londres 1974

27. Irène Joliot-Curie - Paris 1897, Paris 1956

28. Frédéric Jean Joliot - Paris 1900, Paris 1958

électrons devraient perdre de l'énergie (sous forme de rayons X) et finir par s'écraser sur le noyau. En effet, suivant l'électrodynamique classique, toute charge accélérée émet un rayonnement continu suivant la formule de Hertz<sup>29</sup>, puisque l'énergie décroît au fur-et-à-mesure de l'émission. Deuxièmement, les volumes des atomes devraient être différents car toutes les orbitales des électrons sont possibles pourvu que la vitesse soit suffisante. Or, la dimension des atomes d'une même espèce est unique. C'est en 1913 que Niels Bohr<sup>30</sup> établit à l'aide de la première quantification de Planck<sup>31</sup> et de l'étude de spectres d'émission de l'hydrogène la notion d'orbitale : le passage d'un électron d'une couche à une autre de plus basse énergie est accompagné d'un rayonnement mono-énergétique directement lié aux énergies des deux niveaux :  $E_i - E_f = h\nu$ . Ce rayonnement est également appelé rayon X, mais n'a pas la même origine que l'autre dû au freinage des électrons (Bremsstrahlung [L'Annunziata 2003]).

Cette quantification de l'espace est confirmée en 1921 par Stern<sup>32</sup> et Gerlach<sup>33</sup>. C'est une révolution, balayant sur son passage moins de concepts qu'elle n'ouvre de nouvelles voies. Son acceptation est donc très difficile, même pour Albert Einstein<sup>34</sup> qui ne cesse de la critiquer. *Celui qui n'est pas choqué par la théorie quantique ne l'a pas comprise*, dit Bohr. En 1927 Dirac introduit la seconde quantification, à propos de laquelle (en 1949) Pauli<sup>35</sup> dit à Klein<sup>36</sup> : *La seconde quantification, c'est le péché au carré*.

## 1.2 Interaction rayonnement-matière

Un rayonnement est un mode de propagation d'énergie dans l'espace. Ceux-ci n'étant détectés et caractérisés qu'à travers leurs interactions avec la matière dans laquelle ils évoluent, on classe l'ensemble des rayonnements en deux grandes catégories : les rayonnements non-ionisants et les rayonnements ionisants. De la même manière, cette arborescence se développe jusqu'aux rayonnements « physique » ( $\alpha$ ,  $\beta$ ,  $\gamma$ , ...).

### Les rayonnements indirectement ionisants (RII)

Electriquement neutres, ils sont susceptibles de transférer une importante fraction ou la totalité de leur énergie en une seule interaction à des particules chargées. Ce sont ensuite ces particules secondaires qui ionisent le milieu ; l'ionisation se fait donc en deux étapes. Les neutrons entrent dans cette catégorie. On peut considérer

29. Heinrich Rudolf Hertz - Hambourg 1857, Bonn 1894

30. Niels Hendrik David Bohr - Copenhague 1885, Copenhague 1962

31. Max Karl Ernest Ludwig Planck - Kiel 1858, Göttingen 1947

32. Otto Stern - Sohrau 1888, Berkeley 1969

33. Walter Gerlach - Biebrich 1889, Munich 1979

34. Albert Einstein - Ulm 1879, Princeton 1955

35. Wolfgang Ernst Pauli - Vienne 1900, Zurich 1958

36. Oskar Klein - Mörby 1894, Stockholm 1977

que les rayonnements électromagnétiques ( $X$  et  $\gamma$ ) entrent dans cette catégorie car le nombre d'ionisations directe est considérablement plus faible que celles dues aux particules chargées. C'est un point de vu quantitatif car l'effet photoélectrique est une ionisation directe du milieu.

### Les rayonnements directement ionisants (RDI)

Constitués de particules chargées, ils délivrent directement à la matière leur énergie principalement par des interactions coulombiennes s'exerçant entre elles et les atomes du milieu. Les transferts d'énergie, dépendant des masses et des charges des particules en mouvement, sont différents et il y a lieu de distinguer entre particules chargées lourdes (proton, deuton, alpha, ions lourds) et électrons. Les rayonnements électromagnétiques ( $X$  et  $\gamma$ ) entrent dans cette catégorie même si le nombre d'ionisations directe est considérablement plus faible que celles dues aux particules chargées.

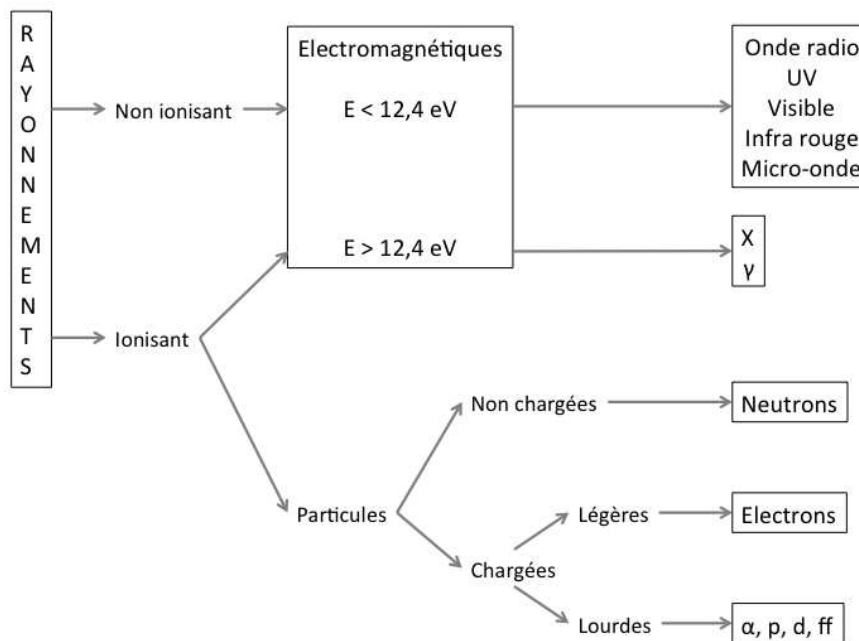


FIGURE 1.1 – Classification des rayonnements en fonction des effets. La valeur 12,4 eV provient de la définition d'un rayonnement ionisant d'après le code de santé publique.

#### 1.2.1 Interaction des photons

Ne possédant pas de charge électrique, les photons généralement sont classés en tant que *rayonnement indirectement ionisant* car le nombre d'ionisations directes

est très faible devant celles provoquées par les particules chargées (électrons,  $\alpha$ , ...), et si leur énergie est suffisante ( $> 12,4$  eV). En traversant la matière, celui-ci peut subir plusieurs types d'interactions, dont les probabilités changent suivant son énergie.

### 1.2.1.1 Effet photoélectrique

Cette interaction décrit l'absorption complète d'un photon incident par un électron d'un atome cible. Un électron isolé ne pouvant pas interagir de cette façon, c'est tout l'atome qui participe à cette interaction. L'énergie du photon incident  $E_\gamma$  est convertie en énergie de liaison  $U_l$ , en énergie cinétique du photoélectron  $E_e$  et en énergie de recul de l'atome cible  $E_r$  (Eq. 1.3). Il y a alors ionisation que si  $E_\gamma$  est supérieure à  $U_l$ .

$$E_\gamma = U_l + E_e + E_r \quad (1.3)$$

L'atome entier participant à l'interaction, il y a une variation de  $U_l$  en fonction du numéro atomique  $Z$  pour les différentes couches atomiques (Fig. 1.2). La masse du noyau étant au moins 1836 fois supérieure à celle de l'électron, l'énergie de recul de l'atome  $E_r$  est donc négligeable par rapport à celle emportée par le photoélectron. La direction du photoélectron est liée à la direction et à l'énergie du photon incident. Plus les électrons sont liés à l'atome, plus ils ont une section efficace grande d'être éjectés lors de l'interaction. L'atome ionisé a une énergie d'excitation égale à  $U_l$  qui va être dispersée sous forme de fluorescence ou par éjection d'un électron Auger. Le processus photoélectrique est d'autant plus important que le numéro atomique  $Z$  est élevé et l'énergie du photon est faible.

La probabilité d'interaction d'un photon avec un atome est donnée par la relation suivante :

$$\sigma_{pe} = \sigma_{th} \alpha^4 Z^2 4\sqrt{2} \left( \frac{E_0}{E_\gamma} \right)^{7/2} \quad (1.4)$$

avec :

- $\sigma_{th} = \frac{8}{3} \pi r_e^2 = 0,665$  b, la section efficace de Thomson,  $r_e = 2,28$  fm, le rayon classique de l'électron ;
- $\alpha = 1/137$ , la constante de structure fine ;
- $E_\gamma$  l'énergie du photon incident ;
- $E_0 = m_e c^2 = 511$  keV, l'énergie au repos de l'électron ;
- $Z$  le numéro atomique de l'atome cible ;

### 1.2.1.2 Effet Compton

L'effet Compton<sup>37</sup> [Compton 1923] consiste en la diffusion inélastique d'un photon sur un électron d'un atome. De façon pratique, cette diffusion est traitée comme

37. Arthur Holly Compton - Wooster 1892, Berkeley 1962



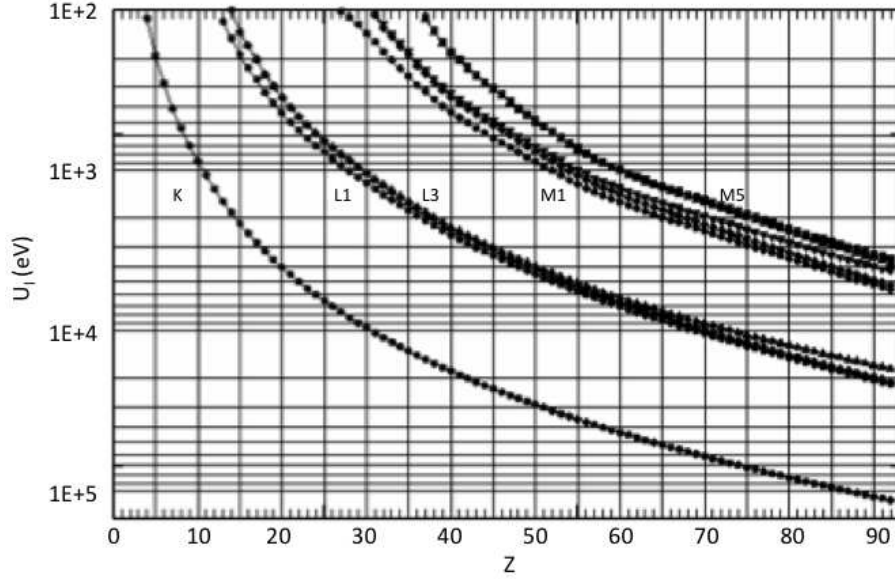


FIGURE 1.2 – Energie d'ionisation de certaines couches atomiques en fonction du numéro atomique  $Z$  [Lederer 1978].

une diffusion élastique d'un photon sur un électron quasi-libre. Cet effet est prédominant pour des photons d'énergie entre 30 keV à 20 MeV (Fig. 1.4) pour les matériaux légers. Le photon incident ne cède qu'une partie de son énergie à un des électrons des couches périphériques de l'atome, ce qui permet de considérer que l'électron avec lequel le photon interagit est libre. On peut alors écrire la relation entre l'énergie du photon incident  $E_\gamma$ , et l'énergie du photon diffusé  $E_\gamma'$  dans l'angle  $\theta$ ,  $T_e$  l'énergie de l'électron (Eq. 1.6) (avec  $\varepsilon = E_\gamma/m_e c^2$ ).

$$E_\gamma' = \frac{E_\gamma}{1 + \varepsilon(1 - \cos \theta)} \quad (1.5)$$

$$T_e = E_\gamma \frac{\varepsilon(1 - \cos \theta)}{1 + \varepsilon(1 - \cos \theta)} \quad (1.6)$$

La formule de Klein-Nishina<sup>38</sup> permet d'obtenir la section efficace différentielle par unité d'angle solide (Eq. 1.7) [Klein 1994], en fonction de l'énergie du photon incident  $E_\gamma$  et de l'angle  $\theta$  (Fig. 1.3).

$$\frac{d\sigma_{KN}(E_\gamma, \theta)}{d\Omega} = \frac{r_e^2}{2} \left( \frac{1 + \cos^2 \theta}{(1 + \varepsilon(1 - \cos \theta))^2} + \frac{\varepsilon^2(1 - \cos \theta)^2}{(1 + \varepsilon(1 - \cos \theta))^3} \right) \quad (1.7)$$

L'énergie de l'électron est rapidement dissipée dans la matière environnante, mais le photon Compton continue sa course, *i.e.* il a une probabilité importante de s'échapper. Dans la gamme d'énergie où cet effet est prédominant, la distribution

38. Yoshio Nishina - Satoshio 1890, Tokyo 1951

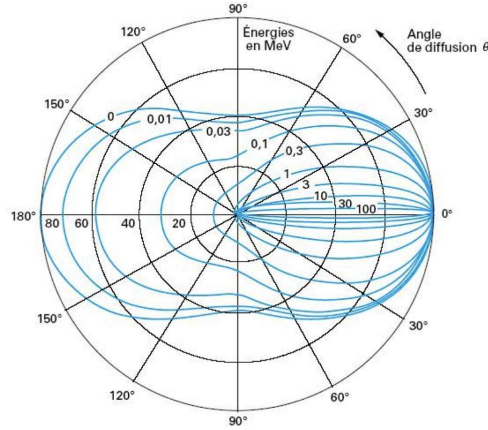


FIGURE 1.3 – Section efficace différentielle de l'effet Compton en fonction de l'énergie du photon incident et de l'angle de diffusion.

d'énergie dépend de la probabilité d'interaction avec les électrons et donc de la densité électronique du matériau, et donc de son nombre de charge  $Z$  (Eq. 1.8).

$$\sigma_c = 2\pi r_e^2 Z^2 \left( \frac{\varepsilon^2 + 2\varepsilon + 2}{2\varepsilon^3} \ln(1 + 2\varepsilon) + \frac{\varepsilon^3 + 9\varepsilon^2 + 8\varepsilon + 2}{\varepsilon^2(1 + 2\varepsilon)^2} \right) \quad (1.8)$$

On retrouve bien  $\lim_{\varepsilon \rightarrow 0} = \sigma_{th}$ .

### 1.2.1.3 Effet de création de paire

Aussi appelé effet de matérialisation, l'effet de création de paire consiste en la création d'une paire électron-positron ( $\gamma \rightarrow e^- + e^+$ ) lorsque le photon interagit dans le champ coulombien d'un noyau ou d'un électron. Le photon s'annihile dans cette création et son énergie est partagée de façon équivalente entre les deux particules (Eq. 1.9).

$$E_\gamma = E_{e^+} + E_{e^-} \quad (1.9)$$

Il existe donc une énergie minimale pour cet effet : deux fois la masse de l'électron soit, 1022 keV pour une interaction nucléaire (réaction  $\gamma\gamma \rightarrow e^+e^-$ ), ou quatre fois la masse de l'électron, soit 2044 keV pour une interaction électronique (réaction  $\gamma e^- \rightarrow e^+e^-e^-$ ). De plus, la conservation de la quantité de mouvement ( $p_{e^-} = -p_{e^+}$ ) permet de montrer que les deux particules produites sont émises à  $180^\circ$  l'une de l'autre dans le référentiel du centre de masse.

Cet effet n'est pas possible dans le vide car la conservation de l'énergie ne peut être satisfaite en même temps que la conservation de l'impulsion. C'est le voisinage d'un noyau, celui-ci récupérant une infime partie de l'énergie et de l'impulsion, qui permet les conservations. L'effet de production de paire s'accompagne de l'émission

de rayonnement : en fin de parcours, le positron produit s'annihile avec un électron du milieu en deux photons de 511 keV.

La section efficace de création de paire  $\sigma_p$  (Eq. 1.10) montre qu'elle varie en  $Z^2 \ln(E_\gamma)$ , et donc augmente avec le nombre de charge et l'énergie du photon, avec deux formes dépendant de l'énergie suivant que l'effet d'écran est à prendre en compte ou pas.

$$\sigma_p = \begin{cases} \alpha r_e^2 Z^2 \left[ \frac{28}{9} \ln\left(\frac{2E_\gamma}{E_0}\right) - \frac{218}{27} \right] & \text{si } 2E_0 \leq E_\gamma \leq \frac{E_0}{\alpha} Z^{-1/3} \\ \alpha r_e^2 Z^2 \left[ \frac{28}{9} \ln(183.Z^{-1/3}) - \frac{2}{27} \right] & \text{si } E_\gamma \geq \frac{E_0}{\alpha} Z^{-1/3} \end{cases} \quad (1.10)$$

#### 1.2.1.4 Autres interactions

##### Diffusion Thomson

Cette interaction contribue relativement peu au coefficient d'atténuation total. Elle concerne les photons de faible énergie qui diffusent sur un électron assez fortement lié à l'atome. Ainsi, c'est l'atome dans son ensemble qui absorbe le recul et le transfert d'énergie est alors négligeable : le photon ne perd pas d'énergie, mais change de direction. C'est une diffusion élastique.

##### Diffusion de Rayleigh

A l'instar de la diffusion Thomson, le photon ne perd pas d'énergie au cours du processus, mais subit seulement une déviation.

##### Photoproduction nucléaire

Un photon d'énergie supérieure à 10 MeV peut être capturé par le noyau et émettre ainsi un neutron (réaction  $(\gamma, n)$ ) ou un proton (réaction  $(\gamma, p)$ ). La probabilité de ces processus est cependant bien plus faible que celui de création de paire.

#### 1.2.1.5 Parcours et atténuation

De façon macroscopique, un flux de photons traversant un matériau suit une loi d'absorption en exponentielle, traduite par un coefficient d'absorption représentant la quantité de photon interagissant par unité de longueur traversée. Alors, avec  $\Phi_0$  le flux de photons incidents et  $\Phi(x)$  le flux après la traversée d'une épaisseur  $x$  de matériau, on peut écrire  $\Phi(x)$  en fonction d'un coefficient d'atténuation linéaire  $\mu_l$ , d'un coefficient d'atténuation massique  $\mu_m$ , ou de la section efficace totale macroscopique  $\Sigma = N.\sigma$ , avec  $N$  le nombre d'atomes cibles par unité de volume :

$$\Phi(x) = \begin{cases} \Phi_0 e^{-\mu_l x} \\ \Phi_0 e^{-\mu_m \rho x} \\ \Phi_0 e^{-\Sigma x} \end{cases} \quad (1.11)$$

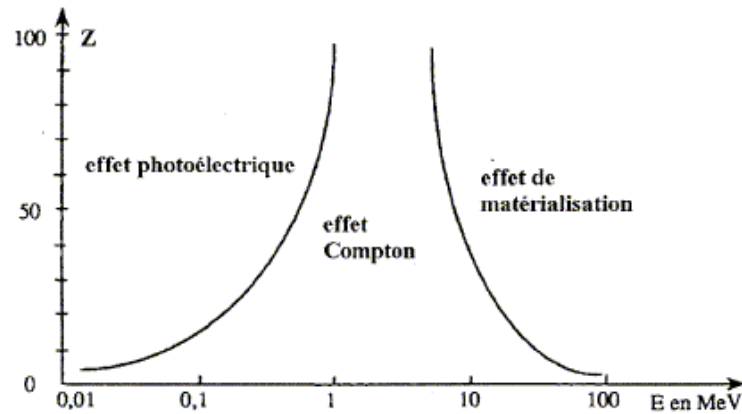


FIGURE 1.4 – Prédominance des interactions photon-matière en fonction du numéro atomique et de l'énergie des photons.

Enfin, les coefficient d'atténuation linéique des matériaux (Eq. 1.11) peuvent s'écrire en fonction des l'équation des types d'interaction (Eq. 1.12), donc ces coefficient dépendent bien des prédominances des effets liées aux énergie (Fig. 1.4).

$$\Sigma = \frac{\rho \mathcal{N}_A}{M} (\sigma_{pe} + \sigma_c + \sigma_p) \quad (1.12)$$

avec

- $\rho$  la masse volumique ;
- $\mathcal{N}_A$  le nombre d'Avogadro ;
- $M$  la masse molaire du matériau.

### 1.2.2 Interaction des particules chargées

Nous nous intéressons ici aux particules issues de désintégrations radioactives  $\alpha$  et  $\beta$ . Nous allons donc dans un premier temps étudier ces deux types de particules avant d'en détailler les interactions.

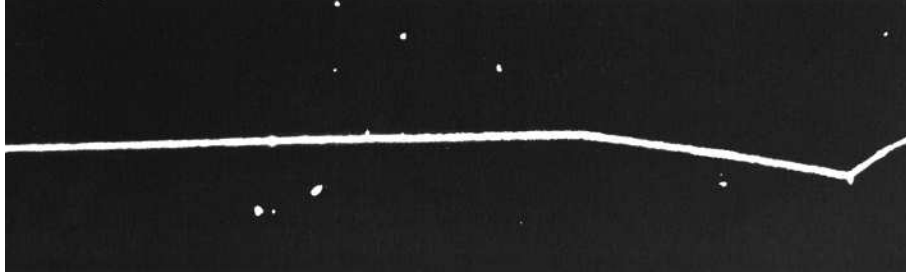
1.2.2.1 Les particules  $\alpha$ 

FIGURE 1.5 – Double déflexion d'un  $\alpha$  par collision avec les noyaux du gaz dans une chambre à brouillard.

La décroissance  $\alpha$  traduit la transformation d'un noyau  ${}^A_Z\text{X}$  en un noyau fils  ${}^{A-4}_{Z-2}\text{Y}$  avec émission d'un noyau d'hélium. La figure 1.5 illustre le trajet d'un  $\alpha$  dans une chambre à brouillard



C'est une réaction qui concerne des noyaux lourds : l'énergie de liaison de la particule  $\alpha$  dans le noyau doit être négative pour que la réaction soit spontanée (Fig. 1.6).

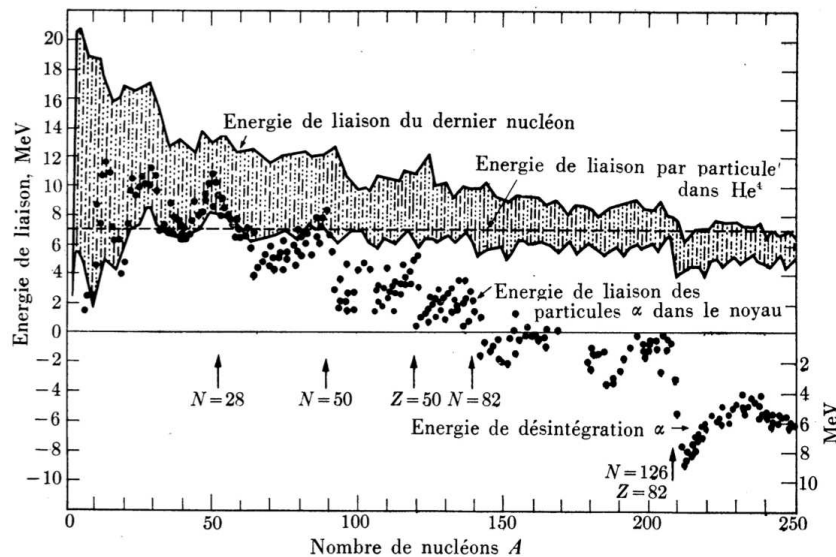


FIGURE 1.6 – Energies de liaison en fonction du nombre de nucléons.

Dans une transformation radioactive, masse et énergie sont conservées, de telle sorte que l'énergie libérée est équivalente à la perte de masse. La chaleur de la

réaction  $Q$  s'écrit alors :

$$Q = (M_{\text{père}} - M_{\text{fils}} - M_{\alpha})c^2 \quad (1.14)$$

Cette énergie est partagée entre le noyau fils et l' $\alpha$ . Cependant, ce dernier en emporte la quasi totalité sous forme d'énergie cinétique du fait de la différence des masses. Dans le cas du  $^{226}\text{Ra}$ , cette énergie vaut  $Q_{^{226}\text{Ra}} = 4,87063(25)\text{MeV}$ . Cinq émissions  $\alpha$  différentes sont possibles (Fig. 1.7), emportant de 98,2% de l'énergie de réaction pour l' $\alpha_{0,0}$ , le plus probable, à 85,4% pour le moins probable. Il y a donc une énergie de recul du noyau fils, à concurrence de l'excitation, qui pour retourner à l'état fondamental émet des  $\gamma$ , rayonnement électromagnétique signant une désexcitation nucléaire.

Le noyau fils, à l'instar d'un canon envoyant son obus, prend une partie de l'énergie. Celle-ci peut être définie par l'équation suivante, semblable à celle en mécanique du point :

$$E_{\text{recul}} = \frac{M_{\alpha}}{M_{\text{fils}}}Q_{\alpha} \quad (1.15)$$

L'énergie d'une transition est alors la somme de l'énergie de recul  $E_{\text{recul}}$  et de l'énergie emportée par l' $\alpha$   $E_{\alpha}$ . De plus, il existe aussi une énergie minimale de réaction, n'étant possible que si  $Q_{\alpha} > 0$  (Eq. 1.16). En écrivant cette réaction en terme d'énergie de liaison  $B$ , on trouve :

$$Q_{\alpha} = B_{\alpha} - B(A, Z) + B(A - 4, Z - 2) \quad (1.16)$$

avec  $B_{\alpha} = 28,3 \text{ MeV}$ .

L'équation de Bethe et Weizsäcker exprime l'énergie de liaison  $B(A, Z)$  en fonction des numéros atomique :

$$B(A, Z) = a_v A - a_s A^{2/3} - a_c \frac{Z^2}{A^{1/3}} - a_a \frac{(A - 2Z)^2}{A} \pm \delta(A, Z) \quad (1.17)$$

avec  $\delta(A, Z)$  est l'énergie d'appariement :

$$\delta(A, Z) = \begin{cases} 0 & \text{pour } A \text{ impair} \\ -12/\sqrt{A} & \text{pour } Z \text{ pair et } A-Z \text{ impair} \\ -12/\sqrt{A} & \text{pour } Z \text{ et } A-Z \text{ impairs} \end{cases} \quad (1.18)$$

La littérature fournit certains des coefficients  $a$ , par exemple  $a_v = 15,9 \text{ MeV}$ ,  $a_s = 18,0 \text{ MeV}$ ,  $a_c = 0,7 \text{ MeV}$  déterminé par Green.

On peut calculer les conditions pour  $Q_{\alpha} > 0$  avec un noyau symétrique ( $A = 2Z$ ). Ceci permet donc de montrer que  $A$  doit être supérieur à 100 pour que d'un point de vue énergétique une particule  $\alpha$  puisse exister. En tenant compte de la ligne de stabilité des noyaux,

$$Z = \frac{A}{2 + 0,015A^{2/3}} \quad (1.19)$$

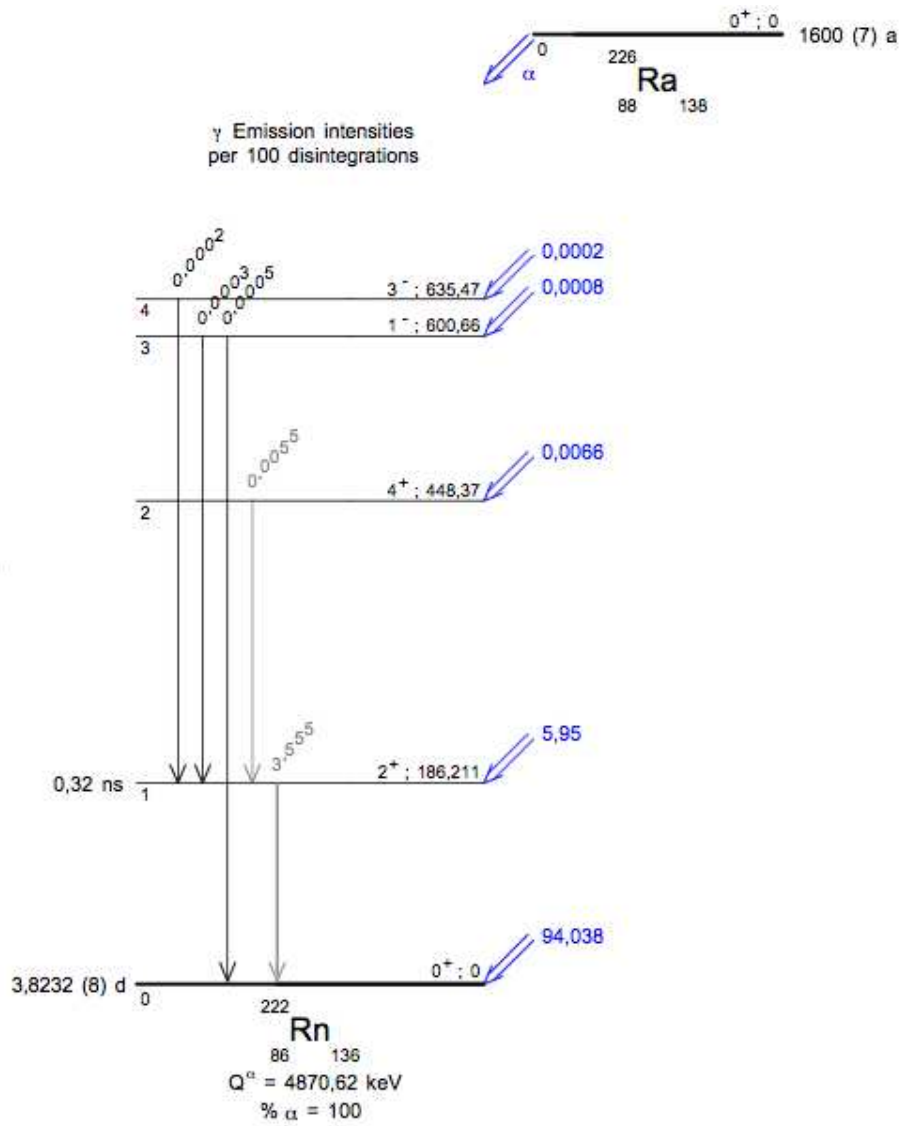


FIGURE 1.7 – Schéma de décroissance du  $^{226}\text{Ra}$  [CEA 1999].

on montre que le nombre de masse doit être supérieur à 120, ainsi que nous l'avons vu précédemment (Fig. 1.6).

Les mesures expérimentales montrent que la période radioactive des émetteurs  $\alpha$  est comprise entre  $10^{-7}$  s et  $10^8$  ans, avec une énergie de l' $\alpha$  émis de 1,8 MeV à 9,68 MeV. A partir de différents émetteurs naturels (U, Th, Ra, Ac), une relation a été établie entre le parcours de la particule  $\alpha$  dans l'air et la période de l'émetteur :  $\ln \lambda_\alpha = c_1 + c_2 \ln R_\alpha$ . La loi d'échelle permet de connaître le parcours d'un  $\alpha$  dans un matériau en connaissant son parcours dans l'air ( $R_\alpha$  (cm) = 0,32  $E_\alpha^{3/2}$  (MeV)). On en déduit une relation entre l'énergie de la particule émise et la période radioactive de l'élément émetteur (Fig. 1.8), de la forme  $\ln \lambda_\alpha = c_3 + c_4 \ln E_\alpha$ .

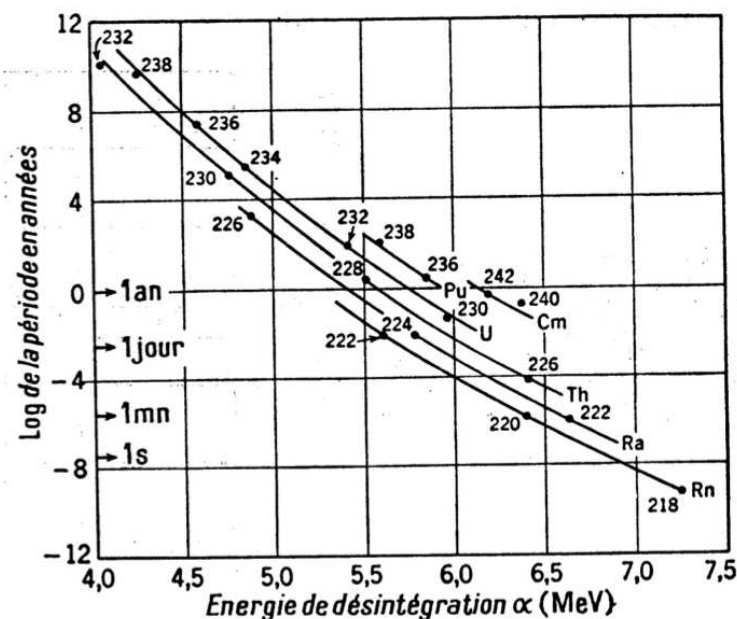


FIGURE 1.8 – Relation entre l'énergie de la particule  $\alpha$  émise avec la période de l'émetteur.

Cependant, différentes expériences ont montrées que des  $\alpha$  de 8,57 MeV sont diffusés élastiquement par des noyaux d'uranium, ce qui montre que le potentiel coulombien s'approche jusqu'à 33 fm du centre du noyau, avec une hauteur de l'ordre de 25 MeV. Or, un  $\alpha$  a une énergie de quelques MeV<sup>39</sup>, et donc le noyau devrait avoir un rayon de l'ordre de 66 fm pour que l' $\alpha$  puisse être éjecté. La théorie classique, en contradiction avec les expériences, ne permet pas d'expliquer correctement les interactions nucléaires (Fig. 1.9). Depuis 1913 une autre mécanique existe, et elle permet la description de l'infiniment petit.

De façon classique, une particule  $\alpha$  libérée sans énergie cinétique subira de la part du noyau une répulsion coulombienne, et donc son énergie cinétique doit être

39. <sup>238</sup>U,  $E(\alpha_{0,0}) = 4,2697$  (7) MeV [CEA 1999]



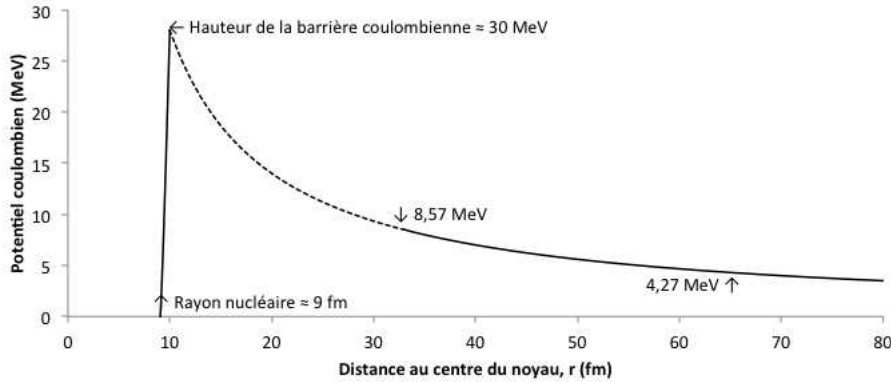


FIGURE 1.9 – Schéma de la barrière de potentiel [Evans 1961]. Les 8,57 MeV correspondent à l'énergie de la particule historiquement bombardée sur le noyau qui ne l'atteint pas, et les 4,27 MeV correspondent à l'énergie de l' $\alpha$  émis par l'atome bombardé.

égale à celle du potentiel électrostatique  $2Ze^2/(4\pi\epsilon_0 r)$ , avec  $r$  le rayon nucléaire classique. Nous avons vu qu'une description classique ne suffit pas à expliquer entièrement la désintégration  $\alpha$ . En 1928, Gamow<sup>40</sup> propose d'utiliser la mécanique ondulatoire dont la formulation est tout juste achevée pour décrire le phénomène d'émission  $\alpha$ , et interprète ainsi l' $\alpha$  comme une particule préexistante au sein du noyau, franchissant la barrière coulombienne par effet tunnel.

Il nous faut donc utiliser l'équation de Schrödinger<sup>41</sup>, qui dans le cas d'un problème à deux corps peut se ramener à un problème à un corps dans le référentiel du centre de masse, par analogie à la mécanique classique, dépendante d'un potentiel radial  $U(r)$ , avec  $\mu$  la masse réduite et  $r$  variant de 0 à  $+\infty$ .

$$\left[ -\frac{\hbar^2}{2\mu} \left( \frac{d^2}{dr^2} + \frac{2}{r} \frac{d}{dr} \right) + U(r) - Q_\alpha \right] \Psi(r) = 0 \quad (1.20)$$

La résolution de cette équation dans le cas d'un puits de potentiel carré donne trois solutions  $\Psi_i(r)$ , une par zone pour solution une onde incidente, une onde réfléchiée et une onde transmise. Il y a donc une probabilité non nulle qu'une particule franchisse une barrière de potentiel.

$$\begin{cases} \Psi_1 = \frac{A}{r} e^{ik_1 r} + \frac{B}{r} e^{-ik_1 r} \\ \Psi_2 = \frac{C}{r} e^{k_2 r} + \frac{D}{r} e^{-k_2 r} \\ \Psi_3 = \frac{F}{r} e^{ik_3 r} \end{cases} \quad (1.21)$$

40. George Anthony Gamow - Odessa 1904, Boulder 1968

41. Erwin Schrödinger - Vienne 1887, Vienne 1961

en définissant

$$\begin{cases} k_1 = k_3 = \sqrt{\frac{2\mu}{\hbar^2} Q_\alpha} \\ k_2 = \sqrt{\frac{2\mu}{\hbar^2} (H_b - Q_\alpha)} \end{cases} \quad (1.22)$$

avec

- $\mu$  la masse réduite ;
- $H_b$  la hauteur de la barrière.

La continuité aux limites permet de déterminer les différents coefficients, sachant que ce qui aurait dû être le dernier membre de  $\Psi_3$  (correspondant à  $e^{-ik_3r}$ ) est éliminé d'office car non convergent en  $r \rightarrow \infty$ . La probabilité de transmission à travers la barrière s'écrit donc :

$$T = \frac{|F|^2}{|A|^2} = e^{-G} \quad (1.23)$$

avec  $G = \frac{2a}{\hbar} \sqrt{2\mu(H_b - Q_\alpha)}$  le facteur de Gamow et  $a (\gg 1/k_2)$  l'épaisseur de la barrière.

Dans le cas d'une barrière plus complexe, comme de type coulombien, on peut faire l'approximation d'une succession de barrière rectangulaire. La méthode la méthode Wentzel-Kramers-Brillouin (WKB) [Evans 1961] permet de résoudre l'équation de Schrödinger et d'en extraire un coefficient de transmission de la forme  $T \approx e^{-G}$ .

La constante de désintégration  $\alpha$  du noyau père peut s'écrire comme le produit de trois termes  $\lambda = P_F \cdot P_C \cdot P_T$ , telle que :

- $P_F$  : la probabilité de préformation de  $\alpha$  dans le noyau parent ( $P_F = 1$ ) ;
- $P_C$  : la fréquence à laquelle l' $\alpha$  heurte la barrière ( $P_C = \frac{v}{2R}$ ), avec  $v$  sa vitesse et  $R$  le rayon du noyau ;
- $P_T$  : la probabilité de transmission ( $P_T = e^{-G}$ ).

On a alors  $\lambda_\alpha = \frac{v}{2R} e^{-G} = \lambda_0 e^{-G}$ , avec  $\lambda_0$  la constante de désintégration réduite, de l'ordre de  $10^{-22} \text{ s}^{-1}$ .

### 1.2.2.2 Les particules $\beta$

La radioactivité  $\beta$  cache deux aspects, l'électron (Fig. 1.10) de charge négative  $e^-$ , et le positron de charge opposée  $e^+$ . Ce type de réaction est particulier car les mesures des énergies des  $\beta$  montrent qu'elles se distribuent de façon continue, entre 0 et une valeur maximale. Confronté à la continuité du spectre en énergie des désintégrations  $\beta$ , Wolfgang Pauli « invente » une nouvelle particule. Celle-ci fait que la réaction se fait à trois corps qui se partagent l'énergie de la réaction : le noyau fils, le  $\beta$  émis et un troisième qui permet d'expliquer la continuité du spectre en énergie. Ce dernier est l'anti-partenaire correspondant au lepton émis de façon à assurer la conservation du nombre leptonique dans la réaction et de charge nulle par conservation de la charge. Son nom, donné par Enrico Fermi<sup>42</sup> en 1933 en

42. Enrico Fermi - Rome 1901, Chicago 1954

l'incorporant à la théorie de l'interaction faible : le neutrino (petit neutre). Pauli dira à ce sujet avoir [...] *fait une chose terrible : j'ai postulé une particule qui ne peut être détectée*. Il n'a d'ailleurs été vu pour la première fois qu'en 1956 par Reines et Cowan à Savannah River auprès d'un réacteur nucléaire, en réalisant une réaction  $\beta$  inverse.

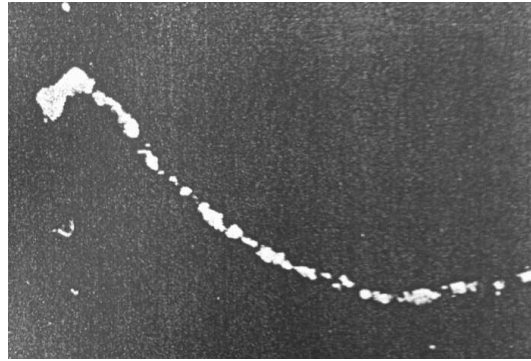


FIGURE 1.10 – Photographie d'une chambre à brouillard dans laquelle le trajet d'un  $\beta$  est visible, courbé par un champ magnétique externe.

La décroissance  $\beta^-$  est la transformation d'un neutron (instable) en un proton avec émission d'un électron et d'un antineutrino électronique. Elle est valable pour le neutron isolé qui est instable ( $\tau_{1/2} = 886,8$  s), et pour certains noyaux.



La décroissance  $\beta^+$  quant à elle est le symétrique de celle  $\beta^-$ . Elle transforme un proton du noyau en un neutron avec émission d'un positron et d'un neutrino électronique, exclusivement au sein d'un noyau, le proton étant stable.



Le neutrino est un lepton neutre, associé à chaque lepton chargé ( $e$  et  $\nu_e$ ,  $\mu$  et  $\nu_\mu$ ,  $\tau$  et  $\nu_\tau$ ). Ces particules élémentaires ne subissent pas l'interaction forte qui assure la cohésion du noyau. De nombreuses questions se posent encore sur cette particule élémentaire quant à sa masse (de combien très faible?) et son moment magnétique (en a-t-il un?) (Tab. 1.1).

A la différence de la réaction  $\beta^-$ , il y a émission de deux photons de 511 keV chacun du fait de la désintégration d'un positronium formé en fin de parcours du positron dans la matière.

Un rayonnement  $\beta$  ne peut exister que si l'énergie disponible est suffisante, c'est-à-dire si le noyau père  ${}^A_Z X$ , a une masse supérieure à celle du noyau fils  ${}^A_{Z\pm 1} Y$  et de l'électron.

Neutrino	Masse (eV)	Moment magnétique (MeV/T)	section efficace par nucléon à 1 GeV (b)
$\nu_e$	$< 2$	$< 5,8 \cdot 10^{-20}$	
$\nu_\mu$	$< 190 \cdot 10^3$	$< 4,3 \cdot 10^{-20}$	$10^{-14}$
$\nu_\tau$	$< 18,2 \cdot 10^6$	$< 3,1 \cdot 10^{-27}$	

TABLE 1.1 – Masse, moment magnétique et section efficace des neutrinos [Beringer 2012].

On considère la masse du neutrino comme nulle. La réaction n'étant possible que pour  $Q_\beta > 0$ , le neutron libre est émetteur  $\beta^-$  ( $Q_\beta = 0,78$  MeV), tandis que le proton libre est stable ( $Q_\beta < 0$ ). Le processus élémentaire de la réaction  $\beta^+$  (Eq. 1.25) n'est possible que pour des noyaux satisfaisant l'équation  $Q_\beta > 0$ . Cette radioactivité  $\beta$  n'est donc limitée ni en A, ni en Z, mais dans la proportion du nombre de charge par rapport au nombre de masse.

En négligeant la différence d'énergie de liaison des atomes  ${}^A_Z X$  et  ${}^A_{Z-1} Y$  [Valentin 1995], on peut écrire en terme de bilan de masse atomique les équations :

$$Q_{\beta^-} = (M(A, Z) - M(A, Z + 1))c^2 \quad (1.26)$$

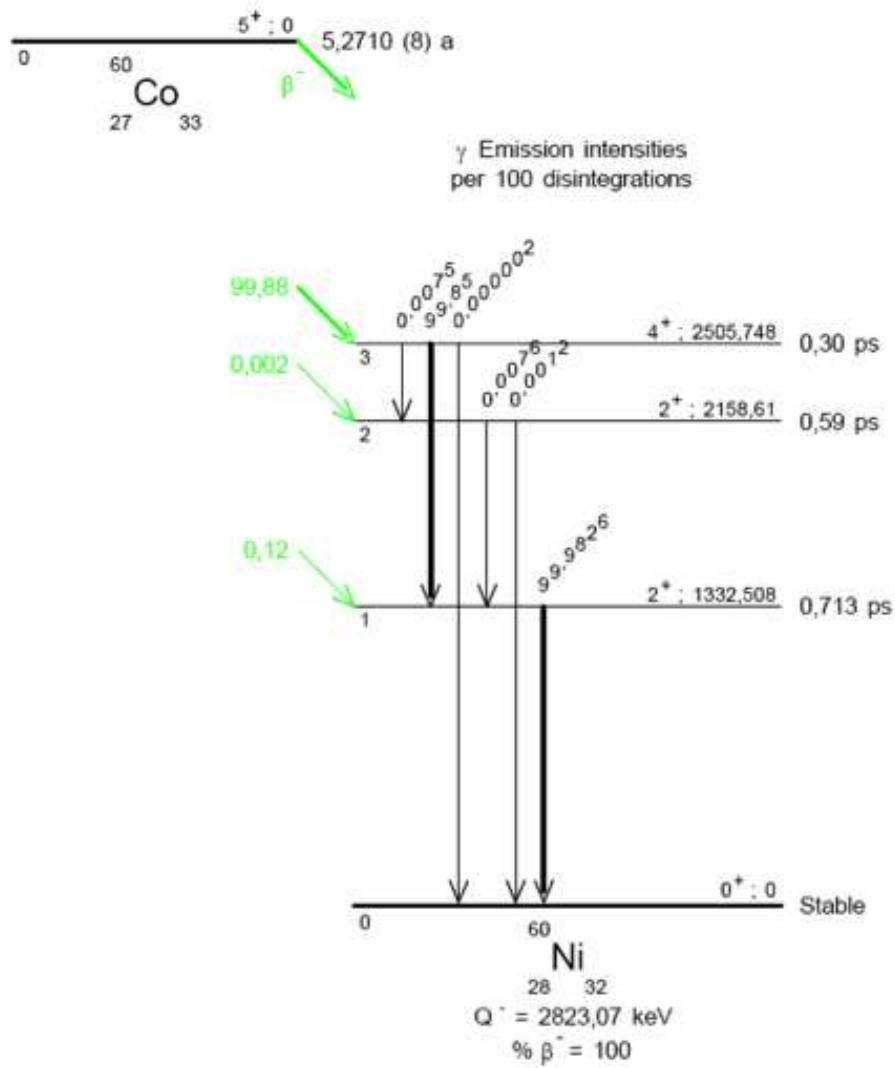
$$Q_{\beta^+} = (M(A, Z) - M(A, Z - 1) - 2m_e)c^2 \quad (1.27)$$

On néglige ici aussi les réarrangements du cortège électronique car une émission  $\beta$  forme un ion. Cependant, l'atome redevient neutre en un temps très court, de l'ordre de  $10^{-12}$  s [Valentin 1995]. On a aussi une certaine énergie de recul du noyau fils, ainsi qu'une excitation, qui pour retourner à l'état fondamental émet des  $\gamma$ , rayonnement électromagnétique signant une désexcitation nucléaire.

Une transition  $\beta$  ne va pas toujours vers le niveau fondamental du noyau fils, ici à 98% vers le troisième niveau excité du  ${}^{60}\text{Ni}$  pour la désintégration du  ${}^{60}\text{Co}$  (Fig. 1.11).

Par rapport à des transitions  $\alpha$ , les transitions  $\beta$  sont lentes [Valentin 1995], c'est-à-dire que dans des situations comparables (en intensité moyennée dans le volume de désintégration), l'interaction faible a une intensité beaucoup plus faible que l'interaction électromagnétique, d'où son nom ; si faible que le modèle de Fermi, qui pourtant rend correctement compte des périodes radioactives, est basé sur une interaction ponctuelle. Ce n'est que près de trente ans plus tard que S. L. Glashow<sup>43</sup> propose un modèle unifiant les théories électromagnétique et faible, sous le nom d'interaction électrofaible. Les transitions  $\beta$  sont depuis

43. Seldon Lee Glashow - New York 1932

FIGURE 1.11 – Schéma de décroissance du  $^{60}\text{Co}$  [CEA 1999].

vues comme un changement de saveur d'un quark d'un nucléon du noyau (Fig. 1.12).

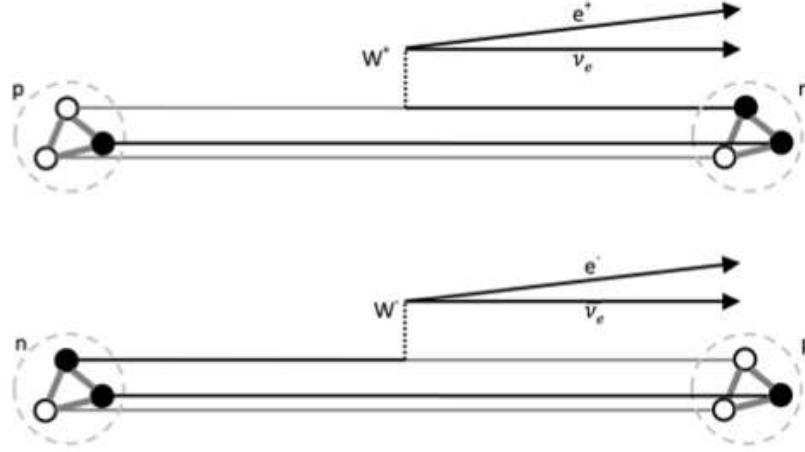


FIGURE 1.12 – La désintégration  $\beta^-$  est le résultat de la transformation d'un neutron (udd) du noyau en un proton (uud) en passant par le boson  $W^-$ . La désintégration  $\beta^+$  est le résultat de la transformation d'un proton (uud) du noyau en un neutron (udd) en passant par le boson  $W^+$ .

La forme du spectre  $\beta$  est, on l'a vu, continue sur une plus ou moins grande plage d'énergie. Cependant, la répartition dans toute cette plage n'est pas équiprobable.

Nous savons que lors d'une transition  $\beta$ , l'énergie de la réaction est partagée entre les deux leptons produits et le recul du noyau fils. Or, à l'instar des transitions  $\alpha$  où plusieurs voies de passage sont possible, chacune ayant une certaine probabilité, les transitions  $\beta$  aussi ont plusieurs voies. Cependant, autant dans un spectre  $\alpha$  d'une source on observerait plusieurs raies, dans un spectre  $\beta$  c'est la forme du spectre qui évolue.

La désintégration  $\beta$  est une interaction entre le noyau et le champ de la paire  $(\beta^-, \bar{\nu}_e)$  ou  $(\beta^+, \nu_e)$ . Le passage de l'état initial ( $|i\rangle$ ) à l'état final ( $|f\rangle$ ) a pour constante de désintégration :

$$\lambda = \frac{2\pi}{\hbar} |H_{if}|^2 \rho(E) \quad (1.28)$$

avec

$$\rho(E) = \frac{dN_\beta dN_\nu}{dE} \quad (1.29)$$

le nombre d'états quantiques du système final par unité d'énergie cinétique totale libérée lors de la transition, et  $H_{if}$  l'élément de matrice de la transition, tel que

$$H_{if} = \sum_{j=1}^N \int \int \int \Psi_f^*(\vec{r}_1, \dots, \vec{r}_N) \Psi_\beta^*(\vec{r}_j) \Psi_\nu^*(\vec{r}_j) G_F \Psi_i(\vec{r}_1, \dots, \vec{r}_N) d\tau \quad (1.30)$$

avec :

- $\Psi_i$  : fonction d'onde du noyau père ;
- $\Psi_f$  : fonction d'onde du noyau fils ;
- $\Psi_\beta$  : fonction d'onde de la particule  $\beta$  émise ;
- $\Psi_\nu$  : fonction d'onde du neutrino émis ;
- $G_F$  : constante de Fermi (intensité de l'interaction faible) <sup>44</sup>

En négligeant le spin des leptons, on a :

$$\begin{aligned}\Psi_\beta &= \frac{1}{\sqrt{V}} e^{i\vec{k}_\beta \vec{r}} \\ \Psi_\nu &= \frac{1}{\sqrt{V}} e^{i\vec{k}_\nu \vec{r}}\end{aligned}\quad (1.31)$$

avec  $V$  le volume de normalisation et  $\vec{k} = \vec{p}/\hbar$ . En faisant l'approximation des longueurs d'onde qui à 1 MeV sont très supérieures aux dimensions nucléaires, i.e.  $(\vec{k}_\beta + \vec{k}_\nu) \cdot \vec{r} \ll 1$ , on obtient  $\Psi_\beta^*(\vec{r})\Psi_\nu^*(\vec{r}) \approx 1/V$ . L'élément de matrice de la transition peut alors se simplifier en  $H_{if} = G_F M_{if}/V$ , avec  $M_{if}$  le recouvrement des fonctions d'onde de l'état final et initial du noyau.

Dans un second temps, il faut prendre en compte les interactions coulombiennes entre le  $\beta$  et le noyau. On introduit dans l'équation un facteur coulombien, aussi appelé facteur de Fermi (Fig. 1.13), et l'élément de matrice de la transition s'écrit alors  $|H'_{if}|^2 = |H_{if}|^2 F(Z, E)$ , avec  $F$  le facteur de Fermi :

$$F(Z, E) = \frac{2\pi\eta}{1 - e^{-2\pi\eta}} \begin{cases} \eta_{\beta^-} = \frac{Ze^2}{4\pi\epsilon_0\hbar v} \\ \eta_{\beta^+} = -\frac{Ze^2}{4\pi\epsilon_0\hbar v} \end{cases}\quad (1.32)$$

Nous allons maintenant calculer la densité d'énergie. Pour cela, nous allons considérer un volume  $V$ , cubique de côté  $L$ . Les fonctions d'ondes s'écrivent alors  $\psi = A \sin(k_x x) \sin(k_y y) \sin(k_z z)$ . Les conditions aux limites imposent  $kL = n\pi$ , alors l'impulsion est de la forme  $p^2 = (k_x^2 + k_y^2 + k_z^2)\hbar^2$ , avec  $n$  le nombre d'état d'impulsion du lepton à une valeur associée de  $p$ , tel que  $n_{max} = pL/\pi\hbar$ . Le nombre  $N_n$  d'états d'impulsion inférieurs à  $p$  est :

$$N_n = \frac{1}{8} \frac{4}{3} \pi \left(\frac{pL}{\pi\hbar}\right)^3 = \frac{Vp^3}{6\pi^2\hbar^3}\quad (1.33)$$

En différentiant  $N_n$  le nombre d'états d'impulsion inférieur  $p$ , nous obtenons le nombre d'état d'impulsion compris entre  $p$  et  $p + dp$  :

$$dN_n = \frac{Vp^2}{2\pi^2\hbar^3} dp\quad (1.34)$$

Cette relation est aussi valable pour les neutrinos, avec une impulsion  $q$ . La forme du spectre d'impulsion des électrons correspond à la probabilité partielle pour cet électron d'avoir une impulsion entre  $p$  et  $p + dp$ , avec un changement de variable

<sup>44</sup>  $G_F$  : Constante de Fermi (intensité de l'interaction faible) ( $G_F/(\hbar c)^3 = 1,166\ 37(1) \cdot 10^{-5}$  GeV. $V^{-2}$ )

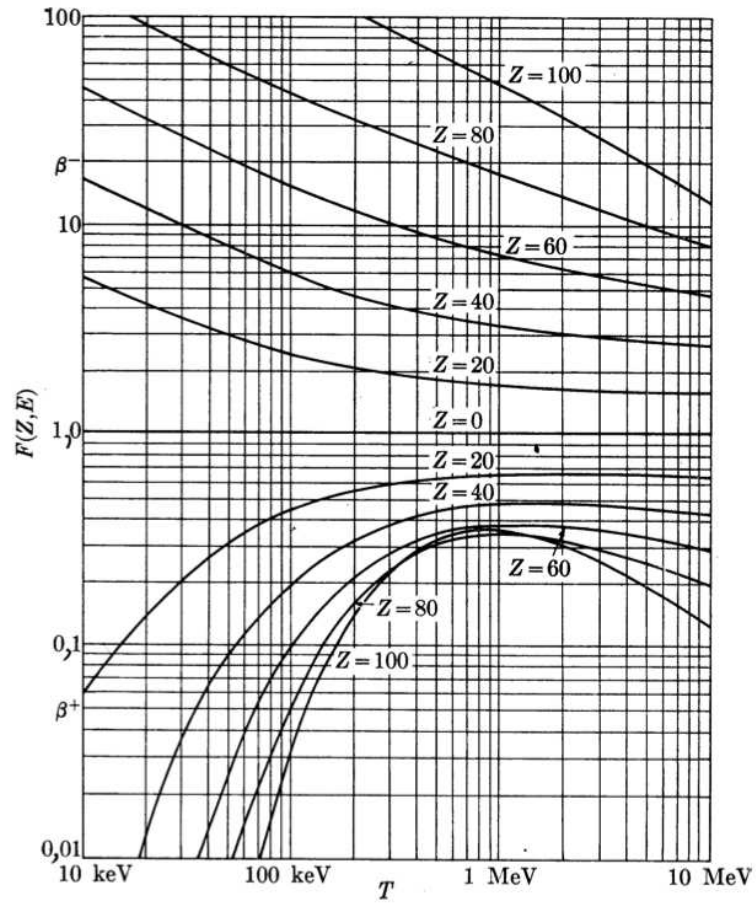


FIGURE 1.13 – Fonctions de Fermi pour différents noyau en fonction de l'énergie cinétique du  $\beta$ . Les transitions  $\beta^-$  ont un facteur supérieur à 1, tandis qu'il est inférieur à 1 pour les transition  $\beta^+$ .



$E_\beta + E_\nu = E_{\beta_{\max}}$ . La probabilité totale dans  $[p_\beta, p_\beta + dp_\beta]$ , en faisant l'approximation d'une masse de neutrino nulle, est :

$$P(p_\beta)dp_\beta = \lambda_e dN = \frac{G_F^2 |M_{if}|^2}{2\pi^3 \hbar^7 c^3} p_\beta^2 F(Z_Y, E_\beta) (E_{\beta_{\max}} - E_\beta)^2 dp_\beta \quad (1.35)$$

Le spectre  $\beta$  est principalement déterminé par  $(E_{\beta_{\max}} - E_\beta)^2$ , soit une forme parabolique.

De plus,  $H_{if}$  (Eq. 1.28) contient deux opérateurs, un scalaire et un pseudovecteur permettant de décrire aux différents ordres la réaction. Le premier correspond aux transitions de Fermi, sans changement de spin au premier ordre, et le second permet un changement de spin au premier ordre, ce sont les transitions type Gamow-Teller<sup>45</sup>. On définit alors plusieurs types de transition en fonction des valeurs des nombres quantiques orbital  $l$ , de spin  $s$  et par la parité  $\pi$ .

$$\begin{aligned} \pi_i &= \pi_f (-1)^{l_{\beta,\nu}} \\ \vec{I}_i &= \vec{I}_f + \vec{l}_{\beta,\nu} + \vec{s}_{\beta,\nu} \end{aligned} \quad (1.36)$$

Transition	Fermi				Gamow-Teller			
	l	s	$\uparrow\downarrow$ $\pi$	l+s	l	s	$\uparrow\uparrow$ $\pi$	l+s
Permise	0	0	$\pi_i = \pi_f$	0	0	1	$\pi_i = \pi_f$	1
Interdite 1 <sup>ier</sup> ordre	1	0	$\pi_i = -\pi_f$	1	1	1	$\pi_i = -\pi_f$	2
Interdite 2 <sup>ième</sup> ordre	2	0	$\pi_i = \pi_f$	2	2	1	$\pi_i = \pi_f$	3
Interdite 3 <sup>ième</sup> ordre	3	0	$\pi_i = -\pi_f$	3	3	1	$\pi_i = -\pi_f$	4
Interdite 4 <sup>ième</sup> ordre	4	0	$\pi_i = \pi_f$	4	4	1	$\pi_i = \pi_f$	5
Interdite 5 <sup>ième</sup> ordre	5	0	$\pi_i = -\pi_f$	5	5	1	$\pi_i = -\pi_f$	6

TABLE 1.2 – Classification des transitions  $\beta$ .

Pour  $s$  nul, les spins de l'électron et de l'antineutron sont anti-parallèles : la transition est permise. Dans le cas où les spins sont parallèles, les transitions sont dites interdites (Tab. 1.2). On peut distinguer au sein des transitions permises les transitions super-permises comme  $^{14}\text{O} \rightarrow ^{14}\text{N} + \beta^+ + \nu$  et les permises comme  $^{35}\text{Se} \rightarrow ^{35}\text{Cl} + \beta^- + \bar{\nu}$ . Ces transitions super-permises concernent celles qui ont lieu entre deux état du même triplet d'isospin.

### 1.2.2.3 Transferts d'énergie

Lors de leur passage dans la matière les particules chargées perdent leur énergie par des collisions élastiques et inélastiques avec les électrons et les noyaux du milieu. La perte d'énergie totale le long d'un parcours est donc la somme des

45. Edward Teller - Budapest 1903, Stanford 2003

pouvoirs d'arrêts électronique et nucléaire, illustrée par le figure pour les  $\alpha$  dans l'air.

L'interaction avec le milieu se compose d'un très grand nombre de choc et d'autant de changement de direction, chacun avec un petit transfert d'énergie. Les interactions des particules lourdes chargées sont principalement de quatre sortes :

1. **Diffusion élastique sur un noyau.** La particule incidente est déviée tout en conservant son énergie : il n'y a ni émission de rayonnement, ni excitation ;
2. **Diffusion inélastique sur un noyau.** La particule est déviée et peut rayonner (Bremsstrahlung) et exciter le noyau ;
3. **Diffusion élastique sur un électron.** A l'instar de la diffusion sur un noyau, la particule est simplement déviée. Par contre cette réaction n'est possible qu'à faible énergie ( $\leq 100$  keV) ;
4. **Diffusion inélastique sur un électron.** Phénomène le plus probable, il est fonction de l'énergie incidente et engendre soit une excitation, soit une ionisation du milieu. Des particules secondaires peuvent être créées, qui peuvent ioniser à leur tour la matière (électron  $\delta$ ).

Chaque matériau vis-à-vis d'une particule chargée est caractérisé par son pouvoir d'arrêt total. Dans la gamme d'énergie qui nous intéresse ( $< 10$  MeV), celui-ci est donné par les formules de Bethe et Bloch :

- particules chargées lourdes (protons,  $\alpha$ , muons, ...) :

$$-\frac{dE}{dx} = 4\pi r_e^2 z^2 \frac{E_0}{\beta^2} NZ \left[ \ln \left( \frac{2E_0}{I} \beta^2 \gamma^2 \right) - \beta^2 \right] \quad (1.37)$$

- particules légères (électrons, positrons) :

$$-\frac{dE}{dx} = 4\pi r_e^2 \frac{E_0}{\beta^2} NZ \left[ \ln \left( \frac{\beta \gamma \sqrt{\gamma - 1}}{I} E_0 \right) + TC(\gamma) \right] \quad (1.38)$$

avec :

- $\gamma$  le facteur de Lorentz ( $\gamma = 1/\sqrt{1 - \beta^2}$ ) ;
- $\beta$  est la vitesse relative ( $\beta = v/c$ ) ;
- $I$  le potentiel d'ionisation du matériau (eV), approché par  $I = 10.Z$  (Bloch) ou bien :

$$I = \begin{cases} (12 + 7/Z)Z & Z \leq 12 \\ (9,76 + 58,8.Z^{-1,19})Z & Z \geq 13 \end{cases} \quad (1.39)$$

- $TC$  des termes correctifs supplémentaires.

La perte d'énergie le long du parcours  $dx$  dans un matériau constitué de  $N$  composants dans une proportion  $m_i$ , est donné par la loi de Bragg (Eq. 1.40).

$$\left( \frac{dE}{dx} \right)_{\text{matériau}} = \sum_i^N m_i \left( \frac{dE}{dx} \right)_i \quad (1.40)$$

La perte d'énergie est fonction de la distance de pénétration d'une particule dans la matière. Comme la particule perd une fraction de son énergie à chaque

choc, en moyenne à chaque libre parcours moyen, la particule ne perd pas la même quantité d'énergie à chaque fois : elle est beaucoup plus ionisante vers la fin de sa trajectoire (Pic de Bragg). Cette propriété est utilisée dans le domaine médical où cette capacité des particules chargées à déposer la quasi-totalité de leur énergie en fin de parcours permet une irradiation contrôlée d'une tumeur tout en épargnant au maximum les cellules saines avoisinantes.

### Les $\alpha$ dans la matière

Un  $\alpha$  est doublement chargé, et possède quatre unités de masse atomique. Cela permet des ionisations dans les milieux traversés, solides, liquides ou gazeux, par la formation de paires d'ions dues à l'interaction coulombienne ou aux collisions. Les interactions des  $\alpha$  dans la matière sont principalement de trois sortes, illustrées par la figure 1.14.

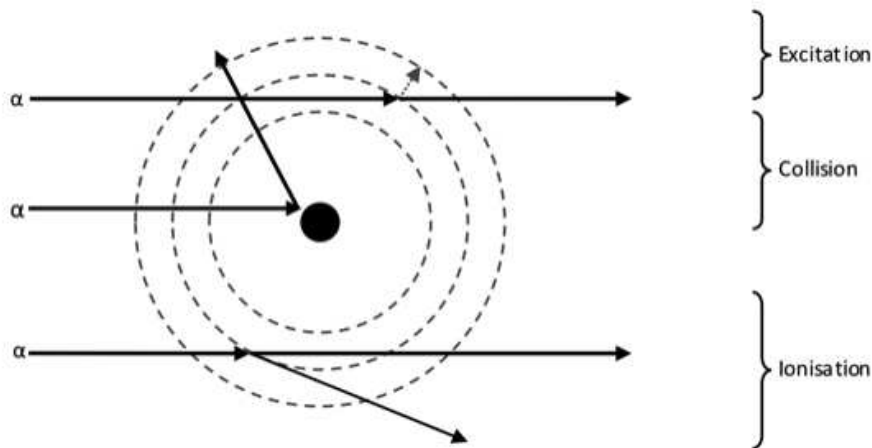


FIGURE 1.14 – Interaction des  $\alpha$  avec un atome.

A partir de l'équation de Bethe et Bloch nous pouvons avoir le pouvoir d'arrêt total d'un matériau pour les  $\alpha$ . Les termes correctifs ne sont pas détaillés ici, mais ils sont implémentés dans le logiciel ASTAR<sup>46</sup> du NIST<sup>47</sup>, qui permet de calculer les pouvoirs d'arrêt des  $\alpha$  dans divers matériaux.

Le pouvoir d'arrêt total d'un matériau pour les  $\alpha$  est généralement très fort (Fig. 1.15), et leur trajet est donc très court. Le modèle de Mozunder et Magee (Fig. 1.16) décrit la façon dont l'énergie de l' $\alpha$  y est déposée dans la matière [Mozunder 1966]. Ils ont identifié trois cas de figure, dépendant de l'énergie déposée :

- La short track : c'est en approximation un cylindre de 5 nm de rayon et 50  $\mu\text{m}$  de long, où l'énergie déposée par l' $\alpha$  est supérieure à 0,5 keV. Celle-ci met en mouvement des électrons, séparés en deux catégories

46. ASTAR : stopping power and range tables for helium ions (NIST)

47. NIST : National Institute of Standards and Technology - Physical Meas. Laboratory

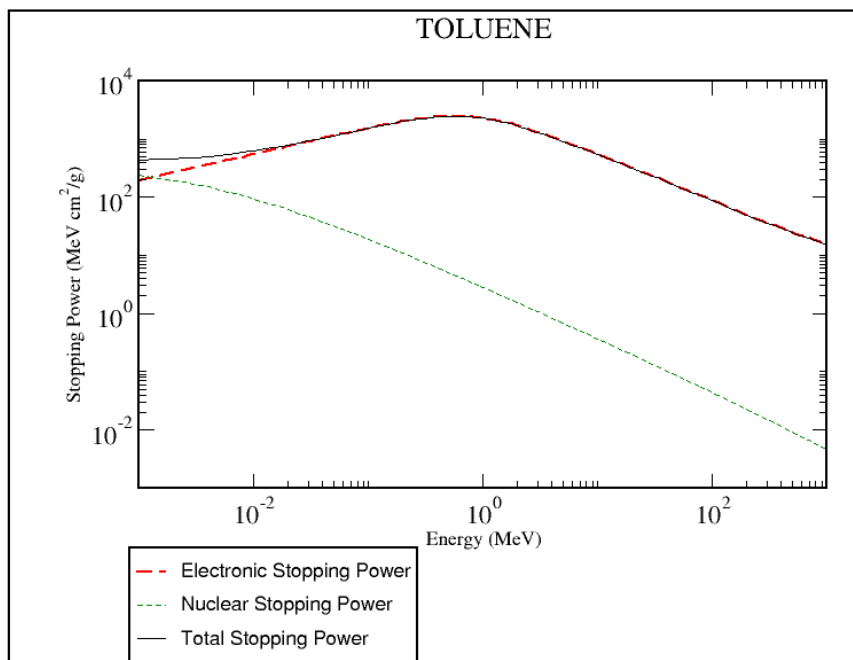


FIGURE 1.15 – Pouvoir d'arrêt total du toluène pour les  $\alpha$  par le logiciel ASTAR [Berger 2005].

- L'essaim : c'est une zone dans laquelle les électrons ( $e_{\delta}^{-}$ ) ont des énergies suffisantes pour ioniser, et l'énergie déposée est entre 0,1 et 0,5 keV.
- Les grappes : ce sont des zones éparées, encore plus éloignées de la short track, où les électrons sont non-ionisants et l'énergie déposée est inférieure à 0,1 keV

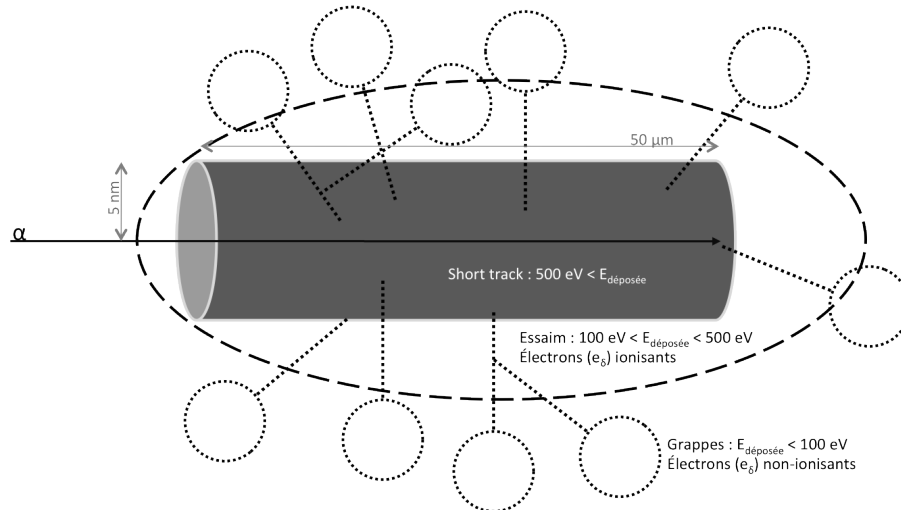


FIGURE 1.16 – Dépôts d'énergie des  $\alpha$  dans la matière selon le modèle de Mozunder et Magee [Mozunder 1966].

### Les $\beta$ dans la matière

Un électron peut interagir avec la matière principalement de trois façons différentes suivant son énergie, décrites par la figure 1.17.

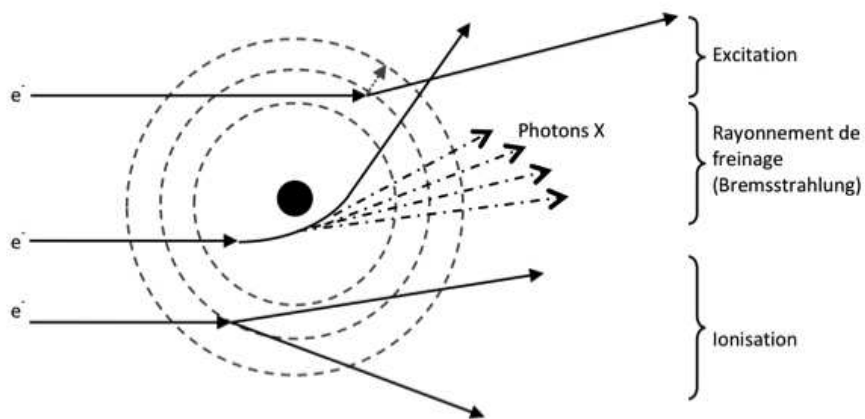


FIGURE 1.17 – Interactions possibles des  $\beta$  avec un atome.

Le ralentissement des électrons par ionisation est décrit par l'expression de Bethe. Dans le cas d'un choc électron-électron, le transfert maximal d'énergie est  $T_{max} = E = \frac{1}{2}mv^2$ .

Un électron cède peu d'énergie le long de son trajet (Fig. 1.18) et son parcours peut être assez long. Le logiciel ESTAR<sup>48</sup> du NIST intègre l'ensemble des corrections à basse et haute énergie. Il permet de voir que jusqu'à quelques mégaelectronvolts, la perte d'énergie est proportionnelle à  $1/E$ , la valeur minimale correspondant au point où les électrons deviennent relativistes. La remontée suivante correspond aux rayonnements de freinage.

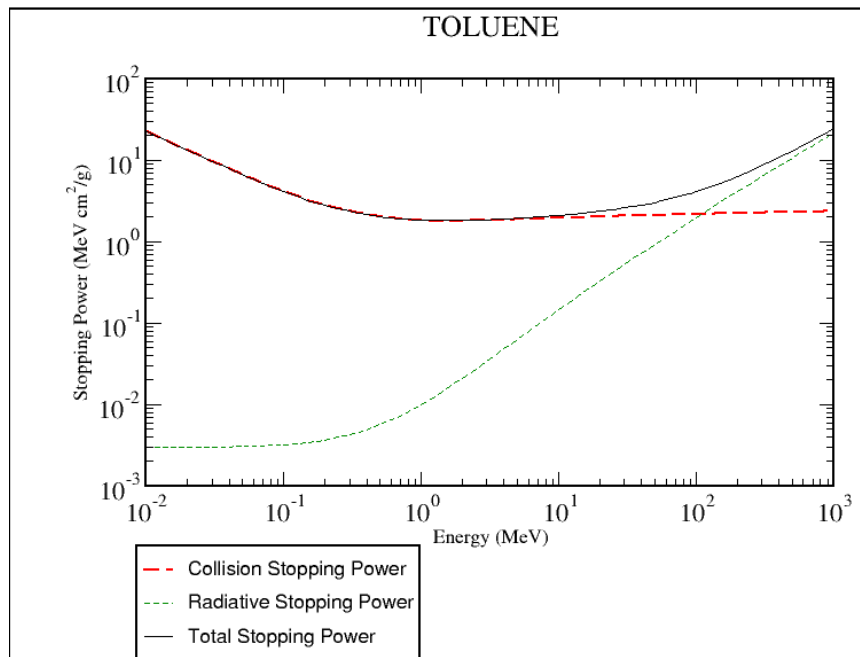


FIGURE 1.18 – Pouvoir d'arrêt total du toluène pour les  $\beta$  par le logiciel ESTAR [Berger 2005].

48. ESTAR : stopping power and range tables for electron



# Détecteurs et systèmes de détection

---

Never trust any complicated cocktail that remains perfectly clear until  
the last ingredient goes in, and then immediately clouds.

Tery Pratchett

## Sommaire

---

<b>2.1</b>	<b>Systèmes de détection <math>\alpha/\beta</math> à gaz et par semi-conducteur . .</b>	<b>38</b>
2.1.1	Les détecteurs gazeux . . . . .	38
2.1.2	Les détecteurs à semi-conducteurs . . . . .	41
<b>2.2</b>	<b>Les détecteurs à scintillateurs . . . . .</b>	<b>44</b>
2.2.1	Les différents scintillateurs . . . . .	45
2.2.2	Les transferts d'énergie en scintillation liquide . . . . .	48
2.2.3	Les systèmes de détection de lumière . . . . .	53
2.2.4	Les montages . . . . .	62

---



Nous allons nous intéresser dans ce chapitre aux différents systèmes de détection permettant une mesure de l'activité  $\alpha/\beta$  simultanée. Le principe de la détection des rayonnements ionisants est basé sur leur interaction avec la matière<sup>1</sup> constituant le détecteur, et on peut distinguer deux grandes classes de détecteurs :

- les systèmes de détection « visuel », pour lesquels une interaction conduit directement à la création de traces individuelles observables par perte d'énergie et par changement local de l'organisation structurale du matériau ;
- les systèmes de détection électroniques exploitant les ionisations ou excitations induites dans la matière lors de l'interaction du passage de la particule, permettant l'analyse électronique de l'énergie des rayonnements.

Seuls les systèmes de détection électroniques seront détaillés ici, systèmes composés de trois familles : gaz, semi-conducteur et scintillateur. Les deux premières familles seront détaillées dans une première section, puis nous allons particulièrement développer la scintillation liquide.

## 2.1 Systèmes de détection $\alpha/\beta$ à gaz et par semi-conducteur

### 2.1.1 Les détecteurs gazeux

Beaucoup de détecteurs en physique nucléaire sont basés sur l'utilisation d'un champ électrique permettant le comptage des électrons et ions formés par le passage d'une radiation dans le détecteur. C'est sur ce principe que fonctionne une chambre d'ionisation. Ce type de détecteur peut être vu comme un condensateur rempli d'un gaz inerte dans lequel le passage d'une radiation crée une décharge, donc un courant entre l'anode et la cathode.

Selon ce point de vue, on peut calculer l'impédance et la capacité de ce condensateur. En prenant des dimensions standard ( $10 \times 10 \times 1$  cm), on trouve une capacité de 9 pF (Eq. 2.1) avec un isolant gazeux ( $\varepsilon_{air} = 1$ ). Dans l'air, l'énergie d'ionisation est d'environ 30 eV, donc un rayonnement de 1 MeV produira de l'ordre de  $3.10^4$  électrons et ions. La tension à ses bornes est alors de l'ordre de 5 mV (Eq. 2.1).

$$C = \varepsilon_{air} \frac{A}{d} \quad U = q_e \frac{N_{ions}}{C} \quad (2.1)$$

La tension mesurée est donc proportionnelle au nombre d'ions formés, directement lié au rayonnement incident et indépendant de la tension aux bornes. Cette dernière détermine la vitesse de déplacement des charges, et doit donc être suffisamment élevée pour avoir un déplacement rapide par rapport à l'activité de l'échantillon à mesurer, mais pas trop élevée pour que les charges générées n'ionisent pas elles aussi le milieu en une avalanche de Townsend. Ainsi dans un détecteur gazeux on identifie trois grandes plages de détection plus celles transitoires (Fig. 2.1), donnant lieu à trois types de détecteurs suivant la tension appliquée.

1. Cf. chapitre 1 - Interaction rayonnements-matière

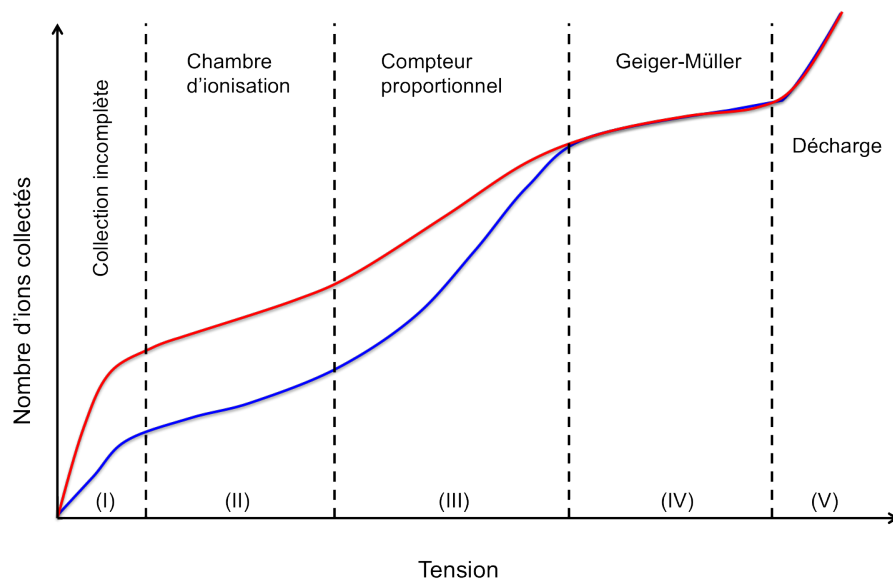


FIGURE 2.1 – Différentes utilisations d'un compteur à gaz en fonction de la tension appliquée.

### 2.1.1.1 Chambre d'ionisation

Avec un champ de faible intensité (Fig. 2.1, I), quelques paires d'ions ont la possibilité de se recombiner, mais cette région n'est pas utilisée pour la détection. Plus la tension augmente plus la production d'ions et d'électrons est collectée aux électrodes. La force du champ devient telle que les ions et les électrons ne peuvent plus se recombiner et une zone de saturation est atteinte (Fig. 2.1, II) : tout ce qui peut être collecté l'est. La quantité de charges collectée est alors directement reliée aux ionisations dues au passage d'un rayonnement, et donc à son énergie.

Ainsi une chambre d'ionisation permet de connaître l'énergie déposée et l'information sur l'énergie du rayonnement incident peut être connue. Ainsi, un  $\alpha$  va céder toute son énergie dans le gaz, ce qui produit un signal fort, au contraire d'un  $\beta$  ou d'un  $\gamma$  dont la perte d'énergie (par ionisation) est beaucoup plus faible. Une chambre d'ionisation peut fonctionner en plusieurs modes.

#### Mode courant

Ce mode de comptage permet d'avoir un détecteur portable et compact pour la surveillance des rayonnements. Le gaz, souvent de l'air, est contenu dans une enceinte métallique ou plastique, et la mesure est faite par un simple ampèremètre sur batterie.

### Mode intégration de charge

Dans ce mode la chambre est pré-ionisée, et la perte de charge durant une exposition est mesurée après, donnant une information sur la dose reçue lors de l'exposition. Ce type de chambre peut être très compacte, et des dispositifs (fibre de quartz par exemple) permettent une lecture directe de l'information de dose.

### Mode impulsion

Dans ce mode, une séparation entre les différents événements  $\alpha$ ,  $\beta$  ou  $\gamma$  devient possible, ceux-ci créant des impulsions différenciables. Les impulsions en sortie de ce système sont assez faibles, de l'ordre de la dizaine de microVolts, et donc des systèmes d'amplification sont nécessaires.

#### 2.1.1.2 Compteur proportionnel

Si la tension augmente encore (Fig. 2.1, III), l'énergie des ions et électrons générés par le passage du rayonnement est suffisante pour générer pendant leurs migrations accélérées vers les électrodes, des ionisations secondaires en une avalanche de Townsend. La quantité de charges collectée reste proportionnelle à l'énergie du rayonnement incident, et la discrimination reste possible entre les différents rayonnements. Quand la tension augmente encore, des non-linéarités apparaissent (Fig. 2.1, IV), ce qui marque la fin de la plage de tension pour le compteur proportionnel.

Les compteurs proportionnels sont scellés, et la source est en dehors, émettant à travers une fenêtre aussi fine que possible (en mica par exemple). De cette façon, le rendement théorique ne peut excéder 50% du fait de la détection sur  $2\pi$ . Une géométrie  $4\pi$  peut être approchée en entourant la source, aussi fine que possible, de deux détecteurs. Elle est dans le cas pratique bien moindre pour les  $\alpha$  qui subissent une auto-absorption dans la source. Une géométrie sans fenêtre existe aussi, où un flux de gaz emporte les charges, ce qui permet de détecter des rayonnements à fort dépôt d'énergie ( $\alpha$ ), ou à faible énergie ( $\beta$  mou comme celui du  $^3\text{H}$ ).

De plus, le gaz doit avoir certaines caractéristiques. En effet, celui-ci ne doit pas former d'anions et ne doit pas avoir de pièges à électrons. Ainsi, les gaz rares sont de très bons candidats. Comme une seconde avalanche de Townsend doit aussi être évitée, un composant gazeux est ajouté de façon à absorber l'énergie des espèces excitées. Le gaz fréquemment utilisé est un mélange argon-méthane à 90%-10%.

La résolution temporelle de ces compteurs est inférieure à la microseconde, et ils ont une grande efficacité intrinsèque pour les  $\alpha$  et les  $\beta$ . Du fait de leurs gammes d'énergies respectives, ces deux rayonnements n'ont pas besoin d'être discriminés. L'efficacité de détection est bien moindre pour les  $\gamma$ , principalement détectés par les effets Compton dans les parois du compteur.

### 2.1.1.3 Geiger-Müller

Si cette tension augmente encore (Fig. 2.1, IV), le moindre rayonnement incident ionise le gaz, et ces ions et électrons sont accélérés si fort qu'ils vont tous produire des ionisations secondaires (avalanche de Townsend). Ces ions et électrons secondaires vont à leur tour être accélérés et vont produire des ionisations, tertiaires, et ainsi de suite : chaque rayonnement incident induira donc la réponse maximale du détecteur.

Le phénomène stoppe car, comme l'ensemble de la chambre est ionisé, il se crée deux zones désertes (absence de charge) autour des électrodes, ce qui forme une protection empêchant les derniers ions ou électrons d'être collectés. Le potentiel positif de l'anode diminue considérablement et la collection des électrons est ralentie, voire stoppée, en plus d'abaisser la tension entre les deux électrodes. De plus, une collection ralentie implique un rétablissement de la tension, et donc une recollection de charges et le détecteur recommence un processus de détection.

Des adjuvants sont donc présents dans le gaz de façon à limiter l'ionisation totale du gaz et permettre un retour à un état neutre, de façon à permettre au détecteur de voir un prochain rayonnement. Ces adjuvants, souvent des gaz halogénés, consomment l'énergie résiduelle par rupture moléculaire. Ils sont donc consommés au fur-et-à-mesure des détections, et le détecteur s'use.

### 2.1.2 Les détecteurs à semi-conducteurs

L'avantage principal d'un détecteur solide provient de la densité du matériau détecteur, telle que les probabilités d'absorption soient suffisantes pour une taille de détecteur raisonnable. Cependant, un détecteur solide doit a priori satisfaire deux critères :

1. le matériau doit supporter un champ électrique permettant la collecte des ions et des électrons, sans pour autant générer des charges en absence de radiation ;
2. le matériau doit permettre la mise en circulation d'électrons qui peuvent se mouvoir facilement.

Ces deux critères permettent donc de détecter un courant électrique en sortie, directement lié à la radiation.

Mis au point dans les années 50, ces détecteurs sont basés sur la création de charges libres issues du passage de la particule. Dans un solide, la particule incidente produit des paires électrons-trous. La détection dépend donc de la collection des charges libérées, ce qui est fait par l'application d'un champ électrique. Ceci implique que le détecteur doit être un isolant, tout en permettant la création de charges libres : le détecteur doit donc être un cristal semi-conducteur. C'est une jonction PN dans un cristal de germanium qui a permis pour la première fois la

détection des particules  $\alpha$ .

Il existe désormais beaucoup de cristaux semi-conducteurs permettant la détection des particules. Chacun a ses propres caractéristiques, en terme d'énergie d'activation intrinsèque, d'énergie de création électron-trou, de mobilité des porteurs (Tab. 2.1), et de prix. On peut nommer le germanium, ou le silicium, mais aussi des alliages, comme l'arséniure de gallium GaAs ou le futur AlGaIn, ...

	Z	$\rho$ (g/cm <sup>3</sup> )	$E_{gap}$ (eV)	$E_{paire}$ (eV)	$\mu_e$ (cm <sup>2</sup> /V/s)	$\mu_t$ (cm <sup>2</sup> /V/s)	r (300K) $\Omega/cm$
Ge	32	5,33	0,67	2,96	3900	1900	50
Si	14	2,33	1,12	3,62	1400	408	160
GaAs	31/33	5,32	1,43	4,20	8000	400	170

TABLE 2.1 – Caractéristiques de quelques semi-conducteurs utilisés pour la détection des particules. Les caractéristiques présentées sont le nombre de charge Z, la masse volumique  $\rho$ , le hauteur de la bande interdite  $E_{gap}$ , la mobilité des électrons  $\mu_e$  et des trous  $\mu_t$  et la résistivité r.

### Physique des semi-conducteurs

Un semi-conducteur possède trois bandes d'énergie particulières : la bande de valence, une bande interdite et une bande de conduction (Fig. 2.2). A la température de zéro Kelvin, seule la bande de valence est occupée par les électrons et le semi-conducteur est isolant. Si des électrons ont suffisamment d'énergie pour franchir le *gap* (la bande interdite), ils passent dans la bande de conduction et le semi-conducteur devient conducteur.

A température ambiante (300 K), la simple agitation thermique permet le saut d'électrons de la bande de valence à la bande de conduction. Il y a génération naturelle de charges libres (électrons et trous) responsable de la conduction, répondant à une probabilité fonction de la température et de la hauteur du *gap* (Eq. 2.2).

$$\mathcal{P} \propto T^{3/2} e^{-\frac{E_{gap}}{2k_B T}} \quad (2.2)$$

avec :

- T la température ;
- $E_{gap}$  la hauteur du *gap* ;
- $k_B$  la constante de Boltzmann.

Généralement, la détection des  $\alpha$  se fait à l'aide d'un silicium de volume réduit, et sous atmosphère réduite<sup>2</sup>.

Ainsi, un germanium dont la hauteur de *gap* est faible (Tab 2.1) doit être refroidi pour limiter le courant d'obscurité puisque sa résistivité est faible à température

2. Cf. le comportement des  $\alpha$  dans la matière, 1.2.2.3

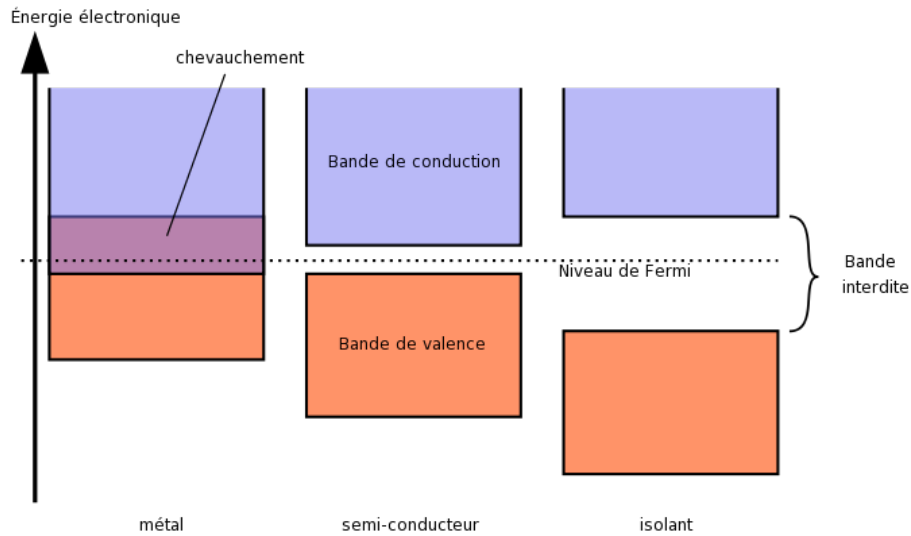


FIGURE 2.2 – Description des bandes de valence, interdite et de conduction pour un semi-conducteur. La largeur de la bande interdite correspond à  $E_{gap}$ .

ambiante, au contraire du silicium dont le *gap* plus haut et la résistivité plus grande permettent un usage à 300 K. Cependant, un cristal n'est pas forcément ultra pur et des impuretés ou des dopants, et des défauts, modifient le schéma simple à trois bandes. L'adjonction de dopant dans le cristal permet de faire évoluer volontairement le schéma de bandes en créant des nouveaux états d'énergie dans la bande interdite. L'introduction de niveaux accepteurs proches de la bande de valence (dopage de type P) rend les trous porteurs majoritaires. De même l'introduction de niveaux donneurs près de la bande de conduction (dopage de type N) rend les électrons porteurs majoritaires.

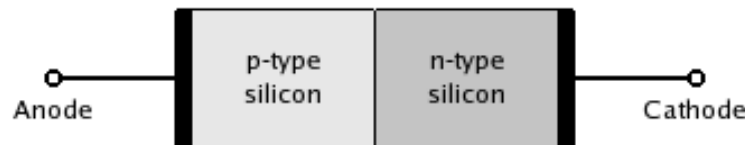


FIGURE 2.3 – Schéma d'une jonction P-N pour un cristal de silicium dopés P en anode et N en cathode.

Ces dopages permettent la construction de jonction P-N (Fig. 2.3). Elle est faite de la mise en contact d'un semi-conducteur dopé N et d'un semi-conducteur dopé P. À l'interface des deux zones, les porteurs de charge majoritaires d'une zone diffusent dans l'autre et les zones initialement neutres deviennent chargées et un champ électrique se crée, induisant un courant de conduction des porteurs minoritaires. Dans cette zone de transition a lieu une désertion des charges avec

un champ électrique important. Si une tension extérieure ( $V_{ext}$ ) est appliquée, le potentiel de la zone de transition ( $V_B$ ) est diminué de cette valeur ( $V_B = V_D - V_{ext}$ ). Elle peut être appliquée de deux façons différentes :

- $V_B \leq V_D$  : l'épaisseur de la zone de désertion diminue, les porteurs majoritaires peuvent migrer. La jonction est alors polarisée en sens direct.
- $V_B \geq V_D$  : l'épaisseur de la zone de désertion augmente, seuls les porteurs minoritaires peuvent se déplacer d'une zone à l'autre. La jonction est polarisée en inverse.

En entrant dans la zone déserte, le rayonnement va créer des paires électrons-trous collectées via le champ électrique de la jonction et une impulsion est mesurée. En pratique, une jonction est souvent polarisée en inverse (quelques kiloVolts), ce qui accélère la vitesse de collection, et cela accroît les dimensions de la zone de désertion.

## 2.2 Les détecteurs à scintillateurs

Un détecteur à scintillateurs est quasiment toujours composé de trois entités : le scintillateur, un convertisseur lumière/signal (souvent un photomultiplicateur), un dispositif adaptant le signal à l'analyseur et un analyseur (Fig. 2.4).

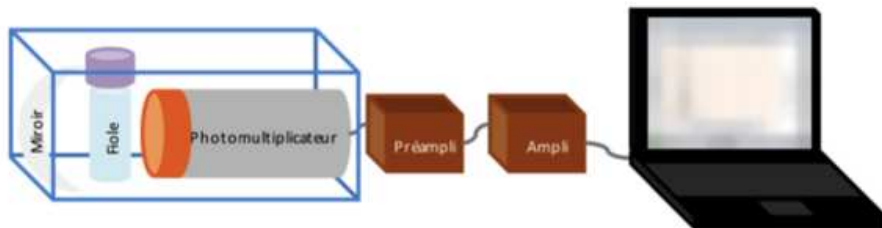


FIGURE 2.4 – Schéma simplifié d'une chaîne de mesure pour la scintillation liquide. Les arêtes bleue représentent la chambre de détection avec un miroir et un photomultiplicateur et entre les deux la fiole de scintillation. En sortie de la chambre suivent les systèmes d'amplification (préamplificateur et amplificateur) puis des systèmes de traitements et analyses symbolisés ici par un ordinateur.

Ces détecteurs à scintillateurs résolvent le problème de la densité de détection des compteurs à gaz d'une façon différente des semi-conducteurs. Le processus est en quatre étapes :

1. une radiation pénètre le détecteur et, suite à de nombreuses interactions, excite les atomes et molécules sur son passage ;
2. ces derniers se dés excitent en émettant de la lumière, entre l'UV et le proche visible : c'est la fluorescence ;
3. cette lumière heurte une zone photosensible où des photoélectrons sont créés ;
4. ces derniers sont amplifiés et ce sont eux qui forment l'impulsion électronique mesurée.

Un détecteur à scintillation doit aussi répondre à quelques critères indispensables à cette utilisation :

- rendement de production optique aussi important que possible ;
- accord de longueur d’onde entre les spectres d’émission et le système optique de détection ;
- transparence du scintillateur à sa propre émission lumineuse ;
- temps d’émission lumineuse court ;
- proportionnalité entre photons produits et énergie du rayonnement incident ;
- stabilité par rapport aux contraintes externes.

### 2.2.1 Les différents scintillateurs

Nous allons nous intéresser ici à deux types de scintillateur : organique et inorganique, sous les deux états liquides et solides. Ils ont un fonctionnement similaire mais des caractéristiques et donc des usages sensiblement différents (Tab. 2.2).

	Type	$\rho$ (g/cm <sup>3</sup> )	$n(\lambda_{\max})$	$\lambda_{\max}$ (cm <sup>-1</sup> )	$r_{rel}$ (%)	$\tau$ (ns)
Anthracène	orga. solide	1,25	1,62	447	43	30
NE 213	orga. liquide	0,87	1,505	425	34	3,2
NaI(Tl)	inorga. solide	3,67	1,85	410	100	230
CsF	inorga. solide	4,11	1,48	390	5	5

TABLE 2.2 – Caractéristiques de quelques scintillateurs utilisés pour la détection des particules [L’Annunziata 2003]. Les caractéristiques présentées ici sont la masse volumique  $\rho$ , l’indice  $n$  du matériau à la longueur d’onde  $\lambda$  du maximum d’émission, le rendement relatif par rapport à un cube de 2 pouces de côté de NaI(Tl) et  $\tau$  la constante de temps de décroissance (composante lente le cas échéant).

#### 2.2.1.1 Scintillateurs inorganiques

Les scintillateurs inorganiques peuvent exister sous plusieurs phases. Les scintillateurs inorganiques gazeux sont des composés principalement d’azote et d’un gaz rare, souvent hélium ou xénon. Du fait des sections efficaces d’interactions des gaz par rapport aux particules qui nous intéressent, ceux-ci sont principalement utilisés pour détecter les fragments de fissions. Les scintillateurs inorganiques liquides sont des composés minéraux à temps de réponse plutôt lent mais aux possibilités géométriques infinies, comme par exemple un cylindre creux pour servir d’anneau de garde autour d’un détecteur.

Quant aux scintillateurs inorganiques solides, ce sont des composés cristallins dont la principale différence se situe dans le temps de réponse : le temps de réponse optique est plus lent (dizaine de microsecondes). Ils bénéficient cependant d’un



pouvoir d'arrêt plus élevé car constitués de matériaux de  $Z$  plus important. Très utilisés en détection, nous allons décrire brièvement certains de ces scintillateurs très utilisés.

### ZnS

C'est le premier scintillateur utilisé dans le domaine de la physique des particules. Composé de petits cristaux de sulfure de zinc comprimés sous forte pression, il n'est pas opaque à la lumière visible et il faut l'en protéger d'une couche métallisée. Il est par contre opaque à son propre rayonnement de fluorescence et n'est donc utilisable qu'en couche mince. Il reste très utilisé dans la détection des  $\alpha$  préalablement déposés sur une coupelle.

### NaI(Tl)

C'est un des cristaux les plus faciles à fabriquer et les moins coûteux : la production de volumes de détection importants sont possibles et il possède une grande sensibilité de détection. Le cristal d'iodure de sodium est en général dopé au thallium, ce qui permet de stabiliser la réponse du scintillant en terme de température de fonctionnement et amplifie la fluence lumineuse naturelle du cristal. Le NaI est un cristal très hygroscopique et l'humidité ambiante suffit à le rendre impropre : il devient jaune ; il est donc confiné dans une enveloppe d'aluminium. Généralement, il produit un photon pour une énergie de 40 eV déposée. Il possède donc un bon rendement lumineux mais sa grande efficacité de détection est aussi un inconvénient puisque le bruit de fond croît de même.

### CsI(Tl)

Ce cristal qui résout un problème du NaI(Tl) en n'étant pas hygroscopique, s'adapte mieux aux photodiodes et est plus sensible aux  $\gamma$  ( $Z$  du césium), mais le rendement optique de scintillation est nettement moins bon. De plus, sa forte sensibilité à la température nécessite des stabilisateurs ou des corrections, ce qui rend son utilisation plus complexe. Il existe aussi sous la forme CsF.

### LaBr<sub>3</sub>(Ce)

Cristaux au développement récent, les scintillateurs de type LaBr s'imposent actuellement dans le domaine de la spectrométrie embarquée. Plus sensible à la température mais d'une meilleure efficacité que le NaI, ils offrent une meilleure résolution, mais avec un prix en proportion.

### Phoswich

*Phoswich* est l'acronyme de *phosphor sandwich*. Il est constitué d'un empilement de plusieurs scintillateurs de différentes sortes de façon à profiter des avantages de

chacun. Par exemple, on peut associer un ZnS pour la détection  $\alpha$  à un scintillateur plastique pour la détection  $\beta$ , les efficacités réciproques étant nulles. Le spectre de scintillation permet de déterminer l'origine du rayonnement.

### 2.2.1.2 Scintillateurs organiques

Dans les domaines des scintillateurs organiques, on distingue deux familles : les scintillateurs solides et liquides. En 1947, Kallman et Broser mettent au point le premier scintillateur de grand volume transparent à sa propre lumière grâce au naphthalène. Suivra alors la mise au point de cristaux d'anthracène, de stilbène, les solutions liquides de produits carbures aromatiques puis les premiers plastiques.

Dans le cas des scintillateurs organiques liquides, des arrangements binaires ou ternaires de solvants et solutés scintillants sont actuellement produits. Leurs compositions sont adaptées aux usages auxquels ils sont promis, la tendance actuellement étant de fabriquer des mélanges les plus sécurisés possible, peu polluants voire éco-compatibles. Les caractéristiques principales de ces scintillateurs sont :

- un temps de réponse très court, de l'ordre de la dizaine de nanosecondes ;
- une réponse fonction de l'énergie déposée, pour les électrons ;
- une forte teneur en hydrogène les rendant aptes à la détection des neutrons ;
- la possibilité de créer des détecteurs de grand volume (Borexino).

### Scintillateurs organiques liquides

Contrairement à tous les autres types de détecteur, la scintillation organique liquide met en jeu un mélange entre le détectant et le détecté : les radionucléides sont mélangés au scintillateur. Ceci permet une détection à  $4\pi$  et un rendement voisin de 100% pour des rayonnements d'énergie supérieure à 150 keV. Cependant, le fait que ce soit un mélange implique que la source peut avoir une influence non négligeable sur la détection. De plus, le nombre moyen de photons émis suite au passage d'un  $\alpha$  correspond au nombre moyen de photons émis suite à un  $\beta$  d'un dixième de son énergie [Horrocks 1974]. De ce fait, les spectres en énergie des deux types de rayonnements sont confondus et il est nécessaire d'avoir des outils afin de les discriminer.

Le mélange de détection est composé d'au moins deux composants : un solvant et un soluté scintillant (Fig. 2.5). Le premier capte l'énergie du rayonnement, se désexcite vers le soluté qui lui émet des photons. Par contre, la forte teneur en hydrogène favorise des effets Compton et accentue la difficulté de mettre en évidence l'énergie des  $\gamma$  ce qui les rend peu aptes à la spectrométrie de ce type de rayonnement.

A mi-chemin entre le solide et le liquide, les ensembles de petits scintillateurs, comme des perles de 0,5 mm de diamètre, sont actuellement à l'étude dans certains

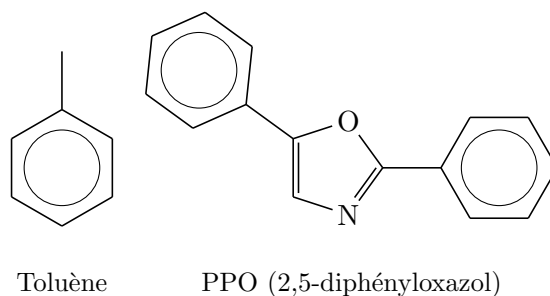


FIGURE 2.5 – Exemple de molécules de solvant (Toluène) et soluté (PPO).

laboratoires. Ils permettraient de profiter de la stabilité des scintillateurs solides tout en ayant les rendements de la scintillation liquide.

### 2.2.2 Les transferts d'énergie en scintillation liquide

En scintillation liquide, les différentes étapes de l'émission d'un rayonnement jusqu'à l'émission de lumière sont schématiquement :

1. Émission d'un rayonnement ( $\alpha$ ,  $\beta$  ou  $\gamma$ ) ;
2. Dissipation de tout ou partie de son énergie dans le solvant ;
3. Désexcitation du solvant dans le milieu ;
4. Désexcitation du milieu scintillateur principalement par émission lumineuse.

Les molécules utilisées pour les détecteurs à scintillations liquides sont des molécules aromatiques (Fig. 2.5). Ces molécules, respectant la règle de Hückel<sup>3</sup> pour le critère d'aromaticité, sont formées de chaînes, ou de cycles, carbonées insaturées, c'est-à-dire qu'elles possèdent une alternance de simple et double liaisons. On parle aussi d'hybrides  $sp^2$ . Un modèle développé par Kekulé<sup>4</sup> à partir du benzène fait état des résonances de ces molécules (Fig. 2.6) correspondant à différentes positions, et alternances, des simples et doubles liaisons. Une double liaison est alors composée de deux liaisons : une simple, notée  $\sigma$ , et une autre notée  $\pi$ . Une liaison étant formée d'électrons, on parle aussi d'électron  $\sigma$  et d'électron  $\pi$ . Ce dernier est dit délocalisé, du fait des résonances, et est donc « partagé » par l'ensemble des atomes (carbone) de la chaîne.

L'état fondamental des électrons  $\pi$  dans une molécule aromatique est  $S_0$ , où les spins des électrons sont appariés. Le système a ensuite deux séries d'états excités : les  $S_1 \dots S_n$  qui avec  $S_0$  forment l'ensemble des états singulets, et les états triplets  $T_1 \dots T_n$ , d'énergie moindre que le singulet correspondant. Ces électrons délocalisés des molécules suivent la même description que les électrons de valence des atomes. On parle alors d'orbitales moléculaires, terme introduit en 1927 par

3. Heinrich Hückel - Charlotteburg 1896, Marbourg 1980

4. Friedrich August Kekulé Von Stradonitz - Darmstadt 1829, Bonn 1896

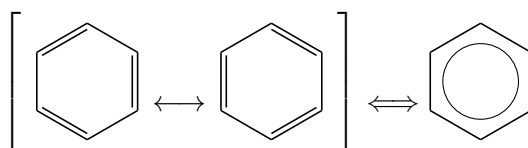


FIGURE 2.6 – Etats de résonance du benzène.

Hund<sup>5</sup> et Mulliken<sup>6</sup>, en traduction des équations propres de Schrödinger, d'où les états singulets  $S$  ( $s$ ) et les triplets  $T$  ( $p_x$ ,  $p_y$  et  $p_z$ ) pour la molécule excitée.

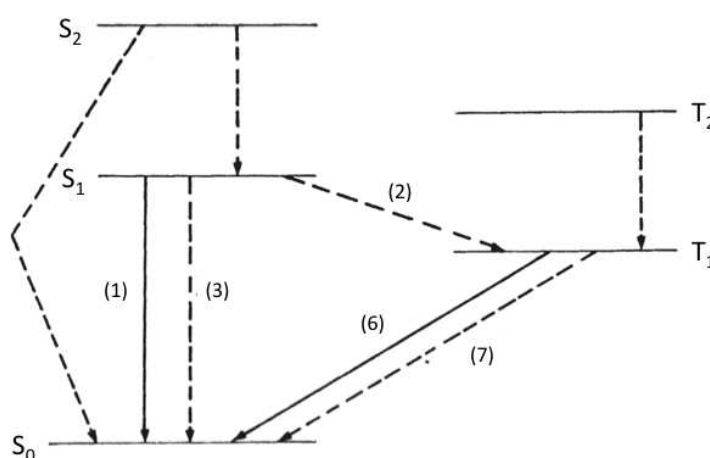


FIGURE 2.7 – Etats d'énergie S et T [Bransome 1970]. Les numéros correspondent aux transitions décrites dans le tableau 2.3.

Chaque molécule a des voies de désexcitation préférentielles. Le solvant transfère plutôt son énergie par diffusion (Mécanisme de Davidov<sup>7</sup>, de Förster<sup>8</sup>), tandis que le soluté scintillant le fera par fluorescence et phosphorescence. Le mécanisme de Förster [Förster 1950] décrit un transfert de résonance à « grande » distance (jusqu'à 10 nm) entre deux molécules chromophores<sup>9</sup>, un donneur excité et un accepteur. Il se crée entre les deux un couplage dipôle-dipôle induisant un transfert non-radiatif à travers un photon virtuel. Le mécanisme de Davidov [Davydov 1964] consiste en un transfert d'exciton de proche en proche.

5. Friedrich Hund - Karlsruhe 1896, Göttingen 1997

6. Robert Sanderson Mulliken - Newburyport 1896, Arlington 1986

7. Alexander Sergeïevitch Davidov - Eupatoria 1912, Kiev 1993

8. Theodor Förster - 1910, 1974

9. Un chromophore est un groupement d'atome hybrides  $sp^2$  dont les électrons délocalisés peuvent entrer en résonance avec un rayonnement incident et l'absorber.

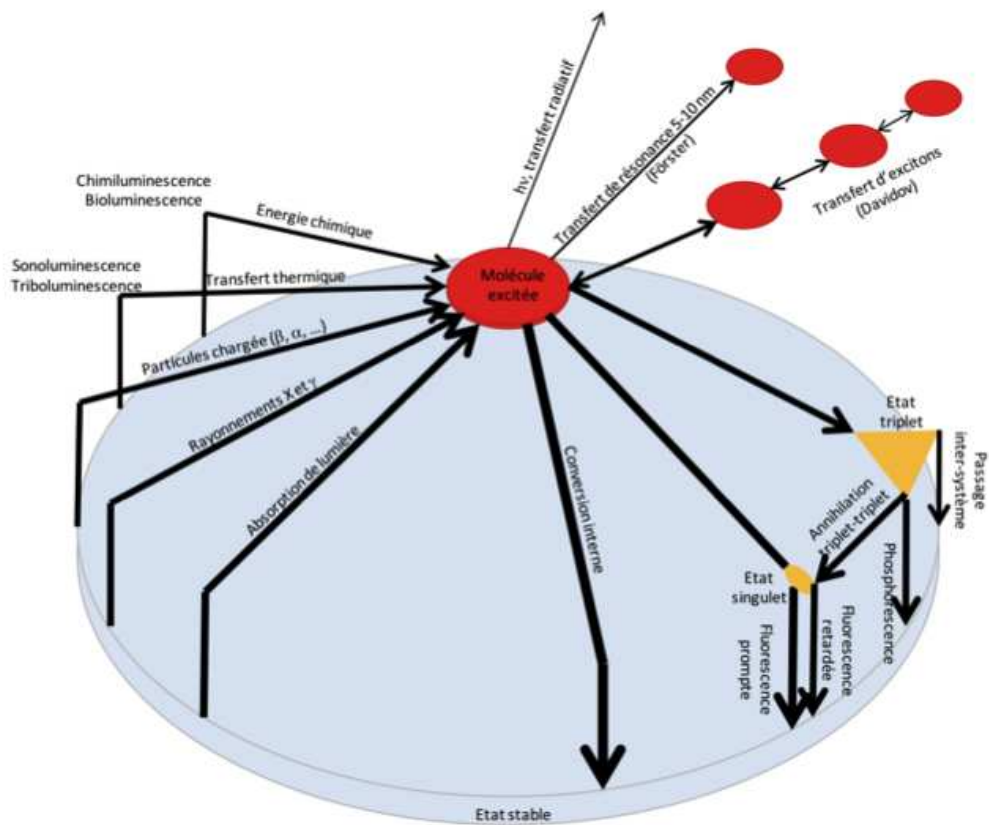


FIGURE 2.8 – Différents mécanismes d'excitation et désexcitation d'une molécule.

Dans le cas d'un système à deux composants (solvant/scintillateur) (Fig. 2.8), les constantes de vitesse des différents mécanismes ont été estimées [Voltz 1968]. Ainsi, suivant l'énergie de la particule incidente et les états d'excitation atteints, les temps de désexcitation seront plus ou moins longs. Les transferts qui nous intéressent sont ceux qui conduisent à l'émission de lumière, c'est-à-dire trois sur les quatorze possibilités présentées ici (Tab. 2.3).

	Processus		Constante de vitesse ( $s^{-1}$ )
1	$S_1 \rightarrow S_0 + h\nu$	<b>Fluorescence</b>	$k_s : 10^6 - 10^{11}$
2	$S_1 \rightarrow T_1$	Passage inter-système Conversion singulet-triplet	$k_s^I : 10^5 - 10^9$
3	$S_1 \rightarrow S_0$	Conversion interne Dégradation interne	$k_s^{II} : 10^7 - 10^9$
4	$S_1 + S_0 \rightarrow S_0 + S_0$	Dégradation réciproque	$k_{ss}$
5	$S_1 + Q \rightarrow S_0 + Q$	Quenching Dégradation externe	$k_{sq} : 10^9 \text{ mol}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$
6	$T_1 \rightarrow S_0 + h\nu$	<b>Phosphorescence</b>	$k_t : 10^{-2} - 10^3$
7	$T_1 \rightarrow S_0$	Conversion interne Dégradation interne	$k_t^I : 10^{-2} - 10^3$
8	$T_1 + Q \rightarrow S_0 + Q$	Quenching Dégradation externe	$k_{tq} : 10^9 \text{ mol}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$
9-a	$T_1 + T_1 \rightarrow S_1 + S_0$	Annihilations triplet-triplet	$k_{tt}$
9-b	$T_1 + T_1 \rightarrow T_1 + S_0$		$k_{tt}^I$
9-c	$T_1 + T_1 \rightarrow Q + S_0$		$k_{tt}^{II}$
10	$S_1 + F_0 \rightarrow F_1 + S_0$	Transfert d'énergie	$k_{sf} : 10^{10} \text{ mol}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$
11	$F_1 \rightarrow F_0 + h\nu$	<b>Fluorescence</b>	$k_f : 10^6 - 10^{11}$
12	$F_1 \rightarrow F_0$	Conversion interne Dégradation interne	$k_f^I : 10^7 - 10^9$
13	$F_1 + F_0 \rightarrow F_0 + F_0$	Conversion interne Dégradation réciproque	$k_{ff}$
14	$F_1 + Q \rightarrow F_0 + Q$	Quenching Dégradation externe	$k_{fq} : 10^9 \text{ mol}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$

TABLE 2.3 – Évolution des états de plus basses énergies  $S_1$  et  $T_1$  dans un système à deux composants [Voltz 1968]. Les états  $S$  et  $T$  correspondent aux états singulets et triplets,  $F$  correspond aux états passant par les mécanismes de Förster.

Le temps de transition lent de la phosphorescence est dû au fait que c'est une transition interdite du point de vue du spin entre des états de multiplicités différentes ( $T_1 \rightarrow S_0$ ), au contraire de la fluorescence, très rapide car autorisée [Birks 1964].

Les transferts d'énergie non-radiatifs dans le cas de molécules scintillantes, les fluorophores, apparaissent quand le spectre d'émission du donneur (D) est recouvert par le spectre d'absorption de l'accepteur (A) : plusieurs niveaux de vibrations de D correspondent à ceux de A. On parle alors d'intégrale de recouvrement. L'acronyme *FRET* est couramment utilisé pour *fluorescence resonance energy transfert*, ou bien *Förster resonance energy transfert*.

Le transfert d'énergie résulte de deux types de mécanismes. Un premier de type coulombien pour une interaction dipôle-dipôle à grande distance, un second du fait de recouvrement d'orbitales moléculaires à courte distance.

En considérant seuls deux électrons (numéroté 1 et 2) impliqués dans l'interaction entre D et A, on peut écrire les fonctions d'ondes  $\Psi$  initiales et finales (Eq. 2.3) [Valeur 2001].

$$\begin{aligned}\Psi_i &= \frac{1}{\sqrt{2}}(\Psi_{D^*}(1)\Psi_A(2) - \Psi_{D^*}(2)\Psi_A(1)) \\ \Psi_f &= \frac{1}{\sqrt{2}}(\Psi_D(1)\Psi_{A^*}(2) - \Psi_D(2)\Psi_{A^*}(1))\end{aligned}\quad (2.3)$$

L'élément de matrice décrivant le couplage entre l'état initial et l'état final est :  $U = \langle \Psi_i | V | \Psi_f \rangle$ , avec  $V$  la partie perturbation de l'hamiltonien  $H = H_D + H_A + V$ . En prenant en compte d'équation 2.3,  $U$  peut donc être écrit comme une somme de deux termes (Eq. 2.4).

$$U = \langle \Psi_{D^*}(1)\Psi_A(2) | V | \Psi_D(1)\Psi_{A^*}(2) \rangle - \langle \Psi_{D^*}(1)\Psi_A(2) | V | \Psi_D(2)\Psi_{A^*}(1) \rangle \quad (2.4)$$

Le premier terme (Eq. 2.4) correspond à l'interaction de type coulombienne, noté  $U_c$ . Elle décrit un électron initialement excité de D qui se désexcite au profit d'un électron de A. Le second terme est un terme d'échange,  $U_{ex}$ , car il décrit l'échange des deux électrons 1 et 2 de D et A.

Le terme coulombien peut être écrit suivant un développement multipolaire, mais généralement seul le premier terme est pris en compte, représentant l'interaction dipôle-dipôle entre les moments dipolaires  $\vec{M}_D$  et  $\vec{M}_A$  (Eq. 2.5).

$$U_{c1} = \frac{\vec{M}_D \cdot \vec{M}_A}{r^3} - 3 \frac{(\vec{M}_A \cdot \vec{r})(\vec{M}_D \cdot \vec{r})}{r^5} \quad (2.5)$$

Le terme d'échange représente des interactions électrostatiques entre nuages électroniques ; cette interaction est donc à portée très courte, liée aux dimensions des nuages électroniques (Eq. 2.6).

$$U_{ex} = \langle \Psi_{D^*}(1)\Psi_A(2) | \frac{e^2}{r} | \Psi_D(2)\Psi_{A^*}(1) \rangle \quad (2.6)$$

En prenant en compte la règle d'or de Fermi  $T_{i \rightarrow f} = k_T = \frac{2\pi}{\hbar} U^2 \rho$ , avec  $\rho$  la densité d'états finaux, on obtient avec les équations 2.5 et 2.6 les constantes de

temps de transferts d'énergies à courtes et longues distances.

Le temps caractéristique final d'une impulsion de scintillation liquide est donc la somme de l'ensemble des phénomènes décrits, bien que généralement simplifié en deux composantes à temps caractéristiques court et long.

Quant au nombre de photons émis en fonction de l'énergie absorbée du rayonnement incident par le liquide, ceci est décrit par l'équation semi-empirique de Birks (Eq. 2.7), qui permet de relier le nombre moyen de photons émis  $m(E)$  à une énergie  $E$  absorbée par le scintillateur en fonction du transfert d'énergie linéique ( $dE/dX$ ) du rayonnement à l'énergie  $E$ , ainsi que d'un paramètre de rendement lumineux du scintillateur ( $A$ ), en photon par unité d'énergie absorbée, et d'un paramètre caractéristique du scintillateur ( $kB$ ), compris généralement entre  $5.10^{-3}$  et  $1,8.10^{-3}$   $\text{g.MeV}^{-1}.\text{cm}^{-2}$  [Birks 1964].

$$m(E) = \int_0^E \frac{A}{1 + kB \frac{dE}{dx}} dE \quad (2.7)$$

### 2.2.3 Les systèmes de détection de lumière

Afin d'être mesurée, la lumière issue du scintillateur doit être captée, souvent amplifiée et traduite en courant ou intensité mesurable. Nous allons détailler ici le fonctionnement d'un photomultiplicateur, appareil le plus courant pour la conversion lumière/signal, puis nous verrons la chaîne d'amplification et l'analyseur.

#### 2.2.3.1 Dispositif de détection : le photomultiplicateur

En scintillation, toute mesure serait impossible sans recours à un système permettant de convertir la très faible impulsion lumineuse en un signal électrique. Ce rôle est assuré par le photomultiplicateur (Fig. 2.9) qui dans une enceinte sous vide contient une photocathode pour convertir les photons incidents en électrons par effet photoélectrique. Ces électrons sont ensuite guidés et accélérés par un champ électrostatique vers la première dynode qui en multiplie le nombre et les renvoie vers la suivante, et ainsi de suite jusqu'à l'anode.

### Constituant d'un photomultiplicateur

#### La fenêtre d'entrée

Cette fenêtre par laquelle les photons incidents pénètrent le système est plane ou légèrement sphérique, surtout pour les grands photomultiplicateurs au-delà de douze centimètres de diamètre. Les principaux matériaux utilisés pour cette fenêtre sont le borosilicate (pyrex), le quartz ou le verre UV, choisis en fonction des longueurs



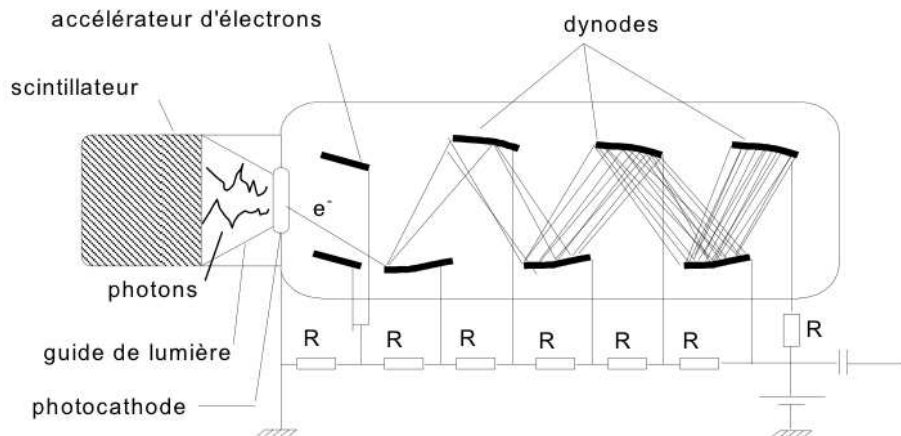


FIGURE 2.9 – Schéma d'un exemple de photomultiplicateur.

d'onde incidentes. C'est donc elle qui détermine en partie la sensibilité spectrale du photomultiplicateur.

### La photocathode

La photocathode transforme les photons incidents en électrons par effet photoélectrique sur un semi-conducteur en couche mince. Ce dernier est déposé par évaporation sous vide sur la face interne de la fenêtre d'entrée.

### Le système de collection

Un système particulier permet d'augmenter le nombre d'électrons collectés au moyen d'un champ électrique formant une lentille électromagnétique (Fig. 2.10). Ce système permet aussi à chaque électron, quel que soit son point d'émission, de rallier la première dynode dans le même temps.

### Les dynodes

Le multiplicateur d'électrons amplifie le faible courant d'origine dû aux photoélectrons, en utilisant une succession de dynodes pour produire un courant mesurable sur l'anode du photomultiplicateur. Le gain ( $g_i$ ) de chaque dynode, le facteur d'émission secondaire, décrit l'amplification pour chaque dynode. Celles-ci sont faites en alliage, comme AgMg, CuBe ou CsSb, qui assurent un facteur d'émission secondaire élevé, une stabilité de l'effet d'émission secondaire sous un grand courant et un bruit de fond faible. Un photomultiplicateur a un nombre variable de dynodes, généralement dix. Plusieurs agencements existent, favorisant la compacité du détecteur, sa rapidité, ou son facteur d'amplification (Fig. 2.11).

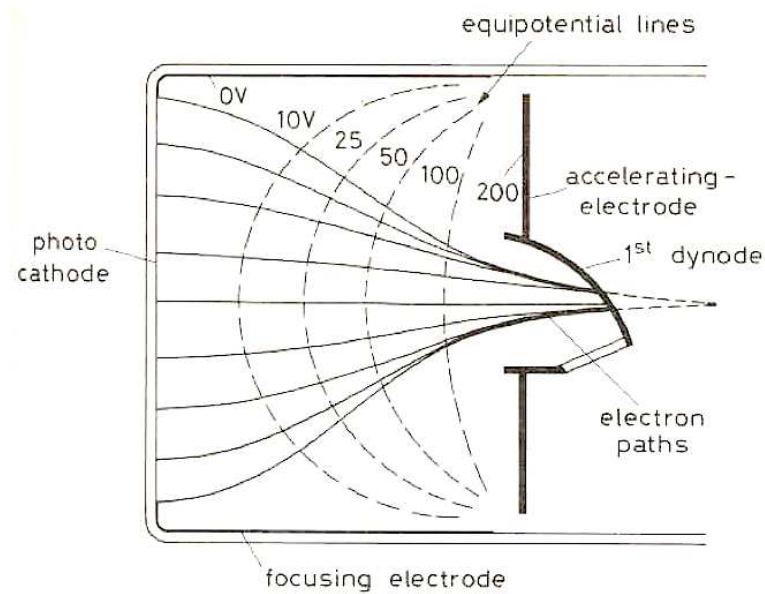


FIGURE 2.10 – Système de collection d'entrée [Knoll 1979].

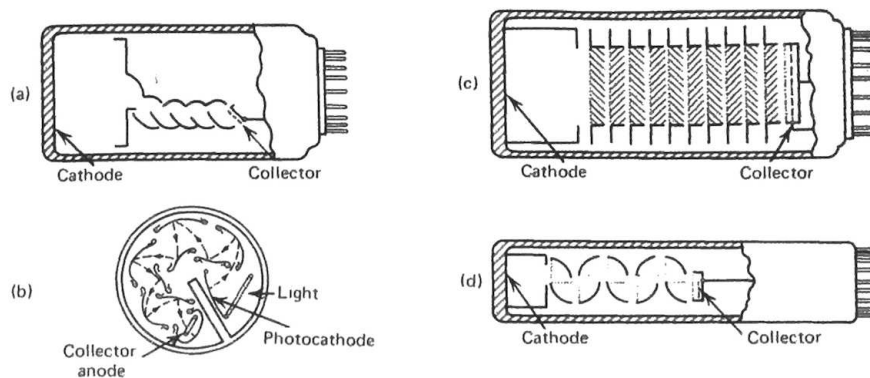


FIGURE 2.11 – Quelques agencements de dynodes. (a) Structure linéaire focalisante. (b) Grille circulaire. (c) Store vénitien. (d) *Box-and-grid*. [Knoll 1979]

Un pont diviseur de tension permet de régler la tension à chaque dynode, et différents ajustement permettent d'obtenir différentes réponses. Ainsi, le montage standard est fait de résistances identiques, mais pour, par exemple, favoriser une grande linéarité dans la réponse en énergie, la valeur de l'avant dernière résistance est doublée et la dernière quadruplée, ce qui diminue sensiblement le gain.

Ces différents étages (photocathode, dynodes, ...) ont chacun des temps de réponses différents. Le cumul fait le temps de réponse du photomultiplicateur. Ainsi, avec en entrée une impulsion brève (type  $\gamma$ ) capté par un scintillateur puis émis vers le photomultiplicateur, le signal courant en sortie aura un temps de montée court, un temps de transit très bref et un temps de descente comparativement plus long. Ce dernier est décrit par le signal physique lumineux (temps de décroissance du scintillateur), le photomultiplicateur agissant comme un filtre passe-bas. Ceci est illustré par une impulsion mesurée au GEA issue du  $\gamma$  d'une source  $^{241}\text{Am}$  (Fig. 2.12).

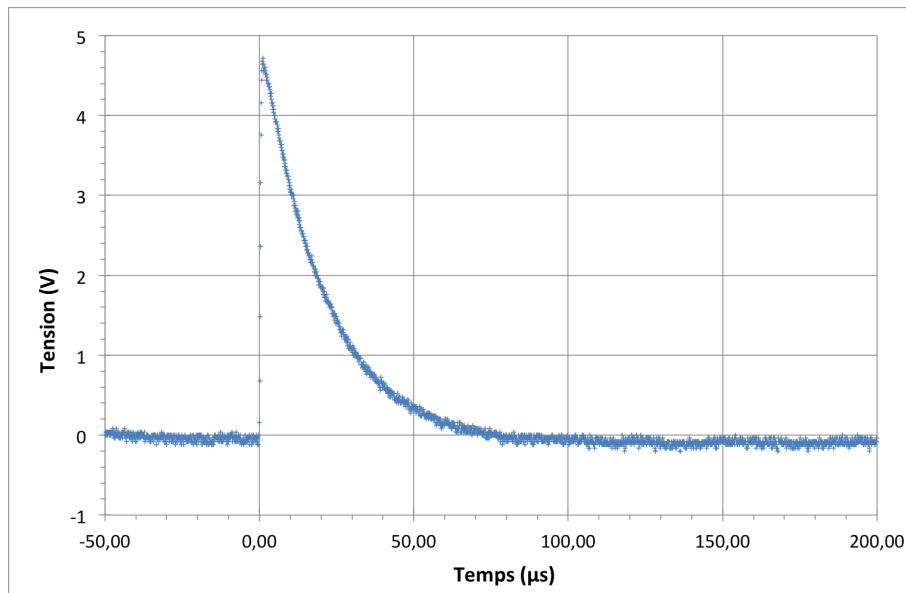


FIGURE 2.12 – Exemple de d'impulsion due à un  $\gamma$  d'un  $^{241}\text{Am}$  mesurée sur un photomultiplicateur Crismatec XP2020 YAP(Ce) sous une HT de -950 V à l'aide d'un oscilloscope numérique.

## Paramètres des photomultiplicateurs

### Efficacité d'entrée

La photocathode est décrite par son efficacité quantique  $\rho$ , habituellement définie pour un rayonnement incident monochromatique. Celle-ci est tantôt défini en terme d'efficacité quantique (QE,%), tantôt de sensibilité énergétique (A/W)

ou de sensibilité lumineuse ( $A/lm$ ). De façon schématique, elle est définie comme le rapport entre le nombre de photoélectrons, ou la sensibilité énergétique ( $S_{ke}$ ) par rapport au nombre de photons incidents, fonction de la longueur d'onde (Eq. 2.8). Elle est de l'ordre de 0,1% pour les métaux et jusqu'à 30% pour les semi-conducteurs (Fig. 2.13).

$$QE(\%) = 124 \frac{S_{ke}(A/W)}{\lambda(nm)} \quad (2.8)$$

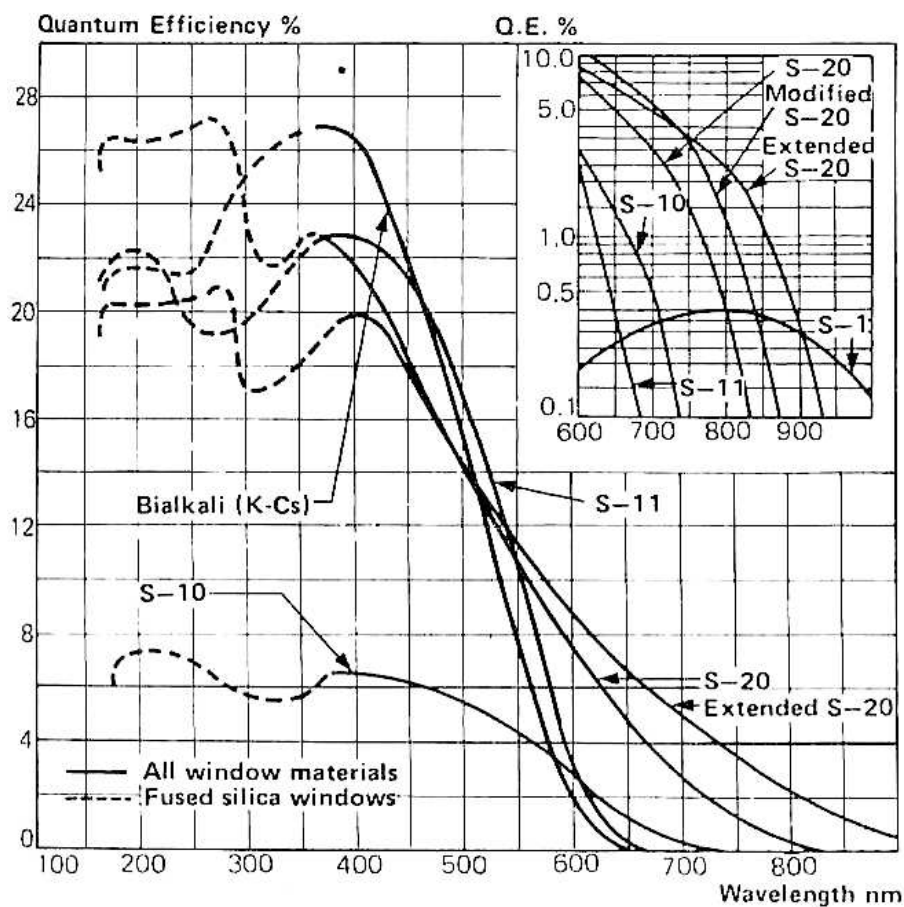


FIGURE 2.13 – Exemple d'efficacité quantique de différentes photocathodes [Knoll 1979].

Puis l'efficacité de collection de l'optique d'entrée  $\eta$  exprime le nombre moyen d'électrons atteignant la première dynode en fonction du nombre moyen d'électrons qui quittent la photocathode. Ce phénomène dépend de la longueur d'onde et de la tension. Dans des conditions optimales, cette efficacité est de l'ordre de 80% [RTC 1981].

### Gain et rapport pic/vallée

Le gain du photomultiplicateur est défini par le gain  $g_i$  de chacune de ses dynodes. Alors le gain total  $G$  est le produit des  $g_i$ . De plus, le gain de chaque étage est une fonction de la tension appliquée à ses bornes à travers le pont diviseur, donc le gain  $G$  est fonction de cette tension à la puissance du nombre de dynode (Eq. 2.9).

$$G = \prod_i^N g_i = \prod_i^N k_i V_i^\alpha = K(V_{HT})^{N\alpha} \quad (2.9)$$

Le paramètre  $\alpha$  est généralement compris entre 0,6 et 0,8.

La tension appliquée aux bornes du photomultiplicateur agit donc sur deux paramètres. Premièrement, une tension plus grande signifie une plus forte amplification du signal, donc une tension en sortie plus haute et un décalage du spectre mesuré vers la droite. De plus, une plus grande amplification signifie aussi une augmentation de la dispersion et ainsi une augmentation de l'incertitude sur la résolution du spectre mesuré (Fig. 2.14). La variation de la position du pic en fonction de la tension appliquée suit une loi puissance, comme l'illustre la figure 2.15 issue des mesure de la position des pics du spectre figure 2.14. Ils ont été mesuré sur un Triathler dont les caractéristiques du photomultiplicateur sont inconnues. Dans l'hypothèse où il possède douze dynodes, alors le coefficient  $\alpha$  (Eq. 2.9) pour notre appareil est de 0,8.

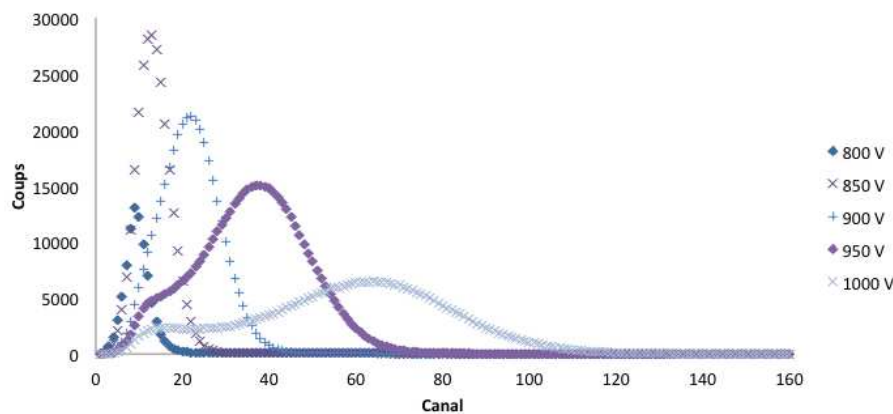


FIGURE 2.14 – Influence de la tension dans la fenêtre 0-120 correspondant au pic de chimiluminescence sur notre Triathler.

Un photomultiplicateur est aussi caractérisé par la distribution de charge à l'anode résultante d'un électron unique à la cathode. La distribution du flux de photons incidents suit une loi de Poisson, et la réponse du photomultiplicateur pour un photon suit une loi binomial (il y a ou il n'y a pas de signal). La convolution des deux lois permet de dire que le nombre de photoélectrons émis par la photocathode

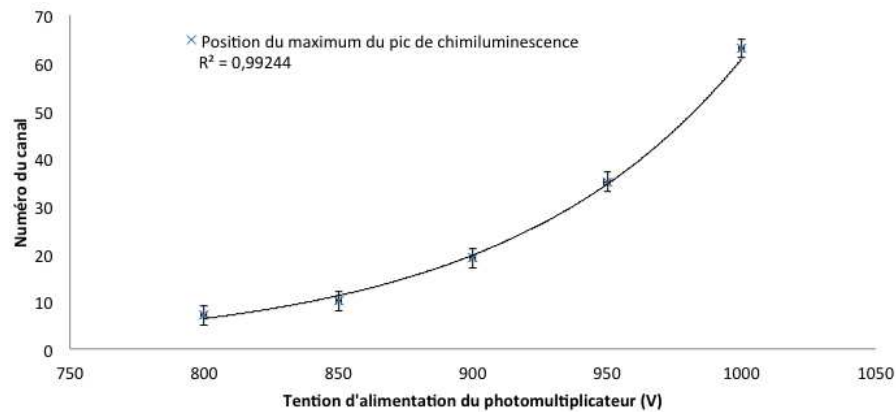


FIGURE 2.15 – Variation de la position du pic de chimiluminescence (Fig. 2.14) en fonction de la tension avec un ajustement en loi puissance, avec un coefficient de détermination  $R^2$  à 99,244%.

suit aussi une loi de Poisson. Le pic obtenu permet d'étudier le gain moyen du photomultiplicateur et ses propriétés statistiques (Fig. 2.16). Plus le rapport pic/vallée et la résolution sont élevés, meilleur est le photomultiplicateur.

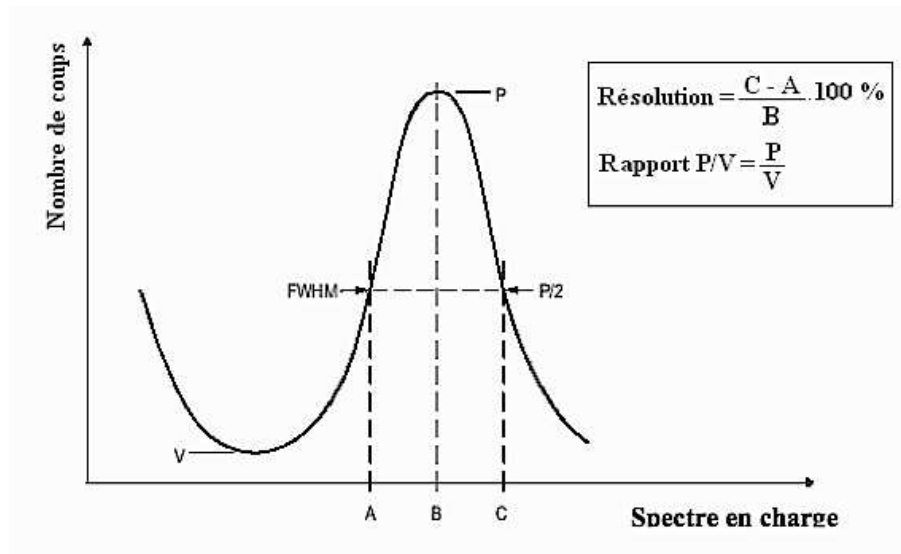


FIGURE 2.16 – Exemple de spectre d'électron unique [Dornic 2006].

### Réponse temporelle

Le temps de réponse d'un photomultiplicateur est déterminé par la trajectoire des électrons dans le tube. Du fait de la dispersion le long du trajet, l'impulsion en sortie a donc certaines caractéristiques :

- durée de la réponse (largeur à mi-hauteur),  $t_w$  ;
- temps de montée, défini entre 10% et 90%,  $t_r$  ;
- temps de transit : temps entre l'illumination de la photocathode et la réponse,  $t_t$  ;
- dispersion en temps de transit (*jitter*),  $t_j$ .

### Courant d'obscurité

Le courant d'obscurité est de deux sortes. Une composante continue due aux fuites ohmiques à la surface du verre et des isolants, surtout notable à faible gain et une composante impulsionnelle due aux émissions thermoélectriques, de champ ou la radioactivité ambiante.

### Post-impulsions

Les post impulsions sont des impulsions retardées corrélées avec l'impulsion principale. Le retard peut varier de plusieurs nanosecondes jusqu'à quelques dizaines de microsecondes et on en distingue deux sortes suivant le temps de retard [?]. Celles rapides ont pour origine un photoélectron, arrivant sur la première dynode, rétrodiffusé de manière élastique ou inélastique sans faire d'émission secondaire, qui remonte dans le tube puis est recollecté sur la première dynode. Les signaux en retard de quelques centaines de nanosecondes ont pour origine l'ionisation des atomes ou des molécules de gaz résiduels à l'intérieur du tube. Lors de l'ionisation, un second électron est créé et l'ion positif est accéléré par le champ électrique jusqu'à la photocathode. Le choc de l'ion avec la photocathode produit, par émission secondaire, un ou plusieurs électrons, qui se comportent comme des photoélectrons. Le retard dépend directement du type de l'ion, de la géométrie du photomultiplicateur et de la configuration du champ électrique.

Afin de s'affranchir du nombre de post-impulsions, il faut prévoir dans la chaîne de lecture un temps mort suite à une détection assez importante. Même la coïncidence ne permet pas forcément de ne pas compter les post-impulsions car elles peuvent être dans le temps de coïncidence puisqu'elles sont corrélées à la même primo impulsion.

### Courant de sortie et incertitude

En fonction de tout ce que nous venons de voir et en prenant pour hypothèse que le nombre de photoélectrons suit une loi de Poisson, le courant moyen en sortie du photomultiplicateur  $\overline{S(t)}$  et sa variance  $\varepsilon_S^2(t)$  peuvent s'écrire [Gatti 1970] :

$$\overline{S(t)} = R \int_0^t I(\tau) F(t - \tau) d\tau \quad (2.10)$$

$$\varepsilon_S^2(t) = (1 + \varepsilon_{S_D}^2) R \int_0^t I(\tau) F^2(t - \tau) d\tau \quad (2.11)$$

Avec :

- $I(t)$  l'illumination de la photocathode, définie par la fonction de densité de probabilité qu'un électron atteigne la première dynode au temps  $t$  ;
- $F(t)$  la fonction réponse à l'électron unique ;
- $R$  le nombre moyen de photoélectron par évènement ;
- $\varepsilon_{S_D}^2$  l'incertitude relative de la multiplication des électrons,  
 $\varepsilon_{S_D}^2 = (G^{1/N} - 1)^{-1}$  (Eq. 2.9).

### 2.2.3.2 Amplification et mise en forme

#### Le préamplificateur

L'étage de préamplification (Fig. 2.17) permet l'adaptation d'impédance entre le photomultiplicateur et l'amplificateur, et souvent il intègre la charge après un filtre passe-bas. C'est schématiquement fait à travers un condensateur qui se charge quand le signal est là, puis il se décharge selon la constante de temps du circuit, généralement  $50 \mu s$ . Cette intégration fait perdre au signal toute information temporelle mais permet un traitement en énergie plus simple et précis.

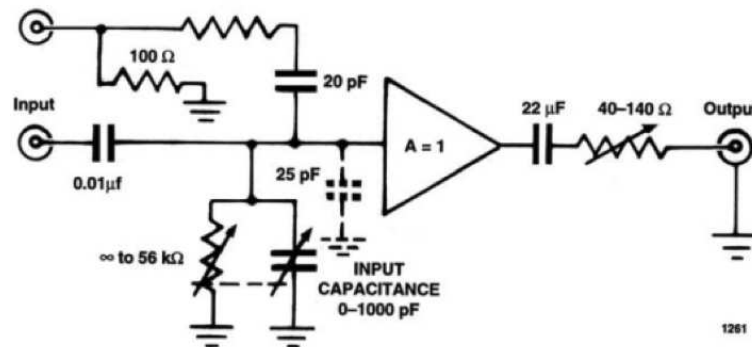


FIGURE 2.17 – Schéma simplifié d'un préamplificateur (Ortec 113).

#### L'amplificateur

L'amplificateur permet de mettre en forme et d'amplifier le signal pour l'adapter avec l'entrée de l'analyseur. En effet celui-ci peut ne pas fonctionner correctement,



par exemple si la pente du signal est trop abrupte. Ce type de mise en forme est fait par un circuit type  $RC - (CR)^n$ , dont il est admis qu'après quatre étages ( $n = 4$ ) la forme du signal en sortie peut être considérée comme gaussienne [Knoll 1979]. L'information énergétique est donc exploitable, mais il y a une perte totale des informations temporelles. L'amplificateur permet aussi le réglage du pôle zéro, qui minimise le temps de retour à zéro du signal et évite les oscillations (Fig. 2.18). Il est dû aux réponses des condensateurs filtre passe-haut des différents étages (pont du photomultiplicateur et préampli).

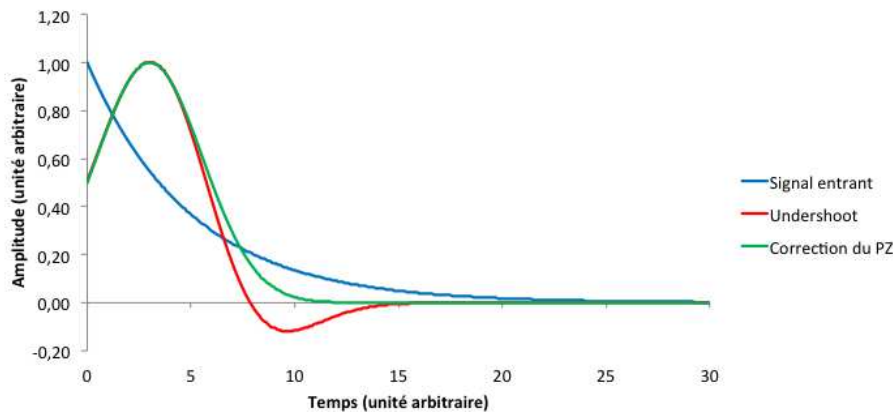


FIGURE 2.18 – Illustration du réglage du pôle zéro.

Cet étage permet donc d'améliorer la mesure de l'énergie du signal incident en améliorant considérablement le rapport signal-sur-bruit, par contre toute information temporelle est définitivement perdue par les mises en forme.

### L'analyseur

Le MCA (Multi Channel Analyser), est le circuit électronique permettant l'association entre l'énergie mesurée et le spectre en canaux. Cet échantillonnage peut être réalisé de façon logarithmique ou linéaire. En mode linéaire, l'énergie correspondante à chaque canal est constante. Par contre, le mode logarithmique amplifie les basses énergies et beaucoup moins les hautes. Ce choix influe sur la position des différents spectres, ainsi que l'illustre la figure 2.19, représentant les spectres dans les deux modes d'une source de  $^3\text{H}$  mesurée sur le Tirathler au GEA. Ainsi la forme des spectres, pour une même source et un même temps de comptage, varie fortement d'un mode à l'autre.

#### 2.2.4 Les montages

Outre le maintien logique de l'obscurité dans le détecteur (pour le photomultiplicateur et pour la détection), il existe un certain nombre de variations permettant d'améliorer la détection, et donc les limites de détection. De plus, nous allons dans

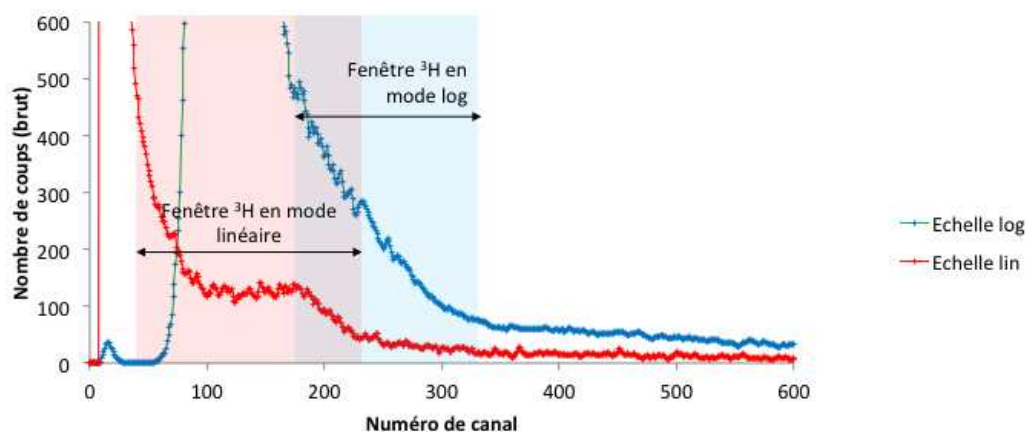


FIGURE 2.19 – Comparaison des modes linéaire et logarithmique du MCA avec un échantillon de  $^3\text{H}$  en Filter Count pour un comptage de 30 min à 842 V sur le Triathler du GEA.

toute la suite appeler « fiole » l'élément contenant le mélange « liquide scintillant » et radioéléments.

#### 2.2.4.1 La collection des photons

Le premier facteur d'influence concerne le nombre de photons pouvant être collecté par le photomultiplicateur. Le phénomène de scintillation étant isotrope, il y a dans un premier temps un miroir qui permet d'augmenter le nombre de photons dirigés vers le photomultiplicateur (Fig. 2.20). Dans un second temps il faut minimiser les changements d'indice optique à chacune des interfaces.

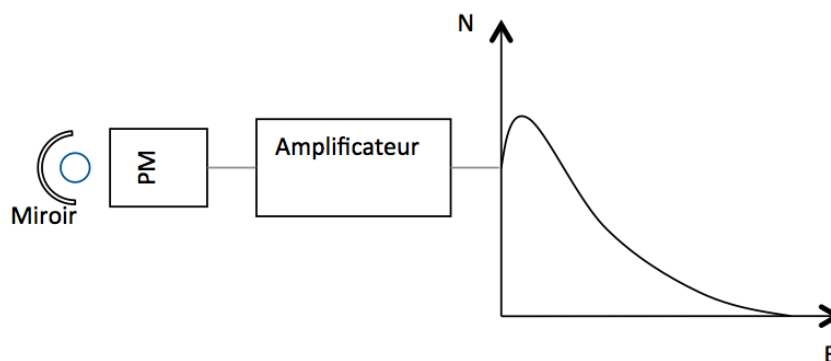


FIGURE 2.20 – Schéma synoptique d'une chaîne de détection à scintillation.

### Le miroir

Il s'agit d'un miroir réfléchissant les photons dans une gamme proche UV (300 et 500 nm). Il ne peut pas non plus focaliser la lumière car la zone d'émission est diffuse et non ponctuelle ou plane. Il est constitué d'une épaisseur de peinture blanche, composée majoritairement d'oxyde de magnésium ou de sulfate de baryum, répartie sur un cylindre ou une sphère tronquée entourant l'échantillon (Fig. 2.21), en au moins six couches.



FIGURE 2.21 – Exemple de miroirs pour la scintillation liquide (Triathler) [Hidex b].

### Les interfaces

Avant d'aller frapper la photocathode, les photons traversent généralement trois interfaces :

- liquide scintillant - fiole (verre ou plastique) ;
- fiole - air ;
- air - photocathode.

La première interface est entre le liquide scintillant et la fiole. Les fioles sont généralement de deux sortes. Celles en verre ont l'avantage d'être chimiquement inertes et ont une surface d'épaisseur constante. Par contre, le verre peut adsorber les radionucléides : il est nécessaire de « boucher » ces sites d'adsorption par une acidification préalable, ce qui a des inconvénients. Quant aux fioles en plastique (polyéthylène haute-densité PEHD), elles ne sont pas chimiquement inertes, mais elles permettent un niveau de détection plus faible que celles en verre avec une meilleure efficacité de comptage du fait de la non-transparence du matériau, et un indice optique sensiblement égal (1,54). En effet, lors d'une émission de lumière dans une fiole en verre, le photomultiplicateur voit une source ponctuelle à l'intérieur ; le même phénomène dans une fiole en plastique a un autre impact : la fiole diffuse sur toute sa surface et le photomultiplicateur voit la fiole comme la source de lumière.

Afin de favoriser les transmissions par rapport aux réflexions, il faut que les indices des différents matériaux soient aussi proches que possible. Dans la plupart

Élément	$n$	Élément	$n$
Air	1,00027	Quartz cristal	1,544
Toluène	1,494	Quartz amorphe	1,458
Pseudocumène	1,504	Silice	1,87
Huile de silicone	1,495	PEHD	1,540

TABLE 2.4 – Indice de réfraction  $n$  de quelques matériaux.

des appareils commerciaux, les transmissions ne sont pas explicitement favorisées. Cependant, le plus important saut d'indice étant dû à l'air, celui-ci est parfois remplacé par une graisse optique d'indice équivalent au verre (huile de silicone). De plus, des modifications sur la surface externe des fioles en verre (comme un dépôt) permettent d'améliorer les performances. On passe d'une source uniforme en volume à une source uniforme en surface : le flacon devient source secondaire. On retrouve les avantages des fioles en plastique en termes de classification  $\alpha/\beta$  et aussi de résolution en énergie, avec les propriétés chimiques du verre.

#### 2.2.4.2 Protection vis-à-vis des phénomènes externes

Les phénomènes externes pouvant avoir un impact sur les mesures sont la température, dont on a vu les effets sur le liquide scintillant, la lumière, et surtout les rayonnements cosmiques ou telluriques.

#### Coïncidence

C'est un montage classique en scintillation (Fig. 2.25). Celui-ci permet d'éliminer beaucoup de bruit car l'émission de scintillation est isotrope, contrairement à beaucoup de signaux de bruit, comme un  $\gamma$  qui frappe directement un photomultiplicateur. Ainsi, les impulsions thermiques des photomultiplicateurs sont éliminées.

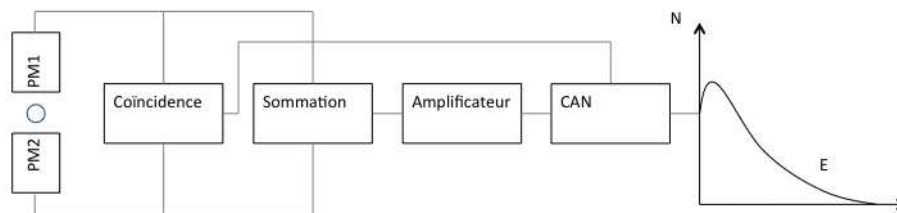


FIGURE 2.22 – Schéma synoptique d'une chaîne de détection à scintillation en coïncidence.

Cependant, ce circuit de coïncidence peut éliminer aussi les effets de phosphorescence. En effet, la phosphorescence est un phénomène à photon unique. Ces photons sont émis de façon aléatoire à chaque fois, et ne vont que vers un

photomultiplicateur, pas forcément sur les deux. Seul 10% d'entre eux vont faire des photoélectrons [Packard]. Ainsi, toute analyse sur la forme ou le temps des impulsions sont faites avec un seul photomultiplicateur, l'autre étant le moniteur.

L'efficacité de détection en cas de coïncidence double est modifiée selon [Ansoborlo 2009], avec deux photomultiplicateurs identiques :

$$R = (1 - e^{-\frac{\nu E}{2}})^2 \quad (2.12)$$

avec  $E$  l'énergie du rayonnement incident et  $\nu$  le rendement de détection d'un photomultiplicateur. Ainsi, avec un rendement quantique des photocathodes standard de 25% et pour un rayonnement  $\alpha$  ( $E > 3$  MeV), le rendement est unitaire.

### Blindage au plomb

Afin de garantir une protection face à l'environnement extérieur, la chambre de détection (photomultiplicateurs + fiole) est entourée de plomb (Fig. 2.23). Ce matériau à  $Z$  élevé a une grande section efficace d'interaction avec les photons, ce qui lui permet donc d'être le bouclier entre la chambre de détection et l'extérieur. Cependant, le plomb peut contenir une infime quantité d'éléments radioactifs, et une couche d'un demi centimètre de plomb archéologique recouvre la partie interne de la chambre, c'est-à-dire du plomb coulé depuis longtemps et qui a donc eu le temps de décroître.

Face aux rayonnements extérieurs, le plomb peut être activé et émettre des X. Une couronne de cuivre est alors ajoutée afin d'absorber ces rayonnements. Le blindage est donc formé de trois couches : plomb naturel, plomb archéologique et cuivre.

Cependant, il existe une épaisseur optimale de blindage, compromis entre les rayonnements extérieurs atténués et les rayonnements secondaires induits.

### Anneaux de garde

L'anneau de garde (Fig. 2.24) permet d'améliorer encore le dispositif en entourant la chambre de détection d'un détecteur, comme un scintillateur liquide minéral. Ainsi, celui-ci travaille en anti-coïncidence par rapport aux deux photomultiplicateurs. Un signal reçu par l'anneau et par les photomultiplicateurs en « même temps » est le signe d'une impulsion de non scintillation qui ne doit pas être prise en compte.

#### 2.2.4.3 Protection vis-à-vis des phénomènes internes

##### Stabilisation en température

On a vu que les photomultiplicateurs sont sensibles à la température (Cf. 2.2.3.1) et fonctionner à basse température réduit les impulsions thermiques. Le liquide scintillant aussi n'est efficace que dans une certaine plage de température, la plus basse possible pour éviter au maximum le bruit thermique, mais pas trop pour

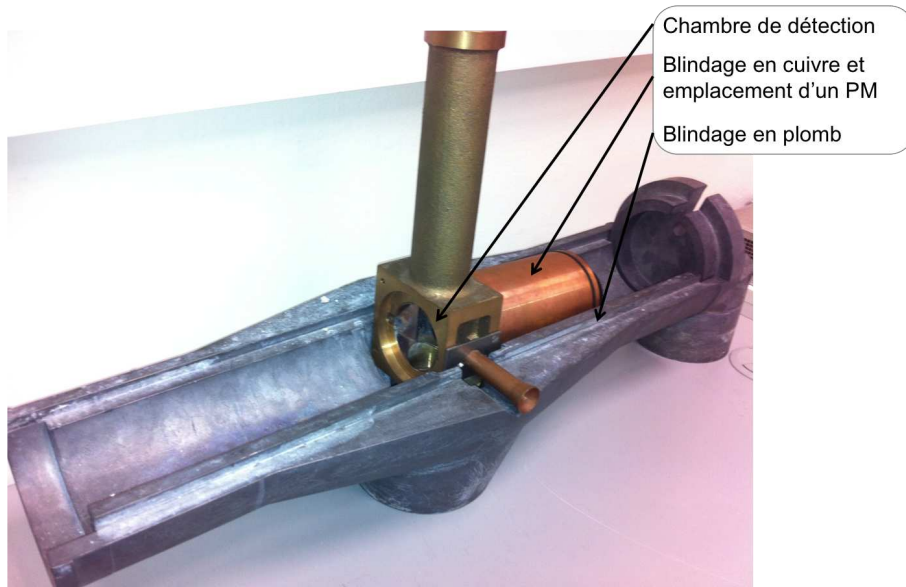


FIGURE 2.23 – Photographie de l'intérieur d'un détecteur. La chambre de détection et les phomultiplicateurs sont entourés d'une épaisseur de cuivre puis de plomb. On peut remarquer que le miroir de la chambre de détection est métallique et non blanc.

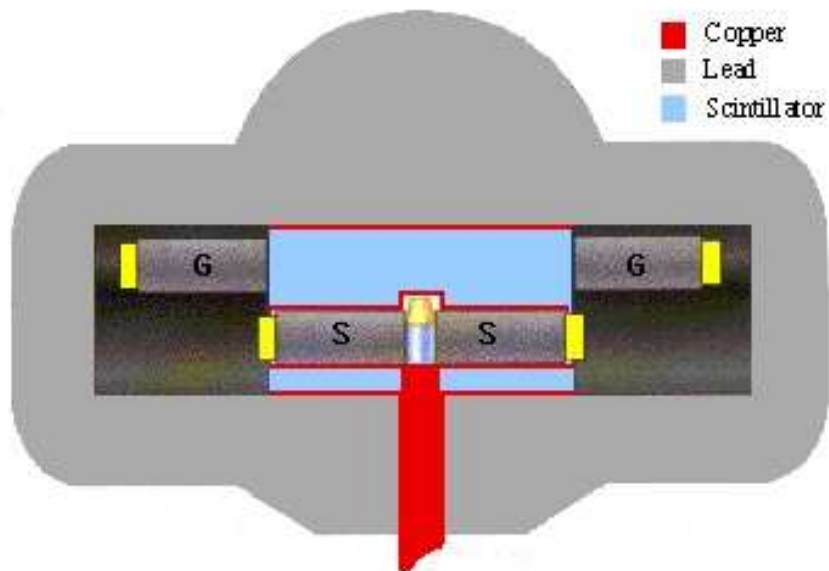


FIGURE 2.24 – Schéma du blindage d'un compteur. Le blindage passif est composé en majorité de plomb et d'une couronne de cuivre. Le blindage actif est composé d'un scintillateur et des phomultiplicateurs *G* entourant la chambre de détection avec les phomultiplicateurs *S*.

ne pas faire perdre au liquide scintillant ses propriétés. Ainsi, la température des appareils est stabilisée, généralement entre 10 et 15 °C.

### Correction de la luminescence

Certains appareils sont commercialisés avec un système de correction de luminescence. Cette correction permet d'améliorer la détection des rayonnements de faible énergie en supprimant ceux ne venant pas d'une désintégration. Cette correction est réalisée en éliminant simplement un certain pourcentage des impulsions de faible énergie, de façon statistique et non en étant capable de déterminer le type des événements reçus.

### Triple coïncidences

Un autre montage est celui dit TDCR, pour *Triple to Double Coincidences Ratio*. C'est un montage développé par le LNHB permettant une mesure absolue de l'activité, spécialement développé pour la détermination de l'activité des émetteurs pur- $\beta$  et pur-EC, pour lesquels les efficacités de détections sont calculées à partir de modèles physique et statistique [LNHB][Cassette 2003]. Ce montage à trois photomultiplicateurs permet la mesure de trois types de coïncidences doubles et d'une coïncidence triple.

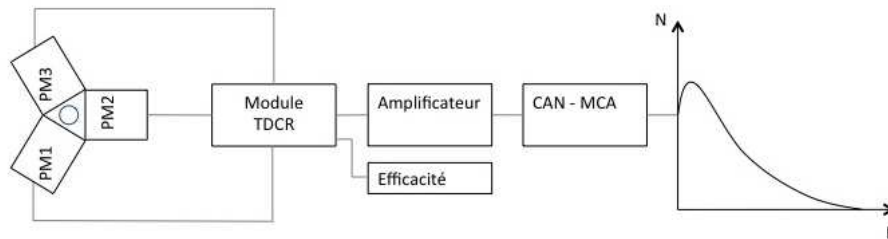


FIGURE 2.25 – Schéma synoptique d'une chaîne de détection à scintillation en coïncidence triple pour la TDCR.

# Traitement et analyse des spectres en énergie

Truth suffers from too much analysis.

Frank Herbert *in Dune messiah*

## Sommaire

<b>3.1</b>	<b>Spectre en scintillation liquide</b>	<b>70</b>
3.1.1	Les différences $\alpha/\beta$	70
3.1.2	Le quenching	71
<b>3.2</b>	<b>Détermination de l'activité <math>\alpha</math> à partir des spectres</b>	<b>80</b>
3.2.1	Séparation manuelle	80
3.2.2	Analyse automatique à deux fenêtres	82
3.2.3	Analyse automatique à trois fenêtres	83
<b>3.3</b>	<b>La mesure <math>^3\text{H}/\alpha</math></b>	<b>85</b>
3.3.1	Méthode	85
3.3.2	Validation de la méthode	89
<b>3.4</b>	<b>Soustraction du fond <math>\beta</math></b>	<b>92</b>
3.4.1	Description	92
3.4.2	Ajustement par une fonction simple	93
3.4.3	Ajustement par un spectre de référence	95
<b>3.5</b>	<b>Conclusion</b>	<b>98</b>



Nous allons voir dans ce chapitre qu'il peut être possible de discriminer les  $\alpha$  des  $\beta$  à partir du spectre en énergie, cumulant les deux types de rayonnements. Ainsi, dans certains cas une lecture directe du spectre permet d'isoler deux zones et de les identifier comme  $\beta$  et  $\alpha$ . Une méthode automatique basée sur trois fenêtres existe et a été utilisée dans la mise en place d'un protocole de mesure de contamination  $^3\text{H}/\alpha$ , décrit dans la seconde partie.

Dans le cas où une lecture directe du spectre ne permet pas de déterminer deux zones indépendantes, on peut, si le ou les pics  $\alpha$  sont visibles, faire une soustraction du fond (bruit et  $\beta$ ) et ainsi obtenir les activités; c'est l'objet de la troisième partie.

### 3.1 Spectre en scintillation liquide

#### 3.1.1 Les différences $\alpha/\beta$

Les rayonnements  $\alpha$  et  $\beta$  ont dans le liquide scintillant des impacts différents car les énergies mises en jeu ne sont pas les mêmes : jusqu'à 2 MeV pour les  $\beta$ , et entre 4 et 8 MeV pour les  $\alpha$ . Ainsi le dépôt d'énergie dans le liquide scintillant est de même différent. On a vu que le composant majoritaire d'un liquide scintillant est le solvant, et c'est donc avec un solvant commun que nous allons illustrer ce point.

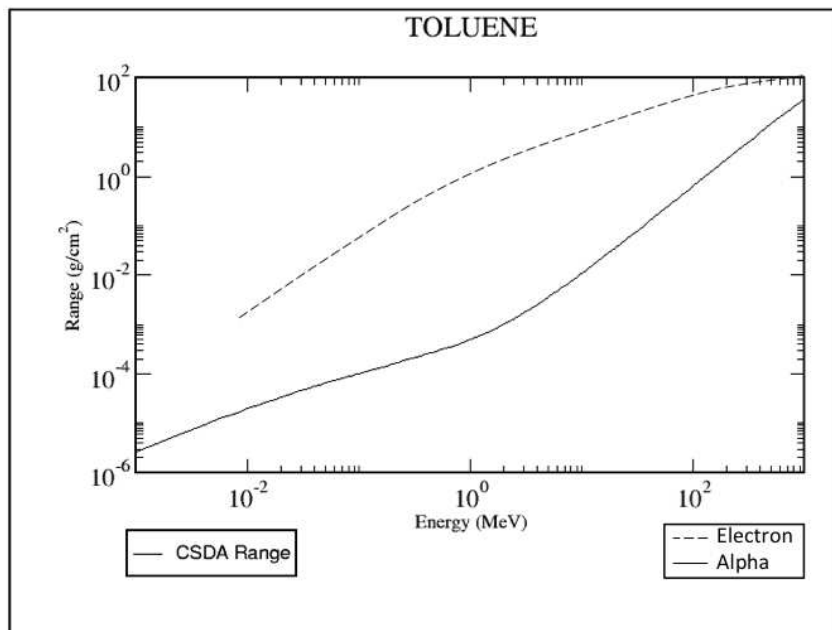


FIGURE 3.1 – Parcours des  $\beta$  et des  $\alpha$  dans du toluène (ASTAR et ESTAR – NIST) [Berger 2005].

La figure 3.1 représente les parcours des  $\alpha$  et des  $\beta$  dans du toluène. Les différents

parcours implique en termes de densité d'états excités du liquide scintillant une différence similaire : un  $\alpha$  dépose son énergie sur une très courte distance, tandis qu'un  $\beta$  déposera beaucoup moins d'énergie sur une distance plus longue.

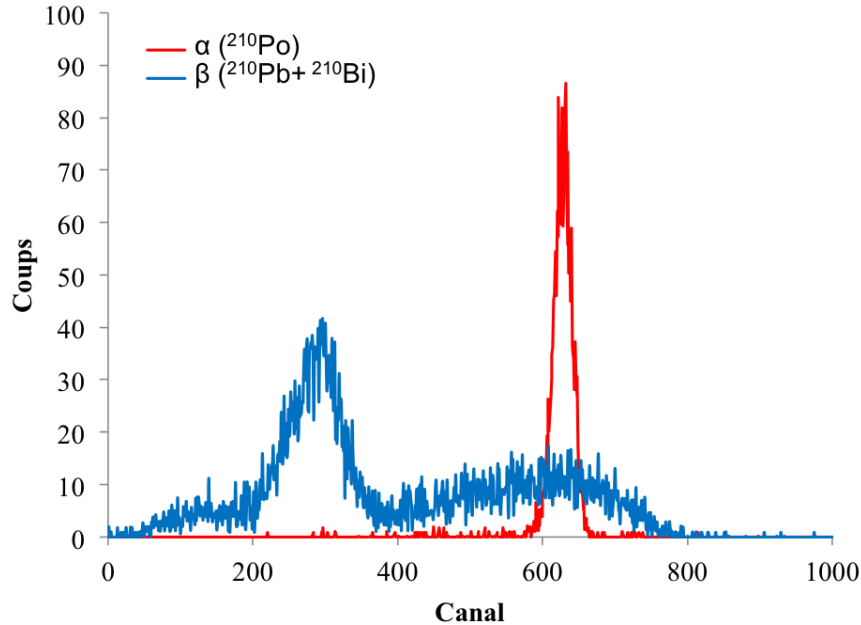


FIGURE 3.2 – Spectre  $\alpha/\beta$  ( $^{210}\text{Pb}$  -  $^{210}\text{Bi}$  -  $^{210}\text{Po}$ ), pic  $\alpha$  ( $^{210}\text{Po}$ ) au canal 630,  $\beta_{\text{max}}$   $^{210}\text{Pb}$  au canal 380 et  $\beta_{\text{max}}$   $^{210}\text{Bi}$  au canal 800. Spectre réalisé sur le Quantulus du RaMsEs.

Cependant, cette même différence d'états excités de trois décades conduit presque 90% des molécules excitées produites par le passage d'un  $\alpha$  à subir un quenching systématique dû à des réactions compétitives (Tab. 2.3) liées à la densité d'énergie déposée. L'excitation du liquide scintillant par un  $\alpha$  produit alors en moyenne le même nombre de photon par MeV qu'un  $\beta$  d'un dixième de son énergie [Horrocks 1974]. On a donc sur un spectre en énergie les  $\alpha$  et les  $\beta$  superposés (Fig. 3.2), au contraire d'autres méthodes de détection  $\alpha/\beta$  pour lesquelles une séparation énergétique est possible.

C'est pourquoi nous allons dans un premier temps étudier l'analyse spectrale des mesures de scintillation liquide. Par contre, il va aussi falloir tenir compte d'un phénomène que nous n'avons fait qu'évoquer dans le chapitre précédent : le quenching.

### 3.1.2 Le quenching

Nous avons vu que toutes les désexcitations des molécules ne conduisaient pas à l'émission de lumière. L'ensemble des phénomènes dissipatifs dans les mécanismes

de transfert entre l'émission de rayonnements et la détection des photons, et qui *in fine* entraîne une perte de comptage, est regroupé sous le vocable **quenching**. Mathématiquement, les différents sources de quenching peuvent être vues comme des paramètres libres modifiant le résultat donné par la formule semi-empirique de Birks (Eq. 2.7).

### 3.1.2.1 Les différents quenchings

On distingue généralement trois types de quenchings différents suivant l'action du phénomène et de son résultat : chimique, lumineux et d'ionisation [Takiue 1991] (Fig. 3.3). Nous décrirons ensuite quatre paramètres externes pouvant avoir un impact sur un comptage.

Le **quenching chimique** est dû à la présence d'espèces chimiques susceptibles de désexciter les molécules de solvant avant qu'elles n'aient pu transmettre leur énergie au soluté scintillant. Les agents quenchant peuvent être simplement l'eau ou l'acide, comme celui stabilisant les sources radioactives ( $\text{HNO}_3$ ).

Le **quenching lumineux** est dû à la présence d'espèces chimiques ou colorées susceptibles d'absorber les photons avant qu'ils n'aient pu transmettre leur énergie au détecteur. Cela peut aussi conduire à une anisotropie d'émission de la lumière, très dommageable pour les compteurs utilisant les phénomènes de coïncidences, doubles ou triples.

Le **quenching d'ionisation** regroupe les désexcitations non radiatives dues à des réactions entre des espèces excitées. C'est un phénomène statistique dont la probabilité augmente avec la densité locale d'espèces excitées.

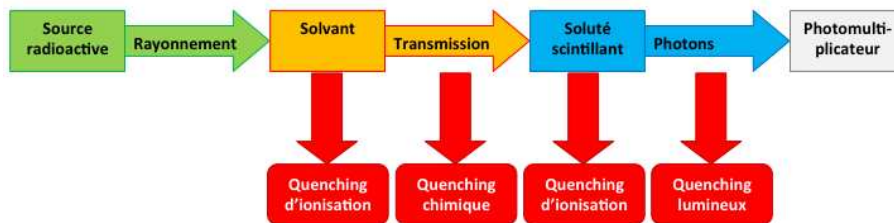


FIGURE 3.3 – Quenching dans la chaîne de transfert en scintillation liquide.

Schématiquement, les quenchings de couleur et chimique, celui d'ionisation n'étant pas simplement différenciable du dernier, ont deux impacts différents : un décalage du spectre vers les basses énergies pour le premier et une baisse du taux de comptage pour le second (Fig. 3.4).

Certaines espèces chimiques, comme les espèces azotées, produisent un quenching lumineux dû à l'apparition d'espèces absorbantes pour les longueurs d'onde émises (jaunissement de la solution). Elles produisent aussi un quenching chimique du fait de réactions d'oxydo-réduction avec les ions (nitrate), sans production de lumière.

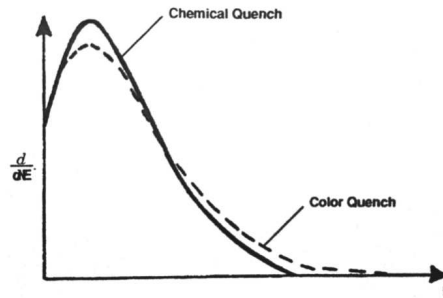


FIGURE 3.4 – Comparaison de quenchant de couleur et chimique sur un spectre [Packard]. On observe une diminution du nombre d'évènements due au quenching chimique et un décalage vers les basses énergies par le quenching de couleur.

### 3.1.2.2 La mesure du quenching

Les indicateurs de quenching associent une valeur numérique au quenching de l'échantillon. Il existe plusieurs façons de les déterminer, mais seulement par quatre types de techniques [Kessler 1989] :

- Paramètres fondés sur le spectre de l'échantillon ;
- Paramètres fondés sur un standard externe ;
- Standardisation interne ;
- Courbe d'efficacité en taux de comptage, sans courbe de quenching.

Nous allons présenter ici les deux techniques mises en place par le TriCarb (Modèle 2700TR) et que nous utilisons, le *Spectral Index of the Sample* (SIS) et le *Transformed Spectral Index of External Standard* (tSIE).

#### Mesure par indication interne - SIS

Le SIS<sup>1</sup> utilise les interactions entre la radioactivité de l'échantillon et le scintillateur pour déterminer le niveau de quenching. Ce paramètre est calculé à partir de la hauteur moyenne des impulsions (en keV) de l'échantillon. Pour la plupart des radionucléides, le SIS s'apparente au  $\beta_{moyen}$ . Mathématiquement (Eq. 3.1), le SIS correspond au premier moment de la distribution des hauteurs de pulses  $n(x)$ , avec K une constante fixée.

$$\text{SIS} = K \frac{\sum_{x=0}^u xn(x)}{\sum_{x=0}^u n(x)} \quad (3.1)$$

Cet indicateur est cependant dépendant du taux de comptage, en ce sens que celui-ci doit être suffisant pour avoir une bonne statistique, mais il n'influe pas sur

1. SIS : Spectral Index of the Sample

sa valeur. Malgré cette dépendance, cet indicateur est indépendant du volume de l'échantillon, des effets de bord et de la densité de l'échantillon [Kessler 1989].

### Mesure par indication externe - tSIE

Le tSIE<sup>2</sup> est un indicateur utilisant une source externe  $\gamma$  ( $^{133}\text{Ba}$ ) placée automatiquement sous l'échantillon pour la mesure. Les  $\gamma$  génèrent un spectre Compton par leur passage dans le scintillateur et l'appareil calcule une transformation de ce spectre mesuré (Fig. 3.5), lequel est corrigé des distorsions spectrales. Durant l'étalonnage (IPA), le tSIE est normalisé à 1000 à l'aide d'une source étalon de  $^{14}\text{C}$  non quenchée. L'indicateur varie donc de 0 à 1000 (parfait).

Bien que cette technique ait été développée dans le but d'être la plus idéale et impartiale possible, dans le cas de la mesure d'échantillons empoussiérés<sup>3</sup>, elle ne donne pas les résultats escomptés.

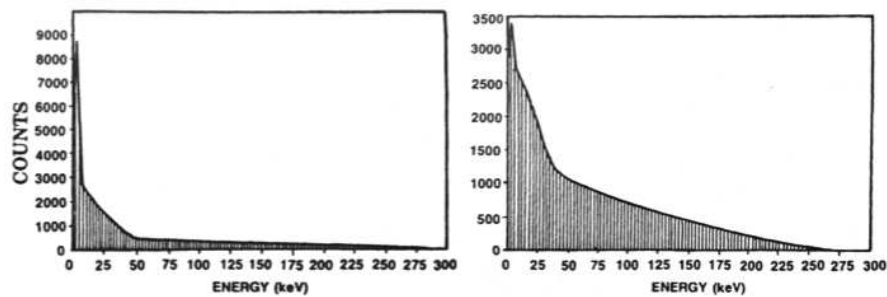


FIGURE 3.5 – Spectre standard et spectre standard externe transformé du  $^{133}\text{Ba}$  [Kessler 1989].

### Mesure par standardisation interne

Cette méthode consiste en l'ajout d'une quantité connue d'un radioélément dont le rendement est parfaitement connue pour différent quenching. Alors la correction de rendement peut être effectuée pour l'échantillon. Cependant, l'ajout d'un élément dans l'échantillon peut aussi influencer le milieu et modifier le quenching...

### Mesure par courbe d'efficacité

Cette une méthode qui permet de retrouver une efficacité de 100% sans aucune courbe de quenching, avec seulement une seule mesure d'un étalon non quenché. Elle peut être utilisé par quasiment tous les émetteurs pur  $\beta$  et pur  $\gamma$  car l'efficacité

2. tSIE : Transformed Spectral Index of External Standard  
3. Cf. Quenching dû à la poussière, 3.1.2.3

découle simplement de la mesure de l'échantillon. Ensuite, l'erreur relative est faible (1 à 5%), et elle permet la mesure simultanée de plusieurs radionucléides.

La procédure à suivre pour initialiser cette méthode est la suivante :

1. un étalon non quenché est mesuré (généralement  $^{14}\text{C}$ ,
2. six efficacités de comptage sont déterminées dans six fenêtres séparées sur le spectre issu de la mesure,
3. ces dernières sont placées dans un graphique mettant en relation les efficacités et le taux de comptage associé,
4. un ajustement linéaire est réalisé et une valeur de taux de comptage est extrapolée au rendement de 100%,

Quand il s'agit d'analyser un échantillon inconnu, le spectre mesuré est analysé dans les mêmes six régions et les résultats sont ajoutés au graphique de référence en utilisant la même abscisse issue de l'étalon. Les points sont ajustés par une fonction et le taux de comptage pour un rendement de 100% est extrapolé.

### 3.1.2.3 Les autres phénomènes perturbateurs

La mesure n'est pas potentiellement perturbée que par les différents quenching vu, d'autres paramètres, tels la température et l'empoussièrement, peuvent aussi avoir une influence. Dans le cadre d'une étude sur la mesure simultanée  $^3\text{H}/\alpha$  sur des frottis, nous avons été amenés à analyser l'impact de quatre facteurs particuliers, dont deux directement liés au quenching tel qu'il a été décrit [Doughiaux 2010].

#### L'éthanol

L'éthanol est un solvant standard en décontamination, et il favorise la récupération de l'éventuelle contamination d'une surface et sa rétention sur le frottis. Cependant, en tant qu'espèce oxygénée neutre, il peut entrer à la fois dans la catégorie du quenching chimique et dans celle du quenching lumineux. Sur un spectre (Fig. 3.6), son influence consiste en un décalage vers les basses énergies. Il y a donc un possible changement de fenêtre, mais pas de perte de comptage.

Comme on peut le remarquer sur l'exemple ci-dessous (Fig. 3.6), le décalage du spectre de  $^{239}\text{Pu}$  est sans influence sur le comptage si la fenêtre  $\alpha$  est définie large. De plus, ce résultat est obtenu en ajoutant au mélange la quantité maximale d'éthanol (Tab. 3.1). Dans un usage normal, la quantité finale ajoutée dans la fiole de scintillation est de l'ordre de 0,2 mL.

#### La couleur

Concernant une perte de rendement de comptage due à de la couleur, nous avons procédé à des tests suivant le système RGB (Red-Green-Blue) et le noir (B). Il apparaît (Fig. 3.7) que la couleur bleue est celle qui a le moins d'impact sur le quenching. Nous avons donc colorié plusieurs frottis avec ces quatre couleurs,

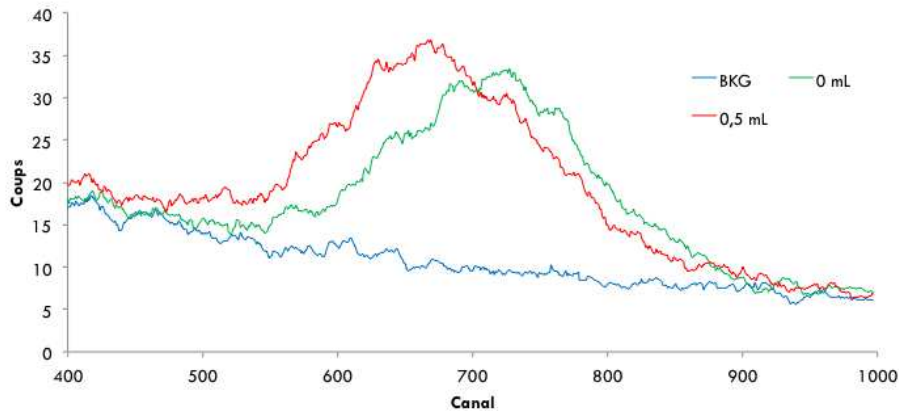


FIGURE 3.6 – Mesure de l'influence de l'ajout de 0,5 mL d'éthanol sur un spectre de  $^{239}\text{Pu}$ , avec un décalage vers les basses énergies, sans influence sur le taux de comptage  $\alpha$  dans la fenêtre [450 ; 950] (Triathler du GEA).

$V_{C_2H_5OH}$ (mL)	$\eta_{^3H}$ (%) (k=2)	$\eta_\alpha$ (%) (k=2)	État du frottis
0,0	$20,7 \pm 0,6$	$99,6 \pm 3,7$	Sec
0,1	$20,5 \pm 0,8$	$98,6 \pm 6,2$	Légèrement humide
0,2	$20,1 \pm 2,5$	$96,2 \pm 5,5$	Usage normal
0,3	-	$100,1 \pm 5,6$	Trop mouillé
0,4	-	$100,6 \pm 5,8$	
0,5	$19,6 \pm 4,5$	$101,0 \pm 5,8$	Limite d'absorption

TABLE 3.1 – Rendement  $^3H$   $\eta_{^3H}$  et  $\alpha$   $\eta_\alpha$  en fonction de la quantité d'éthanol ajoutée  $V_{C_2H_5OH}$  (Triathler du GEA). Le facteur  $k$  est le facteur d'élargissement pour l'expression des incertitudes (Cf. annexe A).

dissous dans du Filter Count<sup>4</sup> et mis à compter sur le TriCarb pour obtenir un indicateur de quenching.

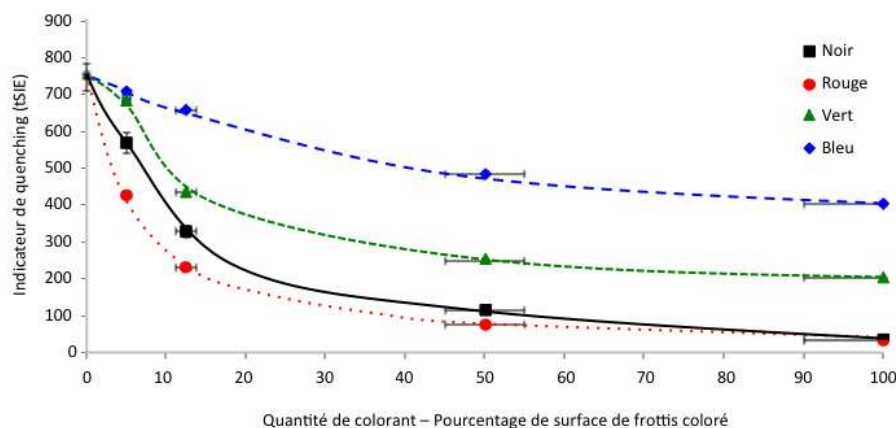


FIGURE 3.7 – Variation du tSIE en fonction de la quantité de couleur incorporée (en pourcentage de surface de frottis colorée).

Dans un premier temps, on peut supposer que ceci est uniquement dû aux spectres d'absorbances des différentes couleurs, en relation avec les spectres d'émission du liquide scintillant. En effet, l'émission de scintillation se situe dans une gamme 350-450 nm, domaine du proche-UV et bleu. Nous avons donc mesuré à l'aide d'un spectrophotomètre<sup>5</sup> l'absorbance d'échantillons représentant les spectres des essais dont les filtres sont colorés à 100% de leurs surfaces (Fig. 3.7). De plus, de façon à pouvoir comparer les spectres entre eux, nous avons normalisé les valeurs par rapport à la masse de colorant mis, celui-ci ayant reposé 1h pour que le solvant s'évapore, et en estimant à partir de l'absorbance totale le pouvoir de coloration de chaque couleur (Tab. 3.2). Les essais (Fig. 3.8) montrent une correspondance notable entre cette absorbance moyenne pondérée  $\overline{A_p}$  et le quenching (tSIE) sur la plage 360-500 nm, plage correspondant à l'émission des liquides scintillants (ici du POPOP<sup>6</sup>). La plage en deçà de 360 nm correspond à des mesures non répétables.

Les valeurs obtenues (Tab. 3.2) montrent l'existence d'une relation entre les valeurs d'absorbance moyenne pondérée sur la plage d'émission du POPOP et la couleur. De plus, en mettant en relation les valeurs de l'indicateur de quenching (tSIE) et celles de l'absorbance, on trouve une relation de propor-

4. Ce liquide scintillant de la société Perkin Elmer a pour solvant le pseudocumène (Triméthyl-1,2,4 benzène, non miscible à l'eau) spécialement fait pour dissoudre les filtre en nitrate de cellulose, ainsi que les esters de cellulose, les PVC et d'autre. Il peut dissoudre les frottis humides ou secs et permet la détermination du quenching par un standard externe. C'est par contre un liquide scintillant très volatil (Flashpoint à 50°C), donc les solutions à base de Filter Count se dégradent assez rapidement (diminution de la quantité de produit et jaunissement).

5. Spectrophotomètre Jenway 6300, de domaine 320-1000nm

6. POPOP : 1,4-bis[5-phényloxazol-2-yl]benzène - Scintillateur secondaire



Couleur	$m_c$ (mg)	$f_c$	$\overline{A_p}$ (360 - 500 nm)	tSIE
Rouge	$0,323 \pm 0,001$	1,0	$0,42 \pm 0,05$	$34,3 \pm 0,7$
Vert	$0,608 \pm 0,001$	0,8	$0,28 \pm 0,02$	$198 \pm 4$
Bleu	$0,380 \pm 0,001$	1,2	$0,18 \pm 0,03$	$400 \pm 8$
Noir	$0,441 \pm 0,001$	0,3	$0,34 \pm 0,06$	$31,4 \pm 0,6$

TABLE 3.2 – Masse de colorant  $m_c$  utilisé pour la spectrométrie ainsi que facteur de pondération  $f_c$ , en correspondance avec  $\overline{A_p}$ , la valeur d'absorbance moyenne pondérée par la masse de colorant et par l'absorbance moyenne dans le visible et l'indicateur de quenching tSIE.

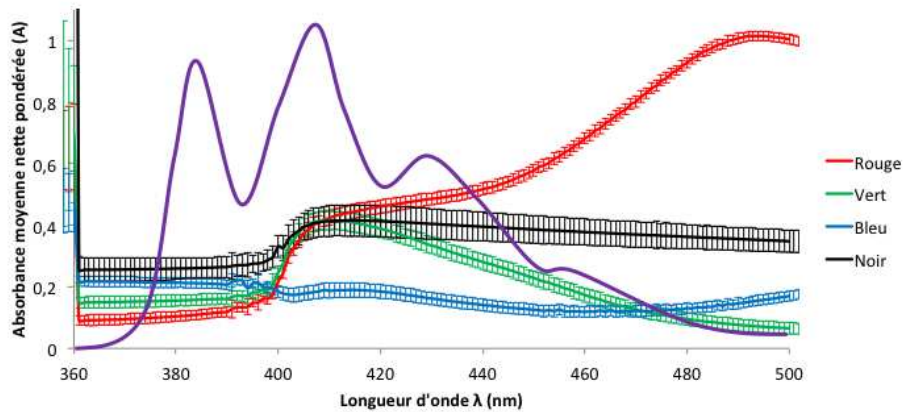


FIGURE 3.8 – Spectres d'absorption RGBB mesurés au GEA en relation avec le spectre d'émission d'une molécule scintillante, le POPOP.

tionnalité avec un coefficient de corrélation  $r^2$  à 93%. Cela confirme l'hypothèse de départ comme quoi le quenching à base de feutres colorés n'est dû qu'à la couleur.

### La température

La température est un paramètre pouvant influencer une mesure. Nous avons compté à intervalles réguliers un échantillon de  $^3\text{H}$  -  $^{239}\text{Pu}$  pendant 24 heures, tout en relevant la température ambiante (Fig. 3.9). L'impact de la température n'est pas visible, pourvu cependant qu'elle reste dans le domaine de tolérance du scintillateur, fixée par le fabriquant.

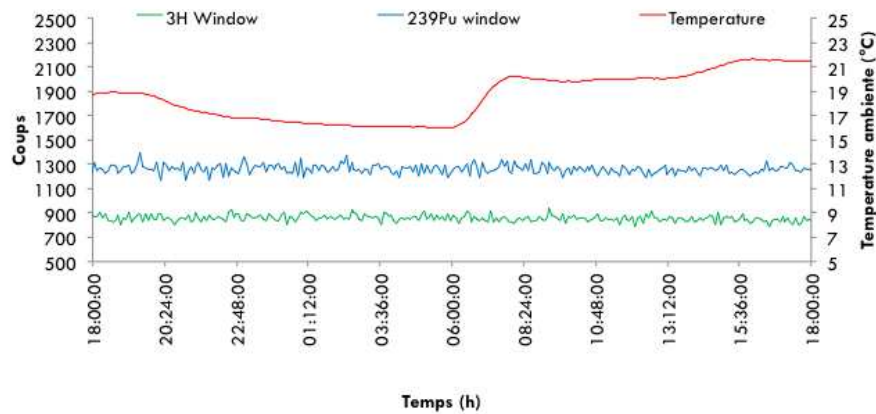


FIGURE 3.9 – Mesure de l'influence de la température dans les fenêtres A et C à l'aide d'un échantillon de  $^3\text{H}$  -  $^{239}\text{Pu}$  en Filter Count compté par répétition de 5 min pendant 24 h sur le Triathler.

### La poussière

De même que pour l'éthanol, lors de la réalisation d'un frottis, l'ajout involontaire d'éléments autres que les éventuels radioéléments dans la fiole de liquide scintillant est probable. Pour ce faire nous avons préparé cinq solutions marquées au  $^3\text{H}$ , avec un filtre plus ou moins sale, dissout dans un liquide scintillant adapté, le Filter Count. Après plusieurs séries de comptages sur un TriCarb, les mesures d'activités sont en accord avec les valeurs de références attendues (activités incorporées). Cependant, la relation rendement-quenching n'existe pas (Fig. 3.10). De plus, la valeur de tSIE pour un blanc avec et sans frottis dissout est la même, ce qui permet de conclure que ce frottis dans ce liquide scintillant n'a pas d'impact.

Toutefois, les incertitudes expérimentales sur les différentes valeurs présentent de grandes disparités. En fait, en considérant les valeurs de tSIE pour chacun des

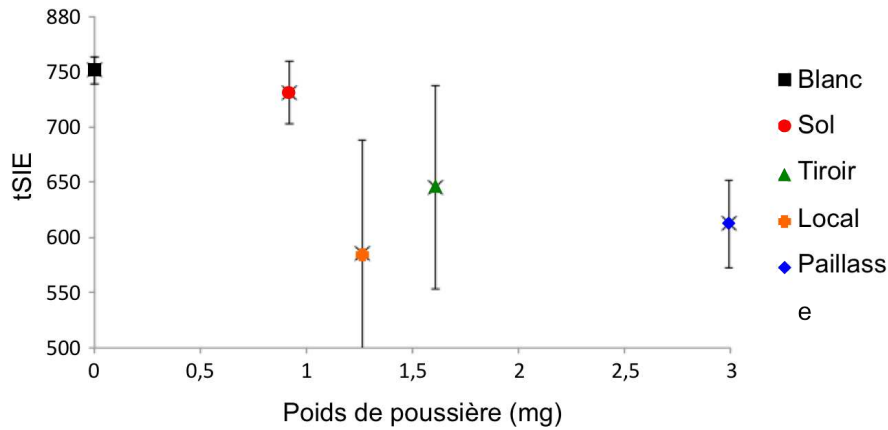


FIGURE 3.10 – Variation du tSIE en fonction de la quantité de poussière.

comptages (Fig. 3.11), on peut remarquer la grande variation au début puis la stabilisation autour d'une certaine valeur, alors que le blanc reste constant. Ceci est dû à la façon dont le tSIE est mesuré par le TriCarb : il utilise une source externe pour déterminer le quenching, située sous l'échantillon. Si on estime que la poussière décante au fur-et-à-mesure des répétitions, le tSIE devient alors de plus en plus faible mais la source se clarifie, ce qui explique la conformité des activités mesurées avec celles attendues. Le tSIE reste donc un indicateur et ne représente pas toujours le quenching de la solution.

## 3.2 Détermination de l'activité $\alpha$ à partir des spectres

La séparation en énergie n'est valable qu'avec des  $\beta$  de faibles énergies. Nous savons que les spectres en énergie  $\alpha$  et  $\beta$  sont indissociables, alors seuls les  $\beta$  dont l'énergie  $\beta_{\max}$  sera inférieure à celle minimale des  $\alpha$  pourront être séparés. L'énergie minimale des  $\alpha$  étant de l'ordre de 3 MeV, on peut admettre pouvoir séparer les  $\alpha$  des  $\beta$  si ces derniers ont un  $\beta_{\max}$  inférieur à au plus 0,3 MeV.

### 3.2.1 Séparation manuelle

Cette séparation en énergie ne peut être faite que par un utilisateur averti. En effet, la forme du spectre d'un élément est caractéristique de l'élément mais aussi du cocktail de scintillation (composition, quenching, etc.). Il s'agit d'abord de reconnaître grâce à l'expérience des spectres typiques  $\beta$  et surtout  $\alpha$ , de façon à les isoler (Fig. 3.12).

Cette méthode ne permet d'isoler que des éléments  $\beta$  de faible énergie, comme

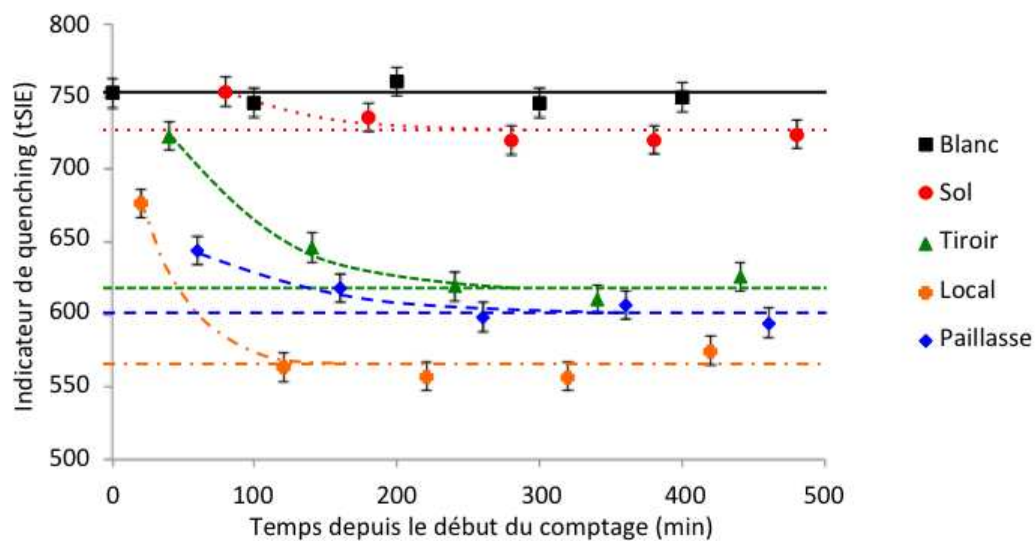


FIGURE 3.11 – Variation de l'indicateur de quenching (tSIE) pour chaque échantillon de frottis sale en fonction du temps de décantation depuis le premier comptage. Les courbes tracées sont pour faciliter la lecture.

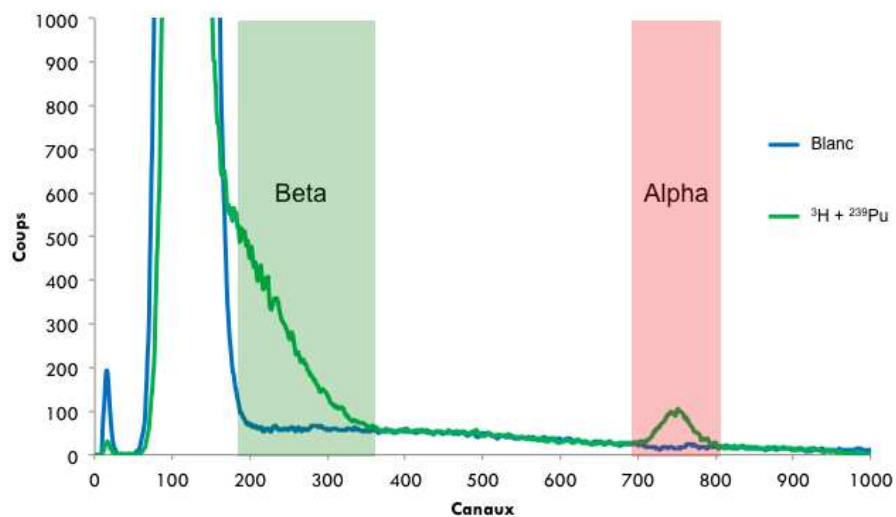


FIGURE 3.12 – Exemple d'un spectre  $^3\text{H}/^{239}\text{Pu}$  sur le Triathler où les deux zone  $\beta$  et  $\alpha$  sont identifiables et définies.

le  $^3\text{H}$  (18,6 keV),  $^{14}\text{C}$  (156,5 keV), le  $^{63}\text{Ni}$  (65,9 keV) ou le  $^{241}\text{Pu}$  (20,8 keV).

### 3.2.2 Analyse automatique à deux fenêtres

Cette méthode est principalement utilisée dans la mesure du  $^3\text{H}$ . En ajustant une fenêtre sur son spectre, et une autre sur une plage plus large, celle du  $^{14}\text{C}$  par exemple (Fig. 3.13), on a donc une fenêtre de mesure et une de contrôle. Si les nombres de coups dans les deux fenêtres sont égaux, alors on peut garantir que la mesure faite est celle du  $^3\text{H}$ . Dans le cas contraire, on ne peut pas se prononcer.

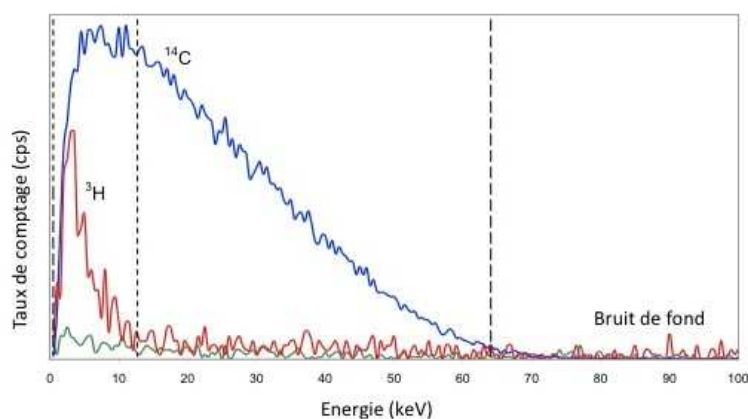


FIGURE 3.13 – Exemple de spectres  $^3\text{H}$  et  $^{14}\text{C}$  sur le TriCarb.

La fenêtre est paramétrée à l'aide de deux mesures : un blanc et une solution de référence ( $^3\text{H}$ ), puis d'une série de calcul de facteurs de mérite (Eq. 3.2) pour plusieurs fenêtres (Fig. 3.14), fonction du rendement  $\eta$  et du taux de comptage du bruit de fond  $r_0$ , tel que :

$$F_m(f) = \frac{\eta^2(f)}{r_0(f)} \quad (3.2)$$

Alors nous avons étudié l'évolution de deux facteurs de mérite, défini l'un par rapport à l'autre :

- $F_{m1}(x)$  est calculé dans la fenêtre  $[x; L_{\max}]$  ;
- $F_{m2}(x)$  est calculé dans la fenêtre  $[L_{\min}; x]$ .

De cette façon :

- $\max(F_{m1}(x)) = F_{m1}(L_{\min})$  ;
- $\max(F_{m2}(x)) = F_{m1}(L_{\max})$ .

Au bout d'environ cinq itérations,  $L_{\min}$  et  $L_{\max}$  n'évoluent plus : la fenêtre optimale au sens du facteur de mérite est déterminée.

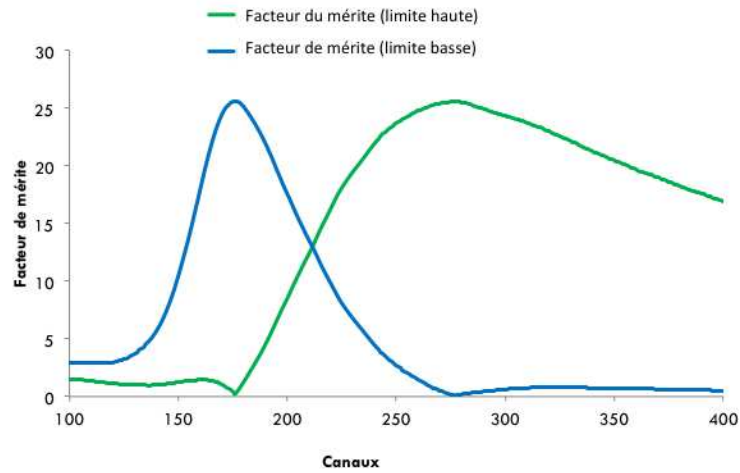


FIGURE 3.14 – Détermination de la fenêtre A ( $^3\text{H}$ ) par variation simultanée de deux facteurs de mérite (cinquième et dernière itération). La fenêtre ainsi déterminée est [176 ; 277].

Avec cette valeur haute, la totalité du spectre  $^3\text{H}$  n'est pas comprise dans la fenêtre, et des coups sont comptés dans la seconde fenêtre, ce que nous ne souhaitons pas. Nous avons donc défini la limite haute à la fin du spectre  $^3\text{H}$ , ce qui maximise son rendement de comptage, mais pas le facteur de mérite précédemment défini. La fenêtre alors choisie est [176 ; 400].

### 3.2.3 Analyse automatique à trois fenêtres

Cette méthode comporte deux fenêtres de mesure, nommées A et C, et une fenêtre de contrôle, B. Définie dans l'ordre A, B puis C, cette méthode permet de faire des mesures de nombre de coups dans A et C, sous condition du nombre de coups dans B. Une attention soigneuse doit donc être apportée dans la sélection de ces fenêtres, spécifique à ce qu'on désire mesurer. Les fenêtres sont parfois présentées dans un autre ordre, BCA, pour  $\beta$ , contrôle et  $\alpha$  ; ici l'ordre alphabétique prime.

Ainsi, dans le cas d'une mesure  $^3\text{H}/\alpha$ , nous pouvons déterminer ces trois régions (Fig. 3.15) sur le Triathler (Hidex) : la fenêtre A pour le  $^3\text{H}$ , la B pour le contrôle et C pour les émetteurs  $\alpha$ , et ainsi garantir que quand la fenêtre B n'enregistre aucun coups, la mesure faite sur A est du  $^3\text{H}$ , et celle sur C des  $\alpha$ .

Les bornes de la fenêtre A sont définies de la même façon que dans la section précédente, même si cette fois la seconde fenêtre ne recouvre plus la première.

La fenêtre C, dédiée aux  $\alpha$ , est définie non-optimisée, c'est-à-dire couvrant la totalité des émissions  $\alpha$ , en prenant en compte un possible quenching (Tab. 3.3).

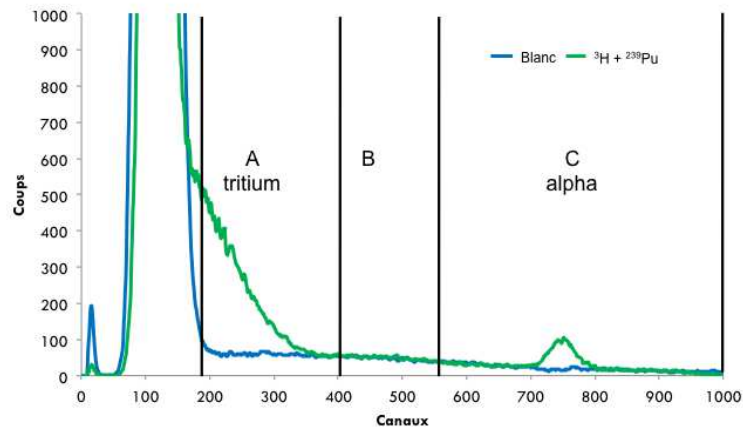


FIGURE 3.15 – Exemple d'un spectre  $^3\text{H}/^{239}\text{Pu}$  sur le Triathler avec les trois fenêtres A, B et C.

Fenêtre	Limite basse	Limite haute	Rendement (%)
A ( $^3\text{H}$ )	176	400	$20,4 \pm 0,8$
B (contrôle)	400	550	-
C (émetteurs $\alpha$ )	550	1000	$99,6 \pm 3,7$

TABLE 3.3 – Paramétrage des fenêtres pour le Triathler.

### 3.3 La mesure $^3\text{H}/\alpha$

Dans cette partie, nous allons développer une procédure permettant une évaluation de la contamination de colis par de simples manipulations, en utilisant un appareil compact : le Triathler (Multi Label Tester) [Doughiaux 2010]. Cette technique associe un comptage simultané  $\alpha/\beta$  d'un frottis avec un système de mesure à scintillation liquide optimisé. Nous allons montrer que ce protocole aide les convoyeurs de matières radioactives à respecter la législation (Accord Européen sur le transport de matières dangereuses par route [ADR]). Notre approche réduit le nombre d'opérateurs et le temps de mesure : elle se fonde sur un frottis dissout dans un liquide scintillant et analysé sur place. Le problème de l'auto-absorption, principalement des  $\alpha$ , intrinsèque au comptage par compteur proportionnel [NF ISO 10704], est alors évité. Il n'y a plus de perte d'efficacité de comptage autre que due au quenching. Avec l'optimisation des paramètres expérimentaux (type de frottis et de cocktail scintillant, tension du photomultiplicateur, temps de stabilisation, mode d'amplification), nous avons pu obtenir des résultats corrects pour les émetteurs  $\alpha$  et  $\beta$ , comme le  $^3\text{H}$  avec une limite de détection de l'ordre de 1 Bq. Bien que déjà existante, ce type de méthode était alors réservé aux laboratoires bénéficiant d'équipements spécifiques et de personnels qualifiés. Désormais ce type de contrôle peut être réalisé in situ, et bien sûr pour toute autre application où un contrôle de contamination s'avère nécessaire.

Beaucoup de pays utilisent leurs infrastructures routières pour transporter des matières dangereuses, ce qui inclut les colis nucléaires. Jusqu'à présent, les colis étaient contrôlés sur place à l'aide de frottis [NF ISO 7503], lesquels étaient analysés ensuite en laboratoire. Habituellement analysés par des compteurs proportionnels  $\alpha/\beta$ , les frottis ne pouvaient révéler aucune contamination au  $^3\text{H}$  du fait de sa trop basse énergie, et les rendements de comptage  $\alpha$  étaient mal connus du fait de la quantité variable de poussière apportée créant de l'auto-absorption des rayonnements  $\alpha$  en plus de celle intrinsèque aux frottis.

Nous proposons donc une méthode permettant une analyse complète in situ, basée sur un comptage par scintillation liquide, ce qui résout les problèmes de la détection des  $\beta$  de faible énergie et du rendement  $\alpha$ . Pour ce faire nous utilisons un cocktail de scintillation permettant la dissolution d'un frottis, un compteur à scintillation liquide portable et un protocole simple, utilisable par un non-spécialiste (Fig. 3.16).

#### 3.3.1 Méthode

##### 3.3.1.1 Le protocole

Un opérateur frotte  $100\text{ cm}^2$  de la surface du colis avec un frottis humide (à l'éthanol), puis prépare deux fioles avec 20 mL de liquide scintillant. La première



sera pour faire une mesure du bruit de fond et aura un frottis propre dissout, tandis que la seconde aura le frottis à analyser.

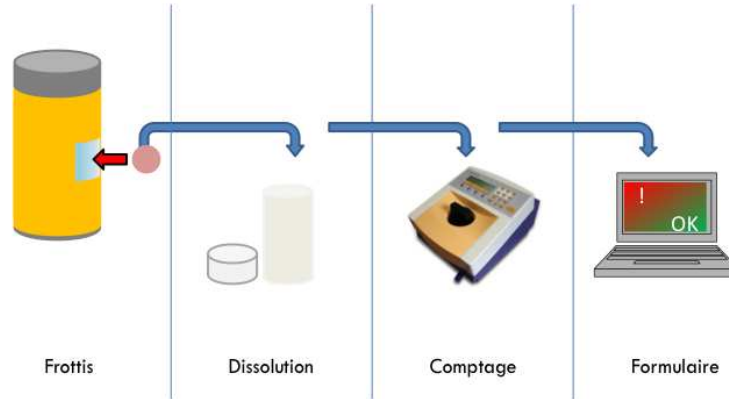


FIGURE 3.16 – Schéma du protocole de mesure.

L'appareil utilisé est un Triathler, développé par la société Hidex, seul compteur à scintillation liquide aussi compact et donc transportable. Nous allons développer dans la suite les différents choix et essais qui ont conduit à ce protocole en particulier.

### 3.3.1.2 Frottis et cocktail de scintillation

La première étape a été la détermination de la combinaison la plus favorable entre un frottis et un liquide scintillant. Nous avons donc mené des tests de dissolution sur cinq types de frottis et quatre liquides scintillants, dont un, le Filter Count, spécialement créé pour dissoudre les filtres.

	Papier filtre	Fibre de verre	Coton	Ester de cellulose	Nitrate de cellulose
Ultima Gold LLT	Non	Non	Non	> 24h	> 24h
Monophase S	Non	Non	Non	Très faible	Très faible
Optiphase Hisafe	Non	Non	Non	Très faible	Très faible
Filter Count	Non	Non	Non	< 15 min	< 15 min

TABLE 3.4 – Solubilité ou temps de dissolution pour différentes combinaisons de frottis et de cocktail de scintillation.

Le Filter Count est le cocktail qui fonctionne le mieux, mais deux types de frottis restent possible (Tab. 3.4). Nous avons donc fait dix répétitions de comptage de 600 minutes de bruit de fond, moitié en fiole de plastique, moitié en fiole de verre, avec le Triathler (Tab. 3.5).

Le bruit de fond est moindre dans un certain cas, et détermine un trio utilisant un filtre en ester de cellulose, de chez Advantec, dissout dans du Filter Count, de

	Fiole en plastique	Fiole en verre
Filter Count + nitrate de cellulose	$8,7 \pm 0,3$	$8,9 \pm 0,3$
Filter Count + ester de cellulose	$7,9 \pm 0,2$	$8,0 \pm 0,2$

TABLE 3.5 – Bruits de fond moyens ( $\text{s}^{-1}$ ) pour la détermination de la matrice de comptage (filtre, liquide scintillant et fiole).

Perkin Elmer, le tout dans une fiole en plastique (Tab. 3.5).

### 3.3.1.3 Tension et MCA de l'appareil

Ce travail cherche à mesurer simultanément des  $\alpha$  et des  $\beta$ . Afin de mesurer des émetteurs  $\beta$ , comme le  $^3\text{H}$  avec des énergies de quelques dizaines de keV, le Triathler doit pouvoir couvrir ces plages d'énergie, mais aussi voir des  $\alpha$  de plus de 5 MeV. Nous avons conservé la tension d'alimentation fixée à 842 V pour notre appareil et positionné le MCA (multi-channel analyzer) en mode logarithmique, ce qui permet de couvrir l'ensemble des plages d'énergie demandées. Ces réglages ne permettent pas la détection la plus efficace pour les  $\alpha$  et les  $\beta$  car chaque émission n'est que sur une petite plage du spectre total.

Nous utilisons comme fenêtres celles données par la méthode des trois fenêtres (Cf. 3.2.3) pour en déterminer une pour le  $^3\text{H}$  (A) et une autre pour les  $\alpha$  (C). La B est la fenêtre de contrôle.

### 3.3.1.4 Influence des $\beta$ autres que le $^3\text{H}$

Dans le cadre de la mesure de frottis *in situ*, nous nous sommes aussi intéressés aux interférences dues aux autres émetteurs  $\beta$  dans les fenêtres déterminées. Nous avons donc déterminé les rendements de détection de quelques radio-isotopes (Tab. 3.6).

Élément	$E_{\beta_{\max}}$ (keV)	Rendement par fenêtre (%)		
		A	B	C
$^3\text{H}$	18,6	$20,4 \pm 0,8$		
$^{14}\text{C}$	156,0	$27,7 \pm 0,8$	$42,0 \pm 0,7$	$23,6 \pm 0,8$
$^{60}\text{Co}$	317,3	$20,6 \pm 0,7$	$19,0 \pm 0,7$	$60,3 \pm 1,8$
$^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$	545,9/2279,8	$20,8 \pm 0,8$	$3,7 \pm 0,1$	$66,5 \pm 2,1$

TABLE 3.6 – Rendement dans les trois fenêtres de quelques émetteurs  $\beta$  communs, déterminé sur le Triathler.

A partir de ces rendements indépendants, nous avons déterminé les rendements dans les trois fenêtres (Tab. 3.7).

Combinaison	Rendement par fenêtre (%)		
	A	B	C
A	20,4	X	X
B	X	Inconnu	X
C	X	X	100
AB	Inconnu	Inconnu	X
AC	20,4	X	100
BC	X	Inconnu	Inconnu
ABC	Inconnu	Inconnu	inconnu

TABLE 3.7 – Rendement utilisé en fonction des combinaisons de fenêtres dans lesquelles des coups sont détectés. Le X correspond à une définition non relevante.

### 3.3.1.5 Discrimination

Il apparaît qu’avec ce protocole simple mis en place nous pouvons garantir l’absence de contamination, mais pas toujours combien le cas échéant. Donc, parce que beaucoup de contaminants ont un impact non négligeable dans les fenêtres B et C, nous avons considéré la discrimination, ce dont le Triathler est capable [Hidex b]. Le résultat est donné sous forme de trois nombres, intégration des trois fenêtres A, B et C.

Pour savoir comment déterminer le facteur de discrimination (PLI – Pulse Length Index), le Triathler donne une matrice  $32 \times 64$ , un sous-échantillonnage d’une matrice  $1024 \times 1024$  mettant en relation canaux et PLI. Quant au liquide scintillant, le Filter Count n’est pas compatible avec une séparation  $\alpha/\beta$  telle qu’elle devrait être avec le Triathler. De plus, le protocole ne permet pas un seuil de discrimination fixe car les perturbateurs (poussière, éthanol, couleur, ...) ont un impact sur la discrimination (Fig. 3.17).

### 3.3.1.6 Seuil de décision et limite de détection

Grâce aux formules du seuil de décision et de la limite de détection<sup>7</sup>, nous pouvons ajuster le temps de comptage en fonction des limites de détection attendues. Ainsi, pour un frottis de  $100 \text{ cm}^2$  avec une efficacité de 10% [NF ISO 7503] et un comptage de 300 s, nous obtenons de bons résultats pour déterminer si le colis peut être transporté (Fig. 3.18). Par contre il faut 1100 s dans les mêmes conditions pour vérifier la contamination  $\alpha$ .

7. Cf. annexe A

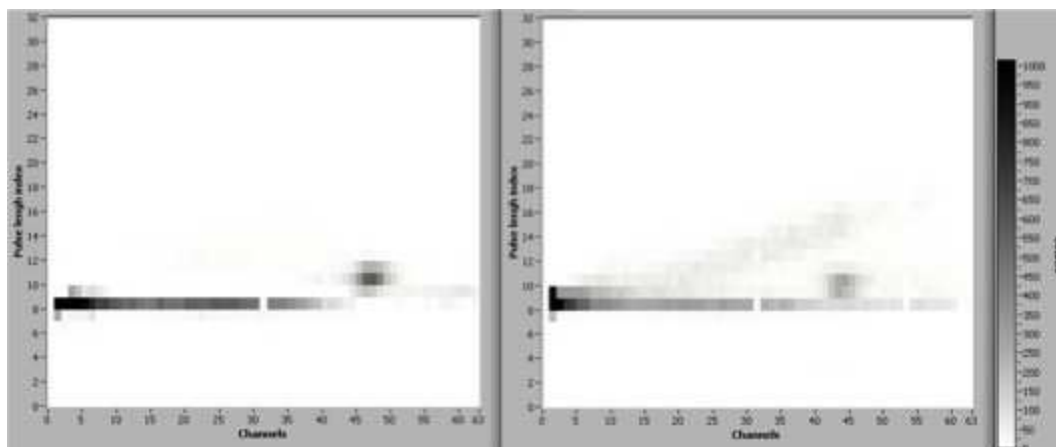


FIGURE 3.17 – Exemple d’une matrice donnée par le Triathler pour aider à la détermination du PLI. La source ( $5,2 \pm 0,26$  Bq de  $^{60}\text{Co}$  et  $2,5 \pm 0,08$  Bq de  $^{239}\text{Pu}$  en Filter Count) est dans deux conditions : à gauche dans des conditions idéales, et à droite avec 0,2 mL d’éthanol et un quenching bleu. La figure de gauche montre un petit cercle  $\alpha$  et un « trait » horizontal  $\beta$ , les deux zones n’étant pas clairement séparées. La figure de droite présente ces deux même zones, mais celle  $\alpha$  est plus claire (moins définie) et une zone oblique est apparue, mettant un terme définitif à toute tentative de discrimination.

### 3.3.2 Validation de la méthode

#### 3.3.2.1 Comparaison des méthodes de mesure

Nous avons déposé 96,5 mg d’une solution de  $^{239}\text{Pu}$  à  $10,7 \pm 0,32$  Bq/g sur une coupelle de 20 cm<sup>2</sup>, dilué dans 5 mL de HNO<sub>3</sub> à 0,5 mol/L. Ce dépôt est évaporé puis frotté avec un filtre Advantec. Le frottis et la coupelle ont été comptés sur un NU20<sup>8</sup>, avec les blancs correspondants, et l’efficacité standard de la coupelle ( $0,23 \pm 0,01$ ). Nous avons ensuite mesuré l’activité du frottis sur un TriCarb et le Triathler (Tab. 3.8).

	Rendement (%)	Activité (Bq)
NU20	23	$0,84 \pm 0,08$
TriCarb	100	$0,91 \pm 0,07$
Triathler	100	$0,90 \pm 0,09$

TABLE 3.8 – Comparaison de la mesure alpha d’un frottis par compteur proportionnel (NU20) et scintillation liquide (Triathler et TriCarb).

Nous pouvons remarquer que le NU20 sous-estime le résultat, comme on pouvait

8. NU20 : compteur  $\alpha/\beta$  proportionnel à gaz (Ar/CH<sub>4</sub>)

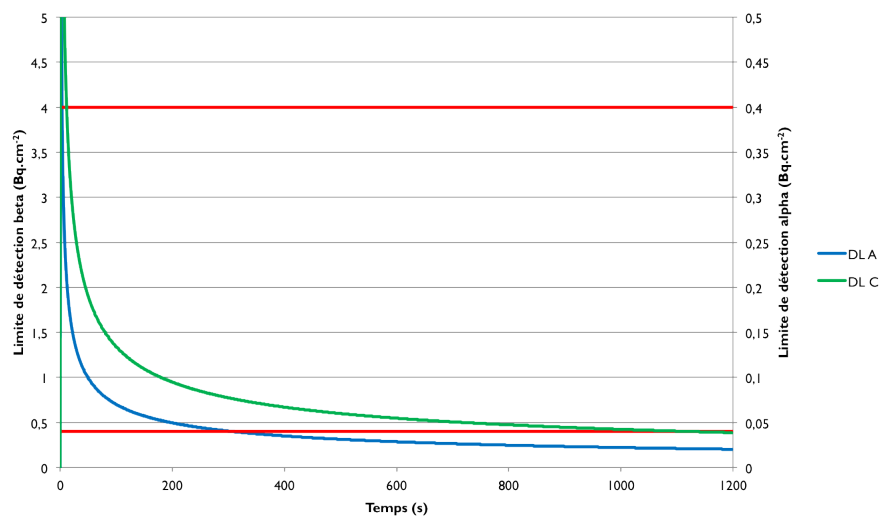


FIGURE 3.18 – Détermination du temps de mesure par rapport aux limites de détection  $\alpha$  et  $\beta$ . Les deux courbes mettant en relation le temps de comptage avec la limite de détection pour les deux fenêtres A et C sont à comparer avec les limites de de transport et de contamination définies par la norme pour les deux types de rayonnements [NF ISO 7503]. Une mesure de 300 s permet donc largement de déterminer la transportabilité d'un colis, et une mesure de 1 100 s en assure la non contamination.

s'y attendre, et ce dû à l'auto-absorption. Ce test nous a aussi permis de valider la méthode en comparant le Triathler à notre référence : le TriCarb.

### 3.3.2.2 Répétabilité et reproductibilité

Nous avons effectué cinq comptages du bruit de fond pour vérifier la répétabilité [NF T90-210] du protocole dans différentes conditions (Tab. 3.9), effectuer au Roule<sup>9</sup> et au GEA.

Lab.	Temps (s)	A ( $\text{s}^{-1}$ brut)			B ( $\text{s}^{-1}$ brut)			C ( $\text{s}^{-1}$ brut)		
		$\mu$	$2u_{exp}$	$2u_{mes}$	$\mu$	$2u_{exp}$	$2u_{mes}$	$\mu$	$2u_{exp}$	$2u_{mes}$
Roule	300	3,6	0,2	0,2	3,2	0,2	0,2	2,8	0,2	0,2
GEA*	300	2,4	0,2	0,2	3,3	0,3	0,2	3,3	0,3	0,2
GEA	300	5,1	0,1	0,3	5,7	0,2	0,3	5,9	0,2	0,3
GEA	600	4,4	0,1	0,2	5,7	0,1	0,2	6,1	0,2	0,2

TABLE 3.9 – Tests de répétabilité (Bruit de fond moyen  $\mu$  ( $\text{s}^{-1}$ ) et incertitudes associées  $u$  (mesurée et expérimentale)) (\* Blindage de plomb ajouté autour détecteur). La définition des fenêtres est pour rappel donnée par le tableau 3.3.

Les dispersions des différents mesurages étant similaires à l'estimation de l'incertitude (Tab. 3.9), nous concluons que ce protocole est répétable. Nous avons donc définie différentes sources (Tab. 3.10) permettant d'en apprécier la reproductibilité. Le tableau 3.11 regroupe l'ensemble des résultats.

Identifiant	Activité $^3\text{H}$ (Bq)	Activité $^{239}\text{Pu}$ (Bq)	
S0		$0,93 \pm 0,02$	
S1	$145,5 \pm 2,2$	$1,10 \pm 0,02$	
S2	$145,3 \pm 2,2$	$1,09 \pm 0,02$	
S3	$145,8 \pm 2,2$	$1,10 \pm 0,02$	
S4q	$145,3 \pm 2,2$	$1,09 \pm 0,02$	quenching bleu

TABLE 3.10 – La liste des sources utilisées.

9. Laboratoire souterrain bas bruit de fond, sous la montagne du Roule, à Cherbourg.

Lab. et source		A ( $s^{-1}$ brut)			B ( $s^{-1}$ brut)			C ( $s^{-1}$ brut)		
		$\mu$	$2u_{exp}$	$2u_{mes}$	$\mu$	$2u_{exp}$	$2u_{mes}$	$\mu$	$2u_{exp}$	$2u_{mes}$
GEA	S0	5,2	0,1	0,3	5,7	0,2	0,3	6,9	0,3	0,3
Roule	S0	3,7	0,2	0,2	3,3	0,2	0,3	3,9	0,3	0,3
GEA	S1	34,8	0,2	0,4	5,9	0,3	0,4	7,1	0,3	0,2
GEA	S2	34,6	0,5	0,6	5,9	0,3	0,4	6,9	0,4	0,3
GEA	S3	35,1	0,4	0,5	5,9	0,3	0,4	6,8	0,2	0,3
GEA	S4q	34,4	0,6	0,6	5,9	0,3	0,4	7,0	0,5	0,3

TABLE 3.11 – Tests de reproductibilité (Taux de comptage moyen  $\mu$  ( $s^{-1}$ ) et incertitudes associés  $u$  (mesurée et expérimentale)) sur quatre sources (Tab. 3.10) et deux lieux avec des comptage de cinq répétitions.

Les essais réalisés montre la reproductibilité de la méthode selon différents axes, tant en lieu de mesure qu'en lieu. On peut remarquer par exemple que l'échantillon S0 (Tab. 3.10) est, comme attendu, au niveau du bruit de fond dans les tableaux 3.9 et 3.11 dans les fenêtres A et B.

## Conclusion

Le trio Filter Count (Perkin Elmer) + ester de cellulose (Advantec) + fiole plastique apparaît être le meilleur compromis :

- dissolution quasi instantanée du frottis dans 20 mL de Filter Count ;
- quenching négligeable dans les conditions définies d'utilisation.

Deux feuilles de calculs standardisées ont été établis pour les convoyeurs. La première décrit comment faire une mesure du bruit de fond, la seconde comment faire la mesure et l'exploiter. Cette méthodologie permet de détecter simplement une éventuelle contamination par un comptage  $\alpha/\beta$  simultané *in situ*.

## 3.4 Soustraction du fond $\beta$

Les méthodes de traitement et d'analyse des spectres en énergie s'appuient sur des techniques d'identification des différentes formes des signaux. Ainsi, comme on l'a vu précédemment, une émission  $\beta$  a un spectre continu, tandis qu'une émission  $\alpha$  a un spectre de raies. Avec un tel schéma, il peut sembler aisé de déterminer et d'identifier qui est  $\alpha$  et qui est  $\beta$  dans un spectre en énergie, en fonction de la forme.

### 3.4.1 Description

Dans le cas général, pour que les  $\alpha$  soient différenciables du fond, il faut respecter les critères de seuil de décision et de limite de détection (Cf. annexe A). En effet, cette discrimination dépend du temps de comptage et de l'activité  $\beta$ , le signal  $\beta$  étant considéré comme du bruit dans l'analyse que l'on mène. Nous allons proposer ici deux approches différentes de cette technique.

### 3.4.2 Ajustement par une fonction simple

Afin de ne pas chercher un spectre  $\beta$  de référence, on peut reconnaître le ou les pics  $\alpha$  et les isoler par interpolation du fond  $\beta$  sous le spectre  $\alpha$  par une fonction simple, comme un polynôme du second ou du troisième degré.

#### 3.4.2.1 Ajustement

Le premier ajustement possible concerne la totalité du spectre  $\beta$ , moins les pics  $\alpha$  repérés. Ceci nécessite donc des fonctions permettant de décrire la complexité d'un spectre contenant plusieurs émetteurs  $\beta$ . Nous allons donc ici nous intéresser à un ajustement partiel, local, sous le ou les pics d'intérêt uniquement, par un polynôme.

Nous avons caractérisé un certain nombre de source en fonction du rapport de leur activité  $\beta$  sur l'activité  $\alpha$  (Tab 3.12).

Identifiant	Nucléides	Rapport d'activité $\beta/\alpha$
SI1	$^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y} + ^{239}\text{Pu}$	0,6
SI2	$^{60}\text{Co} + ^{239}\text{Pu}$	1,7
SI3	$^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y} + ^{239}\text{Pu}$	4,4
SI4	$^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y} + ^{239}\text{Pu}$	8,2
SI5	$^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y} + ^{239}\text{Pu}$	44
SI6	$^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y} + ^{239}\text{Pu}$	49
SI7	$^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y} + ^{241}\text{Am}$	337

TABLE 3.12 – Echantillons utilisés pour l'ajustement des pics  $\alpha$  classés en fonction du rapport de l'activité  $\beta$  sur celle  $\alpha$ .

A chacun de ces échantillons nous allons appliquer le protocole d'ajustement suivant :

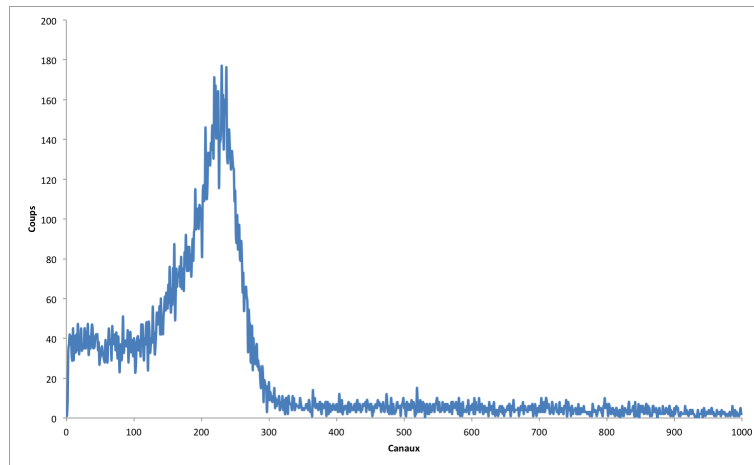
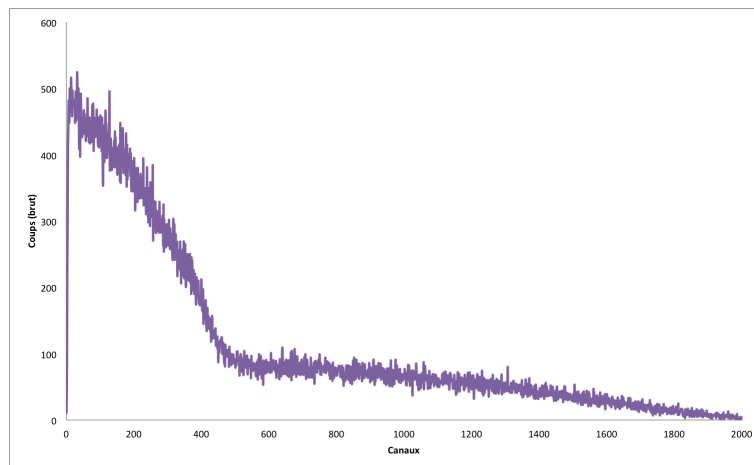
1. Estimation de la position et de la largeur du pic, définition d'une fenêtre  $\alpha$  ;
2. Sélection des 50 points de part et d'autre pour l'interpolation ;
3. Ajustement du fond  $\beta$  par un polynôme de degré trois ;
4. Calcul de l'activité dans le pic.

Etant donné qu'on travaille « à l'œil », la première condition de reconnaissance visuelle du pic n'est pas forcément ni évidente ni réalisée. Ainsi, le pic est évident pour l'échantillon SI1 (Fig. 3.19), mais est loin de l'être pour le numéro SI7 (Fig. 3.20).

Les résultats (Tab. 3.13) montrent plusieurs faits assez surprenant

1. Les résultats par les polynômes de degré 2 et 3 sont strictement égaux ;



FIGURE 3.19 – Spectre  $\alpha/\beta$  avec un  $\alpha$  ( $^{239}\text{Pu}$ ) bien défini (Echantillon SI1, Tab. 3.12)FIGURE 3.20 – Spectre  $\alpha/\beta$  avec un  $\alpha$  invisible (Echantillon SI7, Tab. 3.12).

Identifiant de source	Fenêtres	Rendement $\alpha$ (%)		
		1	2	3
SI1	130-280	$119,5 \pm 4,4$	$99,2 \pm 4,5$	$99,2 \pm 4,5$
SI2	190-380	$130,6 \pm 5,8$	$108,8 \pm 6,1$	$108,8 \pm 6,1$
SI3	160-430	$94,5 \pm 6,8$	$99,3 \pm 6,7$	$99,3 \pm 6,7$
SI4	200-320	$60,5 \pm 15,8$	$97,6 \pm 15,3$	$97,6 \pm 15,3$
SI5	210-340	-	$69,6 \pm 12,2$	$69,6 \pm 12,2$
SI6	250-450	$43,5 \pm 26,9$	$108,6 \pm 26,7$	$108,6 \pm 26,7$
SI7	non vu	-	-	-

TABLE 3.13 – Résultats des rendements  $\alpha$  pour les ajustements des fonds (bruit et  $\beta$ ) sous différents pics  $\alpha$  par des polynômes de degré 1, 2 et 3.

2. Le pic de l'échantillon SI6 est identifié mais pas le SI5 dont le ratio est pourtant plus faible.

Les ajustements sous le pic  $\alpha$  par des polynôme de degré 2 ou 3 donnent le même résultats car la partie intéressante, évaluée sous le pic, n'évolue quasiment pas, au contraire de l'avant et de l'après (Fig. 3.21).

Quant au rendement mesuré pour l'échantillon SI5, ce peut être dû au temps de comptage (2h). Par comparaison, l'échantillon SI6 a été mesuré 6h, avec une activité  $\alpha$  de 1 Bq, soit 200 Bq/L, et une limite de détection (Tab. 3.14) permettant théoriquement de voir le pic. Cependant, les incertitudes sur le rendement montrent que la détection de ce pic est très subjective.

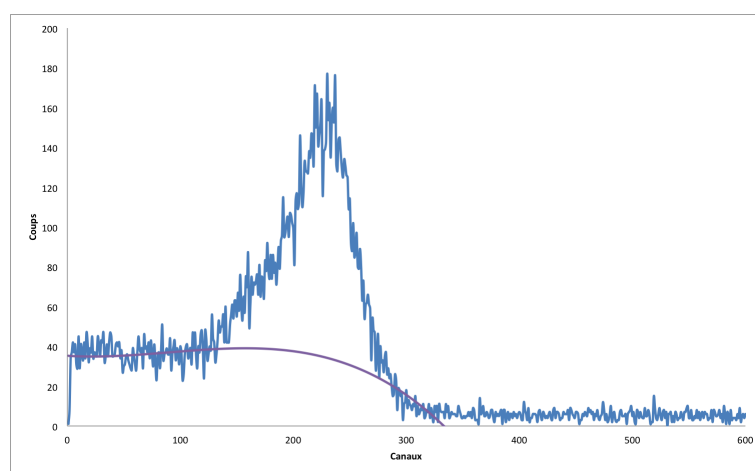


FIGURE 3.21 – Exemple d'ajustements avec un polynôme de degré 3 (Echantillon SI3, table 3.12).

### 3.4.2.2 Limite de détection

Pour chacun des ajustements nous obtenons une limite de détection<sup>10</sup> de l'ordre de la dizaine de Becquerel par litre (Tab. 3.14).

On se heurte au problème d'une limite de détection dépendante de l'activité  $\beta$ , et aussi de la nécessité de « voir » et de reconnaître les  $\alpha$  pour pouvoir extraire les informations souhaitées du spectre. Une solution possible pour pallier ce besoin de reconnaissance serait un ajustement du spectre  $\beta$  à partir des spectres  $\beta$  de référence, théoriques ou mesurés.

### 3.4.3 Ajustement par un spectre de référence

L'ajustement par un spectre de référence semble être la meilleure méthode. En effet, la soustraction du fond  $\beta$  peut être exacte et seule reste l'activité  $\alpha$ . Cette

10. Cf. annexe A

Identifiant	$a^\#$ (Bq/L)	t (min)
SI1	32,2	15
SI2	15,1	15
SI3	8,3	120
SI4	11,2	30
SI5	13,9	120
SI6	3,0	360
SI7	2,2	720

TABLE 3.14 – Limites de détection ( $a^\#$ ) d’après les ajustements du fond  $\beta$  sous les pics  $\alpha$  par rapport aux temps de comptage (t). Bien que la limite de détection puisse être définie, seuls les rendements des quatre premières sources ont été retrouvés (Tab. 3.13).

méthode nécessite donc deux éléments : une bibliothèque contenant les spectres de référence et des critères d’ajustement.

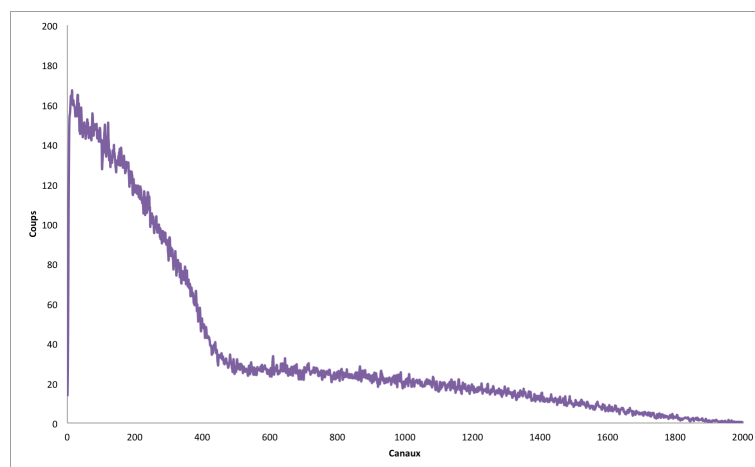
Sachant qu’un spectre  $\alpha$  ne couvre pas l’ensemble de la plage en énergie, il y a donc deux zones exemptes d’ $\alpha$ , une à basse énergie (0 - 100 keV) et l’autre à haute énergie (500 - 4000 keV)<sup>11</sup>. On a donc deux zones disponibles pour ajuster les courbes de références sur le spectre mesuré.

Les méthodes d’ajustement sont multiples (Moindre-carré, corrélation, ...) mais dans ce cas, la difficulté est la détermination du spectre de référence. En effet, dans des cas simples, on peut reconnaître le spectre (Fig. 3.22), mais dans le cas général, il y a plusieurs  $\beta$  dans des proportions variables et la déconvolution devient de plus en plus complexe. C’est l’objectif du logiciel RadSpectraDec [Malinovsky 2002].

Dans le cas de la mesure de la radioactivité dans l’environnement, cette méthode est pour l’instant peu exploitable du fait du nombre de radionucléides possible, de la multiplicité des activités et du quenching, ce qui rend les solutions de déconvolution non unique et donc inexploitable. Nous allons considérer le cas d’un  $\beta$  unique et d’un ou plusieurs  $\alpha$ . Cependant, même dans cette configuration simple, il se pose le problème du quenching. En effet, celui-ci entraîne une modification de la forme des spectres, aussi bien en décalage vers les basses énergies qu’en baisse du taux de comptage.

Le quenching est pris en compte à travers la réalisation d’un panel de spectres pour différentes valeurs de l’indicateur de quenching par l’ajout d’un agent quenchant, comme le nitrométhane. De plus, ce panel doit être réalisé pour plusieurs radionucléides. A l’aide d’un indicateur de quenching, cette bibliothèque permet

11. Un  $\alpha$  est vu comme un  $\beta$  d’un dixième de son énergie [Horrocks 1974].

FIGURE 3.22 – Spectre de référence  $\beta$  ( $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ ).

alors de disposer du spectre de référence correspondant à l'échantillon à analyser.

Cependant, il est raisonnable de supposer que le décalage vers les basses énergie puisse correspondre à une homothétie d'un spectre de référence, de la même façon que l'ajustement en taux de comptage à partir des deux zones exemptes des événements  $\alpha$ . Le spectre de référence  $\beta$  est modifié en fonction du  $\beta_{\max}$  de façon à correspondre au mieux au spectre, et normé à l'aide des premiers canaux du spectre. Afin de faire correspondre les deux spectres, nous allons normer l'un par rapport à l'autre. C'est un processus en trois étapes :

1. Détermination des  $\beta_{\max}$  et homothétie ;
2. Détermination de la norme (sur les 100 premiers canaux) et normalisation de la référence par rapport à la mesure ;
3. Soustraction du fond dans la fenêtre déterminée.

Nous allons prendre pour exemple un spectre pour lequel les radionucléides  $\beta$  sont identifiés comme  $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ , et contenant un certain nombre d' $\alpha$  (Fig. 3.23), dont la présence semble assez évidente entre les canaux 200 à 450. Le maximum de ce spectre, aux environs de 2000, évoque le  $\beta_{\max}$  de l'yttrium, et l'allure générale le spectre  $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ .

Dans l'exemple (Fig. 3.23), le rendement  $\alpha$  obtenu est de  $98,1 \pm 6,4\%$ , ce qui est compatible avec les valeurs attendues. Cette valeur est à relativiser car le spectre  $\beta$  est très simple et connu. Le rendement  $\beta$  est de  $99,9 \pm 4,1\%$ . De plus, la limite de détection, dépendante du fond  $\beta$  soustrait par le spectre de référence, est de 11,1 Bq/L (canaux 200 à 450), beaucoup trop par rapport à la limite réglementaire des 0,1 Bq/L en  $\alpha$  !

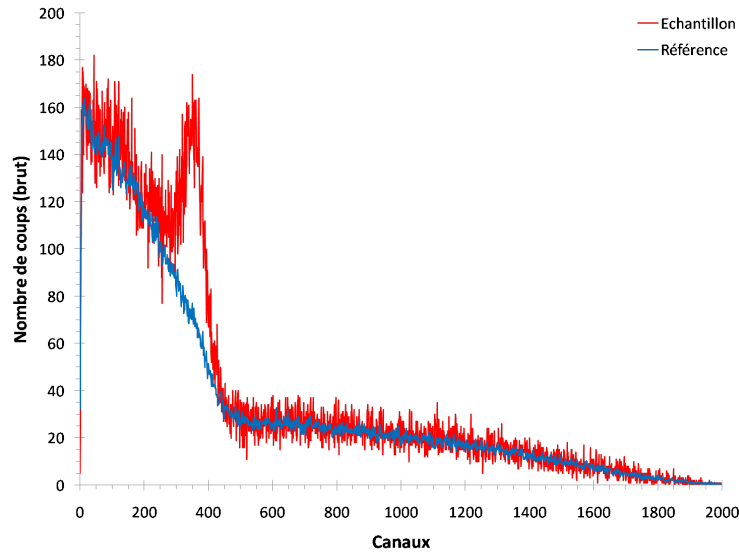


FIGURE 3.23 – Exemple de spectre  $\alpha/\beta$  avec un spectre  $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$  de référence. Ce dernier est ajusté en nombre de coups par les deux zones garanties sans  $\alpha$ , et en même temps ajustés par homothétie à partir des fins des spectres.

### 3.5 Conclusion

La séparation des  $\alpha$  et des  $\beta$  n'est directement possible que dans la mesure où les énergies sont correctement séparées : le spectre  $\beta$  n'empiète pas sur le spectre  $\alpha$ . Nous avons dans cette configuration mis en place une méthode de mesure simultanée  $^3\text{H}/\alpha$  de frottis permettant à l'aide d'un appareil simple, le Triathler, d'atteindre les limites de détection de  $0,04 \text{ Bq}/\text{cm}^2$  en  $\alpha$  et  $0,4 \text{ Bq}/\text{cm}^2$  en  $^3\text{H}$ .

Dans le cas plus général, la mesure de l'activité  $\alpha$  ne peut se faire qu'en soustrayant le bruit de fond  $\beta$ . La manière la plus évidente est d'ajuster le spectre avec son spectre de référence, puis d'ôter sa contribution au spectre total pour en déduire les  $\alpha$ . Cependant, cette méthode ne fonctionne que dans des cas très simples, la déconvolution de spectre  $\beta$  étant déjà particulièrement complexe sans contribution  $\alpha$ . Nous avons donc interpolé sous le pic  $\alpha$  par un polynôme mais nous restons dépendants de l'activité  $\beta$  dans l'échantillon pour la limite de détection (Fig. 3.24).

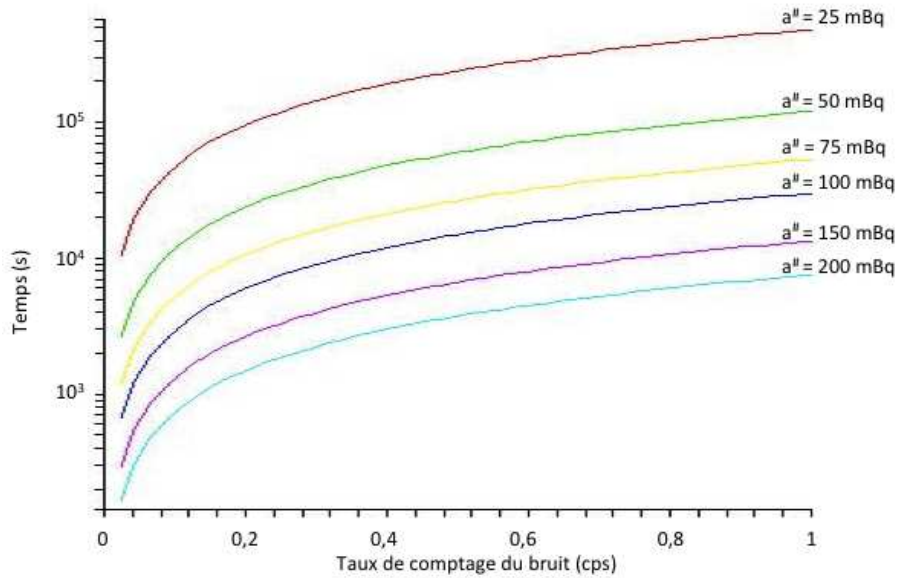


FIGURE 3.24 – Temps de comptage en fonction du fond  $\beta$  pour différentes limites de détection  $a^\#$ .

Afin de diminuer l'influence des  $\beta$  dans la détermination de la limite de détection, nous allons devoir utiliser un moyen permettant de les séparer des  $\alpha$  avant qu'ils soient regroupés dans un seul et même spectre. Certains appareils commerciaux proposent de régler des paramètres permettant de discriminer les  $\alpha$  des  $\beta$ ; nous allons donc aborder un nouveau chapitre afin d'étudier ces techniques et les réglages des paramètres.



# Séparation électronique des signaux

Les méthodes sont les habitudes de l'esprit et les économies de la mémoire.

Antoine de Rivarol *in Rivarolina*

## Sommaire

<b>4.1</b>	<b>Discrimination des rayonnements <math>\alpha/\beta</math></b>	<b>102</b>
4.1.1	Les rayonnements dans le liquide scintillant	102
4.1.2	Méthodes de discrimination	103
4.1.3	Détermination du facteur de discrimination	108
<b>4.2</b>	<b>Auto-détermination du facteur de discrimination</b>	<b>108</b>
4.2.1	Analyse spectrale $\alpha$	111
4.2.2	Vérification et premières validations	115
4.2.3	Incertitudes liées aux mesures par MLB	115
4.2.4	Paramètres influençant la MLB	121
4.2.5	Essais sur deux sources particulières	125
<b>4.3</b>	<b>Limites de la discrimination</b>	<b>129</b>
4.3.1	Acidité de la source	130
4.3.2	Limite de détection	135
<b>4.4</b>	<b>Conclusion</b>	<b>135</b>



## 4.1 Discrimination des rayonnements $\alpha/\beta$

### 4.1.1 Les rayonnements dans le liquide scintillant

Nous avons vu que la densité d'états excités était différente dans le cas des  $\alpha$  et des  $\beta$ . Le dépôt d'énergie des  $\alpha$  permet aux molécules d'atteindre des états excités différents de ceux dus aux  $\beta$ , en particulier des états triplets. Ce sont ces états qui peuvent conduire à de la phosphorescence, ou de la fluorescence retardée, en plus des phénomènes de fluorescence. Les différentes constantes de vitesse associées à chacune de ces transitions (Tab. 2.3) donnent aux impulsions lumineuses des formes différentes, liées aux rayonnements  $\alpha$  ou  $\beta$ .

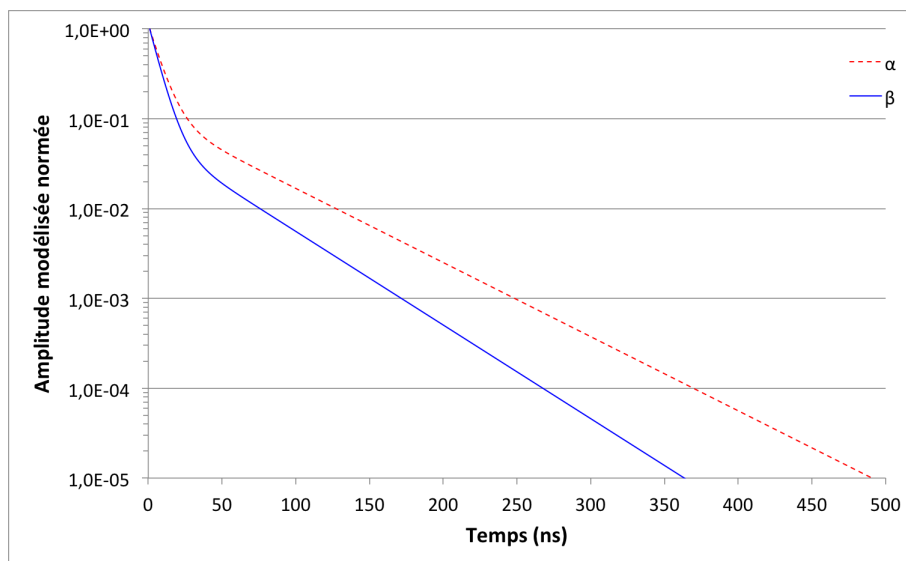


FIGURE 4.1 – Illustration des profils d'impulsion  $\alpha/\beta$ .

Mathématiquement, la forme de ces impulsions peut être simplement décrite par une fonction densité de probabilité. Cette fonction exprime la probabilité pour un photon d'être émis à un temps  $t$ , et l'intensité du signal est donc :

$$I(t) = p(t)N_p \quad (4.1)$$

avec  $N_p$  le nombre moyen de photons émis par  $N$  molécules excitées et  $p(t)$  la fonction densité de probabilité en question.

La désexcitation des molécules excitées suit une loi exponentielle en fonction du temps  $t$ , de durée de vie moyenne  $\tau$ .  $p(t)$  peut s'écrire pour les deux composantes, une première dite rapide (notée  $f$  comme *fast*) correspondant à la fluorescence, une seconde dite lente (notée  $s$  comme *slow*) pour la phosphorescence et la fluorescence retardée :

$$p(t) = \frac{1}{\tau_{f,s}} e^{-\frac{t}{\tau_{f,s}}} \quad (4.2)$$

La forme de l'impulsion résulte de la superposition des photons issus des composantes  $f$  et  $s$ , chacune normée par leur poids respectif  $q_f$  et  $q_s$  :

$$q_f = \frac{N_f}{N_f + N_s} = \frac{R}{R + 1} \quad (4.3)$$

$$q_s = \frac{N_s}{N_f + N_s} = \frac{1}{R + 1} \quad (4.4)$$

avec  $R = N_f/N_s$  et  $q_f + q_s = 1$ . On obtient alors :

$$p(t) = \frac{R}{1 + R} \frac{1}{\tau_f} e^{-\frac{t}{\tau_f}} + \frac{1}{1 + R} \frac{1}{\tau_s} e^{-\frac{t}{\tau_s}} \quad (4.5)$$

Selon le même principe, la forme impulsions peuvent être modélisée par une somme de  $n$  exponentielles. Ainsi, les impulsions de scintillation liquide de Borexino sont modélisées par trois ou quatre exponentielles représentant les diverses composantes d'un rayonnement (Tab. 5.15).

$$p(t) = \sum \frac{q_i}{\tau_i} e^{-t/\tau_i} \quad (4.6)$$

Rayonnement	$\tau_1$	$\tau_2$	$\tau_3$	$\tau_4$	$q_1$	$q_2$	$q_3$	$q_4$
$\beta$	3,57	17,61	59,5		0,895	0,063	0,042	
$\alpha$	2,19	12,02	56,13	433,6	0,636	0,153	0,104	0,107

TABLE 4.1 – Constantes du modèle de Borexino pour les impulsions  $\alpha$  et  $\beta$  (Eq. 4.6) [Ranucci].  $\tau$  en nanoseconde et  $q$  en Coulomb.

Les valeurs déterminées des constantes mesurées au Borexino (Tab. 5.15) mettent en évidence une quatrième composante pour les  $\alpha$  qui les différencie nettement des  $\beta$  (Fig. 4.2).

#### 4.1.2 Méthodes de discrimination

Du fait de la différence des impulsions  $\alpha$  et  $\beta$  liée aux états d'énergie  $S$  et  $T$ , il y a deux façons de les discriminer. La première est de mesurer le temps de décroissance de l'impulsion (*Pulse Decay*), soit une estimation des  $\tau$  ; la seconde méthode est une mesure de la forme de l'impulsion (*Pulse Shape*) [Bagán 2010], soit une estimation de  $R$ .

Si une impulsion était constituée d'une infinité de photons décrivant parfaitement la forme de la fonction densité de probabilité, le paramètre de discrimination

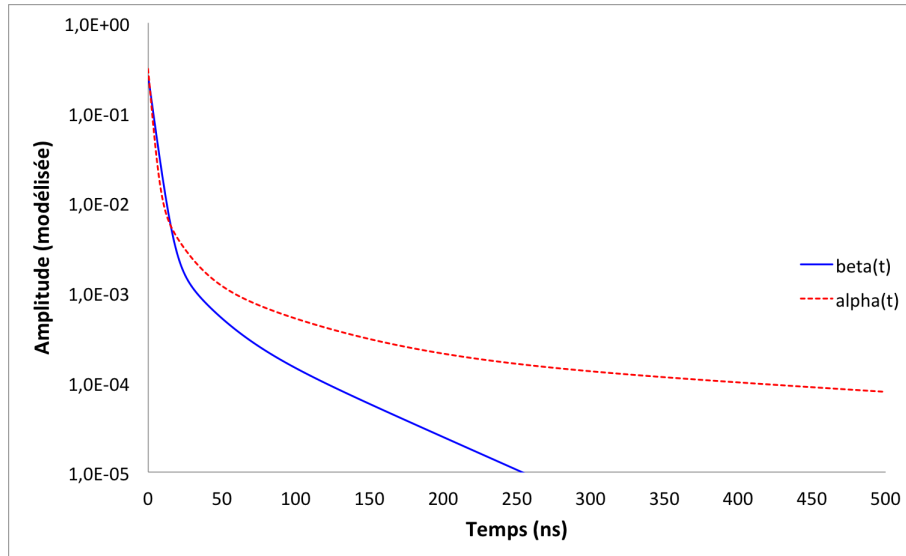


FIGURE 4.2 – Forme des impulsions  $\alpha$  et  $\beta$  pour un cocktail de scintillation PC/PPO (1,5 g/L), mesures issues de Borexino [Ranucci].

serait unique pour chaque type de particule. Cependant, l'émission est un processus statistique et les valeurs des facteurs de discrimination idéaux pour les différentes émissions ont une certaine dispersion, ce qui introduit la probabilité de mauvaises déterminations des événements.

#### 4.1.2.1 Pulse Decay Analysis

Cette méthode consiste à mesurer la longueur (durée) de l'impulsion et ainsi déterminer l'origine du signal. Cette méthode est principalement utilisée dans deux compteurs à scintillation liquide : le système PERALS et le TriCarb. Le premier appareil, le PERALS (pour *Photon Electron Rejecting in Alpha Liquid Scintillation*), utilise une double dérivation du signal entrant par rapport au temps, suivi d'une conversion temps/amplitude puis d'une discrimination par rapport à un seuil fixé. Quant au TriCarb, le signal analogique est filtré par une mise en forme gaussienne (passe-bas), puis dérivé (Fig. 4.3). Les temps sont mesurés par *zero-crossing* et le facteur seuil est réglable entre 0 et 255 ns.

Une variation de cette dernière méthode, appelée TR-PDA, pour *Time Resolved Pulse Decay Analysis* [Passo 1994], permet d'augmenter le gain de discrimination dans un mode *low-level* sur le TriCarb. Cette méthode, destinée dans un premier temps à isoler les vrais événements  $\beta$  du reste, se concentre sur les impulsions secondaires qui suivent l'impulsion primaire. Dans le cas d'un  $\beta$ , les impulsions secondaires s'atténuent très vite. On peut aussi remarquer que la distribution en énergie des différentes impulsions est très variable (Fig. 4.4).

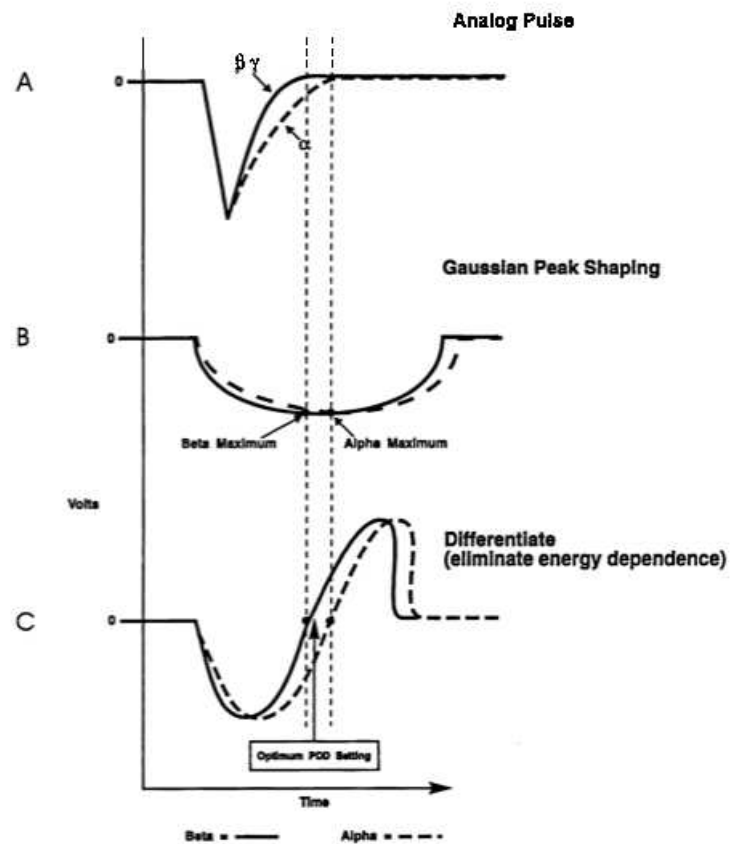


FIGURE 4.3 – Filtre passe-bas puis différentiation en place dans un Tri-Carb [Passo 1994][Aupiais 1997].

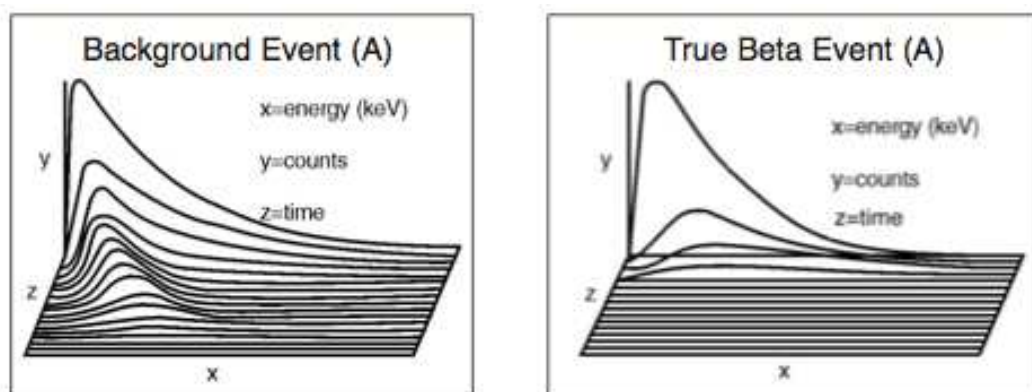


FIGURE 4.4 – TR-PDA [Passo 2002] (*Time resolved pulse decay analysis*). Méthode alliant une analyse temporelle à la discrimination, ce qui permet de différencier les événements du fond des vrais événements  $\beta$ .

#### 4.1.2.2 Pulse Shape Analysis

Cette méthode consiste en l'ajustement de l'impulsion entrante par une équation connue, généralement basée sur une somme d'au moins deux intégrales, représentant les deux composantes, rapide (*f - fast*) et lente (*s - slow*) (Eq. 4.5). Cette équation a une propriété particulière utilisée en discrimination : le nombre  $R$  croît avec la diminution de la densité d'ionisations. De la même façon, un rapport  $R = (q_s \tau_f) / (q_f \tau_s)$  est aussi parfois employé [Marrone 2002].

#### 4.1.2.3 Charge sur énergie

Du fait de la différence entre les deux rayonnements, le rapport de l'intégrale (la charge) sur le maximum (la tension) de l'impulsion permet une discrimination.

Dans le cas du Triathler, chaque signal détecté est mesuré en intensité et en durée. Le facteur discriminant (PLI - *Pulse Length Index*) est mesuré à partir de la charge de l'impulsion, et la discrimination est faite en comparant la charge et l'énergie. Un MCA trie la charge de la même façon que l'énergie sous forme d'un histogramme de 1024 canaux. La valeur du facteur de discrimination est donc comprise dans cette plage. En représentant sous forme d'un graphique bi-paramétrique amplitude-PLI, le facteur de discrimination correspond à une ligne horizontale séparant de part et d'autre les deux types de rayonnements, avec pour les valeurs élevées du PLI les  $\alpha$  et inversement les  $\beta$ . Afin de permettre le réglage simple de ce paramètre, le Triathler peut transmettre à un ordinateur ce graphe bi-paramétrique, mais celui-ci n'est qu'un aperçu car chaque pixel représente 16 canaux d'énergie en abscisse, et 32 en ordonnée (Fig. 4.5). Il ne permet donc pas vraiment de trouver le bon réglage, ni de prouver qu'un échantillon est discriminable ou non.

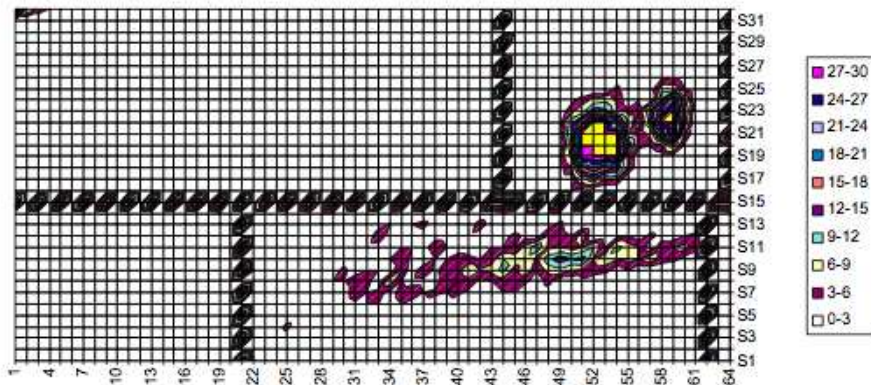


FIGURE 4.5 – Graphique bi-paramétrique issu d'une mesure de  $^{222}\text{Rn}$  avec le Triathler par les équipes d'Hidex. L'abscisse représente l'amplitude des impulsions et l'ordonnée représente la charge. Le facteur de discrimination (PLI) est donné par la ligne horizontale. [Hidex a].

#### 4.1.2.4 *Tail-to-total ratio*

Cette méthode intègre la traîne de l'impulsion (charge partielle) et la compare à l'intégrale totale (charge totale), ce qui permet à chaque évènement d'être comparé, indépendamment des énergies. Les évènements peuvent être représentés sur un graphique bi-paramétrique (*Total signal Vs Tail signal*). Le seuil est une droite passant par zéro, et la valeur du facteur de discrimination est la pente de la droite (Fig.4.6). C'est la méthode utilisée par les appareils Quantulus (Wallac), dont le discriminant, le *PSA level*, est réglé sur une plage de 0 à 255.

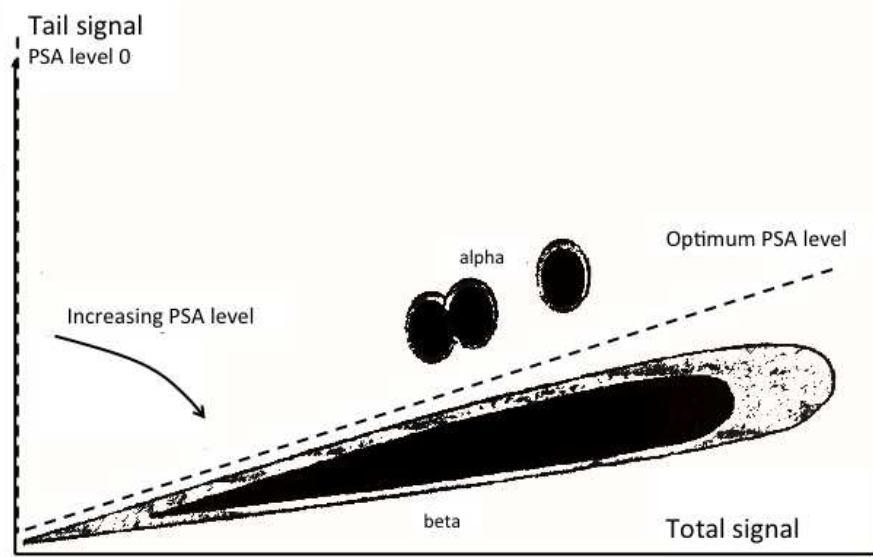


FIGURE 4.6 – Graphique schématisé bi-paramétrique comparant l'intégrale de la traîne de l'impulsion et l'intégrale totale [Pates 1994].

Des variations dans la définition de ce facteur consistent en la définition du départ de l'intégrale de la charge et du temps d'intégration. On définit donc le *pseudo Tail-to-total ratio* avec un temps mort imposé avant l'intégration partielle.

#### 4.1.2.5 *Post Impulsion Analysis*

Comme nous l'avons vu dans le chapitre 1, les post-impulsions sont des impulsions retardées corrélées avec l'impulsion principale. Il s'avère que plus le nombre de photons incidents est important, plus la probabilité de post-impulsion est importante. Ainsi, les rayonnements  $\beta$  sont beaucoup moins sujets à ces post-impulsions que les rayonnements  $\alpha$  (Fig. 4.4).

Les options dites *Time Resolved*, en particulier sur le TriCarb, utilisent ces post-impulsions afin d'aider à la discrimination. Historiquement, cette méthode a été développée afin d'améliorer la qualité des signaux  $\beta$ , mais une méthode (TR-

PDA [Passo 1994]) peut être mise en place sur le TriCarb pour la discrimination.

### 4.1.3 Détermination du facteur de discrimination

Le facteur de discrimination est défini par l'utilisateur sur les compteurs. Chaque signal est analysé selon différentes méthodes décrites, en énergie et suivant un critère pour la discrimination, puis les valeurs obtenues sont comparées aux seuils, ce qui détermine le type de rayonnement initial. Généralement, si le résultat de la méthode discriminante est supérieur au seuil défini, le signal est considéré comme étant issu d'un rayonnement  $\alpha$ . Cette discrimination n'est pas forcément parfaite et il se peut que des événements soient mal classés. Un taux d'interférences est alors défini, mesurant les coups  $\alpha$  comptés comme  $\beta$  ( $\chi_{\alpha \rightarrow \beta}$ ), et réciproquement ( $\chi_{\beta \rightarrow \alpha}$ ) (Eq. 4.7).

$$\chi_{\alpha \rightarrow \beta} = \frac{r_{S\alpha,\beta} - r_{0\beta}}{r_{S\alpha,T} - r_{0T}} \quad \chi_{\beta \rightarrow \alpha} = \frac{r_{S\beta,\alpha} - r_{0\alpha}}{r_{S\beta,T} - r_{0T}} \quad (4.7)$$

Avec :

- $r_{S\alpha,T}$  : taux de comptage de la source d'étalonnage  $\alpha$  dans la fenêtre totale ;
- $r_{S\alpha,\alpha}$  : taux de comptage de la source d'étalonnage  $\alpha$  dans la fenêtre  $\alpha$  ;
- $r_{S\alpha,\beta}$  : taux de comptage de la source d'étalonnage  $\alpha$  dans la fenêtre  $\beta$  ;
- $r_{S\beta,T}$  : taux de comptage de la source d'étalonnage  $\beta$  dans la fenêtre totale ;
- $r_{S\beta,\alpha}$  : taux de comptage de la source d'étalonnage  $\beta$  dans la fenêtre  $\alpha$  ;
- $r_{S\beta,\beta}$  : taux de comptage de la source d'étalonnage  $\beta$  dans la fenêtre  $\beta$  ;
- $r_{0T}$  : taux de comptage du blanc dans la fenêtre totale ;
- $r_{0\alpha}$  : taux de comptage du blanc dans la fenêtre  $\alpha$  ;
- $r_{0\beta}$  : taux de comptage du blanc dans la fenêtre  $\beta$ .

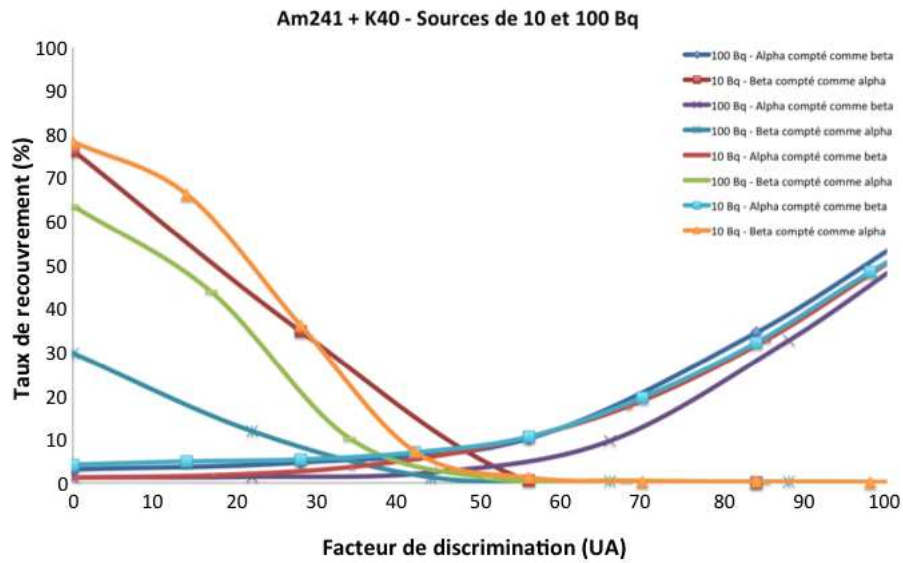
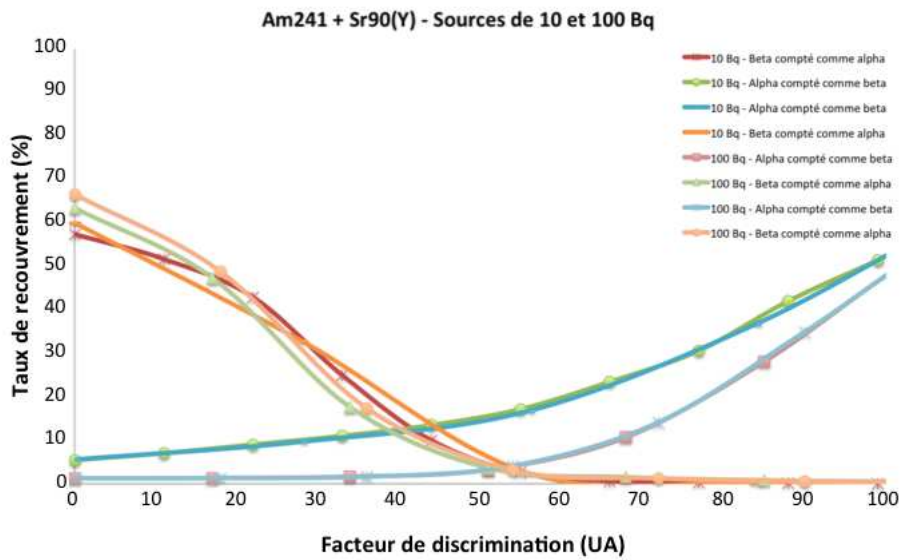
Le facteur de discrimination optimal pour une double mesure ( $\alpha/\beta$ ) est déterminé par  $\chi_{\alpha \rightarrow \beta} = \chi_{\beta \rightarrow \alpha}$  : les deux taux d'interférences sont alors minima, d'après deux sources étalons ( $\alpha$ -pur et  $\beta$ -pur).

La valeur du facteur de discrimination optimal est intuitivement fonction de la qualité du cocktail de scintillation, mais moins trivialement des activités (ratio  $\beta/\alpha$ ) et des énergies (Fig. 4.7 et 4.8). Il est donc recommandé [NF ISO 11704] de choisir pour les sources étalons des radionucléides d'énergies proches de celles de ceux présents dans l'échantillon à analyser, dans un rapport et un cocktail de scintillation équivalents [Ansoborlo 2009].

Nous souhaitons donc développer une méthode permettant de s'affranchir de la détermination du facteur de discrimination optimal par les deux sources étalons, et ne s'attacher qu'à l'échantillon à analyser.

## 4.2 Auto-détermination du facteur de discrimination

Nous avons vu la méthode standard de détermination basée sur le comptage de deux sources étalons. Cependant, cette méthode dépend de beaucoup de paramètres

FIGURE 4.7 – Taux d’interférence pour deux sources  $^{241}\text{Am} + ^{40}\text{K}$  de 10 et 100 Bq.FIGURE 4.8 – Taux d’interférence pour deux sources  $^{241}\text{Am} + ^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$  de 10 et 100 Bq.



et doit être systématiquement réajustée en fonction des échantillons à analyser. Par exemple, un premier réglage du PDD<sup>1</sup> a été réalisé pour les radionucléides  $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$  et  $^{239}\text{Pu}$  : la valeur du facteur de discrimination a été déterminé à 128 ns.

Du fait de la méconnaissance du facteur de discrimination *a priori* sur un échantillon, nous allons proposer des méthodes systématiques de discrimination  $\alpha/\beta$ . En admettant que la discrimination est possible, du fait de l'appareil et du cocktail, on ne cherche que le meilleur facteur. Pour ce faire, nous devrions faire une mesure pour chaque facteur de discrimination.

Nous allons proposer ici une méthode permettant la détermination du facteur de discrimination optimal. Après avoir détaillé la méthode, nous lui avons soumis un panel d'échantillons (Tab. 4.2) définis par des rapports d'activité  $\beta/\alpha$  différents et deux cocktails de scintillation, mesuré sur plusieurs compteurs à scintillation liquide.

Afin de déterminer le facteur de discrimination des sources de référence, nous avons réalisé un panel d'échantillon (Tab. 4.2) dont nous avons déterminé le facteur de discrimination optimal par dichotomie. Ainsi, sur le TriCarb, nous savons que le facteur de discrimination optimal est généralement compris entre 100 ns et 140 ns. Nous avons donc compté chaque échantillon une première fois à un facteur de discrimination moyen (120 ns), puis suivant la valeur du rendement  $\alpha$  dans le spectre  $\alpha$ , nous avons fait une mesure au quart inférieur (110 ns) dans le cas d'un rendement inférieur aux 100%, ou au quart supérieur dans le cas contraire (130 ns) ; de même pour le Quantulus dont la discrimination est dans la même plage que le TriCarb. Quant au Triathler, la variation est dans une plage 300-400 avec un facteur moyen aux alentours de 350.

Numéro	Cocktail	Rapport $\beta/\alpha$	LSC	Source	Activités (Bq) (k=1)
1	A	1,6	TriCarb	$^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$	$14,7 \pm 0,51$
				$^{239}\text{Pu}$	$9,12 \pm 0,13$
2	A	1,1	TriCarb	$^{60}\text{Co}$	$4,55 \pm 0,10$
				$^{244}\text{Cm}$	$4,23 \pm 0,06$
3	B	1,9	Triathler	$^{60}\text{Co}$	$6,11 \pm 0,15$
				$^{239}\text{Pu}$	$3,14 \pm 0,05$
4	B	16,7	TriCarb	$^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$	$9,88 \pm 0,15$
				$^{239}\text{Pu}$	$0,59 \pm 0,01$

TABLE 4.2 – Echantillons de référence pour les essais de discrimination  $\alpha/\beta$  - Cocktail A : 10 mL Ultima Gold LLT + 10 mL eau des Abatilles ; Cocktail B : 10 mL Ultima Gold AB + 10 mL eau des Abatilles.

1. PDD : *Pulse Decay Discriminator* - facteur de discrimination du TriCarb

Numéro					
1	$fd$ (ns)	120	110	115	113
	$\eta$ (%)	83,5%	107,8%	95,7%	100,5%
2	$fd$ (ns)	120	130	125	
	$\eta$ (%)	106,0%	95,2%	100,6%	
3	$fd$	350			
	$\eta$ (%)	101,1%			
4	$fd$ (ns)	120	130		
	$\eta$ (%)	118,2%	99,3%		

TABLE 4.3 – Rendement  $\alpha$  ( $\eta$ ) des échantillons de référence (Tab. 4.2) pour des valeurs de facteur de discrimination ( $fd$ ) mesuré sur le TriCarb et le Triathler.

#### 4.2.1 Analyse spectrale $\alpha$

Cette méthode s'appuie sur le fait que le spectre alpha est borné en énergie avec un minimum et un maximum qui ne correspondent pas aux extrema du spectre total de l'appareil, tandis que le spectre en énergie des  $\beta$  est continu de 0 à  $\beta_{max}$ , valeur pouvant être n'importe où par rapport au pic  $\alpha$ . Nous avons vu que la distinction était triviale dans le cas où  $\beta_{max}$  est significativement inférieure à l'énergie  $\alpha$ . Dans la majorité des cas, une discrimination est nécessaire.

A partir de ces limites en énergie, nous pouvons proposer une méthode permettant de déterminer le meilleur facteur pour une discrimination optimale, sinon absolue, entre les  $\alpha$  et les  $\beta$ . Nous voulons donc maximiser les coups dans une fenêtre centrée et resserrée autour du pic  $\alpha$ , tout en minimisant les coups en dehors, donc dans une fenêtre plus large.

Nous définissons donc deux fenêtres,  $N_1$  centrée et resserrée autour du pic  $\alpha$ , et  $N_2$  plus large et centrée également (Fig. 4.9). Nous allons donc étudier les variations du rapport  $\tau(x)$  (Eq. 4.8) suivant le facteur de discrimination, propre à chaque appareil. Le facteur de discrimination optimal correspond à un maximum de  $N_1$  et un minimum de  $N_2$ .

$$\tau(x) = 1 - \frac{N_1}{N_2} \quad (4.8)$$

Nous avons vu qu'en règle générale, les évènements sont classés en fonction de la valeur résultant de la méthode de discrimination et classé comme  $\beta$  si ce résultat est inférieur à la valeur seuil fixée, et  $\alpha$  sinon. Alors, en réalisant plusieurs mesure à plusieurs facteurs de discrimination par valeurs croissantes, quatre tendances successives marquent la courbe de  $\tau(x)$  (Fig. 4.10). Pour définir ces zones, nous allons nous placer dans un cas idéal où la discrimination entre les évènements est parfaite.

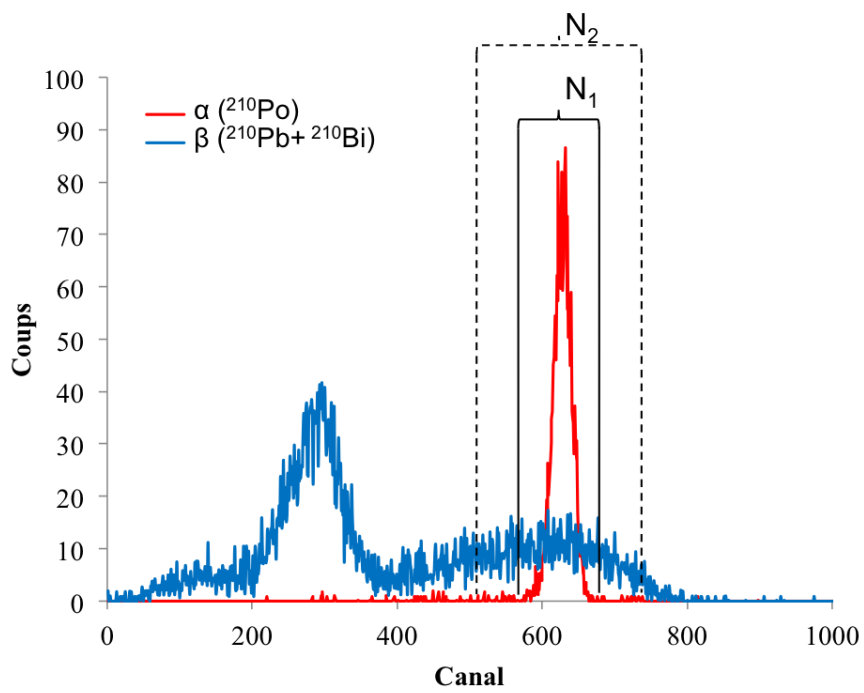


FIGURE 4.9 – Définition des fenêtres  $N_1$  et  $N_2$  sur un spectre  $\alpha/\beta$  ( $^{210}\text{Pb}$ ,  $^{210}\text{Bi}$  et  $^{210}\text{Po}$ ).

Alors :

1. La courbe est plate : la variation du facteur de discrimination ne change rien car tous les  $\beta$  sont dans dans le spectre  $\alpha$  ;
2. La pente est fortement négative : les  $\beta$  sont de mieux en mieux discriminés et sont ôtés de plus en plus du spectre  $\alpha$ . Cette diminution du nombre d'évènements mal classés ( $\beta$  dans  $\alpha$ ) continue jusqu'au facteur de discrimination optimal où il n'y a pas d'interférence ;
3. La pente est de nouveau quasi plate : tous les  $\beta$  ont été correctement identifiés par la méthode de discrimination, l'augmentation de ce paramètre fait en sorte que de plus en plus  $\alpha$  soient comptés comme des  $\beta$  ;
4. La pente semble de nouveau strictement positive : le nombre d'évènements  $\alpha$  comptés comme  $\beta$  est trop important pour que la fonction  $\tau(x)$  soit significative par rapport à son incertitude.

La valeur optimale du facteur de discrimination ( $x_{odp}$ ) correspond à la frontière des zones 2 et 3. Cependant, dans le cas idéal,  $\tau(x_{odp}) = 0$  (Fig. 4.10), mais du fait des incertitudes et du fond (bruit plus  $\beta$  résiduel),  $x_{odp}$  n'est pas ce minimum (Tab.4.4). Alors la fonction est ajustée par deux droites, correspondant aux parties 2 et 3, et la jonction entre les des deux donne  $x_{odp}$ .

Numéro	Temps (s)	Source	Fenêtre	Discriminant	Rendement (%)	Activités (Bq) (k=1)
1	900	$\beta$	0-2000	130	100	$18,7 \pm 0,20$
		$\alpha$	100-350		100	$5,82 \pm 0,11$
2	900	$\beta$	0-100	136	40,7	$4,52 \pm 0,08$
		$\alpha$	150-450		100	$4,42 \pm 0,10$
3	900	$\beta$	200-500	400	29,5	$7,71 \pm 0,13$
		$\alpha$	600-850		100	$2,18 \pm 0,07$
4	1800	$\beta$	0-2000	142	100	$9,93 \pm 0,11$
		$\alpha$	150-350		100	$0,49 \pm 0,02$

TABLE 4.4 – Résultats de comptage du panel (Tab. 4.2) en utilisant la méthode de variation du facteur de discrimination avec recherche du minimum.

Le facteur de discrimination optimal est donc un point dans la courbure entre les zones 2 et 3. Après l'avoir déterminé, aucune autre mesure n'est réalisée ; les spectres correspondant sont créés par interpolation linéaire entre des deux spectres mesurés entourant  $x_{odp}$ . Le couple de segments, chacun étant déterminé par la méthode des moindres-carrés, donne  $x_{odp}$  au point de jonction, c'est-à-dire à la brisure de la ligne. L'algorithme se déroule en trois étapes :

1. Pour chaque valeur de facteur de discrimination  $x$ , l'ensemble des valeurs de  $\tau(x)$  est séparée en deux groupes, chacun ajusté par un segment au sens des

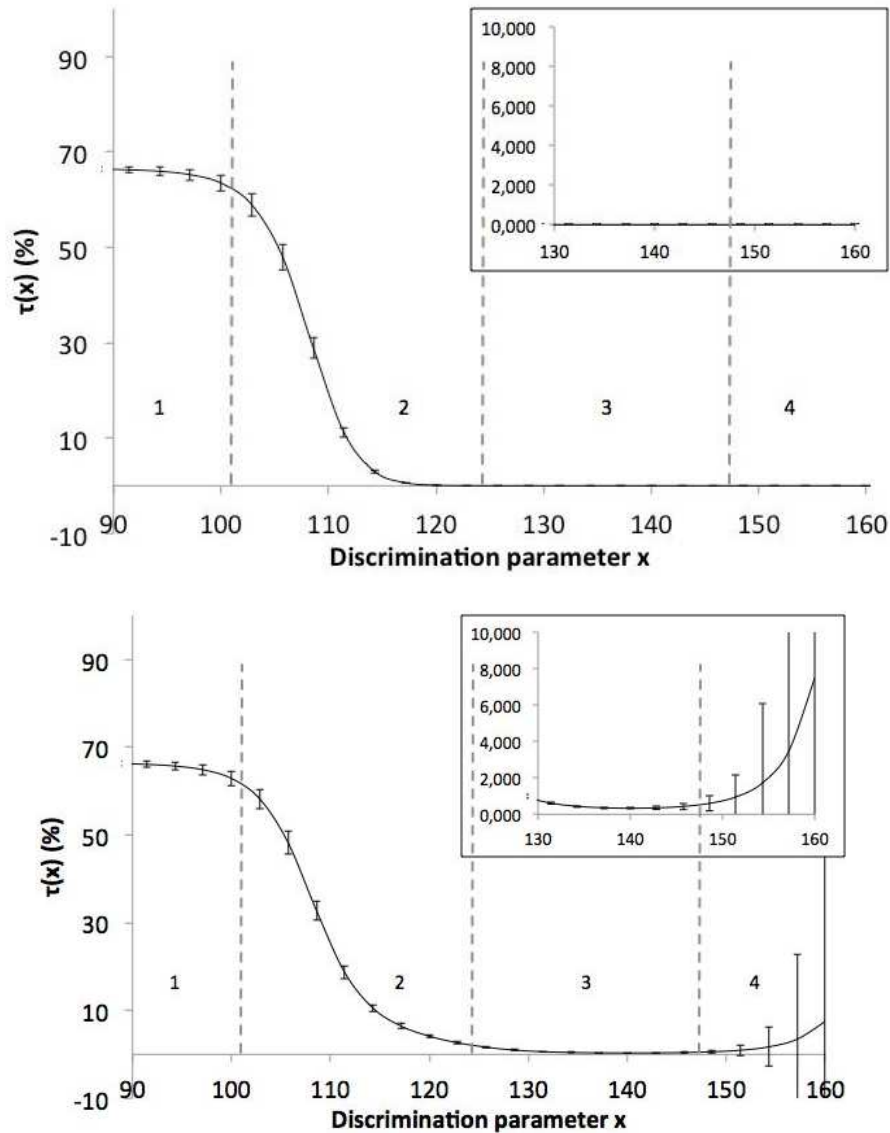


FIGURE 4.10 – Courbes de  $\tau(x)$  pour deux simulations mêlant 1000 événements  $\alpha$  à 500 000 événements  $\beta$  : la première idéale, la seconde bruitée par bruit blanc gaussien autour de la valeur du nombre de coups ( $(\mathcal{G}(\mathcal{N}(\xi), \sqrt{\mathcal{N}(\xi)}))$ ). Le nombre d'événements  $\beta$  est divisé par deux à chaque facteur de discrimination à partir de 90, de même pour les  $\alpha$  à partir de 126. La première figure (idéale) donne  $N_\alpha(x_{min} = 160) = 0.04 \pm 0.002$  et  $N_\alpha(x_{odp} = 128) = 1000 \pm 40$ ; la seconde figure (bruité) donne  $N_\alpha(x_{min} = 140) = 264 \pm 11$  et  $N_\alpha(x_{odp} = 129) = 1000 \pm 40$ .

moindres-carrés. Cela donne donc un couple de segments associé à une valeur de  $x$  ;

2. Le couple de segments représentant au mieux  $\tau(x)$  est déterminé par moindres-carrés ;
3. Ce couple, calculé associé à  $x$ , détermine donc  $x_{odp}$ . Il correspond graphiquement à la brisure de la ligne (Fig. 4.11).

Cet aspect brisé de la ligne formée des deux segments a donné le nom de la méthode : méthode de la ligne brisée (MLB).

### 4.2.2 Vérification et premières validations

Nous avons choisi d'ajuster les parties 2 et 3 de la courbe de  $\tau(x)$  au moyen de deux segments représentant pour le premier la diminution du nombre d'événements  $\beta$  dans le spectre  $\alpha$  et pour le second la diminution du nombre d'événements  $\alpha$ . La première pente doit donc être significativement négative, tandis que celle du second doit être faible, et négative. De plus, cet ajustement est à réaliser dans les zones 2 et 3, donc si des points appartiennent aux zones 1 ou 4, ils doivent être supprimés. De cette façon, nous avons des critères permettant de juger la discrimination (Fig. 4.11).

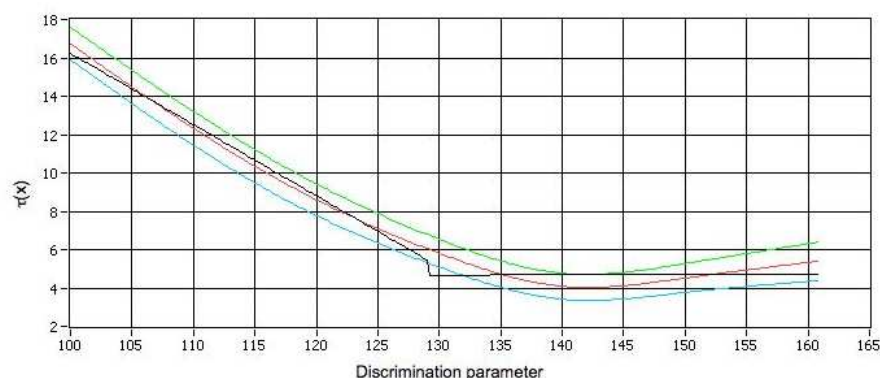


FIGURE 4.11 – Exemple de courbes de  $\tau(x)$  dans le cas d'un liquide scintillant est adapté pour la discrimination  $\alpha/\beta$  (Ultima Gold AB). Le facteur de discrimination présenté est celui du TriCarb.

Nous avons testé le panel (Tab. 4.2) avec cette méthode basée sur l'ajustement de  $\tau(x)$  par les deux segments (Tab. 4.5).

### 4.2.3 Incertitudes liées aux mesures par MLB

Dans un premier temps, nous avons, pour chacune des étapes, écrit les différentes équations qui les relient. Les différentes incertitudes de la méthode de la ligne-brisée peuvent être obtenues par calcul, ceux-ci sont très rapidement effectués par le logiciel, mais l'algorithme ne permet pas toujours d'obtenir une équation, cette

Numéro	Temps (s)	Source	Fenêtre	Discriminant	Rendement (%)	Activités (Bq) (k=1)
1	900	$\beta$	0-2000	113	100	$15,1 \pm 0,18$
		$\alpha$	100-350		100	$9,15 \pm 0,14$
2	900	$\beta$	0-100	115	40,7	$4,45 \pm 0,16$
		$\alpha$	150-450		100	$4,56 \pm 0,10$
3	900	$\beta$	200-500	359	29,5	$6,10 \pm 0,13$
		$\alpha$	600-850		100	$3,04 \pm 0,08$
4	1800	$\beta$	0-2000	129	100	$9,68 \pm 0,10$
		$\alpha$	150-350		100	$0,59 \pm 0,03$

TABLE 4.5 – Résultats de comptage utilisant la méthode de variation du facteur de discrimination avec la MLB.

méthode mettant en application certaines étapes dont les incertitudes ne peuvent être qu'approchées. Nous avons donc mis en place une méthode, plus longue, qui consiste en un tirage aléatoire des variables d'entrée, puis pour chacune d'elle un résultat est obtenu. La distribution des résultats de la MLB pour ces tirages donne les incertitudes.

#### 4.2.3.1 Formulation mathématique

##### Incertitude de la fonction $\tau(x)$

La fonction  $\tau(x)$  est définie comme le rapport de deux variables aléatoires corrélées, l'une étant contenue dans l'autre. On mesure empiriquement un coefficient de corrélation  $r^2$  à  $98,3\% \pm 1,7\%$ . Nous devons donc prendre en compte ce fait dans l'écriture de l'incertitude de  $\tau(x)$ .

Nous avons considéré que la corrélation était totale, et que donc le coefficient de corrélation était égal à 100% (par rapport à  $98,3\% \pm 1,7\%$ ). Avec  $I_0(x)$  l'intégrale de la petite fenêtre  $[c_1 ; c_2]$  au facteur de discrimination  $x$  donné (soit  $N_1(x)$ ) et  $I_1(x)$  le reste de l'intégrale sur la grande fenêtre  $[c_0 ; c_3]$  moins la petite ( $N_2(x) - N_1(x)$ ), on a :

$$\tau(x) = 1 - \frac{I_0(x)}{I_0(x) + I_1(x)} \quad (4.9)$$

On a donc  $u^2(\tau(x))$  :

$$u^2(\tau(x)) = \frac{I_0(x) \cdot I_1(x)}{(I_0(x) + I_1(x))^3} \quad (4.10)$$

La seconde étape concerne l'ajustement par une droite au sens des moindres-carrés. On sait que les coefficients de la droite sont définis par  $y = T v + U$ , tels que :

$$\begin{aligned}
T &= \frac{n \sum_{i=0}^n v_i y_i - \sum_{i=0}^n v_i \sum_{i=0}^n y_i}{n \sum_{i=0}^n v_i^2 - (\sum_{i=0}^n v_i)^2} \\
U &= \frac{\sum_{i=0}^n v_i^2 \sum_{i=0}^n y_i - \sum_{i=0}^n v_i y_i \sum_{i=0}^n v_i}{n \sum_{i=0}^n v_i^2 - (\sum_{i=0}^n v_i)^2}
\end{aligned} \tag{4.11}$$

Les incertitudes sur T et U sont alors :

$$\begin{aligned}
u^2(T) &= \frac{\sum_{j=0}^n [(n v_j - \sum_{i=0}^n v_i)^2 u^2(y_j)]}{(n \sum_{i=0}^n v_i^2 - (\sum_{i=0}^n v_i)^2)^2} \\
u^2(U) &= \frac{\sum_{j=0}^n [(\sum_{i=0}^n v_i^2 - v_j \sum_{i=0}^n v_i)^2 u^2(y_j)]}{(n \sum_{i=0}^n v_i^2 - (\sum_{i=0}^n v_i)^2)^2}
\end{aligned} \tag{4.12}$$

On obtient alors l'incertitude sur la droite, en prenant une corrélation totale entre T et U :

$$u^2(y) = v_i^2 u^2(T) + v^2(U) + 2v_i u(T)u(U) \tag{4.13}$$

Nous avons alors ici les incertitudes sur la courbe et l'interpolation linéaire. La troisième étape est la détermination du meilleur couple, celui qui correspond au mieux à la courbe  $\tau(x)$ , au sens des moindres-carrés. L'incertitude du couple déterminé est la sienne propre, sans incertitude cumulée.

### Incertitudes liées à l'interpolation selon le facteur de discrimination des spectres

L'interpolation entre les spectres est faite de façon linéaire. Ainsi il répond pour chaque point à l'équation :

$$Y(c,x) = A(c)(1 - P(x)) + B(c)P(x) \tag{4.14}$$

Avec :

- $x$  la valeur du facteur de discrimination ;
- $c$  le numéro de canal ;
- $Y(c, x)$  le point du spectre au canal  $c$ ,  $\alpha$  ou  $\beta$  ;
- $A(c)$  le point du spectre au canal  $c$  correspondant au spectre mesuré au facteur de discrimination immédiatement avant celui déterminé ;
- $B(c)$  le point du spectre au canal  $c$  correspondant au spectre mesuré au facteur de discrimination immédiatement après celui déterminé ;
- $P(x)$  correspond à une pondération, permettant une interpolation linéaire, calculé par  $P(x) = (x_A - x)/(x_A - x_B)$ , avec  $x_A$  le facteur de discrimination du spectre  $A$ , et  $x_B$  celui de  $B$ .



Suivant ces équations, l'incertitude pour un spectre  $\alpha$  ou  $\beta$  sur l'interpolation linéaire est :

$$u^2(Y(c,x)) = (1-P(x))^2 u^2(A(c)) + (P(x))^2 u^2(B(c)) + \frac{(B(c) - A(c))^2}{(x_B - x_A)^2} u^2(x) \quad (4.15)$$

Les incertitudes sur les valeurs par canal ( $A(c)$  et  $B(c)$ ) sont estimées par la racine de l'estimation de la moyenne, selon les règles pour les lois normales.

### Incertitudes liées au comptage

L'incertitude sur le calcul de l'activité est calculée de façon standard à partir du spectre. Cependant, l'incertitude sur le nombre de coup  $N$  dans la fenêtre définie par les canaux  $[c_1 ; c_2]$  est :

$$u(N) = \sqrt{\sum_{c_1}^{c_2} u^2(Y(c_i,x))} \quad (4.16)$$

#### 4.2.3.2 Tirages aléatoires

Cette méthode part du principe que les lois de distribution des valeurs de départ sont connues, puis réalise des tirages aléatoires selon ces lois pour appliquer autant de fois l'analyse [GUM S1]. A la fin, nous obtenons une certaine distribution du résultat, avec valeur moyenne et écart-type.

### Incertitude de la fonction $\tau(x)$

La distribution des sommes sur les fenêtres ( $N_1$  et  $N_2$ ) suit une loi normale puisque due aux comptages. Ces deux variables aléatoires étant corrélées ( $r^2 = 98,3\% \pm 1,7\%$ ), nous définissons  $N_3 = N_2 - N_1$  une nouvelle variable aléatoire indépendante. Nous réalisons donc plusieurs milliers de tirages aléatoires selon une distribution normale pour  $N_1$  et  $N_3$ , avec la valeur mesurée pour estimateur de la moyenne, et la racine de la valeur mesurée pour estimateur de l'écart-type. Nous obtenons alors plusieurs milliers de fonctions  $\tau(x)$ . Dans le cas général, la distribution des  $\tau(x)$  ne suit pas une loi normale, comme étant le rapport de deux lois normales. Cependant, dans notre cas, le facteur de corrélation entre la distribution et une loi normale est de  $99,7\% \pm 0,03\%$  (Fig. 4.12).

### Incertitude sur la détermination du facteur de discrimination

Pour chacun des  $\tau_i$  construits par tirage aléatoire, la méthode conduit à un facteur de discrimination. Nous obtenons donc une distribution de ces valeurs (Fig. 4.13).

De cette manière est estimée l'incertitude sur le facteur de discrimination des quatre sources de référence (Tab. 4.2) (Tab. 4.6).

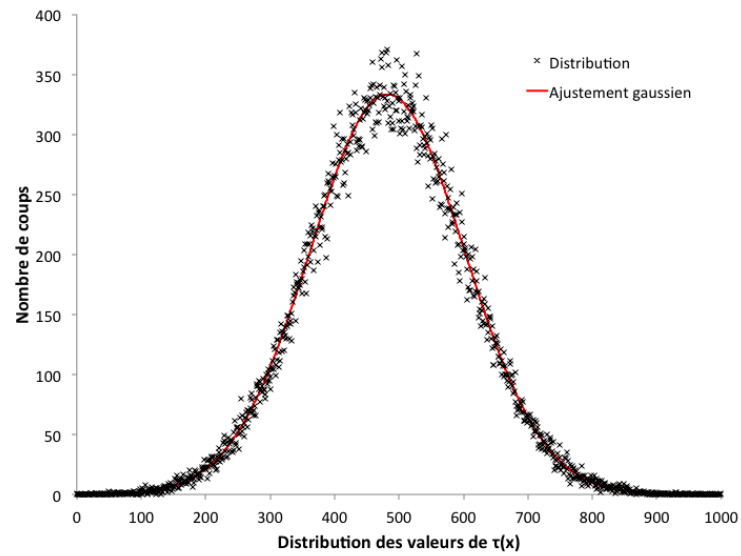


FIGURE 4.12 – Histogramme de 100 000 tirages aléatoires de  $\tau(x)$  pour un  $x$  fixé, ajusté par une loi normale.

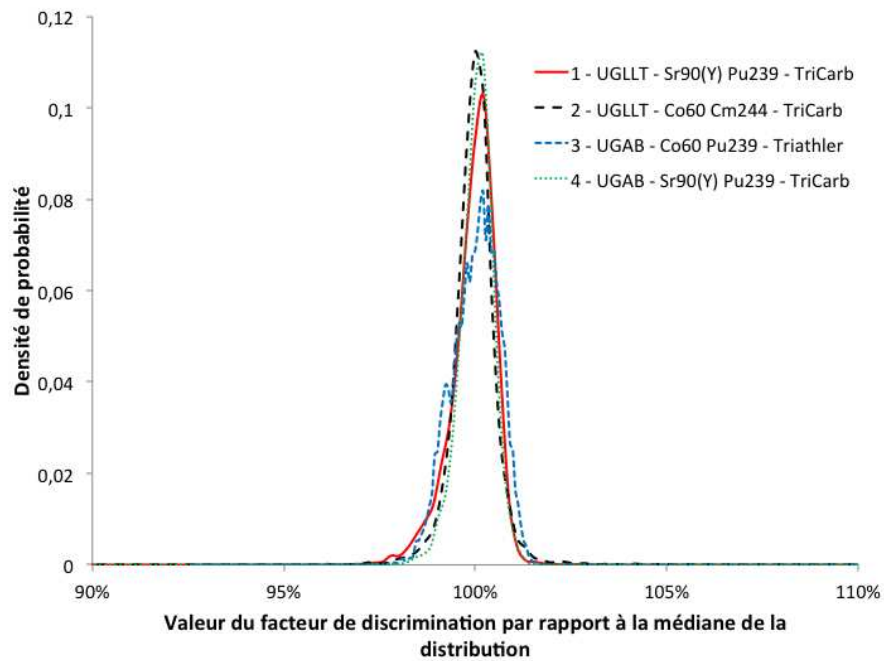


FIGURE 4.13 – Profils de la distribution du facteur de discrimination pour quatre sources différentes sur trois appareils, pour 10 000 tirages.

Numéro	Facteur de discrimination		
	moyen	médian	écart-type
1	113,44	113,50	0,67
2	114,48	114,50	0,67
3	356,27	356,50	2,18
4	128,29	128,75	0,58

TABLE 4.6 – Facteurs de discrimination estimés par tirages aléatoires (10 000) pour les quatre sources de référence (Tab. 4.2).

### Incertitude sur la détermination du nombre de coup dans la fenêtre

La distribution du résultat des comptages est issue de la relation entre l'incertitude sur le facteur de discrimination et celle sur le nombre de coups. La distribution est alors la somme des distributions des nombres de coups données pour chaque valeur du facteur de discrimination, normées par cette valeur (Fig. 4.14).

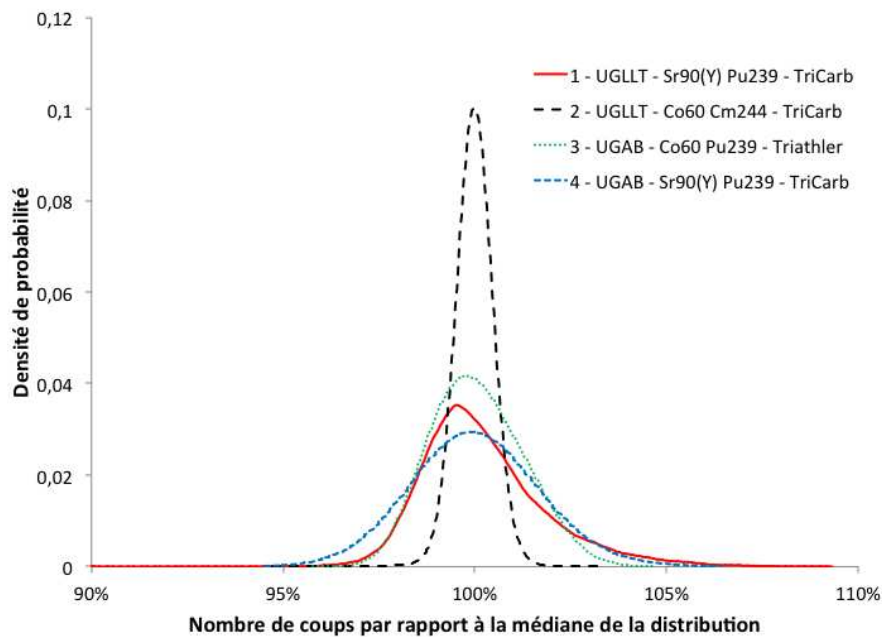


FIGURE 4.14 – Profils de la distribution du nombre de coups pour quatre sources différentes sur trois appareils, pour 10 000 tirages.

De cette manière est estimée l'incertitude sur les activités de mesure des quatre sources de référence (Tab. 4.2), par rapport à celui donné par calcul (Tab. 4.7). On constate que les incertitudes de comptages calculées sont majorées par l'incertitude sur le rendement, dépendant d'une source étalon à 1,5%.

Numéro	Résultat estimé (Bq)			Résultat calculé (Bq)
	moyen	médian	incertitude (k=1)	(k=1)
1	9,07	9,05	0,23	9,15 ± 0,14
2	4,60	4,61	0,09	4,56 ± 0,10
3	3,08	3,08	0,07	3,04 ± 0,08
4	0,60	0,60	0,02	0,59 ± 0,03

TABLE 4.7 – Activités estimées par tirages aléatoires (10 000) pour les quatre sources de référence (Tab. 4.2), par rapport aux activités et incertitudes calculées.

#### 4.2.4 Paramètres influençant la MLB

##### 4.2.4.1 Interpolation de la fonction caractéristique $\tau(x)$

Nous avons choisi de ne faire des mesures qu'avec un pas de dix valeurs de facteur de discrimination (même échelle sur le TriCarb et le Quantulus). Les données manquantes sont interpolées. Afin de vérifier la validité de ce choix, nous avons réalisé des mesures supplémentaires autour de la valeur déterminée du facteur de discrimination (Fig. 4.15).

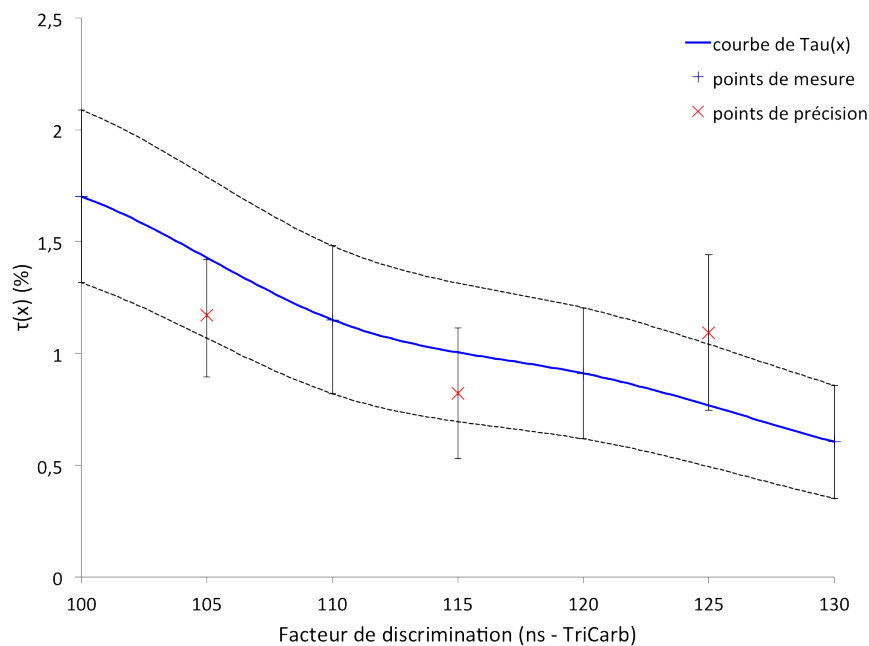


FIGURE 4.15 – Courbes de  $\tau(x)$  avec les points de mesure, l'interpolation par splines cubiques et les points de mesures supplémentaires, compatible avec l'interpolation.

Nous considérons en accord avec la logique que l'interpolation reste valide dans ce domaine d'application.

#### 4.2.4.2 Utilisateur et choix de fenêtre

L'utilisateur peut avoir une influence sur le logiciel à travers le choix de la fenêtre contenant les  $\alpha$ . Nous avons donc confronté quatre opérateurs à six sources de  $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y} - ^{239}\text{Pu}$  en Ultima Gold AB dans différentes conditions de rapport d'activité, et donc de pH. Un pré-réglage du facteur de discrimination pour ces radioéléments a déterminé la valeur de 128 ns sur un TriCarb (Fig. 4.16).

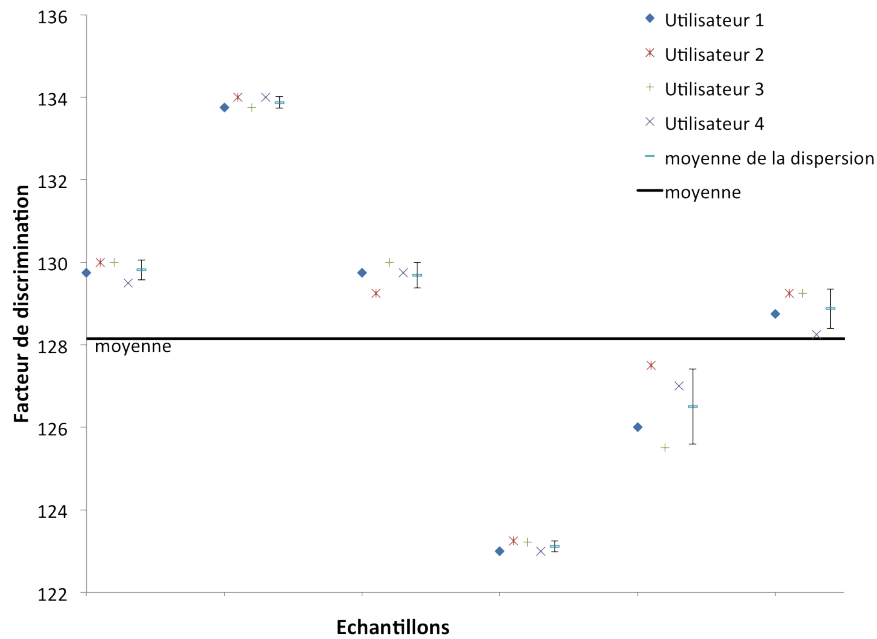


FIGURE 4.16 – Comparaison des valeurs du facteur de discrimination obtenues par différents utilisateurs confrontés à différentes sources de mélange  $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y} - ^{239}\text{Pu}$ . Le facteur de discrimination est en moyenne de  $128 \pm 3$  ns.

#### 4.2.4.3 Nombre de mesures effectuées

Le nombre de mesures effectuées peut avoir une influence. En effet, la MLB cherche un ajustement par deux segments et en trouve toujours un. Il est donc nécessaire que l'utilisateur ait un œil critique sur la courbe de  $\tau(x)$ . Ainsi, pour un même échantillon, cette méthode donne des résultats différents suivant le nombre de mesures des jeux de données fournis en entrée (Fig. 4.17). Ces résultats sont bien différents, mais difficilement comparables au facteur de discrimination théorique.

Les efficacités de comptage (Fig. 4.18), montrent que les sets compatibles sont ceux plutôt centrés sur la valeur recherchée. En effet, en décentrant trop, il y a trop peu de points de mesure d'un côté ou de l'autre, et l'une des deux tendances

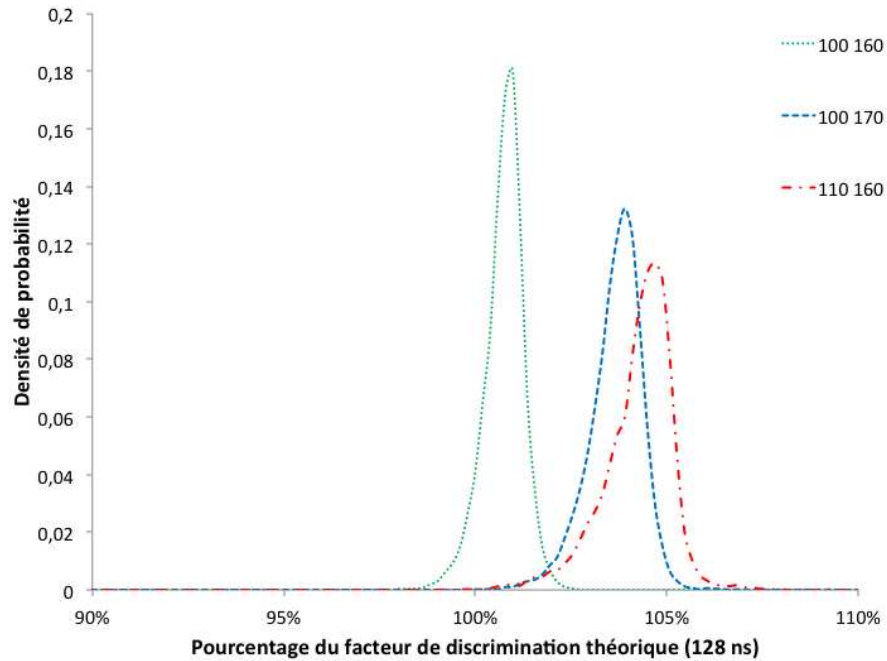


FIGURE 4.17 – Application de la MLB sur différents sets de mesures pour un même échantillon, en comparant les valeurs du facteur de discrimination.

peut être favorisée. C'est pourquoi nous conseillons de faire un set d'au moins sept mesures, centré sur la valeur moyenne habituelle (120 sur le TriCarb et le Quantulus, 330 sur notre Triathler). Selon ce principe, le set utile dans l'illustration (Fig. 4.18) est [100 ; 160].

#### 4.2.4.4 Reproductibilité et répétabilité

##### Répétabilité

Afin de tester la répétabilité de la méthode, nous avons réalisé un essai avec une source de  $^{137}\text{Cs}$  -  $^{244}\text{Cm}$ . Cinq sources de ce mélange ont été préparées puis comptées selon les mêmes protocoles sur un TriCarb. Les valeurs du facteur de discrimination obtenue par la MLB (Tab. 4.8) permettent d'affirmer la répétabilité de la méthode avec une dispersion de 1,46%.

##### Reproductibilité

La reproductibilité est évaluée à travers la détermination du facteur de discrimination par différentes personnes sur un panel de sources (Fig. 4.19). A partir des écarts-types des facteurs de discrimination moyens pour chaque source, nous obtenons une estimation de la dispersion : 0,4%.

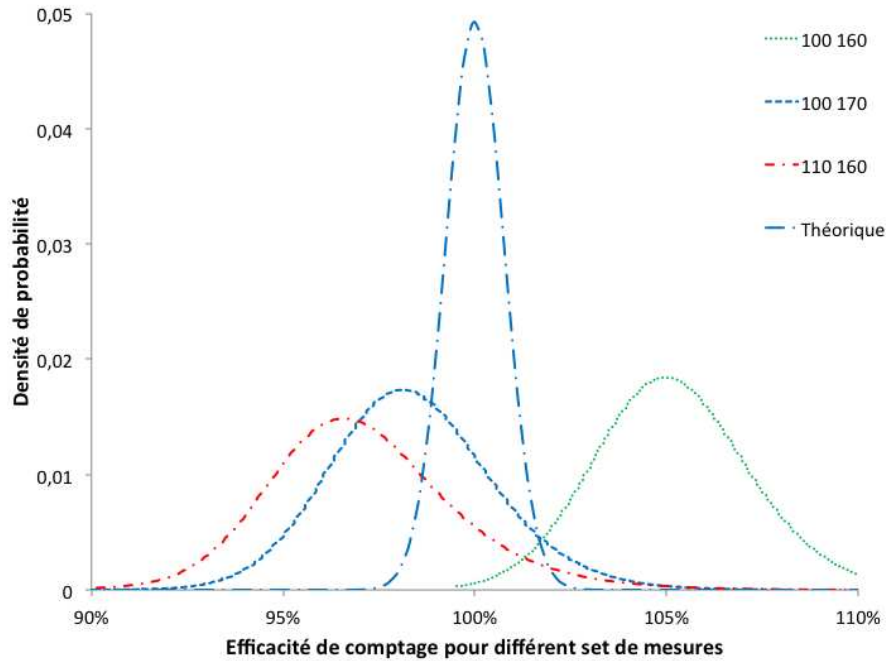


FIGURE 4.18 – Application de la MLB sur différents sets de mesures pour un même échantillon ( $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y} - ^{239}\text{Pu}$ ), en comparant les efficacités de comptage. La valeur du facteur de discrimination théorique a été déterminée à partir de sources étalons  $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$  et de  $^{239}\text{Pu}$ .

Numéro	Activité $^{137}\text{Cs}$ (mBq) (k=1)	Activité $^{244}\text{Cm}$ (mBq) (k=1)	Volume total de source (mL)	Facteur de discrimination (ns)
1	$986 \pm 15$	$81 \pm 1$	$4,9825 \pm 0,0001$	123
2	$975 \pm 15$	$83 \pm 1$	$4,9844 \pm 0,0001$	121
3	$977 \pm 15$	$82 \pm 1$	$5,0334 \pm 0,0001$	125
4	$971 \pm 15$	$82 \pm 1$	$5,0368 \pm 0,0001$	121
5	$978 \pm 15$	$82 \pm 1$	$5,1977 \pm 0,0001$	124

TABLE 4.8 – Définition des sources de  $^{137}\text{Cs} - ^{244}\text{Cm}$  pour les cinq répétitions, avec le facteur de discrimination déterminé par la MLB.

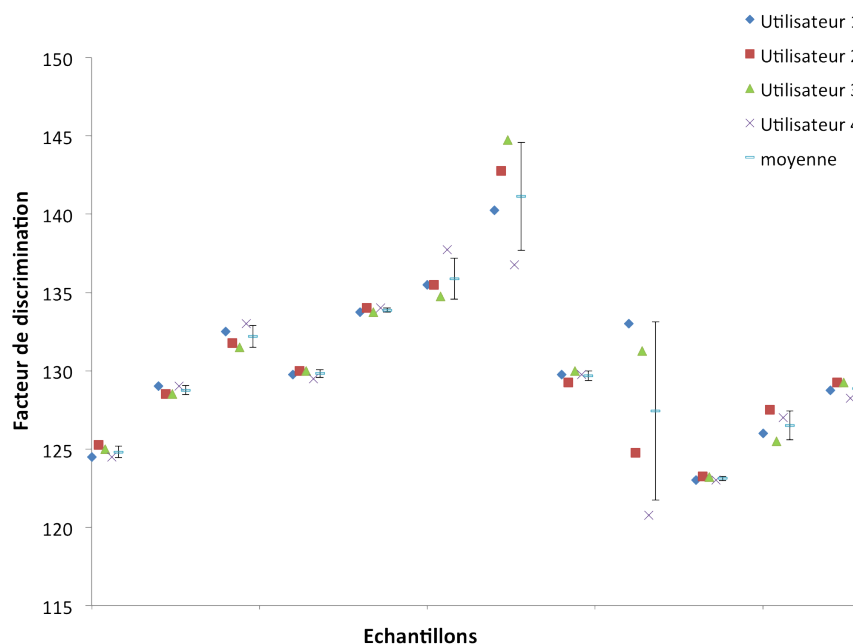


FIGURE 4.19 – Ensemble des valeurs du facteur de discrimination trouvées par différents utilisateurs confrontés à différentes sources.

## 4.2.5 Essais sur deux sources particulières

### 4.2.5.1 Source de $^{222}\text{Rn}$

Afin de comparer cette méthode avec le résultat d'une analyse par spectrométrie  $\gamma$ , nous avons fait dégazer une source de  $^{226}\text{Ra}$  dans 500 mL d'eau. De cette quantité nous avons prélevé une aliquote de 10 mL pour la scintillation liquide, mélangés à 10 mL d'Ultima Gold AB. La spectrométrie  $\gamma$  de l'échantillon pendant 23700s (Fig. 4.20) permet d'annoncer un résultat de  $5,0 \pm 1,5$  Bq/L.

Cette source a été comptée huit cycles de 10 658 s caractérisés chacun par un facteur de discrimination différent, de 90 à 160 ns. L'application de la méthode pour la recherche de paramètre de discrimination (MLB) donne, dans la fenêtre [525 ; 725], un facteur de discrimination à 124 ns. La courbe  $\tau(x)$  a cependant un aspect sensiblement différent de celui qu'on lui connaissait (Fig. 4.21) : elle semble avoir une sorte de palier, ou rebond, entre les facteurs 110 et 130. Cela est du à la multiplicité des  $\alpha$  dans le spectre. Malgré cela, on identifie facilement les deux tendances nécessaires à la méthode.

A la valeur du facteur de discrimination sont associés deux spectres  $\alpha/\beta$  (Fig. 4.22) à partir desquels nous obtenons une activité  $\alpha$ -globale de  $10,25 \pm 0,44$  Bq/L. Sachant que c'est une source de  $^{222}\text{Rn}$ , les deux pics visibles peuvent corres-



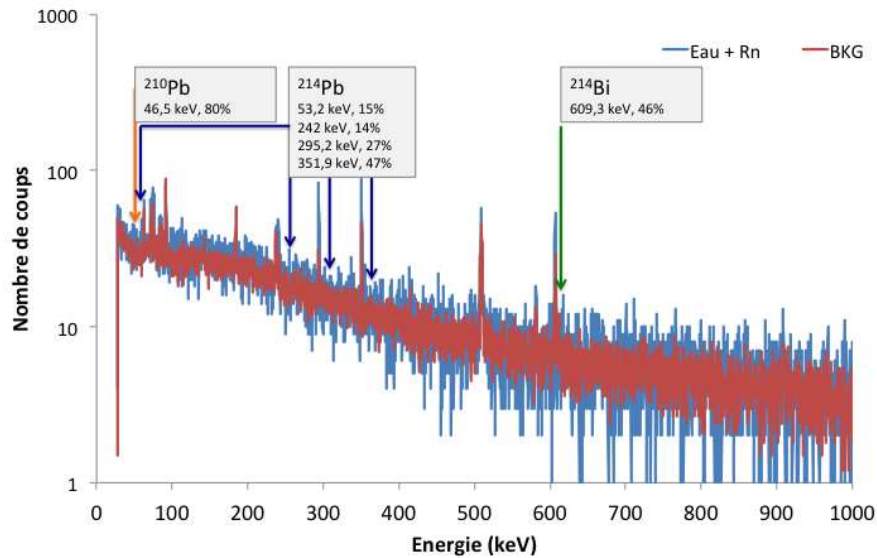


FIGURE 4.20 – Spectre en énergie d'un comptage par spectrométrie  $\gamma$  d'une source d'eau de  $500\text{ cm}^3$  contenant du gaz  $^{222}\text{Rn}$  issu d'une source de  $^{226}\text{Ra}$ , comptée pendant 23 700 s

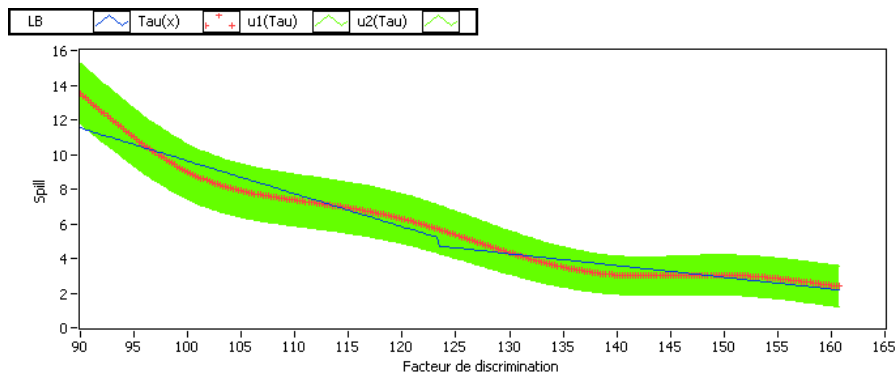


FIGURE 4.21 – Courbe  $\tau(x)$  pour la source de  $^{222}\text{Rn}$ , comptée pour huit facteurs de discrimination pendant 180 minutes chacun, sur un Quantulus.

pondre aux trois premières émissions  $\alpha$  [CEA 1999] :

- $^{222}\text{Rn}$  : 5489,52 keV, 99,92%
- $^{218}\text{Po}$  : 6002,4 keV, 100%
- $^{214}\text{Po}$  : 7686,9 keV, 100%

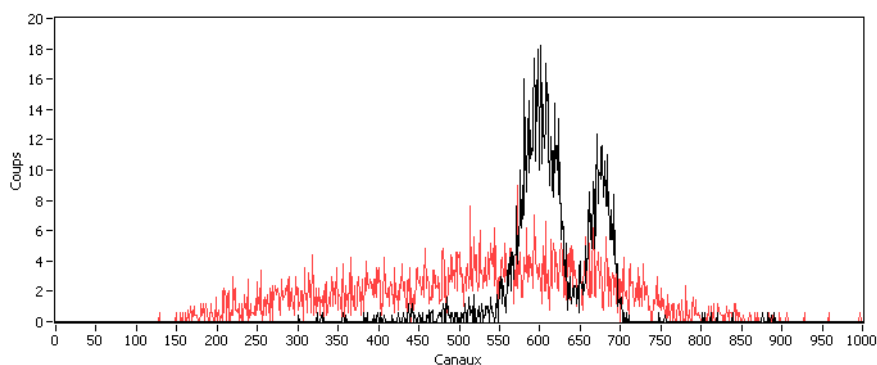


FIGURE 4.22 – Spectres discriminés pour la source de  $^{222}\text{Rn}$ , comptée pendant 180 minutes chacun, sur un Quantulus.

	$\alpha$		$\beta$
$^{222}\text{Rn}$	$634,45 \cdot 10^{-3}$	$^{214}\text{Pb}$	$638,04 \cdot 10^{-3}$
$^{218}\text{Po}$	$634,87 \cdot 10^{-3}$	$^{214}\text{Bi}$	$640,43 \cdot 10^{-3}$
$^{214}\text{Po}$	$640,56 \cdot 10^{-3}$	$^{210}\text{Pb}$	$169,55 \cdot 10^{-6}$
$^{210}\text{Po}$	$120,25 \cdot 10^{-9}$	$^{210}\text{Bi}$	$27,59 \cdot 10^{-6}$

TABLE 4.9 – Activités relatives des descendants du  $^{222}\text{Rn}$  après un apport unique à  $t=0$  de 1 Bq de  $^{222}\text{Rn}$ , au temps  $t = 216\,780$  s. La méthode de calcul est détaillée en annexe C.

Le temps de comptage et les temps de décroissance permettent ici l'équilibre des trois premiers  $\alpha$  (Tab. 4.9). On s'attend donc à trouver deux fois plus d'activité dans le premier pic ( $^{222}\text{Rn}$  et  $^{218}\text{Po}$ ) que dans le second ( $^{214}\text{Po}$ ). Le spectre  $\alpha$  est donc ajusté par trois gaussiennes (Fig. 4.23) à l'aide de Origin, un logiciel de MAO. On mesure alors dans le pic de droite une activité de  $3,41 \pm 0,15$  Bq/L, soit un tiers de l'activité  $\alpha$ -totale ( $10,25 \pm 0,44$  Bq/L). La proportion connue de cet élément permet de remonter à l'activité initiale en  $^{222}\text{Rn}$  :  $5,36 \pm 0,24$  Bq/L, résultat compatible avec la précédente mesure par spectrométrie  $\gamma$  ( $5,0 \pm 1,5$  Bq/L).

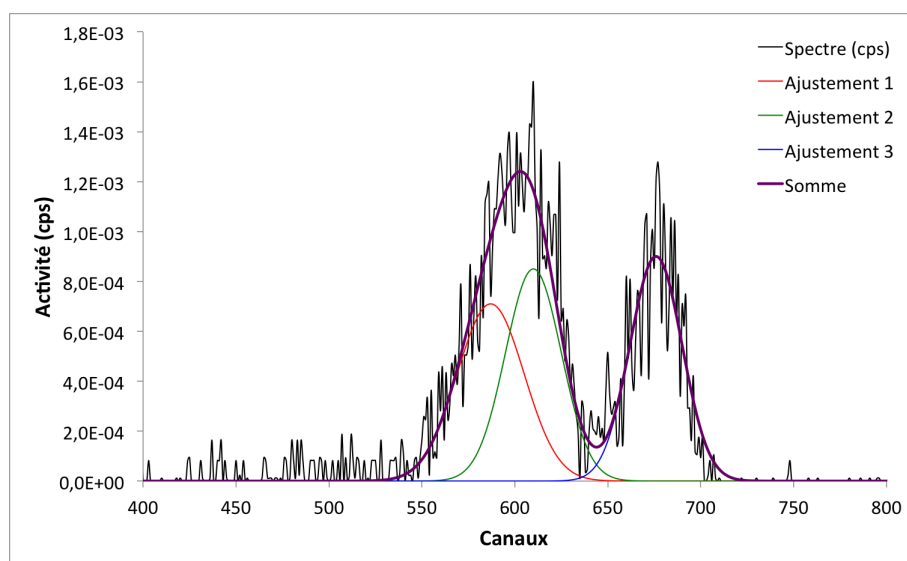


FIGURE 4.23 – Spectre  $\alpha$  de la source de  $^{222}\text{Rn}$  dont les trois premiers  $\alpha$  sont ajustés par des gaussiennes.

#### 4.2.5.2 Source d'intercomparaison CETAMA

Afin de continuer la validation de la MLB, nous avons soumis au logiciel un échantillon d'une source d'intercomparaison de la CETAMA<sup>2</sup>, EIL CETAMA 2008, solution C. Nous avons alors réparti cinq aliquotes de 5 mL dans autant de fioles de scintillation, remplies de 15 mL d'Ultima Gold AB.

Numéro	Masse (mg)
C1	$4982,5 \pm 0,1$
C2	$4984,4 \pm 0,1$
C3	$5033,4 \pm 0,1$
C4	$5026,8 \pm 0,1$
C5	$5032,2 \pm 0,1$

TABLE 4.10 – Masses et identifications des aliquotes issues de la source d'intercomparaison EIL CETAMA 2008, solution C.

Afin d'obtenir un comptage suffisant partant du fait que l'activité de la source est d'environ 10 Bq/L, nous avons choisi de compter les cinq échantillons pendant 6 h chacun, répété tous les 10 PDD<sup>3</sup>, de 90 ns à 160 ns, soit dix jours de mesure ininterrompue. Le logiciel permet alors la détermination d'un facteur de

2. La Commission d'ETAbblissement des Méthodes d'Analyse (CETAMA) a pour mission de mener des actions visant à l'amélioration de la qualité des résultats des mesures et analyses.

3. Facteur de discrimination d'un TriCarb

discrimination et propose les activités  $\alpha$  et  $\beta$  associées (Tab. 4.11).

Numéro	Fenêtre $\alpha$	Facteur (ns)	Activité (Bq/L)
C1	190-400	118	$8,44 \pm 0,40$
C2	190-400	126	$7,85 \pm 0,39$
C3	190-400	124	$8,36 \pm 0,39$
C4	190-400	130	$7,89 \pm 0,38$
C5	190-400	123	$8,46 \pm 0,40$
Moyenne		$124,2 \pm 4,4$	$8,20 \pm 0,18$
Somme	190-400	125	$8,00 \pm 0,18$

TABLE 4.11 – Résultats des mesures des cinq échantillons, avec la moyenne des mesures et les résultats de la somme des spectres.

Activité	Bq/L	Activité	Bq/L
U total	$8,7 \pm 0,6$	$^{63}\text{Ni}$	$10,8 \pm 1,1$
$^{210}\text{Po}$	$0,053 \pm 0,011$	$\beta$ global	$9,2 \pm 2,0$
$^{226}\text{Ra}$	$0,034 \pm 0,012$		
$\alpha$ total	$8,8 \pm 0,6$	$\alpha$ global	$7,0 \pm 0,4$

TABLE 4.12 – Valeurs de référence pour la source d'intercomparaison CETAMA C.

Connaissant les périodes des uraniums présents, nous pouvons considérer que ceux-ci n'ont pas décré et restent majoritaires dans l'activité  $\alpha$  totale. Nous prenons donc  $8,8 \pm 0,5$  Bq/L comme valeur de référence. Bien que les résultats soient majoritairement plus bas ( $8,20 \pm 0,18$  Bq/L en moyenne), ils restent compatibles avec la valeur assignée.

### 4.3 Limites de la discrimination

La capacité de discrimination est liée à deux phénomènes distincts :

1. La source ne doit pas être trop quenchée car les états triplets  $\gamma$  sont très sensibles et sans eux la discrimination est impossible ;
2. Le nombre de coups  $\alpha$  doit être significatif par rapport au bruit (dont  $\beta$ ).

De plus, le liquide scintillant doit être adapté à la discrimination. Ainsi, le Filter Count ne donne pas de résultat satisfaisant (Fig. 4.25).

Nous avons étudié la relation entre pré-concentration et « discriminabilité ». Plus le temps de comptage augmente, plus la limite de détection est basse, mais la MLB impose un échantillonnage à plusieurs facteurs de discrimination, et donc autant de fois une mesure potentiellement très longue. D'un point de vue

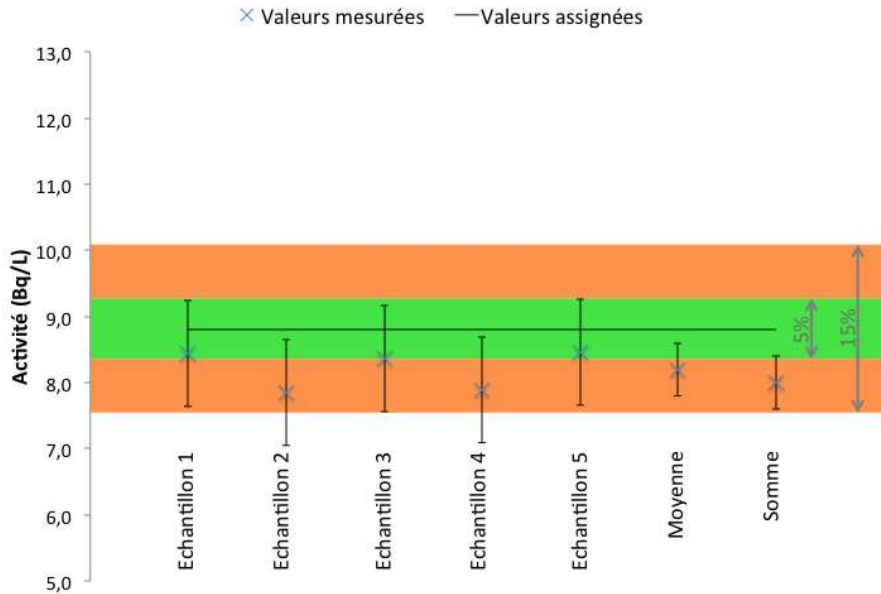


FIGURE 4.24 – Résultats de comptage pour la source d'intercomparaison, avec les intervalles à 5% et 15% par rapport à la valeur assignée.

statistique, pour pouvoir mesurer une source à  $0,05 \text{ Bq/L}$ , soit moitié moins active que la limite de détection donnée par la norme, il faut pour avoir un événement  $\alpha$  dans une aliquote de  $10 \text{ mL}$  (limite d'acceptation de l'Ultima Gold, sans prendre en compte l'acidité), compter pendant  $2\,000 \text{ s}$ , soit près de  $33 \text{ minutes}$  de comptage pour un coup ! Il semble donc nécessaire de concentrer la source.

Une concentration initiale de la source est à la fois un avantage et un inconvénient. C'est un avantage car plus la source est concentrée, plus la limite de détection est basse. Cependant, concentrer augmente le pH, le quenching et peut à la fois décaler le spectre  $\alpha$  vers les basses énergies et dégrader la discrimination. On sait que le TriCarb coupe le spectre  $\alpha$  au canal 62. Il faut donc pouvoir concentrer sans trop dégrader. Cet équilibre entre concentration et pH est d'autant plus délicat à obtenir que le pH n'est pas le seul paramètre influençant le quenching. De plus, les diverses énergies  $\alpha$  peuvent permettre, ou non, de concentrer un petit peu plus.

### 4.3.1 Acidité de la source

#### 4.3.1.1 Source d'intercomparaison IRSN

Cette source a été très difficile à traiter car le pic  $\alpha$  n'était pas particulièrement visible. Nous avons cependant déterminé la fenêtre entre les canaux 125 et 500, ce qui donne un facteur de discrimination à  $120 \text{ ns}$ , et un résultat à  $2,9 \pm 0,3 \text{ Bq/L}$  en

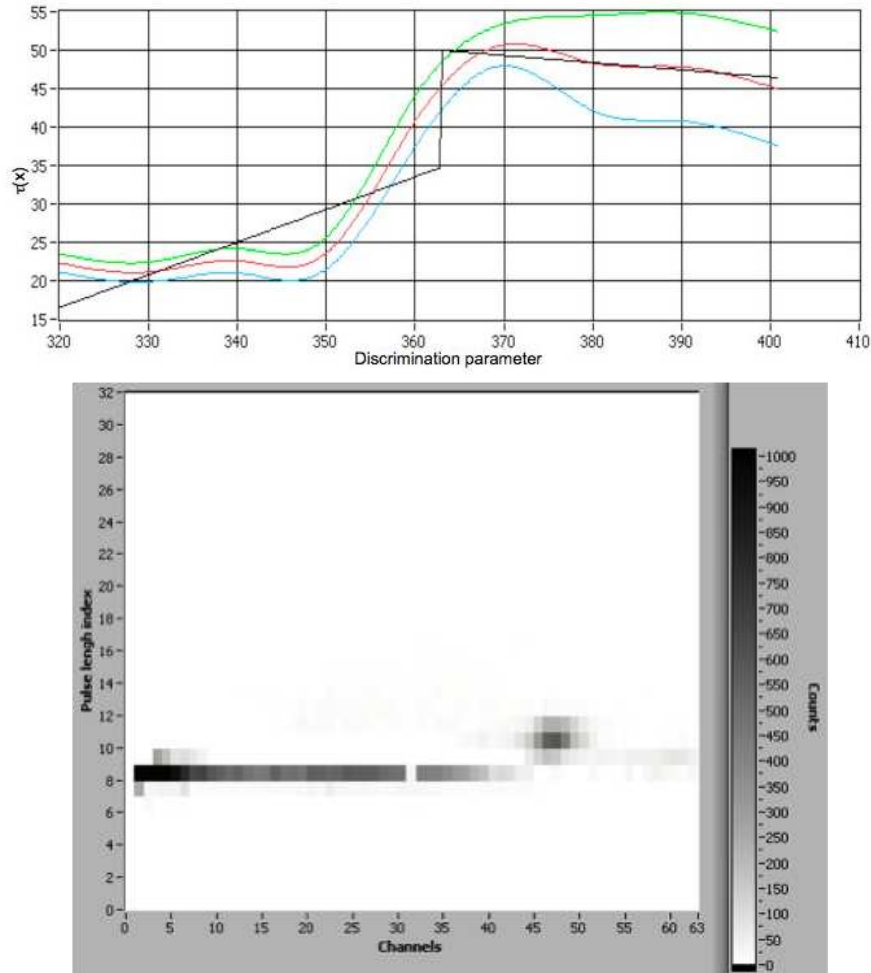


FIGURE 4.25 – Résultat pour échantillon de  $5,18 \pm 0,13 Bq$  de  $^{60}Co$  et  $2,54 \pm 0,04 Bq$  de  $^{239}Pu$  dans 20 mL de Filter Count. La courbe de  $\tau(x)$  présente deux pentes significative d'un liquide scintillant inadapté pour la discrimination  $\alpha/\beta$ . La matrice est issue du Triathler montre une tache sombre aux canaux [45 ; 50] correspond aux  $\alpha$  du  $^{239}Pu$  et la ligne sombre aux  $\beta$  : cette forme matricielle illustre la non séparabilité des deux types d'événements.

$\alpha$ . La courbe de  $\tau(x)$  n'ayant pas la forme attendue, nous ne pouvons pas considérer que la valeur obtenue correspond à l'activité  $\alpha$  et le résultat inférieur à la limite de détection. Nous allons quand même comparer le résultat aux valeurs d'activité de référence (Tab. 4.13).

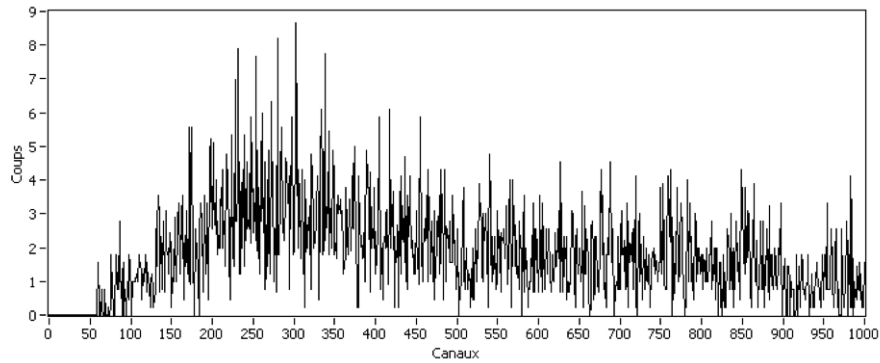


FIGURE 4.26 – Spectre  $\alpha$  au facteur de discrimination 120 ns (TriCarb) pour la source d'intercomparaison IRSN EIL 93SH300 de 2008.

	Valeur assignée ( $k=2$ )		Valeur mesurée ( $k=2$ )
Indice de radioactivité alpha global (Bq/L)	$0,207 \pm 0,047$	Activité alpha totale (Bq/L)	$2,9 \pm 0,3$
Indice de radioactivité bêta global (Bq/L)	$1,71 \pm 0,23$	Activité bêta global (Bq/L)	$17,3 \pm 0,6$

TABLE 4.13 – Valeurs de référence pour la source d'intercomparaison IRSN 93 SH 300 (1<sup>er</sup> avril 2008) et valeurs mesurées.

L'allure du spectre total pourrait suggérer la réponse : les  $\alpha$  pourraient être à la limite du spectre  $\alpha$ , dans une plage entre 50 et 150, soit une centaine de canaux plus bas qu'attendu. Cependant, le tSIE (450) n'indique pas particulièrement un quenching important, mais le pH de la source à l'origine ( $0,149 \pm 0,05$ ) suggère une dégradation non négligeable des  $\alpha$ . De plus, un autre phénomène probablement majoritaire peut être responsable de ce spectre : la migration des éléments par adsorption dans les parois du conteneur. Cette solution est plaisante car sur le spectre total sommant les 6,7 jours de comptage, aucun pic imputable aux  $\alpha$  ne se dessine.

## 4.3.1.2 Lien entre concentration, pH et tSIE

Théoriquement, le pH d'une solution concentrée correspond simplement à la quantité d'acide ( $n$ , mol/L) par rapport à la concentration ( $c$ , %), moins celle évaporée ( $e$ , %).

$$pH = -\log \left[ \frac{n}{1-c}(1-e) \right] \quad (4.17)$$

Afin de déterminer les différentes constantes, nous avons mesuré le pH et le tSIE (5 mL dans 15 mL d'Ultima Gold AB) d'aliquote au fur-et-à-mesure de l'évaporation. Nous avons donc acidifié à  $pH\ 3,4 \pm 0,1$  un demi litre d'eau des Abatilles. La solution a été mise à chauffer à  $80,0^\circ C$  et son pH a été mesuré à partir d'aliquotes de 5 mL (Tab. 4.14).

Concentration (%)	pH	tSIE
$0 \pm 0$	$3,42 \pm 0,12$	608
$12,0 \pm 0,01$	$3,34 \pm 0,15$	608
$22,7 \pm 0,01$	$3,28 \pm 0,15$	600
$36,6 \pm 0,01$	$3,25 \pm 0,16$	602
$51,0 \pm 0,02$	$3,04 \pm 0,17$	601
$63,0 \pm 0,02$	$2,92 \pm 0,18$	603
$76,7 \pm 0,02$	$2,65 \pm 0,18$	600
$89,5 \pm 0,02$	$2,20 \pm 0,18$	591

TABLE 4.14 – Résultat d'une mesure d'évaporation.

Grâce à ces mesures, nous pouvons constater trois faits : le tSIE ne semble pas varier significativement avec la concentration dans la limite des mesures, le pH diminue bien avec la concentration et l'emport d'acide est déterminé nul par un moindres-carrés sur ces données et l'équation 4.17. Nous avons répété ce processus avec une autre solution préalablement acidifiée à  $2,95 \pm 0,05$ . Avec la même estimation d'évaporation de l'acide, nous obtenons de nouveau une courbe théorique ajustées aux données (Fig. 4.27).

De cette façon, une solution acidifiée à 2,5 peut être concentrée dix fois pour descendre à 1,5, correspondant à la valeur de pH conseillée [NF ISO 11704]. Afin de relier l'acidité à la discriminabilité, nous avons réalisé un ensemble de sources de  $^{239}\text{Pu}$  (Tab. 4.15) acidifiées à l'acide nitrique pour différentes valeurs de pH.

Ces sources (Tab. 4.15) ont été comptées sur un TriCarb pendant vingt minutes à un facteur de discrimination réglé à 126 ns. Les résultats des comptages permettent d'associer à chacun des échantillons une valeur d'interférence (pourcentage d' $\alpha$  dans le spectre  $\beta$ ) ainsi qu'une estimation de la concentration de la source en partant d'un pH de 2,5 [NF ISO 11704]. En croisant les informations, nous en déduisons qu'une source ne peut pas être concentrée plus de 10 fois, et son pH ne doit pas être en deçà



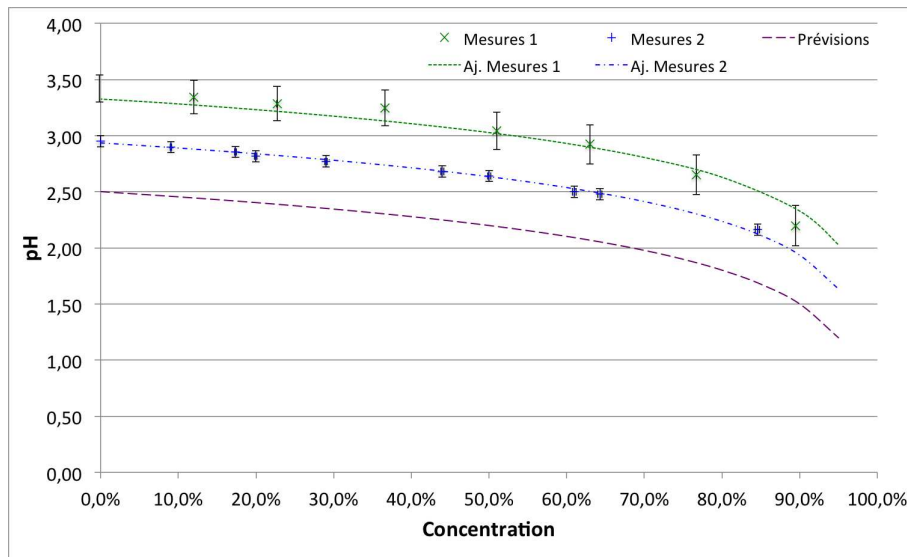


FIGURE 4.27 – Comparaisons des résultats expérimentaux et les calculs théoriques. L'emport d'acide est bien de 0%.

Numéro	Activité (Bq)	pH	Interférence $\alpha$ dans $\beta$ (%)	Concentration (%)	tSIE
0	$1,11 \pm 0,16$	1,74	$0,08 \pm 0,01$	82,6	635
1	$1,08 \pm 0,15$	1,58	$0,63 \pm 0,03$	88,0	629
2	$1,08 \pm 0,15$	1,41	$3,00 \pm 0,12$	91,9	609
3	$1,12 \pm 0,16$	1,23	$4,47 \pm 0,18$	94,6	618
4	$1,07 \pm 0,15$	1,08	$5,66 \pm 0,23$	96,2	615
5	$1,08 \pm 0,15$	0,92	$6,81 \pm 0,28$	97,4	608
6	$0,97 \pm 0,14$	0,76	$8,58 \pm 0,36$	98,2	604
7	$1,13 \pm 0,18$	0,58	$16,72 \pm 0,67$	98,8	599
8	$1,11 \pm 0,18$	0,42	$17,87 \pm 0,71$	99,2	568
9	$1,09 \pm 0,18$	0,24	$41,59 \pm 1,63$	99,5	505
10	$1,01 \pm 0,18$	0,09	$57,44 \pm 2,27$	99,6	475

TABLE 4.15 – Caractéristiques des sources pour la mesure de l'impact de l'acidification des sources. Sources avec 5 mL de solution pour 15 mL d'Ultima Gold AB, puis résultats pour la mesure de l'impact de l'acidification des sources. Sources avec 5 mL de solution pour 15 mL d'Ultima Gold AB, avec un facteur de concentration calculé sur la base d'un pH de 2,5 pour une source non concentrée.

1,5 pour que la discrimination ne soit pas trop dégradée, le taux d'interférences ( $\alpha$  dans  $\beta$ ) étant de l'ordre de 2%.

### 4.3.2 Limite de détection

La limite de détection<sup>4</sup> (LD) est en théorie quasi nulle car la discrimination est idéalement parfaite. Cependant, nous avons effectivement considéré cette perfection pour certains des échantillons de référence, mais en fait elle est illusoire et apparaît rapidement faussée : un ajustement du bruit de fond sous les  $\alpha$  a été nécessaire.

Il faut parfois après discrimination interpoler sous le pic  $\alpha$ . Cette interpolation permet d'avoir accès simplement à une mesure du bruit, donc de la limite de détection, dépendant comme dans le chapitre précédent du temps de comptage et de l'activité  $\beta$  et donc de la qualité de la discrimination. Pour l'ensemble des échantillons présentés ici, cette méthode a permis de descendre au mieux à 0,3 Bq/L et 3h de comptage (mais multipliées par huit pour chaque facteur de discrimination). Grâce à une pré-concentration de la source, dans les limites décrites plus haut, la limite de détection peut donc être abaissée à l'aide d'une évaporation à 90%, soit un gain d'un facteur 10, donc une LD à 0,03 Bq/L, en accord avec la norme.

## 4.4 Conclusion

Les  $\alpha$  et les  $\beta$  apparaissent sur un spectre en énergie dans la même plage : le rendement de conversion énergie-lumière des  $\alpha$  étant environ dix fois moindre que pour les  $\beta$ . La seule différence entre les deux rayonnements vient des différents temps de désexcitation, plus long pour les  $\alpha$  que pour les  $\beta$ . Différents systèmes intègrent des méthodes de discrimination basées sur ce seul phénomène physique permettant de discriminer les  $\alpha$  des  $\beta$ , le temps, à travers la forme des impulsions ou le temps de retour à zéro. La discrimination se fait par la détermination d'un paramètre seuil selon la méthode de discrimination, et chaque impulsion sera classée comme étant  $\beta$  (inférieure au seuil) ou  $\alpha$  (supérieure au seuil).

La détermination du facteur de discrimination se fait de façon standard à l'aide de deux sources, une  $\alpha$  et une  $\beta$ , d'énergies proches de celles à quantifier dans les échantillons à analyser. Le facteur de discrimination optimal est choisi comme étant celui où il y a le moins d'interférences d'un rayonnement dans l'autre spectre (coups  $\alpha$  dans le spectre  $\beta$  et réciproquement). La valeur du facteur de discrimination dépend de l'activité des rayonnements, de leur énergie et du cocktail de scintillation. Concernant l'analyse des eaux de consommation, le milieu varie peu, mais les échantillons à analyser contiennent des radionucléides inconnus. Nous avons donc développé une méthode permettant la détermination de ce facteur en s'affranchissant des sources de références.

---

4. Cf. annexe A

A partir d'un échantillonnage à différents facteurs de discrimination, une dizaine de valeurs autour de la valeur standard avec un pas de dix, les valeurs manquantes étant interpolées, et du spectre en énergie  $\alpha$ , nous définissons une courbe présentant deux tendances principales : une perte des  $\beta$  puis une perte des  $\alpha$ . Nous avons donc ajusté ces deux tendances par deux droites, dont la fin du premier et le début du second déterminent le facteur de discrimination optimal. Outre de bons résultats, les différents essais marquent la répétabilité et la reproductibilité de la méthode. Il ne faut cependant pas utiliser ces méthodes en aveugle et l'œil de l'expert reste indispensable.

Dans le cas des eaux de consommation, leurs caractéristiques chimiques sont assez similaires. Il est cependant recommandé d'acidifier les échantillons à un pH de 1,5 ou de 2,5 en cas de pré-concentration ; une concentration à 90% diminue le pH d'une unité. Avec un pH à 1,5, la discrimination est de bonne qualité sur un TriCarb avec un taux d'interférence de moins de 2%. Nous retrouvons bien la raison des prescriptions de la norme pour le mesurage des eaux de consommation par scintillation liquide. Les limites de détection sont quant à elles estimées par interpolation sous le spectre  $\alpha$  à partir des résidus hors de la fenêtre déterminée. Ainsi, nous avons estimé le bruit de fond sous le spectre  $\alpha$  de l'échantillon de  $^{222}\text{Rn}$  à 0,31 Bq/L. Une concentration d'un facteur 10 permet de l'amener à 0,03 Bq/L pour un temps de comptage de 3 h (fois huit comptages à huit facteurs de discrimination), bien en deçà de la limite recommandée.

Plusieurs traitements ont été proposés [Wisser 2006] afin d'améliorer le processus. Nous proposons une méthode innovante basée sur la numérisation des signaux pour des analyses hors-ligne, ce qui diminuerait très fortement le temps de mesure global. De plus, les impulsions pourraient être analysées selon plusieurs critères afin *d'a priori* mieux cerner et isoler les  $\alpha$  des  $\beta$ , ce qui fait l'objet du chapitre suivant.

# Séparation numérique des signaux

---

Alpha children wear grey. They work much harder than we do, because there're so frightfully clever. I'm really awfully glad to be a Beta, because I don't work so hard. And then we are much better than Gammas and Deltas. Gammas are stupid. They all wear green, and Deltas children wear khaki. Oh no, I don't want to play with Delta children. And Epsilons are still worse. They're too stupid to be able to read or write. Besides they wear black, which is such a beastly colour. I'm so glad I'm a Beta.

Haldous Huxley in *Brave New World*

## Sommaire

---

<b>5.1</b>	<b>La discrimination numérique</b>	<b>138</b>
5.1.1	Méthodes de discrimination numérique	138
5.1.2	Algorithmes des méthodes (LabView)	140
5.1.3	Simulation de discrimination numérique	141
<b>5.2</b>	<b>Acquisition des données</b>	<b>147</b>
5.2.1	Sources étalons	147
5.2.2	Démonstration de faisabilité	147
5.2.3	Premier montage pour la discrimination	149
5.2.4	Second montage pour la discrimination	158
<b>5.3</b>	<b>Analyse multicritère</b>	<b>167</b>
5.3.1	Encadrement en tension et charge	168
5.3.2	Détermination par encadrement des $\alpha$	170
<b>5.4</b>	<b>Modèles de simulation</b>	<b>177</b>
5.4.1	Modèle en deux exponentielles	177
5.4.2	Modélisation en trois et quatre exponentielles	184
<b>5.5</b>	<b>Conclusion</b>	<b>184</b>

---

Dans ce cinquième et dernier chapitre, nous allons présenter une proposition permettant de résoudre le problème majeur de la méthode décrite dans le chapitre précédent : le temps de comptage. Pour ce faire, nous avons choisi de numériser les signaux au plus tôt après le photomultiplicateur afin de les analyser sur ordinateur. En effet, il existe désormais des ADC (*Analogic to Digital Converter*) très rapides et abordables qui permettent donc d'échantillonner simplement les signaux de scintillation liquide pour les traiter par ordinateur. Nous allons donc présenter les nouvelles méthodes offertes par les traitements sur ordinateur, puis nous verrons comment les signaux sont acquis à travers trois montages différents. Nous pourrons alors travailler à la discrimination, particulièrement selon plusieurs méthodes exploitant les différentes analyses mises en place. Enfin, nous étudierons les modèles de simulation utilisés.

## 5.1 La discrimination numérique

Dans cette partie nous allons décrire les trois méthodes d'analyse que nous permet la numérisation des signaux, puis la façon dont tous les traitements présentés sont utilisés dans le programme LabView. Enfin, à l'aide d'une simulation de signaux nous allons appréhender le comportement des différentes analyses pour l'objectif de discrimination.

### 5.1.1 Méthodes de discrimination numérique

Grâce à la numérisation des signaux, il est désormais possible d'utiliser d'autres méthodes de discrimination plus difficilement applicables par des moyens analogiques, comme une transformée (de Fourier, en ondelettes) ou une comparaison du signal entrant avec un signal de référence. Nous allons présenter ici deux méthodes qui ont fait l'objet de publications dans le cadre de la discrimination : la méthode de Gatti [Gatti 1970] utilisée à Borexino [Ranucci] et la méthode de Yousefi [Yousefi 2008].

#### 5.1.1.1 Critère optimal de Gatti

Le filtre de Gatti [Gatti 1962] est une méthode de discrimination linéaire<sup>1</sup> optimale et indépendante de la forme des impulsions.

Cette méthode requiert la connaissance des impulsions temporelles moyennes et normées  $\bar{\alpha}(t)$  et  $\bar{\beta}(t)$  qui servent de référence pour celles mesurées  $S(t)$ , signal entrant normé. L'ensemble de ces signaux étant échantillonné à intervalles de temps  $\delta t$  réguliers, nous allons dans cet esprit remplacer l'écriture temporelle par celle échantillonnée. Ainsi,  $\bar{\alpha}(t)$  devient  $\bar{\alpha}_i$ , de même pour les autres.

---

1. Méthode pouvant être appliquée au fur-et-à-mesure de l'acquisition des données, sans pile ni buffer.

La formulation de Gatti met en jeu un paramètre  $G$  défini par la relation :

$$G = \sum P_i S_i \quad (5.1)$$

où  $P_i = \frac{\alpha_i - \bar{\beta}_i}{\alpha_i + \bar{\beta}_i}$  représente un poids.

Les valeurs de  $G$  [Ranucci] sont distribuées autour de valeurs moyennes, théoriquement négatives pour les signaux issus de  $\beta$  et plutôt positives pour des signaux issus d' $\alpha$ .

### 5.1.1.2 Critère de Yousefi

Développée pour faire de la discrimination neutron/ $\gamma$  [Yousefi 2008], cette méthode peut être appliquée à la discrimination  $\alpha/\beta$ . L'algorithme proposé, au contraire de l'ensemble des méthodes, est basé sur une discrimination dans le domaine fréquentiel. Celui-ci utilise une décomposition en ondelettes puis une définition de la puissance afin de comparer les différents signaux.

La décomposition en ondelettes d'une fonction représente la somme de translations et dilatations d'un motif de base  $\Psi$  (Eq. 5.2), de norme  $\|\Psi\|$  unitaire et de moyenne  $\bar{\Psi}$  nulle, qui par les coefficients  $a$  et  $b$  représente le signal  $S(t)$ , le tout dans la base canonique  $L_2(\mathbb{R})$  des fonctions de carrée sommable.

$$W_{\Psi}^S(a, b) = \int_{-\infty}^{+\infty} S(t) \frac{1}{\sqrt{a}} \Psi^*\left(\frac{t-b}{a}\right) dt \quad (5.2)$$

Une fonction d'échelle est définie comme étant l'énergie de la transformation en ondelettes à une dilatation ( $a$ ) définie et pour différentes translations ( $b$ ) (Eq. 5.3).

$$P(a) = \frac{1}{1 + n_b} \sum_{j=0}^{n_b} |W_{\Psi}^S(a, b_j)|^2 \quad (5.3)$$

A partir de cette fonction d'échelle est défini le facteur de discrimination  $Y_d$  comme le rapport de la puissance  $P$  à deux valeurs de  $a$  :  $Y_d = P(256)/P(70)$ . La première valeur de  $a$  correspond au maximum car  $P(a)$  n'a été défini que pour  $2^8$  valeurs de  $a$ , et 70 est l'approximation de  $a$  pour une puissance  $P$  maximale.

### 5.1.1.3 Ajustement des impulsions

Grâce à des algorithmes d'optimisation comme celui de Levenberg-Marquardt [Levenberg 1944][Marquardt 1978], il est possible de trouver une solution à l'équation d'ajustement de la forme de l'impulsion avec une somme d'exponentielles. A partir des ajustements, l'ensemble des autres traitements est

possible.

De façon pratique, l'algorithme de Levenberg-Marquardt, permet de déterminer le jeu de paramètres correspondant au mieux à l'ensemble des points de données, exprimé sous forme d'une fonction non-linéaire, par une méthode dérivée de la méthode des moindres-carrés. Cette méthode nécessite des paramètres initiaux, minima et maxima, définis à partir de la moyenne des signaux mesurés.

Nous avons vu dans le chapitre précédent que les impulsions peuvent être représentées par une somme de deux exponentielles (Eq. 4.5) : nous nous sommes alors particulièrement intéressés au paramètre  $R$ .

### 5.1.2 Algorithmes des méthodes (LabView)

Nous avons implémenté différentes méthodes de discrimination en LabView. Le logiciel permettant la simulation, l'acquisition et le traitement des signaux est constitué d'une simple boucle « évènement utilisateur » qui partage un tableau contenant les acquisitions. L'objet acquisition contient toutes les informations utiles d'une mesure :

- nom ;
- temps de mesure ;
- tableau de tous les objets impulsions.

Un objet impulsion est un conteneur possédant le signal, un tableau contenant les résultats des différentes méthodes de discrimination ainsi qu'un drapeau le désignant comme  $\alpha$  ou  $\beta$ .

Chaque traitement peut fonctionner de façon pseudo-réursive (pour chaque acquisition..., pour chaque impulsion...). Ceci permet aussi de multiplier les traitements sans avoir à réécrire systématiquement tout le code, mais ne garantit pas son optimisation puisqu'un même traitement peut être nécessaire à plusieurs méthodes.

Avant tout traitement, les impulsions sont redressées (signal positif), la ligne de base est soustraite et chaque impulsion est recalée par rapport au déclenchement.

#### Ligne de base et redressement

La ligne de base est calculée à partir des cinquante premières valeurs d'un signal. Une tension moyenne est calculée puis retranchée au signal qui est ensuite redressé pour être positif.

#### Recalage

La première valeur d'un signal ne correspond pas au début de l'impulsion intéressante. Le début de l'impulsion est fixée à 50 ns par une détection de pic, algorithme fourni par LabView. L'impulsion est calé à ce début par permutation circulaire entre

les premières et dernières valeurs du signal, puis est amputé de 10 échantillons de chaque côté pour n'en conserver que le principal.

### Gamme de tensions

Les ADC ont une gamme d'entrée définie, souvent de 1 V. Les signaux mesurés dont l'amplitude frise cette limite ont de fortes probabilités d'être écrêtés et ils perturbent les hautes énergies du spectre, correspondant à une sorte de repliement des hautes tensions aux limites de la carte. Nous avons donc choisi de supprimer toutes les impulsions de tension (non redressées) supérieures à 95% de la dynamique de l'ADC.

### 5.1.3 Simulation de discrimination numérique

Afin de tester ces différentes méthodes, nous avons simulé grossièrement des données. Les impulsions sont modélisées par deux exponentielles, représentant respectivement les composantes rapides et lentes d'un signal typique de scintillation liquide. Nous présentons ici les valeurs issues de l'analyse des signaux par le premier montage<sup>2</sup>. Nous obtenons la paramétrisation (Fig. 5.1) :

$$\begin{aligned}\tilde{S}_\alpha(t) &= A(0,89.e^{-t/7,69} + 0,11.e^{-t/52,6}) \\ \tilde{S}_\beta(t) &= A(0,94.e^{-t/6,67} + 0,06.e^{-t/41,7})\end{aligned}\quad (5.4)$$

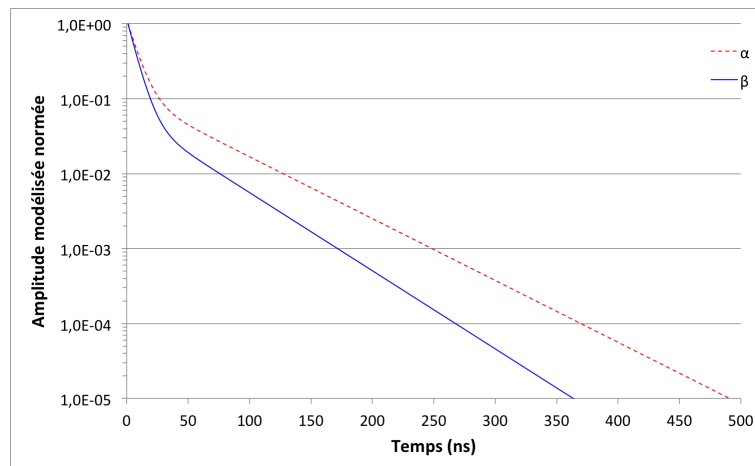


FIGURE 5.1 – Forme des impulsions simulées pour une somme de deux exponentielles (Eq. 5.4).

A partir de ces références, chaque valeur a été bruitée selon un motif gaussien avec un écart-type arbitraire de 2%. Par contre, l'amplitude de  $\tilde{S}_\beta(t)$  l'est selon une

<sup>2</sup> Valeurs obtenues par l'ajustement des signaux  $\alpha$  et  $\beta$  enregistrés par le premier montage puis discriminés (Fig. 5.44)



dispersion de 100% de façon à représenter un spectre continu, tandis que celle pour  $\tilde{S}_\alpha(t)$  est fixée à 5%.

Nous avons, pour chacune des méthodes présentées ci-après, réalisé un échantillon de 1 000 coups  $\alpha$  pour 10 000 coups  $\beta$ . Nous allons de plus montrer le résultat attendu d'un point de vue mathématique en prenant pour base l'équation 5.5, exprimant par deux exponentielles les composantes rapides et lentes du signal (Eq. 5.5).

$$S(t) = A \left( \frac{R}{1+R} \frac{1}{\tau_f} e^{-\frac{t}{\tau_f}} + \frac{1}{1+R} \frac{1}{\tau_s} e^{-\frac{t}{\tau_s}} \right) \quad (5.5)$$

Ce modèle est aussi exploité sous une autre forme :

$$S(t) = A_1 e^{-\frac{t-m_1}{\tau_1}} + A_2 e^{-\frac{t-m_2}{\tau_2}} \quad (5.6)$$

avec  $m_1$  et  $m_2$  deux variables permettant l'ajustement temporel du modèle par rapport aux signaux.

### Energie (E)

L'énergie  $E$  d'un signal (Eq. 5.5) correspond à son amplitude, en Volt. Le signal étant issu d'une mesure, nous avons une certaine dispersion autour de la valeur de tension à chaque temps. Nous avons donc choisi de déterminer cette tension à partir du maximum des signaux, car nous considérons que la fréquence d'échantillonnage d'au moins 1 GHz le permet. Ceci est représenté par  $S(0)$  selon l'équation 5.5.

Le spectre obtenu (Fig. 5.2) a une allure réaliste, ce qui peut justifier *a posteriori* le choix des valeurs des dispersions utilisées.

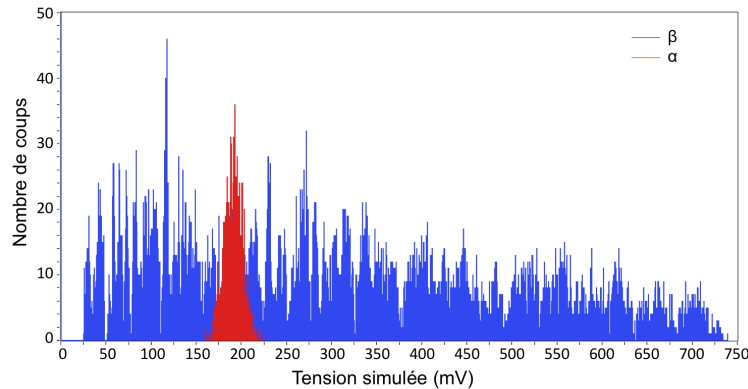


FIGURE 5.2 – Spectre en tension des signaux simulés.

### Charge (C)

La charge  $C$  est mesurée de façon simple : le signal est intégré sur toute sa longueur, soit  $T_{fin} - T_0$ .

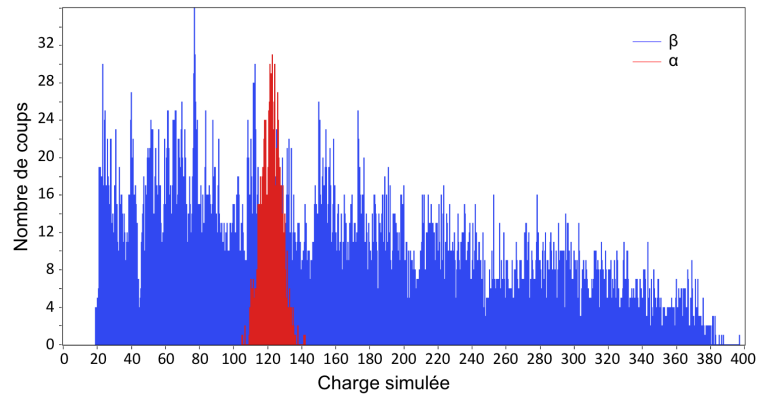


FIGURE 5.3 – Spectre de la charge des signaux simulés.

### Charge normalisée (CN)

La charge normalisée CN est obtenue par la charge de chaque signal, calculée précédemment, divisée par son maximum en tension.

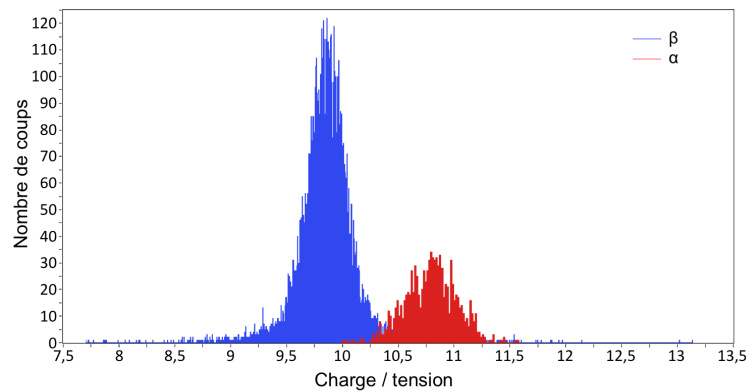


FIGURE 5.4 – Spectre en charge des signaux simulés normalisés par leurs amplitudes.

### Tail-to-total ratio (TTR)

La charge de chaque signal est mesurée, ainsi que la position du maximum de l'impulsion. A partir de cette valeur le signal est intégré de nouveau jusqu'à la fin. Le rapport des deux valeurs donne le ratio.

$$TTR = \frac{1}{C} \frac{A}{1+R} \left( 1 + R - R e^{-T_{fin}/\tau_f} - e^{-T_{fin}/\tau_s} \right) \quad (5.7)$$

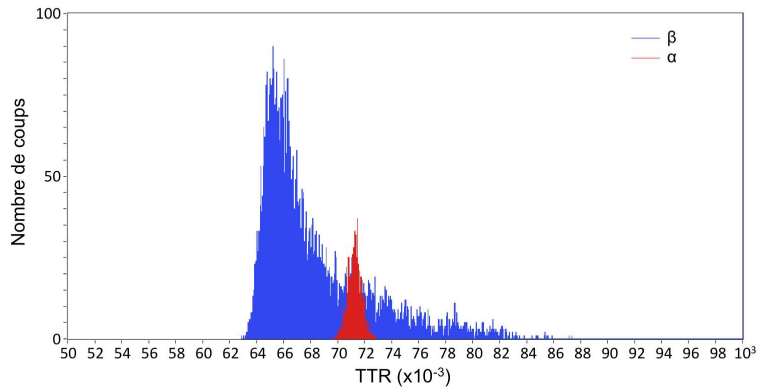


FIGURE 5.5 – Spectre des signaux simulés, analysés selon la méthode *Tail-to-total ratio*.

#### Pseudo-*Tail-to-total total ratio* (TTRm)

La charge de chaque signal est mesurée. A partir d'une valeur fixe  $T_1$  le signal est intégré à nouveau jusqu'à la fin. Le rapport des deux valeurs donne le ratio. L'équation est donc la même que la précédente, si ce n'est la définition du temps de départ.

$$TTRm = \frac{1}{C} \frac{A}{R+1} (Re^{-\frac{T_1}{\tau_f}} + e^{-\frac{T_1}{\tau_s}} - Re^{-\frac{T_{fin}}{\tau_f}} - e^{-\frac{T_{fin}}{\tau_s}}) \quad (5.8)$$

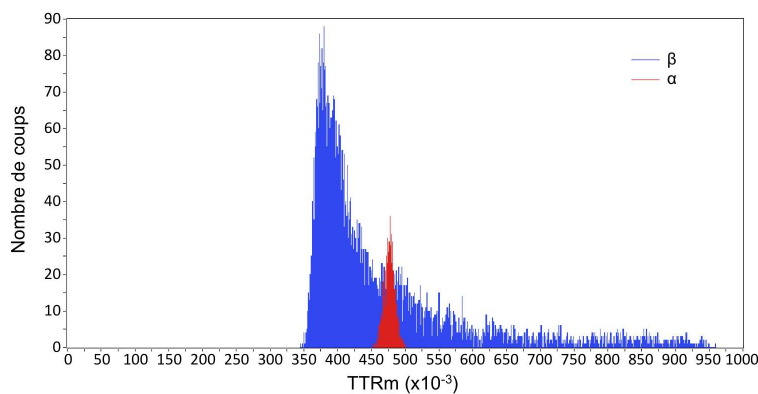


FIGURE 5.6 – Spectre des signaux simulés, analysés selon la méthode pseudo-*Tail-to-total ratio*.

### Méthode de Gatti

Cette méthode utilise comme on l'a vu une fonction poids ayant pour paramètres les modèles des deux impulsions à discriminer (Fig. 5.7).

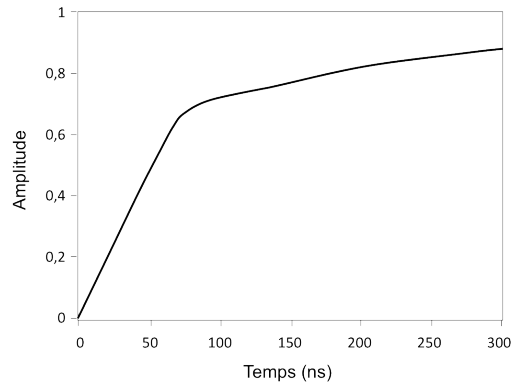


FIGURE 5.7 – Fonction poids de la méthode de Gatti calculée à partir des signaux de référence 5.1.

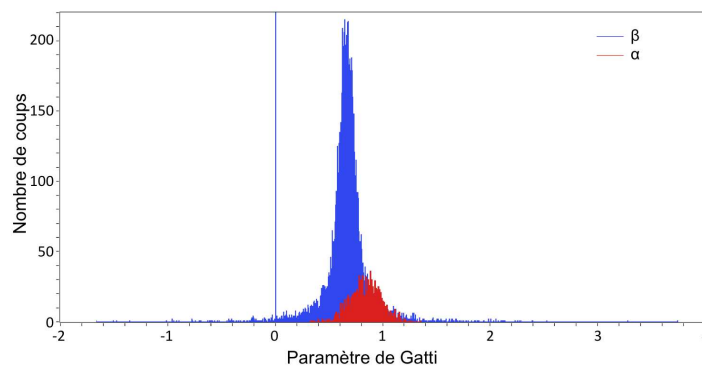


FIGURE 5.8 – Spectre des signaux simulés, analysés selon la méthode de Gatti.

### Méthode de Yousefi

La décomposition en ondelettes est relativement rapide par impulsion, mais le traitement de plusieurs dizaines de milliers de signaux est assez lent.

### Ajustement des impulsions

Les impulsions sont ajustées par deux exponentielles (Eq. 5.5) avec la méthode de Levenberg-Marquardt.

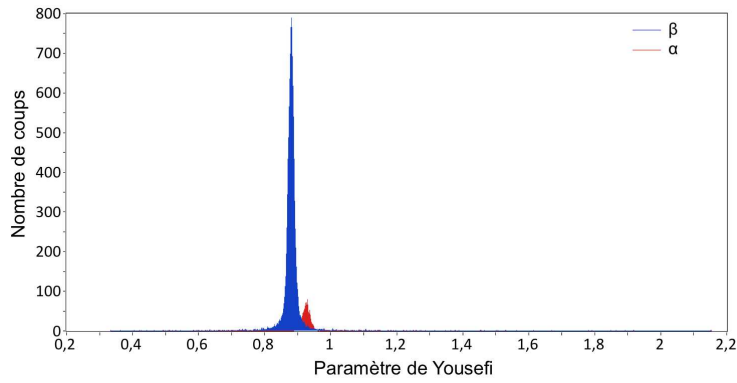


FIGURE 5.9 – Spectre des signaux simulés, analysés selon la méthode de Yousefi.

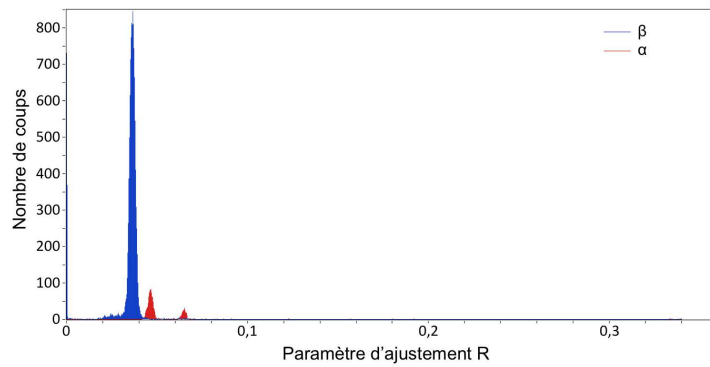


FIGURE 5.10 – Spectre des signaux simulés, analysés par ajustement du signal pour obtenir le paramètre  $R$  (Eq. 5.5). On note deux pics rouges ( $\alpha$ ) dus aux erreurs d'ajustement.

## 5.2 Acquisition des données

Plusieurs acquisitions ont été réalisées sur trois montages différents. Après avoir défini les sources étalons utilisées, nous avons fait la liste de ces trois montages et de leurs caractéristiques, un pour une démonstration de faisabilité et deux pour la discrimination.

### 5.2.1 Sources étalons

Afin de réaliser les premières mesures, nous avons réalisé cinq sources étalons (Tab. 5.1).

Identifiant	Eléments	Activités (k=2) (Bq)	Volume de source (mL) (k=2) (mL)
G0	Blanc	$\emptyset$	
G1	$^{239}\text{Pu}$	$1,09 \pm 0,03$	$0,1020 \pm 0,0002$
G2	$^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$	$9,78 \pm 0,31$	$0,1069 \pm 0,0002$
G3	$^{14}\text{C}$	$10,06 \pm 0,30$	$0,2474 \pm 0,0002$
G4	$^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$	$9,80 \pm 0,31$	$0,2082 \pm 0,0002$
	$^{239}\text{Pu}$	$1,08 \pm 0,03$	

TABLE 5.1 – Définition des sources étalons utilisées, avec 15 mL d’Ultima Gold AB, le minimum de source de façon à minimiser le quenching et le complément à 20 mL en eau des Abatilles.

### 5.2.2 Démonstration de faisabilité

Le premier montage a été réalisé de façon à montrer la faisabilité de la numérisation, de l’enregistrement des impulsions et de leur traitement. Nous avons donc fait le montage minimal, sans miroir ni coïncidence, sans stabilisation en température ni source étalon.

Le photomultiplicateur utilisé est un 9111B [9111B] de *Electron Tubes*. C’est un photomultiplicateur compact de 25 mm de diamètre dont la photocathode en bialkali est sensible dans la gamme vert-bleu (Fig. 5.11) et les dynodes en SbCs sont à focale circulaire pour une plus grande rapidité. Il semble donc tout désigné pour l’utilisation en scintillation liquide.

Il a été équipé d’une embase contenant dans un circuit imprimé minimaliste le pont diviseur, suivi d’un préamplificateur non intégrateur pour l’adaptation d’impédance, puis d’un amplificateur sans mise en forme. Nous avons alors en sortie une impulsion adaptée, amplifiée et en correspondance en temps et en amplitude avec l’impulsion d’origine.

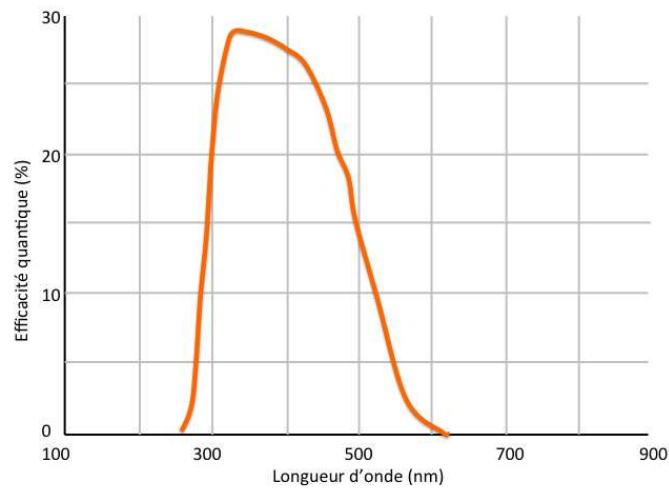


FIGURE 5.11 – Réponse spectrale typique du photomultiplicateur 9111B [9111B].

La carte de numérisation utilisée est une V1751 de CAEN<sup>3</sup>, carte échantillonnant le signal à 1GHZ sur 10 bits, reliée à un ordinateur via la carte V1718, interface VME-USB, et le logiciel de communication entre la carte et l'ordinateur est CAENScope. Il permet d'utiliser un déclenchement par seuil sur chacune de ses huit voies possibles, et un enregistrement en mode oscilloscope pour chacune d'elles. Nous avons donc enregistré plusieurs lots d'impulsions, plus une unique (Fig. 5.12), prise « au hasard » de deux sources test ( $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$  et  $^{241}\text{Am}$ ).

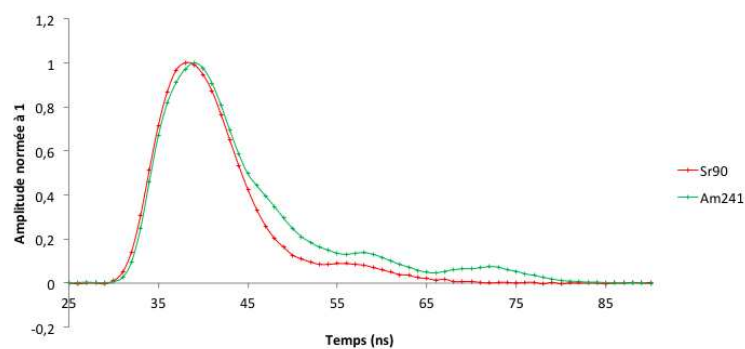


FIGURE 5.12 – Exemple d'impulsions enregistrées en sortie d'un photomultiplicateur, avec des sources  $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$  et  $^{241}\text{Am}$ , après redressement et soustraction de la ligne de base.

3. Entreprise d'instrumentation électronique italienne.

Ainsi, le temps de montée (20-80%) est de l'ordre de 3 ns, et celui de descente (20-80%) de 8 à 10 ns, soit ce qui est prévu par le fournisseur du liquide scintillant.

### 5.2.3 Premier montage pour la discrimination

Ce montage est basé sur les mêmes moyens technique que le précédent, auquel nous avons ajoutés des protections. Premièrement, deux photomultiplicateurs sont utilisés pour la coïncidence et l'ensemble est entouré de 5 cm de plomb. Enfin, le tout est dans une pièce sombre et tempérée.

Les photomultiplicateurs ainsi que leurs embases sont les mêmes que ceux du montage précédent, les déroutant encore une fois du destin qui les liait à la TDCR<sup>4</sup>, c'est pour cette raison que l'angle entre les photomultiplicateurs est  $2\pi/3$  et non  $\pi$ . Ensuite est branché le système de coïncidence, carte issue du CENBG<sup>5</sup>, puis la carte numérique CAEN V1751 (Fig. 5.13).

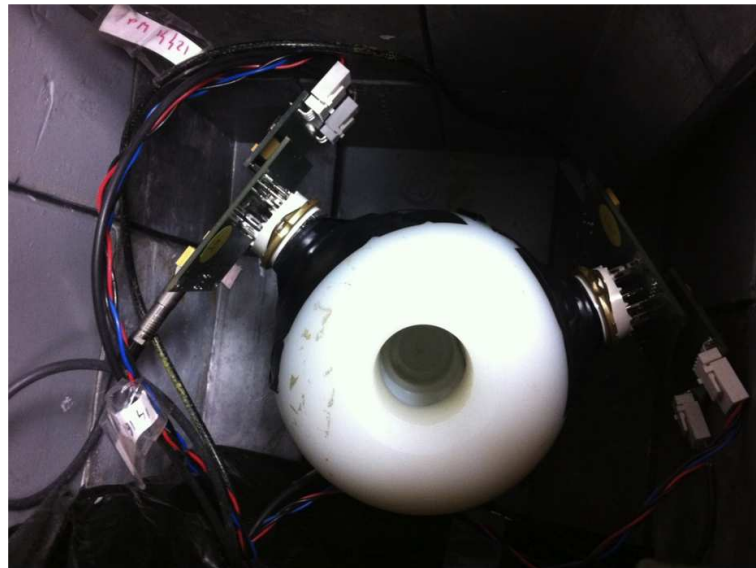


FIGURE 5.13 – Photographie vue de haut de la chambre de détection du montage. On y voit le support en plastique avec les deux petits photomultiplicateurs à  $2\pi/3$  le traversant, les cartes électroniques fixées à leurs bases et une partie du blindage de plomb entourant la chambre.

4. *Triple on Double Coincidences Ratio* - Cf. Chapitre 2, 2.2.4.3

5. Centre Etudes Nucléaires de Bordeaux Gradignan



### 5.2.3.1 Paramètres de l'acquisition

#### Haute tension

La tension est fixée de façon de façon à voir sur le spectre en énergie le pic associé aux émissions  $\alpha$  d'une source de 1 Bq de  $^{239}\text{Pu}$ . Celui-ci apparaît clairement dans le second spectre (Fig. 5.14) pour une tension de 1000 V, la tension nominale de fonctionnement étant 800 V. Le gain attendu est de  $7 \cdot 10^6$ .

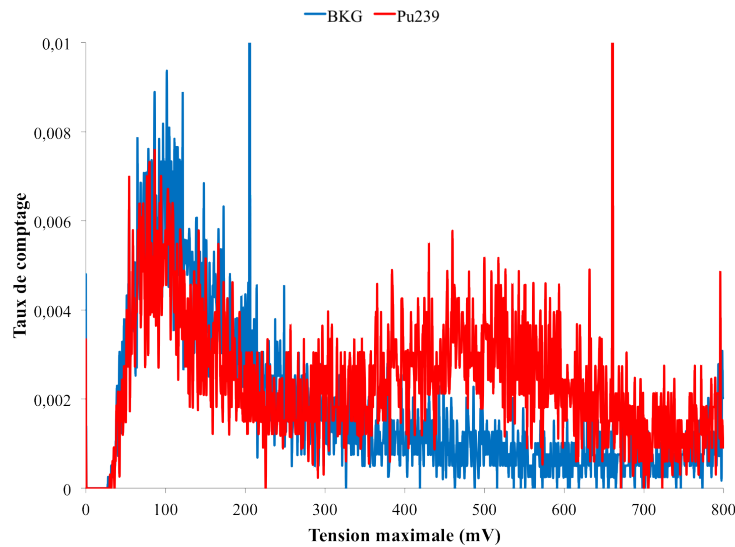


FIGURE 5.14 – Spectre de tension maximale pour une alimentation fixée 1000 V. Les deux points hors échelle à 200 mV (Blanc) et 660 mV ( $^{239}\text{Pu}$ ) sont des artefacts. On voit aussi le seuil à 20 mV en deçà duquel aucun coup n'est enregistré.

#### Seuils de coïncidence

Les signaux dont on veut mesurer les caractéristiques ne sont pas très énergétiques, et leur tension est assez faible. Nous avons donc réglé les seuils de coïncidence au niveau du bruit (2 mV) par les mesures sur le logiciel CAENScope et le temps de coïncidence est de quelques nanosecondes.

#### Durée utile et temps mort

Nous savons qu'un signal peut exister encore longtemps après la primo-impulsion du fait principalement de post-impulsions parasites. Afin de s'en affranchir, nous allons imposer un temps d'enregistrement de 7  $\mu\text{s}$ , avec seulement 3  $\mu\text{s}$  utiles.

### Format des données d'entrée

Ce système de numérisation fonctionne comme un oscilloscope : il enregistre à chaque pas d'échantillonnage  $\delta t$  la tension du signal. La fenêtre d'enregistrement est donnée par le *top* du déclenchement externe (carte de coïncidence) et par la durée choisie par l'utilisateur. Cependant, l'ensemble CAEN (V1751 + V1718 + CAEN-Scope) ne permet l'enregistrement que d'un fichier unique contenant l'ensemble des impulsions les unes à la suite des autres, défini par la taille d'une impulsion (Tab. 5.2). Connaissant le temps d'une impulsion et le nombre d'octets par pas  $\delta t$ , le fichier résultat peut devenir rapidement gigantesque.

Taille définie	Durée (ns)
1K	1792
3K	3584
7K	7168

TABLE 5.2 – Taille d'une impulsion en fonction de la durée voulue.

Nous avons donc mis en œuvre deux traitements : séparation du fichier père en plusieurs fils plus faciles à traiter et isolement des différentes impulsions. Nous avons donc choisi de séparer le fichier père en fils contenant chacun au maximum cent impulsions, chacune de 3000 points, soit une durée de 3  $\mu$ s, à l'aide d'un petit programme annexe C++.

### Signaux obtenus

Les signaux obtenus par ce montage (Fig. 5.15), ont l'aspect attendu, à ceci près que beaucoup un *overshoot* non négligeable. Ceci est dû à l'alimentation positive des photomultiplicateurs : la cathode est à la masse et l'anode à la tension, donc la lecture à l'anode doit se faire à travers une capacité. La haute tension contraint fortement les deux condensateurs qui font le lien entre le pont (Fig. 5.16) et l'étage d'amplification, et celui entre cet étage et la sortie (Fig. 5.16).

#### 5.2.3.2 Spectres

Nous avons fait sur ce montage des acquisitions de l'ensemble des sources du panel (Tab. 5.1). Nous allons présenter ici les différents spectres selon neuf méthodes implémentées pour les deux sources G0 (en bleu sur les spectres) et G1 (en rouge sur les spectres).

Le spectre en tension (Fig. 5.17) montre la présence d'un « pic » associable aux  $\alpha$  du  $^{239}\text{Pu}$  entre 240 et 760 mV. Le pic en fin de spectre, équivalent dans le spectre du bruit de fond et celui du  $^{239}\text{Pu}$ , correspond à une sorte de repliement des impulsions dont la tension dépasse la dynamique de la carte. De plus, chacun des deux spectres a un artefact de mesure, à 210 mV pour le bruit de fond et 675 mV

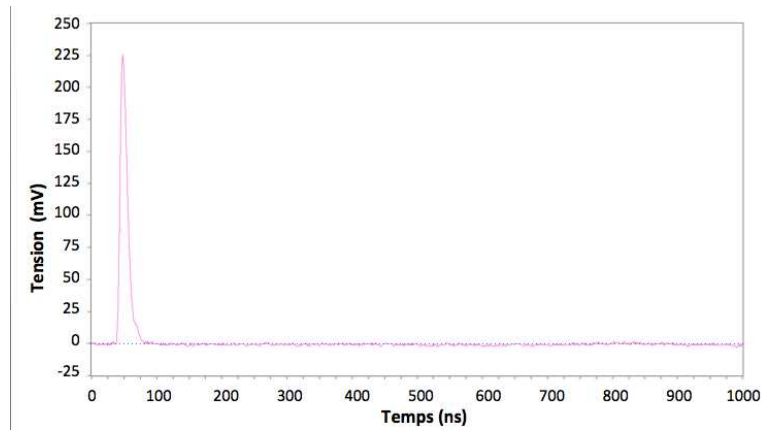


FIGURE 5.15 – Exemple de signal issu du second montage, le premier pour la discrimination.

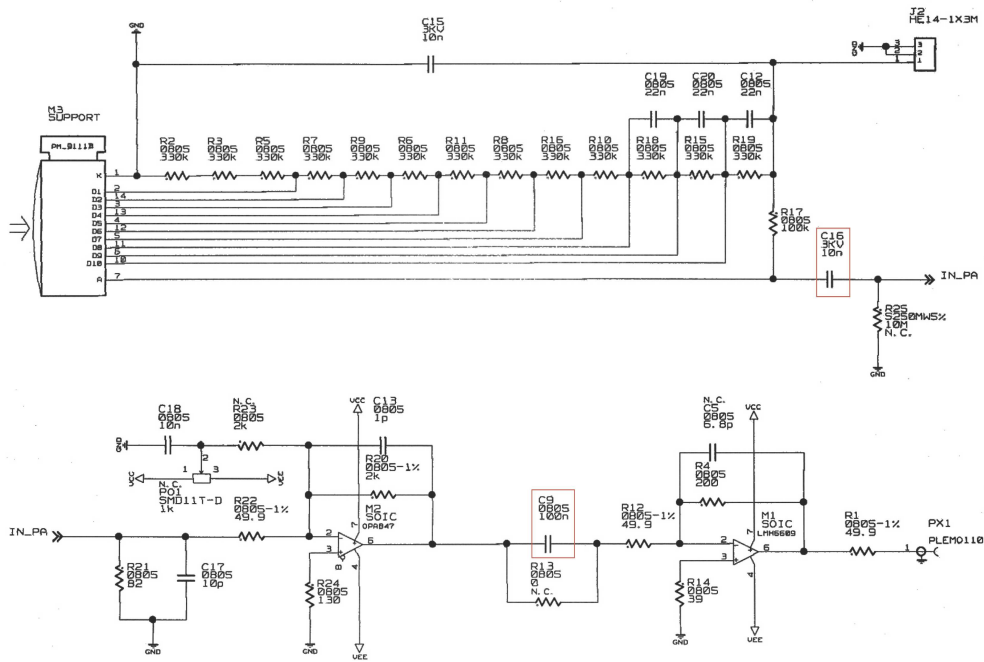


FIGURE 5.16 – En haut le schéma de l'étage pont et préamplification et en bas le schéma électrique de l'étage d'amplification. Les condensateurs encadrés C16 et C9 sont ceux responsables des overshoot.

pour l'autre. Le spectre en charge (Fig. 5.18) montre clairement un pic associable à l' $\alpha$  du  $^{239}\text{Pu}$  entre les canaux 5 000 et 20 000. De plus, on aperçoit encore des artefacts de mesure. Le spectre du bruit de fond semble être très bien ajusté au spectre du  $^{239}\text{Pu}$ , mais présente une forme irrégulière, non ajustable simplement par une exponentielle, comme on s'y attendrait de façon similaire aux spectres des compteurs commerciaux.

Les autres spectres représentent les méthodes de discrimination pour lequel et malgré les simulations on s'attend à voir les deux pics distincts discriminant les  $\alpha$  des  $\beta$ . Concernant le spectre selon du rapport charge sur tension (Fig. 5.19), on s'attend pour cette méthode à obtenir une des meilleures séparations (Fig. 5.4). Cependant, bien que la différence soit assez nette entre les canaux 10 et 30, celle-ci ne l'est pas assez pour fixer un seuil, de même pour les autres spectres (Figs. 5.20, 5.21, 5.22 et 5.25).

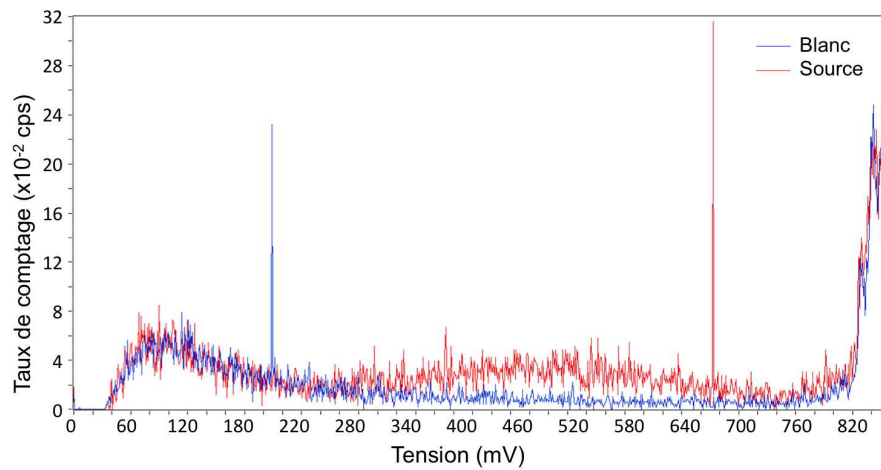


FIGURE 5.17 – Spectre en tension des sources G0 et G1 (Tab. 5.1).

Analyse	$\eta_\alpha$ (%)	$a^\#$ (Bq/L)	Analyse	$\eta_\alpha$ (%)	$a^\#$ (Bq/L)
Tension	$86,2 \pm 4,5$	10,6	Charge	$94,5 \pm 4,6$	10,2
CN	$91,7 \pm 6,2$	17,6	TTR	$90,8 \pm 6,1$	16,8
TTRm	$85,3 \pm 6,0$	17,5	Gatti	$90,8 \pm 6,1$	17,9
R	$86,1 \pm 6,6$	19,0	Yousefi	$94,1 \pm 7,5$	20,1
PIA	$93,4 \pm 6,2$	15,9			

TABLE 5.3 – Résultats des comptages pour la source G1, ôtés du bruit de fond G0, selon les neuf analyses pratiquées, donnant le rendement  $\eta_\alpha$ , attendue à 100% pour les  $\alpha$ , et la limite de détection  $a^\#$ .

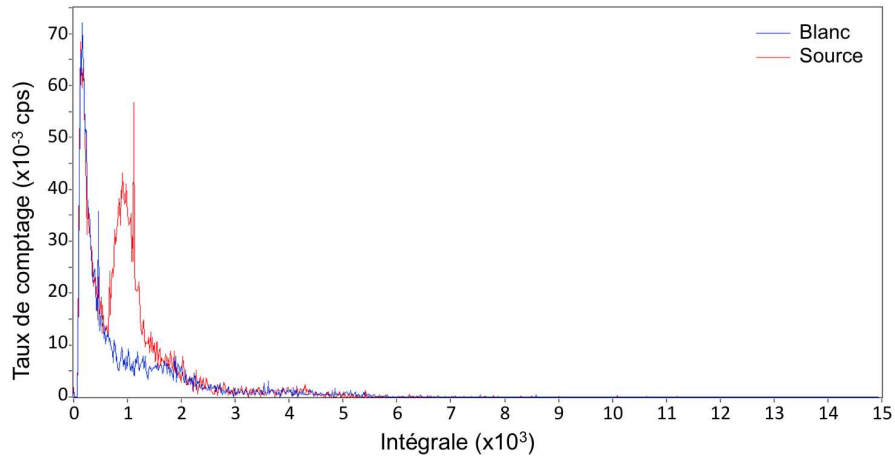


FIGURE 5.18 – Spectre en charge des sources G0 et G1 (Tab. 5.1).

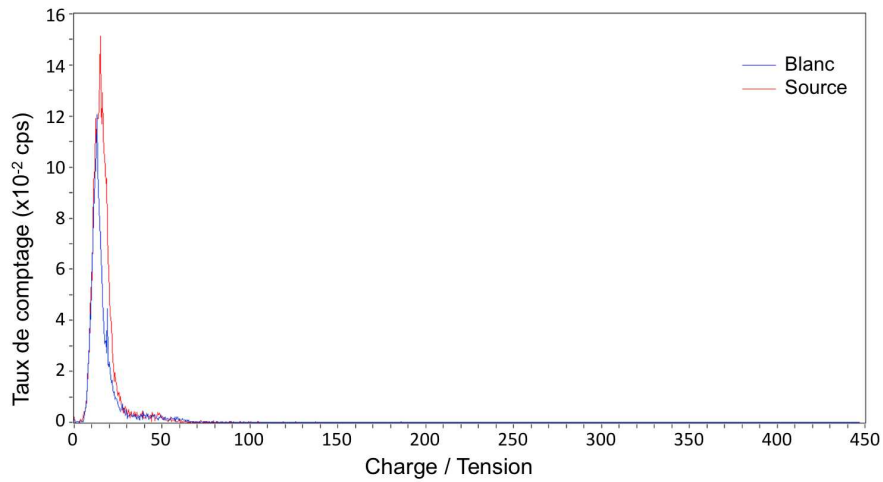


FIGURE 5.19 – Spectre du rapport charge sur tension des sources G0 et G1 (Tab. 5.1).

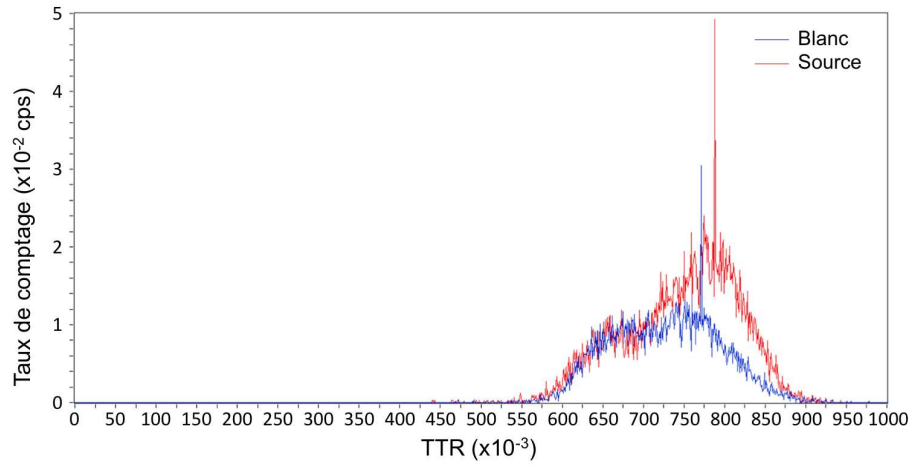


FIGURE 5.20 – Spectre en TTR des sources G0 et G1 (Tab. 5.1).

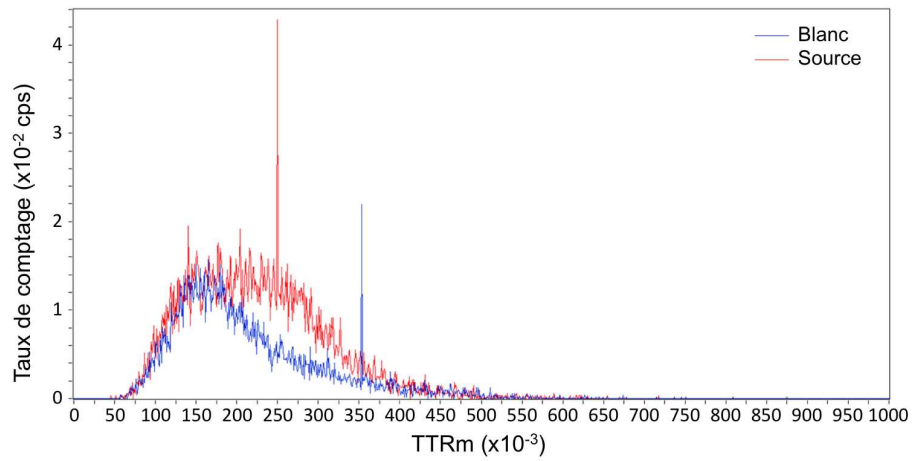


FIGURE 5.21 – Spectre en TTRm des sources G0 et G1 (Tab. 5.1).

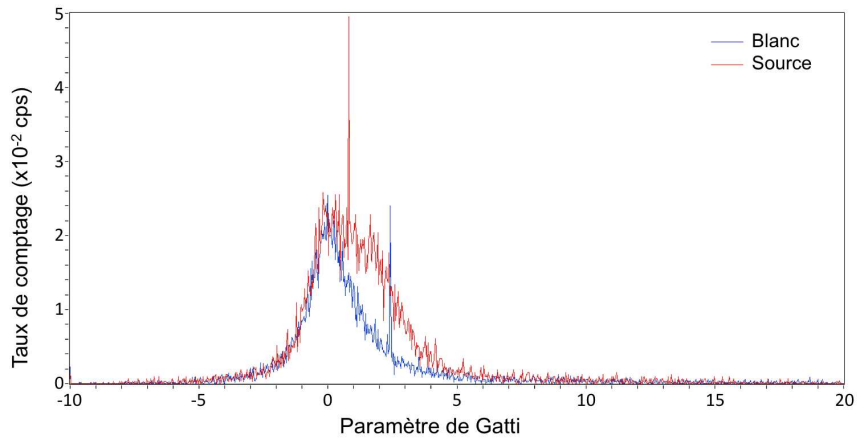


FIGURE 5.22 – Spectre selon le paramètre de Gatti des sources G0 et G1 (Tab. 5.1).

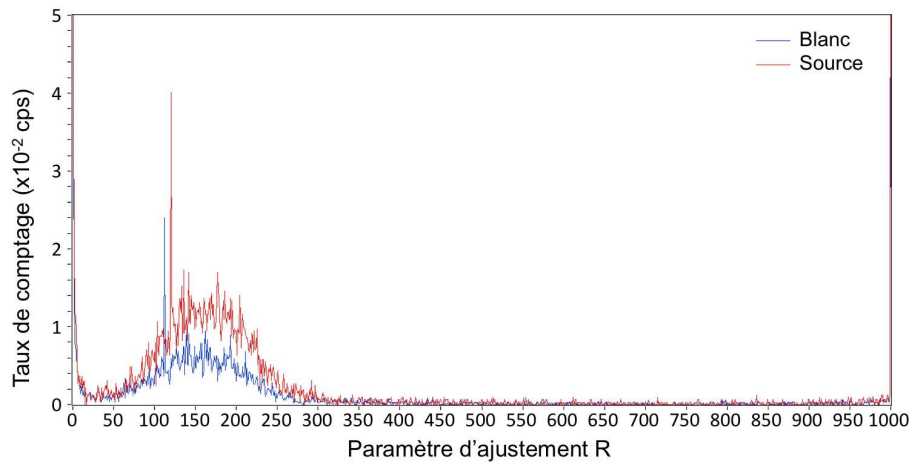


FIGURE 5.23 – Spectre selon le paramètre R de l'ajustement des impulsions des sources G0 et G1 (Tab. 5.1).

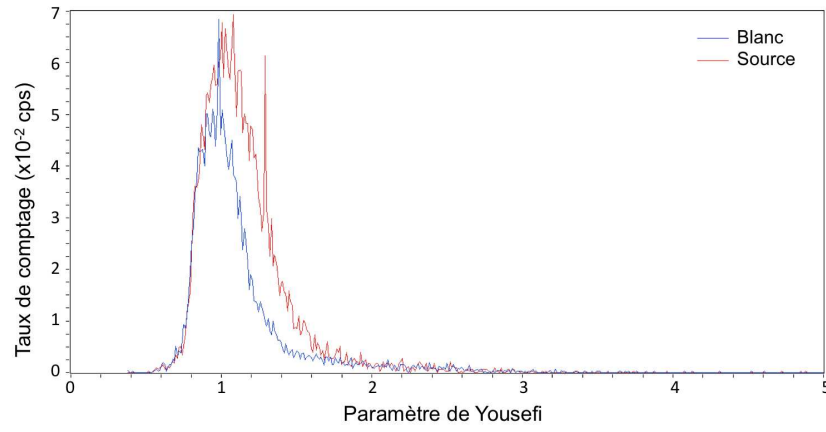


FIGURE 5.24 – Spectre selon le paramètre de Yousefi des sources G0 et G1 (Tab. 5.1).

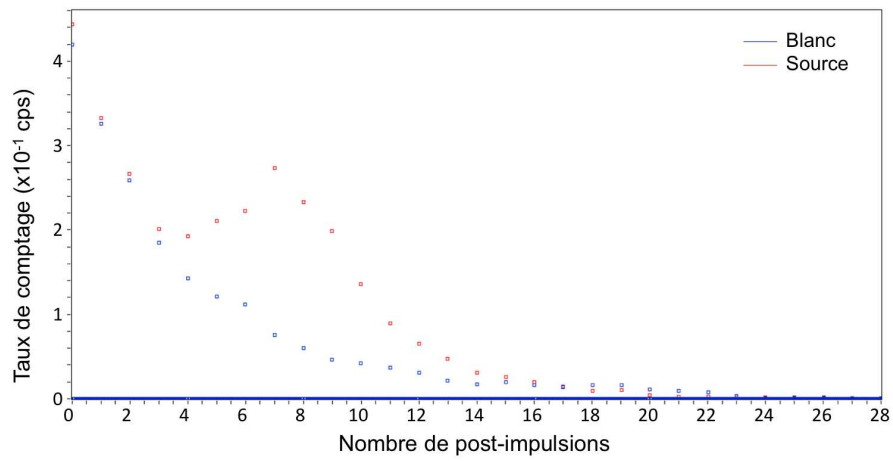


FIGURE 5.25 – Spectre du nombre de post-impulsion des sources G0 et G1 (Tab. 5.1).



Les résultats de comptages (Tab. 5.3) montrent des rendements  $\alpha$  inférieurs aux 100% attendus. Nous voyons ici l'impact principal de l'incompatibilité entre les spectres du bruit de fond (G0) et du  $^{239}\text{Pu}$  (G1) en termes de quenching. Nous voyons ici la nécessité d'accorder correctement les sources au blanc, mais aussi l'intérêt de la discrimination afin d'éliminer par des moyens détournés toute trace de  $\beta$  dans le spectre  $\alpha$ . De façon standard, on l'a vu dans le chapitre précédent, la discrimination est faite à travers la détermination d'un seuil unique, chose impossible pour les acquisitions faites avec ce montage.

#### 5.2.4 Second montage pour la discrimination

Ce montage est le effectivement le troisième réalisé, mais le second utilisé à des fins de discrimination ; c'est pourquoi il est désigné second. Il a été réalisé au GEA et a eu pour objectif d'améliorer les impulsions acquises en termes d'*overshoot*. Cependant, nous ne bénéficions plus des conditions environnementales avantageuses précédentes.

Les photomultiplicateurs utilisés sont des XP2262B [XP2262], avec une sortie dynode et une sortie anode. Ensuite est branchée directement la carte numérique, une USB WAVE CATCHER V6<sup>6</sup> [Breton 2011b][Breton 2011a] prêtée par le LAL<sup>7</sup>, reliée en USB à l'ordinateur. L'ADC a une fréquence d'échantillonnage variant de 400 MHz à 3,2 GHz, toujours sur 1024 échantillons. La carte utilise un buffer tournant très rapide, mais ensuite la numérisation vers l'ordinateur est beaucoup plus lente et impose un temps mort de 115  $\mu\text{s}$ . Les deux voies symétriques permettent une coïncidence logique (Fig. 5.27).

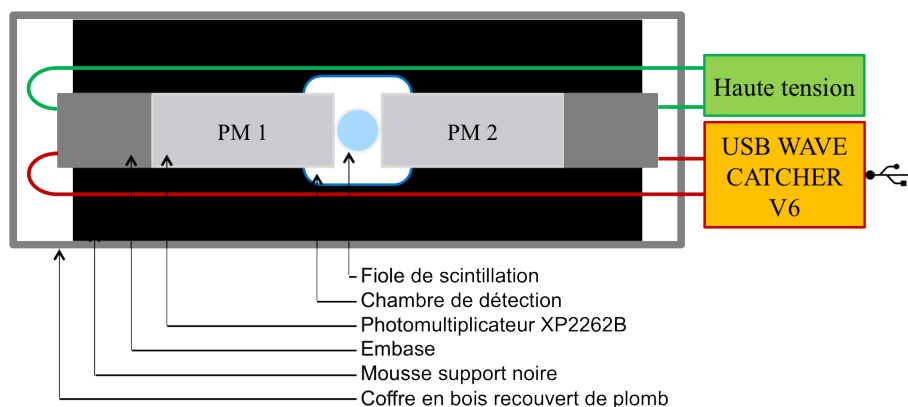


FIGURE 5.26 – Représentation du second montage réalisé au GEA avec une USB Wave Catcher V6 prêtée par le LAL.

6. USB WAVE CATCHER V6 : CAN rapide (de 400 MHz à 3,2 GHz) sur 1024 canaux, développé par le LAL/IRFU.

7. Laboratoire de l'Accélérateur Linéaire

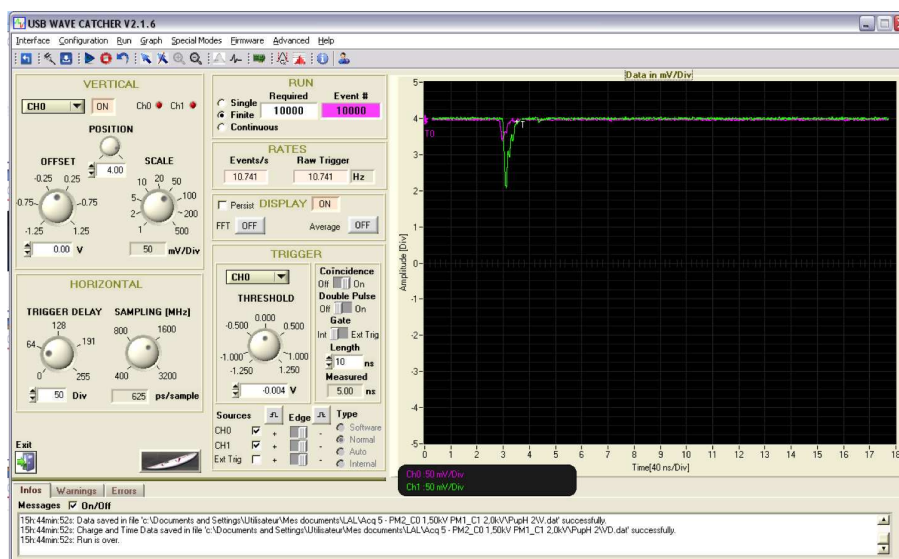


FIGURE 5.27 – Copie d'écran du logiciel pilotant l'ADC USB Wave Catcher V6, développé par le LAL/IRFU.

### 5.2.4.1 Paramètres de l'acquisition

#### Haute tension

La tension est fixée de façon empirique, sans référence de calibration. L'objectif est la visualisation du pic associé aux émissions  $\alpha$  d'une source d'1 Bq de  $^{239}\text{Pu}$ . Le pic apparaît clairement dans le second spectre (Fig. 5.28). Cependant, les deux photomultiplicateurs ne sont pas symétriques : le premier « réagit » beaucoup moins bien que le second, donc pour que les impulsions en sortie soient similaires, la tension du premier est fixée à -2 kV tandis que celle du second est à -1,5 kV (la tension typique d'utilisation est donnée à -1,8 kV). Les gains des deux photomultiplicateurs sont alors respectivement de  $8 \cdot 10^7$  et  $6 \cdot 10^6$ .

#### Seuils de coïncidence

Les seuils sont réglés à 4 mV et le temps de coïncidence au minimum, 10 ns.

#### Durée utile et temps mort

La carte impose un temps mort de 115  $\mu\text{s}$ , négligeable par rapport au taux de comptage standard de 100 cps et pour nous le temps utile est de 640 ns. (échantillonnage à 1,6 GHz).

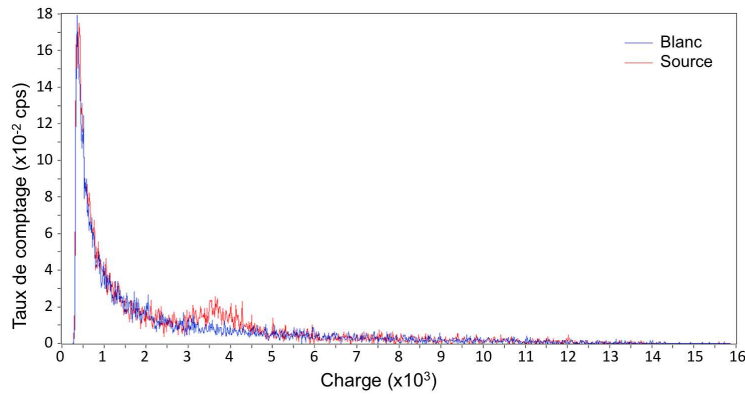


FIGURE 5.28 – Spectre en charge d’une source de 1 Bq de  $^{239}\text{Pu}$  par rapport au bruit de fond.

### Format des données d’entrée

Ce système de numérisation fonctionne comme un oscilloscope : il enregistre à chaque pas de temps  $\delta t$  la tension du signal. Cependant, l’ensemble LAL (ADC + logiciel) ne permet l’enregistrement que d’un fichier unique contenant l’ensemble des impulsions. Ainsi, une acquisition de 10000 impulsions sur deux voies prend 178 Mo d’espace disque. Nous avons donc à mettre en œuvre la séparation des deux voies par un petit programme annexe C++. Nous avons au final des ensembles de signaux standardisés, aptes à être analysés par le logiciel.

#### 5.2.4.2 Spectres

De même que pour l’autre montage, nous avons fait sur celui-ci des acquisitions de l’ensemble des sources du panel (Tab. 5.1). Nous allons présenter ici les différents spectres selon les méthodes implémentées pour les deux sources G0 (en bleu sur les spectres) et G1 (en rouge sur les spectres).

Le spectre en tension (Fig. 5.29) montre la présence d’un « pic » associable à l’ $\alpha$  du  $^{239}\text{Pu}$  entre 120 et 210 mV. Le spectre en charge (Fig. 5.30) montre clairement un pic associable à l’ $\alpha$  du  $^{239}\text{Pu}$  entre les canaux 2 700 et 5 000. Le spectre du bruit de fond semble être moins bien ajusté au spectre du  $^{239}\text{Pu}$  que dans le cas du montage précédent, surtout pour les énergies faibles ( $< 80$  mV ou le canal 1 000 pour la charge).

Les autres spectres caractérisent les méthodes de discrimination et malgré les simulations on s’attend à voir les deux pics distincts discriminant les  $\alpha$  des  $\beta$ . Concernant le spectre selon la charge sur la tension (Fig. 5.31), on s’attend pour cette méthode à obtenir une des meilleures séparations (Fig. 5.4). Cependant, bien que la différence soit assez nette entre les canaux 10 et 30, celle-ci ne l’est pas assez

pour fixer un seuil, de même pour les autres spectres (Figs. 5.34, 5.35, 5.36 et 5.37).

Les spectres en TTR et TTRm (Figs. 5.32 et 5.33) présentent des formes particulières. Le premier parce qu'aucun pic n'est identifiable, le second parce que trop de pics sont visibles. Nous étudierons ces soucis dans un second temps.

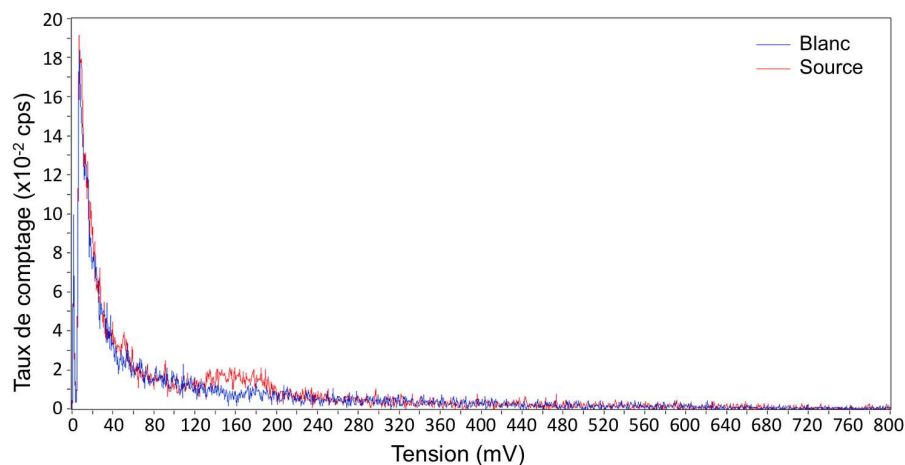


FIGURE 5.29 – Spectre en tension des sources G0 et G1 (Tab. 5.1).

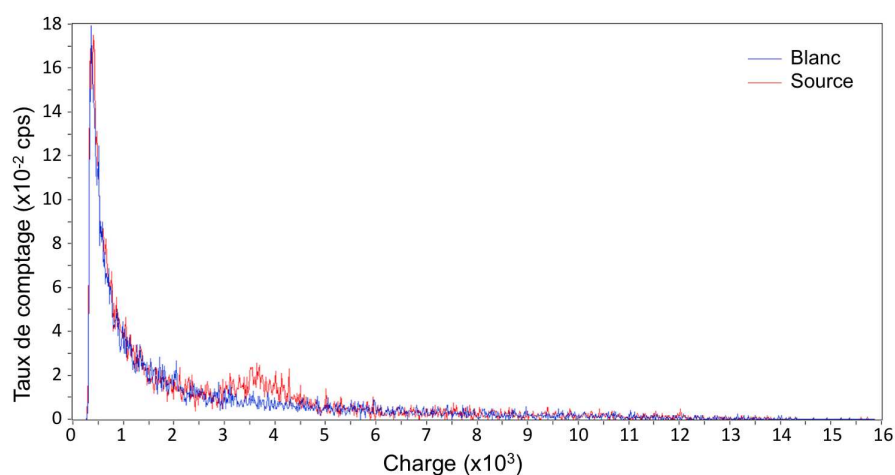


FIGURE 5.30 – Spectre en charge des sources G0 et G1 (Tab. 5.1).

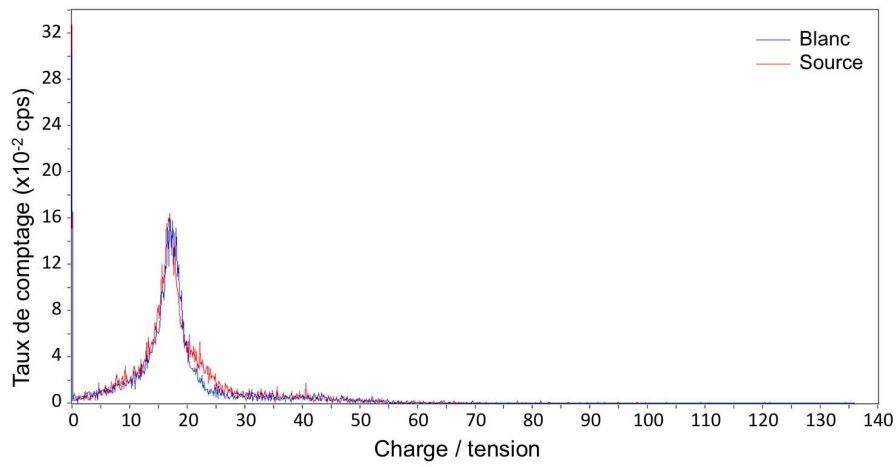


FIGURE 5.31 – Spectre du rapport charge sur tension des sources G0 et G1 (Tab. 5.1).

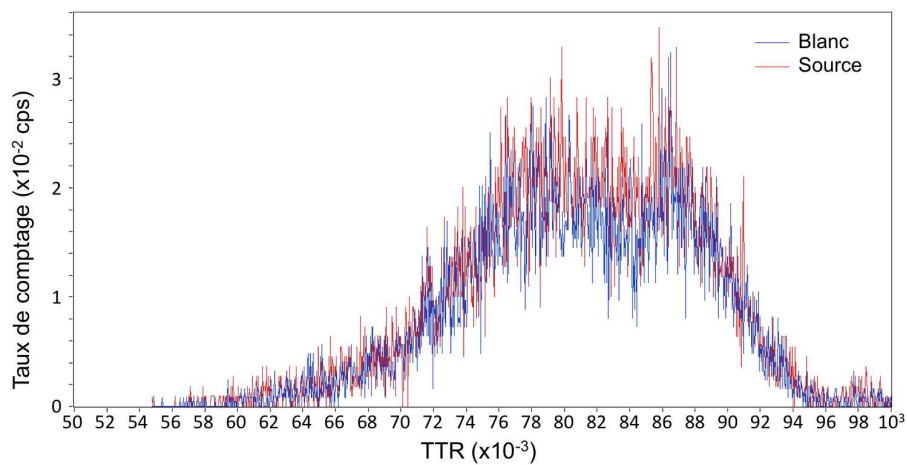


FIGURE 5.32 – Spectre en TTR des sources G0 et G1 (Tab. 5.1).

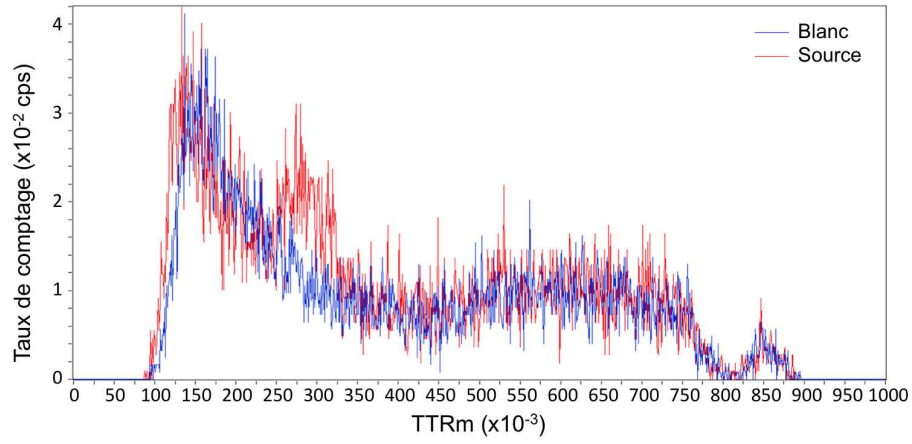


FIGURE 5.33 – Spectre en TTRm des sources G0 et G1 (Tab. 5.1).

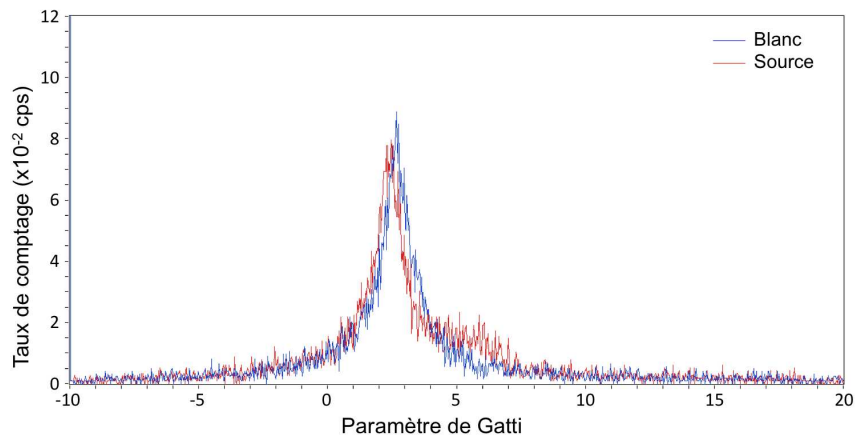


FIGURE 5.34 – Spectre selon le paramètre de Gatti des sources G0 et G1 (Tab. 5.1).

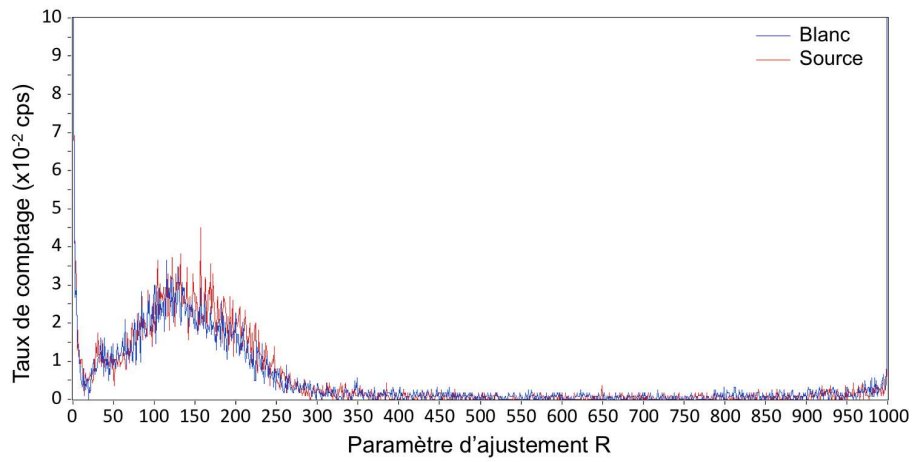


FIGURE 5.35 – Spectre selon le paramètre R de l'ajustement de la forme des impulsions des sources G0 et G1 (Tab. 5.1).

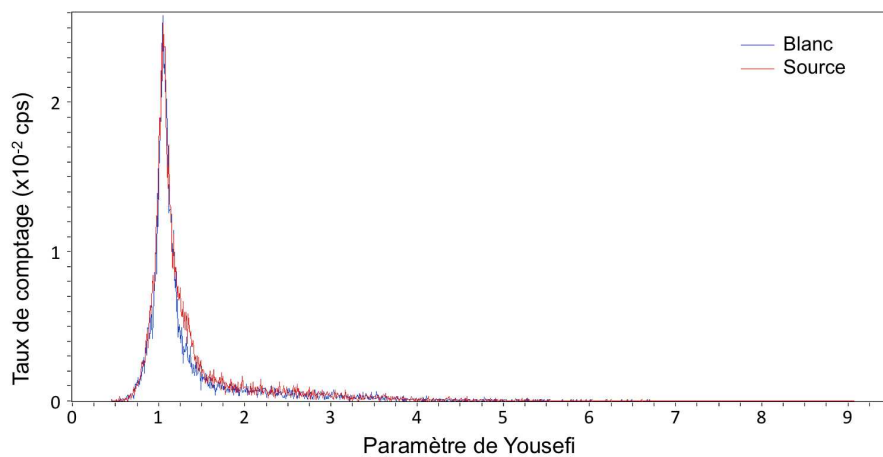


FIGURE 5.36 – Spectre selon le paramètre de Yousefi des sources G0 et G1 (Tab. 5.1).

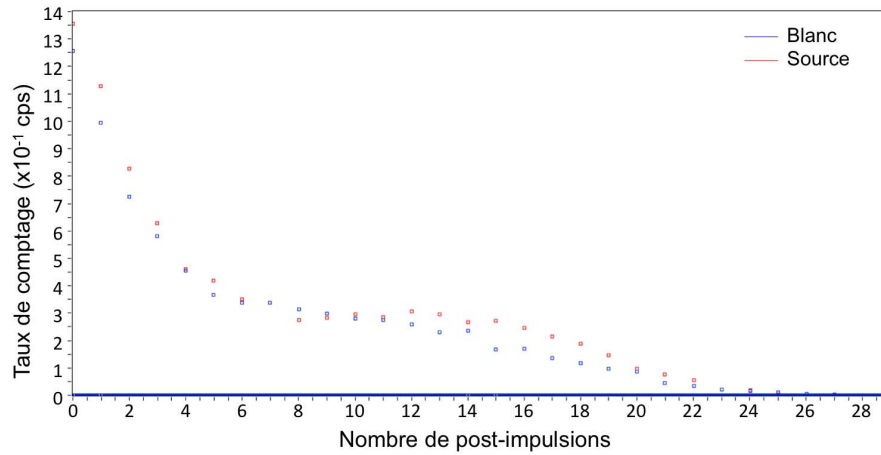


FIGURE 5.37 – Spectre du nombre de post-impulsions des sources G0 et G1 (Tab. 5.1).

Analyse	$\eta_\alpha$ (%)	$a^\#$ (Bq/L)	Analyse	$\eta_\alpha$ (%)	$a^\#$ (Bq/L)
Tension	$60,6 \pm 5,8$	14,7	Charge	$64,8 \pm 5,4$	15,3
CN	$68,0 \pm 7,6$	35,8	TTR	$85,3 \pm 11,3$	40,1
TTRm	$56,9 \pm 7,5$	22,8	Gatti	$81,7 \pm 11,3$	37,6
R	$40,8 \pm 13,4$	46,1	Yousefi	$70,3 \pm 19,2$	66,6
PIA	$91,7 \pm 13,1$	41,6			

TABLE 5.4 – Résultats des comptages pour la source G1, ôtés du bruit de fond G0, selon les neuf analyses pratiquées, donnant le rendement  $\eta_\alpha$ , attendue à 100% pour les  $\alpha$ , et la limite de détection  $a^\#$ .

Ce second montage montre des rendements très loin des 100% attendus (Tab. 5.4). L'allure des spectres donne la réponse : la forme du spectre du bruit de fond et celui de la source ne s'ajustent pas correctement. Comme une correction par rapport au temps mort de la carte ( $115 \mu s$ ) n'est pas significative, le quenching joue un rôle trop important. La différence la plus importante entre les deux montages est la température. Pour le premier celle-ci est définie par la pièce stabilisée à  $14^\circ C$ , le second aux alentours de  $20^\circ C$ . Ainsi le bruit de fond à basse énergie augmente du fait de la température, mais le léger quenching de la source  $\alpha$  le diminue.

### 5.2.4.3 Fenêtre d'entrée des photomultiplicateurs

Pour ce montage, nous avons modifié la fenêtre d'entrée des photomultiplicateurs. En effet, à l'instar des foies de scintillation qui favorisent la détection en étant translucides et non transparentes, nous avons dépoli la fenêtre d'entrée des



photomultiplicateurs du second montage de façon réversible : du scotch y a été apposé. De cette façon nous nous attendons à une amélioration de la discrimination. De façon pratique, nous voulons voir de façon qualitative un décalage vers de plus hautes énergies (tension) avec un resserrement du pic  $\alpha$ , et une meilleure séparation sur les spectres selon les critères de discrimination. Nous comparons donc les spectres de la source G1 (Tab. 5.1) sur un graphique bidimensionnel mettant en relation la charge et le critère TTRm (Fig. 5.38), sur lesquels ces améliorations sont visibles.

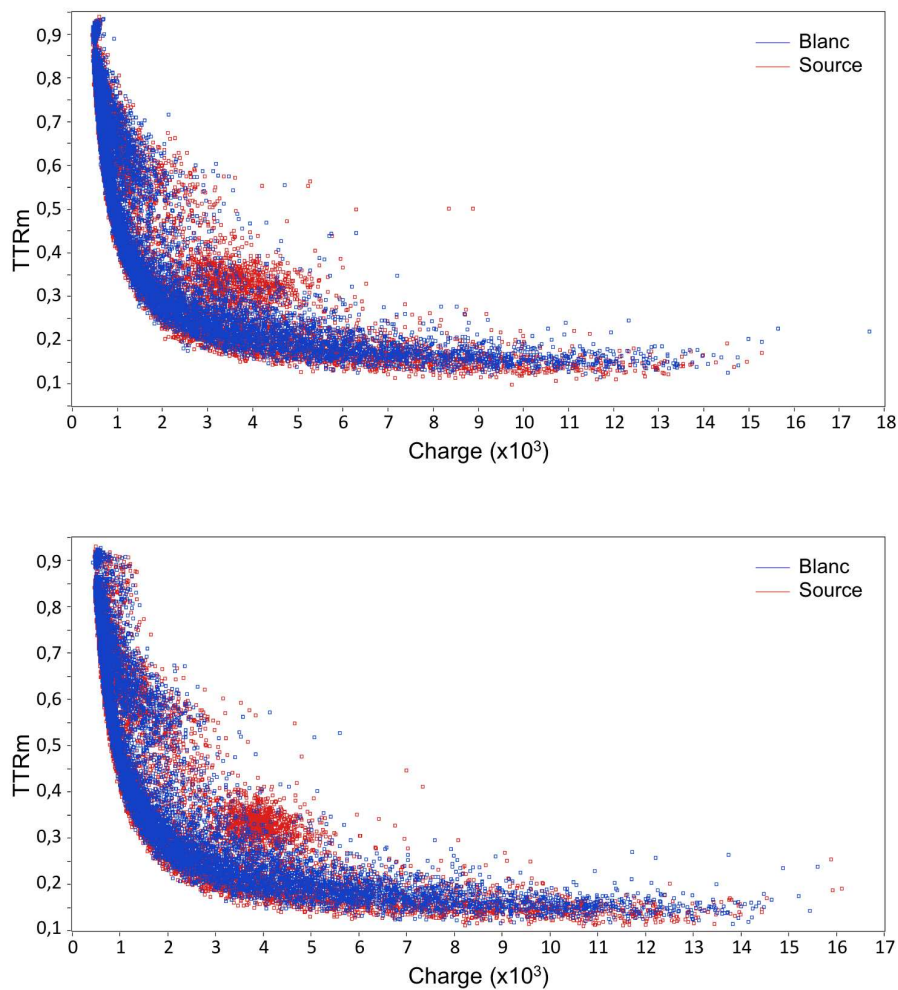


FIGURE 5.38 – Spectres bidimensionnels de la source G1 (rouge) mettant en relation la charge et le TTRm pour deux comptages avec et sans scotch, par rapport au bruit de fond (bleu). Nous pouvons observer un décalage vers la droite et le haut de la tache  $\alpha$ .

Afin de quantifier l'amélioration, nous utilisons un paramètre quantifiant la qualité d'un ajustement par deux gaussiennes sur les spectres de discrimination : le rapport de l'incertitude relative au carré de l'écartement  $\Delta$  entre les centres des gaussiennes. Ainsi, nous pouvons non seulement comparer les montages selon chacun des paramètres (Tab. 5.5), mais aussi les discriminations entre elles.

	Sans scotch		Avec scotch	
	$\Delta$	$u_{rel}^2(\Delta)$	$\Delta$	$u_{rel}^2(\Delta)$
CN	4,2	0,71	4,8	0,46
TTR	0,048	1,5	0,041	2,3
TTRm	0,11	0,23	0,11	0,20
Gatti	2,7	0,36	3,0	0,23
R	0,065	0,06	0,066	0,04
Yousefi	0,18	0,69	0,18	0,64

TABLE 5.5 – Paramètre  $\Delta$  de distinction entre les deux pics d'un ajustement gaussien des spectres de discrimination.

On note (Tab. 5.5) une amélioration de la séparation des pics dans le montage avec scotch par rapport à celui sans. De plus, il nous est possible de classer dans ce cas les méthodes de discrimination d'après la séparabilité de l'ajustement par deux gaussiennes, dans l'ordre du montage « scotché » (Tab. 5.6).

1	R	4	CN
2	TTRm	5	Yousefi
3	Gatti	6	TTR

TABLE 5.6 – Classement des méthodes de discrimination suivant le paramètre  $\Delta$  de distinction entre les deux pics d'un ajustement gaussien des spectres de discrimination et son incertitude (Tab. 5.5).

Ainsi que l'ont montré les différents résultats d'analyses présentés pour le second montage, il ne semble pas être possible de définir un simple critère permettant une séparation simple des signaux à l'instar des appareils commerciaux. Cependant, ces différences dans la « qualité » de la séparation ne précisent pas si les impulsions communes entre  $\alpha$  et  $\beta$  pour une méthode sont les mêmes pour une autre.

### 5.3 Analyse multicritère

Nous allons dans cette partie faire la différence entre les critères de discrimination, informations de forme ou de temps de décroissance, par rapport à la charge et la tension de l'impulsion. En effet, la section précédente a montré les limites d'une

discrimination par rapport à un seul critère. Nous envisageons donc d'en utiliser plusieurs. Dans un premier temps, les événements  $\alpha$  sont encadrés selon leur tension et charge, ce qui élimine dans le spectre  $\alpha$  une grande partie des événements  $\beta$ . Dans un second temps, tous les critères sont utilisés de façon à déterminer précisément qui est  $\alpha$  et qui est  $\beta$ .

### 5.3.1 Encadrement en tension et charge

Nous avons vu que les limites de détection dans le cas de la numérisation étaient très hautes, associées à une impossible discrimination par seuil. Afin de diminuer cette limite, nous avons choisi de déterminer un encadrement des  $\alpha$  dans les spectres en charge et en tension, les seuls pour lesquels les  $\alpha$  apparaissent sous forme de pics.

Analyses	Montage 1 (Bq/L)		Montage 2 (Bq/L)	
	LD avant	LD après	LD avant	LD après
CN	3,8	1,6	4,2	1,1
TTR	3,6	1,6	4,7	1,8
TTRm	3,7	1,4	2,6	0,9
Gatti	3,8	1,0	4,4	1,8
R	4,1	1,8	3,2	2,0
Yousefi	4,3	1,8	3,1	1,9
PIA	3,4	1,6	4,8	1,3

TABLE 5.7 – Limites de détection (LD) des différentes analyses, par comparaison avec les résultats de la section précédente, données pour 24h de comptage.

Par un simple encadrement des  $\alpha$  dans les spectres en tension et charge, les limites de détection s'en voient largement diminuées (Facteur 3, Tab. 5.7), même si ce n'est pas encore au niveau prescrit par les normes. De plus, la séparation des impulsions n'est pas encore idéale. En effet, nous avons pour estimer les taux d'interférences<sup>8</sup> utilisé les sources G0, G1 et G2 que nous savons à peine compatibles en termes de matrice. Nous allons nous concentrer sur les  $\beta$  présent dans le spectre  $\alpha$ ,  $\chi_{\beta \rightarrow \alpha}$ . Dans le cas de ces trois sources,  $\chi_{\beta \rightarrow \alpha} = 30,0\%$ . Les limites de détection significativement plus hautes dans le cas du second montage sont dues à la non complémentarité de la source et du blanc : plusieurs spectres montrent des différences notables, donc une simple soustraction ne rend pas compte de l'activité. Cependant il n'y a aucune impulsion issue du bruit de fond dans un spectre  $\alpha$ , nous ne modifierons pas les sources.

La forme du spectre  $\beta$  ne dépend pas des énergies et peut probablement être interpolée. En effet, d'un point de vue de tension ou de charge, la forme du spectre  $\beta$  a la forme habituelle et plus ou moins connue. Par contre, selon les

8. Cf. chapitre 4, eq. 4.7

critères de forme ou de temps de décroissance, la forme devrait être systématique car indépendante de l'énergie. Nous devrions donc pouvoir faire un ajustement dépendant de paramètres simples comme la hauteur ou la position. Ceci va permettre de s'affranchir des déformations notées en particulier sur les spectres du second montage.

Nous allons nous intéresser au critère TTRm. Pour les trois sources  $\beta$  du panel (Tab. 5.1), le blanc, le  $^{14}\text{C}$  et le  $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ , nous avons réalisé cette discrimination par encadrement en espérant mesurer la même forme, à l'activité près. Nous avons donc normé chaque spectre par rapport à l'estimation de son maximum puis nous les avons comparés (Fig. 5.39).

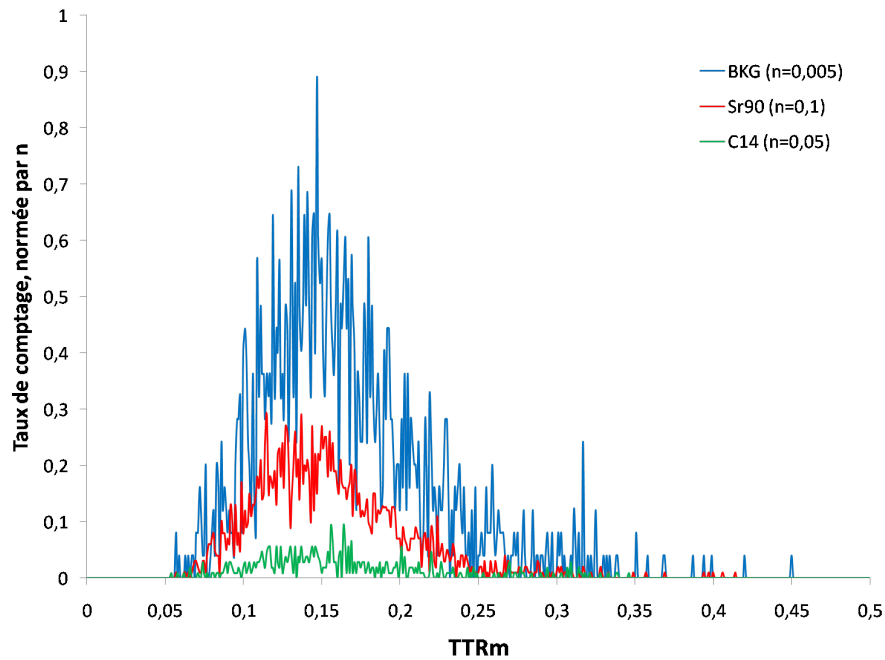


FIGURE 5.39 – Spectres  $\alpha$  des trois sources  $\beta$  (Tab. 5.1) selon le TTRm, normés à 1 puis par  $n$  pour la lisibilité.

Nous avons alors fait une moyenne de ces spectres normés à 1, puis une fonction  $y$  a été ajustée. Cette fonction est définie par morceaux par deux gaussiennes et une exponentielle, la seconde gaussienne permettant de joindre les deux morceaux principaux (Eq. 5.9).

$$f_{TTRm}^{\alpha} = A \cdot \begin{cases} 0,91e^{-\frac{(x-0,130)^2}{0,056}} & \text{pour } x < 0,130 \\ 0,91e^{-\frac{(x-0,157)^2}{0,200}} & \text{pour } 0,130 \leq x \leq 0,157 \\ 1,00e^{-\frac{x-0,153}{0,048}} & \text{pour } x > 0,157 \end{cases} \quad (5.9)$$

avec  $A$  un paramètre lié au taux de comptage  $\beta$ .

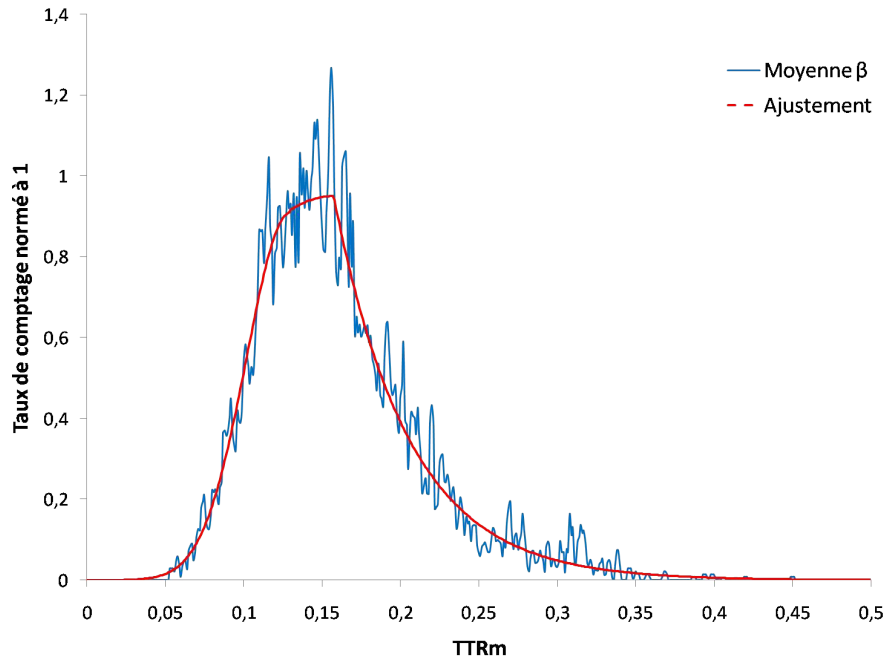


FIGURE 5.40 – Spectre moyen  $\alpha$  des trois sources  $\beta$  (Tab. 5.1) selon le TTRm, ajusté par une fonction composée de deux gaussiennes et d'une exponentielle (Eq. 5.9).

De cette façon,  $A_{G0} = 0,0026$ ,  $A_{G1} = 0,022$  et  $A_{G3} = 0,0022$ . On retrouve bien les résultats attendus ( $A_{G0} \approx A_{G3} \ll A_{G2}$ ) puisque la discrimination en charge et tension permet déjà d'ôter le  $^{14}\text{C}$  du spectre pour ne laisser que le bruit, ce qui n'est pas le cas du  $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ . Nous voyons bien qu'une nouvelle fois l'activité  $\beta$  gêne l'accession à une limite de détection compatible avec les 0,1 Bq/L recommandés par la norme [NF ISO 11704]. Nous allons donc utiliser les différentes analyses afin d'isoler les  $\alpha$ .

Cette méthode appliquée aux spectres TTRm  $\alpha$  du second montage permet de trouver un rendement de  $96,9\% \pm 4,6\%$ , avec une limite de détection à 7,8 Bq/L pour un temps de comptage de 21 minutes, soit 0,9 Bq/L en 24 h.

### 5.3.2 Détermination par encadrement des $\alpha$

Nous avons vu une nouvelle fois que l'activité  $\beta$  gêne l'accession à une limite de détection compatible avec les 0,1 Bq/L recommandés par la norme [NF ISO 11704]. Nous allons donc utiliser les différentes analyses afin d'isoler les  $\alpha$  et pour chacune d'elle nous allons considérer que la probabilité pour une impulsion d'être  $\alpha$  ne dépend pas de la valeur mesurée.

Les simulations basiques montrent que la prise en compte de l'ensemble des

critères tendrait à améliorer la discrimination. Ainsi, un graphique tridimensionnel (Fig. 5.41) mettant en relation trois critères de discrimination met en valeur la zone  $\alpha$ .

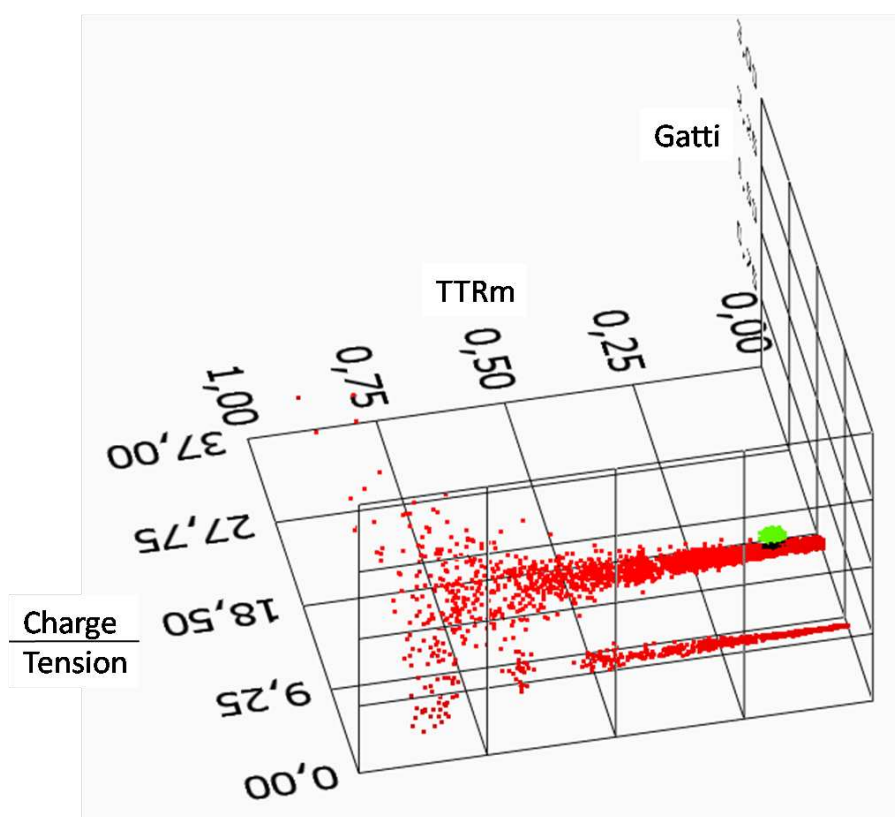


FIGURE 5.41 – Exemple de graphe 3D issu de simulations mettant en relation trois paramètres de discrimination (TTRm, Gatti et Youssefi). La forme ovoïde verte correspond aux  $\alpha$ , la traînée rouge aux  $\beta$  et les quelques points noirs sont les  $\beta$  comptés comme des  $\alpha$ .

Ces simulations montrent aussi l'intérêt du multicritère par encadrement (Tab. 5.8) : le tri est presque parfait.

### 5.3.2.1 Encadrement estimé

Nous faisons ici l'hypothèse que chaque impulsion ne répond pas de façon similaire selon les analyses : la répartition des événements est différente dans chacune des fenêtres  $\alpha$ . Ainsi, un coup est désigné comme  $\alpha$  si pour chaque analyse il est dans la fenêtre correspondante ; si selon une méthode le coup n'est pas dans la fenêtre, alors celui-ci est déterminé comme étant  $\beta$ . De plus, les encadrements sont estimés à l'aide des graphiques biparamétriques mettant donc en relation deux paramètres, généralement la charge ou la tension en ordonnée afin de pouvoir se repérer par rapport à un paramètre connu, et en abscisse un paramètre de discrimination

		Nombre d'évènements						
		Par analyse						
	Simulé	Tension	Charge	Gatti	TTR	TTRm	Total	Mal classé
Evt. $\alpha$	1030	1380	1255	1120	1059	1920	1029	0
Evt. $\beta$	971	661	746	881	942	41	972	1

TABLE 5.8 – Simulation de 2001 évènements  $\alpha$  et  $\beta$ , analysés puis triés selon la méthode multicritère par encadrement des  $\alpha$ . La première colonne donne le nombre exact d'évènements simulés de chaque type. Les cinq colonnes suivantes présentes une discrimination par seuil. L'avant dernière, « total », montre le nombre d'évènements déterminé comme  $\alpha$  ou  $\beta$  par le multicritère. Comme chaque évènement est déterminé à sa création, on peut connaître le nombre d'évènements mal classé.

(Fig. 5.42). Les simulations présentées auparavant permettent en multicritère une discrimination quasi-parfaite : seul un  $\beta$  a été compté comme  $\alpha$ , soit 1/10 000.

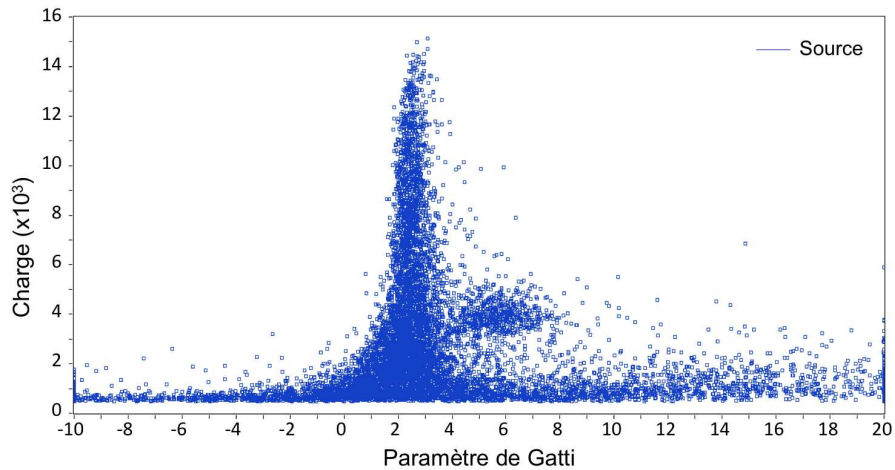


FIGURE 5.42 – Graphique biparamétrique mettant en relation la charge et le paramètre de Gatti pour la source G4 (Tab. 5.1 -  $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y} + ^{239}\text{Pu}$ ) comptée sur le second montage. Les  $\alpha$  sont ici bien visibles et apparaissent dans l'encadrement [2 ; 9] selon le paramètre de Gatti et [2000 ; 6000] selon la charge.

De la même façon (Tab. 5.9) le second montage donne un rendement multicritère de  $99,1\% \pm 6,3\%$ , comparé aux rendements monocritère dans le tableau 5.4. Dans le cas de cette méthode multicritère, l'approximation sur les sources pour le calcul des taux d'interférences montre une amélioration significative de la discrimination des signaux :  $\chi_{\beta \rightarrow \alpha} = 1,3\%$  (précédemment  $\chi_{\beta \rightarrow \alpha} = 30,0\%$ ).

La projection sur un graphique tridimensionnel mettant en relation charge,

Critère	Rendement (k=2) (%)	Critère	Rendement (k=2) (%)
Tension	129 ± 8	Charge	104 ± 8
CN	128 ± 8	TTR	118 ± 8
TTRm	106 ± 8	Gatti	115 ± 8
R	115 ± 8	Yousefi	115 ± 8
PIA	115 ± 8		
Multi	99 ± 8		

TABLE 5.9 – Rendements  $\alpha$  mesurés par une détermination monocritère (Tension + critère) puis multicritère pour les mesures de la source G2 (Tab. 5.1 -  $^{239}\text{Pu}$ ) faites sur le premier montage.

TTRm et Yousefi (Fig. 5.43) montre en vert les  $\alpha$  isolés de la source  $\alpha$ , en rouge et bleu les  $\beta$  isolés du blanc et de la source  $\beta$ , et en noir les quelques coups du bruit de fond comptés comme des  $\alpha$ . Ainsi, malgré l’obtention des rendements attendus, il semble rester une certaine quantité de  $\beta$  compté comme des  $\alpha$ , et réciproquement, et dans des quantités similaires pour les deux sources (G0 et G1) (Fig. 5.43).

L’objectif de cette partie était de démontrer la possibilité et l’utilité d’un traitement numérique multicritère (Tab. 5.10) de signaux de scintillation liquide (Fig. 5.44). Le travail restant concerne une acquisition et un traitement de meilleure qualité en terme de photomultiplicateur et d’algorithme de traitement. Il est acquis que les impulsions n’ont pas la même répartition selon les spectres. Du fait des répartitions différentes, et puisque sur plusieurs spectres biparamétrique les  $\alpha$  apparaissent sous forme d’une tache reconnaissable, nous avons mis en place une méthode de traitement des images<sup>9</sup> de façon à détecter les  $\alpha$  et le  $\beta$  et fonction de la forme générale des deux ensembles. Cependant, la reconnaissance n’est pas compatible avec la recherche d’une activité  $\alpha$  très faible car sur ces graphes des  $\beta$  sont mêlés aux  $\alpha$  et ils peuvent « disparaître » dans l’incertitude  $\beta$ .

Identifiant	Eléments	Activités (k=2) (Bq)	Rendement (k=2) (%)
G1	$^{239}\text{Pu}$	1,09 ± 0,03	99,0 ± 7,8
G4	$^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$	9,80 ± 0,31	94,5 ± 3,5
	$^{239}\text{Pu}$	1,08 ± 0,03	97,5 ± 7,0

TABLE 5.10 – Résultats pour les sources contenant des  $\alpha$  définies en 5.1 par la méthode multicritère par encadrement.

A partir de l’estimation des taux d’interférences, en particulier les  $\beta$  résiduels,

9. Cf. annexe D



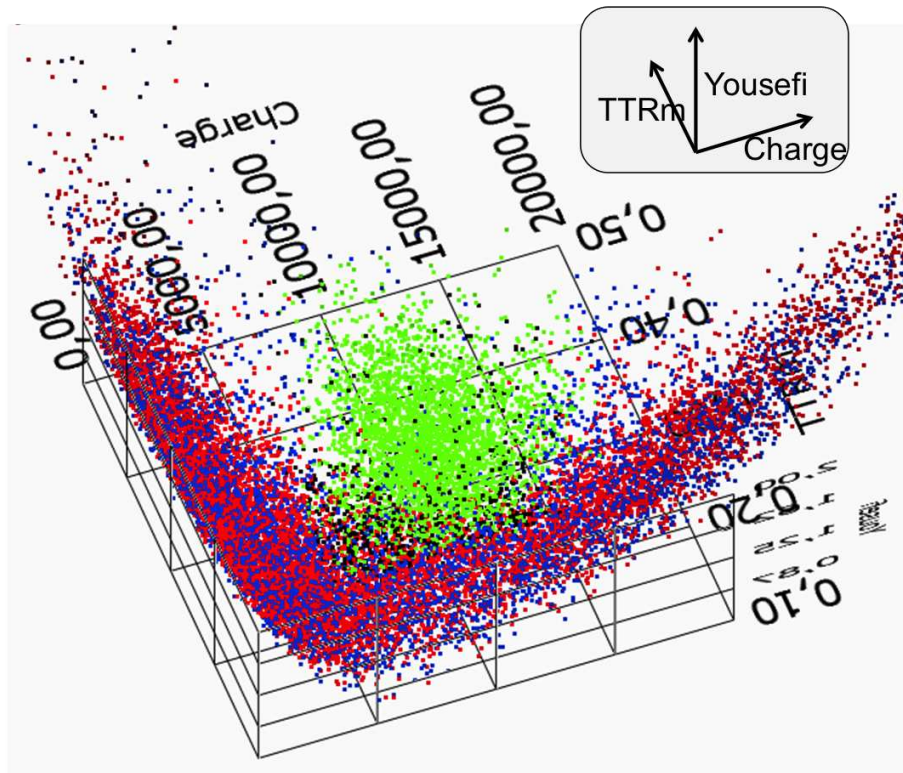


FIGURE 5.43 – Graphe 3D issu des mesures du premier montage mettant en relation trois paramètres de discrimination (Charge, TTRM et Yousefi). La forme ovoïde verte est formée des  $\alpha$ , les traînées rouge et bleu sont faites de  $\beta$  et les quelques points noirs sont les  $\beta$  comptés comme des  $\alpha$ . Malgré ces quelques coups vraisemblablement mal classés, le rendement  $\alpha$  attendu est retrouvé :  $99,0\% \pm 7,8\%$ .

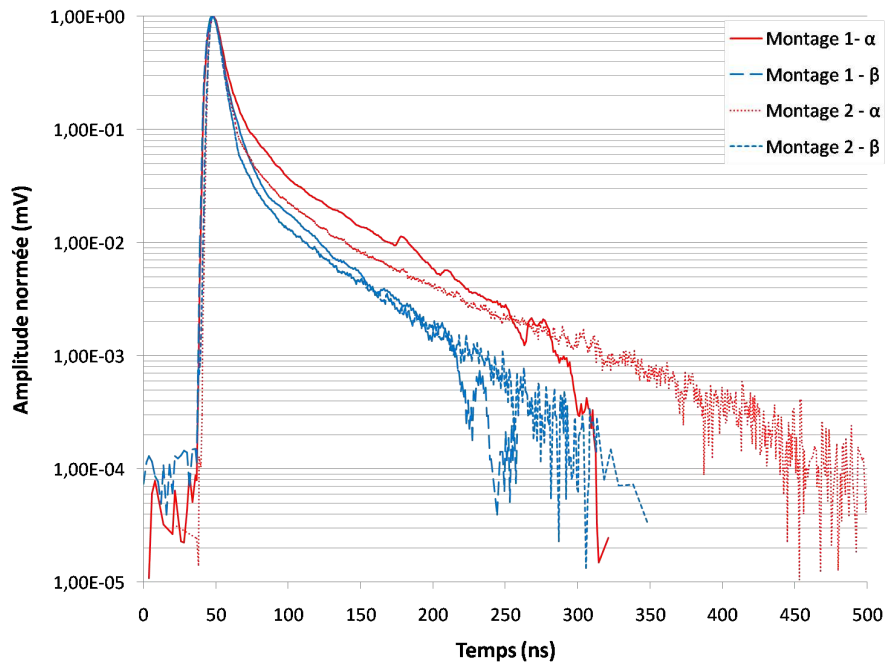


FIGURE 5.44 – Signaux moyens  $\alpha$  et  $\beta$  résultant de la discrimination multicritère des deux montages à partir de la source G1.

nous pouvons calculer une limite de détection pour cette méthode d'analyse multicritère par encadrements estimés :  $a^{\#} = 0,2 \text{ Bq/L}$ . C'est donc une amélioration de la limite de détection d'un facteur quatre par rapport à celle obtenue par un encadrement en charge et tension seulement. Cela permet aussi de valider l'hypothèse comme quoi la distribution des impulsions  $\alpha$  selon chaque spectre est différente.

### 5.3.2.2 ACP

L'ACP - Analyse en Composantes Principales - est un traitement statistique qui permet de transformer des variables corrélées en variables indépendantes : les composantes principales. Cela permet aussi de réduire le volume d'information au strict nécessaire. Nous avons donc mis en place cette technique de façon à favoriser l'isolement des  $\alpha$  par rapport aux  $\beta$  en partant de l'ensemble des traitements mis en place. Un graphique biparamétrique mettant en relation les deux axes principaux (Fig. 5.45) montre une tache identifiable correspondant aux  $\alpha$ .

Le problème majeur de cette technique est intrinsèque : les nouveaux spectres seront différents suivant les quantités respectives d' $\alpha$  et de  $\beta$ . Ainsi, la comparaison du spectre précédent (Fig. 5.45) par rapport au bruit de fond (Fig. 5.46) montre une différence supérieure à celle constatée précédemment.

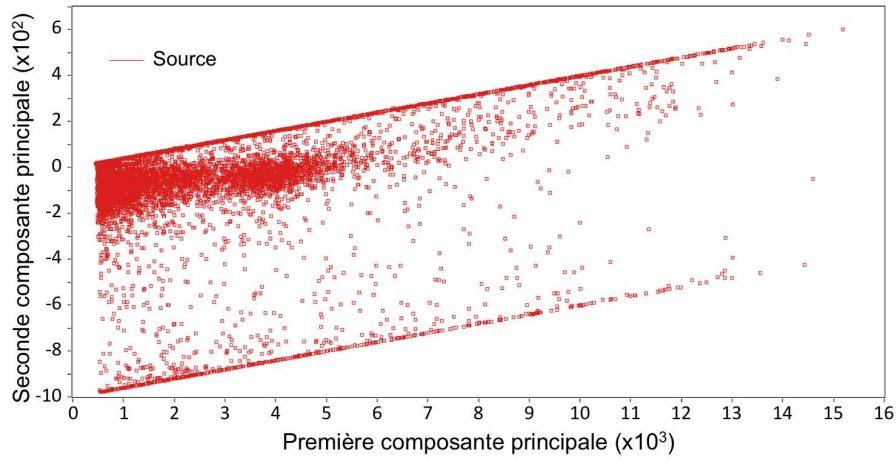


FIGURE 5.45 – Graphique mettant en relation les deux premiers axes principaux d’une ACP de la source G1 (rouge). Une tache  $\alpha$  est identifiable dans une fenêtre  $[2000 ; 6000]$  selon l’axe 1 et  $[-250 ; 100]$  selon l’axe 2.

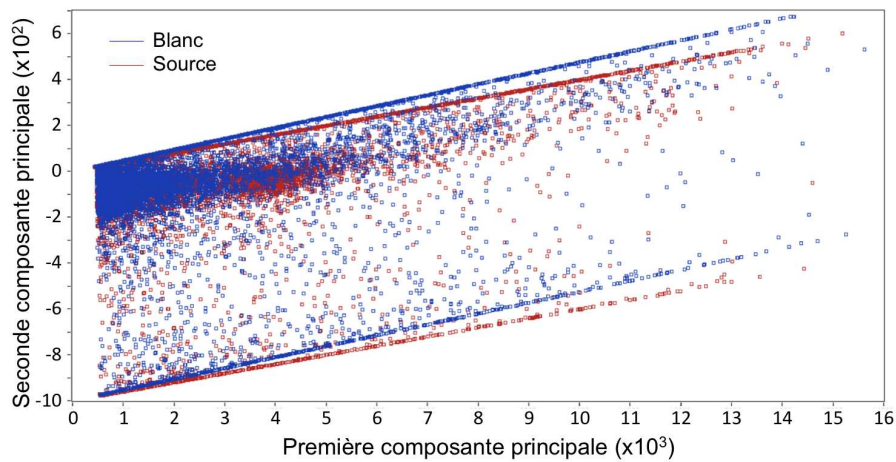


FIGURE 5.46 – Graphique mettant en relation les deux premiers axes principaux d’une ACP de la source G1 (rouge) par rapport au bruit de fond (bleu).

## 5.4 Modèles de simulation

Nous avons vu dans le chapitre précédent plusieurs modélisations des impulsions de scintillation liquide. Nous avons simulé des impulsions dans ce chapitre avec deux exponentielles afin de se rendre compte des l'impact des différentes méthodes sur la discrimination. Nous allons donc voir ici la validité des différents paramètres grâce à l'algorithme d'interpolation de Levenberg-Marquardt (LM). Dans un second temps nous tenterons de retrouver les paramètres  $q_i$  et  $\tau_i$  dans le cas d'une interpolation avec trois et quatre exponentielles selon le modèle utilisé au Borexino (Eq. 4.6).

### 5.4.1 Modèle en deux exponentielles

C'est à partir de ce modèle que nous avons simulé les différentes méthodes dans ce chapitre. Cependant, nous n'avons aucune idée des distributions statistiques réelles suivies par les différents paramètres. Nous allons donc utiliser l'algorithme de Levenberg-Marquardt (LM) afin de modéliser les impulsions après discrimination (donc  $\alpha$  et  $\beta$ ) et tracer les distributions des quatre paramètres importants ( $A_1^\alpha$ ,  $\tau_1^\alpha$ ,  $A_2^\alpha$  et  $\tau_2^\alpha$ ) des  $\alpha$ , de même pour les  $\beta$ , selon l'équation :

$$s(t) = A_1 e^{-\frac{t-\mu}{\tau_1}} + A_2 e^{-\frac{t-\mu}{\tau_2}} + \text{offset} \quad (5.10)$$

pour  $t > \mu$ .

#### 5.4.1.1 Paramètres

Comme nous l'avons vu, les paramètres entrés dans l'algorithme LM sont les amplitudes, les temps, le seuil  $\mu$  et l'offset. Cependant, le dernier est normalement nul car la ligne de base a déjà été ôtée du signal avant tout traitement. Nous allons donc le fixer à zéro et ne plus en parler.

Paramètre	moyen	minimum	maximum
$A_1$	1	0,8	2
$\tau_1$	7,69	3	20
$A_2$	0,11	0	1
$\tau_2$	52,6	30	1000
$\mu$	48	42	54
offset	0	-0,1	0,1

TABLE 5.11 – Paramètres initiaux et leur limite pour l'algorithme LM, pour des signaux normés en entrée à 1.

Les paramètres définis (Tab. 5.11) permettent d'ajuster les impulsions, comme le montre l'exemple (Fig. 5.47) dont les paramètres finaux (Tab. 5.12) rentrent bien dans les critères établis (Tab. 5.11).

Le résidu est défini par l'erreur quadratique moyenne :  $\frac{1}{n} \sum_i^n [f_{aj}(t_i) - y_{mes}(x_i)]^2$ .

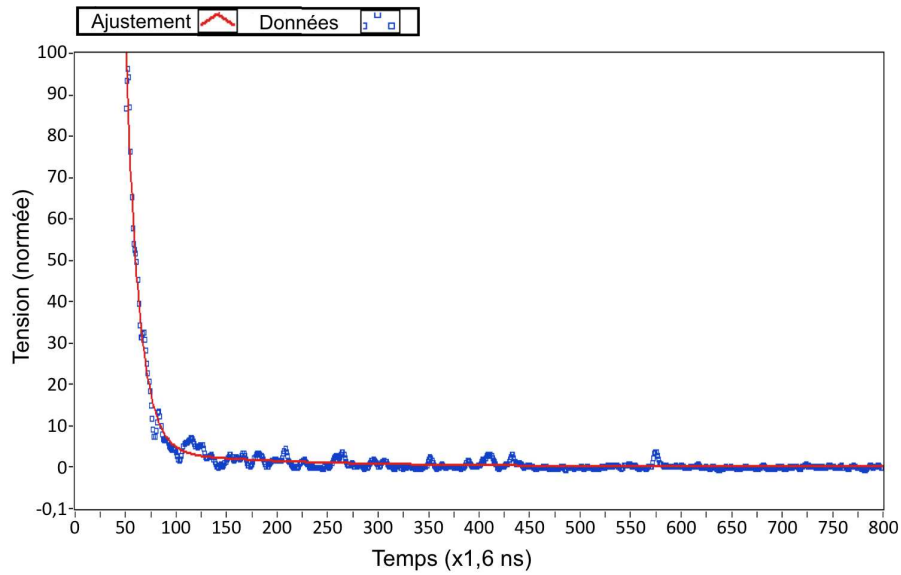


FIGURE 5.47 – Ajustement d’une impulsion par deux exponentielles au moyen de l’algorithme de Levenberg-Marquardt (Calcul de 25 ms avec 156 appels de la fonction d’ajustement, pour un résidu final de  $2,08 \cdot 10^{-4}$ ).

Paramètre	Valeur
$A_1$	1,17
$\mu_1$	48,1
$\tau_1$	12,9
$A_2$	0,0393
$\tau_2$	147

TABLE 5.12 – Paramètres définis par l’algorithme LM pour le signal donné en exemple (Fig. 5.47).

### 5.4.1.2 Ajustement de signaux $\alpha$ et $\beta$

Afin de pouvoir déterminer les distributions des différents paramètres, nous avons discriminé les  $\alpha$  de la source G1 et les  $\beta$  de la source G3 de façon à ne conserver que des signaux aussi fiables que possible. Nous nous attendons à trouver  $A_1$  et  $\tau_1$  similaires pour les deux rayonnements, celui-ci modélisant la composante rapide. A contrario, les paramètres  $A_2$  et  $\tau_2$  devraient être significativement différents, étant liés à la composante lente.

Paramètre	$\alpha$	$\beta$
$A_1$	$1,08 \pm 0,14$	$0,98 \pm 0,25$
$\tau_1$	$12,6 \pm 1,7$	$11,6 \pm 3,7$
$A_2$	$0,0451 \pm 0,0316$	$0,093 \pm 0,148$
$\tau_2$	$139 \pm 86$	$145 \pm 246$
$\mu$	$47,1 \pm 2,0$	$47,2 \pm 1,9$

TABLE 5.13 – Valeurs moyennes des différents paramètres avec leur écart-type pour les deux types de rayonnement  $\alpha$  et  $\beta$ .

Les valeurs obtenues (Tab. 5.13) correspondent à celles attendues, mais les incertitudes sur certaines valeurs ne sont pas acceptables et nous allons tenter d'en comprendre la raison.

### Distribution des paramètres de l'ajustement

Les premiers résultats (Tab. 5.13) montrent des valeurs en accord avec celles qui étaient attendues :  $A_1$  aux alentours de 1 (impulsions normées),  $\tau_1$  dans la dizaine de nanosecondes et  $\tau_2$  dans la centaine de nanosecondes. Par contre, les écarts-types sont très élevés pour les paramètres de la seconde exponentielle, et les valeurs, bien que logiques, n'ont pas une grande signification. Nous allons donc tracer les histogrammes selon ces quatre paramètres afin de voir la cause d'une si grande dispersion.

Les histogrammes représentant  $A_1$  (Fig. 5.48) montrent des formes semblables avec un seuil à 0,8 : c'est le minimum arbitrairement fixé (donc trop haut) pour ce paramètre dans l'algorithme LM. Ces deux courbes semblent toutes deux suivre une loi normale, mais l'ajustement avec les paramètres définis plus haut (Tab. 5.13) donne un coefficient de corrélation de 24% pour les  $\alpha$  et 51% pour les  $\beta$ .

De la même façon, les histogrammes représentant  $\tau_1$  (Fig. 5.49) montrent eux aussi un aspect similaire.

Par contre, les représentations de  $A_2$  (Fig. 5.50) présentent des formes très différentes, mais pas de la façon attendue : une partie du spectre  $\beta$  recouvre le spectre  $\alpha$ . On s'attendrait pourtant à avoir un spectre  $\beta$  nettement plus faible que celui  $\alpha$ . Le premier pic et la dissymétrie très prononcée des deux spectres expliquent les écarts-types sans en expliquer la cause.

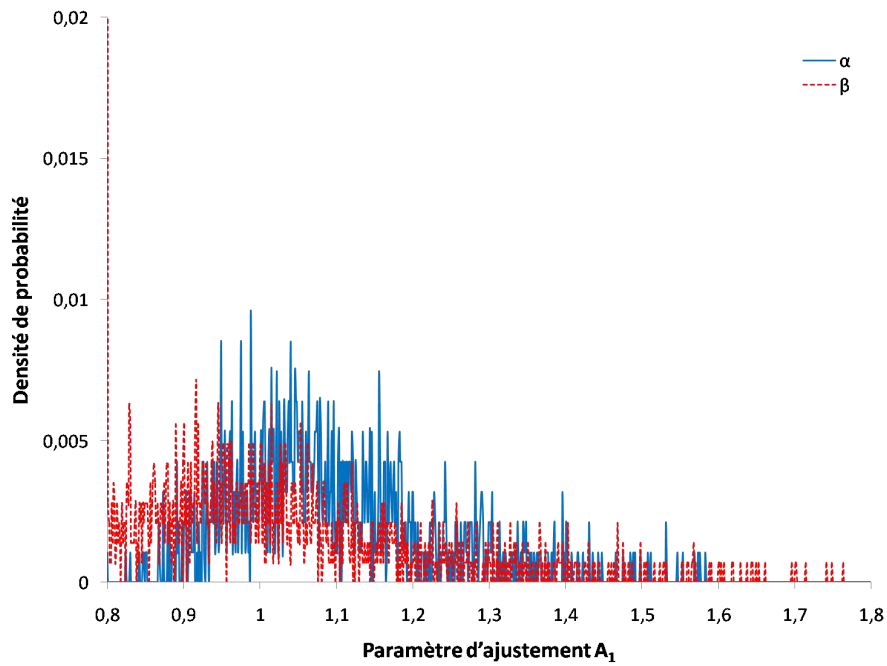


FIGURE 5.48 – Densité de probabilité  $\alpha$  et  $\beta$  pour le paramètre  $A_1$  de l'ajustement par deux exponentielles (Eq. 5.5).

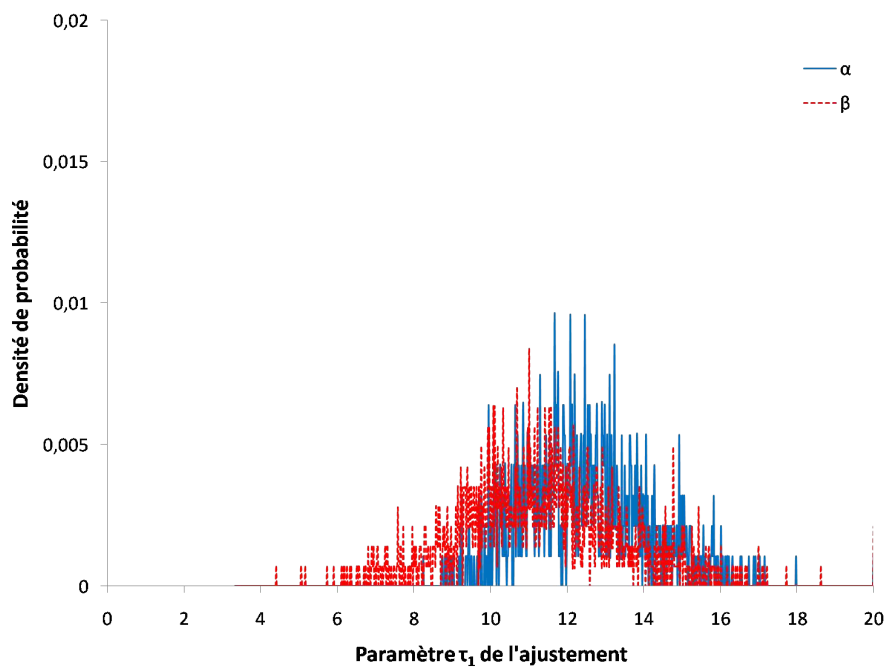


FIGURE 5.49 – Densité de probabilité  $\alpha$  et  $\beta$  pour le paramètre  $\tau_1$  de l'ajustement par deux exponentielles (Eq. 5.5).

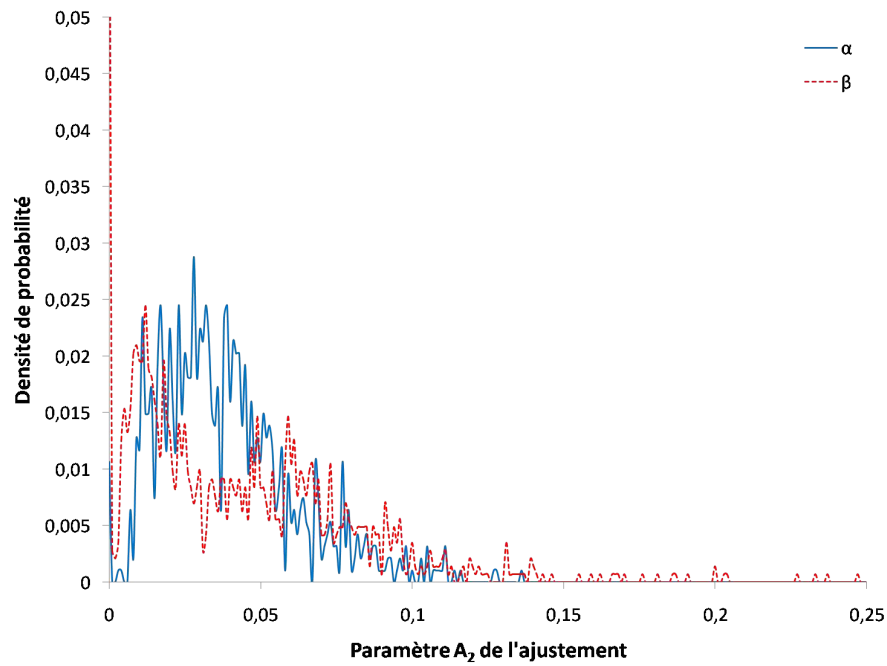


FIGURE 5.50 – Densité de probabilité  $\alpha$  et  $\beta$  pour le paramètre  $A_2$  de l'ajustement par deux exponentielles (Eq. 5.5).

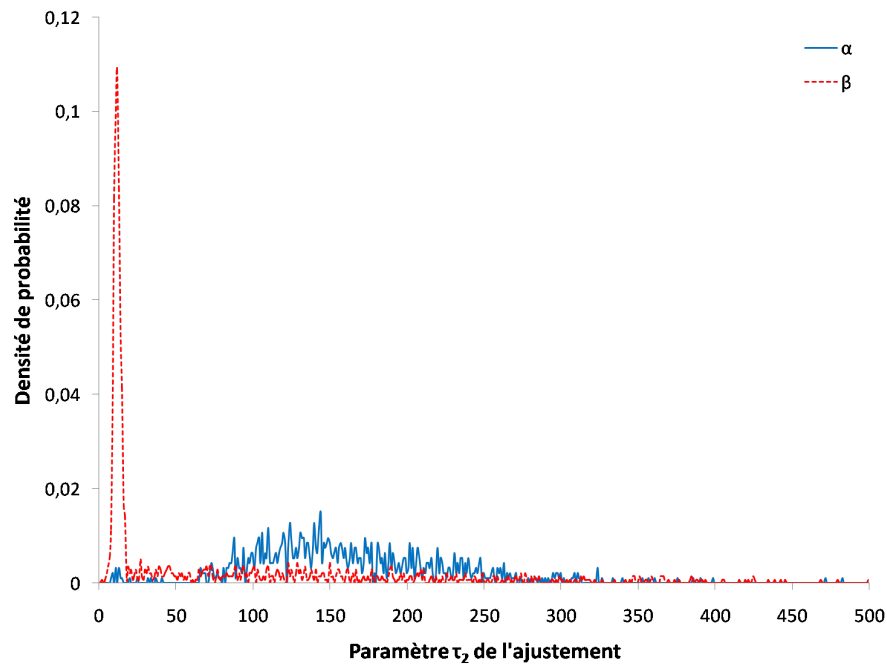


FIGURE 5.51 – Densité de probabilité  $\alpha$  et  $\beta$  pour le paramètre  $\tau_2$  de l'ajustement par deux exponentielles (Eq. 5.5).



La dernière figure, les histogramme de  $\tau_2$  (Fig. 5.51), montrent encore une fois un spectre  $\alpha$  de forme d'inspiration gaussienne assez large, et un spectre  $\beta$  en deux parties : un fond couvrant l'ensemble de la plage et un pic étroit centré sur 12, valeur de l'ordre de celle de  $\tau_1$ . Nous voyons ici pourquoi les écarts-types sont si grands. Par contre, ils ne semblent toujours pas logiques : une impulsion avec  $A_2$  et  $\tau_2$  très grand correspond à une impulsion avec une charge trop importante, hors du domaine de celles prises en compte pour les calculs.

### Estimation des relations entre paramètres

Une explication à ce problème est une corrélation entre les différents paramètres. Nous avons donc étudié empiriquement toutes les relations entre tous les paramètres et deux relations particulières ont surgi : la première entre  $A_1$  et  $\mu$  et la seconde entre  $A_2$  et  $\tau_2$ .

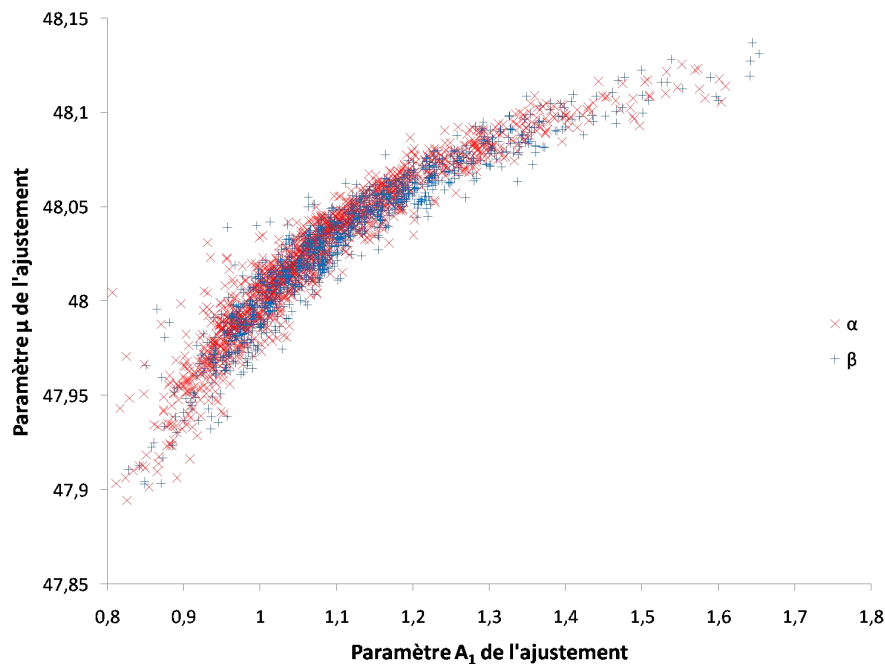


FIGURE 5.52 – Mise en vis-à-vis des paramètres  $A_1$  et  $\mu$  de l'ajustement par deux exponentielles (Eq. 5.5).

Comme nous pouvions nous y attendre, plus  $A_1$  est grand, plus  $\mu$  est grand (Fig. 5.52). Cela montre bien un temps de montée du signal constant et plus l'amplitude du signal est importante, plus la position du maximum est grande.

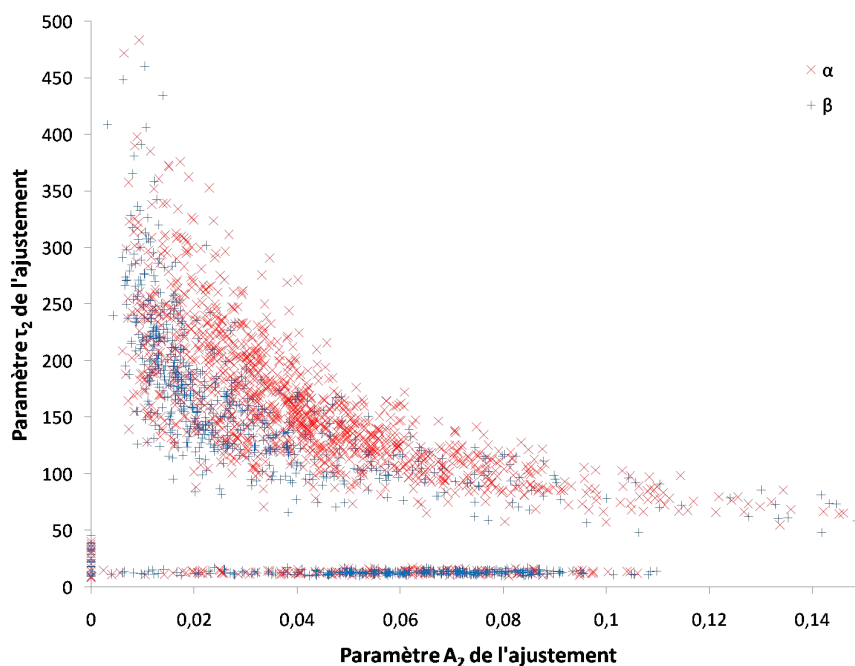


FIGURE 5.53 – Mise en vis-à-vis des paramètres  $A_2$  et  $\tau_2$  de l’ajustement par deux exponentielles (Eq. 5.5), pour les deux rayonnements

La mise en relation des paramètres  $A_2$  et  $\tau_2$  montre deux taches : une ligne pour les faibles  $\tau$  et une relation en inverse avec une dispersion décroissante suivant l’augmentation de l’amplitude. De plus, cet aspect en inverse semble plus prononcé pour les  $\beta$  que pour les  $\alpha$ , ce qui est logique puisque les  $\beta$  sont moins sujets aux composantes lentes. Nous avons donc fait un ajustement des points par une courbe de tendance inverse (Eq. 5.11).

$$f(x) = \frac{A}{x/D - B} + C \quad (5.11)$$

	A	B	C	D
$\alpha$	0,51	-0,0004	30	10
$\beta$	0,51	0,0015	60	3

TABLE 5.14 – Valeurs de l’ajustement par l’équation 5.11 pour les deux zones  $\alpha$  et  $\beta$  de la figure 5.53.

Les incertitudes sont donc plus petites pour  $\tau_2$  :  $146 \pm 80$  pour les  $\beta$  et  $164 \pm 62$  pour les  $\alpha$ .

Nous voyons donc que les premiers paramètres modélisant les impulsions étaient

grossiers mais pas très loin de la réalité, celle-ci demandant de tenir compte des relations entre les différents paramètres pour améliorer leur détermination.

### 5.4.2 Modélisation en trois et quatre exponentielles

La modélisation à trois composantes pour les  $\beta$  et quatre pour les  $\alpha$  est possible grâce à la numérisation des signaux et les algorithmes d'ajustement multivariable type Levenberg-Marquardt. Nous avons donc calculer pour une source  $\alpha$  (G1) et une source  $\beta$  (G2) les différentes composantes des modélisations, en les comparant à celles obtenus au Borexino. Les différents paramètres ne sont pas laissés totalement libre et sont fixés en première approximation par ceux proposés par Borexino avec 10% de marge dans laquelle ils sont libres. Ils sont ensuite réajustés afin que la distribution des paramètres dans leur région de liberté soit centré autour d'une moyenne.

Excitation	$\tau_1$	$\tau_2$	$\tau_3$	$\tau_4$	$q_1$	$q_2$	$q_3$	$q_4$
$\beta$	3,57	17,61	59,5		0,895	0,063	0,042	
$\alpha$	2,19	12,02	56,13	433,6	0,636	0,153	0,104	0,107
$\beta$	6,53	16,4	74,7		0,420	0,316	0,253	
$\alpha$	3,35	11,5	100,3	415,7	0,0435	0,543	0,327	0,0872

TABLE 5.15 – Constantes du modèle du Borexino pour les impulsions  $\alpha$  et  $\beta$  [Ranucci] (en haut), par rapport à celles obtenues avec le second montage au GEA. Les paramètres sont estimés à partir des moyennes des résultats d'ajustements par l'algorithme LM sur les impulsions discriminées en multicritère par encadrements.

## 5.5 Conclusion

La numérisation de signaux semble possible par la démocratisation de CAN (Convertisseur Analogique Numérique) de plus d'1 GHz, permettant donc l'enregistrement de signaux de durée de l'ordre de la dizaine de nanoseconde. Nous avons donc fait un montage montrant la faisabilité de ce projet, doté d'un photomultiplicateur 9111B (ElectronTube) suivi d'une carte pont-préampli-ampli puis d'un CAN V1751 (CAEN). Nous avons écrit un programme LabView permettant l'analyse off-line des signaux acquis.

Les analyses mises en places sont :

- mesure de la tension maximale du signal (E) ;
- mesure de la charge (C) ;
- mesure du rapport charge sur tension (CN) ;
- mesure du rapport de la charge de la queue du signal, définie au maximum, par la charge totale (TTR) ;

- mesure du rapport de la charge de la queue du signal, définie 40 ns après le début de l'impulsion, par la charge totale (TTRm);
- calcul du paramètre de Gatti (G);
- calcul du paramètre de Yousefi (Y);
- calcul du paramètre R de l'ajustement par deux exponentielles;
- mesure du nombre de post impulsions (PIA).

Les deux premières analyses fournissent les informations habituelles liées à l'énergie, les  $\alpha$  restant mêlés aux  $\beta$ . Par contre, les autres méthodes isolent les deux types de rayonnements, les séparant en deux pics plus ou moins distincts, avec à gauche les  $\beta$  et à droite les  $\alpha$ . Pour chacune d'elles nous avons étudié les spectres à partir d'impulsions  $\beta$  et  $\alpha$  issues de discriminations modélisées et bruitées.

A l'aide de deux montages différents, nous avons étudié la méthode standard basée sur la détermination d'un critère. Cependant, les simulations l'avaient montré et les mesures confirmés : aucune analyse ne permet la détermination d'un critère unique permettant la discrimination. L'avantage du numérique et des traitements off-line est aussi le multicritère. Ainsi, nous avons isolé sur les spectres en tension et en charge la zone  $\alpha$ , et défini par la même des impulsions comme étant  $\alpha$  ou  $\beta$ . Alors, nous obtenons une diminution considérable de nombre de coups dans les spectres  $\alpha$  selon les autres analyses et chacun présente désormais l'aspect caractéristique attendu de deux pics ( $\beta$  à gauche et  $\alpha$  à droite), avec une zone non différentiable au milieu.

Les différents spectres obtenus par ce traitement multicritère ont montré une certaine différence de forme assez caractéristique non imputable aux nucléides ou aux activités, mais au quenching, surtout dans les mesures faites avec le second montage. De ce fait, la soustraction du bruit de fond n'est pas toujours idéale et nous avons étudié la forme du spectre des  $\beta$  restant dans le spectre  $\alpha$  des cinq critères, en particulier le TTRm. Celui-ci est, dans la zone  $\alpha$ , une exponentielle décroissante. Cette méthode permet donc d'atteindre une limite de détection de 0,9 Bq/L en 24 heures de comptage.

Nous avons dans un second temps exploité chaque analyse pour la discrimination : il existe sur chaque spectre une zone définissable contenant les  $\alpha$ . Pour chaque impulsion, si chacune des valeurs des analyses est comprise dans la fenêtre définie pour chacun des critères, alors l'impulsion est définie comme étant  $\alpha$ . Grâce à cette méthode, nous avons retrouvé pour les deux montages l'activité  $\alpha$  attendue et baissé la limite de détection d'un facteur quatre, montrant que ce type d'analyse multicritère peut être une solution d'avenir.



# Conclusion

La scintillation liquide alliée à la discrimination  $\alpha/\beta$  offre une très bonne alternative aux méthodes traditionnelles de mesure  $\alpha$  et  $\beta$  dans les eaux. Le but de ce travail a été d'apporter des compléments à la discrimination, en particulier sur détermination de la valeur du critère de séparation utilisé par les différents compteurs à scintillation liquide disposant de capacités de discrimination. Ce sujet s'est inscrit dans un partenariat entre le Groupe d'Etudes Atomiques (GEA), laboratoire expert de la Marine Nationale rattaché à l'Ecole des Applications Militaires de l'Energie Atomique (EAMEA) à Cherbourg, et l'équipe Radioprotection et Mesures Environnementales (RaMsEs) de l'Institut Pluridisciplinaire Hubert Curien (IPHC) à Strasbourg.

## Bilan des mesures

Au cours de ce travail, nous avons tout d'abord remarqué la possibilité de séparer  $\alpha$  et  $\beta$  sur un plan uniquement énergétique pour peu que ces derniers aient une énergie suffisamment faible. Nous avons en particulier mis en place un protocole simple et rapide permettant une mesure simultanée  ${}^3\text{H}/\alpha$  sur des frottis : l'opérateur réalise un frottis analysé par scintillation liquide sur un Triathler. Cette méthode permet d'atteindre les limites de détection recommandées dans des temps raisonnables. Ce protocole a fait l'objet d'une présentation et d'un article [Doughiaux 2010] à l'occasion de la conférence *Advances in Liquid Scintillation Spectrometry* organisée à Paris en 2010, et est depuis utilisé au sein des armées.

L'analyse des spectres en énergie ne permet pas d'atteindre les limites de détection attendues, nous l'avons vérifié à l'aide de l'ajustement du spectre  $\beta$  par son spectre de référence puis par une interpolation sous le pic  $\alpha$  par un polynôme. Dans le premier cas, un tel ajustement n'est possible que si le spectre  $\beta$  est connu, au minimum en composition, et en activité sauf si un seul émetteur est présent. Dans le second cas, le pic  $\alpha$  doit ressortir du spectre pour qu'il soit possible d'interpoler dessous, ce qui rend la limite de détection  $\alpha$  très dépendante des  $\beta$ . Afin de s'en affranchir, une discrimination préalable des deux rayonnements est nécessaire. Cette discrimination est réalisée par les compteurs à scintillation liquide par une analyse à seuil, c'est-à-dire que les événements sont traités pour obtenir leur énergie et une valeur discriminante. Cette dernière, comparée au seuil, fournit le type ( $\alpha$  ou  $\beta$ ) de l'évènement. Ce seuil est déterminé par l'utilisateur à l'aide de deux sources de référence  $\alpha$  et  $\beta$  par la mesure de la quantité d'un rayonnement d'une source dans l'autre spectre, c'est-à-dire le taux de réjection, à différentes valeurs de seuil. Celui-ci est déterminé quand les taux de réjection sont minima. Ces deux sources de référence doivent avoir une composition chimique identique à l'échantillon à analyser, ainsi que des radionucléides de même énergie et dans

une même activité. Afin de s'affranchir de la contrainte imposée par cette méthode de détermination de la valeur du facteur de discrimination, nous avons souhaité pouvoir la déterminer sans. Pour ce faire, l'échantillon est compté plusieurs fois à différents facteurs de discrimination puis les résultats sont analysés à l'aide d'un logiciel écrit en LabView dans lequel est implémenter la méthode de la ligne brisée. Cette méthode permet de s'affranchir de la plupart des  $\beta$  tout en conservant les  $\alpha$  dans leur spectre. Les différents essais ont montré la validité de cette méthode, en particulier deux complémentaires par une source d'intercomparaison et une de  $^{222}\text{Rn}$ , dont l'estimation de la limite de détection est de 0,3 Bq/L en trois heures de comptage (multiplié par les différents facteurs de discrimination). Ceci correspond à 0,11 Bq/L en une journée de comptage. Une pré-concentration permet d'abaisser encore cette limite jusqu'à un facteur 10. Cette méthode est le sujet d'un article en cours de soumission à *Applied Radiation and Isotops*.

L'échantillonnage des comptages selon le facteur de discrimination nécessite un temps de mesure d'autant de fois plus long, et ne permet pas l'amélioration de la qualité de la discrimination, seulement la détermination du facteur optimal. Profitant de la démocratisation des convertisseurs analogique-numérique, nous avons construit deux démonstrateurs selon le modèle en coïncidence avec lequel nous avons acquis plusieurs dizaine de gigaoctets de d'impulsion. Nous avons cherché dans un premier temps à séparer les signaux à partir d'un seul critère parmi tous ceux utilisés dans l'application LabView créée pour la discrimination : aucune des méthodes implémentés ne permet la détermination d'un critère seuil unique. Nous avons alors définie une fenêtre  $\alpha$  sur les deux spectres dont nous connaissons la forme puisque liée à l'énergie : les spectres en tension et en charge. Cet encadrement permet d'éliminer une grande partie des évènements  $\beta$  des spectres issus des autres analyses. De cette façon, les activités  $\alpha$  des sources auxquelles cette méthode a été confrontée ont été retrouvées. Ces appareils permettent non seulement de résoudre les temps de comptage imposés par la méthode de la ligne brisée qui permet de déterminer de facteur de discrimination optimal, mais aussi de potentiellement traiter les échantillons en situation incidentelle, où la rapidité de traitement est importante.

Les différentes méthodes d'analyse des signaux ont été préalablement testées à l'aide d'une modélisation par deux exponentielles. Les résultats sont semblables à ceux obtenus à partir des mesures, mais les dispersions sont imposées arbitrairement. La numérisation des impulsions permet leur ajustement selon n'importe quel modèle à l'aide de l'algorithme de Levenberg-Marquardt. Les paramètres de l'ajustement par deux exponentielles ont été étudiés et il est apparu une dispersion importante pour certains : les variables sont corrélées. Nous avons donc pour elles établie empiriquement la relation qui les lie. Nous avons de la même manière étudié les paramètres de l'interpolation par trois et quatre exponentielles selon le modèle du Borexino, avec lequel nous comparons les résultats.

L'échantillon doit être de bonne qualité afin de permettre d'une part une me-

sure directe peu dégradée, mais aussi permettre une discrimination avec le moins possible d'interférence. Ainsi, nous avons étudié l'influence de l'éthanol et de la couleur dans le cas des frottis où l'ajout d'élément indésirable était possible. Dans les quantités permises par le frottis, la quantité d'éthanol ajouté n'influence pas défavorablement la mesure directe, au contraire de la couleur. Pour celle-ci, nous avons fait la distinction entre les trois couleurs standard (rouge, vert, bleu) et le noir. La correspondance des spectres d'absorption et d'émission en corrélation avec le tSIE montre des effets différents selon la couleur, à impact faible comme le bleu jusqu'au rouge. Dans cette optique d'ajout d'éléments indésirables, nous avons étudié celui de la poussière. Les résultats ont montré que celle-ci décante dans le fond de la fiole de scintillation sans influencer le comptage, après le temps de dépôt, et malgré un tSIE très bas, sans rapport avec l'influence des éléments macroscopiques. Enfin nous avons mis en relation le pH, la concentration et le taux d'événement  $\alpha$  mal classé pour un facteur de discrimination fixé. Ainsi, nous avons retrouvé les différentes valeurs conseillées dans la norme, et montré qu'une concentration de l'échantillon par 10 permet d'être en-deçà des valeurs de limites de détection recommandées.

## Perspectives

Les études présentées dans ce travail montrent aussi trois pistes principales d'amélioration, la première concernant les compteurs à scintillation liquide numériques, la seconde l'ensemble des traitements et analyses des signaux, et enfin les couplages avec des traitements chimiques. Une quatrième piste nettement plus simple concerne les analyses de routine. Les analyses de routines ne peuvent pas permettre l'application de la méthode de la ligne brisée du fait des temps de comptages trop long. Or, l'analyse de routine sur des échantillons dont les caractéristiques sont proches, tant d'un point de vue chimique que sur les niveaux d'activités attendus, permettrait la mise en place d'un protocole dont le facteur de discrimination est identique pour chaque échantillon. Ceci nécessite toutefois une analyse des spectres, surtout dans le cas d'une discrimination sous-estimée. Les deux compteurs numériques à scintillation liquide construits ont montré de grande possibilité pour un investissement moindre qu'un compteur traditionnel. Chacun a montré certains atouts et inconvénients, et chacun peut être amélioré sur différents plans : blindage actif et passif, photomultiplicateurs caractérisés de qualité garantie, et stabilisation en température. Ensuite, les algorithmes de traitement utilisés pourraient être améliorés en terme de performance et de robustesse. L'encadrement des zones  $\alpha$  pourrait être lui aussi revu car ces régions sont ellipsoïdales dans la majorité des cas, d'où une recherche d'algorithme de détection de zone. Enfin, tout traitement chimique a été au début volontairement éludé mais doit désormais être pris en compte, tant pour des méthodes d'extraction / séparation que pour une sélection d'un meilleur liquide scintillant parfaitement adapté à l'utilisation.



Les 847 km séparant le RaMsEs du GEA ne laissait pas présager une collaboration, mais les deux entités ont su répondre mutuellement à leur demandes, fournissant pour l'une un contrat de travail Marine et une école accueillante, et pour l'autre une tutelle universitaire toujours présente malgré la distance. Ces trois années ont alors été une expérience doublement enrichissante, profitant des ressources humaines et technique des experts civils et militaires. Outre de nouvelles compétences dans des domaines techniques allant de la métrologie à l'instrumentation en passant par les traitements par ordinateur, durant ces trois années ont eu lieu deux fois plus de rencontres au fur-et-à-mesure des congrès, conférences et groupes de travail auxquels nous avons pu participer, ce qui a donné naissance à un article (et deux autres en préparation), trois proceedings et huit présentations.

Et les derniers mots...

---

**Isaac Asimov**

*I believe that scientific knowledge has fractal properties, that no matter how much we learn, whatever is left, however small it may seem, is just an infinitely complex as the whole was to start with.*

---

# Statistiques de comptage

Nous allons dans cette annexe expliciter les incertitudes sur les résultats de comptages, en nous basant sur la norme utilisée pour le mesurage des activités  $\alpha$  et  $\beta$  dans les eaux de consommation [NF ISO 11704], et bien sûr sur le GUM<sup>1</sup>, document de référence du JCGM<sup>2</sup> pour les calculs statistiques [GUM]. Les notations utilisées ici sont dans le format des normes. Le lecteur voudra bien avoir à l'esprit la seconde page de la norme NF ISO 11704, non reproduite ici, regroupant les symboles, définitions et unités utilisés dans ce cas du mesurage par scintillation liquide avec un rendu de résultat en Bq/L. Les notations sont bien sûr équivalentes pour les autres systèmes d'unités.

## A.1 Distribution d'une mesure

La mesure nucléaire ayant un caractère aléatoire, il n'y a pas de valeur "vraie", mais la mesure est une estimation ( $N_{vraie} \equiv \bar{N}$ ). En répétant une mesure  $n$  fois, on obtient une répartition des valeurs de  $N$  suivant une loi de Poisson, loi tendant vers celle Laplace-Gauss pour un nombre d'évènement important (Fig. A.1).

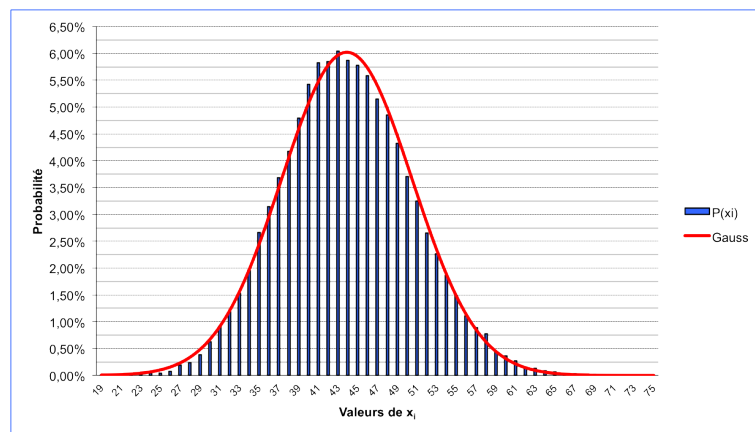


FIGURE A.1 – Distribution des résultats de comptage par rapport à une loi de Laplace-Gauss, ou gaussienne.

---

1. Guide pour l'expression de l'incertitude de mesure  
 2. Joint Committee for Guides in Metrology, dont les membres sont BIPM, CEI, IFCC, ILAC, ISO, UICPA, UIPPA et OIML.

Dans la suite, l'estimation de la valeur vraie sera faite par la moyenne des mesures, même s'il n'y a qu'une seule mesure et sera toujours notée  $N$ .

### A.1.1 Moyenne et écart-type

A partir d'un nombre de coups mesuré  $N$ , on calcule l'incertitude sur cette valeur mesurée en sachant que  $N$  est une variable aléatoire qui suit une loi de Poisson, approché par une loi normale car le nombre de coups grand (généralement on prend  $N > 30$ ). L'incertitude sur  $N$  est donc  $\sigma_N = \sqrt{N}$ .

Les équations suivantes, indicée  $\alpha$ , sont écrites pour les émetteurs  $\alpha$ . Elles sont équivalentes à une écriture indicée  $\beta$  pour les émetteurs  $\beta$ . L'activité  $a_\alpha$  est donc calculée par (respectivement  $a_\beta$  dans toute la suite) :

$$a_\alpha = (r_{g\alpha} - r_{0\alpha})w_\alpha \quad (\text{A.1})$$

Avec  $w$  un facteur permettant d'exprimer le résultat en Bq, Bq/L ou Bq/m<sup>3</sup>. Il s'écrit, avec son incertitude-type relative, de la façon suivante :

$$\begin{array}{ll} \text{Bq} & w_\alpha = \frac{1}{\varepsilon_\alpha} \quad u_{rel}^2(w_\alpha) = u_{rel}^2(\varepsilon_\alpha) \\ \text{Bq/g} & w_\alpha = \frac{1}{m \cdot \varepsilon_\alpha} \quad u_{rel}^2(w_\alpha) = u_{rel}^2(\varepsilon_\alpha) + u_{rel}^2(m) \\ \text{Bq/mL} & w_\alpha = \frac{1}{V \cdot \varepsilon_\alpha} \quad u_{rel}^2(w_\alpha) = u_{rel}^2(\varepsilon_\alpha) + u_{rel}^2(V) \\ \text{Bq/cm}^2 & w_\alpha = \frac{1}{S \cdot \varepsilon_\alpha} \quad u_{rel}^2(w_\alpha) = u_{rel}^2(\varepsilon_\alpha) + u_{rel}^2(S) \end{array} \quad (\text{A.2})$$

L'incertitude-type de  $a_\alpha$  s'exprime donc, en négligeant l'incertitude sur le temps de comptage :

$$u(a_\alpha) = \sqrt{w_\alpha^2 \left( \frac{r_{g\alpha}}{t_g} + \frac{r_{0\alpha}}{t_0} \right) + a_\alpha^2 \cdot u_{rel}^2(w_\alpha)} \quad (\text{A.3})$$

L'incertitude-type relative sur le rendement inclut aussi toutes les incertitudes liées à la source d'étalonnage (la solution de référence certifiée, la préparation de la source d'étalonnage, ...):

$$u_{rel}^2(\varepsilon_\alpha) = u_{rel}^2(r_{S\alpha} - r_{0\alpha}) + u_{rel}^2(A_\alpha) \quad (\text{A.4})$$

### A.1.2 Seuil de décision et limite de détection

Le seuil de décision,  $a^*$ , est la plus basse valeur d'activité à partir de laquelle on peut assurer de la présence de la valeur recherchée. Ce calcul est standardisé [NF ISO 11704] dans le cas de la scintillation liquide par :

$$a^* = k_{1-\alpha} \cdot w_\alpha \cdot \sqrt{r_{0\alpha}/t_g + r_{0\alpha}/t_0} \quad (\text{A.5})$$

Avec :

- $r_0$  le taux de comptage du bruit de fond (cps);
- $t$  le temps de comptage (s);

- $k_{1-\alpha}$  le coefficient d'élargissement, couramment pris à 1,65 pour un risque  $\alpha$  de 5 %.

Quand ce critère a déclaré la non-présence de radioactivité ( $r_g - r_0 < a^*$ ), nous pouvons calculer la limite de détection,  $a^\#$ , définie par :

$$a^\# = a^* + k_{1-\beta} \sqrt{w_\alpha^2 ((a^\# / w_\alpha + r_{0\alpha}) / t_g + r_{0\alpha} / t_0) + a_\alpha^{\#2} \cdot u_{rel}^2(w_\alpha)} \quad (\text{A.6})$$

Avec  $k_{1-\beta}$  le coefficient d'élargissement, couramment pris à 1,65 pour un risque  $\beta$  de 5 %. De plus, les facteurs  $\alpha$  et  $\beta$  sont pris égaux, alors  $k_{1-\beta} = k_{1-\alpha} = k$ . La limite de détection devient :

$$a^\# = \frac{2 \cdot a^* + (k^2 \cdot w_\alpha) / t_g}{1 - k^2 \cdot u_{rel}^2(w_\alpha)} \quad (\text{A.7})$$

## A.2 Propagation des erreurs

### A.2.1 Variables non-corrélées

L'incertitude-type composée  $u_c(y)$  d'une mesure  $y$  d'un mesurande  $Y$  dont le résultat de mesurage est composé des estimations d'entrée  $x_1, \dots, x_N$ ,  $N$ , grandeurs d'entrées indépendantes, est :

$$u_c^2(y) = \sum_{i=1}^N \left( \frac{\partial y(x_1, \dots, x_N)}{\partial x_i} \right)^2 u^2(x_i) \quad (\text{A.8})$$

### A.2.2 Variables corrélées

L'incertitude-type composée  $u_c(y)$  d'une mesure  $y$  d'un mesurande  $Y$  dont le résultat de mesurage est composé des estimations d'entrée  $x_1, \dots, x_N$ ,  $N$ , grandeurs d'entrées dépendantes, est :

$$u_c^2(y) = \sum_{i=1}^N \sum_{j=1}^N \frac{\partial y(x_1, \dots, x_N)}{\partial x_i} \frac{\partial y(x_1, \dots, x_N)}{\partial x_j} u(x_i, x_j) \quad (\text{A.9})$$

$u(x_i, x_j)$  est la covariance estimée associée à  $x_i$  et  $x_j$ . Celle-ci est caractérisée par le coefficient de corrélation  $r$  tel que :

$$r(x_i, x_j) = \frac{u(x_i, x_j)}{u(x_i)u(x_j)} \quad (\text{A.10})$$

Ce coefficient de corrélation est compris entre -1 et 1. -1 pour une anticorrélation totale, c'est-à-dire que la corrélation conduit à moins d'incertitude, 1 pour une corrélation totale, et 0 pour une non-corrélation.

Dans le cas d'une corrélation totale, l'expression de l'incertitude type  $u_c(y)$  peut se simplifier :

$$u_c^2(y) = \left[ \sum_{i=1}^N \frac{\partial y}{\partial x_i} u(x_i) \right]^2 \quad (\text{A.11})$$

### A.3 Méthode statistique d'obtention des résultats de mesure

#### A.3.1 Principe

L'objectif de cette méthode est d'obtenir un résultat (estimateur de la moyenne) avec son incertitude (écart-type de la distribution) sans faire le calcul de propagation des erreurs dans la chaîne d'analyse, mais à partir de la connaissance des distributions des données d'entrée [GUM S1].

#### A.3.2 Exemple d'application : la MLB

Nous avons détaillé cette méthode dans le quatrième chapitre de ce mémoire. Les différentes étapes de cette méthode, pour rappel, sont :

1. Mesure de plusieurs spectres d'un échantillon selon un set de facteur de discrimination ;
2. Calcul de la courbe de  $\tau(x)$  ;
3. Interpolation de cette courbe par splines cubiques ;
4. Ajustement par un couple de segment formant une ligne brisée ;
5. A cette brisure correspond un facteur de discrimination à partir duquel sont interpolés un spectre  $\alpha$  et un spectre  $\beta$  ;
6. Les activités sont calculées à partir de ces spectres.

Pour chacune de ces étapes a été calculée une fonction permettant d'en obtenir ou d'approcher l'incertitude. Cependant, certaines étapes, comme la 3 ou la 4, ne permettent pas d'obtenir une fonction d'incertitude. C'est pourquoi nous nous proposons d'utiliser la méthode statistique d'évaluation de l'incertitude.

Nous avons répété plusieurs milliers de fois ces étapes en variant les données d'entrée de façon à obtenir une distribution aussi réaliste que possible du résultat de mesure avec son incertitude.

Nous sommes donc partis de la distribution des données d'entrée. Celle-ci résultant d'une mesure de coups, nous savons que la distribution du résultat suit une loi normale de moyenne le nombre de coups mesurés et d'écart-type la racine carrée de ce même nombre.

La courbe de  $\tau(x)$  résulte du ratio de deux variables aléatoires corrélées, l'une étant comprise dans l'autre. Afin de pouvoir tirer selon la distribution des mesures tout en tenant compte de cette corrélation, nous l'avons supprimée. En effet, la fonction d'origine est  $\tau(x) = 1 - N_1/N_2$ ,  $N_1$  compris dans  $N_2$ ; nous l'avons transformée en  $\tau(x) = 1 - N_1/(N_1 + N_3)$ ,  $N_3 = N_2 - N_1$ . De cette façon les corrélations ne sont plus présentes et nous pouvons faire des tirages aléatoires selon une loi normale pour les deux variables aléatoires  $N_1$  et  $N_3$ . A chacun de ces tirages ne correspond qu'une seule et unique interpolation par splines, et qu'un seul et unique ajustement par deux segments, et donc un seul facteur de discrimination.

Cependant, le nombre de coups déterminé sur le spectre interpolé à partir du facteur de discrimination a aussi une incertitude. Nous avons choisi d'obtenir ce spectre par interpolation linéaire entre ses plus proches voisins, donc l'incertitude est connue, mais aussi sa distribution qui est la même que celle des spectres dont il est issu : c'est une loi normale. Nous avons donc convolué la distribution du facteur de discrimination avec cette distribution : l'ensemble des gaussiennes des nombres de coups associés à chaque facteur de discrimination est normé par probabilité issue de la distribution des facteurs de discrimination, puis sommé. On obtient alors la distribution des nombres de coups.

A partir de cette dernière distribution, qui n'a plus rien à voir avec une loi normale, le résultat est déterminé à partir de sa médiane et l'incertitude correspond à l'écart-type de la distribution.



# Manuel de l'utilisateur du logiciel MLB

## B.1 Mise en place du protocole de comptage

La ou les échantillons doivent être préparés selon la norme NF ISO 11704 [NF ISO 11704]. Dans le cas d'un échantillon, celui-ci doit être mis à compté successivement à différent facteurs de discrimination, par pas de dix :

- TriCarb : de 90 à 160
- Quantulus : de 90 à 160
- Triathler : de 320 à 420

Sinon les sept sources doivent être comptées avec chacune un facteur de discrimination différent pendant le temps nécessaire déterminé par le bruit du fond courant. Un étalonnage est nécessaire pour clarifier ce point.

## B.2 Utilisation du logiciel

Un programme LabView a été écrit de façon à exploiter les résultats de comptage. Par défaut, l'application s'ouvre en mode *run*. Sinon, il faut appuyer sur la flèche blanche (Fig. B.1 - 1) qui devient alors noire.

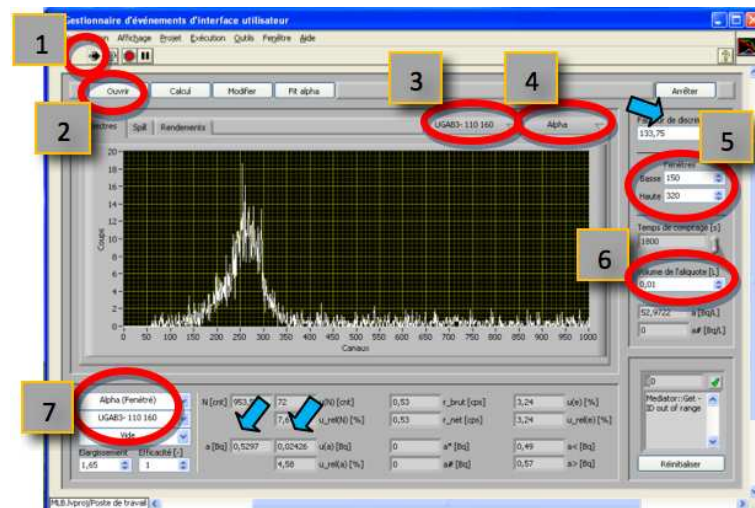


FIGURE B.1 – Face avant du logiciel pour l'exploitation des spectres MLB



### B.2.1 Importation des spectres

Pour importer les spectres, il faut cliquer sur le bouton Ouvrir (Fig. B.1 - 2), et remplir les champs de la fenêtre surgissante (Fig. B.2). On indique le chemin du dossier contenant les spectres des mesures de l'acquisition, on donne un nom à celle-ci, le nombre de mesures et de répétitions effectués et bien sûr sur quel appareil. Après validation, l'acquisition apparaît dans le menu déroulant (Fig. B.1 - 3).

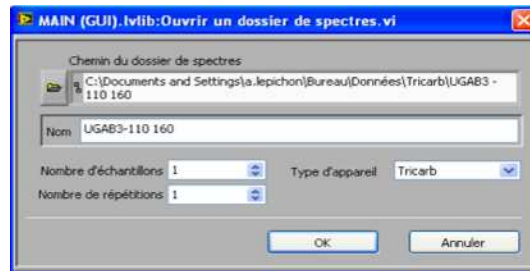


FIGURE B.2 – Fenêtre surgissante pour l'importation des fichiers de mesures

### B.2.2 Détermination de la fenêtre $\alpha$

Afin de déterminer la fenêtre  $\alpha$ , nous conseillons de sélectionner le spectre  $\alpha$  (Fig. B.1 - 4) et de choisir un facteur de discrimination élevé (Fig. B.1 - 5). Un ou plusieurs pics peuvent alors apparaître et la fenêtre  $\alpha$  peut donc être déterminée (Fig. B.1 - 5).

### B.2.3 Lecture de la courbe de $\tau(x)$

L'onglet spill donne la forme de la courbe de  $\tau(x)$ , les deux segments l'ajustant et les incertitudes. L'utilisateur peut donc constater la raison de la détermination du facteur de discrimination proposé en corriger la valeur, en accord avec la théorie. Il ne faut pas perdre de vue que ce logiciel n'est qu'une aide à l'analyse de spectres.

## B.3 Lecture des résultats

Les résultats sont donnés dans le cadran au bas du logiciel. Le premier menu déroulant (Fig. B.1 - 7) sélectionne les résultats à afficher ( $\alpha$ ,  $\beta$  ou total), le second sélectionne la source, et le troisième le bruit de fond.

# Filiations radioactives

---

L'activité d'une source ou d'un ensemble de radionucléides est par définition le nombre d'atomes ayant décré par unité de temps. Son unité, le *Bq* du nom d'un des découvreurs de la radioactivité, Becquerel, correspond à un nombre de désintégrations par seconde.

## C.1 Décroissance

L'activité ne peut aussi s'exprimer que pour un nombre statistiquement significatif d'atomes. En effet, on sait qu'une transition obéit à un phénomène stochastique descriptible qu'à travers des équations de mécanique quantique : un atome isolé peut décroître dans la première seconde de son observation, ou dans le millénaire. Par contre, pour un grand ensemble, il est possible de mesurer des lois macroscopiques.

### C.1.1 Demi-vie

Considérons le modèle de décroissance le plus simple, celui où un radionucléide  $X$  (père) décroît vers un unique élément  $Y$  (fils) stable. Le nombre d'atomes  $\Delta N$  se désintégrant en un temps  $\Delta t$  donné est proportionnel au nombre  $N$  d'atomes présents. Avec  $\lambda$  la constante de décroissance radioactive ( $s^{-1}$ ), on peut écrire :

$$\frac{\Delta N}{\Delta t} = \lambda N \quad (\text{C.1})$$

$$\frac{dN}{dt} = -\lambda N \quad (\text{C.2})$$

Le signe moins de la seconde équation montre la diminution du nombre d'atomes de  $X$  au fur-et-à-mesure du temps. En notant  $N_0$  le nombre d'atomes à  $t_0 = 0$ , l'équation précédente peut être écrite sous sa forme intégrée :

$$N(t) = N_0 e^{-\lambda t} \quad (\text{C.3})$$

De cette façon, on peut définir la vitesse à laquelle un atome décroît, sous-entendant la population de cette espèce. On exprime cette vitesse par une période, ou demi-vie, c'est-à-dire par le temps qu'il faut à un ensemble d'atome de cette espèce pour que la moitié de cette quantité ait décré au bout de ce temps. On note ce terme  $t_{1/2}$ .

$$N(t_{1/2}) = \frac{N_0}{2} = N_0 e^{-\lambda t_{1/2}} \quad (\text{C.4})$$

$$t_{1/2} = \frac{\ln 2}{\lambda} \quad (\text{C.5})$$

### C.1.2 Filiations

Pour la plupart des radionucléides, les descendants sont eux-mêmes radioactifs. La quantité d'atomes du fils est donc à concurrence de sa décroissance et de celle de son père.

$$\frac{dN_Y}{dt} = -\lambda_Y N_Y + \lambda_X N_X \quad (\text{C.6})$$

En écrivant cette équation sous sa forme fonction du temps, on obtient :

$$N_Y(t) = \frac{\lambda_X}{\lambda_Y - \lambda_X} N_X(t_0) (e^{-\lambda_X t} - e^{-\lambda_Y t}) + N_Y(t_0) e^{-\lambda_Y t} \quad (\text{C.7})$$

Le descendant  $Z$  suivant, s'il est radioactif, aura alors aussi une quantité d'atomes à concurrence de sa décroissance et de celle de son père. Les équations temporelles sont donc au fur-et-à-mesure des descendants de plus en plus longue en termes d'écriture. Des approximations sont cependant admises, comme dans le cas où la constante radioactive du père est négligeable (environ dix millièmes [L'Annunziata 2003]) devant celle de son fils.

Cette équation (Eq. C.7) est applicable pour les différents fils d'une filiation radioactive, mais l'équation pour chacun des fils est de plus en plus longue [Etherington 1958] :

$$\begin{aligned} N_1(t) &= N_1(0) e^{-\lambda_1 t} \\ N_2(t) &= N_2(0) e^{-\lambda_2 t} + b_1 N_1(0) \left( \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} e^{-\lambda_1 t} + \frac{\lambda_1}{\lambda_1 - \lambda_2} e^{-\lambda_2 t} \right) \\ N_3(t) &= N_3(0) e^{-\lambda_3 t} + b_2 N_2(0) \left( \frac{\lambda_2}{\lambda_3 - \lambda_2} e^{-\lambda_2 t} + \frac{\lambda_2}{\lambda_2 - \lambda_3} e^{-\lambda_3 t} \right) \\ &\quad + b_1 N_1(0) \left( \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} \frac{\lambda_2}{\lambda_3 - \lambda_1} e^{-\lambda_1 t} + \frac{\lambda_1}{\lambda_1 - \lambda_2} \frac{\lambda_2}{\lambda_3 - \lambda_2} e^{-\lambda_2 t} + \frac{\lambda_1}{\lambda_1 - \lambda_3} \frac{\lambda_2}{\lambda_2 - \lambda_3} e^{-\lambda_3 t} \right) \end{aligned} \quad (\text{C.8})$$

Avec  $b_i$  les rapports d'embranchement. Ces équations peuvent cependant s'écrire sous une forme plus générale, c'est l'équation de Bateman :

$$N_i(t) = N_i(0) e^{-\lambda_i t} + \sum_{m=1}^{i-1} \left( N_m(0) \left[ \prod_{q=m}^{i-1} b_q \lambda_q \right] \left[ \sum_{k=m}^i \frac{e^{-\lambda_k t}}{\prod_{\substack{j=m \\ j \neq k}}^i (\lambda_j - \lambda_k)} \right] \right) \quad (\text{C.9})$$

C'est une équation très facilement transposable dans un logiciel, avec pour seules limites le risque d'une division par zéro et la manipulation de nombre très grands et très petit dans la même équation. La première contrainte est aisément solvable. Quant à la seconde, les codes actuels permettent la manipulation de nombres codés sur 10 octets, soit entre  $-3,4 \cdot 10^{-4932}$  et  $+3,4 \cdot 10^{+4932}$ .

## C.2 Chaînes radioactives

Afin de calculer les différentes chaînes de décroissance, nous avons réalisé une petite application permettant de résoudre pas à pas l'équation C.7 et ainsi visualiser graphiquement les évolutions, ainsi qu'une autre permettant de résoudre l'équation de Bateman (Eq. C.8). Autant la première est codé en dur en LabView et n'est donc ni modifiable ni évolutive, autant la seconde est codés en C++ selon les patterns et ne nécessite qu'un fichier d'entrée stipulant les attentes de l'utilisateur. Les incertitudes de cette équation étant assez complexes, elles sont évaluées par Monte-Carlo

### C.2.1 $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$

La filiation du  $^{90}\text{Sr}$  est très simple, seul son fils ( $^{90}\text{Y}$ ) est radioactif, vers du  $^{90}\text{Zr}$  stable.

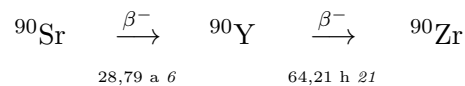


FIGURE C.1 – Schéma de décroissance du  $^{90}\text{Sr}$  et de son fils le  $^{90}\text{Y}$  [CEA 1999].

Pour cette filiation, on a  $\lambda_X \ll \lambda_Y$  donc on peut parler d'équilibre entre les deux espèces. Au bout de dix périodes de l'yttrium (27 jours), le rapport entre les activités est de 0,9993, on peut considérer l'équilibre (Fig. C.2). Dans ce même temps, l'activité  $\beta$ -globale a été multipliée par presque 1,996 (Fig C.3).

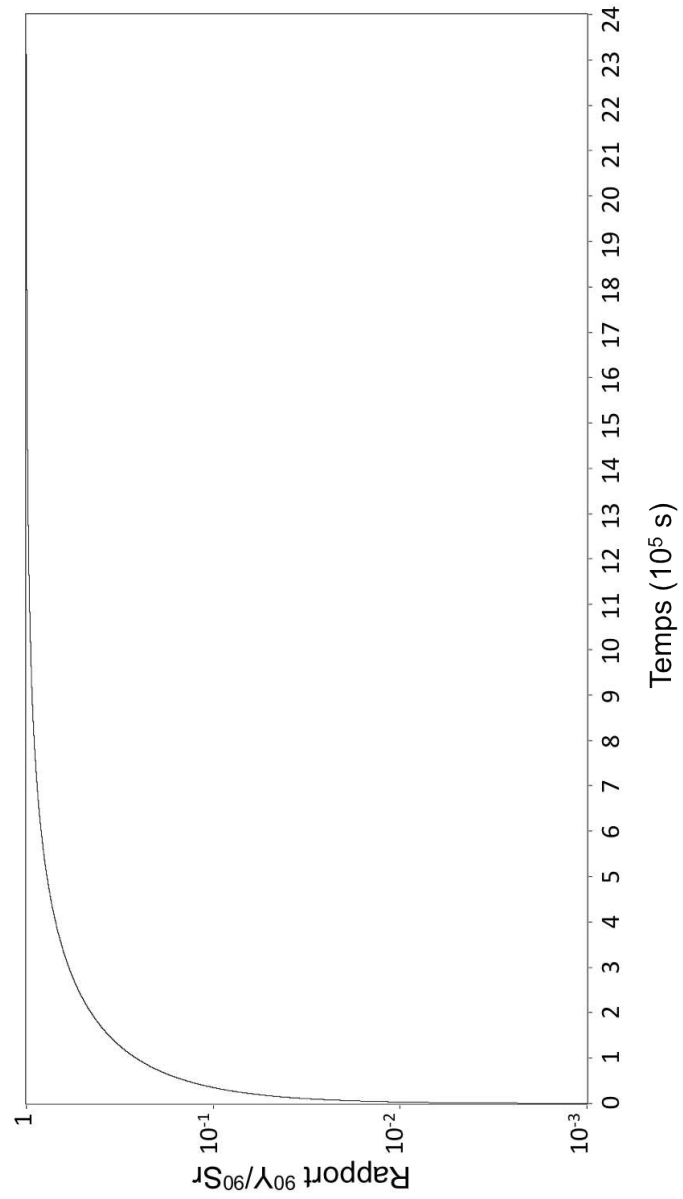


FIGURE C.2 – Evolution du rapport des activités de  $^{90}\text{Y}$  sur  $^{90}\text{Sr}$  pendant 24 jours avec un nombre d'atomes initial de  $^{90}\text{Y}$  nul.

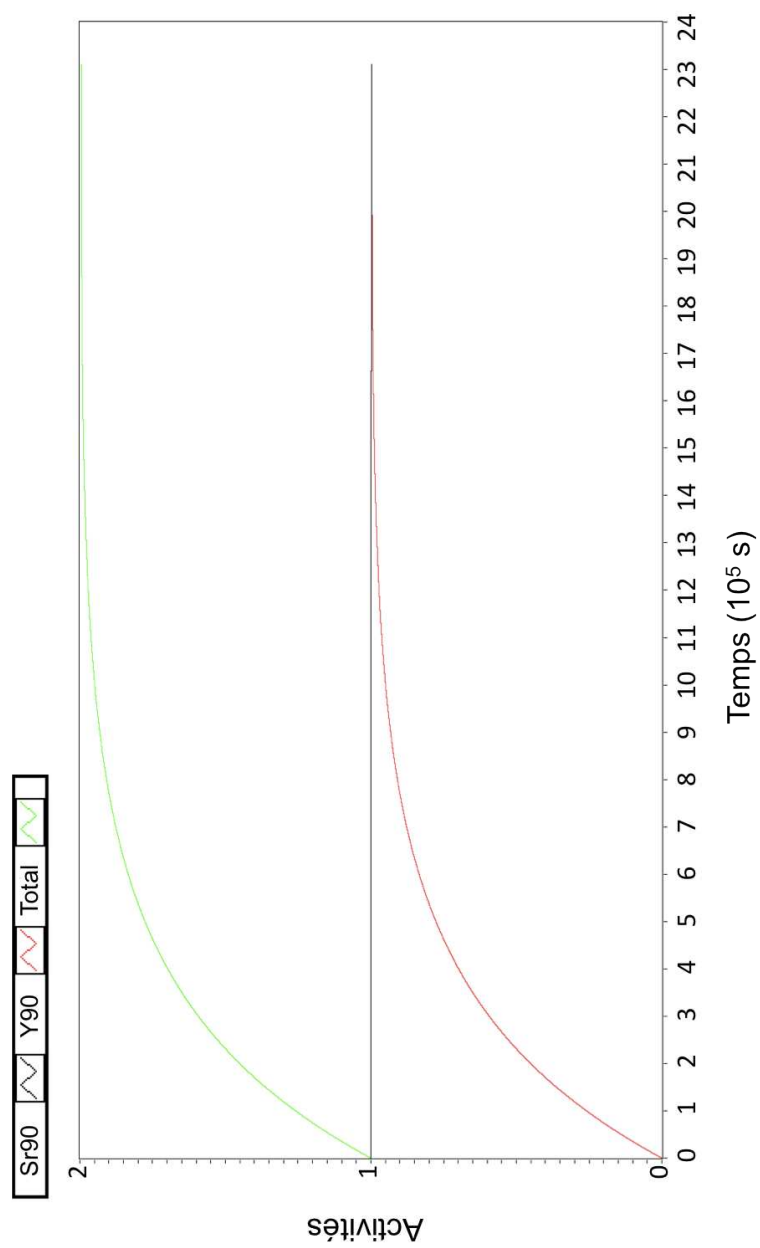


FIGURE C.3 – Evolution des activités de  $^{90}\text{Sr}$  et  $^{90}\text{Y}$  pendant 24 jours avec un nombre d'atomes initial de  $^{90}\text{Y}$  nul.

C.2.2  $^{222}\text{Rn}$ 

Le radon (*i.e.*  $^{222}\text{Rn}$ ) a un schéma de décroissance relativement complexe : le chemin de décroissance principal passe par huit désintégrations successives pour obtenir un élément stable ( $^{206}\text{Pb}$ ) (Tab. C.4). Ce schéma de décroissance a dans la durée deux étapes importantes du fait des constantes radioactives. Dans un premier temps, le radon se décroît et seul les premiers fils apparaissent jusqu'au  $^{210}\text{Pb}$  dont la demi-vie est significativement plus longue que ses pères. Au bout de quelque semaines, le radon n'est plus et la source ne contient plus que du  $^{210}\text{Pb}$ . Un équilibre va donc se mettre en place entre lui ( $^{210}\text{Pb}$ ), son fils ( $^{210}\text{Bi}$ ) et son petit fils ( $^{210}\text{Po}$ ). Dans le cas de la source de radon utilisée (Cf. Chap. 4), nous nous sommes particulièrement intéressés à la première semaine (Fig. C.5) et à l'équilibre des trois premiers émetteurs  $\alpha$  (Fig. C.6).

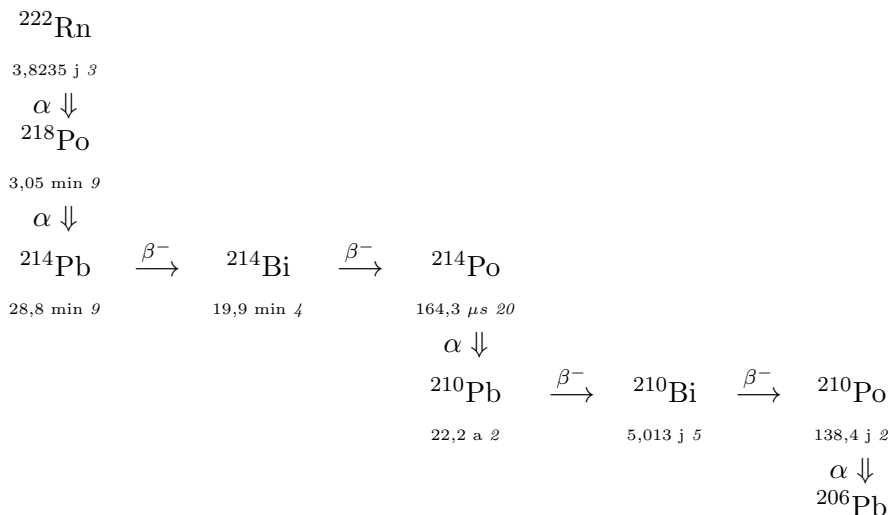
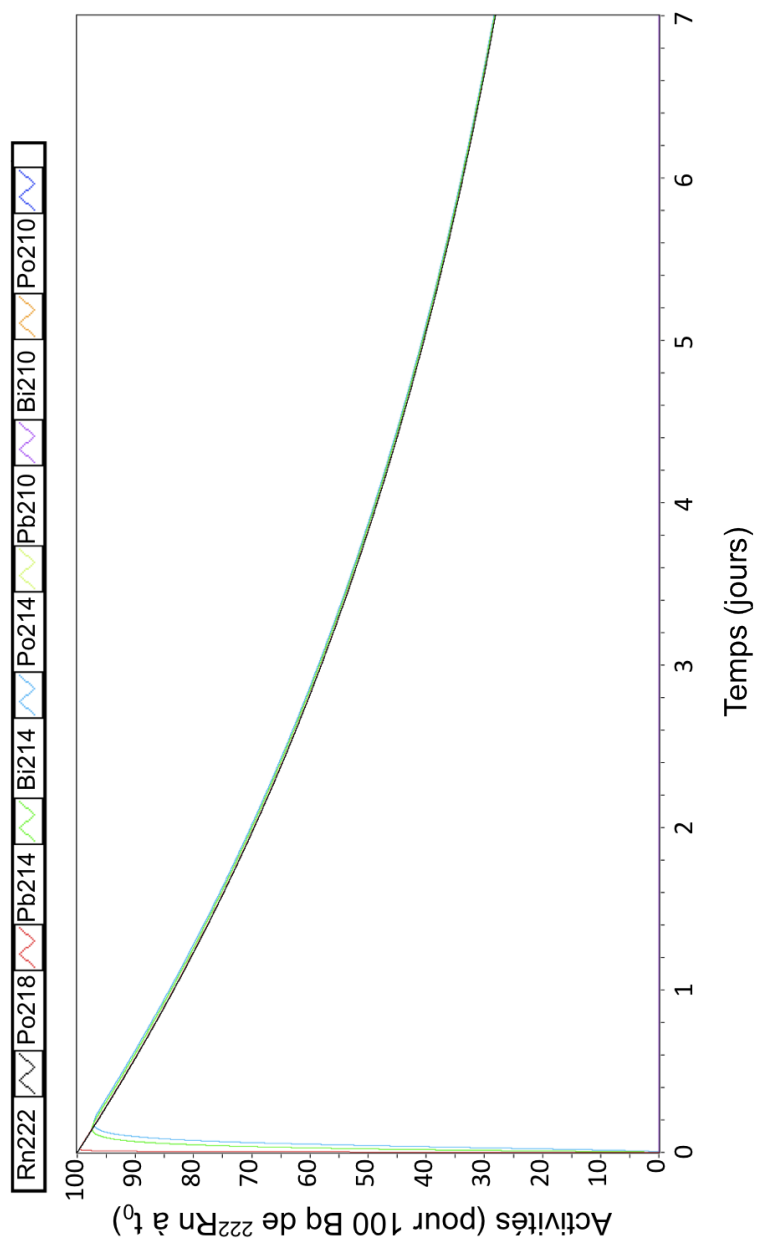


FIGURE C.4 – Schéma de décroissance principal du  $^{222}\text{Rn}$  [CEA 1999].

FIGURE C.5 – Evolution des activités de la chaîne du  $^{222}\text{Rn}$  pendant une semaine.



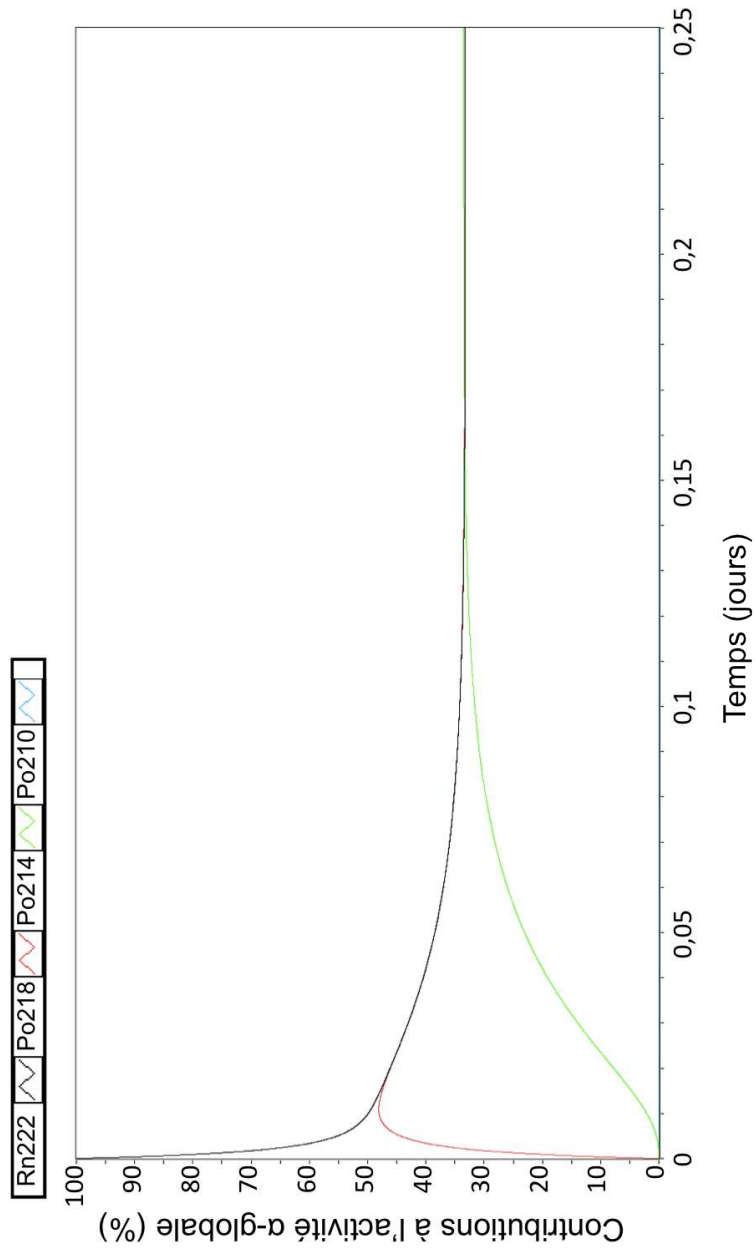


FIGURE C.6 – Evolution des contributions à l'activité  $\alpha$ -globale des émetteurs  $\alpha$  de la chaîne du  $^{222}\text{Rn}$  pendant six heures.

# Traitement des images

---

Cette annexe présente une méthode de traitement des images (matrice mettant en relation deux analyses des impulsions, comme la charge et le TTRm) dans l'objectif d'isoler les  $\alpha$ . Les graphiques présentés dans la littérature (Fig. 4.5) montrent la possibilité de ce type de traitement, mais les images obtenues (Fig. 5.42) n'en permettent pas l'application.

La méthode est en deux parties : détermination des zones d'une image puis identification comme étant  $\alpha$  ou  $\beta$ .

## D.1 Détermination des zones d'une image et désignation comme $\alpha$

L'algorithme de zonage est :

- Flou (Gauss) ;
- Seuillage (50%) ;
- Détection des contours (Algorithme de Laplace) ;
- Carte des distances morphologique ;
- Détection des lignes de crête (Algorithme de Sobel) ;
- Détermination des zones (Ecoulement).

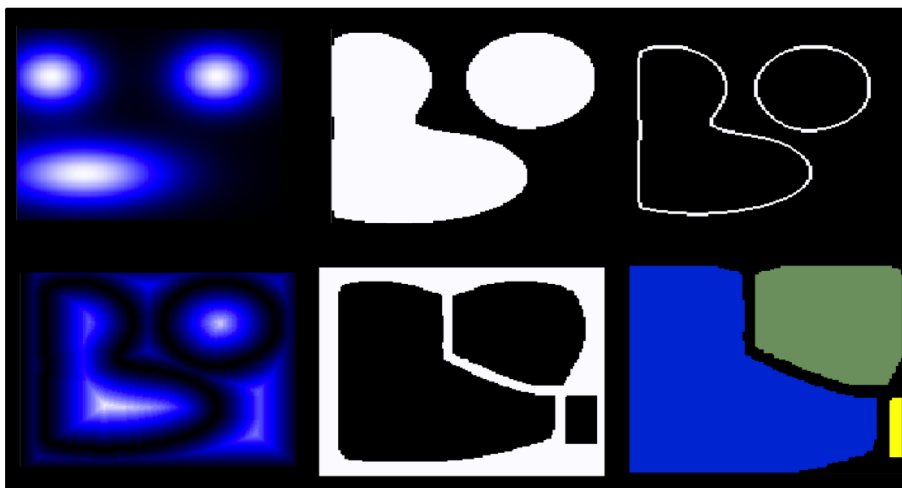


FIGURE D.1 – Six étapes de la méthode de détermination des zones d'une image.

Une fois les zones déterminées, on s'attend à avoir une forme quelconque pour les  $\beta$  et des formes plus-ou-moins circulaires pour les  $\alpha$ . Les zones sont donc comparées à un cercle défini par rapport à l'image et la zone est  $\alpha$  si les formes sont similaires.

L'algorithme est :

- Flou (Gauss) ;
- Seuillage (50%) ;
- Détection des contours (Algorithme de Sobel) ;
- Seuillage automatique ;
- Détection des cercles (Transformée de Hough) ;
- Calcul du volume d'une gaussienne définie par le cercle et comparaison avec l'intégrale de la zone.

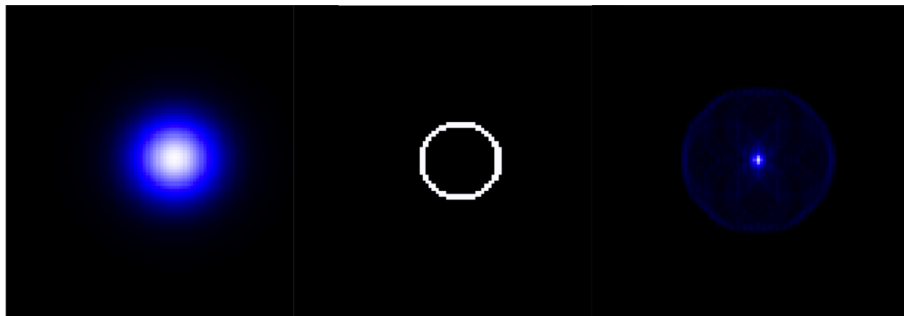


FIGURE D.2 – Trois étapes de la méthode de détermination des cercles d'une image.

## D.2 Algorithmes utilisés

### D.2.1 Méthodes matricielles

#### D.2.1.1 Matrice de Gauss (Flou)

La matrice de Gauss est un filtre passe-bas appliqué à l'image, résultant de la convolution entre l'image et une matrice dont les coefficients suivent une loi gaussienne, par exemple en dimension 3 :

$$\begin{bmatrix} 1 & 2 & 1 \\ 2 & 4 & 2 \\ 1 & 2 & 1 \end{bmatrix} \quad (\text{D.1})$$

L'image devient alors flou, ce qui permet d'atténuer les fluctuations des matrices issues de comptages.

#### D.2.1.2 Matrice de Laplace (Contours)

Cette matrice permet la détection des contours en faisant ressortir les grande variation dans l'image. La méthode de Laplace est la convolution entre l'image et la matrice, en dimension 3 :

$$\begin{bmatrix} 3 & 1 & 3 \\ 1 & -4 & 1 \\ 3 & 1 & 3 \end{bmatrix} \quad (\text{D.2})$$

Ceci agit un peu à la manière d'une dérivée et fait donc ressortir les variations brutales de couleur (valeur du point de l'image).

### D.2.1.3 Algorithme de Sobel (Contours)

La méthode de Sobel correspond en dimension 3 à l'opération suivante :

$$x_{i,j} = \left\{ \begin{array}{l} [(x_{i-1,j-1} - x_{i+1,j-1}) + 2 \cdot (x_{i-1,j} - x_{i+1,j}) + (x_{i-1,j+1} - x_{i+1,j+1})]^2 \\ + [(x_{i-1,j-1} - x_{i-1,j+1}) + 2 \cdot (x_{i,j-1} - x_{i,j+1}) + (x_{i+1,j-1} - x_{i+1,j+1})]^2 \end{array} \right\}^{1/2} \quad (\text{D.3})$$

Avec  $x_{i,j}$  la valeur du pixel à la position  $(i, j)$ .

Ceci agit aussi à la manière d'une dérivée et fait donc ressortir les variations brutales de couleur. Ainsi, cet algorithme permet de déterminer les lignes de crête d'une carte des distances morphologique, les maxima locaux de l'image.

## D.2.2 Transformée de Hough

La transformée de Hough permet la détection des caractéristiques d'éléments spécifiques dans une image. Cette transformée a été développée par Paul Hough en 1962 et brevetée par IBM. Dans le cas de la détection des cercles, il s'agit de déterminer le centre et le rayon d'un cercle dans une image binaire.

A chaque pixel blanc  $x_{i,j}$  est associé un cercle de rayon  $r$ . Sur une image vierge, chaque cercle défini incrémente la valeur des pixels par lequel il passe. La valeur la plus élevée parmi les pixels est conservée, ainsi que la position du pixel associé et  $r$ . Si la valeur la plus élevée parmi les pixels est supérieure à celle conservée, l'algorithme recommence avec une nouvelle valeur de  $r$ . Sinon, les valeurs précédentes sont utilisées et la position du pixel dont la valeur est la plus élevée correspond au centre du cercle et le rayon est celui fixé à l'itération conservée.

## D.2.3 Distance morphologique

Cet algorithme ne s'utilise que pour une image binaire des contours. Alors chaque pixel  $x_{i,j}$  prend pour valeur la distance minimale qui le sépare d'un pixel blanc. L'image résultante ressemble alors à une cartographie 3D d'un relief montagneux, avec ses monts et vaux.

Ceci est fait à l'aide d'un cercle dont le rayon croît au fur-et-à-mesure des itérations : si un point du cercle correspond à un pixel blanc, la distance correspond au rayon et on change de pixel.

### D.2.4 Ecoulement

Cet algorithme fonctionne sur une image binaire. Il s'agit d'une méthode récursive où chaque pixel se compare à ses voisins. En partant d'un pixel non traité, il teste les tous les pixels voisins et ceux qui sont de la même valeur lui sont listés et le pixel courant est marqué traité. Chaque élément de la liste est alors analysé de cette manière et quand la liste est vide, toute une zone est numéroté. On choisi un nouveau pixel non traité et la méthode recommence. Quand tous les pixels ont été traités, toutes les zones ont alors été définies.

# Table des figures

1.1	Classification des rayonnements en fonction des effets. La valeur 12,4 eV provient de la définition d'un rayonnement ionisant d'après le code de santé publique. . . . .	12
1.2	Energie d'ionisation de certaines couches atomiques en fonction du numéro atomique $Z$ [Lederer 1978]. . . . .	14
1.3	Section efficace différentielle de l'effet Compton en fonction de l'énergie du photon incident et de l'angle de diffusion. . . . .	15
1.4	Prédominance des interactions photon-matière en fonction du numéro atomique et de l'énergie des photons. . . . .	17
1.5	Double déflexion d'un $\alpha$ par collision avec les noyaux du gaz dans une chambre à brouillard. . . . .	18
1.6	Energies de liaison en fonction du nombre de nucléons. . . . .	18
1.7	Schéma de décroissance du $^{226}\text{Ra}$ [CEA 1999]. . . . .	20
1.8	Relation entre l'énergie de la particule $\alpha$ émise avec la période de l'émetteur. . . . .	21
1.9	Schéma de la barrière de potentiel [Evans 1961]. Les 8,57 MeV correspondent à l'énergie de la particule historiquement bombardée sur le noyau qui ne l'atteint pas, et les 4,27 MeV correspondent à l'énergie de l' $\alpha$ émis par l'atome bombardé. . . . .	22
1.10	Photographie d'une chambre à brouillard dans laquelle le trajet d'un $\beta$ est visible, courbé par un champ magnétique externe. . . . .	24
1.11	Schéma de décroissance du $^{60}\text{Co}$ [CEA 1999]. . . . .	26
1.12	La désintégration $\beta^-$ est le résultat de la transformation d'un neutron (udd) du noyau en un proton (uud) en passant par le boson $W^-$ . La désintégration $\beta^+$ est le résultat de la transformation d'un proton (uud) du noyau en un neutron (udd) en passant par le boson $W^+$ . . . . .	27
1.13	Fonctions de Fermi pour différents noyau en fonction de l'énergie cinétique du $\beta$ . Les transitions $\beta^-$ ont un facteur supérieur à 1, tandis qu'il est inférieur à 1 pour les transition $\beta^+$ . . . . .	29
1.14	Interaction des $\alpha$ avec un atome. . . . .	32
1.15	Pouvoir d'arrêt total du toluène pour les $\alpha$ par le logiciel ASTAR [Berger 2005]. . . . .	33
1.16	Dépôts d'énergie des $\alpha$ dans la matière selon le modèle de Mozunder et Magee [Mozunder 1966]. . . . .	34
1.17	Interactions possibles des $\beta$ avec un atome. . . . .	34
1.18	Pouvoir d'arrêt total du toluène pour les $\beta$ par le logiciel ESTAR [Berger 2005]. . . . .	35
2.1	Différentes utilisations d'un compteur à gaz en fonction de la tension appliquée. . . . .	39

2.2	Description des bandes de valence, interdite et de conduction pour un semi-conducteur. La largeur de la bande interdite correspond à $E_{gap}$ . . . . .	43
2.3	Schéma d'une jonction P-N pour un cristal de silicium dopés $P$ en anode et $N$ en cathode. . . . .	43
2.4	Schéma simplifié d'une chaîne de mesure pour la scintillation liquide. Les arêtes bleue représentent la chambre de détection avec un miroir et un photomultiplicateur et entre les deux la fiole de scintillation. En sortie de la chambre suivent les systèmes d'amplification (préamplificateur et amplificateur) puis des systèmes de traitements et analyses symbolisés ici par un ordinateur. . . . .	44
2.5	Exemple de molécules de solvant (Toluène) et soluté (PPO). . . . .	48
2.6	Etats de résonance du benzène. . . . .	49
2.7	Etats d'énergie S et T [Bransome 1970]. Les numéros correspondent aux transitions décrites dans le tableau 2.3. . . . .	49
2.8	Différents mécanismes d'excitation et désexcitation d'une molécule. . . . .	50
2.9	Schéma d'un exemple de photomultiplicateur. . . . .	54
2.10	Système de collection d'entrée [Knoll 1979]. . . . .	55
2.11	Quelques agencements de dynodes. (a) Structure linéaire focalisante. (b) Grille circulaire. (c) Store vénitien. (d) <i>Box-and-grid</i> . [Knoll 1979]	55
2.12	Exemple de d'impulsion due à un $\gamma$ d'un $^{241}\text{Am}$ mesurée sur un photomultiplicateur Crismatec XP2020 YAP(Ce) sous une HT de -950 V à l'aide d'un oscilloscope numérique. . . . .	56
2.13	Exemple d'efficacité quantique de différentes photocathodes [Knoll 1979]. . . . .	57
2.14	Influence de la tension dans la fenêtre 0-120 correspondant au pic de chimiluminescence sur notre Triathler. . . . .	58
2.15	Variation de la position du pic de chimiluminescence (Fig. 2.14) en fonction de la tension avec un ajustement en loi puissance, avec un coefficient de détermination $R^2$ à 99,244%. . . . .	59
2.16	Exemple de spectre d'électron unique [Dornic 2006]. . . . .	59
2.17	Schéma simplifié d'un préamplificateur (Ortec 113). . . . .	61
2.18	Illustration du réglage du pôle zéro. . . . .	62
2.19	Comparaison des modes linéaire et logarithmique du MCA avec un échantillon de $^3\text{H}$ en Filter Count pour un comptage de 30 min à 842 V sur le Triathler du GEA. . . . .	63
2.20	Schéma synoptique d'une chaîne de détection à scintillation. . . . .	63
2.21	Exemple de miroirs pour la scintillation liquide (Triathler) [Hidex b].	64
2.22	Schéma synoptique d'une chaîne de détection à scintillation en coïncidence. . . . .	65
2.23	Photographie de l'intérieur d'un détecteur. La chambre de détection et les phomultiplicateurs sont entourés d'une épaisseur de cuivre puis de plomb. On peut remarquer que le miroir de la chambre de détection est métallique et non blanc. . . . .	67

2.24	Schéma du blindage d'un compteur. Le blindage passif est composé en majorité de plomb et d'une couronne de cuivre. Le blindage actif est composé d'un scintillateur et des phomultiplicateurs $G$ entourant la chambre de détection avec les phomultiplicateurs $S$ . . . . .	67
2.25	Schéma synoptique d'une chaîne de détection à scintillation en coïncidence triple pour la TDCR. . . . .	68
3.1	Parcours des $\beta$ et des $\alpha$ dans du toluène (ASTAR et ESTAR – NIST) [Berger 2005]. . . . .	70
3.2	Spectre $\alpha/\beta$ ( $^{210}\text{Pb}$ - $^{210}\text{Bi}$ - $^{210}\text{Po}$ ), pic $\alpha$ ( $^{210}\text{Po}$ ) au canal 630, $\beta_{\text{max}}^{210}\text{Pb}$ au canal 380 et $\beta_{\text{max}}^{210}\text{Bi}$ au canal 800. Spectre réalisé sur le Quantulus du RaMsEs. . . . .	71
3.3	Quenching dans la chaîne de transfert en scintillation liquide. . . . .	72
3.4	Comparaison de quenchings de couleur et chimique sur un spectre [Packard]. On observe une diminution du nombre d'évènements due au quenching chimique et un décalage vers les basses énergies par le quenching de couleur. . . . .	73
3.5	Spectre standard et spectre standard externe transformé du $^{133}\text{Ba}$ [Kessler 1989]. . . . .	74
3.6	Mesure de l'influence de l'ajout de 0,5 mL d'éthanol sur un spectre de $^{239}\text{Pu}$ , avec un décalage vers les basses énergies, sans influence sur le taux de comptage $\alpha$ dans la fenêtre [450 ; 950] (Triathler du GEA). . . . .	76
3.7	Variation du tSIE en fonction de la quantité de couleur incorporée (en pourcentage de surface de frottis colorée). . . . .	77
3.8	Spectres d'absorption RGBB mesurés au GEA en relation avec le spectre d'émission d'une molécule scintillante, le POPOP. . . . .	78
3.9	Mesure de l'influence de la température dans les fenêtres A et C à l'aide d'un échantillon de $^3\text{H}$ - $^{239}\text{Pu}$ en Filter Count compté par répétition de 5 min pendant 24 h sur le Triathler. . . . .	79
3.10	Variation du tSIE en fonction de la quantité de poussière. . . . .	80
3.11	Variation de l'indicateur de quenching (tSIE) pour chaque échantillon de frottis sale en fonction du temps de décantation depuis le premier comptage. Les courbes tracées sont pour faciliter la lecture. . . . .	81
3.12	Exemple d'un spectre $^3\text{H}/^{239}\text{Pu}$ sur le Triathler où les deux zone $\beta$ et $\alpha$ sont identifiables et définies. . . . .	81
3.13	Exemple de spectres $^3\text{H}$ et $^{14}\text{C}$ sur le TriCarb. . . . .	82
3.14	Détermination de la fenêtre A ( $^3\text{H}$ ) par variation simultanée de deux facteurs de mérite (cinquième et dernière itération). La fenêtre ainsi déterminée est [176 ; 277]. . . . .	83
3.15	Exemple d'un spectre $^3\text{H}/^{239}\text{Pu}$ sur le Triathler avec les trois fenêtres A, B et C. . . . .	84
3.16	Schéma du protocole de mesure. . . . .	86



3.17	Exemple d'une matrice donnée par le Triathler pour aider à la détermination du PLI. La source ( $5, 2 \pm 0, 26$ Bq de $^{60}\text{Co}$ et $2, 5 \pm 0, 08$ Bq de $^{239}\text{Pu}$ en Filter Count) est dans deux conditions : à gauche dans des conditions idéales, et à droite avec 0,2 mL d'éthanol et un quenching bleu. La figure de gauche montre un petit cercle $\alpha$ et un « trait » horizontal $\beta$ , les deux zones n'étant pas clairement séparées. La figure de droite présente ces deux même zones, mais celle $\alpha$ est plus claire (moins définie) et une zone oblique est apparue, mettant un terme définitif à toute tentative de discrimination. . . . .	89
3.18	Détermination du temps de mesure par rapport aux limites de détection $\alpha$ et $\beta$ . Les deux courbes mettant en relation le temps de comptage avec la limite de détection pour les deux fenêtres A et C sont à comparer avec les limites de de transport et de contamination définies par la norme pour les deux types de rayonnements [NF ISO 7503]. Une mesure de 300 s permet donc largement de déterminer la transportabilité d'un colis, et une mesure de 1 100 s en assure la non contamination. . . . .	90
3.19	Spectre $\alpha/\beta$ avec un $\alpha$ ( $^{239}\text{Pu}$ ) bien défini (Echantillon SI1, Tab. 3.12)	94
3.20	Spectre $\alpha/\beta$ avec un $\alpha$ invisible (Echantillon SI7, Tab. 3.12). . . . .	94
3.21	Exemple d'ajustements avec un polynôme de degré 3 (Echantillon SI3, table 3.12). . . . .	95
3.22	Spectre de référence $\beta$ ( $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ ). . . . .	97
3.23	Exemple de spectre $\alpha/\beta$ avec un spectre $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ de référence. Ce dernier est ajusté en nombre de coups par les deux zones garanties sans $\alpha$ , et en même temps ajustés par homothétie à partir des fins des spectres. . . . .	98
3.24	Temps de comptage en fonction du fond $\beta$ pour différentes limites de détection $a^\#$ . . . . .	99
4.1	Illustration des profils d'impulsion $\alpha/\beta$ . . . . .	102
4.2	Forme des impulsions $\alpha$ et $\beta$ pour un cocktail de scintillation PC/PPO (1,5 g/L), mesures issues de Borexino [Ranucci]. . . . .	104
4.3	Filtre passe-bas puis différentiation en place dans un Tri-Carb [Passo 1994][Aupiais 1997]. . . . .	105
4.4	TR-PDA [Passo 2002] ( <i>Time resolved pulse decay analysis</i> ). Méthode alliant une analyse temporelle à la discrimination, ce qui permet de différencier les évènements du fond des vrais évènements $\beta$ . . . . .	105
4.5	Graphique bi-paramétrique issu d'une mesure de $^{222}\text{Rn}$ avec le Triathler par les équipes d'Hidex. L'abscisse représente l'amplitude des impulsions et l'ordonnée représente la charge. Le facteur de discrimination (PLI) est donné par la ligne horizontale. [Hidex a]. . . . .	106
4.6	Graphique schématique bi-paramétrique comparant l'intégrale de la traîne de l'impulsion et l'intégrale totale [Pates 1994]. . . . .	107
4.7	Taux d'interférence pour deux sources $^{241}\text{Am} + ^{40}\text{K}$ de 10 et 100 Bq.	109

4.8	Taux d'interférence pour deux sources $^{241}\text{Am} + ^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ de 10 et 100 Bq. . . . .	109
4.9	Définition des fenêtres $N_1$ et $N_2$ sur un spectre $\alpha/\beta$ ( $^{210}\text{Pb}$ , $^{210}\text{Bi}$ et $^{210}\text{Po}$ ). . . . .	112
4.10	Courbes de $\tau(x)$ pour deux simulations mêlant 1000 évènements $\alpha$ à 500 000 évènements $\beta$ : la première idéale, la seconde bruitée par bruit blanc gaussien autour de la valeur du nombre de coups ( $(\mathcal{G}(\mathcal{N}(\xi), \sqrt{\mathcal{N}(\xi)}))$ ). Le nombre d'évènements $\beta$ est divisé par deux à chaque facteur de discrimination à partir de 90, de même pour les $\alpha$ à partir de 126. La première figure (idéale) donne $N_\alpha(x_{min} = 160) = 0.04 \pm 0.002$ et $N_\alpha(x_{odp} = 128) = 1000 \pm 40$ ; la seconde figure (bruité) donne $N_\alpha(x_{min} = 140) = 264 \pm 11$ et $N_\alpha(x_{odp} = 129) = 1000 \pm 40$ . . . . .	114
4.11	Exemple de courbes de $\tau(x)$ dans le cas d'un liquide scintillant est adapté pour la discrimination $\alpha/\beta$ (Ultima Gold AB). Le facteur de discrimination présenté est celui du TriCarb. . . . .	115
4.12	Histogramme de 100 000 tirages aléatoires de $\tau(x)$ pour un $x$ fixé, ajusté par une loi normale. . . . .	119
4.13	Profils de la distribution du facteur de discrimination pour quatre sources différentes sur trois appareils, pour 10 000 tirages. . . . .	119
4.14	Profils de la distribution du nombre de coups pour quatre sources différentes sur trois appareils, pour 10 000 tirages. . . . .	120
4.15	Courbes de $\tau(x)$ avec les points de mesure, l'interpolation par splines cubiques et les points de mesures supplémentaires, compatible avec l'interpolation. . . . .	121
4.16	Comparaison des valeurs du facteur de discrimination obtenues par différents utilisateurs confrontés à différentes sources de mélange $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y} - ^{239}\text{Pu}$ . Le facteur de discrimination est en moyenne de $128 \pm 3$ ns. . . . .	122
4.17	Application de la MLB sur différents sets de mesures pour un même échantillon, en comparant les valeurs du facteur de discrimination. . . . .	123
4.18	Application de la MLB sur différents sets de mesures pour un même échantillon ( $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y} - ^{239}\text{Pu}$ ), en comparant les efficacités de comptage. La valeur du facteur de discrimination théorique a été déterminée à partir de sources étalons $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ et de $^{239}\text{Pu}$ . . . . .	124
4.19	Ensemble des valeurs du facteur de discrimination trouvées par différents utilisateurs confrontés à différentes sources. . . . .	125
4.20	Spectre en énergie d'un comptage par spectrométrie $\gamma$ d'une source d'eau de $500 \text{ cm}^3$ contenant du gaz $^{222}\text{Rn}$ issu d'une source de $^{226}\text{Ra}$ , comptée pendant 23 700 s . . . . .	126
4.21	Courbe $\tau(x)$ pour la source de $^{222}\text{Rn}$ , comptée pour huit facteurs de discrimination pendant 180 minutes chacun, sur un Quantulus. . . . .	126
4.22	Spectres discriminés pour la source de $^{222}\text{Rn}$ , comptée pendant 180 minutes chacun, sur un Quantulus. . . . .	127

4.23	Spectre $\alpha$ de la source de $^{222}\text{Rn}$ dont les trois premiers $\alpha$ sont ajustés par des gaussiennes. . . . .	128
4.24	Résultats de comptage pour la source d'intercomparaison, avec les intervalles à 5% et 15% par rapport à la valeur assignée. . . . .	130
4.25	Résultat pour échantillon de 5, $18 \pm 0, 13\text{Bq}$ de $^{60}\text{Co}$ et 2, $54 \pm 0, 04\text{Bq}$ de $^{239}\text{Pu}$ dans 20 mL de Filter Count. La courbe de $\tau(x)$ présente deux pentes significative d'un liquide scintillant inadapté pour la discrimination $\alpha/\beta$ . La matrice est issue du Triathler montre une tache sombre aux canaux [45 ; 50] correspond aux $\alpha$ du $^{239}\text{Pu}$ et la ligne sombre aux $\beta$ : cette forme matricielle illustre la non séparabilité des deux types d'événements. . . . .	131
4.26	Spectre $\alpha$ au facteur de discrimination 120 ns (TriCarb) pour la source d'intercomparaison IRSN EIL 93SH300 de 2008. . . . .	132
4.27	Comparaisons des résultats expérimentaux et les calculs théoriques. L'emport d'acide est bien de 0%. . . . .	134
5.1	Forme des impulsions simulées pour une sommes de deux exponentielles (Eq. 5.4). . . . .	141
5.2	Spectre en tension des signaux simulés. . . . .	142
5.3	Spectre de la charge des signaux simulés. . . . .	143
5.4	Spectre en charge des signaux simulés normalisés par leurs amplitudes. . . . .	143
5.5	Spectre des signaux simulés, analysés selon la méthode <i>Tail-to-total ratio</i> . . . . .	144
5.6	Spectre des signaux simulés, analysés selon la méthode pseudo- <i>Tail-to-total ratio</i> . . . . .	144
5.7	Fonction poids de la méthode de Gatti calculée à partir des signaux de référence 5.1. . . . .	145
5.8	Spectre des signaux simulés, analysés selon la méthode de Gatti. . . . .	145
5.9	Spectre des signaux simulés, analysés selon la méthode de Yousefi. . . . .	146
5.10	Spectre des signaux simulés, analysés par ajustement du signal pour obtenir le paramètre $R$ (Eq. 5.5). On note deux pics rouges ( $\alpha$ ) dus aux erreurs d'ajustement. . . . .	146
5.11	Réponse spectrale typique du photomultiplicateur 9111B [9111B]. . . . .	148
5.12	Exemple d'impulsions enregistrées en sortie d'un photomultiplicateur, avec des sources $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ et $^{241}\text{Am}$ , après redressement et soustraction de la ligne de base. . . . .	148
5.13	Photographie vue de haut de la chambre de détection du montage. On y voit le support en plastique avec les deux petits photomultiplicateurs à $2\pi/3$ le traversant, les cartes électroniques fixées à leurs bases et une partie du blindage de plomb entourant la chambre. . . . .	149
5.14	Spectre de tension maximale pour une alimentation fixée 1000 V. Les deux points hors échelle à 200 mV (Blanc) et 660 mV ( $^{239}\text{Pu}$ ) sont des artefacts. On voit aussi le seuil à 20 mV en deçà duquel aucun coup n'est enregistré. . . . .	150

5.15	Exemple de signal issu du second montage, le premier pour la discrimination. . . . .	152
5.16	En haut le schéma de l'étage pont et préamplification et en bas le schéma électrique de l'étage d'amplification. Les condensateurs encadrés C16 et C9 sont ceux responsables des overshoot. . . . .	152
5.17	Spectre en tension des sources G0 et G1 (Tab. 5.1). . . . .	153
5.18	Spectre en charge des sources G0 et G1 (Tab. 5.1). . . . .	154
5.19	Spectre du rapport charge sur tension des sources G0 et G1 (Tab. 5.1). . . . .	154
5.20	Spectre en TTR des sources G0 et G1 (Tab. 5.1). . . . .	155
5.21	Spectre en TTRm des sources G0 et G1 (Tab. 5.1). . . . .	155
5.22	Spectre selon le paramètre de Gatti des sources G0 et G1 (Tab. 5.1). . . . .	156
5.23	Spectre selon le paramètre R de l'ajustement des impulsions des sources G0 et G1 (Tab. 5.1). . . . .	156
5.24	Spectre selon le paramètre de Yousefi des sources G0 et G1 (Tab. 5.1). . . . .	157
5.25	Spectre du nombre de post-impulsion des sources G0 et G1 (Tab. 5.1). . . . .	157
5.26	Représentation du second montage réalisé au GEA avec une USB Wave Catcher V6 prêtée par le LAL. . . . .	158
5.27	Copie d'écran du logiciel pilotant l'ADC USB Wave Catcher V6, développé par le LAL/IRFU. . . . .	159
5.28	Spectre en charge d'une source de 1 Bq de $^{239}\text{Pu}$ par rapport au bruit de fond. . . . .	160
5.29	Spectre en tension des sources G0 et G1 (Tab. 5.1). . . . .	161
5.30	Spectre en charge des sources G0 et G1 (Tab. 5.1). . . . .	161
5.31	Spectre du rapport charge sur tension des sources G0 et G1 (Tab. 5.1). . . . .	162
5.32	Spectre en TTR des sources G0 et G1 (Tab. 5.1). . . . .	162
5.33	Spectre en TTRm des sources G0 et G1 (Tab. 5.1). . . . .	163
5.34	Spectre selon le paramètre de Gatti des sources G0 et G1 (Tab. 5.1). . . . .	163
5.35	Spectre selon le paramètre R de l'ajustement de la forme des impulsions des sources G0 et G1 (Tab. 5.1). . . . .	164
5.36	Spectre selon le paramètre de Yousefi des sources G0 et G1 (Tab. 5.1). . . . .	164
5.37	Spectre du nombre de post-impulsions des sources G0 et G1 (Tab. 5.1). . . . .	165
5.38	Spectres bidimensionnels de la source G1 (rouge) mettant en relation la charge et le TTRm pour deux comptages avec et sans scotch, par rapport au bruit de fond (bleu). Nous pouvons observer un décalage vers la droite et le haut de la tache $\alpha$ . . . . .	166
5.39	Spectres $\alpha$ des trois sources $\beta$ (Tab. 5.1) selon le TTRm, normés à 1 puis par $n$ pour la lisibilité. . . . .	169
5.40	Spectre moyen $\alpha$ des trois sources $\beta$ (Tab. 5.1) selon le TTRm, ajusté par une fonction composée de deux gaussiennes et d'une exponentielle (Eq. 5.9). . . . .	170
5.41	Exemple de graphe 3D issu de simulations mettant en relation trois paramètres de discrimination (TTRm, Gatti et Yousefi). La forme ovoïde verte correspond aux $\alpha$ , la traînée rouge aux $\beta$ et les quelques points noirs sont les $\beta$ comptés comme des $\alpha$ . . . . .	171

5.42	Graphique biparamétrique mettant en relation la charge et le paramètre de Gatti pour la source G4 (Tab. 5.1 - $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y} + ^{239}\text{Pu}$ ) comptée sur le second montage. Les $\alpha$ sont ici bien visibles et apparaissent dans l'encadrement [2 ; 9] selon le paramètre de Gatti et [2000 ; 6000] selon la charge. . . . .	172
5.43	Graphique 3D issu des mesures du premier montage mettant en relation trois paramètres de discrimination (Charge, TTRM et Yousefi). La forme ovoïde verte est formée des $\alpha$ , les traînées rouge et bleu sont faites de $\beta$ et les quelques points noirs sont les $\beta$ comptés comme des $\alpha$ . Malgré ces quelques coups vraisemblablement mal classés, le rendement $\alpha$ attendu est retrouvé : $99,0\% \pm 7,8\%$ . . . . .	174
5.44	Signaux moyens $\alpha$ et $\beta$ résultant de la discrimination multicritère des deux montages à partir de la source G1. . . . .	175
5.45	Graphique mettant en relation les deux premiers axes principaux d'une ACP de la source G1 (rouge). Une tache $\alpha$ est identifiable dans une fenêtre [2000 ; 6000] selon l'axe 1 et [-250 ; 100] selon l'axe 2.	176
5.46	Graphique mettant en relation les deux premiers axes principaux d'une ACP de la source G1 (rouge) par rapport au bruit de fond (bleu). . . . .	176
5.47	Ajustement d'une impulsion par deux exponentielles au moyen de l'algorithme de Levenberg-Marquardt (Calcul de 25 ms avec 156 appels de la fonction d'ajustement, pour un résidu final de $2,08 \cdot 10^{-4}$ ). . . . .	178
5.48	Densité de probabilité $\alpha$ et $\beta$ pour le paramètre $A_1$ de l'ajustement par deux exponentielles (Eq. 5.5). . . . .	180
5.49	Densité de probabilité $\alpha$ et $\beta$ pour le paramètre $\tau_1$ de l'ajustement par deux exponentielles (Eq. 5.5). . . . .	180
5.50	Densité de probabilité $\alpha$ et $\beta$ pour le paramètre $A_2$ de l'ajustement par deux exponentielles (Eq. 5.5). . . . .	181
5.51	Densité de probabilité $\alpha$ et $\beta$ pour le paramètre $\tau_2$ de l'ajustement par deux exponentielles (Eq. 5.5). . . . .	181
5.52	Mise en vis-à-vis des paramètres $A_1$ et $\mu$ de l'ajustement par deux exponentielles (Eq. 5.5). . . . .	182
5.53	Mise en vis-à-vis des paramètres $A_2$ et $\tau_2$ de l'ajustement par deux exponentielles (Eq. 5.5), pour les deux rayonnements . . . . .	183
A.1	Distribution des résultats de comptage par rapport à une loi de Laplace-Gauss, ou gaussienne. . . . .	191
B.1	Face avant du logiciel pour l'exploitation des spectres MLB . . . . .	197
B.2	Fenêtre surgissante pour l'importation des fichiers de mesures . . . . .	198
C.1	Schéma de décroissance du $^{90}\text{Sr}$ et de son fils le $^{90}\text{Y}$ [CEA 1999]. . . . .	201
C.2	Evolution du rapport des activités de $^{90}\text{Y}$ sur $^{90}\text{Sr}$ pendant 24 jours avec un nombre d'atomes initial de $^{90}\text{Y}$ nul. . . . .	202

---

C.3	Evolution des activités de $^{90}\text{Sr}$ et $^{90}\text{Y}$ pendant 24 jours avec un nombre d'atomes initial de $^{90}\text{Y}$ nul. . . . .	203
C.4	Schéma de décroissance principal du $^{222}\text{Rn}$ [CEA 1999]. . . . .	204
C.5	Evolution des activités de la chaîne du $^{222}\text{Rn}$ pendant une semaine. . . . .	205
C.6	Evolution des contributions à l'activité $\alpha$ -globale des émetteurs $\alpha$ de la chaîne du $^{222}\text{Rn}$ pendant six heures. . . . .	206
D.1	Six étapes de la méthode de détermination des zones d'une image. . . . .	207
D.2	Trois étapes de la méthode de détermination des cercles d'une image. . . . .	208



# Liste des tableaux

1.1	Masse, moment magnétique et section efficace des neutrinos [Beringer 2012]. . . . .	25
1.2	Classification des transitions $\beta$ . . . . .	30
2.1	Caractéristiques de quelques semi-conducteurs utilisés pour la détection des particules. Les caractéristiques présentées sont le nombre de charge $Z$ , la masse volumique $\rho$ , le hauteur de la bande interdite $E_{gap}$ , la mobilité des électrons $\mu_e$ et des trous $\mu_t$ et la résistivité $r$ . . . . .	42
2.2	Caractéristiques de quelques scintillateurs utilisés pour la détection des particules [L'Annunziata 2003]. Les caractéristiques présentées ici sont la masse volumique $\rho$ , l'indice $n$ du matériau à la longueur d'onde $\lambda$ du maximum d'émission, le rendement relatif par rapport à un cube de 2 pouces de côté de NaI(Tl) et $\tau$ la constante de temps de décroissance (composante lente le cas échéant). . . . .	45
2.3	Évolution des états de plus basses énergies $S_1$ et $T_1$ dans un système à deux composants [Voltz 1968]. Les états $S$ et $T$ correspondent aux états singulets et triplets, $F$ correspond aux états passant par les mécanismes de Förster. . . . .	51
2.4	Indice de réfraction $n$ de quelques matériaux. . . . .	65
3.1	Rendement $^3\text{H}$ $\eta_{^3\text{H}}$ et $\alpha$ $\eta_\alpha$ en fonction de la quantité d'éthanol ajoutée $V_{C_2H_5OH}$ (Triathler du GEA). Le facteur $k$ est le facteur d'élargissement pour l'expression des incertitudes (Cf. annexe A). . . . .	76
3.2	Masse de colorant $m_c$ utilisé pour la spectrométrie ainsi que facteur de pondération $f_c$ , en correspondance avec $\overline{A_p}$ , la valeur d'absorbance moyenne pondérée par la masse de colorant et par l'absorbance moyenne dans le visible et l'indicateur de quenching tSIE. . . . .	78
3.3	Paramétrage des fenêtres pour le Triathler. . . . .	84
3.4	Solubilité ou temps de dissolution pour différentes combinaisons de frottis et de cocktail de scintillation. . . . .	86
3.5	Bruits de fond moyens ( $s^{-1}$ ) pour la détermination de la matrice de comptage (filtre, liquide scintillant et fiole). . . . .	87
3.6	Rendement dans les trois fenêtres de quelques émetteurs $\beta$ communs, déterminé sur le Triathler. . . . .	87
3.7	Rendement utilisé en fonction des combinaisons de fenêtres dans lesquelles des coups sont détectés. Le $X$ correspond à une définition non relevante. . . . .	88
3.8	Comparaison de la mesure alpha d'un frottis par compteur proportionnel (NU20) et scintillation liquide (Triathler et TriCarb). . . . .	89



3.9	Tests de répétabilité (Bruit de fond moyen $\mu$ ( $s^{-1}$ ) et incertitudes associés $u$ (mesurée et expérimentale)) (* Blindage de plomb ajouté autour détecteur). La définition des fenêtres est pour rappel donnée par le tableau 3.3. . . . . .	91
3.10	La liste des sources utilisées. . . . .	91
3.11	Tests de reproductibilité (Taux de comptage moyen $\mu$ ( $s^{-1}$ ) et incertitudes associés $u$ (mesurée et expérimentale)) sur quatre sources (Tab. 3.10) et deux lieux avec des comptage de cinq répétitions. . . . .	92
3.12	Echantillons utilisés pour l'ajustement des pics $\alpha$ classés en fonction du rapport de l'activité $\beta$ sur celle $\alpha$ . . . . .	93
3.13	Résultats des rendements $\alpha$ pour les ajustements des fonds (bruit et $\beta$ ) sous différents pics $\alpha$ par des polynômes de degré 1, 2 et 3. . . . .	94
3.14	Limites de détection ( $a^\#$ ) d'après les ajustements du fond $\beta$ sous les pics $\alpha$ par rapport aux temps de comptage ( $t$ ). Bien que la limite de détection puisse être définie, seuls les rendements des quatre premières sources ont été retrouvés (Tab. 3.13).. . . . .	96
4.1	Constantes du modèle de Borexino pour les impulsions $\alpha$ et $\beta$ (Eq. 4.6) [Ranucci]. $\tau$ en nanoseconde et $q$ en Coulomb. . . . .	103
4.2	Echantillons de référence pour les essais de discrimination $\alpha/\beta$ - Cocktail A : 10 mL Ultima Gold LLT + 10 mL eau des Abatilles; Cocktail B : 10 mL Ultima Gold AB + 10 mL eau des Abatilles. . . . .	110
4.3	Rendement $\alpha$ ( $\eta$ ) des échantillons de référence (Tab. 4.2) pour des valeurs de facteur de discrimination ( $fd$ ) mesuré sur le TriCarb et le Triathler. . . . .	111
4.4	Résultats de comptage du panel (Tab. 4.2) en utilisant la méthode de variation du facteur de discrimination avec recherche du minimum. . . . .	113
4.5	Résultats de comptage utilisant la méthode de variation du facteur de discrimination avec la MLB. . . . .	116
4.6	Facteurs de discrimination estimés par tirages aléatoires (10 000) pour les quatre sources de référence (Tab. 4.2). . . . .	120
4.7	Activités estimées par tirages aléatoires (10 000) pour les quatre sources de référence (Tab. 4.2), par rapport aux activités et incertitudes calculées. . . . .	121
4.8	Définition des sources de $^{137}\text{Cs}$ - $^{244}\text{Cm}$ pour les cinq répétitions, avec le facteur de discrimination déterminé par la MLB. . . . .	124
4.9	Activités relatives des descendants du $^{222}\text{Rn}$ après un apport unique à $t=0$ de 1 Bq de $^{222}\text{Rn}$ , au temps $t = 216\,780$ s. La méthode de calcul est détaillée en annexe C. . . . .	127
4.10	Masses et identifications des aliquotes issues de la source d'intercomparaison EIL CETAMA 2008, solution C. . . . .	128
4.11	Résultats des mesures des cinq échantillons, avec la moyenne des mesures et les résultats de la somme des spectres. . . . .	129
4.12	Valeurs de référence pour la source d'intercomparaison CETAMA C. . . . .	129

4.13	Valeurs de référence pour la source d'intercomparaison IRSN 93 SH 300 (1 <sup>er</sup> avril 2008) et valeurs mesurées. . . . .	132
4.14	Résultat d'une mesure d'évaporation. . . . .	133
4.15	Caractéristiques des sources pour la mesure de l'impact de l'acidification des sources. Sources avec 5 mL de solution pour 15 mL d'Ultima Gold AB, puis résultats pour la mesure de l'impact de l'acidification des sources. Sources avec 5 mL de solution pour 15 mL d'Ultima Gold AB, avec un facteur de concentration calculé sur la base d'un pH de 2,5 pour une source non concentrée. . . . .	134
5.1	Définition des sources étalons utilisées, avec 15 mL d'Ultima Gold AB, le minimum de source de façon à minimiser le quenching et le complément à 20 mL en eau des Abatilles. . . . .	147
5.2	Taille d'une impulsion en fonction de la durée voulue. . . . .	151
5.3	Résultats des comptages pour la source G1, ôtés du bruit de fond G0, selon les neuf analyses pratiquées, donnant le rendement $\eta_\alpha$ , attendue à 100% pour les $\alpha$ , et la limite de détection $a^\#$ . . . . .	153
5.4	Résultats des comptages pour la source G1, ôtés du bruit de fond G0, selon les neuf analyses pratiquées, donnant le rendement $\eta_\alpha$ , attendue à 100% pour les $\alpha$ , et la limite de détection $a^\#$ . . . . .	165
5.5	Paramètre $\Delta$ de distinction entre les deux pics d'un ajustement gaussien des spectres de discrimination. . . . .	167
5.6	Classement des méthodes de discrimination suivant le paramètre $\Delta$ de distinction entre les deux pics d'un ajustement gaussien des spectres de discrimination et son incertitude (Tab. 5.5). . . . .	167
5.7	Limites de détection (LD) des différentes analyses, par comparaison avec les résultats de la section précédente, données pour 24h de comptage. . . . .	168
5.8	Simulation de 2001 événements $\alpha$ et $\beta$ , analysés puis triés selon la méthode multicritère par encadrement des $\alpha$ . La première colonne donne le nombre exact d'évènements simulés de chaque type. Les cinq colonnes suivantes présentes une discrimination par seuil. L'avant dernière, « total », montre le nombre d'évènements déterminé comme $\alpha$ ou $\beta$ par le multicritère. Comme chaque évènement est déterminé à sa création, on peut connaître le nombre d'évènements mal classé. . . . .	172
5.9	Rendements $\alpha$ mesurés par une détermination monocritère (Tension + critère) puis multicritère pour les mesures de la source G2 (Tab. 5.1 - $^{239}\text{Pu}$ ) faites sur le premier montage. . . . .	173
5.10	Résultats pour les sources contenant des $\alpha$ définies en 5.1 par la méthode multicritère par encadrement. . . . .	173
5.11	Paramètres initiaux et leur limite pour l'algorithme LM, pour des signaux normés en entrée à 1. . . . .	177
5.12	Paramètres définis par l'algorithme LM pour le signal donné en exemple (Fig. 5.47). . . . .	178

---

5.13	Valeurs moyennes des différents paramètres avec leur écart-type pour les deux types de rayonnement $\alpha$ et $\beta$ . . . . .	179
5.14	Valeurs de l'ajustement par l'équation 5.11 pour les deux zones $\alpha$ et $\beta$ de la figure 5.53. . . . .	183
5.15	Constantes du modèle du Borexino pour les impulsions $\alpha$ et $\beta$ [Ranucci] (en haut), par rapport à celles obtenues avec le second montage au GEA. Les paramètres sont estimés à partir des moyennes des résultats d'ajustements par l'algorithme LM sur les impulsions discriminées en multicritère par encadrements. . . . .	184

# Liste des abréviations

$\alpha$	Constance de structure fine (1/137)
$\beta$	Vitesse relative ( $v/c$ )
$\mathcal{N}_A$	Nombre d'Avogadro ( $6,022\ 1415(10) \cdot 10^{23} \text{ mol}^{-1}$ )
$\varepsilon_0$	Permittivité du vide ( $8,854\ 187\ 187 \dots \cdot 10^{-12} \text{ F.m}^{-1}$ )
$\eta(f)$	Rendement de la source étalon dans la fenêtre $ff$ définie sur le spectre total
$\gamma$	Facteur de Lorentz ( $\gamma = 1/\sqrt{1 - \beta^2}$ )
$\hbar$	Constante de Planck réduite ( $h/2\pi \text{ J.s}$ )
$\mu_l$	Coefficient d'atténuation linéaire
$\mu_m$	Coefficient d'atténuation linéaire massique
$\overline{A}_p$	Absorbance moyenne pondérée par la masse de colorant et par l'absorbance moyenne dans le visible
$\Phi(x)$	Flux de photon après la traversée d'un matériau d'épaisseur $x$
$\Phi_0$	Flux de photon incident
$\rho$	Masse volumique ( $\text{g.m}^{-3}$ )
$\Sigma$	Section efficace totale macroscopique
$\sigma_c$	Section efficace Compton
$\sigma_{KN}$	Section efficace Compton par la formule de Klein-Nishina en fonction de l'énergie du photon incident et de l'angle d'incidence
$\sigma_{pe}$	Section efficace photoélectrique
$\sigma_p$	Section efficace de création de paire
$\sigma_{th}$	Section efficace de Thomson ( $\frac{8}{3}\pi r_e^2 = 0,665 \text{ b}$ )
$\tau(x)$	Fonction caractéristique de la MLB
$A$	Nombre de masse de l'atome
$a^\#$	Limite de détection, aussi LD
$B_\alpha$	Energie de liaison de la particule $\alpha$
$E_0$	Energie au repos de l'électron ( $m_e c^2 = 511 \text{ keV}$ )
$E_\gamma$	Energie du $\gamma$
$E_e$	Energie cinétique de l'électron
$E_r$	Energie de recul de l'atome

---

$E_{gap}$	Hauteur de la bande interdite
$F_m(f)$	Facteur de mérite pour la fenêtre $f$ définie sur le spectre total
$h$	Constante de Planck ( $6,626\ 0693(11).10^{-34}$ J.s)
$H_{if}$	Elément de matrice de transition
$I$	Potentiel d'ionisation du matériau (eV)
$k$	Facteur d'élargissement pour le rendu des incertitudes
$k_B$	Constante de Boltzmann ( $8,617\ 343(15).10^{-5}$ eV.K <sup>-1</sup> )
$kB$	Paramètre caractéristique du scintillateur, compris généralement entre $5.10^{-3}$ et $1,8.10^{-3}$ g.MeV <sup>-1</sup> .cm <sup>-2</sup>
$M$	Masse molaire (g.mol <sup>-1</sup> )
$m(E)$	Nombre moyen de photons émis en fonction de l'énergie $E$ absorbée par le scintillateur
$Q$	Chaleur de réaction
$r_0(f)$	Taux de comptage du blanc dans la fenêtre $f$ définie sur le spectre total
$r_e$	Rayon classique de l'électron (2,28 fm)
$r_{0\alpha}$	Taux de comptage du blanc dans la fenêtre $\alpha$
$r_{0\beta}$	Taux de comptage du blanc dans la fenêtre $\beta$
$r_{0T}$	Taux de comptage du blanc dans la fenêtre totale
$r_{S\alpha,\alpha}$	Taux de comptage de la source d'étalonnage $\alpha$ dans la fenêtre $\alpha$
$r_{S\alpha,\beta}$	Taux de comptage de la source d'étalonnage $\alpha$ dans la fenêtre $\beta$
$r_{S\alpha,T}$	Taux de comptage de la source d'étalonnage $\alpha$ dans la fenêtre totale
$r_{S\beta,\alpha}$	Taux de comptage de la source d'étalonnage $\beta$ dans la fenêtre $\alpha$
$r_{S\beta,\beta}$	Taux de comptage de la source d'étalonnage $\beta$ dans la fenêtre $\beta$
$r_{S\beta,T}$	Taux de comptage de la source d'étalonnage $\beta$ dans la fenêtre totale
$T_e$	Energie de l'électron
$U(X)$	Incertitude élargie de la variable $X$ , telle que $U(X) = ku(X)$
$u(X)$	Incertitude de la variable $X$
$U_l$	Energie de liaison de l'électron
$u_{rel}(X)$	Incertitude relative de la variable $X$
$Z$	Nombre de charge de l'atome
MCA	<i>Multi Channel Analyser</i>

---

MCA	<i>Multi Channel Analyser</i>
MLB	Méthode de la ligne brisée
PDD	<i>Pulse Decay Discriminator</i> - facteur de discrimination du TriCarb
PIA	<i>Post Impulsion Analysis</i>
PLI	<i>Pulse Length Index</i> - Facteur de discrimination sur le Triathler MLT
POPOP	1,4-bis[5-phényloxazol-2-yl]benzène - Scintillateur secondaire
PPO	2,5-diphényloxazol - Scintillant primaire
SIS	<i>Spectral Index of the Sample</i> - Indicateur interne de quenching
TDCR	<i>Triple to Double Coincidences Ratio</i> [Cassette 2003]
tSIE	<i>Transformed Spectral Index of External Standard</i> - Indicateur externe de quenching
TTR	<i>Tail-to-total ratio</i>



# Bibliographie

- [9111B] *25 mm (1") photomultiplier 9111B series data sheet*. Rapport technique, Electron Tubes, 2001. (Cité en pages 147, 148 et 216.)
- [ADR] *ADR - Accord européen sur le transport de matière dangereuse par la route*. (Cité en page 85.)
- [NF ISO 7503] AFNOR. *NF ISO 7503 - Evaluation de la contamination de surface*. (Cité en pages 85, 88, 90 et 214.)
- [NF T90-210] AFNOR. *NF T90-210 - Qualité de l'eau - Protocole d'évaluation initiale des performances d'une méthode dans un laboratoire*, 2009. (Cité en page 91.)
- [NF ISO 10704] AFNOR. *NF ISO 10704 - Qualité de l'eau - Mesurage des activités alpha globale et beta globale dans l'eau non saline - Méthode de comptage par dépôt d'une source fine*, Janvier 2010. (Cité en page 85.)
- [NF ISO 11704] AFNOR. *NF ISO 11704 - Qualité de l'eau - Mesurage des activités alpha globale et beta globale dans l'eau non saline - Méthode de comptage par scintillation liquide*, Août 2010. (Cité en pages 108, 133, 170, 191, 192 et 197.)
- [Ansoborlo 2009] E. Ansoborlo, J. Aupiais, N. Baglan, M. Bertaux, C. Biscarrat, F. Bonniec, P. Chevallier, J.-P. Curnier, H. Decosse, J.-M. Duda, S. Fleury, T. Grangeon, A. Henry, G. Liozon, Y. Losset, C. Maillard, D. Maloubier, M.-B. Mokili, S. Pierre, P. Cassette, M. Loidl, F. Poilane, J.-J. Ramadier, Y. Tauvel et L. Tenailleau. *Dossier de recommandations pour l'optimisation des mesures du rayonnement alpha*. Rapport technique, 2009. Note Technique DEN/DRCP/CETAMA. (Cité en pages 66 et 108.)
- [Aupiais 1997] Jean Aupiais. *La scintillation liquide alpha*. 1997. Mémoire de HDR. (Cité en pages 105 et 214.)
- [Bagán 2010] H. Bagán, A. Tarancón, G. Rauret and J. F. García *Alpha/beta pulse shape discrimination in plastic scintillation using commercial scintillation detectors* Analytica Chimica Acta 670 (2010) 11-17 (Cité en page 103.)
- [Berger 2005] M. J. Berger, J. S. Coursey, M. A. Zucker et J. Chang. *Computer programs for calculating stopping-power and range tables for electrons, protons, and helium ions*, 2005. NIST, Physical Measurement Laboratory. (Cité en pages 33, 35, 70, 211 et 213.)
- [Birks 1964] J. B. Birks. *The theory and practise of scintillation counting*. Pergamon Press, Oxford, 1964. (Cité en pages 51 et 53.)
- [Bransome 1970] J. B. Birks, R. Voltz, J. Klein, D. L. Horrocks et 44 other contributors. *The current status of liquid scintillation counting*. Grune and Stratton, New York and London, 1970. Edited by Edwin D. Bransome, Jr., M. D.. ISBN 0-8089-0644-5. (Cité en pages 49 et 212.)



- [Breton 2011a] D. Breton, E. Delagnes et J. Maalmi. *Using ultra fast analog memories for fast photodetector readout*. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A, 2011. doi :10.1016/j.nima.2011.12.007. (Cité en page 158.)
- [Breton 2011b] D. Breton, E. Delagnes, J. Maalmi, K. Nishimura, L. L. Ruckman, G. Varner et J. Va'vra. *High resolution photon timing with MCP-PMTs : A comparison of a commercial constant fraction discriminator (CFD) with the ASIC-based waveform digitizers TARGET and WaveCatcher*. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A, 2011. doi :10.1016/j.nima.2010.10.087. (Cité en page 158.)
- [Cassette 2003] Philippe Cassette et Jacques Bouchard. *The design of a liquid scintillation counter based on the triple to double coincidence ratio method*. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A, 2003. (Cité en pages 68 et 227.)
- [CEA 1999] CEA. *Tables des radionucléides*. Rapport technique, CEA, 1999. ISBN 2 7272 0201 6. (Cité en pages 20, 21, 26, 127, 201, 204, 211, 218 et 219.)
- [Compton 1923] Arthur H. Compton *A quantum theory of the scattering of X-rays by light elements*. Physical review, vol. 21, n° 5. Mai 1923 (Cité en page 13.)
- [Davydov 1964] A. S. Davydov. *The theory of molecular excitons*. Soviet Physics Uspekhi, Volume 7, Numéro 2, 1964. Disponible sur IOPScience. (Cité en page 49.)
- [Dornic 2006] Damien Dornic. *Développement et caractérisation de photomultiplicateurs hémisphériques pour les expériences d'astroparticules – Etalonnage des détecteurs de surface et analyse des gerbes horizontales de l'Observatoire Pierre Auger*. PhD thesis, Université Paris XI, 2006. (Cité en pages 59 et 212.)
- [Dougnaux 2010] Grégoire Dougnaux, Valérie Mazan, Aline Olivier, Jean-Lionel Trolet, Lionel Tenailleau, Marc Piccione et Abdel-Mjid Nourreddine. *Simultaneous evaluation of  $\alpha$  and low-energy  $\beta$  contamination by smear analysed by liquid scintillation of road-transported nuclear containers*. LSC 2010, Advances in Liquid Scintillation Spectrometry, 2010. (Cité en pages 75, 85 et 187.)
- [Beringer 2012] J. Beringer et al. Phys. rev. d86, 010001. 2012. (Cité en pages 25 et 221.)
- [Etherington 1958] Harold Etherington, editeur. Nuclear engineering handbook. McGraw-Hill, 1958. (Cité en page 200.)
- [Evans 1961] R. D. Evans. Le noyau atomique. Jouve, 1961. (Cité en pages 22, 23 et 211.)
- [Förster 1950] Theodor Förster. Fluoreszenz organischer verbindungen. Göttingen : Vandenhoeck and Ruprecht, 1950. ISBN 3-525-42312-8. (Cité en page 49.)

- [Gatti 1962] E. Gatti, C. Cottini, S. Donati, V. Svelto et F. Vaghi. *A new linear method of discrimination between elementary particles in scintillation counters*. Nuclear Electronics, Vol. 2, pp. 265-276, IAEA Vienna, 1962. (Cité en page 138.)
- [Gatti 1970] E. Gatti, C. Cottini, S. Donati, V. Svelto et F. Vaghi. *Particule identification by pulse shape discrimination*. Energia nucleare, vol. 17 / n. 1 / gennaio 1970, 1970. (Cité en pages 60 et 138.)
- [GUM] JCGM - Joint Committee for Guides in Metrology *Evaluation des données de mesure - Guide pour l'expression de l'incertitude de mesure*. 2008. JCGM 100 :2008. (Cité en page 191.)
- [GUM S1] JCGM - Joint Committee for Guides in Metrology *Evaluation des données de mesure - Supplément 1 du "Guide pour l'expression de l'incertitude de mesure" - Propagation de distribution par une méthode de Monte Carlo*. 2008. JCGM 101 :2008. (Cité en pages 118 et 194.)
- [Hidex a] Hidex.  *$\alpha$  and  $\beta$  separation results with Triathler*. Hidex news DOC 411-019, Hidex. (Cité en pages 106 et 214.)
- [Hidex b] Hidex. *Triathler multilabel tester - owner's handbook*. Hidex. (Cité en pages 64, 88 et 212.)
- [Horrocks 1974] Donald D. Horrocks. *Applications of liquid scintillation counting*. Academic press, 1974. ISBN 0-12-356240-6. (Cité en pages 47, 71 et 96.)
- [Kessler 1989] Michael J. Kessler. *Liquid scintillation analysis*. Packard, 1989. (Cité en pages 73, 74 et 213.)
- [Klein 1994] O. Klein and Y. Nishina. *On the Scattering of Radiation by Free Electrons According to Dirac's New Relativistic Quantum Dynamics*. The Oskar Klein Memorial Lectures, Vol. 2 : Lectures by Hans A. Bethe and Alan H. Guth with Translated Reprints by Oskar Klein. Gösta Ekspong, World Scientific Publishing Co. Pte. Ltd., Singapore, 1994. pp. 113-139 (Cité en page 14.)
- [Knoll 1979] Glenn F. Knoll. *Radiation detection and measurement*. John Wiley and Sons, Inc., 1979. ISBN 0-471-49545-X. (Cité en pages 55, 57, 62 et 212.)
- [L'Annunziata 2003] Micheal F. L'Annunziata. *Handbook of radioactivity analysis*. Academic Press, 2003. ISBN 0-12-436603-1. (Cité en pages 11, 45, 200 et 221.)
- [Lederer 1978] C.M. Lederer et V.S. Shirley. *Table of isotops*, 7th edition. Wiler, New York, 1978. Appendix III. (Cité en pages 14 et 211.)
- [Levenberg 1944] K. Levenberg. *A method for the solution of certain problems in least squares*. Quart. Appl. Math. 2, 1944. pp 164-168. (Cité en page 139.)
- [Malinovsky 2002] SV Malinovsky, IA Kashirin, AI Ermanov, VA Tikhomirov, SV Belanov et AI Sobolev. *Mathematical aspects of decoding complex spectra applied to liquid scintillation spectrometry*. LSC 2001, Advances in Liquid Scintillation Spectrometry, 2002. pp 127-135. (Cité en page 96.)

- [Marquardt 1978] D. Marquardt. *An algorithm for least squares estimation of non-linear parameters*. SIAM J. Numer. Anal. 15, 1978. (Cité en page 139.)
- [Marrone 2002] S. Marrone, D. Cano-Ott, N. Colonna, C. Domingo, F. Gramegna, E.M. Gonzalez, F. Gunsing, M. Heil, F. Ka.ppele, P.F. Mastinu, P.M. Milazzo, T. Papaevangelou, P. Pavlopoulos, R. Plag, R. Reifarh, G. Tagliente, J.L. Tain et K. Wisshak. *Pulse shape analysis of liquid scintillators for neutron studies*. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A 490, 2002. (Cité en page 106.)
- [Mozunder 1966] A. Mozunder et A. L. Magee. Radiation Research vol. 20, 1966. pp203-214. (Cité en pages 32, 34 et 211.)
- [Packard] Lyle E. Packard. Instrumentation for internal sample liquid scintillation counting. Packard Instrumentation Compagny, Inc. (Cité en pages 66, 73 et 213.)
- [Passo 1994] Charles J. Passo. *Time resolved pulse decay analysis (TR-PDA) : a refinement for alpha/beta discrimination*. LSC 1994, Advances in Liquid Scintillation Spectrometry, 1994. (Cité en pages 104, 105, 108 et 214.)
- [Passo 2002] Charles J. Passo et Gordon Cook. *Time Resolved Liquid Scintillation Counting : (TR-LSC<sup>TM</sup>) for Environmental 3H Analysis*. Application note, PerkinElmer Life Sciences, Inc. And Scottish Universities Research and Reactor Center, 2002. (Cité en pages 105 et 214.)
- [Pates 1994] J. M. Pates, G. T. Cook et A. B. McKenzie. *Alpha/beta separation liquid scintillation spectrometry : current trends*. LSC 1994, Advances in Liquid Scintillation Spectrometry, 1994. pp 267-281. (Cité en pages 107 et 214.)
- [Ranucci] Gioacchino Ranucci, Augusto Goretti et Paolo Lombardi. *Pulse shape discrimination of liquid scintillators*. ArXiv.org. (Cité en pages 103, 104, 138, 139, 184, 214, 222 et 224.)
- [RTC 1981] RTC. Photomultiplicateurs. RTC, 1981. ISBN 5482-07/1981. (Cité en page 57.)
- [Takiue 1991] Makoto Takiue, Yokho Matsui et Haruo Fujii. *Activiy determination of simultaneously chemical and color quenched samples using a liquid scintillation counter*. 1991. (Cité en page 72.)
- [LNHB] LNHB Laboratoire National Henri Bequerel. *TDCR Method*. (Cité en page 68.)
- [Valentin 1995] Luc Valentin. Le monde subatomique. Hermann, nouvelle édition édition, 1995. ISBN 2 7056 6043 7. (Cité en page 25.)
- [Valeur 2001] Bernard Valeur Molecular fluorescence : principes and applications Wiley-VCH Verlag GmbH ISBNs 3-527-29919 (Hardcover) ; 3-527-60024-8 (Electronic) (Cité en page 52.)
- [Voltz 1968] R. Voltz et G. Laustriat. *Radioluminescence des milieux organiques - I. Etude cinétique*. Le journal de physique, 1968. Article published online by EDP Sciences. (Cité en pages 51 et 221.)

- 
- [Wisser 2006] S. Wisser, E. Frenzel and M. Dittmer *Innovative procedure for the determination of gross-alpha/gross-beta activities in drinking water* Applied Radiation and isotopes 64 (2006) 368-372 (Cité en page 136.)
- [XP2262] *Photomultiplier XP2262 data sheet*. Rapport technique, Photonis, 2006. (Cité en page 158.)
- [Yousefi 2008] S. Yousefi, L. Lucchese et M. D. Aspinall. *A novel wavelet-based method for neutron/gamma discrimination in liquid scintillators*. IEEE Nuclear Science Symposium Conference Record, 2008. (Cité en pages 138 et 139.)