



HAL
open science

Etudes expérimentales et simulations Monte Carlo en spectrométrie gamma: Correction des effets de cascade et de matrice pour des mesures environnementales

Samir Dziri

► **To cite this version:**

Samir Dziri. Etudes expérimentales et simulations Monte Carlo en spectrométrie gamma: Correction des effets de cascade et de matrice pour des mesures environnementales. Physique Nucléaire Expérimentale [nucl-ex]. Université de Strasbourg, 2013. Français. NNT: . tel-00995929

HAL Id: tel-00995929

<https://theses.hal.science/tel-00995929>

Submitted on 25 May 2014

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.



ECOLE DOCTORALE
DE PHYSIQUE ET CHIMIE PHYSIQUE

THÈSE

pour obtenir le grade de
Doctorat de L'Université de Strasbourg

Discipline : Physique

Présentée par
Samir Dziri

Etudes expérimentales et simulations Monte Carlo en spectrométrie γ : Correction des effets de cascade et de matrice pour des mesures environnementales

Soutenue le 29 mai 2013

Membres du jury :

Directeur de thèse : Abdel-Mjid NOURREDDINE, Université de Strasbourg
Rapporteurs externes : Philippe HUBERT, CENBG Bordeaux
Jean-Emmanuel GROETZ, Université de Franche-Comté, Besançon
Examineurs : Ludovic GUILLOT, CEA/DAM, île de France, Bruyère le Châtel
Philippe DESSAGNE, IPHC Strasbourg
Abdellatif NACHAB, IPHC Strasbourg

Remerciements

A l'issue de la rédaction de ces travaux de recherche, je sors avec l'ultime conviction qu'effectuer une thèse est loin d'être un travail solitaire. Ce travail doctoral n'aurait pas pu être réalisé sans le soutien d'un nombre de personnes dont la générosité, la disponibilité et l'intérêt affiché à l'égard de mes travaux. Ils m'ont permis de progresser tout au long de cette période d'apprentissage.

Je tiens à remercier en premier lieu mon directeur de thèse monsieur Abdelmjid Nourredine pour m'avoir accueilli au sein du groupe Radioprotection et Mesures Environnementales (RaMsEs). Je lui suis très reconnaissant pour tout le temps qu'il m'a accordé malgré un agenda d'un ministre, ses qualités pédagogiques et scientifiques, sa sympathie et sa franchise. J'ai beaucoup appris à ses côtés et je lui adresse ma gratitude.

Mes remerciements vont à Monsieur Philippe Hubert (CENBG, Bordeaux), et monsieur Jean-Emmanuel Groetz (Université de Franche-Comté) d'avoir accepté d'être les rapporteurs de ce travail. Je souhaite adresser également mes remerciements à monsieur Ludovic Guillot (CEA/Dam) et monsieur Philippe Dessagne (IPHC) d'avoir fait l'honneur d'examiner mon travail. Ma reconnaissance s'adresse également à monsieur Abdellatif Nachab pour ses conseils, sa disponibilité et les discussions relatives à la seconde et la troisième partie de la thèse et aussi d'avoir examiné ce travail.

Un grand merci à tous les collègues de groupe RaMsEs qui ont contribué de façon directe ou indirecte à mener à terme ce travail. Un merci particulier pour Arthur Pape avec qui j'ai eu des discussions pertinentes et sa bonne humeur permanente. Je tiens également à remercier monsieur Jean-Pierre Engel pour ses remarques sur la compréhension de la physique et la rédaction du manuscrit en particulier. J'aimerais aussi adresser mes remerciements à tous mes amis qui m'ont accompagné pendant cette thèse.

La thèse a parfois été un moment difficile pour mes proches. J'avoue ne pas leur avoir consacré le temps qu'ils méritent. Emma Gormley, je te remercie énormément pour ta présence, ton soutien et tes encouragements incessants, j'avoue qu'on a formé une très bonne équipe le long de cette thèse. Malgré certains moments difficiles t'es restée disponible et très compréhensive. Ta phrase mythique everything happens for a reason est devenue ma philosophie dans certaines impasses. J'ai envie d'adresser mes chaleureux remerciements pour mes frères et mes sœurs pour leur présence et soutiens infaillibles. J'aimerais leur témoigner ma gratitude pour ce qu'ils ont fait pour moi. Merci de m'avoir accompagné dans cette expérience. Un remerciement particulier et spécial pour mes parents qui, sans eux, je n'aurais pas cette occasion de venir et effectuer une thèse en France. Le fait que vous soyez sur l'autre rive de la méditerranée ne vous a pas empêché de partager les moments intenses que j'ai vécus durant cette période, et vous n'avez jamais cessé de me faire confiance. Malgré ces 83 balais, ma grand-mère, cette personne qui m'est très chère, occupe une place particulière dans mon cœur, Merci (Thannemirt) pour ton soutien, ta générosité que tu as su procurer autour de toi. A vous tous, sachez que je vous aime et j'aimerais vous dédier cette thèse.

Résumé :

Les mesures fines des faibles radioactivités par la spectrométrie gamma nécessitent l'optimisation de la géométrie de détection et la connaissance du schéma de niveaux des raies gamma. Ainsi, on peut augmenter le taux de comptage et par conséquent, réduire l'incertitude statistique des pics spectraux exploités pour le calcul de l'activité des radio-isotopes en rapprochant le plus possible l'échantillon du détecteur. Cependant, l'augmentation du volume de l'échantillon demande une correction de l'auto-absorption des émissions par l'échantillon même, et le rapprochement du détecteur est à l'origine du phénomène de pic-somme. L'utilisation de MCNPX a permis de mettre en évidence les effets séparés de la densité de l'échantillon et le nombre atomique effectif dans l'atténuation des photons d'énergie inférieure à 100 keV. Les facteurs de correction du pic-somme sont obtenus par MCNPX, GESPCOR et ETNA. Ainsi, une base des données pour 244 radionucléides a été établie pour des géométries SG50 et SG500 au contact d'un détecteur. Dans une application à la radioprotection, des échantillons de matériaux de construction ont été analysés par la spectrométrie gamma. L'Uranium-238, le Thorium-232 et le Potassium-40 ont été identifiés et corrigés des effets sus-cités. La dosimétrie de leurs rayonnements gamma a permis d'évaluer les indices de risque, la dose absorbée et la dose efficace annuelle reçues provenant de ces matériaux. Les simulations par MCNPX corroborent le modèle de calcul de la dose absorbée. Il a permis aussi d'étudier la distribution de la dose dans les habitations de différentes dimensions. Les résultats obtenus sont dans les limites réglementaires.

Mots clés : Spectrométrie gamma, pic-somme, auto-absorption, radioprotection, dose absorbée, dose efficace annuelle, simulation Monte Carlo

Abstract :

Precisely measuring weakly radioactive samples by gamma-ray spectrometry requires optimizing the detection geometry and knowledge of the gamma-ray decay scheme. One can thus increase the counting rate and reduce the statistical uncertainty of the spectral peaks used to determine radioisotope activities. However, an increased sample volume requires a correction for the self-absorption of γ -rays in the sample itself, and approaching a sample to the detector gives rise to coincidence summing. MCNPX simulations permitted finding the separate influence of sample density and effective atomic number of the sample in the attenuation of photons with energies less than 100 keV. Peak-summing corrections were obtained with MCNPX, GESPCOR and ETNA. Thus a data base for 244 radionuclides could be established for SG50 and SG500 geometries in contact with a planar detector. In an application of the results to the health physics domain, construction materials were analyzed. Naturally-occurring Uranium-238, Thorium-232 and Potassium-40 activities were identified and corrected for the above-mentioned effects in order to evaluate the risk indexes, the absorbed dose and the annual effective dose received from different dimensions built of these materials. MCNPX simulations corroborated the model used to calculate the absorbed dose and gave its distribution in an enclosed space. The results obtained are within the recommended norms.

Keywords : Gamma-ray spectrometry, peak-sum, self-absorption, radioprotection, absorbed dose, annual effective dose, Monte Carlo simulations

Table des matières

Introduction	1
1 Radioactivité et interaction photon-matière	5
1.1 La radioactivité et l'origine des rayonnements γ et X	5
1.2 Nomenclature des transitions γ et X	8
1.3 Radioactivité naturelle	12
1.3.1 De la radioactivité naturelle à la radioactivité naturelle renforcée	14
1.3.2 La radioactivité artificielle	14
1.4 Familles radioactives	15
1.4.1 Série ^{238}U ($4n+2$)	16
1.4.2 Série ^{235}U ($4n+3$)	16
1.4.3 Série ^{232}Th ($4n$)	16
1.5 Filiations radioactives	16
1.5.1 Equilibres radioactifs	17
1.5.1.1 Equilibre idéal	17
1.5.1.2 Equilibre de régime	18
1.5.1.3 Equilibre séculaire	18
1.6 Rayonnements ionisants et leurs interactions avec la matière	19
1.6.1 Classification des rayonnements ionisants	19
1.6.2 Interaction photon-matière	19
1.6.2.1 Effet photoélectrique	21
1.6.2.2 Diffusion Compton	22
1.6.2.3 Création de paire	24
1.6.3 Atténuation et libre parcours moyen	25
1.7 Mesure par spectrométrie gamma	28
2 De la spectrométrie γ à la dosimétrie	31
2.1 Introduction	32
2.2 Technique de la spectrométrie gamma	33
2.2.1 Chaîne de mesure	34
2.2.1.1 Les semi-conducteurs	34
2.2.1.2 Collection de charge	35
2.2.1.3 Résolution en énergie	35
2.2.2 Détecteurs GeHP	36
2.2.2.1 Détecteur planaire	36
2.2.2.2 Détecteur coaxial	37
2.2.2.3 Détecteur puits	37
2.2.3 Caractéristiques des cristaux utilisés en spectrométrie γ	37
2.3 Sensibilité de la spectrométrie gamma	38
2.3.1 Electronique d'acquisition	40

2.3.2	Analyse des spectres	40
2.3.2.1	Etalonnage en énergie	40
2.3.2.2	Etalonnage en efficacité	41
2.3.3	Géométrie d'étalonnage	42
2.3.4	Préparation d'échantillon	42
2.3.5	Bruit de fond	43
2.3.6	Calcul de l'activité	43
2.3.7	Seuil de décision et limite de détection	44
2.4	Métrologie des rayonnements ionisants et mesures environnementales	46
2.5	Dosimétries des rayonnements ionisants	46
2.5.1	Grandeurs physiques	47
2.5.2	Grandeurs dosimétriques	47
2.5.2.1	Dose transférée	47
2.5.2.2	Dose absorbée	48
2.5.3	Grandeurs de protection	49
2.5.3.1	Dose équivalente	49
2.5.3.2	Dose efficace	50
2.5.4	Dose engagée	51
2.5.5	Grandeurs opérationnelles	52
2.5.5.1	Dosimétrie de zone ou d'ambiance	52
2.5.5.2	Equivalent de dose ambiant	52
2.5.5.3	Dosimétrie individuelle	52
2.5.6	Valeurs limites d'exposition	54
2.5.7	Modalités du calcul de dose	54
2.5.8	Contribution des matériaux de construction à la dose efficace	55
2.5.8.1	Risque externe	55
2.5.8.2	Risque interne	56
2.5.8.3	Radium équivalent	56
2.5.8.4	Dose absorbée due aux matériaux de construction	56
2.5.9	Dose efficace annuelle	57
3	Simulations Monte Carlo	59
3.1	Généralités sur la méthode Monte Carlo	60
3.1.1	Nombres aléatoires	62
3.1.2	Incertitudes statistiques	62
3.2	Transport des particules	62
3.2.1	Simulation des interactions indirectement ionisantes	63
3.2.2	Modélisation de l'interaction photon-matière	63
3.3	Code MCNP	65
3.3.1	Fiabilité de la simulation	65
3.3.2	Fichier d'entrée	66
3.3.3	Cellules	67
3.3.4	Surfaces	67
3.3.5	Données physiques	67
3.3.5.1	Source	67

3.3.5.2	Tallies	68
3.3.5.3	Bibliothèques des sections efficaces	69
3.3.5.4	Matériaux	70
3.3.5.5	Réduction de la variance	70
3.4	GEANT4	71
3.4.1	Architecture	71
3.4.2	Géométrie	72
3.4.2.1	Volume solide	72
3.4.2.2	Volume logique	72
3.4.2.3	Volume physique	72
3.4.3	Génération des particules primaires	72
3.4.4	Extraction et analyse de données	73
4	Pic-somme et simulation Monte Carlo	75
4.1	Introduction	76
4.2	Mise en évidence expérimentale de l'effet de pic-somme	76
4.3	Rendement géométrique	78
4.3.1	Effet de la distance source-détecteur	79
4.3.2	Effet de volume du détecteur	80
4.3.3	Effet du schéma de décroissance	81
4.4	Etude du PS avec un détecteur GeHP planaire	83
4.5	Correction du pic-somme	84
4.5.1	Critères de choix de l'étalon	84
4.5.2	Formalisme mathématique	85
4.5.2.1	Schéma de niveaux à deux cascades	85
4.5.2.2	Généralisation à plusieurs cascades	86
4.5.2.3	Perte d'impulsions en amont de l'état excité	87
4.5.2.4	Exemple du ^{134}Cs	87
4.5.2.5	Perte d'impulsions en aval de l'état excité	88
4.5.2.6	Gain d'impulsions par sommation	88
4.5.3	Modélisation du dispositif expérimental	89
4.5.4	Géométrie SG500 au contact du détecteur	89
4.6	Code ETNA	92
4.7	Code GESPECOR	93
4.7.1	Comparaison MCNPX, ETNA et GESPECOR	94
4.7.2	Validation expérimentale des différentes méthodes	96
4.8	Influence de la géométrie et de la distance sur le PS	97
4.8.1	Géométrie SG500 à 4,5 et 6,5 cm du détecteur	97
4.8.2	Géométrie SG50	99
4.8.2.1	SG50 au contact du détecteur	99
4.8.2.2	SG50 à 4,5 et 6,5 cm du détecteur	99
4.9	Etude du pic-somme avec un détecteur coaxial	104
4.9.1	Description de l'expérience	104
4.9.1.1	Sources ponctuelles	104
4.9.1.2	Sources étendues	105

4.10	Conclusions	109
5	Phénomène d'auto-absorption	113
5.1	Introduction	113
5.2	Méthodes de correction	114
5.2.1	Méthode de transmission	114
5.2.1.1	Formalisme	114
5.2.1.2	Principe	115
5.2.2	Méthodes Monte Carlo	116
5.3	Notion de Z effectif	116
5.4	Mesures et simulations	117
5.4.1	Influence de la densité sur l'auto-absorption	117
5.4.2	Influence de Z_{eff}	119
5.4.2.1	Contributions quantitatives de ρ et Z_{eff} dans la correction totale	120
5.4.2.2	Correction globale	122
5.5	Applications	122
5.5.1	Matrice de sédiment	123
5.5.2	Matrice de phosphogypse	123
5.5.3	Matrice de sol	124
5.6	Résultats des analyses	124
5.6.1	Z effectif connu	124
5.6.1.1	Comparaison éthanol et gypse	124
5.6.1.2	Les sols	126
5.6.2	Cohérence des résultats mesurés et simulés	128
5.6.2.1	Comparaison des méthodes	128
5.6.2.2	Utilisation des équilibres radioactifs	130
5.7	Conclusion	131
6	Application aux mesures environnementales et à la dosimétrie	133
6.1	Test d'intercomparaison	133
6.1.1	Ecart relatif	134
6.1.2	Test de compatibilité	134
6.1.3	Le score Z	134
6.1.4	Critères d'acceptabilité	135
6.1.5	Analyse de l'échantillon de test d'intercomparaison	135
6.1.6	Résultats de l'analyse avant la correction PS	137
6.1.7	Résultats de l'analyse après la correction PS	138
6.2	Matériaux de construction	140
6.2.1	Correction de l'auto-absorption et de l'effet de pic-somme	140
6.2.2	Dosimétrie des rayonnements γ	142
6.2.3	Radium équivalent	144
6.2.4	Indice du risque interne et externe	145
6.2.5	Dose efficace annuelle	145
6.3	Comparaison des mesures avec les simulations	147

6.3.1	Distribution de dose	147
6.3.2	Calcul et simulation de la dose	149
6.4	Conclusion	151
	Conclusion générale	153
	A Rayonnements γ et bruit de fond	157
	Bibliographie	163

Introduction

Actuellement, la baisse des niveaux tolérables de radioactivité artificielle dans l'environnement nécessite une amélioration constante des moyens d'analyses. L'évolution de l'instrumentation nucléaire et la dosimétrie passe par la mise en œuvre de technologies modernes développées dans des domaines de recherche plus fondamentale. Le développement et la mise au point des méthodes d'analyse multi-élémentaires dans l'environnement est l'une des principales activités de recherche de l'équipe de Radioprotection et Mesures Environnementales (RaMsEs) de l'Institut Pluridisciplinaire Hubert Curien de Strasbourg. Cette activité englobe les mesures et les analyses de la radioactivité naturelle et artificielle par des méthodes de spectrométrie et les expertises radiologiques sur site.

Les travaux de recherche de cette thèse s'inscrivent dans le cadre de la mesure fine de la radioactivité dans l'environnement par spectrométrie γ à bas bruit de fond. Il s'agit de caractériser les fonctions de réponse des chaînes de détection opérationnelles au RaMsEs et d'étudier les effets des cascades dans le cas d'émetteurs multi-gamma et les effets de matrices dans les échantillons volumineux. Les travaux de recherche se sont déroulés selon trois phases. La première est focalisée sur l'étude expérimentale et la modélisation Monte Carlo du phénomène de pic-somme. La deuxième partie traite les effets de la densité et de la charge effective des échantillons sur l'auto-absorption des photons à basse énergie. Enfin, la dernière phase concerne les applications de ces corrections pour finaliser les calculs de doses dues aux matériaux de construction.

La spectrométrie à l'aide des détecteurs semi-conducteurs GeHP est une des techniques d'analyse multi-élémentaire qualitative et quantitative les plus fréquemment utilisées dans le domaine de la mesure nucléaire. Elle a l'avantage d'être performante et non destructive. Applicable à des échantillons homogènes et volumineux, elle permet le dosage en une seule mesure de l'ensemble des radionucléides émetteurs γ ayant des énergies comprises entre 20 et 3000 keV. L'estimation précise de l'activité d'un échantillon nécessite de prendre en compte tous les phénomènes physiques d'interaction rayonnement-matière impactant directement le résultat de la mesure. Ces phénomènes, pour une géométrie donnée, sont intégrés dans une fonction de transfert qui est proportionnelle à l'activité de l'échantillon.

Pour identifier et quantifier un radioélément, un étalonnage en énergie et en efficacité précis de la chaîne de mesure au préalable est indispensable. Néanmoins, deux facteurs influent d'une manière significative sur la justesse des résultats déduits du spectre mesuré : les coïncidences et l'auto-absorption ou self-absorption. Dans la première problématique, il s'agit de l'interaction simultanée de plusieurs photons provenant de la source de rayonnement dans le détecteur. Ce phénomène conduit alors à une variation du nombre d'impulsions mesuré dans le pic d'absorption totale. Pour la seconde problématique, la correction de l'auto-absorption s'effectue généralement par le calcul du coefficient de correction de l'auto-absorption obtenu par le rapport des efficacités des photons d'une énergie donnée au travers de l'échantillon et celles de la source étalon.

Le manuscrit est scindé en six chapitres. Le premier chapitre rappelle brièvement les notions de la radioactivité et les différents processus d'interaction des photons avec la matière. Le deuxième chapitre est consacré à la description de la spectrométrie γ et la dosimétrie. Les définitions utilisées en métrologie des rayonnements ionisants et mesures environnementales à savoir les grandeurs dosimétriques et opérationnelles sont présentées.

Le troisième chapitre est dédié à la description des méthodes de simulation Monte Carlo et au transport des particules. Ces codes deviennent un outil essentiel en physique de l'interaction rayonnement-matière tant dans le domaine de l'instrumentation nucléaire que dans celui de la radioprotection et de la physique médicale. La possibilité d'inclure une grande partie des processus physiques sous forme de modèles numériques de plus en plus sophistiqués les rendent à la fois plus précis, fiables et prédictifs. Ils permettent en outre de remonter aux grandeurs inaccessibles expérimentalement. L'accent est mis plus particulièrement sur les codes utilisés dans ce travail : le code MCNP (Monte Carlo N-Particle) développé par le laboratoire Los Alamos (USA) et GEANT4 (GEometry ANd Tracking) produit du CERN.

Le chapitre quatre traite le phénomène du pic-somme en utilisant des méthodes de simulation Monte Carlo. Le formalisme mathématique généralisé à plusieurs cascades d'un schéma de niveaux complexe est détaillé. Pour la mesure de faibles radioactivités, l'échantillon est placé généralement le plus proche possible du détecteur. Ainsi, l'augmentation de l'angle solide améliore la sensibilité de détection des rayonnements γ et X. Par conséquent, la probabilité de détecter l'ensemble des photons émis en cascade est importante. En effet, certains radionucléides se désexcitent vers l'état fondamental en émettant simultanément deux photons voire plus. Des coïncidences γ -X et X-X peuvent se produire lors d'une conversion interne ou d'une capture électronique. A cause de la résolution en temps du détecteur, ces photons peuvent être détectés en même temps. Cela se traduit par des pertes ou des gains d'impulsions dans les pics d'absorption totale qui sont à l'origine d'une sous-estimation ou sur-estimation des efficacités de détection.

Le laboratoire RaMsEs dispose du logiciel ETNA (Efficiency Transfert for Nuclide Activity measurements) développé par le Laboratoire National Henri Becquerel (LNHB) et GESPECOR (GERmanium SPEctrometry Correction) pour le calcul des coefficients de correction de pic-somme. Néanmoins, l'utilisation d'ETNA nécessite l'introduction des courbes de rendement spécifiques aux détecteurs. Pour ce faire, des sources mono-énergétiques étalons sont indispensables. Dans ce travail, on a fait appel au code MCNPX pour caractériser les deux chaînes de détection (BEGe et INTER) dans différentes configurations géométriques. Une étude comparative des différents outils est discutée à la fin de ce chapitre.

Le chapitre cinq concerne l'étude et l'évaluation expérimentales et simulées de l'auto-absorption dans les échantillons homogènes, pour les différentes géométries. Ce deuxième paramètre est à prendre en compte pour le calcul du rendement total en énergie. Il présente la fraction absorbée que subissent les photons avant d'atteindre le détecteur. Il se manifeste également par des pertes d'impulsions et ainsi la sous-estimation de l'efficacité pour une énergie donnée. Ce phénomène dépend de l'énergie du photon incident, de la densité, du

volume et de la charge effective de l'échantillon. Pour les énergies inférieures à 100 keV, les pertes d'impulsions sont dues essentiellement à la composition chimique.

Des mesures expérimentales ont été réalisées et complétées par des calculs de modélisation Monte Carlo en utilisant MCNPX et GESPECOR ou XCOM. Le protocole expérimental de mesure du coefficient d'auto-absorption repose sur la technique de transmission.

Enfin, le dernier chapitre de cette thèse est consacré aux applications de ces corrections pour l'analyse d'échantillons. En effet, la demande croissante de l'industrie nucléaire, en terme de besoin de connaissance quantitative du niveau de radioactivité naturelle renforcée, amène à réaliser des mesures en spectrométrie sur toute sorte d'objets. Ces études concernent la quantification de l'activité des échantillons mesurés en laboratoire ou in situ pour la caractérisation de déchets radioactifs et sites contaminés par exemple. Afin de pouvoir déterminer cette activité avec de bonnes limites de détection, il est nécessaire de relier le signal enregistré par le détecteur au rayonnement émis par la ou les sources présentes dans l'objet à caractériser. Cette action est réalisée en raccordant la réponse du détecteur à l'émission d'une source étalon.

En terme de métrologie, le laboratoire RaMsEs est accrédité par le COFRAC (Comité Français d'Accréditation) dans le programme 135 pour l'analyse des radionucléides dans l'environnement par spectrométrie γ dans tous types de matrices. Il est également agréé par l'Autorité de Sécurité Nucléaire (ASN) dans le cadre de Réseau National de Mesures de la Radioactivité dans l'Environnement. Toute une série de mesures d'échantillons de différentes origines (sédiments, déchets,...) a été effectuée pour valider la méthode développée dans cette thèse, entre autre la validation de tests d'intercompraison pour le maintien de l'agrément.

La radioprotection représente l'ensemble des mesures prises par les pouvoirs publics pour assurer la protection de la population et de son environnement contre les effets néfastes des rayonnements ionisants. De nos jours, la dosimétrie occupe une place importante dans ce domaine, car elle permet de quantifier et d'estimer le risque lié à l'utilisation des rayonnements en adéquation avec les limites réglementaires. La dernière partie de ce chapitre concerne une autre application à la radioprotection et aux mesures environnementales. En plus des expositions aux radiations (médicale, cosmique,...), les matériaux de construction constituent une source non négligeable à laquelle la population est exposée. Il est bien connu que la plupart des matériaux de construction sont produits à partir de roches, du sol, et de certains ajouts industriels. Ces différents éléments peuvent contenir des radionucléides naturels comme le ^{238}U , le ^{232}Th et le ^{40}K . L'exposition à la radioactivité dans ce cas de figure se fait de deux manières : des expositions externes et internes par inhalation (^{222}Rn).

Radioactivité et interaction photon-matière

Sommaire

1.1	La radioactivité et l'origine des rayonnements γ et X	5
1.2	Nomenclature des transitions γ et X	8
1.3	Radioactivité naturelle	12
1.3.1	De la radioactivité naturelle à la radioactivité naturelle renforcée	14
1.3.2	La radioactivité artificielle	14
1.4	Familles radioactives	15
1.4.1	Série ^{238}U ($4n+2$)	16
1.4.2	Série ^{235}U ($4n+3$)	16
1.4.3	Série ^{232}Th ($4n$)	16
1.5	Filiations radioactives	16
1.5.1	Equilibres radioactifs	17
1.5.1.1	Equilibre idéal	17
1.5.1.2	Equilibre de régime	18
1.5.1.3	Equilibre séculaire	18
1.6	Rayonnements ionisants et leurs interactions avec la matière	19
1.6.1	Classification des rayonnements ionisants	19
1.6.2	Interaction photon-matière	19
1.6.2.1	Effet photoélectrique	21
1.6.2.2	Diffusion Compton	22
1.6.2.3	Création de paire	24
1.6.3	Atténuation et libre parcours moyen	25
1.7	Mesure par spectrométrie gamma	28

1.1 La radioactivité et l'origine des rayonnements γ et X

Le mot radioactivité a été donné pour la première fois suite aux travaux de Henri Becquerel par Pierre et Marie Curie qui ont travaillé sur l'Uranium.

La radioactivité est un processus qui trouve son origine dans le noyau atomique contrairement à une réaction chimique qui fait intervenir les cortèges électroniques. Elle est spontanée, aléatoire, généralement indépendante des composants chimiques et des conditions extérieures telles que la pression et la température. Elle est exoénergétique. La désintégration d'un noyau

radioactif intervient tôt ou tard et se traduit par l'émission de particules ou de rayonnement électromagnétique (photons).

La décroissance radioactive est régie par la loi exponentielle décroissante qui caractérise des désintégrations aléatoires dans le temps.

$$N(t) = N_0 e^{-\lambda t} \quad \text{avec} \quad \lambda = \frac{\ln 2}{T_{1/2}} \quad (1.1)$$

avec N_0 le nombre de noyaux présents au temps $t=0$, λ la constante de désintégration radioactive et $T_{1/2}$ est la période du radioisotope.

Les progrès de la physique subatomique à basse énergie et les connaissances accumulées durant le siècle dernier ont permis de répertorier plus de 256 nucléides naturels (stables et quasi-stables). Il existe plusieurs bases de données dans lesquelles sont répertoriés les différents nucléides (isotopes stables et radioactifs) avec leurs caractéristiques (excès de masse, durée de vie, spin et parité de l'état fondamental, modes de décroissance, nature des transitions, ...). A titre d'exemple, sur la base de données NNDC (National Nuclear Data Center) la charte interactive des isotopes, présentée dans la figure 1.1 regroupe plus de 3339 nucléides avec leurs statistiques résumées dans la table 1.1.

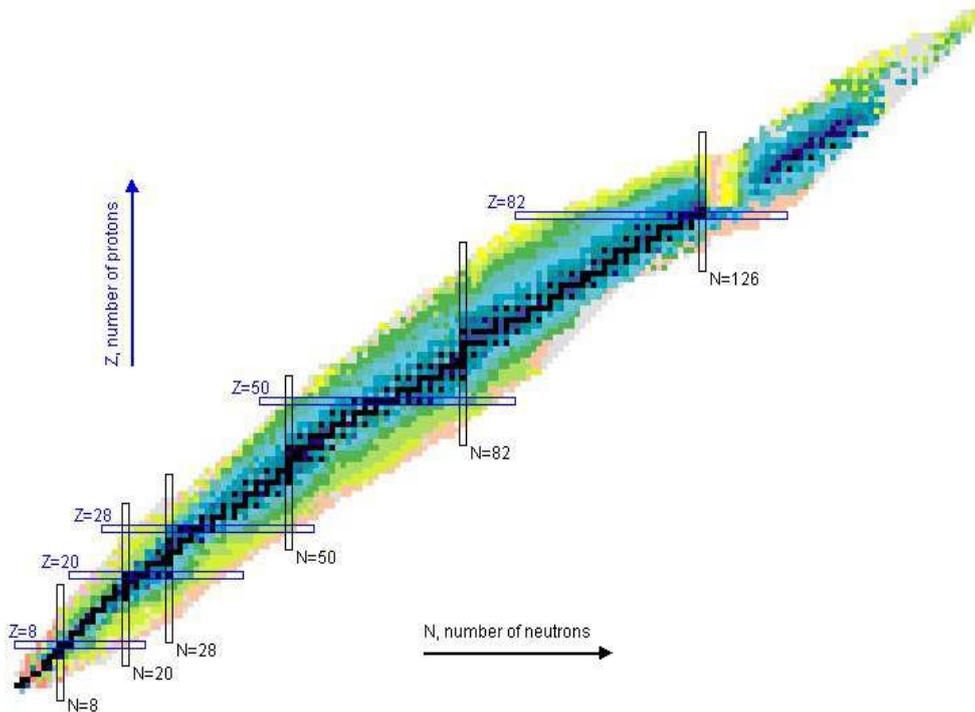


FIGURE 1.1 – Charte des nucléides.

Dans la représentation (N, Z) dite diagramme de Segrè, la vallée de stabilité est située autour de la bissectrice pour $Z \leq 20$ et s'écarte de celle-ci vers les noyaux riches en neutrons selon la relation empirique de neutralisation de l'énergie coulombienne :

$$N - Z = 0,006A^{5/3} \quad (1.2)$$

Nombre de niveaux	168136
Nombre de niveaux avec durée de vie connu	24296
Nombre de niveaux avec spin et parité connus	126990
Nombre de transitions γ	255502
Nombre de transitions γ de multipolarité connue	80524
Nombre de transitions α	2033
Nombre de transition β et capture électronique/ β^+	14761
Nombre de coïncidences $\gamma - \gamma$	3386569

TABLE 1.1 – Statistiques relatives aux isotopes stables et radioactifs [Laboratory 2011].

A étant le nombre de masse.

En partant de la conservation de l'énergie totale, les conditions d'instabilité vis-à-vis des désintégrations radioactives dépendent de la différence des excès de masse Δ entre les noyaux père et fils :

$$\text{- Désintégration alpha } ({}^4_2\text{He}) : {}^A_Z\text{X} \rightarrow {}^{A-4}_{Z-2}\text{Y} + \alpha$$

$$\Delta_Z - \Delta_{Z-2} \geq \Delta_\alpha$$

$$\text{- Désintégration bêta moins : } {}^A_Z\text{X}_N \rightarrow {}^A_{Z+1}\text{Y}_{N-1} + \beta^- + \bar{\nu}_e$$

$$\Delta_Z - \Delta_{Z+1} \geq 0$$

$$\text{- Désintégration bêta plus : } {}^A_Z\text{X}_N \rightarrow {}^A_{Z-1}\text{Y}_{N+1} + \beta^+ + \nu_e$$

$$\Delta_Z - \Delta_{Z-1} \geq 2m_e c^2$$

$$\text{- Capture électronique : } {}^A_Z\text{X}_N + e^- \rightarrow {}^A_{Z-1}\text{Y}_{N+1} + \nu_e$$

$$\Delta_Z - \Delta_{Z-1} \geq B_e(Z)$$

$B_e(Z) = 15,73Z^{7/3}$ étant l'énergie moyenne de liaison des Z électrons dans l'atome exprimée en eV, $m_e c^2 = 0,511$ MeV est l'énergie au repos de l'électron.

Le réarrangement du cortège électronique est suivi par l'émission des rayons X ou des électrons Auger. L'énergie maximale des rayons X émis peut être estimée en keV en fonction du nombre de charge Z :

$$E_X = \frac{Z^2}{100} \quad (1.3)$$

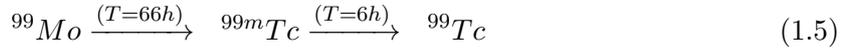
Suite à une désintégration α ou β le noyau fils peut se trouver dans un état excité et se désexcite spontanément vers un autre niveau excité ou vers le fondamental par émission

gamma. L'énergie des rayonnements γ issus de la radioactivité est comprise entre quelques dizaines de keV et 3 MeV. La différence avec les autres modes de décroissance est que celui-ci ne change ni le nombre de protons ni le nombre de neutrons :



La décroissance vers le niveau fondamental peut passer par plusieurs états excités intermédiaires. Ces transitions en cascade peuvent engendrer une somme des intensités de tous les rayonnements gamma émis supérieure à 100%.

Dans quelques cas, le noyau fils ne se désexcite pas instantanément mais avec une période qui lui est propre. On parle de niveaux métastables. Le radio-isotope métastable le plus couramment utilisé dans le domaine médical est ${}^{99m}\text{Tc}$ obtenu à partir du ${}^{99}\text{Mo}$ selon la désintégration :



Le retour à l'état fondamental d'un noyau émis dans un état excité libère de l'énergie. Cette énergie peut être émise soit sous forme de rayonnements électromagnétiques γ , soit transférée à un électron du cortège électronique qui sera alors éjecté de l'atome. Cet électron est appelé électron de conversion interne dont l'énergie sera égale à la différence entre l'énergie d'excitation du noyau et l'énergie nécessaire pour arracher l'électron de son orbite. Le réarrangement du cortège électronique pour combler la lacune laissée par l'électron expulsé est suivi par l'émission d'un rayon X ou d'un électron Auger.

Le phénomène de conversion interne (CI) est en compétition avec l'émission γ . Le rapport des deux processus est exprimé par le coefficient de conversion interne α

$$\alpha = \frac{N_e}{N_\gamma} = \alpha_K + \alpha_L + \alpha_M + \dots \quad (1.6)$$

avec N_γ et N_e respectivement le nombre de γ émis et le nombre d'électrons émis par CI des différentes couches électroniques K, L, M, ...

1.2 Nomenclature des transitions γ et X

L'interaction électromagnétique est responsable de l'émission gamma qui obéit aux lois de conservation du moment angulaire et de la parité. Si on désigne par I_i et π_i le moment angulaire et la parité de l'état initial et par I_f et π_f ceux de l'état final, le moment angulaire L du photon émis est tel que :

$$|I_i - I_f| \leq L \leq I_i + I_f \quad (1.7)$$

Le moment angulaire total du photon inclut son spin intrinsèque et son moment orbital. Le photon est un boson de spin 1 ayant deux projections ± 1 , la valeur 0 étant exclue à cause de la théorie de la relativité [Claude Le Sech 2010]. Les photons de moment angulaire L sont de multipolarité L. Selon la loi de la conservation de la parité, la parité du photon est :

$$\pi_\gamma = \pi_i \pi_f = (-1)^L \tag{1.8}$$

On parle de transitions multipolaire électrique EL ou multipolaire magnétique ML en adoptant les notations suivantes :

- transition 2^L polaire électrique : $\pi_{EL} = (-1)^L$
- transition 2^L polaire magnétique : $\pi_{EM} = (-1)^{L+1}$

Les transitions sont dites dipolaires si $L = 1$, quadrupolaires si $L = 2$, octupolaires si $L = 3$, ...

Pour illustration, la figure 1.2 représente le schéma des niveaux du radio-isotope ^{60}Ni produit par émission β^- du ^{60}Co en indiquant l'énergie (keV), l'intensité, la durée de vie des niveaux et la nature des transitions observées.

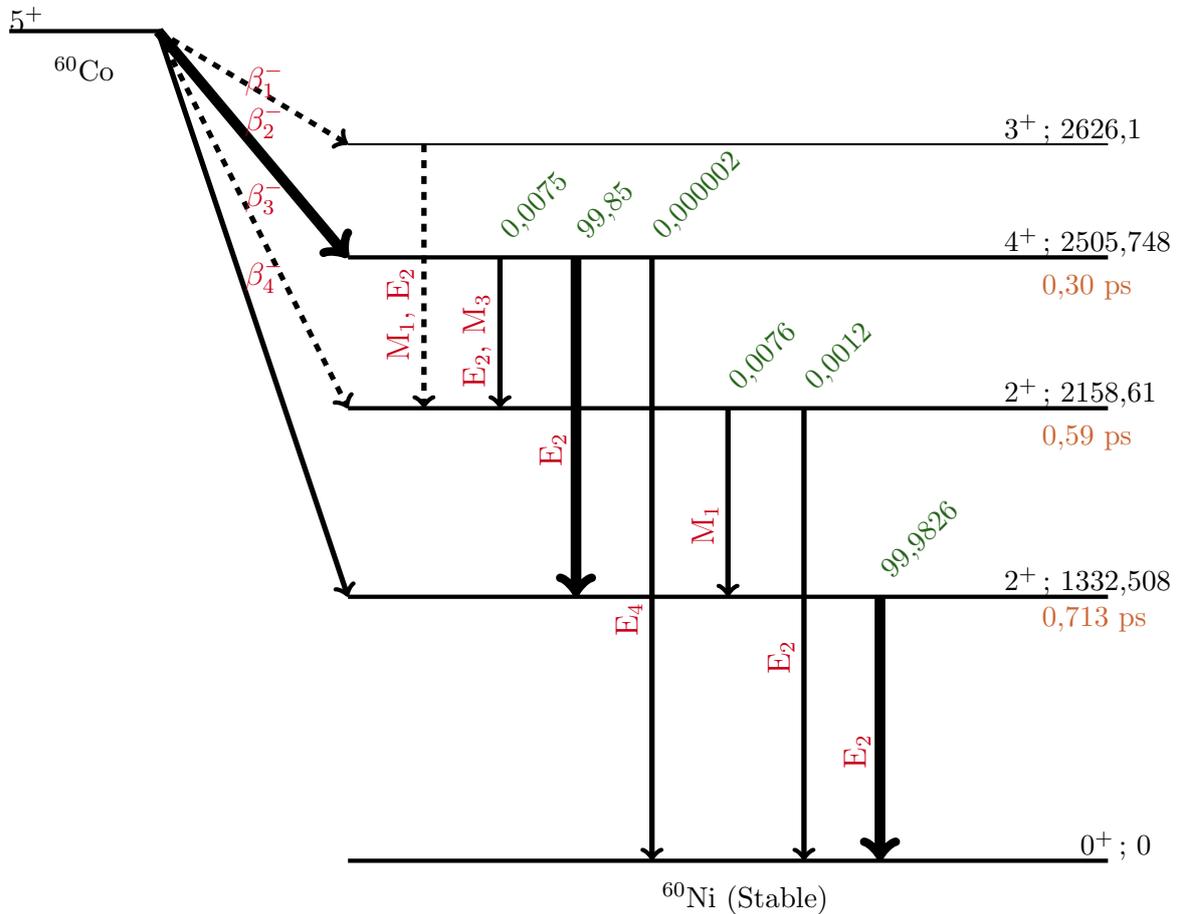


FIGURE 1.2 – Schéma de désintégration du ^{60}Co .

Les rayons X sont des rayonnements électromagnétiques comme les γ , avec des énergies allant de quelques keV à une centaine de keV. Ils diffèrent par leur origine, les photons γ

sont issus du noyau de l'atome, alors que les rayons X proviennent du cortège électronique ou du champ électrostatique qui entoure le noyau. Les transitions entre niveaux atomiques correspondent à des énergies discrètes et le réarrangement en cascade se traduit par un spectre en énergie des photons émis constitué par une série de raies discontinues. Si un électron de la couche K est arraché et remplacé par un électron de la couche L, une raie appelée K_α est émise.

Dans la table 2.1 sont données les énergies des rayons X fréquemment rencontrés dans les spectres obtenus en spectrométrie γ .

Si l'électron qui arrive sur la couche K provient de la couche M, la raie correspondante est appelée K_β , K_γ si l'électron provient de la couche N et ainsi de suite. Si la vacance se trouve sur la couche L, les électrons en provenance des couches M, N, O, engendreront respectivement des raies L_α , L_β , L_γ . Pour différencier les rayons X provenant de ces sous-couches, les raies sont nommées K_{α_1} , K_{α_2} , K_{β_1} , K_{β_2} , L_{α_1} , L_{α_2} ... La figure 1.3 représente la nomenclature des différentes transitions électroniques.

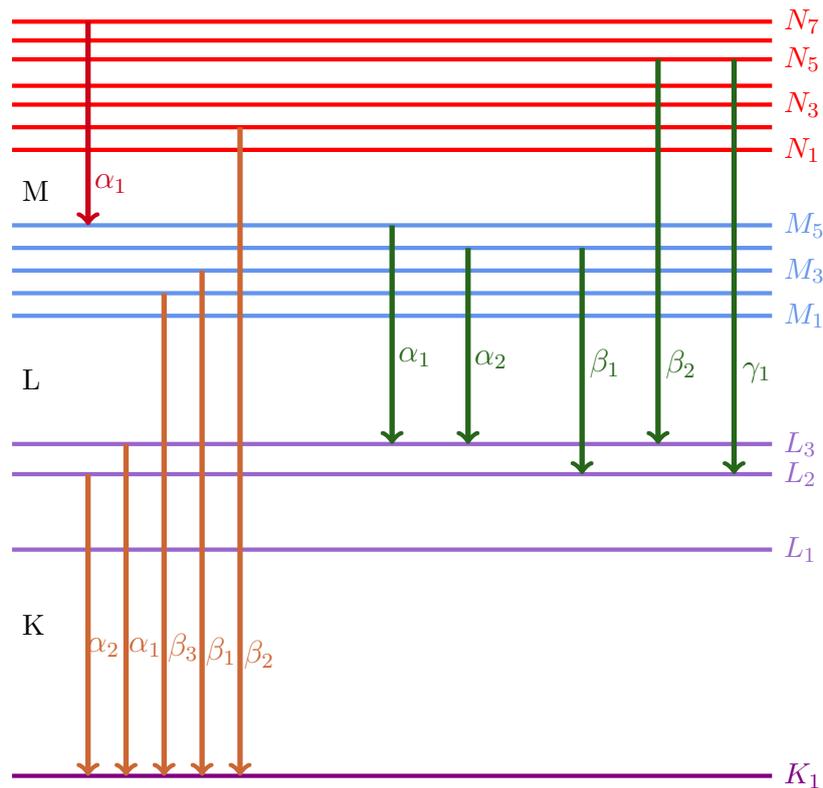


FIGURE 1.3 – Schéma de transitions donnant lieu aux raies d'émission X dans les couches électroniques internes.

Symbole	Z	Rayons X						Origine
		L_{α_1}	L_{β_1}	K_{α_2}	K_{α_1}	K_{β_1}	K_{β_2}	
V	23	-	-	4,94	4,95	5,43	-	^{51}Cr
Cr	24	-	-	5,41	5,42	5,95	-	^{54}Mn
Mn	25	-	-	5,89	5,90	6,49	-	^{55}Fe
Fe	26	-	-	6,39	6,40	7,06	-	$^{56,57,58}\text{Co}$
Ni	28	-	-	7,46	7,48	8,27	-	^{60}Co
Cu	29	-	-	8,03	8,05	8,91	-	Fluorescence, ^{65}Zn
As	33	-	-	10,51	10,54	11,73	11,86	^{75}Se
Rb	37	-	-	13,34	13,40	14,96	15,19	^{85}Sr
Sr	38	-	-	14,10	14,17	15,84	16,09	^{88}Y
Nb	41	-	-	16,52	16,62	18,62	18,95	^{95}Zr
Ag	47	-	-	21,99	22,16	24,94	25,46	^{109}Cd
Cd	48	-	-	22,98	23,17	26,10	26,64	Fluorescence
In	49	-	-	24,00	24,21	27,28	27,86	Fluorescence
Sn	50	-	-	25,04	25,27	28,49	29,10	Fluorescence
Ba	56	-	-	31,82	32,19	36,38	37,26	^{137}Cs
La	57	-	-	33,03	33,44	37,80	38,73	^{139}Ce
Sm	62	-	-	39,52	40,12	45,41	46,58	^{152}Eu
W	74	-	-	57,98	59,32	67,24	69,07	auto-fluorescence
Tl	81	-	-	70,83	72,87	82,57	84,87	^{203}Hg , $^{211,212}\text{Bi}$
Pb	82	-	-	72,80	74,97	84,94	87,30	Fluorescence, ^{208}Tl , ^{214}Po
Bi	83	-	-	74,82	77,11	87,35	89,78	$^{211,212,214}\text{Pb}$
Po	84	-	-	76,86	79,29	89,81	92,32	$^{212,214}\text{Bi}$, ^{219}Rn
Rn	86	-	-	81,07	83,79	94,87	97,53	$^{223,224}\text{Ra}$
Ra	88	12,34	15,24	85,43	88,47	100,13	102,95	^{227}Th
Th	90	12,97	16,20	80,96	93,35	105,60	108,58	^{235}U
Pa	91	13,29	16,71	92,28	95,86	108,42	111,49	$^{231,234}\text{Th}$
U	92	13,62	17,22	94,65	98,43	111,30	114,45	$^{233,234m}\text{Pa}$, Pu, Np (isotopes)
Np	93	13,95	17,75	97,07	101,06	114,23	117,46	Isotopes Am, ^{237}Pu
Pu	94	14,28	18,30	99,53	103,73	117,23	120,54	Isotopes Np
Am	95	14,62	18,86	102,03	106,47	120,28	123,68	^{243}Pu

TABLE 1.2 – Rayons X (keV) et leurs éventuelles origines, fréquemment rencontrés lors des analyses en spectrométrie γ [Gilmore 2008].

1.3 Radioactivité naturelle

La radioactivité naturelle est omniprésente et a toujours existé sur la Terre. D'origine à la fois terrestre et cosmique (Soleil, galaxies et étoiles), elle constitue pour l'homme une source d'exposition non négligeable qui dépend des lieux et des modes de vie des populations.

On distingue deux catégories de radionucléides naturels :

- **Les radionucléides primordiaux** existant au moment de la formation de la Terre ($\sim 4,5$ milliards d'années) et qu'on trouve encore dans l'écorce terrestre. On recense une trentaine de radionucléides primordiaux qu'on peut classer selon leurs périodes. Le premier groupe est constitué de radionucléides dont la période est inférieure à 10^{12} ans (table 1.3). Il regroupe les trois chaînes radioactives naturelles à savoir ^{235}U , ^{238}U et ^{232}Th . Dans ce groupe figurent aussi le ^{40}K et le ^{87}Rb . Ce dernier subit uniquement la désintégration β^- (283,3 keV, il n'est pas détecté par la spectrométrie γ .) Le deuxième groupe englobe les radio-isotopes avec une période au-delà de 10^{12} ans. Il présente une singularité par la présence de l'isomère métastable ^{180m}Ta d'une période record de 10^{15} ans. A cause de leurs longues périodes, la probabilité de désintégration est faible. Le troisième groupe est caractérisé par des périodes encore plus longues, on y trouve des modes de double désintégration β .
- **Les radionucléides d'origine cosmique** ou cosmonucléides qui se forment par l'action des rayons cosmiques sur des noyaux d'atomes présents dans notre environnement, on parle de radionucléides naturels induits.

Notre système solaire est perpétuellement bombardé par des particules chargées, de hautes énergies, constituant un rayonnement cosmique primaire. L'interaction de ces rayonnements avec l'oxygène, l'azote et l'argon de l'atmosphère donne un ensemble complexe de particules secondaires (protons, neutrons, ...) et de photons. Les particules produites réagissent à leur tour pour donner des gerbes de cascade nucléonique dans l'atmosphère. Les pions neutres (durée de vie courte) se désintègrent en deux photons [Le Petit 2002], qui à leurs tours créent des paires (e^+ , e^-). L'intensité du rayonnement cosmique varie en fonction de l'altitude et de la latitude et de l'activité solaire. Outre l'exposition externe due au rayonnement cosmique, les particules « cosmogéniques » produites lors des interactions dans l'atmosphère (^{14}C et ^3H essentiellement) peuvent être ingérer ou inhaler et donner lieu à une faible exposition interne pour l'homme.

L'exposition externe due à cette radioactivité tellurique et de tous les matériaux qui en sont issus (matériaux de construction) dépend fortement de la nature des sols : les sols granitiques sont généralement plus riches en radioéléments naturels que les sols sédimentaires. L'exposition interne résulte de l'incorporation des substances radioactives, soit par inhalation, soit par ingestion via l'eau et les aliments. Parmi les radionucléides à l'origine de l'exposition interne du public, les isotopes du radon et leurs descendants représentent la contribution la plus importante (34 % de l'exposition totale) [Christine Jimonet 2009]. L'exposition au radon est due à sa présence dans l'atmosphère des bâtiments, l'exposition à l'air libre n'apportant qu'une faible contribution en général. Les niveaux de radon dans les bâtiments dépendent de nombreux facteurs : géologiques, climatiques, architecturaux et du mode de vie des occupants. Dans certaines régions du monde, la radioactivité ambiante est naturellement très élevée en raison de la forte teneur des sols en radium ou en thorium : par exemple, sur les sables de

Nucléides	Abondance	Période	Mode de désintégration	
			principal	secondaire
^{235}U	0,72 %	$7,038 \times 10^8$ a	α	
^{40}K	0,0117 %	$1,277 \times 10^9$ a	β^- (89,3%)	CE, β^+ (10,7%)
^{238}U	99,2745 %	$4,468 \times 10^9$ a	α	
^{232}Th	100 %	$1,405 \times 10^{10}$ a	α	
^{176}Lu	2,59 %	$3,78 \times 10^{10}$ a	β^-	
^{187}Re	62,60 %	$4,35 \times 10^{10}$ a	β^-	
^{87}Rb	27,84 %	$4,75 \times 10^{10}$ a	β^-	
^{138}La	0,09%	$1,05 \times 10^{11}$ a	CE, β^+ (66,4%)	β^- (33,6%)
^{147}Sm	15 %	$1,06 \times 10^{11}$ a	α	
^{190}Pt	0,01%	$6,50 \times 10^{11}$ a	α	
^{123}Te	0,908%	1×10^{13} a	CE	
^{184}Os	0,02%	$5,60 \times 10^{13}$ a	α (?)	
^{152}Gd	0,02%	$1,08 \times 10^{14}$ a	α	
^{115}In	95,7%	$4,41 \times 10^{14}$ a	β^- s	
^{180m}Ta	0,012%	$1,2 \times 10^{15}$ a	CE (86%)	β^- (14%)
^{149}Sm	13,8 %	2×10^{15} a	α	
^{174}Hf	0,162 %	2×10^{15} a	α	
^{186}Os	1,58%	2×10^{15} a	α	
^{144}Nd	23,8%	$2,3 \times 10^{15}$ a	CE, β^+	
^{148}Sm	11,3 %	7×10^{15} a	α	
^{113}Cd	12,22 %	$7,7 \times 10^{15}$ a	β^-	
^{142}Ce	11,08%	$5,6 \times 10^{16}$ a	$\beta^- \beta^-$	
^{183}W	14,3%	$1,1 \times 10^{17}$ a	α	
^{50}V	0,25%	$1,4 \times 10^{17}$ a	CE, β^+ (83%)	β^- (17%)
^{204}Pb	1,4%	$1,4 \times 10^{17}$ a	α	
^{50}Cr	4,345%	$1,8 \times 10^{17}$ a	CE-CE	
^{184}W	30,67%	$3,10 \times 10^{17}$ a	α	
^{82}Se	8,73%	$1,08 \times 10^{20}$ a	$\beta^- \beta^-$	
^{130}Te	33,8%	$7,9 \times 10^{20}$ a	$\beta^- \beta^-$	
^{128}Te	31,69%	$2,2 \times 10^{24}$ a	$\beta^- \beta^-$	

TABLE 1.3 – Les radionucléides primordiaux, classés par périodes croissantes [Chalet 2006]

monazite riches en thorium d’Espírito Santo au Brésil ou sur les terrains d’alluvions riches en radium dans la région de Ramsar en Iran.

1.3.1 De la radioactivité naturelle à la radioactivité naturelle renforcée

Le bruit de fond dû à la radioactivité naturelle a toujours existé et en moyenne l’exposition totale subie par l’homme a sans doute peu varié au cours du temps. Ainsi, le plus grand confinement dans les bâtiments recherché en particulier dans le cadre des économies d’énergie est responsable d’une augmentation de la concentration en radon. De la même façon, l’utilisation d’engrais phosphatés riches en radium ou encore de stériles de minerais d’uranium comme remblais sur les routes peut créer localement un renforcement du niveau initial de la radioactivité. Par ailleurs, certains objets de grande consommation contenant du radium ont été mis sur le marché avant d’être aujourd’hui interdits : montres lumineuses, paratonnerres, parasurtenseurs, ...

1.3.2 La radioactivité artificielle

Après la découverte de la radioactivité artificielle par Irène et Frédéric Joliot-Curie en 1934, les sources artificielles se sont diversifiées pour satisfaire de nombreuses applications dans tous les secteurs, allant de la médecine à l’industrie en passant par les applications militaires.

Le cycle électronucléaire comporte de multiples étapes susceptibles de générer une exposition pour l’homme : l’extraction et le traitement du minerai, l’enrichissement de l’uranium, la conversion et la fabrication du combustible, les centrales nucléaires, le retraitement du combustible, le démantèlement des installations et la gestion des déchets.

Dans l’industrie non nucléaire, des sources sont utilisées pour de nombreuses applications : l’irradiation industrielle (stérilisation des aliments et du matériel médical, production des produits radiopharmaceutiques, durcissement de composants électroniques, ...), l’analyse non destructive (radiographie industrielle), la mesure à l’aide de jauges d’épaisseur ou de niveau, d’humidimètres, d’analyseurs à diffraction X (contrôle du plomb dans les peintures), l’utilisation de traceurs...

Dans le domaine médical, on utilise des sources externes de rayonnements ionisants à des fins diagnostiques (radiographie conventionnelle, scanographie, radiologie interventionnelle), mais aussi des sources internes en médecine nucléaire (diagnostic par scintigraphie ou thérapie par radioisotope). Enfin des doses très élevées sont délivrées lors de traitements par radiothérapie externe ou par curiethérapie.

Dans le secteur militaire, les applications concernent les activités liées à la production des armes et celles liées à la propulsion des navires à l’aide de réacteurs embarqués.

Enfin, des sources sont utilisées dans d’autres secteurs : la médecine vétérinaire, les établissements de recherche et d’enseignement (universités, CEA, CNRS, INSERM, ...).

Toutes les activités décrites ci-dessus utilisent des sources de rayonnements qui peuvent exposer les travailleurs concernés et la population. Dans les conditions normales, les doses qui

en résultent restent faibles. Des accidents peuvent malheureusement se produire, entraînant parfois l'exposition aiguë d'une ou quelques personnes. Des accidents de plus grande ampleur comme ceux de Fukushima en mars 2011 et de Tchernobyl en avril 1986 peuvent aussi avoir un impact sanitaire sur la population et l'environnement à plus long terme.

1.4 Familles radioactives

Les noyaux qui donnent lieu à des désintégrations successives α et/ou β ont été regroupés en 3 familles naturelles (figure 1.4) de décroissance radioactive dont les précurseurs sont ^{238}U , ^{235}U , ^{232}Th . Ces trois actinides sont considérés parmi les éléments chimiques naturels les plus lourds de la classification périodique. En raison de leurs très longues périodes, ces trois radionucléides sont toujours présents dans la nature et font par conséquent partie intégrante de notre environnement. Un bon nombre de leurs descendants respectifs tel que le ^{226}Ra font l'objet d'étude dans une partie de ce travail ; il s'agit de déterminer leurs activités spécifiques dans des matériaux de construction.

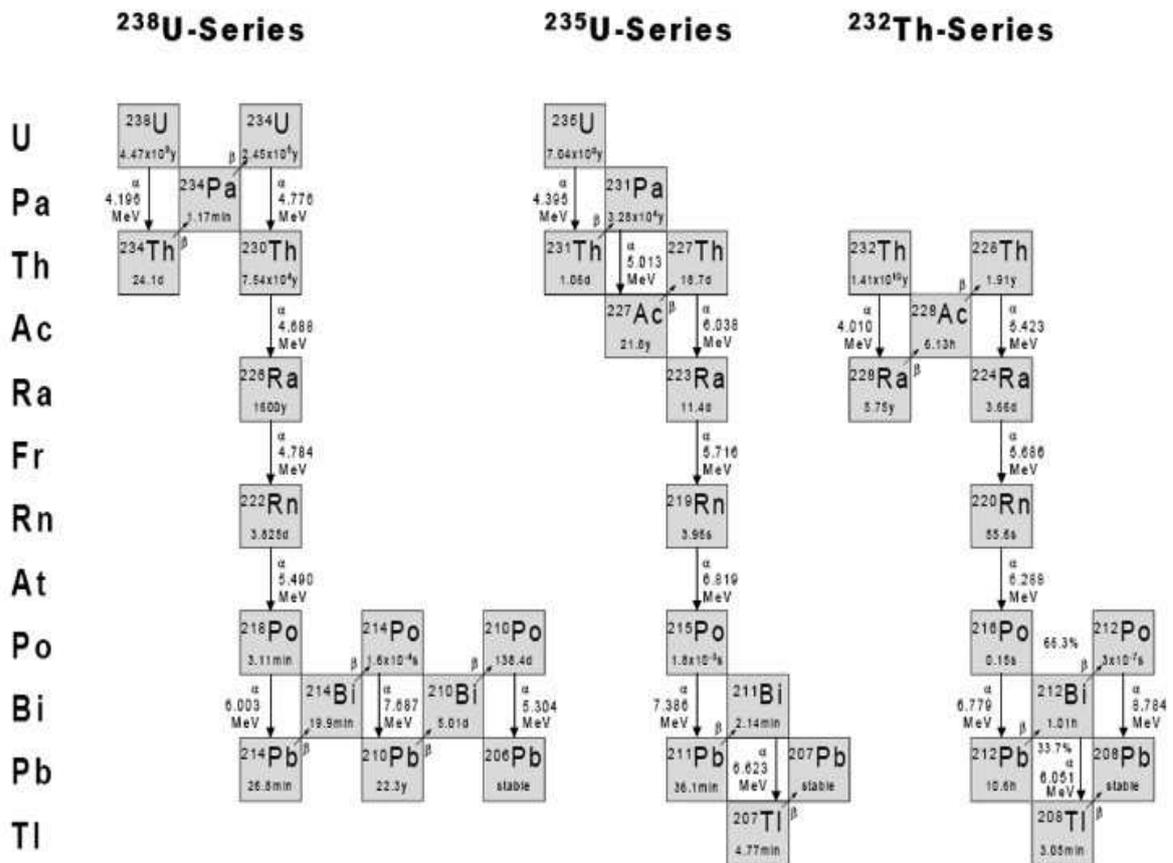


FIGURE 1.4 – Chaînes radioactives naturelles de ^{238}U , ^{235}U et ^{232}Th .

1.4.1 Série ^{238}U (4n+2)

L'abondance de l' ^{238}U constitue 99,27 % de l'uranium naturel. Sa décroissance jusqu'au ^{206}Pb stable est un processus qui s'étale sur 14 désintégrations avec émission de 8 particules α et 6 particules β .

1.4.2 Série ^{235}U (4n+3)

L'abondance de l' ^{235}U représente uniquement 0,72 % de l'uranium naturel. Sa décroissance est le siège de 11 désintégrations dont 7 émissions α et 4 émissions β . La mesure par spectrométrie gamma de sa raie principale (185,72 keV) coïncide, étant donné la résolution, avec celle du ^{226}Ra (186,21 keV) ce qui induit des problèmes d'interférences dans l'analyse des échantillons.

1.4.3 Série ^{232}Th (4n)

L'abondance du ^{232}Th constitue la totalité du thorium naturel. Durant la décroissance des différents noyaux constituant la chaîne, 6 particules α et 4 β sont émises. Environ 36% de la décroissance du ^{212}Bi produit le ^{208}Tl par émission α .

Les trois séries produisent 33 radio-isotopes et 3 isotopes stables. Tous les éléments de ces chaînes ont des propriétés chimiques différentes et des périodes de décroissance radioactive très variées, ce qui confère à chaque radio-isotope son propre comportement géochimique dans l'environnement. Cette particularité est exploitée pour répondre à de nombreuses problématiques telles que le traçage isotopique, les applications radio-chronologiques, géochimiques et thermodynamiques d'échanges aux interfaces.

1.5 Filiations radioactives

On appelle filiation radioactive la série de désintégrations en cascade que subissent certains noyaux. Dans la nature, les filiations radioactives concernent principalement trois éléments lourds dont le temps de vie est de l'ordre du milliard d'années : ^{238}U , ^{235}U , et ^{232}Th . Autrement dit, on parle de filiation radioactive lorsque le noyau fils est également radioactif. Chacune des désintégrations est caractérisée par sa propre constante de désintégration λ qui est liée à la période. Le passage du noyau père au noyau fils est caractérisé par les équations d'évolution. Dans le cas d'une filiation à n corps :

$$X_1 \xrightarrow{\lambda_1} X_2 \xrightarrow{\lambda_2} X_3 \xrightarrow{\lambda_3} \dots \xrightarrow{\lambda_{n-1}} X_{n-1} \xrightarrow{\lambda_n} X_n \quad (1.9)$$

où X_n est l'isotope stable de la filiation radioactive. L'évolution des populations des noyaux pères et des noyaux fils en fonction du temps est régie par les équations différentielles :

$$\frac{dN_1}{dt} = -\lambda_1 N_1 \quad (1.10)$$

$$\frac{dN_i}{dt} = \lambda_{i-1} N_{i-1} - \lambda_i N_i \quad (1.11)$$

La solution générale est donnée par la relation de Bateman [Evans 1955] :

$$N_n(t) = C_1 e^{-\lambda_1 t} + C_2 e^{-\lambda_2 t} + \dots + C_n e^{-\lambda_n t} \quad (1.12)$$

$$C_1 = \frac{\lambda_2}{(\lambda_2 - \lambda_1)} \frac{\lambda_3}{(\lambda_3 - \lambda_1)} \dots \frac{\lambda_{n-1}}{(\lambda_{n-1} - \lambda_1)} \frac{\lambda_n}{(\lambda_n - \lambda_1)} = \prod_{i \neq 1} \frac{\lambda_i}{\lambda_i - \lambda_1}$$

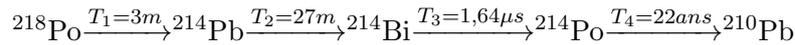
$$C_2 = \frac{\lambda_1}{(\lambda_1 - \lambda_2)} \frac{\lambda_3}{(\lambda_3 - \lambda_2)} \dots \frac{\lambda_{n-1}}{(\lambda_{n-1} - \lambda_2)} \frac{\lambda_n}{(\lambda_n - \lambda_2)} = \prod_{i \neq 2} \frac{\lambda_i}{\lambda_i - \lambda_2}$$

$$C_n = \frac{\lambda_1}{(\lambda_1 - \lambda_n)} \frac{\lambda_2}{(\lambda_2 - \lambda_n)} \dots \frac{\lambda_{n-1}}{(\lambda_{n-1} - \lambda_n)} = \prod_{i \neq n} \frac{\lambda_i}{\lambda_i - \lambda_n}$$

1.5.1 Equilibres radioactifs

Les radio-isotopes ^{238}U ou ^{232}Th existants dans l'environnement sont intimement mélangés avec leurs descendants respectifs [Chalet 2006]. Selon leurs constantes de désintégration, les descendants peuvent être en équilibre ou pas avec le noyau père. A titre d'exemple, la présence du radon (gaz) dans les trois familles radioactives naturelles affecte l'équilibre de ces dernières. En effet, il peut altérer l'activité et la dose émanant d'un échantillon. Les radio-isotopes ^{219}Rn (actinon émanant du ^{223}Ra) et ^{220}Rn (émanant du ^{224}Ra) ayant des périodes respectives de 3,96 s et 55,8 s, même si le radon s'échappe, l'équilibre est atteint de nouveau dans quelques minutes, contrairement au ^{222}Rn (émanant du ^{226}Ra) dont la période est de 3,8 jours. Pour retrouver l'équilibre entre l' ^{238}U et les radionucléides post- ^{222}Rn , 10 périodes de ^{222}Ra sont nécessaires.

La figure 1.5 illustre la chaîne de décroissance des descendants de ^{222}Rn provenant de la famille ^{238}U .



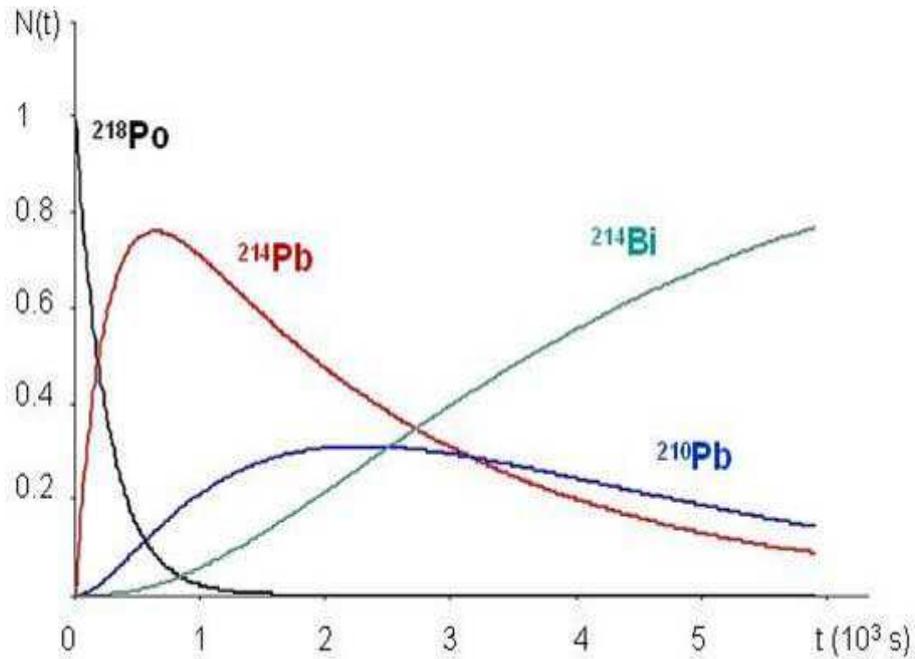
On distingue trois types d'équilibres :

1.5.1.1 Equilibre idéal

Dans le cas d'une filiation à 3 corps ($X_1 \xrightarrow{\lambda_1} X_2 \xrightarrow{\lambda_2} X_3$), l'équilibre idéal est atteint lorsque les activités des noyaux fils et père sont égales. Dans l'hypothèse où $N_2(0) = 0$, le temps maximum nécessaire pour atteindre cet équilibre est donné par [Chalet 2006] :

$$t_m = \frac{\ln\left(\frac{\lambda_1}{\lambda_2}\right)}{(\lambda_1 - \lambda_2)} \quad (1.13)$$

où λ_1 et λ_2 sont respectivement les constantes de désintégration des noyaux père et fils.

FIGURE 1.5 – Chaîne de décroissance de descendants du ^{222}Rn .

1.5.1.2 Equilibre de régime

Cet équilibre est à considérer lorsque la période du noyau père est légèrement supérieure à celle du noyau fils. Les activités des deux nucléides évoluent en restant dans un rapport constant. L'activité du noyau fils est reliée à celle du père par :

$$\frac{A_1}{A_2} \approx \frac{\lambda_2}{\lambda_2 - \lambda_1} \quad (1.14)$$

1.5.1.3 Equilibre séculaire

Cet équilibre est atteint lorsque la période du noyau père est très longue devant celles des noyaux fils. Il est atteint à environ 10 périodes du noyau fils.

$$\frac{A_2}{A_1} \approx 1 \quad (1.15)$$

1.6 Rayonnements ionisants et leurs interactions avec la matière

1.6.1 Classification des rayonnements ionisants

Les rayonnements ionisants sont ceux qui ont une énergie suffisante pour ioniser l'air, soit supérieure à l'énergie de liaison des électrons (environ 10 eV au minimum). Dans le décret n° 2002-460 [Christine Jimonet 2009] est donnée la définition suivante : « Un rayonnement ionisant est un transport d'énergie sous la forme de particules ou d'onde électromagnétique d'une longueur d'onde inférieure ou égale à 100 nm, soit d'une fréquence supérieure ou égale à 3×10^{15} Hz, pouvant produire des ions directement ou indirectement ». On rappelle la relation liant l'énergie E exprimée en eV à la longueur d'onde du γ exprimée en nm. La figure 1.6 illustre le spectre électromagnétique.

$$E(\text{eV}) = h\nu = \frac{1240}{\lambda(\text{nm})} \quad (1.16)$$

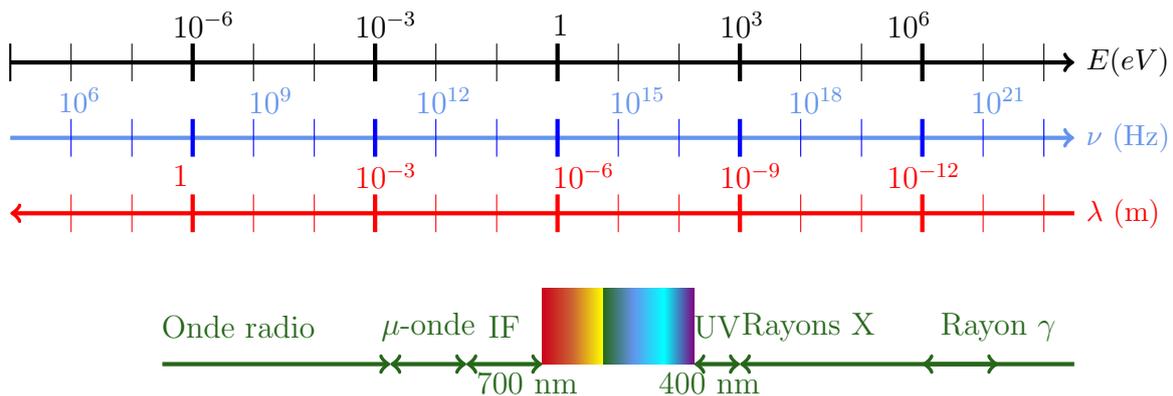


FIGURE 1.6 – Classification des radiations électromagnétiques selon leur énergie, fréquence et longueur d'onde.

Parmi les rayonnements ionisants, on distingue ceux qui sont directement ionisants, particules chargées (α , β , muons, fragments de fission, ions, ...), de ceux qui sont indirectement ionisants (γ , neutrons). Ces derniers n'ionisent la matière que par l'intermédiaire de particules chargées secondaires qu'ils créent dans le milieu.

La table 1.4 ci-après résume les caractéristiques de ces rayonnements et les types d'interactions mis en jeu [Christine Jimonet 2009].

Pour rester dans le domaine de la spectrométrie γ on va s'intéresser uniquement à l'interaction des rayonnements électromagnétiques avec la matière.

1.6.2 Interaction photon-matière

Nous avons vu précédemment que le terme « photon » concerne les rayonnements électromagnétiques émis soit dans les transitions nucléaires « γ », soit dans les transitions atomiques « X ». La traversée des matériaux par les photons est associée à une probabilité

Nature du rayonnement	Processus d'interaction	Conséquences
Particules chargées α, β	Ionisation	Mouvement d'électrons du matériau absorbant
	Excitation	Emission des rayons X et/ou e^- Auger suite au réarrangement électronique
	Rayonnement de freinage (β)	Emission d'un rayonnement γ et X de freinage (X)
	Fin de parcours des β^+ : annihilation de la matière	Emission 2γ de 511 keV en sens opposé
Rayonnements γ, X	Effet photoélectrique (faibles énergies)	Absorption totale du photon incident et photoélectron Réorganisation électronique Emission de X et ou e^- Auger
	Effet Compton (énergies intermédiaires)	Diffusion du photon incident et éjection d'un e^- Compton Emission des rayons X et/ou e^- Auger suite au réarrangement
	Production de paire ($E \geq 1022$ keV)	Absorption totale du photon incident et mouvement (e^-, e^+) Emission 2γ de 511 keV en sens opposé
Neutron	Absorption n (thermique)	Emission des rayonnements : n, p, α et γ
	Diffusion n (rapide)	Diffusion du n incident projection du noyau de recul

TABLE 1.4 – Types d'interactions rayonnement-matière et leurs conséquences.

d'interaction avec ce milieu. Ces interactions aléatoires dépendent de l'énergie du photon, de la densité et la composition du milieu. Elles peuvent être classées selon :

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

Dans notre application, d'autres processus d'interaction moins importants peuvent se produire avec un photon, en l'occurrence la diffusion Rayleigh avec un électron lié, la diffusion Thomson avec un électron libre ou la diffusion Delbrück avec le champ coulombien du noyau.

Dans la figure 1.7 sont représentées les importances relatives des différents processus d'interaction en fonction de l'énergie et du Z du milieu traversé. L'effet photoélectrique prédomine à basse énergie, la création de paire (e^- , e^+) est prépondérante pour les hautes énergies et la diffusion Compton pour des énergies intermédiaires.

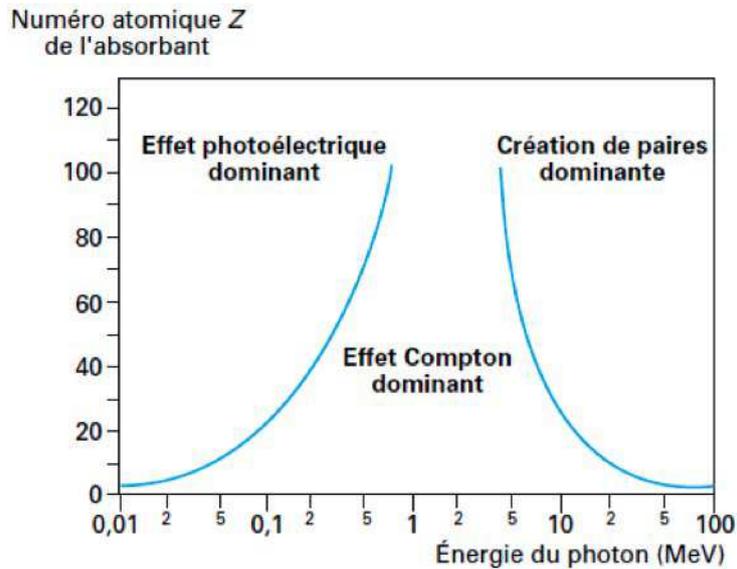


FIGURE 1.7 – Types d'interaction prépondérants suivant l'énergie du photon et le numéro atomique Z du milieu [Bourgeois 1998].

1.6.2.1 Effet photoélectrique

L'interaction d'un photon avec la matière se traduit par le transfert total de son énergie à un électron du cortège électronique. Ce processus est prépondérant en dessous d'une centaine de keV (figure 1.8)

$$E_e = E_\gamma - B \quad (1.17)$$

où E_e l'énergie cinétique de l'électron arraché, E_γ représente l'énergie du photon incident et B l'énergie de liaison de l'électron dans les couches les plus profondes de l'atome. Cette dernière varie selon le nombre atomique ($B \cong 13,6$ eV pour $Z = 1$ et $B \cong 142$ keV pour $Z = 100$). La section efficace d'interaction dépend du nombre atomique Z et de l'énergie du photon incident E_γ suivant une loi de type :

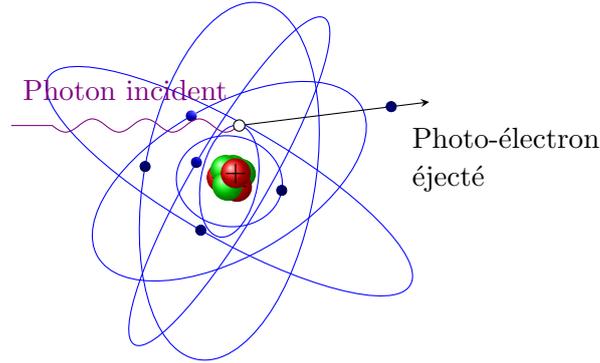


FIGURE 1.8 – Effect photoélectrique.

$$\sigma_{pe} \propto \frac{Z^n}{E_\gamma^m} \quad (1.18)$$

avec $1 \leq m \leq 3,5$ ($m=3,5$ à basse énergie et $m = 1$ pour $E_\gamma > 0,5$ MeV) et $4 \leq n \leq 5$ ($n=4,5$ en moyenne et $n= 3$ pour $E_\gamma \leq B_K$ et $n = 5$ pour $E_\gamma > B_K$, B_K étant l'énergie de liaison de l'électron dans la couche K). Dans ce dernier cas l'effet photoélectrique se produit à 80 % sur cette couche [Métivier 2006].

Suite à l'ionisation, l'atome a un excès d'énergie qui équivaut à l'énergie de liaison de l'électron. Cet excès est dissipé de deux façons : redistribution sur les électrons restants (cascade d'Auger) qui sera suivie par l'émission d'un autre électron (non radiative) ou par désexcitation en émettant des rayons X par fluorescence.

1.6.2.2 Diffusion Compton

La diffusion Compton est aussi appelée diffusion incohérente. C'est le transfert partiel de l'énergie du photon incident à un électron du cortège électronique faiblement lié (libre). La figure 1.9 illustre le phénomène.

Le photon Compton peut être diffusé selon l'angle $0 \leq \theta \leq \pi$ par rapport à la direction incidente avec une énergie E'_γ . L'électron Compton recule selon l'angle $0 \leq \theta \leq \frac{\pi}{2}$ avec une énergie cinétique E_e . La conservation de l'énergie totale et de l'impulsion donne :

$$E'_\gamma = \frac{E_\gamma}{1 + \varepsilon(1 - \cos\theta)} \quad (1.19)$$

avec $\varepsilon = \frac{E_\gamma}{E_0}$ l'énergie réduite et $E_0 = m_e c^2 = 0,511$ MeV, l'énergie de l'électron au repos. Selon l'angle de diffusion l'énergie du photon Compton est comprise entre $\frac{E_\gamma}{1+2\varepsilon}$ pour $\theta = \pi$ (c'est la rétrodiffusion) et E_γ pour $\theta = 0$ (pas de transfert de l'énergie).

L'électron est éjecté avec une énergie cinétique donnée par :

$$E_e = E_\gamma - E'_\gamma = \frac{\varepsilon(1 - \cos\theta)}{1 + \varepsilon(1 - \cos\theta)} E_\gamma \quad (1.20)$$

L'énergie cinétique de l'électron est comprise entre 0 pour $\theta = 0$ et $\frac{2\varepsilon}{1+2\varepsilon}$ pour $\theta = \pi$.

La diffusion du photon et l'éjection de l'électron Compton est régie par une relation angulaire

entre θ et ϕ .

$$\cot \phi = -\left(1 + \frac{E_{\gamma'}}{E_{\gamma}}\right) \tan \frac{\theta}{2} \quad (1.21)$$

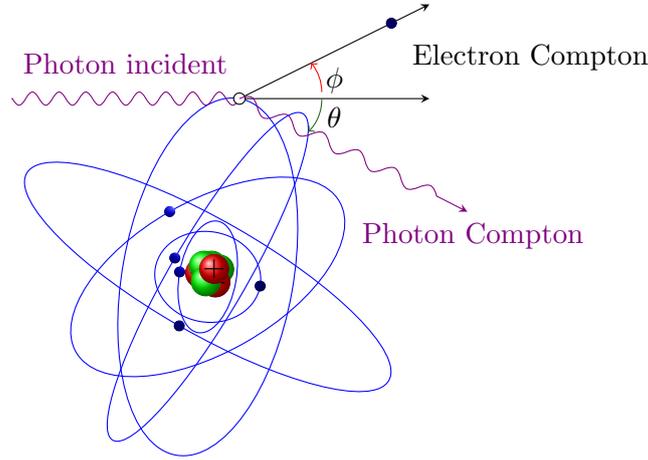


FIGURE 1.9 – Diffusion Compton.

Le caractère non isotrope de la diffusion Compton est formulé par l'équation de Klein et Nishina où est exprimée la section efficace différentielle par angle solide $d\Omega$ pour un électron [Blanc 1997].

$$\frac{d\sigma}{d\Omega}(\varepsilon, \theta) = \frac{r_0^2}{2} \frac{1}{(1 + \varepsilon(1 - \cos\theta))^2} \left(1 + \cos^2\theta + \frac{\varepsilon^2(1 - \cos\theta)^2}{1 + \varepsilon(1 - \cos\theta)} \right) \quad (1.22)$$

avec r_0 le rayon classique de l'électron.

L'énergie du photon incident se répartit entre l'énergie cinétique de l'électron Compton, qui est absorbée par le milieu avec une section efficace σ_{abs} , et l'énergie du photon diffusé avec la section efficace σ_{dif} , et qui peut s'échapper du milieu. Par conséquent la section efficace Compton s'écrit :

$$\sigma_c = \sigma_{abs} + \sigma_{dif} \quad (1.23)$$

Dans le cas où le photon diffusé s'échappe du milieu, selon son angle de diffusion, l'énergie cédée au milieu ne dépasse pas l'énergie maximale de l'électron mentionnée ci-dessus. Cela se traduit par le plateau Compton observé dans les spectres γ .

La probabilité pour qu'un photon interagisse avec un atome est proportionnelle au nombre de charge Z . Pour un matériau donné, cette probabilité est proportionnelle à la densité d'électrons. La section efficace de l'effet Compton pour une énergie donnée est proportionnelle à la densité du matériau. Constante à basse énergie, elle diminue lorsque l'énergie augmente :

$$\sigma_c \propto \frac{Z}{E_{\gamma}} \quad (1.24)$$

La figure 1.10 représente le profil de la distribution angulaire des photons diffusés pour des énergies allant de 50 keV à 3 MeV. Les photons incidents viennent de la gauche. La diffusion des photons se fait vers l'avant pour les hautes énergies.

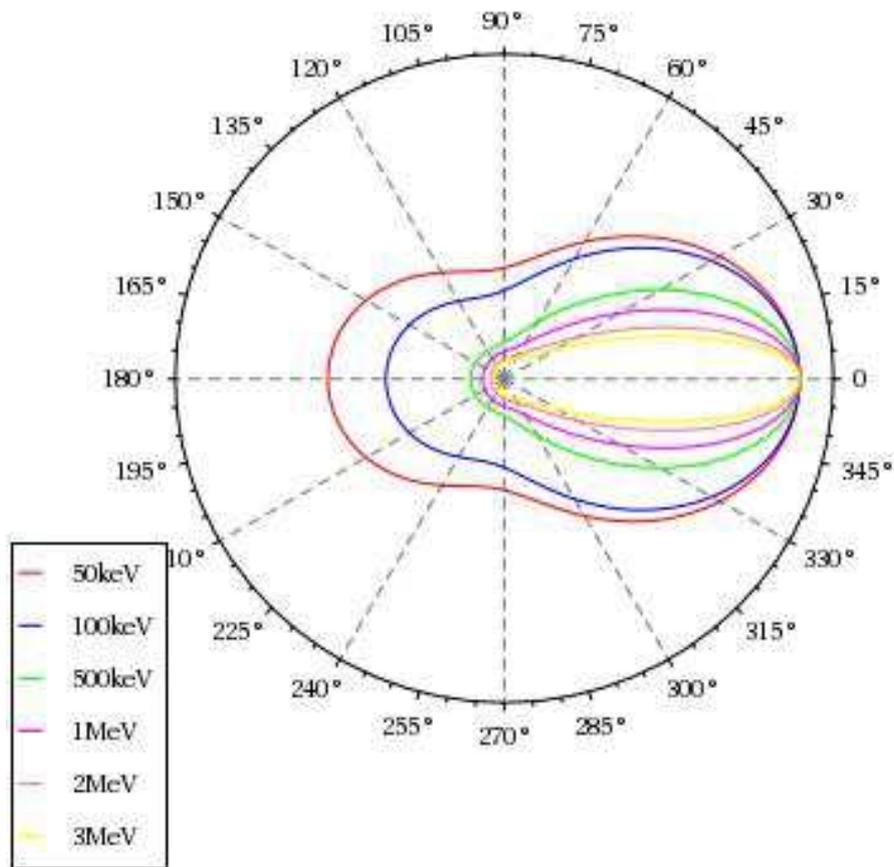


FIGURE 1.10 – Section efficace différentielle de l'effet Compton en fonction de l'énergie du photon incident et de l'angle solide.

1.6.2.3 Création de paire

La création de paire est un processus qui se produit dans le champ coulombien du noyau. La matérialisation du photon incident se traduit par la création d'une paire électron-positron (figure 1.11). Cette réaction devient possible dans le cas où $E_\gamma \geq 2E_0 = 1,022 \text{ MeV}$. Il est à noter que la production d'une paire peut aussi se produire dans le champ d'un électron même si la probabilité est faible. Dans ce cas, le seuil de l'énergie E_γ est de $4E_0$.

Si on désigne par E_{e^-} et E_{e^+} respectivement les énergies cinétiques de l'électron et du positron, la loi de conservation de l'énergie s'écrit :

$$E_{e^-} + E_{e^+} = E_\gamma - 2E_0 \quad (1.25)$$

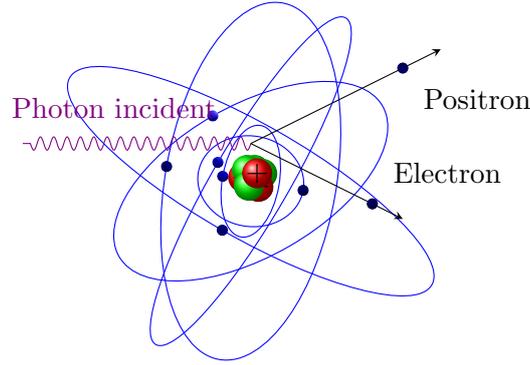


FIGURE 1.11 – Création de paire.

La section efficace d'interaction dépend de l'énergie du photon incident et du Z du milieu traversé. Elle varie en Z^2 pour les interactions dans le champ coulombien du noyau et en Z pour les interactions dans le champ coulombien de l'électron. La section efficace est donnée pour un noyau sans et avec effet d'écran par les relations.

$$\sigma_{\text{paire}} = \begin{cases} \alpha r_0^2 Z^2 \left[\frac{28}{9} \ln \left(\frac{2E_\gamma}{E_0} \right) - \frac{218}{27} \right] & \text{si } 2E_0 \ll E_\gamma \ll \frac{E_0}{\alpha} Z^{-1/3} \\ \alpha r_0^2 Z^2 \left[\frac{28}{9} \ln (183 \cdot Z^{-1/3}) - \frac{2}{27} \right] & \text{si } E_\gamma \gg \frac{E_0}{\alpha} Z^{-1/3} \end{cases}$$

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

1.6.3 Atténuation et libre parcours moyen

L'atténuation est la diminution de l'intensité d'un faisceau de photons lorsqu'il traverse un milieu. Elle suit une loi exponentielle décroissante entre le nombre de photons incidents I_0 et le nombre de photons transmis I à travers un milieu d'épaisseur x .

$$I(x) = I_0 \cdot e^{-\mu x} \quad (1.26)$$

La partie exponentielle désigne la fraction de photons qui n'ont pas interagi dans le milieu, on parle de facteur de transmission.

Le coefficient d'atténuation linéique μ dépend de l'énergie du photon et de la nature du milieu. Il est lié à la section efficace totale d'interaction σ_{tot} :

$$\mu = n\sigma_{\text{tot}} = n(\sigma_{pe} + \sigma_c + \sigma_{\text{pair}}) \quad (1.27)$$

avec σ_{pe} , σ_c et σ_{pair} les sections efficaces liées aux différents processus d'interaction photonique,

et n le nombre d'atomes par unité de volume :

$$n = \frac{\rho \cdot N_A}{M} \quad (1.28)$$

ρ étant la masse volumique, N_A le nombre d'Avogadro et M la masse molaire.

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

$$\lambda = \frac{1}{\mu} \quad (1.29)$$

Dans la pratique, et plus particulièrement en radioprotection, on utilise la couche de demi-atténuation ou épaisseur moitié $x_{\frac{1}{2}}$, l'épaisseur de matériau nécessaire pour atténuer d'un facteur 2 l'intensité initiale des photons :

$$x_{\frac{1}{2}} = \frac{\ln 2}{\mu} \quad \text{et} \quad I(nx_{\frac{1}{2}}) = \frac{I_0}{2^n} \quad (1.30)$$

De la même manière, on définit la couche de déci-atténuation ou épaisseur dixième $x_{\frac{1}{10}}$, l'épaisseur de matériau nécessaire pour atténuer l'intensité d'un facteur 10 :

$$x_{\frac{1}{10}} = \frac{\ln 10}{\mu} \quad \text{et} \quad I(nx_{\frac{1}{10}}) = \frac{I_0}{10^n} \quad (1.31)$$

Ces deux grandeurs sont reliées par :

$$\mu = \frac{\ln 2}{x_{\frac{1}{2}}} = \frac{\ln 10}{x_{\frac{1}{10}}} \quad (1.32)$$

Pour les photons γ dont l'énergie est comprise entre 1 et 3 MeV, on peut estimer l'épaisseur dixième en cm :

$$x_{\frac{1}{10}} \approx \frac{35}{\rho} \quad (1.33)$$

ρ étant la masse volumique du milieu ralentisseur, exprimée en g.cm^{-3} . Les valeurs des coefficients massiques μ/ρ exprimées en $\text{cm}^2.\text{g}^{-1}$ sont disponibles dans la littérature [Berger 005]. Les figures 1.12, 1.13, 1.14 montrent les atténuations dans les trois matériaux couramment utilisés en spectrométrie γ , en l'occurrence, l'eau (matrice étalon), le plomb (blindage) et le germanium (cristal du détecteur).

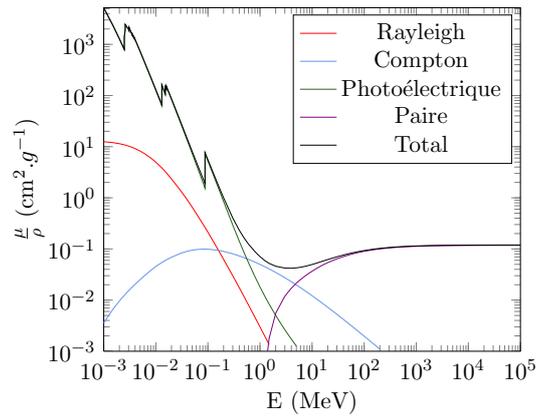


FIGURE 1.12 – Coefficients massiques d'atténuation total et partiels pour le plomb.

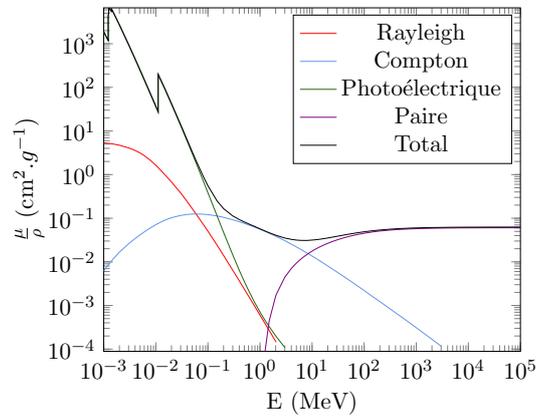


FIGURE 1.13 – Coefficients massiques d'atténuation total et partiels pour le germanium.

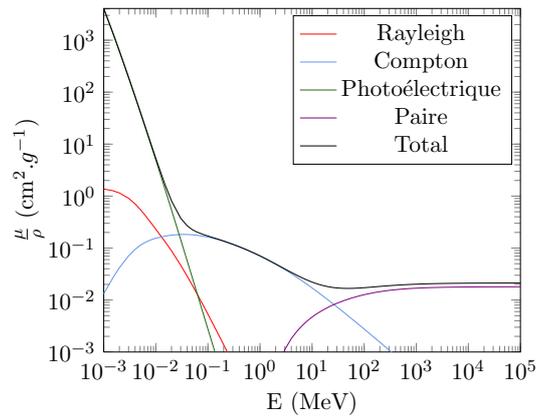


FIGURE 1.14 – Coefficients massiques d'atténuation total et partiels pour l'eau.

1.7 Mesure par spectrométrie gamma

De nombreuses techniques d'analyse élémentaire sont fondées sur l'utilisation de spectres de raies atomiques ou nucléaires. Pour pouvoir identifier les raies émises et mesurer leurs intensités, il est nécessaire de les détecter. Dans ce travail, nous avons fait appel à la méthode de spectrométrie γ de haute résolution.

Les radionucléides fréquemment utilisés pour l'estimation de la radioactivité naturelle sont : ^{235}U , ^{238}U et ^{232}Th , leurs descendants et ^{40}K . Le ^{40}K constituant 0,012 % du potassium naturel, se trouve dans du bois, des matériaux de construction et dans le corps humain à raison de 140 g pour un adulte de 70 kg.

La faible radioactivité naturelle rend la statistique de comptage par unité de temps insignifiante, ce qui engendre des temps de comptage assez long. Le bruit de fond généré est dû essentiellement aux rayonnements cosmiques et à l'environnement direct. Il influe sur la limite de détection du vrai signal provenant de l'échantillon mesuré par la spectrométrie γ .

La caractérisation radiologique des différents matériaux permet d'évaluer le taux d'exposition aux radiations. Elle tient compte de la radioactivité des matériaux due à l'isotope du ^{40}K et aux radionucléides relatifs aux trois chaînes naturelles à savoir ^{235}U , ^{238}U et ^{232}Th . Dans cette optique, nous avons effectué une série de mesures et des analyses de certains matériaux de construction afin de déterminer le débit de dose et la dose efficace émanant de ces derniers. La table 1.5 résume les principaux radioéléments qui contribuent à la radioactivité naturelle (bruit de fond) et les problèmes soulevés pour leur caractérisation.

Les chapitres à venir décrivent le principe de cette méthode et le choix des détecteurs pour un rendement optimisé.

Radionucléide	Période	E (keV)	I(%)	Famille	Remarques
^{40}K	$1,25 \times 10^9 \text{a}$	1460,82	10,55		
^{235}U	$7,04 \times 10^8 \text{a}$	185,72	57	^{235}U	Interférence avec ^{226}Ra
		143,76	10,94		
		163,36	5,08		
^{227}Th	18,6 j	235,96	12,6	^{235}U	
		256,23	6,8		
^{223}Ra	11,43 j	269,46	14,23	^{235}U	Interférence avec ^{228}Ac
^{219}Ra	3,98 s	271,23	11,07	^{235}U	Interférence avec ^{228}Ac et ^{223}Ra
^{234}Th	24,1 s	63,3	3,75	^{238}U	
^{234m}Pa	1,16 m	1001,03	0,85	^{238}U	
^{226}Ra	1600 a	186,211	3,55	^{238}U	Interférence avec ^{235}U
^{214}Pb	26,92 m	351,93	35,6	^{238}U	
		295,22	18,41		
^{214}Bi	19,8 m	1764,49	15,31	^{238}U	
^{210}Pb	22,23 a	46,54	4,25	^{238}U	Interférence avec ^{231}Pa
^{228}Ac	6,15 h	911,20	26,2	^{232}Th	Pic-somme
		968,96	15,90		Pic-somme
^{212}Pb	10,64 h	238,63	43,60	^{232}Th	
^{212}Bi	60,54 m	727,33	6,65	^{232}Th	
^{208}Tl	3,06 m	583,20	85	^{232}Th	Pic-somme
		860,53	12,40		Pic-somme

TABLE 1.5 – Les rayonnements γ émis par le ^{40}K et les différents radionucléides des différentes chaînes de décroissance [Gilmore 2008, LNHB 2010].

De la spectrométrie γ à la dosimétrie

Sommaire

2.1	Introduction	32
2.2	Technique de la spectrométrie gamma	33
2.2.1	Chaîne de mesure	34
2.2.1.1	Les semi-conducteurs	34
2.2.1.2	Collection de charge	35
2.2.1.3	Résolution en énergie	35
2.2.2	Détecteurs GeHP	36
2.2.2.1	Détecteur planaire	36
2.2.2.2	Détecteur coaxial	37
2.2.2.3	Détecteur puits	37
2.2.3	Caractéristiques des cristaux utilisés en spectrométrie γ	37
2.3	Sensibilité de la spectrométrie gamma	38
2.3.1	Electronique d'acquisition	40
2.3.2	Analyse des spectres	40
2.3.2.1	Etalonnage en énergie	40
2.3.2.2	Etalonnage en efficacité	41
2.3.3	Géométrie d'étalonnage	42
2.3.4	Préparation d'échantillon	42
2.3.5	Bruit de fond	43
2.3.6	Calcul de l'activité	43
2.3.7	Seuil de décision et limite de détection	44
2.4	Métrologie des rayonnements ionisants et mesures environnementales	46
2.5	Dosimétries des rayonnements ionisants	46
2.5.1	Grandeurs physiques	47
2.5.2	Grandeurs dosimétriques	47
2.5.2.1	Dose transférée	47
2.5.2.2	Dose absorbée	48
2.5.3	Grandeurs de protection	49
2.5.3.1	Dose équivalente	49
2.5.3.2	Dose efficace	50
2.5.4	Dose engagée	51
2.5.5	Grandeurs opérationnelles	52
2.5.5.1	Dosimétrie de zone ou d'ambiance	52

2.5.5.2	Equivalent de dose ambiant	52
2.5.5.3	Dosimétrie individuelle	52
2.5.6	Valeurs limites d'exposition	54
2.5.7	Modalités du calcul de dose	54
2.5.8	Contribution des matériaux de construction à la dose efficace	55
2.5.8.1	Risque externe	55
2.5.8.2	Risque interne	56
2.5.8.3	Radium équivalent	56
2.5.8.4	Dose absorbée due aux matériaux de construction	56
2.5.9	Dose efficace annuelle	57

2.1 Introduction

Nous avons vu dans le chapitre précédent que la désintégration des noyaux atomiques est suivie très souvent par l'émission de photons gamma qui les caractérisent. Leurs interactions avec le détecteur se traduisent par un dépôt d'énergie total ou partiel. A partir du spectre enregistré, il est possible de remonter à l'activité du radioélément présent dans l'échantillon analysé. La performance d'un spectromètre est liée à sa capacité de détecter des raies peu intenses (efficacité) et de séparer des raies très proches en énergie (résolution).

La spectrométrie γ est actuellement introduite dans plusieurs domaines :

- En géologie et la prospection minière : le principe consiste à mesurer les abondances des éléments U, K et Th par la spectrométrie γ embarquée ou in situ. Elle permet de localiser les gisements d'uranium ou de prospector d'autres minerais qui sont liés directement ou indirectement à ces trois éléments.
- Dans la cartographie d'une zone polluée suite au traitement de déchets ou d'un accident nucléaire.
- Dans la datation de certains échantillons sur des courtes périodes, en se basant essentiellement sur le ^{137}Cs ($E_\gamma = 661 \text{ keV}$, $T_{1/2} = 30 \text{ ans}$) en utilisant des spectromètres à bas bruit de fond.

La spectrométrie γ est aussi utilisée dans l'espace, plusieurs missions ont eu recours à cette technique pour valider certaines études scientifiques relatives aux processus liés à l'émission γ dans l'Univers. En outre, elle est utilisée dans l'étude des planètes (planétologie) qui consiste à mesurer les flux des raies γ émis par la surface des planètes par des éléments radioactifs naturels ou issues du bombardement par des particules cosmiques [Pirard 2006]. Selon le nombre de γ détectés pour une énergie caractéristique de l'élément, sa présence sur la surface de la planète est majeure, mineure ou sous forme de traces.

2.2 Technique de la spectrométrie gamma

La spectrométrie γ à haute résolution est une technique non destructive, performante. Elle permet la détermination qualitative et quantitative des radionucléides émetteurs des rayonnements γ dans un échantillon naturel ou artificiel. Les signatures des trois principaux processus d'interaction photon-matière (photo-électrique, Compton et création de paire) sont observées dans les spectres de désexcitation γ . La figure 2.1 illustre le spectre d'une source mono-énergétique $E_\gamma = 2$ MeV simulé par la méthode Monte Carlo avec le code GEANT4 pour un détecteur GeHP type planaire de 120 cm^3 . Pour une représentation d'un cas expérimental, il est nécessaire d'introduire la résolution du détecteur.

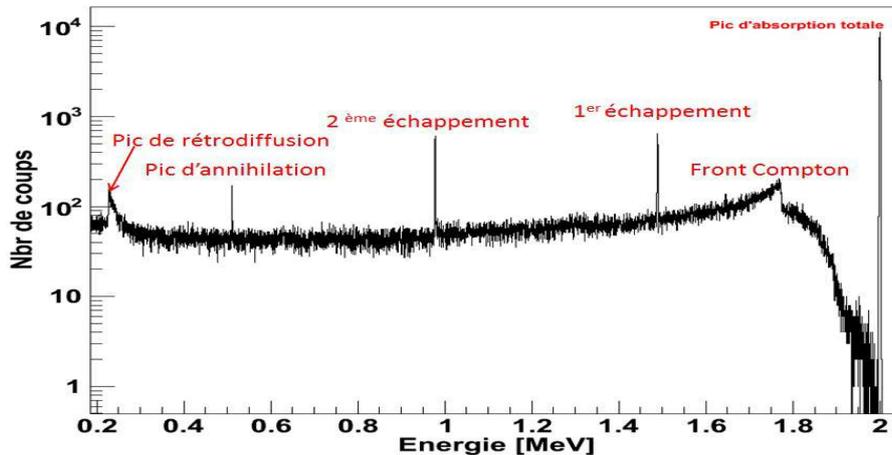


FIGURE 2.1 – Spectre gamma haute résolution obtenu par simulation Monte Carlo.

Un spectre est un ensemble de pics qui ont comme origine les différents processus d'interaction rappelés dans les paragraphes précédents.

- le pic d'absorption totale : dépôt total de l'énergie du photon incident dans le détecteur. Ce dépôt d'énergie peut se faire par le biais d'une ou plusieurs interactions successives, réalisées dans un intervalle de temps inférieur au temps de résolution du détecteur. Ceci correspond au temps de collecte des charges mises en mouvement dans le volume de détection.
- le fond Compton : dépôt partiel de l'énergie du photon incident. Il s'étale entre le pic de rétrodiffusion ($\theta = \pi$, transfert maximum à l'électron Compton) situé à $E_{min} = 0,226$ MeV et le pic photoélectrique ($\theta = 0$, sans transfert d'énergie). Le front Compton situé à $1,774$ MeV correspond à la différence $E_\gamma - E_{min}$. Le pic de rétrodiffusion est dû principalement à l'influence du milieu environnant la partie active du détecteur.
- pic de rétrodiffusion : il correspond à la rétrodiffusion des photons dans le milieu environnant la partie active du détecteur.
- pics d'échappement : consécutifs à l'effet de matérialisation (si $E_\gamma \geq 1,022$ MeV), ils sont situés à $E_\gamma - 0,511$ MeV et $E_\gamma - 1,022$ MeV respectivement pour les pics simple et double échappement.
- pic d'annihilation : dû à l'annihilation d'un positron avec un électron du milieu traversé, il est situé à $0,511$ MeV, bien évidemment pour $E_\gamma \geq 1,022$ MeV.

2.2.1 Chaîne de mesure

La chaîne de mesure classique est constituée d'un détecteur, un préamplificateur, un amplificateur, un convertisseur analogique numérique (ADC), une électronique d'acquisition et un logiciel d'analyse. La figure 2.2 représente le schéma synoptique d'une chaîne de mesure dédiée à la spectrométrie γ .

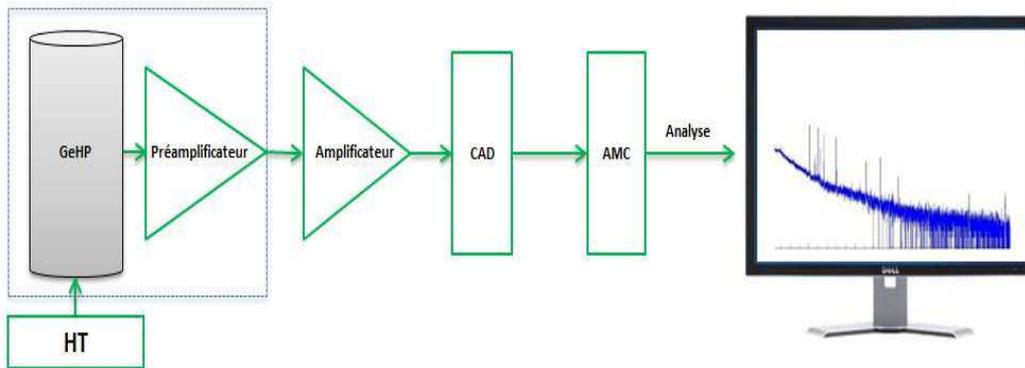


FIGURE 2.2 – Schéma simplifié d'une chaîne de spectrométrie γ .

Les détecteurs gamma qui ont la meilleure résolution en énergie pour effectuer les mesures spectroscopiques les plus précises sont des semi-conducteurs en germanium. Ils ont une résolution en énergie de l'ordre de 2% en énergie.

2.2.1.1 Les semi-conducteurs

Les semi-conducteurs sont des matériaux dont la conductivité des électrons se trouve entre celle des conducteurs et celle des isolants. Le fonctionnement d'un semi-conducteur est basé sur la théorie des bandes selon laquelle les électrons prennent des valeurs d'énergies permises dans la bande de valence et la bande de conduction. La bande de valence est riche en électrons, mais ne participe pas à la conduction, contrairement à la bande de conduction qui procure une certaine conductivité au matériau. Ces deux bandes sont séparées par la bande interdite qui s'appelle aussi le gap (figure 2.3). La largeur de cette bande diffère d'un semi-conducteur à un autre.

Le passage d'un électron de la bande de valence à la bande de conduction dépend de la température et du gap du matériau. Dans le cas du germanium, le gap est de l'ordre de 0,67 eV. L'énergie thermique d'un électron peut être de cet ordre, d'où la nécessité de refroidir le cristal pour réduire le bruit de fond provenant des impulsions causées par l'agitation thermique.

D'après l'équation de Boltzmann, la probabilité de passage d'un électron de la bande de valence à la bande de conduction dépend de la température.

$$p(T) \propto T^{3/2} \exp(-E_g/2k_B T) \quad (2.1)$$

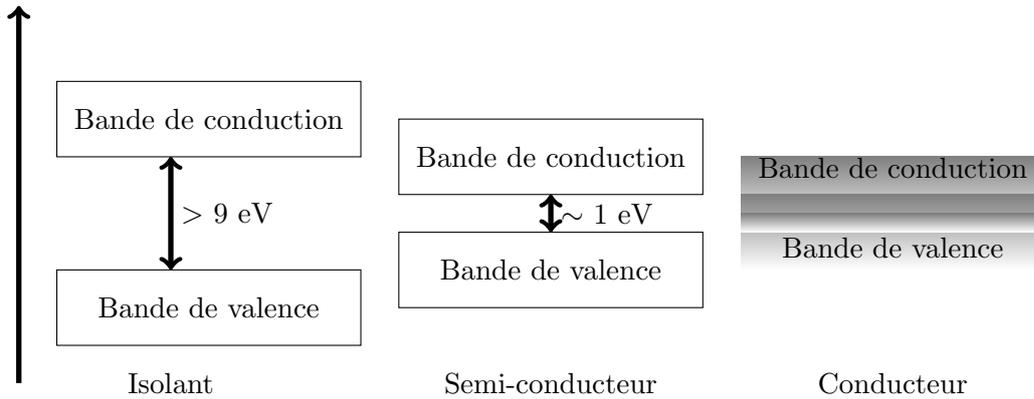


FIGURE 2.3 – Bande de valence, bande de conduction et gap dans un isolant, un semi-conducteur et un conducteur.

avec T la température absolue, k_B la constante de Boltzmann et E_g la largeur du gap.

Afin d'augmenter la densité de porteurs des charge, les semi-conducteurs sont dopés par des atomes choisis. Deux sortes de dopages sont utilisés : le dopage du type N, si on augmente la densité d'électrons ou du type P, si c'est la densité des trous qui est augmentée. Ces dopages sont dits extrinsèques. L'association des deux types de dopage avec la même proportion donne un matériau compensé, qui présente des propriétés de conduction équivalentes à un matériau dépourvu de dopage. Un matériau non dopé est dit intrinsèque.

2.2.1.2 Collection de charge

L'absorption d'un photon dans un semi-conducteur transfère son énergie à un électron et par une cascade d'interactions elle génère un nombre moyen d'électrons-trous qui est proportionnel à l'énergie E_γ absorbée. Le nombre n d'électrons-trous produit est donné par la relation :

$$n = \frac{E_\gamma}{W} \quad (2.2)$$

avec W , l'énergie moyenne nécessaire pour la création de la paire électron-trou.

Le nombre élevé des paires électron-trou créées permet d'avoir une meilleure résolution en énergie du détecteur. La polarisation du semi-conducteur permet de créer la zone de déplétion ou zone sensible désertée par les porteurs libres. La tension appliquée doit être suffisante pour séparer les deux porteurs de charge et empêcher leur recombinaison et le piégeage qui est la cause principale de la détérioration de la résolution du détecteur

2.2.1.3 Résolution en énergie

La résolution en énergie est un paramètre très important en spectrométrie γ . Idéalement un pic d'un gamma absorbé doit être le plus étroit possible. Historiquement, Freck et Wakefield ont publié le premier spectre gamma obtenu à l'aide d'une jonction PN de germanium à diffusion de lithium [Freck 1962], cylindrique ($h = 8$ mm, $\varnothing = 18$ mm) et fonctionnant à 77 K.

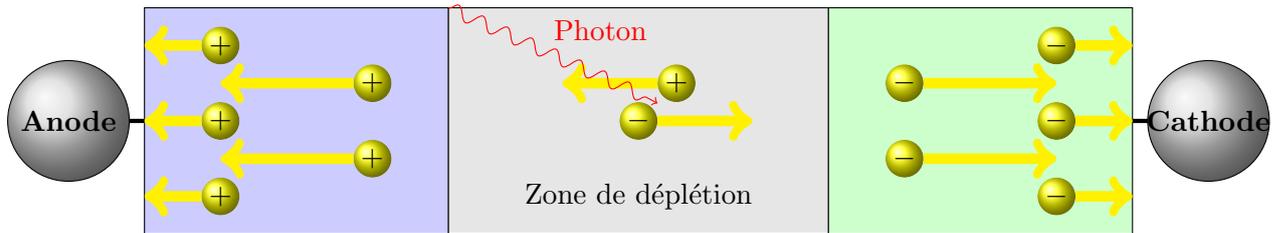


FIGURE 2.4 – Jonction P-N polarisée en inverse pour augmenter l'efficacité de détection.

Le pouvoir de résolution est 1 % comparé à 10 % pour un scintillateur NaI(Tl) de dimension ($h = 75$ mm, $\varnothing = 75$ mm) pour une source de ^{60}Co .

En pratique, l'élargissement du pic est dû principalement aux fluctuations statistiques du nombre de porteurs de charge créés n_c , le bruit des différents composants électroniques n_e et le phénomène de piégeage n_p qui caractérise le semi-conducteur. La largeur du pic total n_{tot} peut être estimée par la somme des trois termes :

$$n_{tot} = n_c + n_e + n_p \quad (2.3)$$

La création de paire est régie par la loi de Poisson si les évènements sont indépendants les uns des autres. La distribution des électrons localement dans le cristal altère cette condition. Le facteur de Fano F est introduit pour pallier cette défection. Il est défini comme étant le rapport de la variance observée pour le nombre d'électrons-trous créés sur la variance prédite par la statistique de Poisson. La variance ainsi calculée est donnée par :

$$\sigma_{n_t}^2 = F.n_{tot} \quad (2.4)$$

Le piégeage est un phénomène qui se manifeste par une traînée des pics à basses énergies. Il varie en fonction de sa position dans le détecteur (non-uniformité du champ électrique) et augmente linéairement en fonction de l'énergie. Le bruit électronique est lié à la capacité d'entrée du préamplificateur, à l'amplificateur et au courant de fuite du détecteur.

2.2.2 Détecteurs GeHP

On distingue deux types de détecteurs germanium : les détecteurs compensés au lithium Ge(Li) et les détecteurs au germanium hyper pur (GeHP). Les détecteurs Ge(Li) sont fabriqués de la même façon que les détecteurs Si(Li). Cette génération de détecteur a été commercialisée depuis le début des années 60 jusqu'au début des années 80 [Knoll 1999]. Le lithium diffusant à température ambiante, les détecteurs Ge(Li) nécessite un système cryogénique de refroidissement. Les détecteurs germanium existent sous trois configurations géométriques : planaire, coaxiale et puits.

2.2.2.1 Détecteur planaire

Pour les détecteurs plans, les contacts électriques sont posés sur les deux surfaces parallèles. Ils sont obtenus par les techniques d'implantation ionique, par l'utilisation des

accélérateurs ou par évaporation ou diffusion. La méthode d'implantation a pour avantage de produire des contacts très fins qui favorisent une bonne détection à faibles énergies [Knoll 1999].

Généralement, un détecteur planaire a une fine fenêtre d'entrée à base de carbone époxy ou de béryllium, qui tient à la fois le détecteur sous vide et permet aux photons de faible énergie de la traverser. Les détecteurs planaires ont des diamètres de quelques centimètres et des épaisseurs qui vont jusqu'à 3 cm (voir figure 2.5).

2.2.2.2 Détecteur coaxial

De forme cylindrique avec la partie centrale creuse, les contacts électriques sont disposés le long de la surface externe et tapissent l'intérieur du cristal, avec une fenêtre d'entrée qui peut être en aluminium. Ils ont des gros volumes qui permettent d'optimiser les efficacités pour les hautes énergies. Ce type de détecteur est étendu à des basses énergies en remplaçant la fenêtre d'entrée par du béryllium. Le choix du cristal pour le détecteur dépend de la gamme d'énergie qui intéresse l'utilisateur. Le cristal de type P est recommandé pour des mesures de routine à moyenne et haute énergie. Le coût d'un cristal p est supérieur à celui de type N, bien que ce dernier soit plus indiqué pour descendre à des énergies de l'ordre de la dizaine de keV avec une bonne efficacité. Dans la littérature on trouve plusieurs études approfondies sur le processus de fabrication [Knoll 1999, Gilmore 2008].

2.2.2.3 Détecteur puits

Pour la mesure de faibles activités, l'utilisation d'un détecteur volumineux est nécessaire afin d'augmenter l'efficacité de la détection tout en réduisant le temps d'acquisition. Cependant, pour des sources très actives, des détecteurs à faible volume sont préconisés. Par rapport aux gros volumes du détecteur, les détecteurs puits sont plus appropriés à la mesure de faibles quantités d'échantillons et aux basses énergies. Ils ont la même configuration que le coaxial sauf que le puits joue le rôle de réceptacle de l'échantillon. Ce dernier est positionné au centre du cristal, ce qui permet l'augmentation de l'efficacité de détection dans un angle proche les 4π . L'inconvénient majeur d'un détecteur puits est sa grande sensibilité aux effets de pic-somme.

2.2.3 Caractéristiques des cristaux utilisés en spectrométrie γ

Selon le besoin de l'utilisateur, une large gamme de cristaux est offerte. Néanmoins, des compromis sont nécessaires entre l'efficacité, la résolution, la gamme d'énergie voulue, la nature (liquide, solide, gazeux,...), le système de refroidissement, le volume et enfin le coût. A titre d'exemple, le détecteur à base d'iodure de sodium NaI(Tl) offre une bonne sensibilité et des volumes assez importants contrairement aux cristaux de GeHP. En revanche, la résolution des GeHP est beaucoup plus élevée, étant de 1,3 keV pour le pic à 661 keV du ^{137}Cs contre 40 keV pour le NaI(Tl) [Le Petit 2002].

La table 2.1 résume les principales caractéristiques des semi-conducteurs susceptibles d'être utilisés en spectrométrie γ .

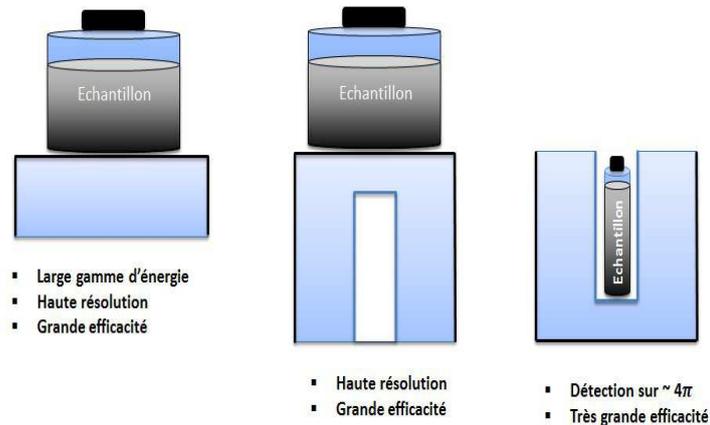


FIGURE 2.5 – Schéma de différentes configurations de détecteurs GeHP utilisés en spectrométrie γ . Détecteur planaire (gauche), coaxial (milieu) et détecteur puits (droite).

Matériaux	Z	Gap (eV)	W(eV)	Densité (g cm ⁻³)	Mobilités cm ² V ⁻¹ s ⁻¹	
					e ⁻	trou
Si	14	1,11	3,62	2,33	1350	480
Ge	32	0,67	2,96	5,32	3,6×10 ⁴	4,2×10 ⁴
CdTe	48, 52	1,47	4,43	6,06	1000	80
HgI ₂	80, 53	2,13	4,64	5,78	1000	50-80
GaAs	31, 33	1,45	4,51	5,35	8000	400
PbI ₂	82, 35	2,6	7,68	6,16	8	2

TABLE 2.1 – Caractéristiques des semi-conducteurs à 300 K sauf pour le cas du Ge à 77 K [Knoll 1999, Gilmore 2008].

2.3 Sensibilité de la spectrométrie gamma

De nos jours, la spectrométrie gamma est parmi les techniques d'analyse multi-élémentaires les plus utilisées pour les mesures environnementales. Cependant, elle est concurrencée par d'autres techniques en terme de sensibilité, telle que les mesures par spectrométrie de masse ICP-MS (Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry), AMS

(Accelerator Mass Spectrometry), par la méthode optique ICP-OES (Inductively Coupled Plasma Optical Emission Spectrometry) et méthodes nucléaires (spectrométrie alpha, scintillation liquide, ...).

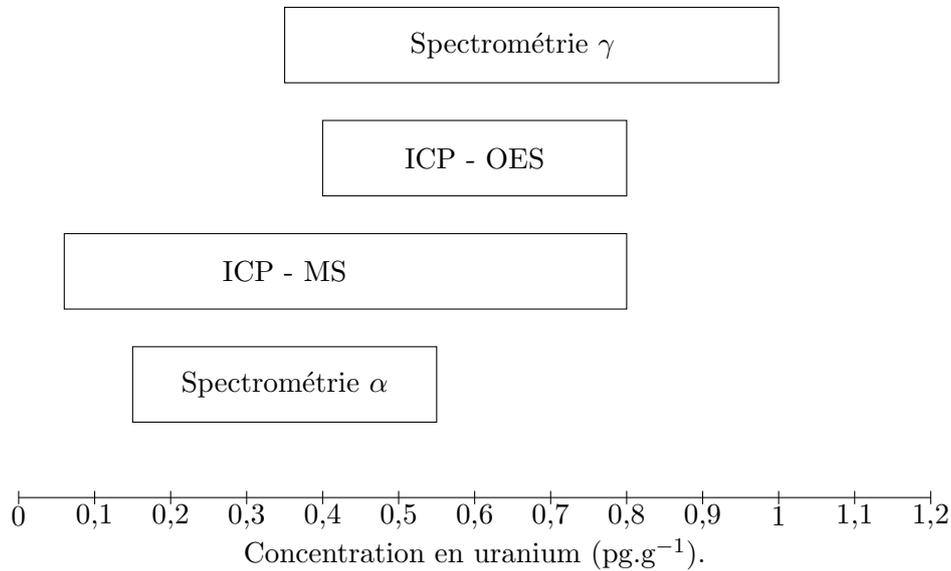


FIGURE 2.6 – Schéma comparatif des sensibilités de mesure des différentes techniques pour l'uranium [Bickel 2000].

Pour les mesures des faibles radioactivités, le choix d'une technique dépend essentiellement de la période du radioélément et de l'intensité d'émission pour les méthodes radiométriques. La figure 2.6 montre une comparaison des sensibilité de mesures des différentes techniques pour l'uranium. Pour les radionucléides de longues périodes, la spectrométrie gamma est certainement la moins performante, néanmoins elle présente d'autres avantages du fait de sa nature non destructive et sa simplicité d'utilisation.

2.3.1 Electronique d'acquisition

Nous avons vu précédemment que les rayonnements γ qui interagissent dans un cristal semi-conducteur créent des paires électron-trou qui seront collectées et traitées par les différents modules électroniques (figure 2.3).

La haute tension (HT) permet la polarisation en inverse du semi-conducteur (augmentation de la zone de déplétion). Les charges produites sont collectées et le préamplificateur fournit des impulsions qui sont traitées par l'amplificateur. Les préamplificateurs sont en général placés dans le même capot que le cristal. Ce qui permet de refroidir les composants électroniques sensibles à la température et en même temps diminuer le bruit thermique. Dans le cas des détecteurs bas bruit, le préamplificateur est placé à l'extérieur du capot.

L'amplificateur met en forme le signal (quasi gaussienne) qui permet au codeur de quantifier de manière précise la hauteur du signal. Il filtre les parasites afin d'optimiser le rapport signal sur bruit (S/B). Le convertisseur analogique-numérique (CAD) assure la conversion des impulsions en un signal numérique qui constituera une adresse à laquelle l'électronique d'acquisition associe un canal de l'analyseur. Le choix d'un analyseur multicanal AMC (2^k , $10 \leq k \leq 13$ dans notre cas) se fait en fonction du type de détecteur et la gamme d'énergie souhaitée. C'est à ce niveau que l'histogramme ou spectre est généré et ensuite analysé. Pour une meilleure résolution, un codage sur 8192 canaux est couramment utilisé. Pour l'acquisition et l'analyse des données, il existe des logiciels commerciaux pour les analyses de routine et parfois les laboratoires développent leurs propres outils en particulier pour une meilleure déconvolution des spectres.

2.3.2 Analyse des spectres

La spectrométrie γ est une méthode de mesure relative, et l'étalonnage en rendement des détecteurs est habituellement réalisé au moyen de sources étalons dont l'activité est déterminée par une mesure directe. L'analyse repose sur l'étude des pics d'absorption totale observés dans le spectre enregistré. Deux étapes préalables à toutes mesures sont indispensables : l'étalonnage en énergie pour les analyses qualitatives et l'étalonnage en rendement pour les analyses quantitatives.

2.3.2.1 Etalonnage en énergie

L'étalonnage en énergie d'un spectromètre γ nécessite un certain nombre de sources radioactives émettrices de rayonnement γ . Les spectres obtenus correspondent aux raies des énergies de ces sources. Les raies d'absorption totale sont classées par leurs amplitudes. Chaque canal est associé à une énergie. Les canaux et l'énergie sont liés par une relation polynomiale comme le montre l'équation 2.5.

$$E(\text{keV}) = A_0 + A_1C + A_2C^2 + A_3C^3 + \dots \quad (2.5)$$

où A_0 , A_1 , A_2 et A_3 sont les coefficients à déterminer et C le canal de l'AMC. Pour augmenter l'ordre du polynôme, un plus grand nombre de points d'étalonnage sont nécessaires.

Le coefficient A_0 représente le décalage du point de départ par rapport à zéro, A_1 représente le gain et les deux autres coefficients voire plus représentent la partie non linéaire de la courbe d'étalonnage. Le spectromètre possède un seuil nécessaire pour éliminer le bruit de fond électronique, dont la valeur correspond à l'énergie seuil analysée. En se limitant au premier ordre, à partir de la pente de la droite d'étalonnage, une source peut être identifiée par les numéros du canal de ces pics et l'énergie correspondante. Depuis la bibliothèque où sont répertoriés les radio-isotopes en fonction de leurs énergies, l'émetteur gamma peut être identifié. Une fois que l'électronique de la chaîne de mesure est réglée (tension d'alimentation et gain), idéalement, aucun autre paramètre n'agit sur la position des raies.

2.3.2.2 Etalonnage en efficacité

Pour établir un étalonnage en efficacité, on doit utiliser des sources étalons qui sont de natures et de formes semblables à celles de l'échantillon à analyser. Elles sont référencées par une activité massique, volumique ou un taux d'émission photonique des principales raies γ . Une courbe de rendement en fonction de l'énergie est obtenue pour une géométrie et une matrice donnée. A partir de cette courbe, les efficacités de détection des différents pics du spectre de l'échantillon sont exploitées pour le calcul de l'activité. Cependant, lorsque l'échantillon est différent de l'étalon, il est nécessaire de corriger l'efficacité pour les effets de matrice et l'effet de pic-somme due aux transitions en cascade et aux empilements (cas des taux de comptage élevés). Pour une énergie E donnée, l'efficacité absolue se calcule en tenant compte des différentes corrections, selon la formule définie dans la norme *ISO 18589-3; (2007)* :

$$N_{net}(E) = A \times t \times I_{\gamma} \times \varepsilon_E \times \underbrace{f_d \times f_{C-1,E} \times f_{S,E} \times f_{att,E}}_{C_i} \quad (2.6)$$

On déduit l'efficacité d'absorption totale telle que

$$\varepsilon_E = \frac{N_{net}(E)}{A \times t \times I_{\gamma} \times C_i} \quad (2.7)$$

où :

- $N_{net}(E)$: taux de comptage net du pic d'énergie E [*coups.s*⁻¹];
- A : activité du radionucléide [*Bq*];
- ε_E : efficacité du comptage pour l'énergie E ;
- t : temps d'acquisition [*s*];
- I_{γ} : intensité d'émission de la raie d'énergie E ;
- C_i : produit de différents facteurs correctifs inhérents aux conditions de mesure
 - f_d : correction de la décroissance radioactive (indépendante de E)
 - $f_{C-1,E}$: correction des pertes par coïncidences pour l'énergie E
 - $f_{S,E}$: correction de sommation pour l'énergie E
 - $f_{att,E}$: correction de l'auto-absorption à l'énergie E

Deux fonctions sont souvent utilisées en spectrométrie γ pour le calcul de l'efficacité à

partir de la courbe d'étalonnage en efficacité. Elles sont le logarithme de l'efficacité fonction polynôme soit du logarithmique de l'énergie, soit de l'inverse de l'énergie :

$$Apolog \rightarrow \ln(\varepsilon_{E_i}) = \sum_j a_i \cdot \ln(E_i)^j \quad (2.8)$$

$$Apocope \rightarrow \ln(\varepsilon_{E_i}) = \sum_j a_i \cdot (E_i)^{-j} \quad (2.9)$$

2.3.3 Géométrie d'étalonnage

Le rendement doit être déterminé avec une géométrie d'étalonnage similaire à la géométrie de mesure. Dans le cas où l'on ne dispose pas d'étalons correspondant à la géométrie de mesure, il faut effectuer un transfert de rendement. Selon le détecteur utilisé, des géométries d'étalonnage sont choisies afin d'augmenter la sensibilité. Pour la mesure de routine de faible radioactivité, la position de l'échantillon au contact du capot du détecteur est privilégiée. L'utilisation d'un grand volume pour la mesure est souhaitable. En effet, la limite de détection après la correction des effets de l'auto-absorption est améliorée d'un facteur 5 pour les faibles énergies et d'un facteur 7 à 8 pour des énergies plus élevées [Le Petit 2002]. Une panoplie de géométries standardisées est proposée et utilisée en fonction de l'activité et la quantité de l'échantillon (figure 2.7).

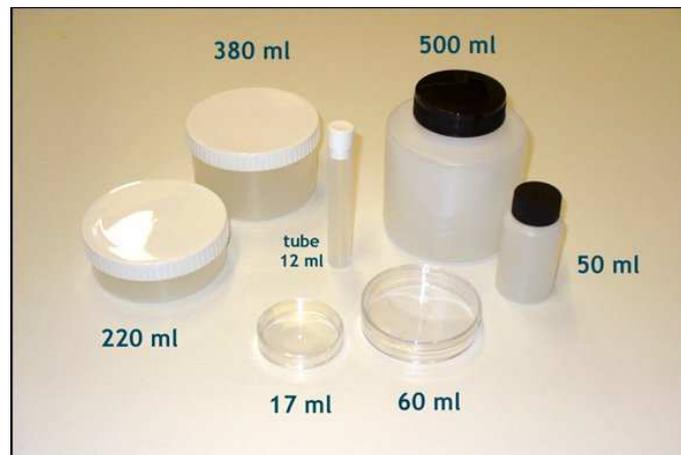


FIGURE 2.7 – Différentes géométries de conditionnement utilisées en spectrométrie γ .

Pour optimiser le rendement, l'utilisation d'un conteneur de volume égal à celui de l'étalon et de diamètre du même ordre de grandeur que celui du détecteur est préférable (augmentation de l'angle solide). Des études ont été réalisées sur l'optimisation des géométries [Barrera 1999, Vesic 1989].

2.3.4 Préparation d'échantillon

Dans les mesures de routine, l'échantillon solide doit être préparé et conditionné pour la géométrie choisie. Mais avant cela, plusieurs procédures sont à suivre :

- Séchage : la teneur en eau (caractère hygroscopique) de certains échantillons peut biaiser la mesure. Pour éviter ce biais, le séchage de ces derniers est nécessaire à 40 °C puis à 100 °C ;
- Broyage : il permet d'assurer l'homogénéité de l'échantillon et son conditionnement dans un flacon adéquat ;
- Tamisage : l'échantillon est fréquemment tamisé pour retirer les débris divers.

2.3.5 Bruit de fond

Comme les radionucléides présents dans les échantillons se retrouvent également dans l'environnement, le détecteur et l'échantillon doivent être protégés des rayonnements telluriques (chaînes naturelles) et cosmiques par un blindage afin de réduire le bruit de fond qu'ils génèrent. En général, il suffit de protéger le détecteur par un blindage en plomb ayant un bas bruit de fond [Debertin 1988, Knoll 1999].

A faible radioactivité, il est utile de réduire le radon au sein du blindage en purgeant l'air qui se trouve à l'intérieur. Les radionucléides naturels et leurs produits de désintégration sont largement répandus, avec des concentrations plus ou moins importantes, dans les planchers, les murs, les toitures et l'air des locaux de mesure ainsi que dans les matériaux de fabrication des détecteurs et des blindages. Afin de réduire le bruit de fond provoqué par leur présence, on utilise en général deux types de blindage : passif par un château de plomb et actif par des chaînes d'anti-coïncidence (NaI(Tl)) autour du GeHP ou un anti-cosmique.

2.3.6 Calcul de l'activité

Après avoir préparé l'échantillon à analyser, il est conditionné dans une géométrie proche voire identique à celle de l'étalon et placé vis-à-vis du détecteur et l'acquisition démarre. Le calcul de l'activité se fait à partir de la formule (2.10). Une bonne statistique et une déconvolution adéquate du spectre sont indispensables, surtout pour obtenir des valeurs précises pour l'²³⁵U et de l'²²⁶Ra qui émettent respectivement des raies à 185,72 keV à 57 % et 186,13 keV à 3,56 %. L'activité s'exprime en becquerel (Bq) par unité de volume (m³, L) ou de masse (g) selon la formule définie dans la norme *ISO 18589-3 (2007)*.

$$A_v = \frac{N_{net}(E)}{V \times \varepsilon_E \times t \times I_\gamma \times \underbrace{f_d \times f_{C-1,E} \times f_{S,E} \times f_{att,E}}_{C_i}} \quad (2.10)$$

ou,

$$A_m = \frac{N_{net}(E)}{m \times \varepsilon_E \times t \times I_\gamma \times \underbrace{f_d \times f_{C-1,E} \times f_{S,E} \times f_{att,E}}_{C_i}} \quad (2.11)$$

L'incertitude associée à l'activité massique est donnée par l'expression :

$$\sigma_A = A \sqrt{\left(\frac{\sigma_{\varepsilon_E}}{\varepsilon_E}\right)^2 + \left(\frac{\sigma_m}{m}\right)^2 + \left(\frac{\sigma_{I_\gamma}}{I_\gamma}\right)^2 + \left(\frac{\sigma_{N_{net}}}{N_{net}}\right)^2 + \left(\frac{\sigma_{C_i}}{C_i}\right)^2} \quad (2.12)$$

Si un radionucléide est caractérisé par une seule raie γ (exemple du ^{137}Cs) qui n'interfère pas avec d'autres raies des autres radioéléments, le calcul de l'activité se fait par l'équation (2.10 ou 2.11). Pour d'autres cas plus complexes avec émission de plusieurs raies γ intenses (exemple du ^{134}Cs), l'activité est la moyenne pondérée et elle est calculée par la formule [Canberra 2005] :

$$A_{moy} = \frac{\sum_{i=1}^n \frac{A_i}{\sigma_{A_i}^2}}{\sum_{i=1}^n \frac{1}{\sigma_{A_i}^2}} \quad (2.13)$$

avec une incertitude de :

$$\sigma_{A_{moy}} = \sqrt{\frac{1}{\sum_{i=1}^n \frac{1}{\sigma_{A_i}^2}}} \quad (2.14)$$

2.3.7 Seuil de décision et limite de détection

Lors de la mesure d'une faible activité, les résultats de la mesure peuvent être proches du niveau du bruit de fond. A cause des fluctuations statistiques du signal et du bruit de fond, ces deux valeurs risquent de se confondre. On est amené à connaître les limites d'activité pour lesquelles un pic apparaît dans le spectre et de donner des valeurs minimales d'activité. La figure 2.8 représente schématiquement les notions de seuil et de limite de détection. Elles ont été formulées par Currie [Currie 1968] et sont toujours utilisées par les laboratoires d'essais.

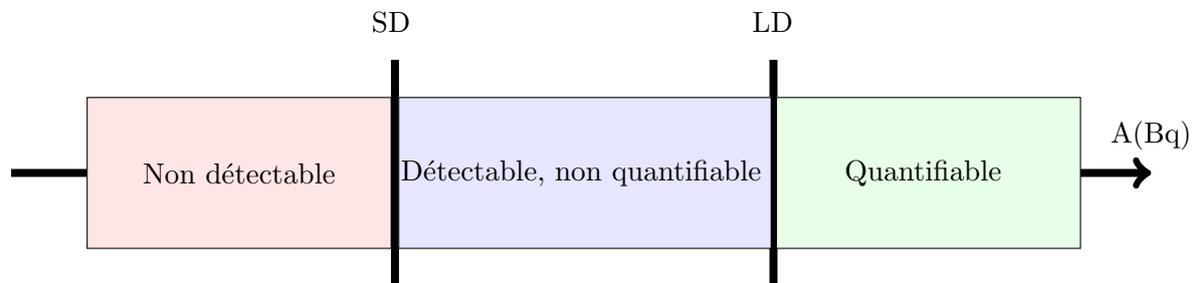


FIGURE 2.8 – Schéma représentant le seuil de décision SD et la limite de détection LD.

Selon la norme ISO/NF 11929-2010 « *Le seuil de décision (SD) correspond à la valeur de l'estimateur du mesurande telle que, quand le résultat d'une mesure réelle utilisant une procédure de mesure donnée d'un mesurande quantifiant le phénomène physique lui est supérieur, on décide que le phénomène physique est présent* ».

La limite de détection (LD) selon la norme NF T90-210-2012 « *est la plus petite valeur vraie du mesurande qui garantit une probabilité spécifiée qu'il soit détectable par la méthode de mesure* ».

Quantitativement, ces deux valeurs sont basées sur la théorie du test d'hypothèse. Le SD est quantifié par la probabilité du risque α dit aussi le risque de première espèce tandis que, la LD est calculée par la probabilité du risque β ou le risque de seconde espèce :

- risque de première espèce (risque α) : affirmer que le signal est réel avec une probabilité α , alors qu'il provient des fluctuations statistiques du fond.
- risque de seconde espèce (risque β) : affirmer que le signal est dû à la fluctuation statistique du fond alors qu'il s'agit d'un signal réel.

L'algorithme d'analyse de Genie2000 (ISO 11929 LD) définit le SD par la relation suivante :

$$SD = k_{\alpha} \times \sigma_0 \quad (2.15)$$

où k_{α} est le facteur d'élargissement correspondant au niveau de confiance $1-\alpha$ de la loi de probabilité.

σ_0 est l'écart-type correspondant à la surface nette du pic considéré quand cette surface est égale à 0 coup (bruit de fond).

Selon la norme ISO 11929-3 : (2000) de juillet 2000, la limite de détection spécifie la contribution minimale de l'échantillon pouvant être détectée, avec une probabilité d'erreur donnée. Cette valeur est directement liée aux conditions de mesure (comptage dans la région d'intérêt, durée de la mesure) et doit être établie pour chaque spectre [Lépy 2008]. La LD est définie par :

$$LD = SD + k_{\beta} \times \sigma_D \quad (2.16)$$

où k_{β} est le facteur d'élargissement correspondant au niveau de confiance $1-\beta$ de la loi de probabilité

σ_D est l'écart-type correspondant à la surface nette du pic considéré quand cette surface est égale à LD.

L'expérimentateur détermine au préalable le degré de confiance auquel la décision sera prise d'accepter le pic comme étant véritablement présent. Il choisit deux niveaux de confiance $1-\alpha$ et $1-\beta$ qui sont en général de 95% avec les quantiles correspondants $k_{\alpha} = k_{\beta} = 1,645$.

En pratique σ_0 , σ_D sont du même ordre de grandeur ; pour cela, on fixe $k_{\alpha} = k_{\beta} = k$, ce qui simplifie l'expression. On obtient :

$$LD = 2SD \quad (2.17)$$

Ainsi, pour exprimer le seuil de décision SD et la limite de détection LD en Bq.L⁻¹ ou Bq.kg⁻¹, il suffit de remplacer par sa valeur $N_{net}(E)$ dans les équations 2.10 ou 2.11.

Il est possible d'adapter le temps de comptage pour obtenir en fonction du bruit de fond de l'appareil, la limite de détection souhaitée pour des taux de comptage élevés. Si on désigne par BDF le taux de comptage du bruit de fond, t_{BDF} son temps de comptage, t un temps de comptage de l'échantillon et ε l'efficacité de détection, la limite de détection est donnée par [CASSETTE 2004] :

$$LD = \frac{\sqrt[4]{2BDF}}{\sqrt{t \cdot \varepsilon}} \quad (2.18)$$

2.4 Métrologie des rayonnements ionisants et mesures environnementales

Une partie de cette thèse est consacrée à la métrologie et la dosimétrie des rayonnements gamma. La radioprotection a pour objectif de déterminer le risque potentiel de ces rayonnements de façon à s'en protéger efficacement. La directive EURATOM 96/29 [Directive 1996] a fixé les normes de base relatives à la protection sanitaire de la population et des travailleurs contre les dangers résultants des rayonnements ionisants. La surveillance de la radioactivité de l'environnement a été mise en place avec l'avènement de l'ère nucléaire et en particulier après l'accident de Tchernobyl, 1986. Les expositions à la radioactivité naturelle du fait des activités humaines font désormais l'objet de dispositions spécifiques. Le secteur professionnel n'est pas épargné par ces nouvelles dispositions.

La dernière décennie a connu une évolution accrue sur le plan de la réglementation, technique de prélèvement et les responsabilités partagées par les acteurs de la radioprotection. La Commission Internationale de Protection Radiologique (CIPR) publie régulièrement des recommandations aux utilisateurs des sources de rayonnements ionisants. Au-delà de son objectif initial qui est focalisé sur la radiobiologie, ces recommandations concernent les travailleurs exposés aux différents rayonnements, naturels ou artificiels.

De nouvelles recommandations en mars 2008 (CIPR 103) viennent ainsi compléter celles publiées en 1991 (CIPR 60). Elles ont adopté de nouveaux textes tenant compte de l'avancée des connaissances scientifiques en biologie et en physique. Ces recommandations seront ensuite traduites en réglementation européenne ou nationale et affecteront les pratiques en radioprotection et tout particulièrement les calculs des équivalents de dose en considérant les nouvelles valeurs des coefficients de pondérations tissulaires.

La CIPR définit d'une manière rigoureuse les différentes grandeurs utilisées. Elles sont directement reliées aux limites annuelles de dose efficace et à l'équivalent de dose définis dans la réglementation française relative à la protection de la population et des travailleurs contre les expositions aux rayonnements ionisants. L'exposition naturelle varie selon le lieu géographique. Elle provient essentiellement des rayonnements cosmiques, des éléments radioactifs contenus dans le sol et des éléments radioactifs naturels que nous absorbons en respirant ou en nous nourrissant.

2.5 Dosimétries des rayonnements ionisants

Dans le décret n° 2003-296 du 31 mars 2003 relatif à la protection des travailleurs contre les dangers des rayonnements ionisants, on fait la distinction entre trois catégories de grandeurs : grandeurs physiques, grandeurs de protection et grandeurs opérationnelles.

2.5.1 Grandeurs physiques

Un rayonnement est défini par les grandeurs particulières et énergétiques. Les grandeurs physiques utilisées en radioprotection sont essentiellement :

- l'énergie du rayonnement en MeV, et son intensité d'émission en %,
- l'activité de la source d'exposition en Bq ou débit de fluence : particules ou photons/cm².s,
- la dose en Gy ou débit de dose en Gy/s
- le transfert linéique d'énergie en MeV/cm,
- le coefficient d'atténuation massique en cm²/g.

Toute source de rayonnement est entourée d'un champ de particules : même si elle émet un faisceau bien défini géométriquement, des phénomènes secondaires, particulièrement des diffusions, font que le champ réel est beaucoup plus complexe, en direction comme en énergie. A l'intérieur d'un angle solide $d\Omega$, un point M du champ de rayonnement peut être défini par un spectre différentiel du nombre de particules en fonction de leur énergie. Dans un intervalle d'énergie compris entre E_1 et E_2 , la radiance particulaire est [Blanc 1997] :

$$p(E_1, E_2) = \int_{E_1}^{E_2} p_E dE \quad (2.19)$$

avec p_E la distribution spectrale de la radiance de particules qui permet de remonter à toutes les quantités qui caractérisent le champ de rayonnement en un point M :

- radiation énergétique,
- fluence particulaire,
- fluence énergétique.

2.5.2 Grandeurs dosimétriques

En 1911, Lind découvrit qu'un gramme de radium dans l'air produisait 0,7 gramme d'ozone par heure. C'est ainsi qu'il initiait les bases indispensables à toute étude radiobiologique où les relations Dose-Effet sont à l'origine de la compréhension des mécanismes et de l'estimation des risques que la radioprotection est amenée à prendre en compte.

Le mot dose provenant du grec « Dosis », action de donner, est utilisé initialement en médecine pour définir les quantités de médicament à administrer. Son usage s'est étendu à toute quantité déterminée, notamment en radiobiologie, en radiologie et en radioprotection. On définit différents types de doses :

2.5.2.1 Dose transférée

La dose transférée dénommée KERMA (*Kinetic Energy Released in Matter*), caractérise l'action des rayonnements indirectement ionisants (photon, neutron). Elle traduit le premier acte du transfert d'énergie par collision aux particules secondaires. Elle représente la somme des énergies cinétiques initiales de toutes les particules chargées mises en mouvement par les rayonnements dans un volume élémentaire dV de masse dm du milieu uniformément irradié [Métivier 2006] :

$$K = \frac{\sum dE_{tr}}{dm} \quad (2.20)$$

Le KERMA en J.kg^{-1} ou Gy, s'applique quelle que soit la nature du rayonnement indirectement ionisant. Lorsque le milieu absorbant est l'air, on parle de KERMA et de débit de KERMA dans l'air. En effet, cela permet de caractériser le risque potentiel lors d'un séjour dans un champ de rayonnements.

$$\dot{K} = \frac{dK}{dt} \quad (2.21)$$

Le débit de KERMA s'exprime en Gy.s^{-1} .

2.5.2.2 Dose absorbée

La dose absorbée D_{abs} en Gray, est la grandeur de base en radioprotection, et de ce fait, permet de quantifier l'interaction d'un rayonnement avec la matière. La dose absorbée est définie comme le rapport entre dE_{abs} , qui est l'énergie moyenne communiquée par le rayonnement ionisant à un volume de matière, et sa masse dm .

$$D_{abs} = \frac{dE_{abs}}{dm} \quad (2.22)$$

Selon les applications, les doses absorbées sont très variables : 0,2 mGy lors d'une radiographie dentaire, 1 mGy lors d'une radiographie thoracique, 2 Gy lors d'une séance de radiothérapie, 10 kGy dans l'ionisation des denrées alimentaires et jusqu'à 50 kGy pour la stérilisation des matériels chirurgicaux.

Le calcul des doses absorbées dépend essentiellement de trois paramètres :

- nature des rayonnements,
- énergie ou spectre d'énergie,
- fluence ou débit de fluence.

Le débit de dose \dot{D} (Gy.s^{-1}) renseigne sur la dose reçue pendant un intervalle de temps dt donné, tel que :

$$\dot{D} = \frac{D_{abs}}{dt} \quad (2.23)$$

Si on désigne par $\dot{\Phi}$ le débit de fluence des particules incidentes et par ρ la masse volumique du milieu, pour les particules chargées la dose absorbée dépend essentiellement du pouvoir d'arrêt électronique S_{elec} [Vivier 2012] :

$$\dot{D} = \dot{\Phi} \frac{S_{elec}}{\rho} \quad (2.24)$$

Dans le cas de l'émission isotrope le débit de fluence est donné par la relation :

$$\dot{\Phi} = \frac{AI_{\gamma}}{4\pi r^2} \quad (2.25)$$

avec A l'activité exprimée en Bq, I_{γ} le taux d'émission pour les particules incidentes et r la distance qui sépare la source du point de mesure.

Pour les photons, on introduit un facteur g , le coefficient d'absorption pour la partie qui pourrait être rayonnée par des électrons ayant acquis une forte énergie (rayonnement de freinage). Le débit de dose dépend de l'énergie E_{γ} et du coefficient d'atténuation linéique μ :

$$\dot{D} = \dot{\Phi} E_{\gamma} \frac{\mu}{\rho} (1 - g) \quad (2.26)$$

A une certaine profondeur R dans le matériau (supérieure au parcours moyen des électrons), le nombre d'électrons secondaires d'une énergie donnée entrant dans un petit volume de ce matériau est égal au nombre d'électrons sortants. Dans ce cas, on a l'équilibre électronique dans ce volume.

2.5.3 Grandeurs de protection

La notion de dose absorbée dans la matière ne rend pas compte à elle seule des effets provoqués dans les tissus de l'organisme vivant. L'énergie cédée par unité de masse entraîne en effet sur les atomes et molécules, des ionisations et excitations, mais dans la matière vivante cet effet physique initial engendre des réactions de nature biochimique d'abord dans la cellule touchée puis éventuellement dans le tissu. On conçoit que la densité d'énergie cédée doit jouer un rôle, c'est-à-dire ce que nous venons de définir comme le transfert linéique d'énergie. Des expériences sur des animaux de laboratoire confirment ce fait : à même dose absorbée délivrée par des rayonnements ionisants de natures différentes, les effets globaux étudiés ne sont pas les mêmes. L'effet des rayonnements sur les organismes vivants dépend de la dose absorbée dans les tissus, mais également de la nature du rayonnement et de la sensibilité des tissus ou organes exposés (figure 2.9).

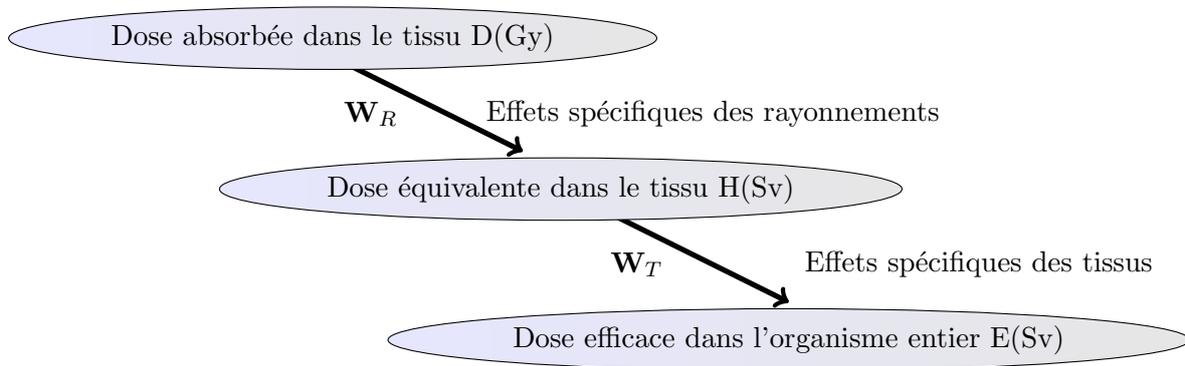


FIGURE 2.9 – Relation entre les doses absorbées, équivalentes et efficaces.

2.5.3.1 Dose équivalente

Pour tenir compte de l'efficacité biologique du rayonnement incident, on a introduit un facteur, appelé facteur de pondération radiologique (W_R) recommandé par la CIPR 60.

$$H = \sum_R W_R D_{T,R} \quad (2.27)$$

où $D_{T,R}$ est la dose moyenne absorbée dans les tissus ou les organes, notée T sensible aux radiations R. Le facteur de pondération W_R est un facteur multiplicatif dépendant du type de rayonnement incident sur le tissu ou l'organe. L'unité de l'équivalent de dose est le sievert [Sv].

Selon les recommandations de la CIPR 103 les facteurs de pondération sont résumés dans la table 2.2 [J.C. 2007].

Rayonnement	W_R
Photon, Electron et Muon	1
Proton, Pion	2
α , Fragment de fission, Ions lourds	20
neutron	$W_R = \begin{cases} 2,5 + 18,2e^{-\ln(E_n)^2/6} & si \quad E_n < 1MeV \\ 5 + 17,0e^{-\ln(2E_n)^2/6} & si \quad 1 \leq E_n \leq 50MeV \\ 2,5 + 3,25e^{-\ln(0,04E_n)^2/6} & si \quad E_n \geq 50MeV \end{cases}$

TABLE 2.2 – Valeurs des facteurs de pondération radiologiques selon les recommandations de la CIPR 103.

Notons que la notion de facteur de pondération radiologique s'applique principalement aux faibles doses absorbées dans l'organisme humain et aux effets aléatoires qui peuvent en découler. Pour les fortes doses, une analyse plus fine est nécessaire. Elle relève du domaine du médecin spécialiste.

2.5.3.2 Dose efficace

Certains tissus ou organes du corps humain sont plus radiosensibles que d'autres. Une même dose équivalente peut induire des effets biologiques et des risques différents en fonction de l'organe irradié. On a introduit une nouvelle grandeur : la dose efficace (unité Sv), notée E . C'est la somme des doses équivalentes délivrées aux différents tissus et organes du corps, par exposition externe et interne, et pondérées par un facteur de pondération tissulaire W_T dont les valeurs sont données dans la table 2.3.

$$E = \sum_T W_T H_T \quad (2.28)$$

Tissu ou organe	W_T (%)	$\sum_T W_T$ (%)
Gonades	8	8
Moelle osseuse (rouge), colon, poumons, estomac, seins	12	60
Vessie, foie, œsophage, thyroïde	4	16
Peau, surface des os, cerveau, glandes salivaires	1	4
Autres tissus ou organes	12	12

TABLE 2.3 – Valeurs des facteurs de pondération tissulaires selon les recommandations de la CIPR 103.

2.5.4 Dose engagée

Les grandeurs dosimétriques (exposition, KERMA et dose absorbée) concernent uniquement l'exposition externe due aux rayonnements ionisants. Dans le cas de l'incorporation de radionucléides (exposition interne), l'irradiation dure tant que les radionucléides séjournent dans l'organisme. Leur décroissance est liée à leur période effective T_e , tenant compte à la fois de la période physique T_p et de la période biologique T_b :

$$\frac{1}{T_e} = \frac{1}{T_p} + \frac{1}{T_b} \quad (2.29)$$

La dose reçue par un individu résultant de l'incorporation de radionucléides est donc intégrée sur une durée définie, on parle alors de dose engagée.

1. **Dose équivalente engagée (S_v)** : c'est l'intégrale sur le temps du débit de dose équivalente au tissu ou à l'organe T qui sera reçu par un individu à la suite de l'incorporation de matière radioactive. Pour une incorporation d'activité à un moment t_0 , elle est définie par la formule :

$$H_T(\tau) = \int_{t_0}^{t_0+\tau} \dot{H}_T(t) dt \quad (2.30)$$

$\dot{H}_T(t)$: débit de dose équivalente à l'organe ou au tissu T au moment t,

τ : période sur laquelle l'intégration est effectuée.

Si la valeur de τ n'est pas donnée elle est implicitement de 50 ans pour les adultes, et pour les enfants du nombre d'années restant jusqu'à l'âge de 70 ans.

2. **Dose efficace engagée (S_v)** : elle correspond à la somme des doses équivalentes engagées dans les divers tissus ou organes par suite des incorporations, multipliées chacune par le facteur de pondération tissulaire W_T approprié :

$$E(\tau) = \sum_T W_T H_T(\tau) \quad (2.31)$$

3. **Dose efficace engagée par unité d'incorporation** : pour convertir l'activité d'un radionucléide inhalé ou ingéré (Bq) en une dose efficace (Sv), on utilise ce facteur de dose exprimée en Sv/Bq. Ces derniers ou DPUI (dose par unité d'incorporation) tiennent compte du métabolisme des radionucléides dans l'organisme, de la nature et de l'énergie des rayonnements émis et de la radiosensibilité des tissus. Pour un même radioélément le DPUI tient compte :

- du mode d'incorporation (ingestion ou inhalation),
- de la forme chimique du radioélément,
- de l'âge de l'individu.

2.5.5 Grandeurs opérationnelles

L'inconvénient majeur des grandeurs de protection (dose équivalente, dose efficace, dose engagée et dose collective) est qu'elles ne sont pas directement mesurables. Dans ce contexte, l'ICRU (International Commission on Radiation Units and measurements) a introduit le concept de grandeurs opérationnelles (mesurables à l'aide de détecteurs) ayant pour objectif d'estimer de façon "raisonnable" les grandeurs de protection.

2.5.5.1 Dosimétrie de zone ou d'ambiance

Pour définir les grandeurs opérationnelles, l'ICRU préconise l'utilisation d'une sphère de 30 cm de diamètre en matériau équivalent tissu qui représente le corps humain (masse volumique $\rho = 1 \text{ g.cm}^{-3}$, composition : 76,2 % d'oxygène, 11,1 % de carbone, 10,1 % d'hydrogène et 2,6 % d'azote). Ces grandeurs se réfèrent à la dose équivalente en Sv qui existerait dans la sphère si cette dernière était placée dans le champ de rayonnement.

2.5.5.2 Equivalent de dose ambiant

L'équivalent de dose ambiant en un point dans le champ de rayonnement est la dose équivalente qui serait produite par le champ de rayonnement à une profondeur d (en mm) dans la sphère ICRU, sur un rayon qui fait face à la direction du champ unidirectionnel. Cette grandeur est utilisée pour estimer les doses dues à des rayonnements fortement pénétrants. La profondeur recommandée est 10 mm et l'on peut écrire $H^*(d)$. Les appareils de contrôle d'ambiance sont calibrés à partir de cette grandeur, qui donne une surestimation raisonnable de la dose efficace.

2.5.5.3 Dosimétrie individuelle

L'équivalent de dose individuel $H_p(d)$ est la dose équivalente dans le tissu mou au point spécifié sur la surface du corps à une profondeur d (mm), le champ de rayonnement étant le champ réel où se trouve l'individu. Les profondeurs d préconisées par l'ICRU sont :

- 0,07 mm pour la peau (rayonnements faiblement pénétrants) : $H_p(0,07)$,
- 3 mm pour le cristallin (rayonnements faiblement pénétrants) : $H_p(3)$,

- 10 mm pour le corps entier (rayonnements fortement pénétrants) : $H_p(10)$.

En pratique, les mesures de $H_p(10)$ et de $H_p(0,07)$ sont réalisées en plaçant un dosimètre opérationnel à la surface du corps. Ce dosimètre peut être constitué d'un détecteur recouvert d'une épaisseur appropriée de matériau équivalent tissu.

La figure 2.10 résume les relations entre les différentes grandeurs utilisées en dosimétrie et radioprotection.

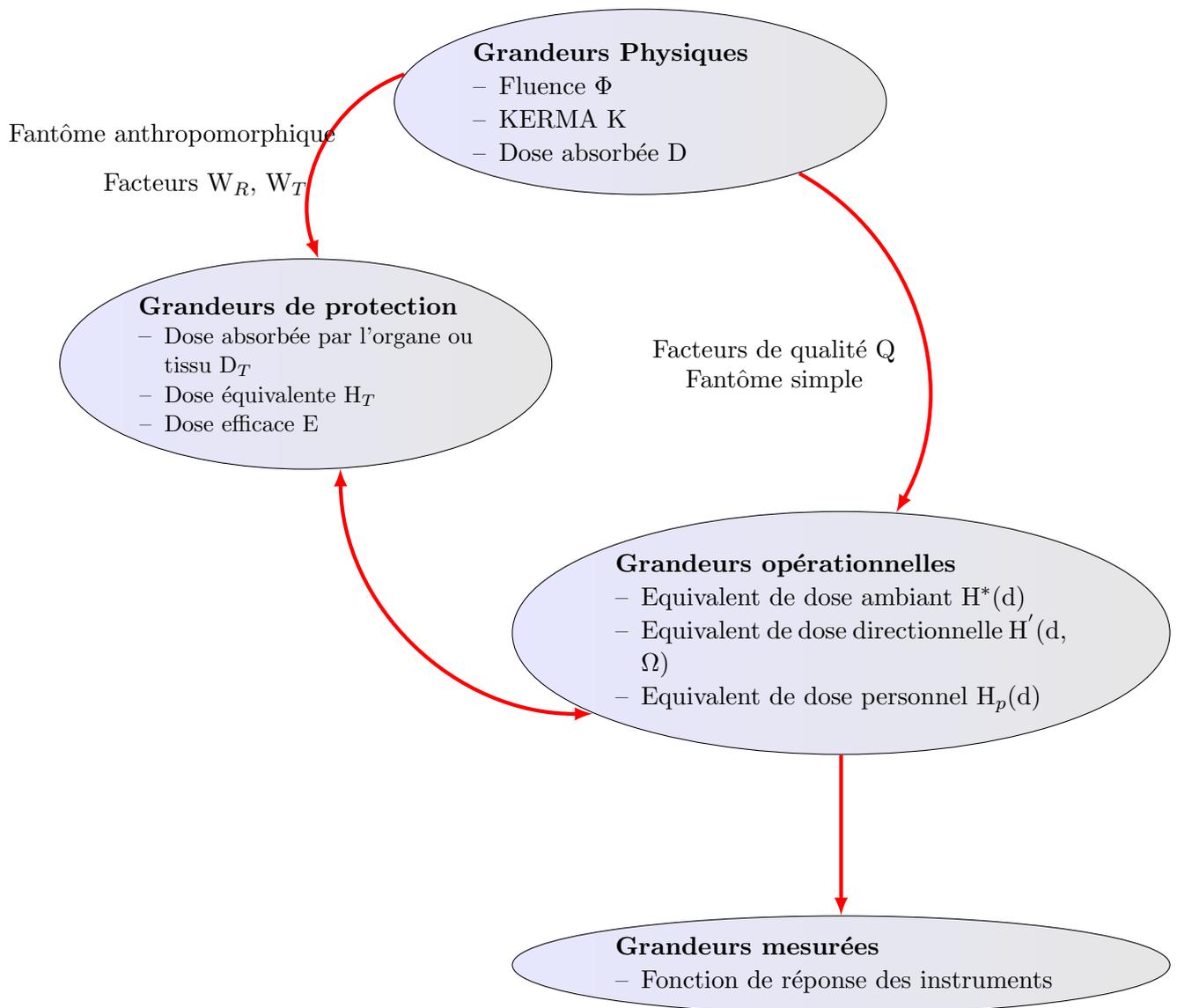


FIGURE 2.10 – Relation entre les différentes grandeurs utilisées en radioprotection et dosimétrie.

2.5.6 Valeurs limites d'exposition

Dans la table 2.4, sont données les valeurs maximales de référence (annuelles sur 12 mois consécutifs) fixées dans la réglementation pour l'exposition aux rayonnements ionisants pour les travailleurs et le public.

Limite d'exposition en mSv/12 mois consécutifs	Travailleurs Catégorie A	Travailleurs catégorie B mineurs de 16 à 18 ans	Public
Dose efficace (E)	20	6	1
H_{peau}	500	150	50
$H_{extrémités}$	500	150	
$H_{cristallin}$	150	45	15

TABLE 2.4 – Valeurs des limites annuelles des doses équivalentes et des doses efficaces [Christine Jimonet 2009].

Le code de la santé public (article : L. 1333-20 (3°), R. 1333-8, R. 1333-138) stipule que les femmes enceintes ne doivent pas dépasser 1 mSv (enfant à naître), et que les femmes qui allaitent sont exclues des travaux à risque de contamination. Les mineurs de 16 à 18 ans dans le cadre de leurs formations sont considérés comme des travailleurs de catégorie B.

2.5.7 Modalités du calcul de dose

Dans l'arrêté du 1 septembre 2003 [Arrêté 2003] sont définies les modalités des calculs des doses efficaces et des doses équivalentes résultant de l'exposition des personnes aux rayonnements ionisants. Ces prescriptions s'appliquent à la somme des doses résultant de l'irradiation externe dans une période spécifiée et des doses engagées sur 50 ans (jusqu'à l'âge de 70 ans pour les enfants) résultant d'incorporations pendant la même période.

La dose efficace E (exprimée en Sv) reçue par un individu du groupe d'âge g est donnée par la relation :

$$E = E_{interne} + E_{externe} \quad \text{avec} \quad E_{interne} = \sum_j h(g)_{j,ing} J_{j,ing} + \sum_j h(g)_{j,inh} J_{j,inh}$$

avec, $J_{j,ing}$ et $J_{j,inh}$ exprimées en Bq, représentent respectivement l'incorporation par ingestion ou inhalation du radionucléide j .

$h(g)_{j,ing}$ et $h(g)_{j,inh}$ exprimées en Sv/Bq, représentent respectivement les doses efficaces engagées par unité d'incorporation (DPUI) d'un radionucléide j ingéré ou inhalé par un individu du groupe d'âge g . Les valeurs de g sont tabulées dans le journal officiel de la

Commission Européenne [Directive 1996].

Elles sont classées selon :

- l’ingestion avec le facteur f_1 de transit intestinal
- l’inhalation, les valeurs sont indiquées pour trois types de rétention pulmonaire (F : clairance pulmonaire rapide, M : clairance pulmonaire moyenne, S : clairance pulmonaire lente, correspondant à des formes chimiques très solubles, moyennement solubles et peu solubles) dépendant uniquement de la vitesse de passage du radionucléide dans le sang.
- la population par tranches d’âges (≤ 1 an, 1 – 2 ans, 2 – 7 ans, 7 – 12 ans, 12 – 17 ans et > 17 ans) et les travailleurs.

Pour les descendants du radon (^{222}Rn) et du thoron (^{220}Rn) seront appliqués les facteurs de conversion conventionnels exprimant la dose efficace par unité d’exposition à l’énergie potentielle alpha $\text{Sv} \cdot (\text{jour} \cdot \text{h} / \text{m}^3)^{-1}$:

- ^{222}Rn dans les habitations $f_c = 1,1$
- ^{222}Rn dans les lieux de travail $f_c = 1,4$
- ^{220}Rn sur les lieux de travail $f_c = 0,5$

2.5.8 Contribution des matériaux de construction à la dose efficace

La radioactivité naturelle renforcée ou technologiquement renforcée est à l’origine de la concentration des radionucléides naturels dans les matériaux de construction. Les normes de base introduites dans la directive [Directive 1996] concernent la radioactivité renforcée. Un nombre important d’activités professionnelles sont concernées par cette directive. Parmi elles, certaines sont susceptibles de concentrer la radioactivité naturelle.

L’ASN a dressé en 2010 un premier bilan des expositions aux rayonnements ionisants dont les activités utilisant les matières premières contenant naturellement des radionucléides, non utilisés en raison de leurs propriétés radioactives. Ceci en application de l’arrêté du 25 mai 2005 [Arrêté 2005]. L’arrêté exige des industriels de réaliser des évaluations des activités ainsi que des doses reçues par les travailleurs. En effet, la transformation des matières riches en radioactivité renforcée peut générer des produits dont l’activité spécifique (massique ou volumique) peut être supérieure à celle du matériau d’origine. Les rayonnements ionisants sont essentiellement le produit des trois familles radioactives à savoir ^{238}U , ^{235}U et ^{232}Th et du ^{40}K . C’est dans cette optique que nous avons effectué une étude sur certains matériaux de construction (sable, gravier, plâtre, brique rouge, ciment, ...). L’estimation de certaines grandeurs permet d’évaluer les risques externes et internes liés à ces rayonnements ionisants, ainsi que la dose absorbée et la dose efficace annuelle.

2.5.8.1 Risque externe

Comme mentionné dans la table 2.4, en ce qui concerne la population, la limite supérieure des doses des différentes radiations dans les matériaux de construction ne doit pas dépasser $1 \text{ mSv} \cdot \text{an}^{-1}$. Afin de limiter la dose de radiation à cette valeur, Krieger [Beretka 1985] propose un modèle où il considère des murs d’épaisseur infinie, sans fenêtres et sans portes pour calculer l’indice de risque externe donné par la relation :

$$H_{ex} = \frac{A_{Ra}}{370} + \frac{A_{Th}}{259} + \frac{A_K}{4810} \leq 1 \quad (2.32)$$

où A_{Ra} , A_{Th} et A_K sont les activités massiques respectives du ^{226}Ra , ^{232}Th et ^{40}K en Bq.kg^{-1} . Des corrections ont été apportées pour prendre en considération des murs finis avec des fenêtres et des portes [Hewamanna 2001]. Avec ce modèle amélioré et en considérant que l'activité maximum du radium-équivalent est de 370 Bq.kg^{-1} [Amrani 2001], l'indice de risque externe devient :

$$H_{ex} = \frac{A_{Ra}}{740} + \frac{A_{Th}}{520} + \frac{A_K}{4810} \leq 1 \quad (2.33)$$

2.5.8.2 Risque interne

La décroissance du ^{226}Ra aboutit au ^{222}Rn et ses descendants avec différentes proportions en tenant compte de l'équilibre radioactif. Ils constituent un risque permanent pour le système respiratoire. Ce risque est quantifié par la relation ci-après [Otoo 2011] qui doit être inférieur ou égal à 1 :

$$H_{in} = \frac{A_{Ra}}{185} + \frac{A_{Th}}{259} + \frac{A_K}{94812} \leq 1 \quad (2.34)$$

Ce facteur d'équilibre dans les habitations est compris entre 0,3 et 0,6, la CIPR préconisant la valeur 0,4.

2.5.8.3 Radium équivalent

Les radioisotopes ^{226}Ra , ^{232}Th et ^{40}K ont une distribution non uniforme dans les matériaux de construction. Un modèle a été développé [Beretka 1985, Otoo 2011, Hewamanna 2001] pour calculer l'activité spécifique pour ceux-ci. L'activité de radium-équivalent est donnée par :

$$Ra_{eq} = A_{Ra} + 1,43 \times A_{Th} + 0,077 \times A_K \quad (2.35)$$

Cette relation est obtenue en considérant que les activités de 370 Bq.kg^{-1} de ^{226}Ra , 259 Bq.kg^{-1} de ^{232}Th et 4810 Bq.kg^{-1} de ^{40}K représentent exactement la même dose équivalente de rayonnement γ .

2.5.8.4 Dose absorbée due aux matériaux de construction

Plusieurs modèles étaient développés pour le calcul du débit de dose absorbée \dot{D} (nGy/h) provenant des matériaux de construction. Selon le rapport établi par la Commission Européenne [Commission 1999], les caractéristiques prises dans le modèle sont résumées dans la table 2.5. Au niveau de la France, à l'air libre à l'intérieur des habitats le niveau moyen national de l'exposition naturelle tellurique plus matériaux de construction (rayonnement cosmique déduit) est estimé à 57 nGy.h^{-1} répartie en 47 % de ^{232}Th , 28 % de ^{238}U et 25 % provenant du ^{40}K .

Le débit de dose absorbée est donnée par la relation :

$$\dot{D} = 0,92 \times A_U + 1,10 \times A_{Th} + 0,08 \times A_K \quad (2.36)$$

Dimension de la chambre	4m x 5m x 2,8m		
Épaisseur et densité des murs (béton)	20 cm , 2350 kg.m ⁻³		
Temps d'exposition annuel	7000 heures		
Facteur de conversion de dose	0,7 Sv.Gy ⁻¹		
Bruit de fond	50 nGy ⁻¹		
Dose spécifique nGy ⁻¹ /(Bq.kg ⁻¹)			
Structure causant l'irradiation	²²⁶ Ra	²³² Th	⁴⁰ K
Plancher, plafond et murs (ensemble)	0,92	1,10	0,08
Plancher et murs (plafond en bois)	0,67	0,78	0,057
Plancher (maison en bois et plancher en béton)	0,24	0,28	0,020
Carrelage et pierre sur les murs (3 cm d'épaisseur et $\rho= 2600$ kg.m ⁻³)	0,12	0,14	0,0096

TABLE 2.5 – Modèle utilisé pour le calcul de la dose absorbée.

où les coefficients 0,92, 1,10 et 0,08 sont exprimés par nGy.h⁻¹.Bq⁻¹.kg de ²³⁸U, de ²³²Th et de ⁴⁰K, et représentent des facteurs de conversion donnés par UNSCEAR (*United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation*). A partir de cette formule on évalue le taux de dose absorbée dans l'air à 1 m de hauteur du niveau du sol [Ngachin 2008].

2.5.9 Dose efficace annuelle

Pour déterminer la dose efficace annuelle, on applique un facteur de conversion de la dose absorbée dans l'air à la dose efficace reçue par un adulte qui est de 0,7 μ SvGy⁻¹. En outre, un facteur d'occupation de 80%, environ 19 h par jour, permet de prendre en considération le temps passé à l'intérieur de ces constructions :

$$\dot{E} (mSv.an^{-1}) = 0,7 \times 24 \times 365,25 \times 0,8 \times \dot{D} \quad (2.37)$$

Dans le dernier chapitre de cette thèse, on revient sur les applications de ces différentes grandeurs par spectrométrie γ .

Simulations Monte Carlo

“The actual science of logic is conversant at present only with things either certain, impossible or entirely doubtful, none of which fortunately we have to reason on. Therefore the true logic for this world is the calculus of Probabilities, which takes account of the magnitude of the probability which is, or ought to be, in a reasonable man’s mind”

James Clerk Maxwell

Sommaire

3.1	Généralités sur la méthode Monte Carlo	60
3.1.1	Nombres aléatoires	62
3.1.2	Incertitudes statistiques	62
3.2	Transport des particules	62
3.2.1	Simulation des interactions indirectement ionisantes	63
3.2.2	Modélisation de l’interaction photon-matière	63
3.3	Code MCNP	65
3.3.1	Fiabilité de la simulation	65
3.3.2	Fichier d’entrée	66
3.3.3	Cellules	67
3.3.4	Surfaces	67
3.3.5	Données physiques	67
3.3.5.1	Source	67
3.3.5.2	Tallies	68
3.3.5.3	Bibliothèques des sections efficaces	69
3.3.5.4	Matériaux	70
3.3.5.5	Réduction de la variance	70
3.4	GEANT4	71
3.4.1	Architecture	71
3.4.2	Géométrie	72
3.4.2.1	Volume solide	72
3.4.2.2	Volume logique	72
3.4.2.3	Volume physique	72
3.4.3	Génération des particules primaires	72
3.4.4	Extraction et analyse de données	73

Les méthodes déterministes et stochastiques (Monte Carlo) sont les plus utilisées dans le monde de la simulation numérique. La méthode déterministe implique la solution des

équations différentielles ou intégrales qui décrivent un système donné. La précision de cette méthode dépend de la façon avec laquelle les équations reproduisent un phénomène physique en question. D'un autre côté, la méthode Monte Carlo permet de calculer des valeurs numériques en utilisant des procédés aléatoires [Metropolis 1987]. Elle est très utilisée dans l'étude des processus stochastiques, en particulier le transport des particules et les photons à travers la matière.

Elle a été développée dans les années quarante par Nicholas Metropolis et Stanislas Ulam [Metropolis 1949]. Elle repose sur la loi des grands nombres qui consiste à répéter un grand nombre de fois une expérience, de manière indépendante. L'approximation ainsi obtenue est proche de la vraie valeur de l'espérance du phénomène étudié. Le recours à cette méthode de calcul est envisageable lorsque le problème étudié est complexe et que la solution analytique est impossible. Plusieurs méthodes d'échantillonnage sont proposées : méthode directe, méthode de rejet, méthode de la distribution discrète [Morel 2007],...

La simplicité de la méthode Monte Carlo constitue son avantage majeur. Elle permet contrairement aux méthodes analytiques d'apprécier les effets des différents paramètres, et ainsi de déterminer des structures optimisées.

Du point de vue applications, la méthode Monte Carlo est utilisée dans différents domaines aussi variés que la physique, la chimie et la biologie.

3.1 Généralités sur la méthode Monte Carlo

L'histoire d'une particule commence à sa naissance et continue jusqu'à sa mort en tenant compte des particules secondaires générées dans un milieu atténuateur. La particule est considérée morte lorsque son énergie est en dessous d'un seuil établi. Elle est captée par un noyau ou elle se trouve en dehors de la zone d'intérêt (zone de rejection). Le déroulement de la méthode Monte Carlo peut être décomposé en trois étapes (figure 3.1) :

1. construction d'un processus statistique appelé **jeu**,
2. attribution d'une valeur numérique à une certaine réalisation dite **score**,
3. calcul de la **moyenne** de ces scores et un **écart-type** afin d'estimer la précision obtenue sur la moyenne.

Le jeu consiste en la réalisation d'une trajectoire, et à chaque fois que la particule traverse la surface, le score est de 1. Ainsi, on pourra calculer la moyenne du nombre de particules ayant traversé la surface d'un détecteur. La figure 3.2 représente l'organigramme d'un tirage Monte Carlo. Prenant l'exemple d'un photon, son histoire commence depuis sa naissance (source externe,...). Le parcours et le type de la cible avec lequel a lieu l'interaction sont tirés au hasard et ensuite la nature de l'interaction à son tour est tirée au hasard en fonction de sa propre section efficace.

Comme exemple d'application, supposons qu'on génère un nombre N de photons et qu'un nombre n de ces photons s'échappe du système considéré. On peut donc estimer la probabilité avec laquelle les photons s'échappent. Deux cas se présentent : soit le photon continue son parcours dans le système, soit il s'échappe. On assigne la probabilité $s_i = 1$ si le photon s'échappe sinon $s_i = 0$. L'estimateur de la probabilité qu'un photon s'est échappé du système est donné par :

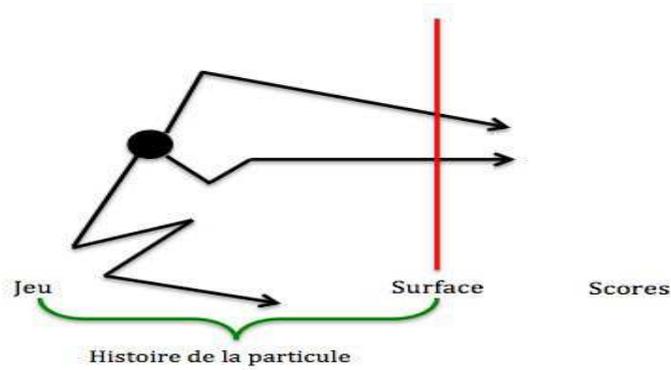


FIGURE 3.1 – Schéma descriptif de la méthode Monte Carlo.

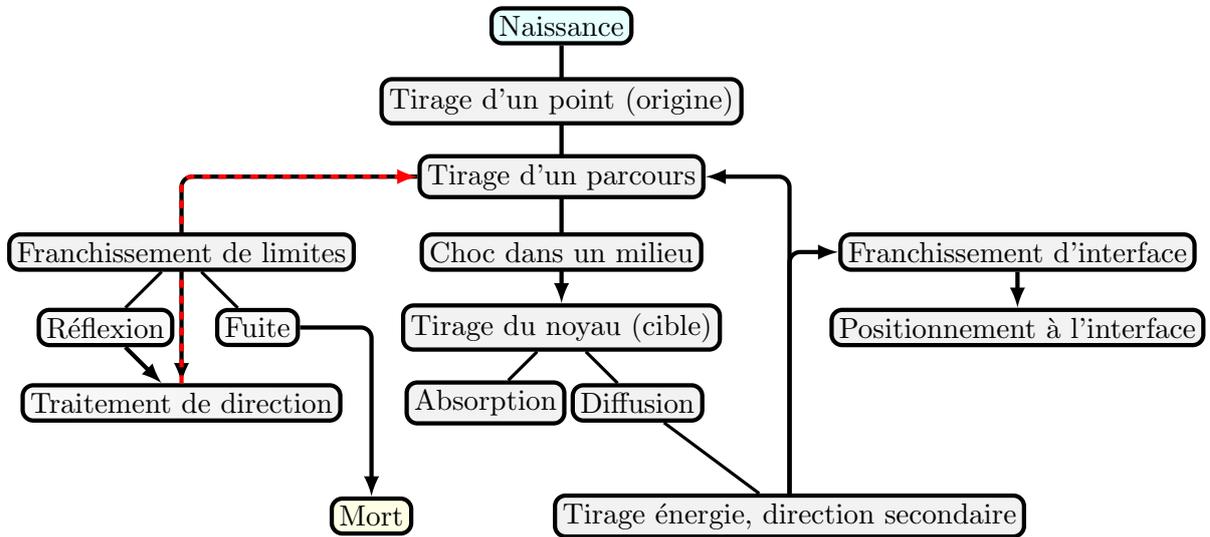


FIGURE 3.2 – Organigramme de l'histoire d'une particule par la méthode Monte Carlo [Nachab 2003].

$$\bar{S} = \frac{1}{N} \sum s_i = \frac{n}{N} \tag{3.1}$$

L'erreur relative sur la probabilité estimée est liée à la variance σ^2 de s_i sur laquelle on peut faire une approximation [Hendricks 2003] quand $N \rightarrow \infty$.

$$\sigma^2(s_i) \approx \frac{1}{N} \sum s_i^2 - \left(\frac{1}{N} \sum s_i\right)^2 = \frac{n(N-n)}{N^2} \tag{3.2}$$

ce qui donne une erreur relative sur la probabilité de s'échapper du système estimée à :

$$\frac{1}{\bar{S}} \sqrt{\frac{\sigma^2(s_i)}{N}} = \sqrt{\frac{(N-n)}{Nn}} \tag{3.3}$$

3.1.1 Nombres aléatoires

Les nombres aléatoires peuvent être générés par des valeurs tabulées basées sur les phénomènes physiques. L'utilisation des ordinateurs pour générer ces nombres aléatoires est confrontée aux problèmes de stockage et à la réalisation des tests de non reproductibilité. Les nombres pseudo-aléatoires sont générés pour pallier le problème de reproductibilité. Lorsqu'on fait un tirage arbitraire du premier nombre pseudo-aléatoire, la suite des nombres est déterminée et reproductible. Le générateur de nombres aléatoires influe directement sur la précision de la simulation. Le *générateur à congruence linéaire* introduit en 1948 par Lehmer est le plus utilisé. Il repose sur la formule de récurrence suivante :

$$X_n = (a.X_{n-1} + c) [m] \quad (3.4)$$

avec

X_0 : nombre employé pour produire une suite pseudo-aléatoire dite la graine ou « seed », a et c désignent respectivement le multiplicateur et l'incrément.

$[m]$: modulo m fait intervenir une division euclidienne de $(a.X_{n-1} + c)$ par m.

Pour un bon générateur de nombres aléatoires, il faut que la périodicité soit élevée. Pour cela on assigne des valeurs de $c = 0$, et $m = 2N$ pour N supérieur à 30. Les nombres obtenus ont une distribution uniforme. Afin d'obtenir ces valeurs dans l'intervalle $[0, 1]$, il suffit de diviser X_n par $(m - 1)$, ce qui donne la relation d'échantillonnage suivante :

$$\varepsilon_n = \frac{X_n}{m - 1} = \frac{a}{m - 1} X_{n-1} \quad (3.5)$$

tel que $\varepsilon_n \in [0, 1]$.

3.1.2 Incertitudes statistiques

A chaque mesure est associée une incertitude. Pour une interprétation correcte des résultats, il faut tenir compte des imprécisions. Deux sources d'incertitudes sont à prendre en considération [BIPM 2008] :

- Catégorie A : ce sont les incertitudes dites statistiques, elles proviennent des déviations aléatoires et sont différentes à chaque nouveau calcul.
- Catégorie B : ce sont les incertitudes dites systématiques, elles sont liées aux paramètres de la simulation (choix de section efficace, nombres pseudo-aléatoires générés,...).

En pratique, les incertitudes statistiques sont généralement données par le code Monte Carlo. En revanche, les incertitudes systématiques nécessitent en général un gros travail d'analyse des différents éléments du calcul [Meynard 2009].

3.2 Transport des particules

Dans ce travail on s'est focalisé essentiellement sur l'interaction photon-matière. En effet, les photons peuvent traverser un milieu sans interagir ou perdre la totalité de leur énergie par l'effet photoélectrique et/ou par création de paire. Dans les deux cas on enregistre la mort de ces photons. Le suivi des événements se fait pas à pas et par ordre chronologique :

échantillonnage du libre parcours moyen, échantillonnage des sections efficaces différentielles et totales, la nature de l'interaction, la direction et la perte d'énergie suite à l'interaction, processus qui recommence avec les particules générées.

3.2.1 Simulation des interactions indirectement ionisantes

Le transport des particules dans la matière dépend du libre parcours moyen. Le libre parcours moyen est inversement proportionnel à la section efficace totale ou macroscopique d'interaction $\Sigma = n\sigma$ dans le milieu traversé où n et σ désignent respectivement le nombre de centres cibles par unité de volume et la section efficace d'interaction. La probabilité pour qu'une particule parcourt une certaine distance l est donnée par :

$$p(l) = e^{-\Sigma l} \quad (3.6)$$

La probabilité pour qu'une collision se produise à une distance infinitésimale entre l et $l + dl$ est régie par :

$$p(l) dl = e^{-\Sigma l} \Sigma dl \quad (3.7)$$

L'intégration le long du parcours l correspondra à une valeur aléatoire uniforme $\xi \in [0, 1]$.

$$\xi = \int_0^l e^{-\Sigma p} \Sigma dp = 1 - e^{-\Sigma l} = 1 - p(l) \quad (3.8)$$

Le parcours aléatoire l est alors la solution de l'équation (3.8).

$$l = -\frac{1}{\Sigma} \ln(1 - \xi) \quad (3.9)$$

et comme ξ et $(1 - \xi)$ suivent la même distribution uniforme, on pourra écrire

$$l = -\frac{1}{\Sigma} \ln(\xi) \quad (3.10)$$

Si le matériau est composé de n éléments, uniforme dans $[0, 1]$, et que Σ_i sont les sections efficaces, où i correspond à la cible [Pelowitz 2008], l'interaction se fait avec le noyau qui répond à l'inégalité ci-dessous :

$$\sum_{i=1}^{k-1} \Sigma_i < \xi \sum_{i=1}^n \Sigma_i \leq \sum_{i=1}^k \Sigma_i \quad (3.11)$$

avec k le numéro de la cible considérée.

3.2.2 Modélisation de l'interaction photon-matière

La modélisation d'une interaction photon-matière est illustrée dans la figure 3.3. Le photon interagit par différents processus dans le détecteur dont la masse volumique est ρ et A la masse molaire.

Chacune des interactions est caractérisée par une section efficace σ_i :

– diffusion Rayleigh (σ_r)

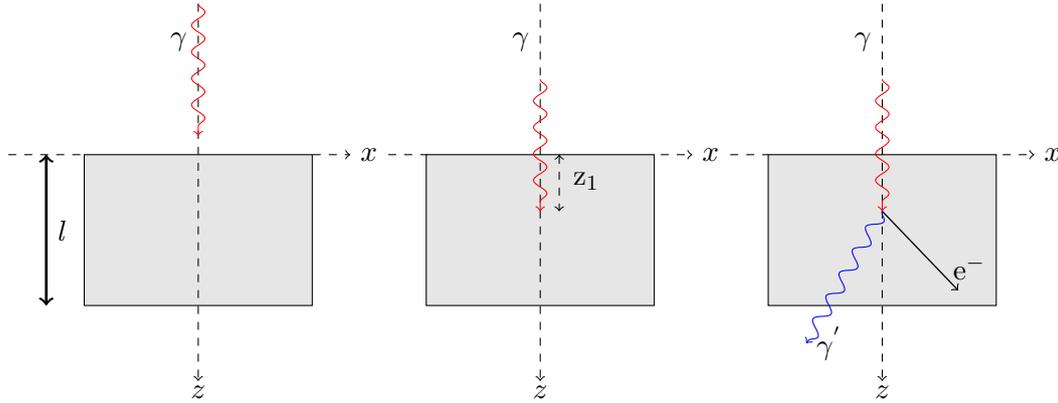


FIGURE 3.3 – Simulation Monte Carlo des interactions photons-matière.

- effet photoélectrique (σ_{pe})
- diffusion Compton (σ_c)
- création de paire (σ_{pair})

Le choix du processus d'interaction des photons avec le détecteur se fait par un tirage aléatoire d'un nombre distribué d'une manière uniforme entre 0 et 1 par la méthode ci-dessus.

Si la distance z_1 parcourue par le photon tirée aléatoirement est supérieure à l'épaisseur du détecteur (l) (figure 3.3), le photon n'interagit pas et est considéré comme mort ou en fuite et son parcours n'est pas suivi. Cependant, si cette distance est inférieure à l'épaisseur du détecteur, le photon interagit, ce qui permet de suivre le parcours de celui-ci jusqu'à sa mort (absorption). C'est dans ce cas de figure que le choix de l'interaction se fait selon les conditions suivantes : la section efficace totale σ_{tot} est la somme des sections efficaces des différents processus d'interaction.

$$\sigma_{tot} = \sigma_{pe} + \sigma_c + \sigma_r + \sigma_{cp} \quad (3.12)$$

Supposant que X est le nombre tiré aléatoirement entre $[0, 1]$.

$$\text{Si } 0 \leq X < \frac{\sigma_{pe}}{\sigma_{tot}} \quad \Rightarrow \quad \text{effet photoélectrique}$$

$$\text{Si } \frac{\sigma_{pe}}{\sigma_{tot}} \leq X < \frac{\sigma_{pe} + \sigma_c}{\sigma_{tot}} \quad \Rightarrow \quad \text{diffusion Compton}$$

$$\text{Si } \frac{\sigma_{pe} + \sigma_c}{\sigma_{tot}} \leq X < \frac{\sigma_{pe} + \sigma_c + \sigma_r}{\sigma_{tot}} \quad \Rightarrow \quad \text{diffusion Rayleigh}$$

$$\text{Si } \frac{\sigma_{pe} + \sigma_c + \sigma_r}{\sigma_{tot}} \leq X < \frac{\sigma_{pe} + \sigma_c + \sigma_r + \sigma_{cp}}{\sigma_{tot}} \quad \Rightarrow \quad \text{création de paire, si l'énergie du photon } \geq 1,022 \text{ MeV.}$$

3.3 Code MCNP

Mis au point lors du projet Manhattan, le code MCNP (Monte Carlo N-Particle) a été développé par le laboratoire Los Alamos. Il est utilisé essentiellement pour la simulation du transport des neutrons, photons, électrons dans des géométries complexes. Aujourd'hui, il représente le code de calcul pour le transport des particules et des interactions avec la matière le plus utilisé.

Dans la deuxième moitié des années 90, une extension de MCNP vers MCNPX (X pour eXtended) a permis d'intégrer la physique des particules, ce qui a rendu possible la simulation des particules chargées à l'image des protons et des ions lourds.

Le code MCNP [Pelowitz 2008] n'est pas modifiable (executable). Le noyau est écrit en fortran et en C. C'est dans le fichier d'entrée (input) qu'on introduit les détails de l'expérience à modéliser sous forme de lignes de commande appelées « cards ».

Le code MCNP fonctionne généralement selon le schéma suivant :

- le module d'exécution *IMCN* permet la lecture du fichier d'entrée, d'établir les unités des variables, le traitement de la source, des tallies et des matériaux. Il calcule les volumes et les aires définis dans les différentes géométries,
- le traitement des sections efficaces *XACT* par le chargement des bibliothèques des particules définies dans le problème et l'évaluation des sections efficaces multigroupes si nécessaire pour les différentes particules,
- le traitement du transport où l'histoire des particules se fait dans la partie *MCRUN*. Il consiste à émettre des particules de la source. Il recherche le libre parcours moyen, évalue les sections efficaces totales d'interaction des différentes particules et le calcul des tallies,
- émission de la particule suivante,
- la fin d'exécution après le suivi de toutes les particules (NPS).

Les résultats sont affichés dans le fichier de sortie avec les différentes observables en fonction des tallies demandés.

3.3.1 Fiabilité de la simulation

Comme on l'avait indiqué ci-dessus, chaque mesure est associée à une incertitude. Pour s'assurer de la fiabilité des résultats simulés, les tallies sont associés à des erreurs relatives R qui sont considérées comme l'estimation du rapport de l'écart-type σ_X sur l'espérance mathématique $E(X)$. Cette erreur est calculée pour chaque histoire complète. Si N est le nombre d'histoires, R est proportionnelle à $1/\sqrt{N}$ [Gerardy 2011]. Ces erreurs ne sont pas relatives aux résultats expérimentaux ou théoriques, mais uniquement à la précision du calcul Monte Carlo. La table 3.1 résume ces différentes valeurs.

Dans certains cas où les longueurs des trajectoires de certaines particules sont importantes, l'échantillonnage du parcours n'est pas optimisé, ce qui engendre des erreurs dans les intervalles de confiance. Pour éviter la production de ces erreurs, MCNP évalue un autre paramètre lié au temps de calcul de l'ordinateur. C'est la *Figure Of Merit* notée FOM, qui est donnée par la relation suivante :

Erreur relative (%)	Fiabilité du calcul
50 à 100	Nulle
20 à 50	Faible
10 à 20	Discutable
< 10	Généralement fiable
< 5	Fiable

TABLE 3.1 – Fiabilité d’un calcul Monte Carlo en fonction de l’erreur relative [Pelowitz 2008].

$$FOM = \frac{1}{R^2 t} \quad (3.13)$$

avec t le temps utilisé par l’ordinateur pour le travail exécuté. Cette valeur est donnée par défaut pour chaque 1000 histoires. Pour changer cette valeur, on utilise la carte PRDMP. La valeur de FOM doit rester constante sinon l’intervalle de confiance est probablement incorrect.

3.3.2 Fichier d’entrée

Le fichier d’entrée contient des informations concernant la description des matériaux, sections efficaces, localisation et caractéristique de la source, les réponses (tallies) qu’on souhaite et la technique de réduction de variance pour optimiser les calculs (optionnel).

Le fichier d’entrée est composé de trois blocs :

Titre (1 ligne)
Définition des cellules
...
...
<i>Sauter une ligne (ligne en blanc)</i>
Définition des surfaces
...
...
<i>Sauter une ligne (ligne en blanc)</i>
Données physiques (Source, énergies, tallies, matériaux, NPS, ...)
...
...

3.3.3 Cellules

La cellule est décrite par un numéro qui définit le matériau la constituant et sa densité. Elle a deux sens, un positif et l'autre négatif. Appliquée à une surface fermée, le signe (+) indique l'extérieur de la cellule et le signe (-) indique l'intérieur. La cellule est le résultat de l'intersection, union et/ou la complémentarité des différentes surfaces. Les deux opérateurs intersection et union suivent une logique booléenne. Le premier est implicite et représenté par le blanc entre deux surfaces. Le second est donné par (:). Le dernier opérateur est symbolisé par (#) qui veut tout dire (n'appartient pas). La cellule est déclarée sous cette forme :

j : numéro de la cellule donné par l'utilisateur,
m : numéro de la cellule si elle n'est pas vide,
d : densité du matériau (atomes/cm³) ou en g/cm³
geom : signe de la cellule et les différents opérateurs booléens cités avant
params : optionnel, utilise des mots clé comme IMP, Vol,...

3.3.4 Surfaces

Les surfaces peuvent être définies suivant trois alternatives : des équations (figure 3.4), des points ou des « macrobodies ». Dans ce travail, on a utilisé la troisième méthode des macrobodies. Ce sont des géométries déjà prêtes à l'utilisation. Les surfaces définies sont : BOX (boîte), RPP (parallélépipède), SPH (sphère), RCC (cylindre), HEX (hexagone), REC (cylindre elliptique), TRC (cône), ELL (ellipsoïde), WED (cale, coin), ARB (polyèdre). Elles sont décomposées par MCNPX en surfaces et en facettes et des numéros sont assignés par l'utilisateur pour que chaque facette puisse être exploitée distinctement par les différents tallies.

3.3.5 Données physiques

3.3.5.1 Source

La source est définie par la carte SDEF. Cette carte est utilisée une seule fois dans un fichier d'entrée et peut reproduire une grande variété de sources. En fonction de la géométrie de la source utilisée, les paramètres qui la caractérisent doivent être choisis parmi une multitude de variables. Certains de ces paramètres sont :

- *POS* : position de la source (par défaut à (0, 0, 0)),
- *ERG* : énergie des particules sources (par défaut 14 MeV),
- *VEC* : vecteur directeur de la source en cas de non isotropie,
- *PAR* : choix de la particule =1 (MODE N, NP,NPE) ; =2 (MODE P, PE) ; =3 (MODE E). N, P et E désignant respectivement neutron, photon et électron,
- *RAD* : rayon de la source (source étendue).

Pour compléter la définition des sources, les distributions en énergie permettent à une variable de prendre plusieurs valeurs. Elles sont définies par Dn (n est le numéro de la distribution). Des cartes sont associées à cette distribution : SI (Source Information), qui précise la forme de la distribution (discrète, histogramme, ...) ; SP (Source Probability) décrit d'éventuelles probabilités associées à la source.

Mnemonic	Type	Description	Equation	Card Entries
P	Plane ↓	General	$Ax + By + Cz - D = 0$	$ABCD$
PX		Normal to X-axis	$x - D = 0$	D
PY		Normal to Y-axis	$y - D = 0$	D
PZ		Normal to Z-axis	$z - D = 0$	D
SO	Sphere ↓	Centered at Origin	$x^2 + y^2 + z^2 - R^2 = 0$	R
S		General	$(x - \bar{x})^2 + (y - \bar{y})^2 + (z - \bar{z})^2 - R^2 = 0$	$\bar{x} \bar{y} \bar{z} R$
SX		Centered on X-axis	$(x - \bar{x})^2 + y^2 + z^2 - R^2 = 0$	$\bar{x} R$
SY		Centered on Y-axis	$x^2 + (y - \bar{y})^2 + z^2 - R^2 = 0$	$\bar{y} R$
SZ		Centered on Z-axis	$x^2 + y^2 + (z - \bar{z})^2 - R^2 = 0$	$\bar{z} R$
C/X	Cylinder ↓	Parallel to X-axis	$(y - \bar{y})^2 + (z - \bar{z})^2 - R^2 = 0$	$\bar{y} \bar{z} R$
C/Y		Parallel to Y-axis	$(x - \bar{x})^2 + (z - \bar{z})^2 - R^2 = 0$	$\bar{x} \bar{z} R$
C/Z		Parallel to Z-axis	$(x - \bar{x})^2 + (y - \bar{y})^2 - R^2 = 0$	$\bar{x} \bar{y} R$
CX		On X-axis	$y^2 + z^2 - R^2 = 0$	R
CY		On Y-axis	$x^2 + z^2 - R^2 = 0$	R
CZ		On Z-axis	$x^2 + y^2 - R^2 = 0$	R
K/X		Cone ↓	Parallel to X-axis	$\sqrt{(y - \bar{y})^2 + (z - \bar{z})^2} - t(x - \bar{x}) = 0$
K/Y	Parallel to Y-axis		$\sqrt{(x - \bar{x})^2 + (z - \bar{z})^2} - t(y - \bar{y}) = 0$	$\bar{x} \bar{y} \bar{z} t^2 \pm 1$
K/Z	Parallel to Z-axis		$\sqrt{(x - \bar{x})^2 + (y - \bar{y})^2} - t(z - \bar{z}) = 0$	$\bar{x} \bar{y} \bar{z} t^2 \pm 1$
KX	On X-axis		$\sqrt{y^2 + z^2} - t(x - \bar{x}) = 0$	$\bar{x} t^2 \pm 1$
KY	On Y-axis		$\sqrt{x^2 + z^2} - t(y - \bar{y}) = 0$	$\bar{y} t^2 \pm 1$
KZ	On Z-axis		$\sqrt{x^2 + y^2} - t(z - \bar{z}) = 0$	$\bar{z} t^2 \pm 1$
				± 1 used only for 1 sheet cone
SQ	Ellipsoid Hyperboloid Paraboloid	Axes parallel to X-, Y-, or Z-axis	$A(x - \bar{x})^2 + B(y - \bar{y})^2 + C(z - \bar{z})^2 + 2D(x - \bar{x}) + 2E(y - \bar{y}) + 2F(z - \bar{z}) + G = 0$	$A B C D E$ $F G \bar{x} \bar{y} \bar{z}$
GQ	Cylinder Cone Ellipsoid Hyperboloid Paraboloid	Axes not parallel to X-, Y-, or Z-axis	$Ax^2 + By^2 + Cz^2 + Dxy + Eyz + Fzx + Gx + Hy + Jz + K = 0$	$A B C D E$ $F G H J K$
TX	Elliptical or circular torus. Axis is Parallel to X-, Y-, or Z-axis		$(x - \bar{x})^2/B^2 + (\sqrt{(y - \bar{y})^2 + (z - \bar{z})^2} - A)^2/C^2 - 1 = 0$	$\bar{x} \bar{y} \bar{z} A B C$
TY			$(y - \bar{y})^2/B^2 + (\sqrt{(x - \bar{x})^2 + (z - \bar{z})^2} - A)^2/C^2 - 1 = 0$	$\bar{x} \bar{y} \bar{z} A B C$
TZ			$(z - \bar{z})^2/B^2 + (\sqrt{(x - \bar{x})^2 + (y - \bar{y})^2} - A)^2/C^2 - 1 = 0$	$\bar{x} \bar{y} \bar{z} A B C$
X Y Z P	Surfaces defined by points		See pages 3-16 and 3-18	

FIGURE 3.4 – Carte des surfaces utilisées par MCNP.

3.3.5.2 Tallies

Pour étudier la physique du problème d'une manière exhaustive, on utilise la carte F_n ou Tallies où n représente le numéro (type) de tally (table 3.2). L'utilisateur choisit le tally en fonction de l'observable qui l'intéresse. Les tallies associés à d'autres cartes permettent d'avoir plus d'options quant aux résultats recherchés. La carte F_n est en générale associée avec la carte E_n qui permet le séquençage de l'énergie en *bin* si nécessaire. Par exemple,

on veut simuler un spectre représenté sur 4096 canaux : par la carte En , on fixe la limite inférieure par l'énergie qui correspond au premier canal, et la limite supérieure par l'énergie correspondante au dernier canal et on divise cet intervalle d'énergie en 4096 bins. Un tally peut être utilisé plusieurs fois, il suffit d'ajouter un autre chiffre avant le numéro de tally comme $F8$ et $F18$. MCNP offre la possibilité d'introduire la résolution du détecteur par la carte GEB pour *Gaussian Energy Broad*, l'énergie est MeV.

$$FWHM = a + b\sqrt{E + c \cdot E^2} \quad (3.14)$$

avec a, b, c déterminés expérimentalement en fonction de la chaîne de mesure. On dénombre 7 tallies pour les neutrons (N), 6 pour les photons (P) et 5 pour les électrons (E).

Tallies	Spécification	Particule
F1	Courant surfacique	N, P, E, PE
F2	Flux surfacique moyen	N, P, E, PE
F4	Flux moyen sur une cellule	N, P, E, PE
F5	Flux en un point	N, P
F6	Energie moyenne déposée dans une cellule	N, P, E
F7	Energie moyenne de fission dans une cellule	N
F8	Energie déposée dans une cellule (détecteur)	N, P, E, PE

TABLE 3.2 – Différents tallies utilisés par MCNPX.

Deux de ces tallies en particulier peuvent attirer notre attention, le tally F6 et F8. En effet, un F6 est défini comme étant la quantité d'énergie déposée dans la cellule en fonction de l'énergie de la particule incidente. Contrairement au tally F8 qui permet d'obtenir un spectre d'énergie déposée dans la cellule, cela dit, il exprime un nombre d'occurrences en fonction de l'énergie déposée.

3.3.5.3 Bibliothèques des sections efficaces

On distingue plusieurs bibliothèques qui gèrent les sections efficaces des photons :

- Bibliothèque 01P : introduite en 1982 [Pelowitz 2008], qui regroupe les sections efficaces de diffusion cohérente (Rayleigh) et incohérente (Compton), de l'effet photoélectrique et celles de création de paire. Les tables d'interaction [DeMarco 2002] sont fournies par *Evaluated Nuclear Data Files* (ENDF) [Magurno 1982], la compilation d'Israel et Storm [Storm 1970] et, Everett et Cashwell [Cashwell 1973] par leurs travaux sur la fluorescence. Les énergies considérées sont comprises entre 1 keV et 100 MeV.

- Bibliothèque 02P : introduite en 1993, la nouveauté est la gamme d'énergie élargie jusqu'à 100 GeV. Les tables proviennent des données de la ENDF depuis la bibliothèque *Livermore Evaluated Photon Data Library* (EPDL)[Cullen 1997].
- Bibliothèque 04P : introduite la même année que la 03P, basée sur des données provenant de ENDF/B-VI.8. La différence avec 01P réside dans l'extension à un Z de matériau allant jusqu'à 100 contre 94 pour la première. L'énergie est comprise entre 1 keV et 100 GeV.

3.3.5.4 Matériaux

Comme indiqué précédemment les cellules sont constituées de matériaux qui sont définis par la carte Mn. Elles se présentent comme Mn zaid1, fraction1, zaid2, fraction2, ... Zaid indique l'élément utilisé et il est décomposé en ZZZAA.nnx, où Z est le numéro atomique de l'élément considéré, A sa masse atomique, n la librairie des sections efficaces et x la classe de la donnée. Dans le cas des photons et les éléments naturels AA=00 et nnx ne sont pas considérés.

3.3.5.5 Réduction de la variance

Pour réduire les erreurs liées à la statistique, on peut augmenter le nombre de particules générées. Cependant, cette méthode est gourmande en temps de calcul. Pour cette raison, la méthode de réduction de variance a été développée pour réduire l'incertitude sur la mesure sans pour autant augmenter trop le temps de calcul. Plusieurs méthodes de réduction de variance existent [laboratory 1994] :

- Méthode de troncature
Consiste à tronquer les espaces qui ne contribuent pas d'une manière significative aux tallies. Elle permet de réduire le temps de calcul. Pour le faire, d'une part on varie les importances des cellules et/ou, d'autre part, ne modélise pas les parties à moindre importance.
- Méthode du contrôle de la population
Utilise la division des particules et la roulette russe afin de contrôler le nombre d'échantillons dans chaque région de l'espace. Dans les régions prépondérantes, on suit un nombre important de particules avec un poids faible. Le nombre faible de particules est suivi avec un poids fort.
- Méthode de modification de l'échantillonnage
L'échantillonnage s'applique pour les distributions qui envoient des particules dans une direction donnée ou qui se trouvent dans un intervalle d'énergie ou qui changent la nature de l'interaction dans le milieu. C'est une méthode qui modifie l'échantillonnage statistique afin d'augmenter le nombre de tallies par particule.
- Méthode partiellement déterministe

Elle utilise des techniques déterministes telle que des estimateurs de l'évènement ou le contrôle de la séquence des nombres aléatoires [Pelowitz 2008].

L'utilisation de ces méthodes est intéressante pour réduire le temps de calcul. En revanche, sa mauvaise utilisation peut induire des erreurs et même des résultats erronés.

3.4 GEANT4

Le code GEANT4 (GEometry ANd Tracking) est basé sur une programmation orientée objet C++. Il a été développé par le Conseil Européen de Recherche Nucléaire (CERN) [Agostinelli 2003]. L'objectif est d'effectuer les simulations des différentes expériences de plus en plus complexes à réaliser en physique subatomique. Il permet de simuler la fonction de réponse du détecteur en se basant sur les différents types d'interactions.

Des études approfondies peuvent être réalisées sur toute expérience en tenant compte de la géométrie du dispositif expérimental, des matériaux utilisés, de la génération des particules primaires et secondaires et leur suivi pas à pas dans le milieu étudié. GEANT4 est utilisé dans plusieurs branches de la physique : physique des particules, physique nucléaire, astrophysique et la physique médicale.

3.4.1 Architecture

GEANT4 est un ensemble d'une multitude de modules [GEANT4 Collaboration]. Chacun de ces modules a un rôle particulier à jouer.

- **Run** : collection de l'ensemble des événements qui sont soumis aux mêmes conditions de détection. A l'intérieur d'un Run, l'utilisateur ne peut modifier ni la géométrie, ni les processus physiques. Au début de chaque Run, les sections efficaces sont calculées à partir des matériaux requis.
- **Event** : contient les particules primaires générées qui sont stockées dans une pile. Lorsque la pile se vide, on parle de la fin de l'évènement. L'utilisateur a ainsi accès aux listes des vertex, des particules primaires, à l'ensemble des trajectoires, de coups,...
- **Track** : suivi ou trace de la particule dynamique dans son environnement. A un instant donné, la trace est caractérisée par une position et des quantités physiques. Elle est perdue si la particule sort de l'environnement "World".
- **Step** : considéré comme unité de base de la simulation (pas), cette classe est associée à G4Step. Chaque pas est représenté par deux points, un pré et un post-step. Dans un pas on collecte les informations relatives aux processus physiques (énergies, temps, volume,...). A l'interface de deux matériaux, le post-step appartient au volume suivant. Cette dernière caractéristique permet de simuler des processus tels que la réfraction.

Pour réaliser une simulation, il faut définir la géométrie du détecteur et les processus physiques mis en jeu. Il est possible de réaliser des simulations avec un minimum de trois

classes [GEANT4 Collaboration 2008].

3.4.2 Géométrie

- *G4VUserDetectorConstruction* :

La simulation du détecteur se fait par la définition de sa géométrie et des matériaux qui le composent. Trois classes sont dédiées à la nature des matériaux : *G4Isotope*, *G4Element* et *G4Material* [GEANT4 Collaboration 2008].

Le matériau peut être défini comme un ensemble d'éléments qui sont spécifiés au préalable. Il peut être aussi défini en précisant son nom, son numéro atomique Z , sa masse molaire et sa densité.

Les dimensions et les formes du détecteur sont représentées par des volumes remplis par différents matériaux. GEANT4 considère trois sortes de volume : *solide*, *logique* et *physique*.

3.4.2.1 Volume solide

Le volume solide sert à définir la géométrie du volume. Dans le cas des géométries complexes, des opérations booléennes telles que *G4UnionSolid*, *G4SubstractionSolid* et *G4IntersectionSolid* sont appliquées sur des géométries de base, sur lesquelles on peut aussi faire des rotations et des translations.

3.4.2.2 Volume logique

Le volume logique sert à préciser les propriétés du matériau, à savoir sa nature et les attributs de visualisation. A ce stade, les données physiques liées à ce volume peuvent être récupérées.

3.4.2.3 Volume physique

Quant au volume physique, il établit une certaine hiérarchie, en plaçant les différents volumes dans un volume figé (World). L'imbrication des petits volumes (filles) dans d'autres volumes (mère) doit se faire en évitant les chevauchements. Les opérations de translation, de rotation et de positionnement sont déclarées dans ce volume.

3.4.3 Génération des particules primaires

- *G4VUserPrimaryGeneratorAction* :

Pour générer des particules avec GEANT4, les paramètres à déclarer sont la nature de la particule émise, la position initiale, la taille de la source (ponctuelle ou étendue), le type d'émission (isotrope ou directionnelle) de la source ainsi que les énergies émises.

- *G4VUserPhysicsList* :

L'utilisateur doit au préalable définir le processus physique à étudier, les énergies de coupures et la nature des particules. Il existe une centaine de particules. Elles sont classées en plusieurs catégories : les leptons, les mésons, les baryons, les bosons, les

particules à vie courte et les noyaux alpha. Dans ce travail, on s'est limité aux processus d'interaction concernant les photons, les électrons et les positrons.

D'autres classes dites optionnelles peuvent être rajoutées pour pouvoir inclure d'autres procédures à la simulation. On peut citer, *G4UserRunAction*, *G4UserEventAction* et *G4UserSteppingAction*. Le fait de rajouter ces classes permet d'agir sur les grandeurs calculées telles que l'énergie déposée, l'énergie cinétique et aussi la position de la particule.

Le début d'un run avec GEANT4, par analogie avec l'expérience, commence toujours par un "BeamOn". Durant toute la période du run (collecte d'événements), on ne peut plus intervenir sur le dispositif expérimental simulé et les différentes interactions mises en jeu. On parle d'événement à partir du moment où on a généré la particule primaire. Les trajectoires de la particule et des particules secondaires sont suivies jusqu'à l'épuisement de leurs énergies cinétiques.

Le suivi de la trajectoire de ces particules permet de reconstruire leur traces pas-à-pas (step by step). Le pas est limité par la fin d'un processus ou par un volume. Il permet de décrire les informations entre deux points successifs (position, énergie,...)

3.4.4 Extraction et analyse de données

Pour analyser les données fournies par la simulation, il faut les extraire en utilisant certaines classes :

G4UserRunAction : contrôle le début et la fin d'un run ; on peut mettre l'ouverture d'un fichier de sortie ou un histogramme pour une analyse ultérieure (Root, ...).

G4UserEventAction : agit sur le début d'événement par la commande `BeginOfEventAction(const G4Event*)` et se termine par `EndOfEventAction(const G4Event*)`.

G4SteppingAction : suit la particule pas-à-pas et permet d'avoir des informations sur la position de l'interaction par la commande `fTrack → GetPosition()` et le type de particule par `fTrack → GetDefinition() → GetParticleName()`.

On peut préciser dans quelle partie du détecteur l'interaction a eu lieu ainsi que l'observable qui nous intéresse (énergie cinétique, énergie déposée, ...).

Pic-somme et simulation Monte Carlo

Sommaire

4.1	Introduction	76
4.2	Mise en évidence expérimentale de l'effet de pic-somme	76
4.3	Rendement géométrique	78
4.3.1	Effet de la distance source-détecteur	79
4.3.2	Effet de volume du détecteur	80
4.3.3	Effet du schéma de décroissance	81
4.4	Etude du PS avec un détecteur GeHP planaire	83
4.5	Correction du pic-somme	84
4.5.1	Critères de choix de l'étalon	84
4.5.2	Formalisme mathématique	85
4.5.2.1	Schéma de niveaux à deux cascades	85
4.5.2.2	Généralisation à plusieurs cascades	86
4.5.2.3	Perte d'impulsions en amont de l'état excité	87
4.5.2.4	Exemple du ^{134}Cs	87
4.5.2.5	Perte d'impulsions en aval de l'état excité	88
4.5.2.6	Gain d'impulsions par sommation	88
4.5.3	Modélisation du dispositif expérimental	89
4.5.4	Géométrie SG500 au contact du détecteur	89
4.6	Code ETNA	92
4.7	Code GESPECOR	93
4.7.1	Comparaison MCNPX, ETNA et GESPECOR	94
4.7.2	Validation expérimentale des différentes méthodes	96
4.8	Influence de la géométrie et de la distance sur le PS	97
4.8.1	Géométrie SG500 à 4,5 et 6,5 cm du détecteur	97
4.8.2	Géométrie SG50	99
4.8.2.1	SG50 au contact du détecteur	99
4.8.2.2	SG50 à 4,5 et 6,5 cm du détecteur	99
4.9	Etude du pic-somme avec un détecteur coaxial	104
4.9.1	Description de l'expérience	104
4.9.1.1	Sources ponctuelles	104
4.9.1.2	Sources étendues	105
4.10	Conclusions	109

4.1 Introduction

En pratique, pour la mesure des faibles radioactivités environnementales, l'échantillon est positionné le plus proche possible du détecteur. Des paramètres comme la distance source-détecteur, les faibles dimensions de l'échantillon et les grandes dimensions du détecteur contribuent à l'augmentation de l'angle solide. L'augmentation de ce dernier améliore la sensibilité du détecteur aux rayonnements X et γ de faible énergie, mais a comme conséquence l'apparition du phénomène de pic-somme (PS). Il s'agit de la détection simultanée de deux photons voire plus émis en cascade. Il concerne les niveaux excités qui ont une durée de vie inférieure à la résolution en temps du détecteur.

Le pic-somme se manifeste soit par une perte de comptage dans le pic d'absorption totale, ce qui amène à la sous-estimation de l'efficacité pour l'énergie correspondante, soit par l'apparition de nouveaux pics d'énergie égale à la somme des énergies détectées simultanément ou des pics de sommation qui s'ajoutent au fond continu du spectre. Deux types de coïncidences sont étudiées dans ce travail : $\gamma\gamma$ et γX .

A ne pas confondre le phénomène PS avec celui dû aux empilements « pile-up » qu'on observe en général dans le cas des hauts comptages. Ces deux phénomènes d'origines différentes ont la même conséquence sur la fonction de réponse du détecteur.

4.2 Mise en évidence expérimentale de l'effet de pic-somme

Pour illustrer le phénomène de PS, prenons le cas du ^{60}Co dont le schéma des niveaux est présenté dans la figure 4.1. La détection des deux photons peut se faire de plusieurs façons (figure 4.2). Une absorption totale d'un γ_i se traduit par une impulsion dans le pic d'énergie E_i . La diffusion d'un photon est équivalente à un dépôt partiel de l'énergie du photon incident. La désintégration par l'émission de β^- du ^{60}Co vers un état excité du ^{60}Ni est suivie par une émission en cascade de deux rayonnements γ_1 d'énergie 1173 keV et γ_2 de 1332 keV avec des intensités d'émission voisinant 100 % pour les deux transitions. Les durées de vies des niveaux sont de l'ordre de la picoseconde.

La détection séparée de γ_1 et de γ_2 se traduit par des impulsions de chacune des raies dans le spectre de la figure 4.2 (a). L'absorption totale de γ_1 suivie de l'absorption totale de γ_2 simultanément donnent le pic de coïncidence. Le cas (b) montre un pic à 2,505 MeV correspondant à la somme de 1,173 et 1,332 MeV. Le cas (c) représente la situation lorsqu'un des γ est totalement et l'autre partiellement absorbé, un fond apparaît entre la raie à 1,332 MeV et le pic à 2,505 MeV.

4.3 Rendement géométrique

Le rendement géométrique est une grandeur indépendante de l'énergie ; elle représente la probabilité pour les photons émis de la source dans 4π de se diriger vers le détecteur. Il est intimement lié à l'angle solide. La détermination précise de ce dernier est très importante en physique des détecteurs. Il permet de relier le flux ou l'intensité de particules ou photons émis par une source à celui traversant la surface du détecteur. Plusieurs travaux ont été dédiés à l'étude de ce paramètre, utilisant des méthodes analytiques ou des simulations Monte Carlo [Agency 2012]. La figure 4.3 représente un cas général de calcul d'angle solide récemment publié par Kerneis [Kerneis 2012].

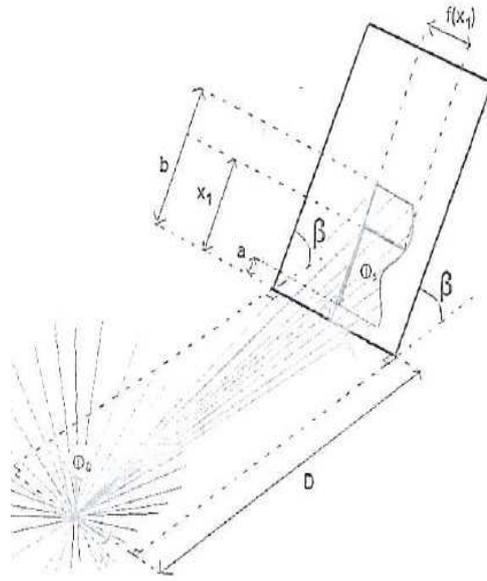


FIGURE 4.3 – Géométrie décrivant la généralisation de l'angle solide.

Pour une source ponctuelle isotrope de flux Φ_0 , selon le paramétrage de la figure 4.3, l'angle solide Ω est le rapport entre ce flux et le flux Φ_s à travers la surface définie par la fonction $f(x)$ sur l'intervalle $[a, b]$:

$$\frac{\Omega}{4\pi} = \frac{\Phi_s}{\Phi_0} = \frac{1}{4\pi} \int_a^b \frac{D \sin \beta}{(D^2 + 2Dx_1 \cos \beta + x_1^2)} \frac{|f(x_1)|}{\sqrt{D^2 + 2Dx_1 \cos \beta + x_1^2 + f(x_1)^2}} dx \quad (4.1)$$

Dans le cas d'une calotte sphérique (a) de la figure 4.4, la fonction $f(x)$ est donnée par l'expression :

$$f(x) = \sqrt{R^2 - x^2} \quad (4.2)$$

R étant le rayon du détecteur.

Pour un détecteur cylindrique et selon la position de la source, ce formalisme peut aboutir aux

différentes expressions de calcul des angles solides. Lorsque la source n'est pas alignée avec l'axe d'un détecteur (b) de la figure 4.4, la calotte est à base elliptique. Cette approximation est donnée par :

$$\frac{\Omega}{4\pi} = \frac{(1 - \cos(\frac{\theta}{2})) + (1 - \cos(\frac{\phi}{2}))}{4} \quad (4.3)$$

Le rapport des flux Φ_0 et Φ_s est obtenu en tenant compte de la moyenne entre la surface de la calotte circulaire de diamètre égal au grand axe et la surface de la calotte circulaire de diamètre égal au petit axe de l'ellipse.

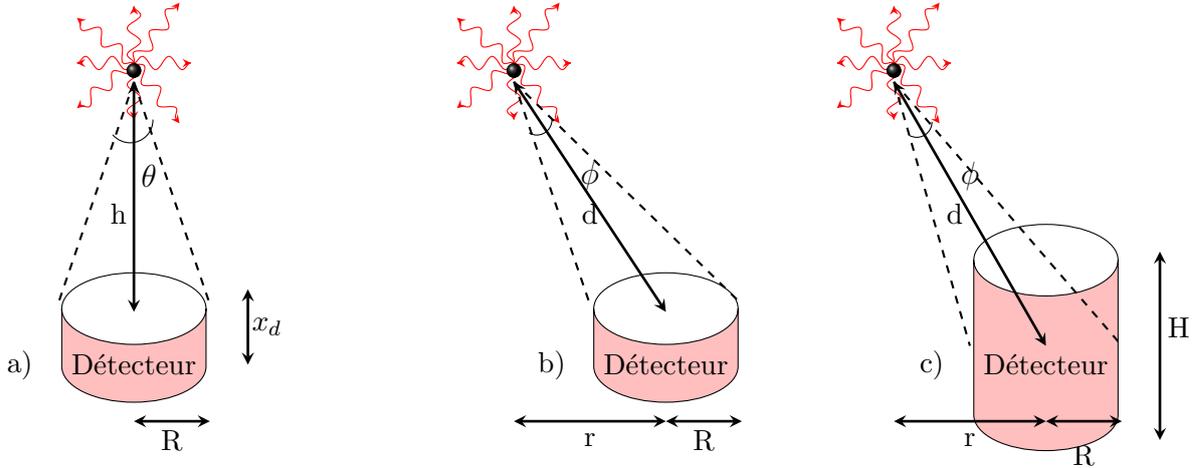


FIGURE 4.4 – Configuration des différents cas d'angle solide.

La profondeur d'un détecteur cylindrique est utilisée dans le calcul de l'angle solide (c) de la figure 4.4. Il est calculé en faisant une intégrale sur toute la hauteur du détecteur (H). Ainsi, en terme de rendement moyen sur l'ensemble du détecteur, il est obtenu par un rendement pondéré par la probabilité d'interaction dans chacune de ses tranches. Dans le cas d'un détecteur germanium, l'angle moyen est donné par l'expression suivante :

$$\bar{\Omega} = \frac{\int_0^H \Omega(x_d) \times e^{-\mu_{Ge}x_d} dx_d}{\int_0^H e^{-\mu_{Ge}.x_d} dx_d} \quad (4.4)$$

avec μ_{Ge} , le coefficient de l'atténuation linéaire du germanium qui dépend de l'énergie.

4.3.1 Effet de la distance source-détecteur

Ce paramètre purement géométrique est directement lié à l'angle solide de détection. La variation de la distance source-détecteur influe sur l'importance de l'effet de pic-somme. En pratique, au delà d'une certaine distance les effets de PS sont négligeables. Pour mettre en évidence l'effet de la distance, des simulations par GEANT4 d'une source ponctuelle de ^{60}Co ont été effectuées (figure 4.5).

En éloignant la source du détecteur l'effet de pic-somme s'amenuise. Des distances de 150, 110, 65 et 45 mm et au contact du détecteur ont été simulées. Pour donner un ordre de grandeur de la perte de comptage due aux coïncidences vraies, le rapport surface du pic à

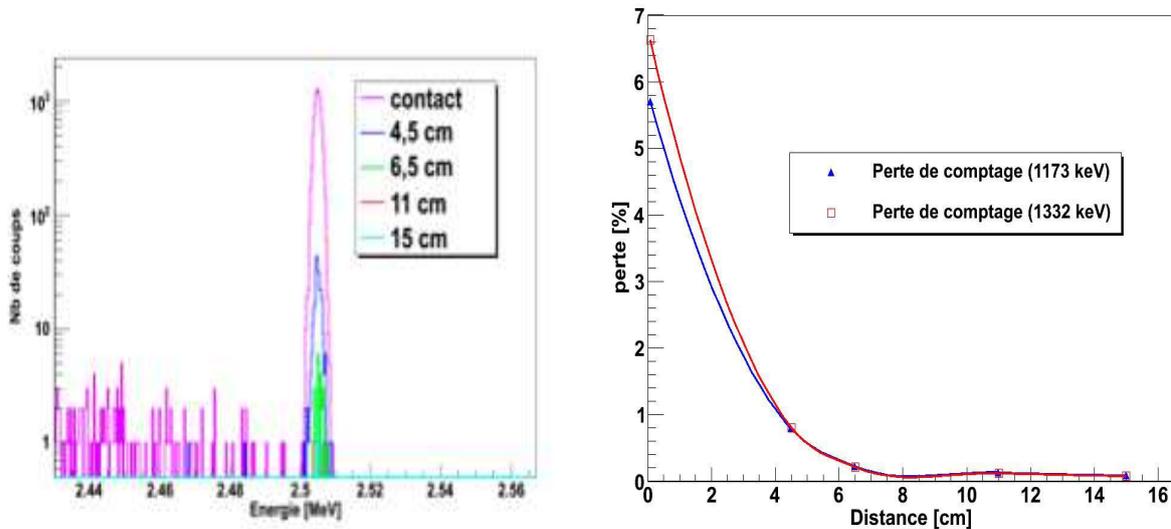


FIGURE 4.5 – Spectre simulé par GEANT4 d’une source ponctuelle de ^{60}Co à différentes distances du détecteur.

2505 keV normalisée respectivement par les surfaces des pics à 1332 keV et 1173 keV avoisine les 7 % lorsque l’échantillon est au contact et tend vers zéro au-delà de 15 cm du détecteur comme le montrent les courbes de la figure 4.5 pour les énergies de 1173 et 1332 keV. Les sommations de type $E_{\gamma_1} + E_{\gamma_{Compton}}$ ou inversement ne sont pas prises en considération dans ce calcul ce qui laisse à penser que ces facteurs sont sous-estimés.

4.3.2 Effet de volume du détecteur

L’intensité du pic-somme dépend aussi des dimensions et des volumes actifs du détecteur. La coïncidence γX est favorisée dans le cas de détecteurs à fenêtre d’entrée mince. Elle croît avec le volume du détecteur, comme on peut le voir sur les courbes simulées (figure 4.6), pour une source ponctuelle de ^{60}Co positionnée au contact du détecteur de différents volumes. Pour la modélisation, on varie le diamètre du détecteur pour une épaisseur fixe de 3,1 cm. Sur le spectre de la figure 4.6, on note l’évolution de la surface des pics à 2,5 MeV en fonction du volume du détecteur. On retient que l’intensité du PS varie linéairement avec le volume de détecteur.

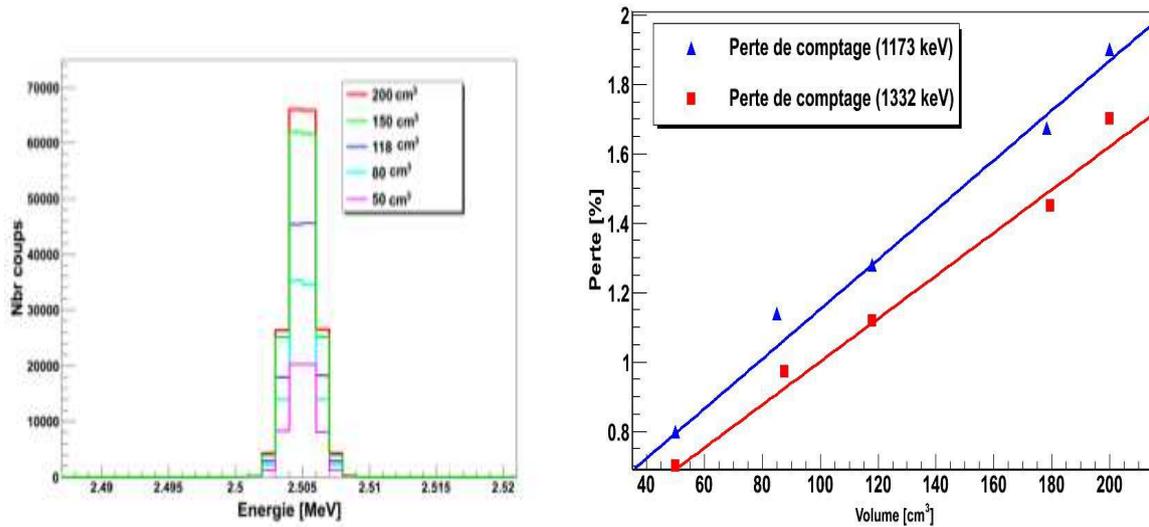


FIGURE 4.6 – Intensité du pic-somme à 2505 keV du ^{60}Co en fonction de la variation de volume du détecteur.

4.3.3 Effet du schéma de décroissance

La comparaison des coefficients de correction de PS obtenus par ETNA (Efficiency Transfer for Nuclide Activity measurement) [M.C. Lépy 2012] (voir section 4.6) pour un détecteur planaire (GeHP) et une géométrie SG50 placée à 4,5 cm de la fenêtre d'entrée montre l'importance des corrections de PS dues à la complexité du schéma des niveaux et modes d'émission. Prenons les cas du ^{134}Cs (figure 4.7) émetteur β^- vers des niveaux excités du ^{134}Ba (figure 4.8) et du ^{133}Ba se désintégrant par capture électronique vers les niveaux 437 et 384 keV du ^{133}Cs . Dans le second cas des rayons X seront émis lors du réarrangement électronique, d'où la nécessité de faire des corrections supplémentaires γX .

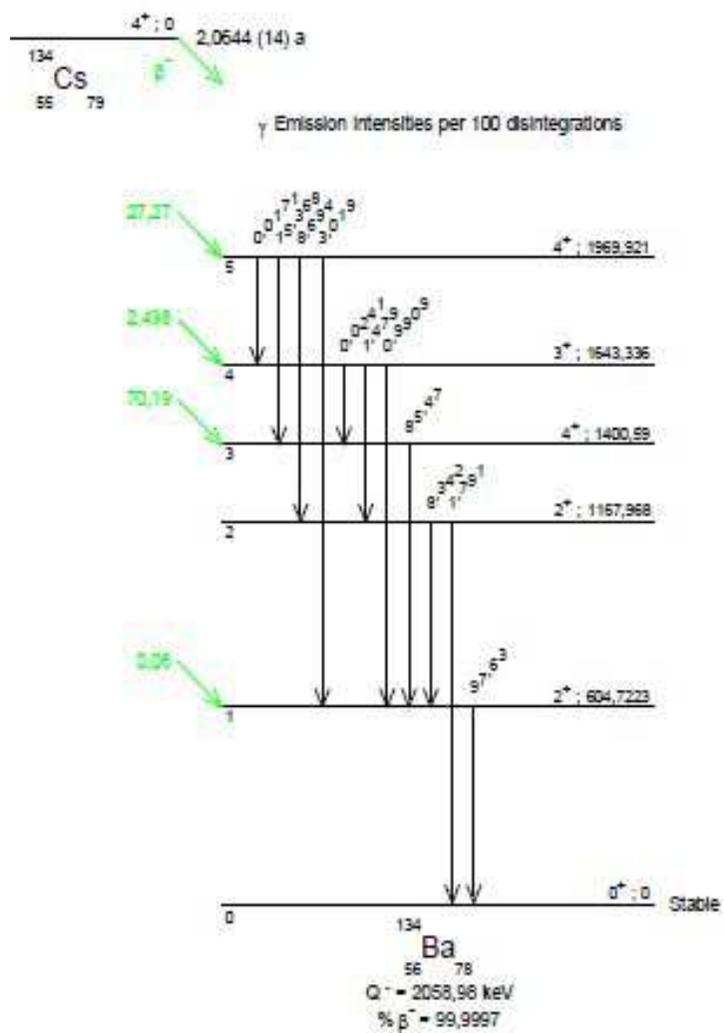


FIGURE 4.7 – Schéma de désintégration du ^{134}Cs [LNHB 2010].

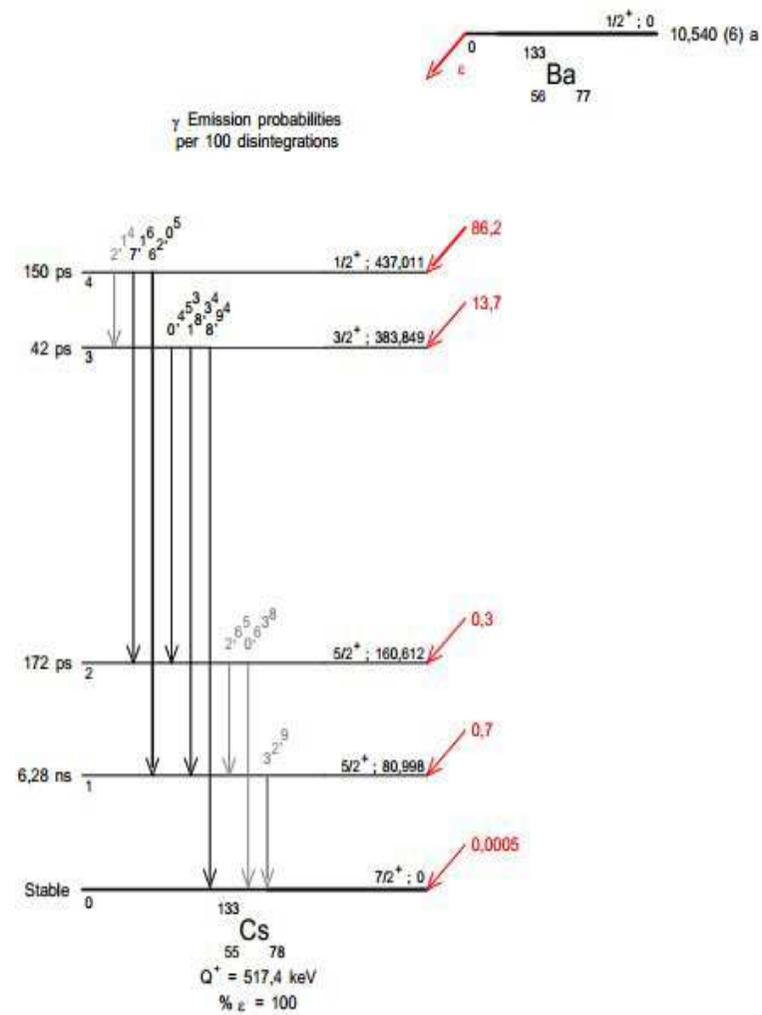


FIGURE 4.8 – Schéma de désintégration du ^{133}Ba [LNHB 2010].

Dans cette configuration géométrique, pour le ^{60}Co , les coefficients de correction sont de l'ordre de 4 % pour chacune des deux raies à 1173 et 1332 keV contre 15 % pour la raie à 53 keV du ^{133}Ba qui est en coïncidence avec les trois raies à 79 , 80 et 223 keV. Une correction de 19 % est nécessaire pour la raie à 223 keV et de 16 % pour celle à 276 keV. Les corrections nécessaires pour le ^{134}Cs sont encore plus importantes.

4.4 Etude du PS avec un détecteur GeHP planaire

L'étude a été réalisée avec un détecteur planaire BEGe (Broad Energy Germanium), modèle BE 3830 avec son électronique associée fourni par CANBERRA (préamplificateur 2002 CPSL relié à un amplificateur ICB 9615 et un convertisseur analogique numérique modèle 9633). L'analyse des spectres est faite à l'aide du logiciel Genie2000 [Canberra 2005].

Un étalon SG500 multigamma avec une matrice équivalente-eau a été utilisé dans la première partie de ce travail. L'étalon est positionné au contact de la fenêtre du détecteur. Il contient 10 radioéléments (^{241}Am , ^{109}Cd , ^{57}Co , ^{139}Ce , ^{51}Cr , ^{113}Sn , ^{85}Sr , ^{137}Cs , ^{60}Co et ^{88}Y) dont les caractéristiques sont présentées dans la table 4.1.

Radionucléide	Période	Activité (Bq)	Energie (keV)	Intensité (%)
^{241}Am	432,6±0,6 a	1920±115	59	35,92
^{109}Cd	461,4±1,2 j	8823±529	88	3,63
^{57}Co	271,80±0,05 j	415±20	122	85,51
	-	-	136	10,71
^{139}Ce	137,641±0,020 j	358±21	166	79,9
^{51}Cr	27,703±0,003 j	5009±250	320	9,87
^{113}Sn	115,09±0,03 j	1981±118	391	64,97
^{85}Sr	64,850±0,007 j	1096±119	514	98,5
^{137}Cs	30,05±0,08 a	2691±134	661	84,99
^{88}Y	106,626±0,021 a	1911±95	898	93,90
^{60}Co	5,271±0,001 a	2591±155	1173	99,85
	-	-	1332	99,98
^{88}Y	106,626±0,021 a	1911±95	1836	99,32

TABLE 4.1 – Etalon certifié SG500 avec une matrice équivalente-eau.

La figure 4.9 représente le spectre expérimental de l'étalon obtenu par le BEGe pour un temps de comptage de 86000 secondes. Les flèches indiquent les pics de -somme. Au-delà de 1836 keV, un pic à 1850 keV apparaît, provenant de la sommation γX du pic à 1836 keV du ^{88}Y et un X de 14 keV. Une coïncidence vraie $\gamma\gamma$ entre le rayonnement γ de 1173 keV et celui de 1332 keV donne le pic à 2505 keV et une autre à 2734 keV (n'apparaît pas dans ce

spectre obtenu par $1836 + 898$ du ^{88}Y à cause du gain réglé au préalable). Entre le pic à 1850 et celui à 2505 keV, la sommation entre les rayons γ absorbés totalement et ceux absorbés partiellement est à l'origine de ces impulsions. La raie γ de 898 keV et le rayon X de 14 keV provenant de la désintégration par la capture électronique vers ^{88}Sr , engendrent un pic à 912 keV. Une perte de comptage pour le pic à 166 keV du ^{139}Ce est attribuée à la sommation de γ de 166 keV et du rayon X de 33 keV émis lors de la décroissance par la capture électronique vers ^{139}La .

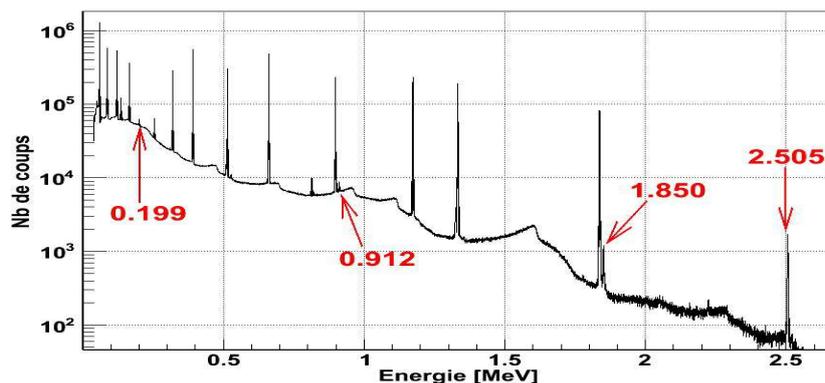


FIGURE 4.9 – Spectre expérimental de l'étalon. Les flèches indiquent les différents pics-sommes observés.

4.5 Correction du pic-somme

Plusieurs études ont été réalisées pour corriger ce phénomène. Des corrections expérimentales consistent à comparer les surfaces des pics pour le même γ dans un échantillon positionné à deux distances distinctes du détecteur [Ramos-Lerate 1997]. La source de référence est placée loin du détecteur pour s'affranchir des effets de sommation, la seconde source est positionnée à l'emplacement voulu [Quintana 1995], le rapport entre les efficacités absolues correspondant aux deux géométries fournit un facteur correcteur. D'autres méthodes ont été élaborées pour la correction de PS telles que la méthode dite semi-expérimentale [Moens 1981], simulation Monte Carlo [Dziri 2012, Hurtado 2009, Sima 2001] et des calculs analytiques.

4.5.1 Critères de choix de l'étalon

L'étalonnage avec des sources monoénergétiques est souhaitable pour s'affranchir des effets de PS comme le montre la figure 4.10. Les points "o" ne sont pas sujet au pic-somme. L'importance du PS apparaît sur les points indiqués par le symbole "x". Cependant, de telles sources sont rares, plusieurs points (énergies) sont nécessaires. D'autre part, la législation limite la détention du nombre de sources. Le coût élevé des sources est aussi un facteur à considérer. Tous ces arguments font qu'il faudrait trouver d'autres alternatives pour contourner le problème et ainsi corriger le phénomène de PS.

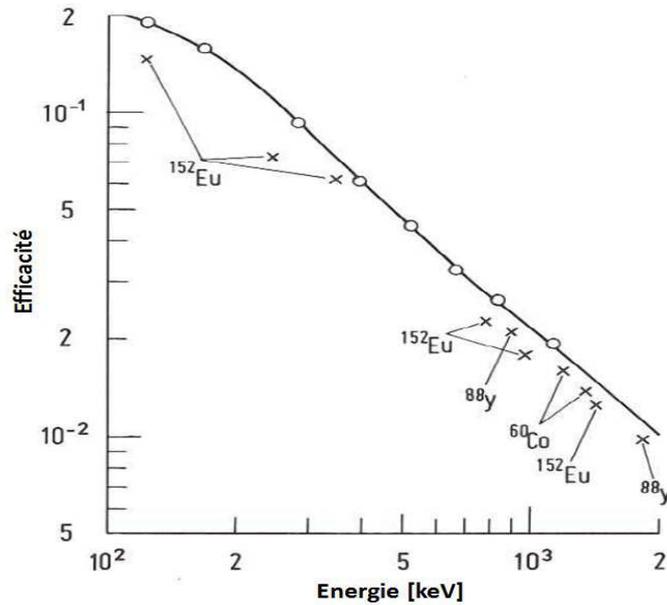


FIGURE 4.10 – Résultat de l'étalonnage en efficacité avec des sources monoénergétiques et des sources multigamma [Debertin 1988].

Les sources montrées sur cette figure sont caractérisées par des émissions en cascade des rayonnements γ et un schéma de décroissance complexe. Elles sont affectées par le phénomène de PS. La courbe est une représentation en échelle logarithmique de $\ln(\text{efficacité}) = f(\ln(E))$.

On note que la modélisation Monte Carlo (MCNPX) est bien adaptée pour pallier l'absence des sources monoénergétiques [Marie-Christine 2007, Dziri 2012]. Les efficacités obtenues ne sont pas entachées par le PS étant donné qu'il n'en tient pas compte. Du fait de l'introduction dans la simulation des sources énergie par énergie et leurs intensités, les efficacités obtenues ne sont pas biaisées par le phénomène de PS. La démarche à suivre est détaillée dans les paragraphes à venir.

4.5.2 Formalisme mathématique

4.5.2.1 Schéma de niveaux à deux cascades

Pour une illustration du pic-somme, on considère le schéma de décroissance (figure 4.11) à deux niveaux excités ($0, 1^*, 2^*$) d'une source ponctuelle, avec l'émission de photon γ_{10} d'intensité I_{10} et une efficacité d'absorption totale ε_{10} . I_{21} et ε_{21} caractérisent le photon γ_{21} et enfin I_{20} et ε_{20} pour le photon γ_{20} .

Si on désigne par A_c l'activité de la source, et en supposant que les coefficients de la conversion interne des rayonnements γ émis sont négligeables, et les particules β sont absorbées dans le capot ou la fenêtre d'entrée du détecteur, le nombre d'impulsions (coups) N_{10} enregistré dans le pic d'absorption totale de γ_{10} en l'absence du PS est :

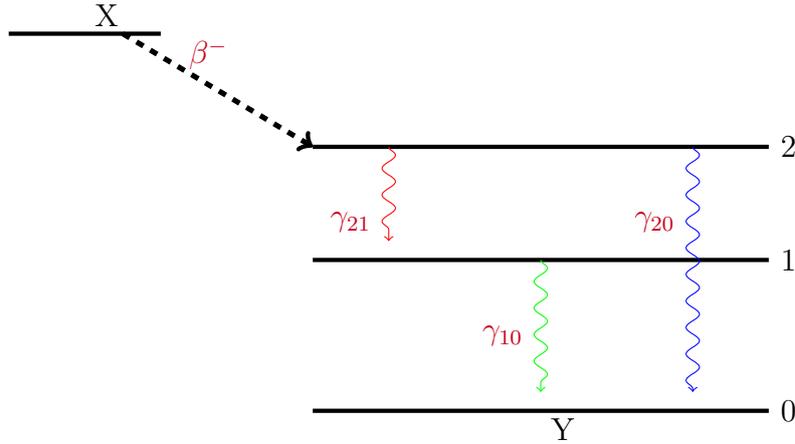


FIGURE 4.11 – Schéma de désexcitation à deux niveaux excités.

$$N_{10} = A_c \cdot I_{10} \cdot \varepsilon_{10} \quad (4.5)$$

La sommation de γ_{10} avec le pic γ_{21} , se fait soit par $\gamma_{10} + \gamma_{21} = \gamma_{20}$ soit par $\gamma_{10} + \gamma_{21}$ Compton. Pour tenir compte de ces deux sommations, le rendement total $\varepsilon_{i_{tot}}$ (nombre de coups dans le spectre divisé par le nombre de photons émis par la source) pour une énergie donnée est pris en considération. Mathématiquement cette perte s'exprime par :

$$N'_{10} = A_c \cdot I_{10} \cdot \varepsilon_{10} - \underbrace{A_c \cdot I_{10} \cdot \varepsilon_{10} \cdot \varepsilon_{21_{tot}}}_{Perte} \quad (4.6)$$

Ainsi, le ratio N_{10}/N'_{10} est le facteur de correction de la perte d'impulsions pour γ_{10} . Le calcul du coefficient de correction pour γ_{21} est basé sur le même raisonnement, avec N'_{21} le nombre de coups mesuré après une perte due à la sommation avec γ_{10} . Les pertes dues aux sommations avec γ_{10} sont incluses dans le calcul en introduisant $\varepsilon_{10_{tot}}$.

$$N'_{21} = A_c \cdot I_{21} \cdot \varepsilon_{21} - \underbrace{A_c \cdot I_{21} \cdot \varepsilon_{21} \cdot \varepsilon_{10_{tot}}}_{Perte} \quad (4.7)$$

La détection simultanée des deux γ_{10} et γ_{21} absorbés totalement, génère un pic de coïncidence γ_{20} . La surface du pic γ_{20} est ainsi surestimée. Le nombre de coups mesuré est donc :

$$N'_{20} = A_c \cdot I_{20} \cdot \varepsilon_{20} + \underbrace{A_c \cdot I_{10} \cdot \varepsilon_{10} \cdot I_{21} \cdot \varepsilon_{21}}_{Gain} \quad (4.8)$$

Le gain d'impulsions se voit d'une manière évidente pour les transitions de faible intensité. En conséquence la surface du pic est souvent surestimée. C'est le cas du pic de 2505 keV du ^{60}Co .

4.5.2.2 Généralisation à plusieurs cascades

Pour un schéma de désintégration complexe, le calcul des coefficients nécessite des formulations plus élaborées qui englobent toutes les sommations possibles. Supposons qu'on dispose

de n niveaux excités d'une source ponctuelle, i et j sont les niveaux supérieur et inférieur. Si e est un état excité considéré dans le schéma, cela suppose qu'il y a des photons qui alimentent ce niveau. Notons A toutes les corrections de coïncidence de type $\gamma\gamma$ en amont de l'état excité, B celles en aval de cet état, D celle les coïncidences des raies γ dont la somme des énergies est E_{ij} . Le coefficient de correction total est donné par C_{ij} :

$$C_{ij} = A \times B \times D \quad (4.9)$$

Pour un calcul complet et exhaustif, des publications traitent le sujet en incorporant les coefficients de conversion interne et des corrections de type XX ou γX [Debertin 1988, Le Petit 2002, McCallum 1975] .

4.5.2.3 Perte d'impulsions en amont de l'état excité

Supposons que n est le nombre de niveaux du schéma de désexcitation, s représente les niveaux en amont de l'état excité e .

$$A = \prod_{e=i}^{n-2} \left[\prod_{s=e+1}^{n-1} a_{s,e}^{-1} \right] \quad (4.10)$$

$$= \left[\prod_{s=2}^{n-1} a_{s,1}^{-1} \right] \times \left[\prod_{s=3}^{n-1} a_{s,2}^{-1} \right] \times \left[\prod_{s=4}^{n-1} a_{s,3}^{-1} \right] \times \cdots \times \left[\prod_{s=n-1}^{n-1} a_{s,n-2}^{-1} \right] \quad (4.11)$$

avec i l'état excité à considérer et $a_{s,e}^{-1}$ le facteur de correction correspondant aux transitions γ_{ij} . Sur ce développement on voit que si le premier état excité est le niveau 1, toutes les corrections de PS des γ qui alimentent ce niveau sont impliquées.

4.5.2.4 Exemple du ^{134}Cs

Selon la figure 4.7, le schéma de désexcitation est composé de six niveaux y compris le niveau fondamental. Si on s'intéresse à la transition entre le premier niveau excité et le niveau fondamental, on a :

$$A = \prod_{e=1}^4 \left[\prod_{s=e+1}^5 a_{s,e}^{-1} \right] = \left[\prod_{s=2}^5 a_{s,1}^{-1} \right] \times \left[\prod_{s=3}^5 a_{s,2}^{-1} \right] \times \left[\prod_{s=4}^5 a_{s,3}^{-1} \right] \times \left[\prod_{s=5}^5 a_{s,4}^{-1} \right] \quad (4.12)$$

$$= a_{2,1}^{-1} \times a_{3,1}^{-1} \times a_{4,1}^{-1} \times a_{5,1}^{-1} \times a_{3,2}^{-1} \times a_{4,2}^{-1} \times a_{5,2}^{-1} \times a_{4,3}^{-1} \times a_{5,3}^{-1} \times a_{5,4}^{-1} \quad (4.13)$$

Comme le montre la formule 4.12, dix transitions doivent être corrigées s'il y a des coïncidences. Si les transitions ne sont pas affectées par le PS, le facteur de correction correspondant est 1.

4.5.2.5 Perte d'impulsions en aval de l'état excité

Ce cas est l'inverse du premier, où cette fois, on calcule toutes les corrections en aval de l'état excité. Le facteur de correction des coïncidences en aval de l'état excité i est B :

$$B = \prod_{p=1}^j \left[\prod_{m=0}^{p-1} b_{p,m}^{-1} \right] \quad (4.14)$$

$$= \prod_{m=0}^0 b_{1,m}^{-1} \times \prod_{m=0}^1 b_{2,m}^{-1} \times \prod_{m=0}^2 b_{3,m}^{-1} \times \cdots \times \prod_{m=0}^{j-1} b_{j,m}^{-1} \quad (4.15)$$

$$= b_{1,0}^{-1} \times \left(b_{2,0}^{-1} \times b_{2,1}^{-1} \right) \times \left(b_{3,0}^{-1} \times b_{3,1}^{-1} \times b_{3,2}^{-1} \right) \times \cdots \times b_{j,j-1}^{-1} \quad (4.16)$$

4.5.2.6 Gain d'implusions par sommation

Les pertes de coups enregistrés précédemment se retrouvent dans des pics de sommation. En introduisant les notions de rendement total et de rendement d'absorption totale, le facteur de correction des coïncidences des raies γ dont la somme des énergies est E_{ij} est donné par l'expression :

$$D = \prod_{g=j+1}^{i-j} \left(1 + \frac{I_{gj} \times I_{ig}}{I_{ij}} \times \frac{\varepsilon_{gj} \times \varepsilon_{ig}}{\varepsilon_{ij}} \right)^{-1} \quad (4.17)$$

Pour tenir compte des sources volumiques, le raisonnement développé jusqu'ici peut être appliqué à chaque point dans le volume car le rendement total et le rendement d'absorption totale dépendent en premier lieu de la distance source/détecteur. L'intégration sur l'élément de volume dV situé à une distance r du détecteur permet de calculer le coefficient de correction de PS.

4.5.3 Modélisation du dispositif expérimental

La modélisation de l'expérience est une étape cruciale ; elle nécessite la bonne connaissance des dimensions du détecteur, généralement fournies par le constructeur et des matériaux. Pour les mesures expérimentales, on a utilisé un détecteur (BEGe) planaire de type n (figure 4.12). Il est doté d'une zone morte très mince de l'ordre du micron occupant la surface du cristal du côté de la fenêtre d'entrée. La diode a une épaisseur de 3,1 cm et un diamètre de 3,5 cm. La zone passive entourant la zone active du cristal est de l'ordre de 0,75 cm. La fenêtre d'entrée est constituée d'une feuille de carbone époxy d'une épaisseur de 0,5 mm. Le capot en aluminium a une épaisseur de 1,5 mm et un rayon de 4,45 cm. Le cristal est fixé à l'intérieur du capot par un support (holder) en cuivre. La position de la source dans le blindage du plomb n'est pas centrée sur l'axe vertical z. L'ajustement de ce paramètre dans la simulation est nécessaire pour un calcul précis de l'efficacité. Le détecteur est entouré de l'intérieur vers l'extérieur de cuivre (mauve), polyéthylène (rose) et d'un château du plomb (vert). La source multigamma SG500 (vert + points rouges) est au contact de ce dernier.

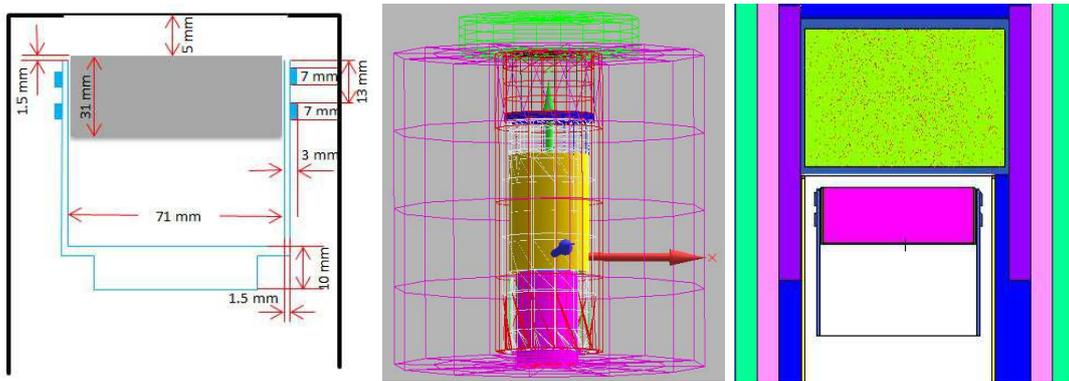


FIGURE 4.12 – De gauche à droite : schéma du détecteur dans son capot ; visualisation en 3D du dispositif expérimentale simulé par MCNPX ; visualisation par Vised de dispositif expérimental.

4.5.4 Géométrie SG500 au contact du détecteur

Comme décrit dans le chapitre 3, MCNPX, par la carte SDEF, permet de définir une source cylindrique. La modélisation des différentes énergies par les cartes SI et SP permet de reproduire un spectre expérimental. Plusieurs façons existent pour inclure le taux d'émission de la source dans la simulation ; la carte WGT a été utilisée dans ce cadre. L'utilisation de la carte GEB, en introduisant les coefficients de la résolution (voir formule 3.14) déterminés expérimentalement ($a = 0,196$, $b = 1,376$, $c = 0$) en keV permet d'inclure la résolution expérimentale à la simulation. La distribution spectrale des photons déposés dans le détecteur en fonction de l'énergie est modélisée par le tally F8 (figure 4.13). Le spectre simulé s'arrête au pic de 1836 keV car on ne tient pas compte des sommations dues au pic-somme, contrairement au spectre expérimental où on peut voir des pics de sommation au-delà de 1836 keV.

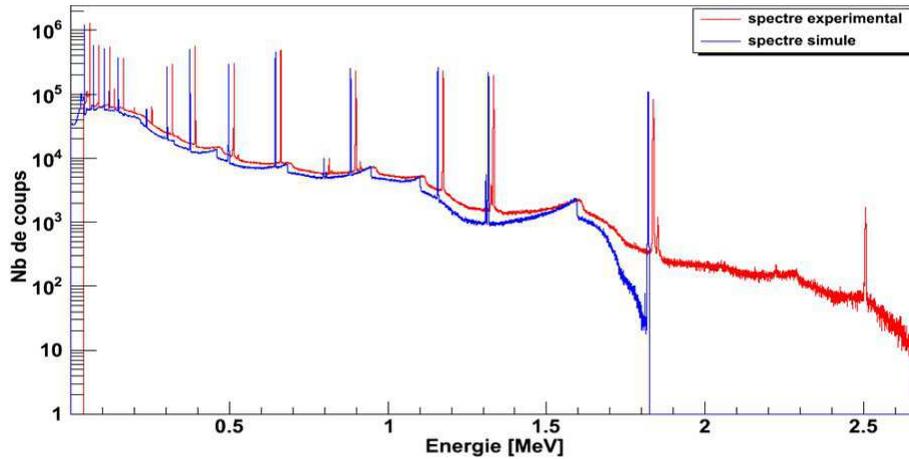


FIGURE 4.13 – Spectre de l'étalon SG500 simulé et décalé de 3 canaux vers la gauche du spectre expérimental brut pour une meilleure visualisation.

Un faible écart relatif entre la simulation et l'expérience est impératif pour que la simulation soit exploitable quantitativement. Le radioisotope ^{137}Cs est un bon indicateur de la qualité de la simulation parce qu'il est dépourvu du phénomène de pic-somme. Dans le cas présent, un écart relatif inférieur à 3 % est observé pour les radioéléments non affectés par le PS contre un écart de plus de 5 % pour les radioéléments qui font l'objet de PS. La figure 4.14 montre la différence entre l'efficacité simulée et l'efficacité expérimentale. Le zoom sur la partie presque linéaire de la courbe d'efficacité montre les écarts entre les efficacités simulées et les efficacités expérimentales non corrigées des effets de PS.

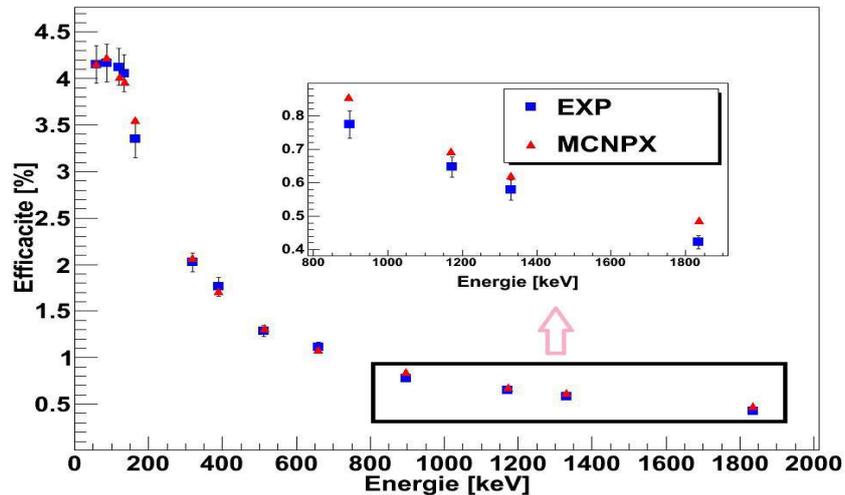


FIGURE 4.14 – Comparaison des efficacités expérimentales et simulées pour une géométrie SG500 en contact.

En pratique, la simulation par MCNPX des efficacités à partir d'un étalon permet de calculer les coefficients de correction de pic-somme pour le même étalon. C'est le ratio de

l'efficacité simulée (vraie) sur celle mesurée. La justesse de la correction est conditionnée par la qualité de la simulation (table 4.2).

E(keV)	59	88	122	136	165	320	391	514	661	898	1173	1332	1836
Ecart relatif (%)	0,2	1,03	2,6	2,2	6,1	2,1	2,8	2,5	2,7	9,4	5,7	6,8	12,8

TABLE 4.2 – Ecart relatif entre l'efficacité simulée par MCNPX et l'efficacité expérimentale.

L'écart entre l'expérience et la simulation est due aux effets de sommation qui se traduisent par l'apparition des pics "virtuels" dans le spectre (912 keV et 1850 keV). Malgré les écarts entre les points simulés et expérimentaux, les efficacités sont dans les barres d'erreurs. Il est nécessaire de souligner que les efficacités simulées se trouvent en général au-dessus des points expérimentaux. En faisant confiance à la simulation, ceci laisse à penser que l'incertitude sur l'activité de l'étalon est probablement surestimée. Les valeurs des efficacités des corrections de pic-somme ainsi obtenues sont résumées dans la table 4.3. Les facteurs de correction de pic-somme sont donnés dans la dernière colonne. L'erreur sur l'efficacité expérimentale tient compte de l'erreur sur l'activité et sur la surface du pic d'absorption totale.

Radionucléide	E(keV)	ε_{exp} (%)	ε_{MCNPX} (%)	F_c PS
²⁴¹ Am	59	4,15 ± 0,21	4,16	1,00
¹⁰⁹ Cd	88	4,17 ± 0,21	4,22	1,01
⁵⁷ Co	122	4,12 ± 0,20	4,01	0,99
	136	4,06 ± 0,20	3,97	0,98
¹³⁹ Ce	166	3,35 ± 0,16	3,55	1,06
⁵¹ Cr	320	2,02 ± 0,10	2,07	1,02
¹¹³ Sn	391	1,76 ± 0,06	1,71	1,00
⁸⁵ Sr	514	1,28 ± 0,06	1,31	1,02
¹³⁷ Cs	661	1,11 ± 0,05	1,10	1,00
⁸⁸ Y	898	0,77 ± 0,04	0,84	1,09
⁶⁰ Co	1173	0,65 ± 0,03	0,68	1,06
	1332	0,58 ± 0,03	0,62	1,07
⁸⁸ Y	1836	0,42 ± 0,02	0,47	1,13

TABLE 4.3 – Comparaison des efficacités expérimentales et simulées par MCNPX et les facteurs de correction de PS pour l'étalon SG500 au contact.

Mis à part la bonne connaissance des dimensions des différents constituants du détecteur,

les erreurs dues à la simulation sont essentiellement d'ordre statistique. Ce problème est contournée par l'augmentaion du temps de calcul. La multiplication de ces coefficients par l'efficacité expérimentale fournit l'efficacité corrigée des effets de pic-somme.

4.6 Code ETNA

Le code ETNA (Efficiency Transfer for Nuclide Activity measurements) a été développé par le Laboratoire National Henri Becquerel (LNHB) pour répondre à la problématique rencontrée en spectrométrie γ pour les corrections des pertes de comptages dues aux pics-sommes. Les étalons sont indisponibles pour les différentes matrices et différentes géométries pour réaliser les analyses quantitatives fines de la radioactivité. Il est à rappeler que pour les mesures de faibles activités, l'échantillon doit être positionné le plus proche possible du détecteur, ce qui engendre le phénomène de pic-somme.

ETNA est un outil basé sur des formules analytiques permettant le calcul du rendement pour des conditions de mesure différentes de celles de l'étalonnage. On parle de transfert de rendement. Il tient compte des variations des paramètres géométriques de l'ensemble source-détecteur. L'utilisation de ce logiciel a permis de calculer les coefficients de correction des effets de pic-somme. En outre, il permet d'améliorer la précision des analyses quantitatives.

Son utilisation requiert l'introduction dans la base de données des courbes de rendement total et de rendement d'absorption totale. Le rendement total est le rapport du nombre d'évènements enregistrés dans tout le spectre au nombre de photons émis par la source. Le rendement d'absorption totale est défini comme étant le rapport du nombre d'évènements enregistrés sous le pic d'absorption totale correspondant à une énergie E_i , par le nombre de photons i émis par la source.

ETNA offre deux façons de calculer les coefficients de correction de pic-somme. Le calcul simple est une procédure qui considère une source volumique comme une source ponctuelle ; ainsi les facteurs de correction obtenus sont sous-estimés. La procédure de calcul complet tient compte de la totalité du volume de la source par intégration. Il considère aussi toute la complexité du schéma de niveaux. Cette méthode [Lépy 2012] nécessite des temps de calcul considérables.

Les incertitudes à considérer représentent 10 % sur le facteur de correction [Lépy 2010] i.e., si un facteur de correction est de 15 %, elles entraînent une erreur de 1,5 % sur cette valeur.

L'utilisation d'ETNA nécessite l'utilisation de sources mono-énergétiques afin d'établir les deux paramètres qui manquent à la base de données de ce programme (paragraphe précédent). La modélisation est inévitable pour pallier la non disponibilité de ces sources. MCNPX offre cette possibilité de simuler pic par pic et donc de se substituer aux sources mono-énergétiques. Par conséquent on peut déterminer les valeurs du rendement total et du rendement d'absorption totale [Dziri 2012]. La figure 4.15 représente les spectres mono-énergétiques simulés par MCNPX.

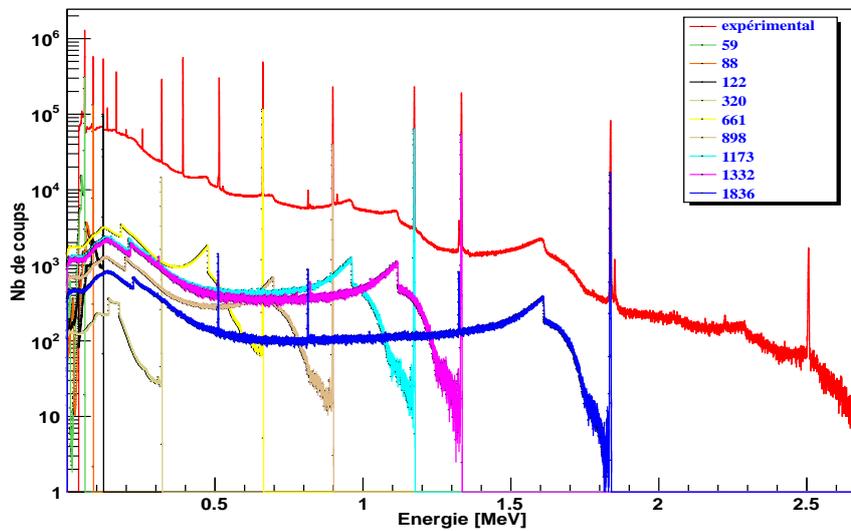


FIGURE 4.15 – Spectre de l'étalon non corrigé pour les effets de sommation (rouge) à comparer avec le spectre simulé (bleu). Les autres spectres représentent les raies de l'étalon simulé par MCNPX séparément pour se substituer aux sources mono-énergétiques.

4.7 Code GESPECOR

Le code **Germanium Spectrometry Correction** a été développé dans le cadre d'une collaboration entre l'Allemagne et la Roumanie [Sima 2001]. Il est commercialisé dans l'environnement Windows par la société CID Media GmbH [Media 2007]. Il a été conçu pour le calcul des efficacités d'absorption totale, des coefficients de correction pour l'auto-absorption et des effets de pic-somme dans l'échantillon mesuré. Les algorithmes ont été développés pour faire des calculs rapides par des simulations Monte Carlo. Le calcul d'efficacité pour une énergie donnée est rendu possible par la méthode de transfert d'efficacité en se basant sur des modèles du détecteur et des processus physiques d'interactions bien définis.

Le nombre de photons émis par la source, l'interaction des photons dans l'échantillon, l'interaction dans le cristal et dans les différents compartiments de détecteur, sont des paramètres intégrés dans le programme pour évaluer l'efficacité pour les différents rayonnements.

Dans ce travail nous avons utilisé la version 4.2. Pour le calcul des coefficients d'auto-absorption, GESPECOR utilise trois procédures :

Standard : les coefficients d'atténuation linéaires utilisés sont théoriques (pris dans la base de données du code) ; ils sont liés à la densité de l'échantillon d'une part et à celle de l'étalon d'autre part.

Modifiée : cette procédure est nécessaire lorsque la composition élémentaire de l'échantillon est inconnue. Les coefficients d'atténuation linéaires sont déterminés expérimentalement (méthode de transmission). La différence avec la procédure standard réside dans la nécessité

d'introduire les coefficients d'atténuation par l'utilisateur.

Spéciale : c'est la procédure la plus précise. Des calculs Monte Carlo indépendants sont effectués sur la matrice de l'étalon et de l'échantillon et pour chaque énergie. Cette méthode est gourmande en temps de calcul. C'est une procédure qui est utilisée lorsqu'on veut atteindre une grande précision. Elle est aussi utilisée dans le cas des échantillons massifs émettant des photons de faibles énergies.

Le calcul des coefficients de correction de pic-somme peut se faire par deux méthodes distinctes et dans des cas précis [Sima 2001] :

Standard : c'est une méthode basée sur un calcul Monte Carlo et utilisée par défaut. Elle est applicable à toutes sortes de détecteurs. Contrairement à la méthode décrite pour l'auto-absorption, des calculs Monte Carlo sont effectués indépendamment pour chaque situation et pour chaque énergie. Ceci explique le temps long nécessaire aux calculs.

Analytique : cette méthode est réservée exclusivement pour des détecteurs puits. Elle est basée sur des formules analytiques associées aux valeurs expérimentales de l'efficacité de rendement total et de rendement d'absorption totale.

Les erreurs associées aux coefficients de correction de l'auto-absorption sont de l'ordre de 5 % entre 50 et 100 keV. Dans le cas du calcul des coefficients de correction de pic-somme et pour des détecteurs puits, les erreurs sont de l'ordre de 3 % pour des schémas de décroissance simples (une cascade), contre 5 à 10 % pour des schémas de décroissance plus complexes. Pour les autres géométries de détecteurs, l'erreur associée au calcul de l'efficacité peut s'étaler de 2 à 5 % selon le domaine d'énergie.

La qualité et les erreurs de la simulation sont liées à la géométrie et la densité de la source, aux dimensions du détecteur, aux erreurs statistiques et à la définition physique du modèle (collection de charge, zones mortes,...).

4.7.1 Comparaison MCNPX, ETNA et GESPECOR

La simulation par MCNPX du rendement d'absorption totale et du rendement total permet de compléter et d'utiliser le logiciel ETNA. GESPECOR a été utilisé pour vérifier et valider les résultats ainsi obtenus par MCNPX et ETNA.

Les différentes valeurs de l'efficacité obtenues par les trois méthodes proposées sont représentées sur la figure 4.16. Un zoom sur les énergies qui sont affectées par le PS montre un bon accord entre les trois outils. Ces valeurs ont été obtenues par la multiplication des efficacités expérimentales non corrigées par les coefficients obtenus par ETNA et MCNPX. Cependant, GESPECOR offre deux alternatives : calcul de l'efficacité non affectée par le phénomène de PS ou le calcul des coefficients de correction. Dans ce dernier cas, il suffit de multiplier par l'efficacité expérimentale. La table 4.4 récapitule les facteurs de correction de PS obtenus par les trois méthodes pour l'étalon SG500 au contact du capot du détecteur. Il y a un très bon accord entre ces méthodes.

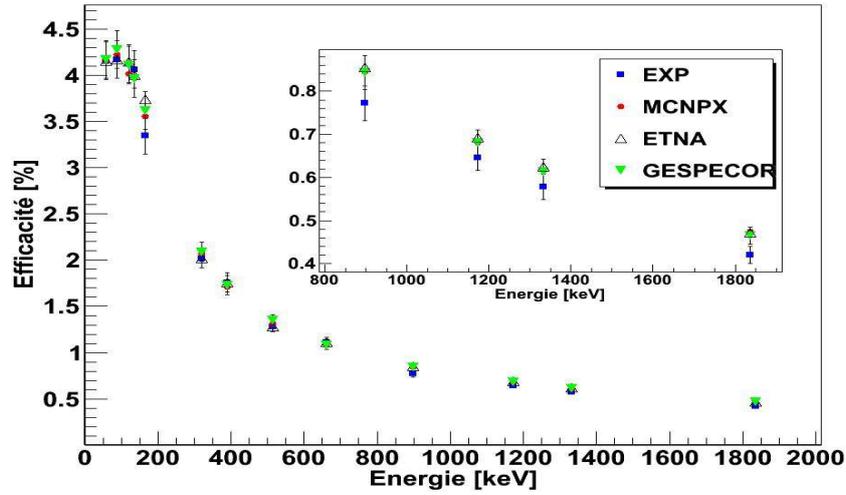


FIGURE 4.16 – Comparaison des efficacités corrigées par les coefficients de correction de PS déterminés par les trois méthodes sus-citées. Le zoom sur la fin du spectre montre un bon accord entre les trois méthodes.

Radionucléide	E(keV)	F_{CMCNPX}	F_{CETNA}	$F_{CGESPECOR}$
^{241}Am	59	1,00	1,00	1,00
^{109}Cd	88	1,01	1,00	1,00
^{57}Co	122	0,99	1,00	1,00
	136	0,98	0,98	1,02
^{139}Ce	166	1,06	1,11	1,08
^{51}Cr	320	1,02	1,00	1,00
^{113}Sn	391	1,00	1,00	1,00
^{85}Sr	514	1,02	1,00	1,01
^{137}Cs	661	1,00	1,00	1,00
^{88}Y	898	1,09	1,10	1,08
^{60}Co	1173	1,06	1,10	1,07
	1332	1,07	1,10	1,07
^{88}Y	1836	1,13	1,12	1,09

TABLE 4.4 – Facteurs de correction F_c obtenus par les trois méthodes pour l'étalon SG500 au contact d'un détecteur planaire de 118 cm^3 .

4.7.2 Validation expérimentale des différentes méthodes

A partir de chlorure de potassium (KCl), on a préparé une source de ^{40}K (émission d'un γ à 1460 keV non affecté par le PS) pour être compté dans les mêmes conditions que l'étalon, i.e. flacon SG500, matrice eau, échantillon placé au contact du détecteur. L'activité de la source préparée est de 1748 ± 41 Bq/L. Deux mesures distinctes sont effectuées par spectrométrie γ afin de retrouver cette valeur. La première est réalisée avec une courbe d'efficacité qui ne tient pas compte des corrections de pic-somme i.e. en utilisant la courbe d'efficacité expérimentale obtenue par l'étalon cité plus haut. L'activité ainsi mesurée est de 1915 ± 44 Bq/L. La seconde mesure est obtenue par la courbe d'efficacité corrigée des effets de pic-somme en utilisant les coefficients donnés par ETNA. L'activité obtenue est de 1780 ± 42 Bq/L. Un écart d'environ 10 % pour l'activité mesurée sans la correction de pic-somme contre 2 % avec la correction de la courbe d'efficacité (figure 4.17). Cette large différence est attendue car l'efficacité pour le ^{40}K nécessaire au calcul de l'activité est interpolée dans une zone de la courbe où l'efficacité est la plus affectée par l'effet de pic-somme. Par conséquent, cette sous-estimation de l'efficacité implique une sur-estimation de l'activité.

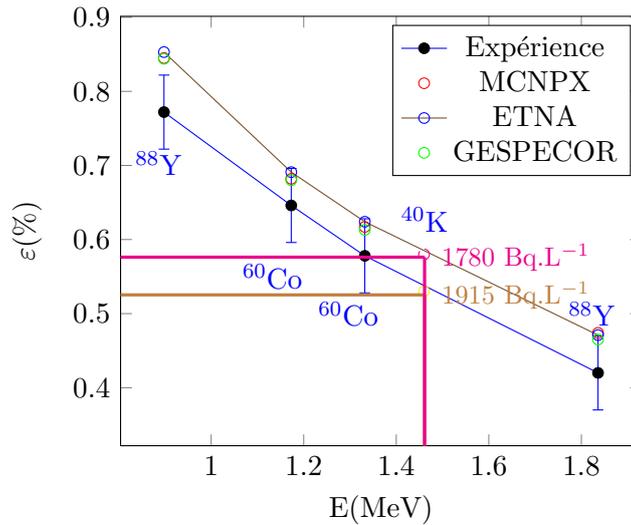


FIGURE 4.17 – Validation des simulations par une source SG500 de ^{40}K . A l'énergie 1460 keV l'efficacité est interpolée sur la partie quasi-linéaire des courbes d'efficacité.

Il est utile de rappeler que le coefficient représentant la partie linéaire du polynôme des efficacités expérimentales est sous-estimée par rapport aux autres méthodes utilisées pour la correction. La partie de la courbe d'efficacité entre 898 et 1836 keV correspond à la région où sont concentrés tous les émetteurs γ de l'étalon affectés par le PS.

Suite à ces corrections et pour des raisons pratiques, l'ajustement (par la méthode des moindres carrés) est réalisée sur les valeurs logarithmique du rendement. Une fonction polynomiales *apolog* régit la variation de l'efficacité en fonction de l'énergie :

$$\ln(\varepsilon(E)) = \sum_0^i a_i \cdot \ln(E)^i \quad (4.18)$$

Dans la table 4.5 sont données les valeurs des coefficients des polynômes obtenus par le calcul (MCNPX, ETNA et GESPECOR) comparés à ceux de l'expérience sans corrections de pic-somme. A cause de la paramétrisation en polynôme d'ordre 4 d'une exponentielle, les valeurs numériques calculées de l'efficacité sont sensibles au nombre de digits, ce qui explique ce nombre important après la virgule avec une erreur de l'ordre de 5% pour chacun des coefficients.

Coefficient	Expérience	MCNPX	ETNA	GESPECOR
a_0	-37,327	-36,105	-44,270	-37,178
a_1	25,363	24,436	30,172	25,190
a_2	-5,9559	-5,6832	-7,1720	-5,8817
a_3	0,59774	0,56104	0,73062	0,58463
a_4	-0,022404	-0,020509	-0,027669	-0,021580

TABLE 4.5 – Coefficients du polynôme d'ordre 4 obtenus à partir de la fonction apolog.

4.8 Influence de la géométrie et de la distance sur le PS

Pour élargir l'étude du phénomène de pic-somme, d'autres géométries ont été étudiées en utilisant les mêmes principes décrits précédemment. La variation de l'angle solide dépend du dispositif expérimental. En pratique, la variation de la distance source-détecteur est limitée par le blindage en plomb entourant le détecteur et les supports dédiés au placement des sources étendues. Le dispositif expérimental étudié offre la possibilité de positionner la source à trois distances sans déborder du blindage en plomb. Des supports en PVC (polychlorure de vinyle) sont usinés à cet effet. L'éloignement de la source est nécessaire pour accommoder l'activité des sources très actives, ce qui permet aussi de réduire le temps mort. Les résultats obtenus par MCNPX sont comparés aux mesures expérimentales.

4.8.1 Géométrie SG500 à 4,5 et 6,5 cm du détecteur

La réduction de l'angle solide se répercute directement sur l'efficacité d'une part et l'importance de la correction du phénomène de pic-somme d'autre part. Sur les deux figures 4.18, 4.19 sont tracées les efficacités en fonction de l'énergie. A 4,5 cm, l'efficacité avoisine 1,7 % à basse énergie (≈ 100 keV) et 1,2 % à 6,5 cm. Les écarts entre la simulation et l'expérience sont donnés pour chaque efficacité par les croix noires dans l'insert. Ces écarts sont importants vers la fin de la courbe où sont concentrés les radioéléments affectés par le PS.

En éloignant de l'échantillon de 2 cm supplémentaires (à 6,5 cm), les écarts sont réduits presque de moitié pour certaines énergies comme pour les pics à 1836 keV et à 898 keV de l'

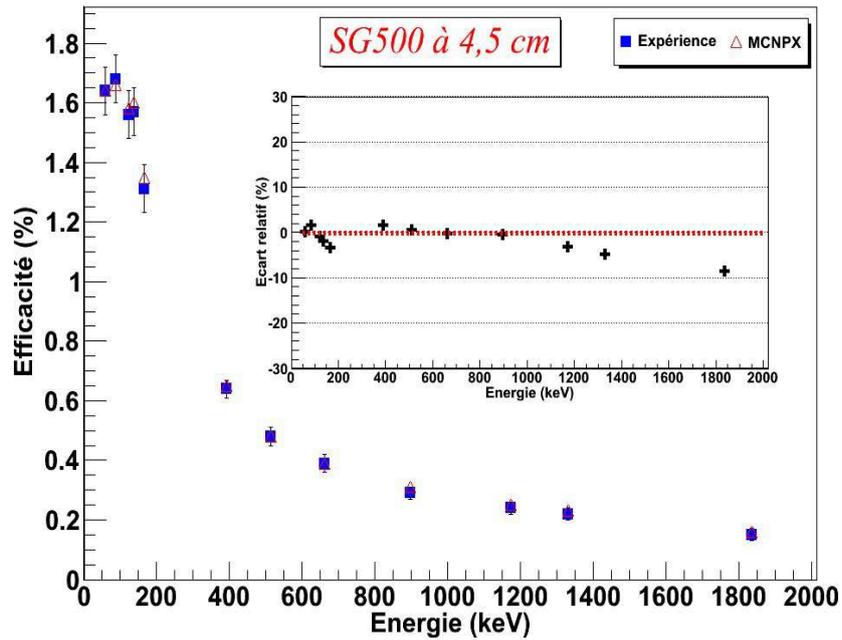


FIGURE 4.18 – Efficacités simulées et expérimentales d'un SG500 à 4,5 cm et leurs écarts dus au effets de PS.

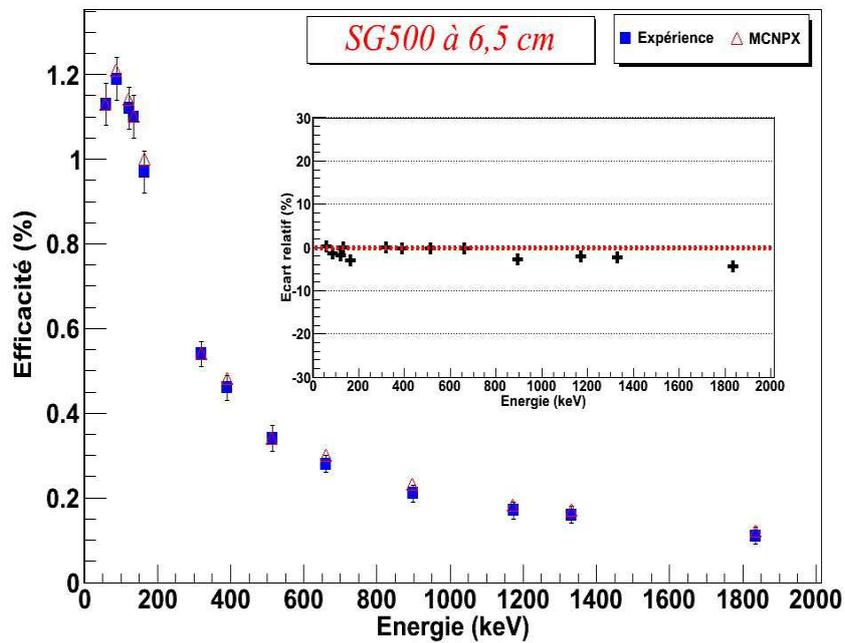


FIGURE 4.19 – Efficacités simulées et expérimentales d'un SG500 à 6,5 cm et leurs écarts dus au effets de PS.

^{88}Y . Les facteurs de correction fournis par MCNPX et ETNA sont rapportés dans la table 4.6.

		SG500					
		MCNPX			ETNA		
Radionucléide	E(keV)	contact	45mm	65mm	contact	45mm	65mm
^{241}Am	59	1,00	1,00	1,00	1,00	1,00	1,00
^{109}Cd	88	1,01	0,99	1,02	1,00	1,00	1,00
^{57}Co	122	0,97	1,01	1,02	1,00	1,02	1,01
	136	0,98	1,02	1,00	0,98	0,98	0,98
^{139}Ce	166	1,06	1,03	1,03	1,11	1,03	1,02
^{51}Cr	320	0,98	-	1,00	1,00	1,01	1,00
^{113}Sn	391	0,97	1,02	1,00	1,00	1,00	1,00
^{85}Sr	514	1,02	1,00	1,00	1,00	1,00	1,00
^{137}Cs	661	1,00	1,00	1,00	1,00	1,00	1,00
^{88}Y	898	1,09	1,06	1,03	1,10	1,05	1,04
^{60}Co	1173	1,06	1,03	1,02	1,10	1,04	1,02
	1332	1,07	1,05	1,02	1,10	1,04	1,02
^{88}Y	1836	1,13	1,08	1,05	1,12	1,06	1,03

TABLE 4.6 – Correction des effets de pic-somme sur le détecteur BEGe.

4.8.2 Géométrie SG50

Contrairement à la géométrie SG500, l'utilisation d'un flacon SG50 permet de réduire les effets de l'auto-absorption, mais a pour conséquence l'augmentation des probabilités des effets de somme par l'augmentation de l'angle solide.

4.8.2.1 SG50 au contact du détecteur

Le dispositif expérimental est similaire à celui décrit pour la géométrie SG500. La différence principale réside dans le support utilisé. En effet, un support de polyéthylène est utilisé pour maintenir l'échantillon sur l'axe du détecteur. La figure 4.20 illustre un schéma simplifié du dispositif expérimental. Les écarts constatés reflètent l'importance du phénomène de pic-somme qui excède 20% pour certains pics.

4.8.2.2 SG50 à 4,5 et 6,5 cm du détecteur

L'ajout d'un support éloigne la source de 4,5 cm du détecteur. Cela engendre une baisse de l'efficacité accompagnée de la diminution de la correction des effets de PS (figure 4.21). A une distance de 6,5 cm (figure 4.22), les sommations γX sont réduites. Il en résulte une diminution du facteur de correction d'une manière significative pour les radio-isotopes qui se désintègrent par capture électronique. Les simulations MCNPX et ETNA fournissent des facteurs de correction nettement plus faibles que ceux relatifs à la géométrie au contact du détecteur (tableau 4.7).

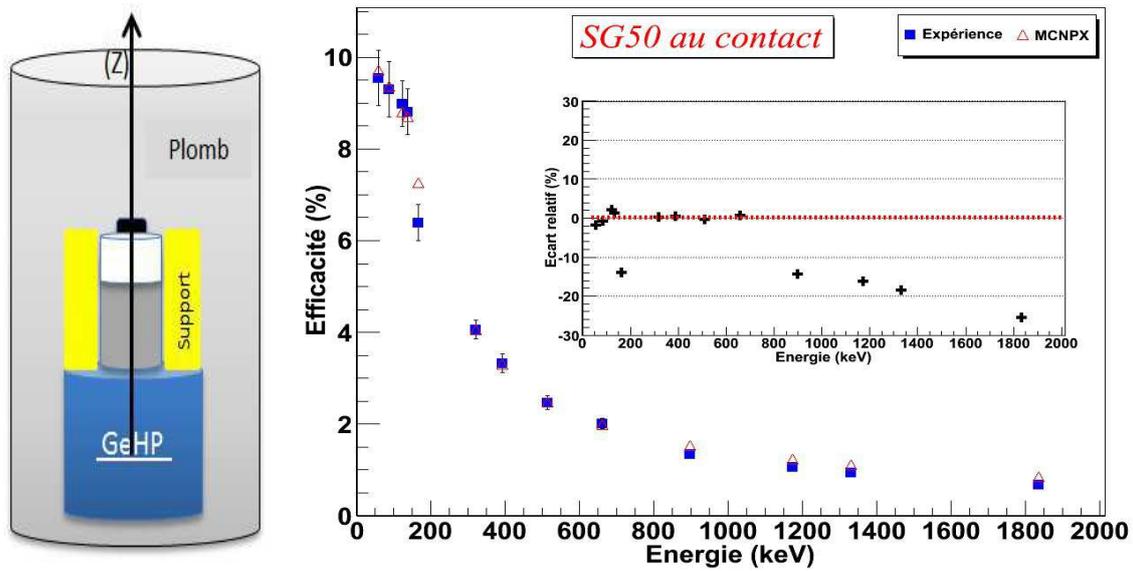


FIGURE 4.20 – A gauche : schéma du dispositif expérimental pour une géométrie SG50 au contact du détecteur, centrée par le support en PVC. A droite : comparaison entre la courbe d’efficacité expérimentale et simulée par MCNPX avec les écarts entre les deux efficacités dus au effets de PS.

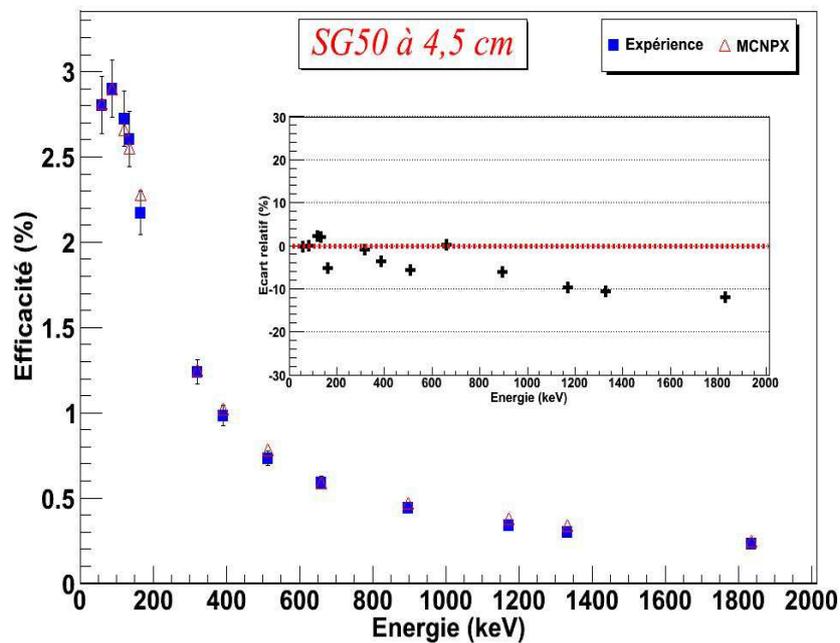


FIGURE 4.21 – Comparaison entre les efficacités expérimentales et simulées pour un SG50 positionné à 4,5 cm et leurs écarts dus au effets de PS.

Cette étude est généralisée à tous les radioéléments contenus dans la base de données d’ETNA. Au total, quelques 200 radioisotopes sont corrigés pour chacune des géométries

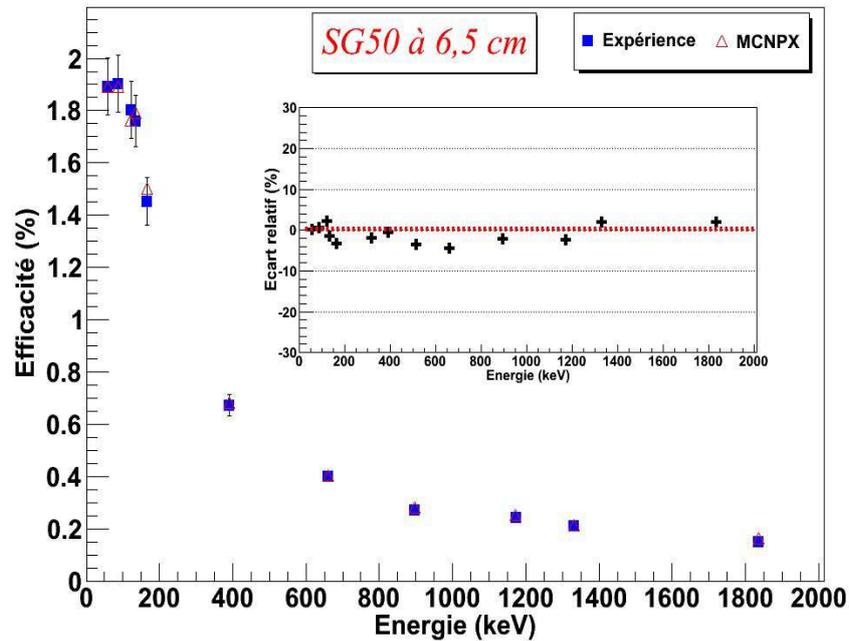


FIGURE 4.22 – Comparaison entre les efficacités expérimentales et simulées pour un SG50 positionnée à 6,5 cm et leurs écarts dus au effets de PS.

Correction totale							
SG50							
		MCNPX			ETNA		
Radionucléide	E(keV)	contact	45mm	65mm	contact	45mm	65mm
²⁴¹ Am	59	1,00	1,00	1,00	1,00	1,00	1,00
¹⁰⁹ Cd	88	1,01	1,00	0,99	1,00	1,00	-
⁵⁷ Co	122	0,98	0,98	0,98	1,07	1,06	1,03
	136	0,99	0,98	1,02	0,99	0,99	0,99
¹³⁹ Ce	166	1,14	1,05	1,03	1,13	1,04	1,03
⁵¹ Cr	320	1,00	1,01	-	1,01	1,02	1,01
¹¹³ Sn	391	1,00	1,04	1,02	1,00	1,00	1,00
⁸⁵ Sr	514	1,01	-	-	1,00	1,00	1,00
¹³⁷ Cs	661	1,00	1,00	1,00	1,00	1,00	1,00
⁸⁸ Y	898	1,14	1,06	1,04	1,20	1,08	1,05
⁶⁰ Co	1,16	1,10	1,05	1,13	1,04	1,03	1,02
	1,02	1,19	1,11	1,02	1,14	1,04	1,03
⁸⁸ Y	1,03	1,26	1,12	1,02	1,23	1,09	1,05

TABLE 4.7 – Correction des effets de pic-somme sur le détecteur BEGe.

SG500 et SG50 positionnées au contact du détecteur BEGe. La table 4.8 résume quelques radionucléides qui posent des problèmes de coïncidence de pics pour les mesures de routine

et qui sont utilisés pour l'étalonnage en spectrométrie gamma. Dans l'annexe C sont donnés les coefficients de correction de pic-somme pour des radionucléides en géométries SG500 et SG50 positionnées au contact du détecteur.

Correction de pic-somme						
Radionucléide	E(keV)	SG500	SG50	E(keV)	SG500	SG50
¹⁵² Eu	192,6	1,32	1,45	674,677	1,30	1,44
	209,41	1,35	1,49	678,625	1,33	1,49
	271,131	1,41	1,60	703,25	1,33	1,51
	315,174	1,44	1,66	712,845	1,30	1,43
	324,83	1,21	1,29	764,902	1,20	1,30
	344,279	1,10	1,13	778,907	1,15	1,22
	351,66	1,31	1,44	794,81	1,32	1,48
	367,79	1,34	1,49	930,58	0,80	0,72
	387,9	1,31	1,44	937,053	1,32	1,48
	411,117	1,25	1,37	974,09	1,13	1,18
	440,86	1,21	1,28	990,19	1,33	1,51
	482,31	1,32	1,46	1089,741	1,13	1,20
	493,509	1,41	1,62	1109,178	1,00	0,99
	496,39	1,21	1,28	1206,11	1,05	1,07
	503,475	1,30	1,44	1261,349	1,07	1,11
	520,228	1,32	1,46	1299,148	1,15	1,22
	526,882	1,33	1,49	1314,7	1,00	1,00
	534,246	1,21	1,28	1348,1	1,14	1,21
	557,91	1,31	1,44	1605,61	0,84	0,78
	586,266	1,22	1,31	1643,6	0,01	0,01
²¹⁴ Pb	53,277	1,16	1,26	351,932	1,00	1,00
	205,642	1,15	1,21	462	1,16	1,23
	241,997	1,01	1,02	480,43	1,01	1,02
	258,87	1,13	1,19	487,09	1,15	1,23
	274,8	1,15	1,23	533,66	0,90	0,86
	295,224	1,00	0,99	538,41	1,14	1,22
	305,26	1,22	1,33	543,81	1,15	1,24
	314,32	1,36	1,53	580,13	1,14	1,22
	323,83	1,38	1,56	785,96	1,01	1,01
				839	0,92	0,88
¹³⁴ Cs	242,8	1,29	1,40	795,84	1,16	1,22
	326,5	1,37	1,51	801,93	1,25	1,35
	475,5	1,26	1,36	1038,55	1,08	1,09
	563,23	1,28	1,39	1167,92	0,95	0,92
	569,32	1,28	1,39	1365,16	0,89	0,85
	604,69	1,16	1,21			

TABLE 4.8 – Valeurs des corrections de PS obtenues par ETNA pour l'¹⁵²Eu, l'²¹⁴Pb et l'¹³⁴Cs dans les deux géométries SG50 et SG500 au contact.

4.9 Etude du pic-somme avec un détecteur coaxial

Le détecteur coaxial du laboratoire est un GeHP de type p (intrinsèque) répertorié sous le nom INTER. C'est un détecteur de forme cylindrique, ayant sur toute la surface des contacts de type N faits par une diffusion de Li. Le second contact est de type p réalisé par une implantation ionique. Le détecteur est positionné horizontalement (figure 4.23) configuration non standard. La contrainte majeure avec cette position horizontale est la non compatibilité des programmes (ETNA et GESPECOR) pour le calcul des coefficients de pic-somme. La simulation Monte Carlo permet donc de contourner une partie du problème.

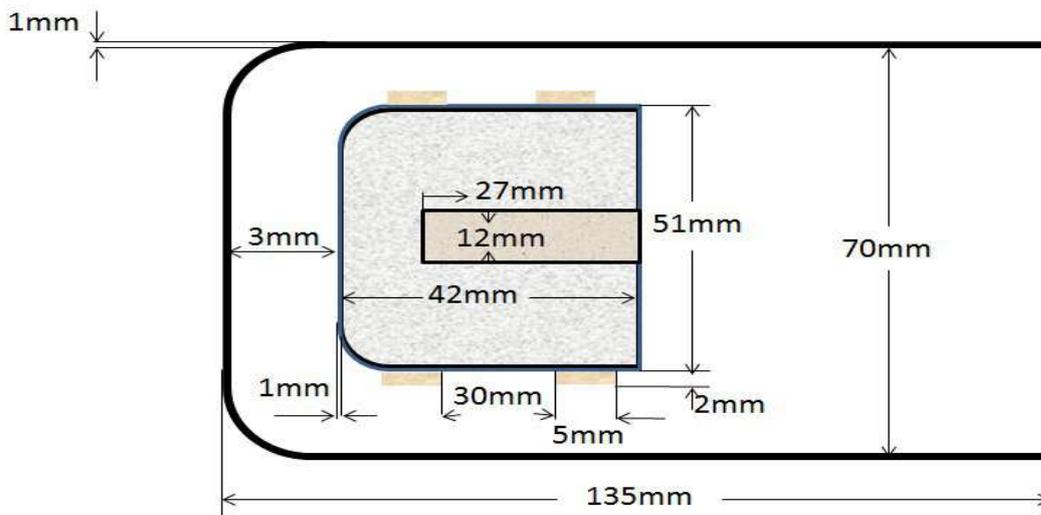


FIGURE 4.23 – Schéma et dimensions du détecteur INTER.

4.9.1 Description de l'expérience

4.9.1.1 Sources ponctuelles

Pour caractériser la fonction de réponse du détecteur, on a mesuré et simulé des sources ponctuelles mono et multigamma. Le détecteur est composé d'un cristal cylindrique d'un volume actif d'environ 80 cm^3 . Les dimensions du cristal sont un diamètre de 51 mm et une longueur de 42 mm avec une zone morte de 1 mm. Le trou sur l'axe fait 27 mm de profondeur avec un diamètre de 12 mm. Un holder d'aluminium de 1,5 mm d'épaisseur maintient le cristal. Le capot est un cylindre d'aluminium d'un diamètre de 70 mm, d'une longueur de 135 mm et d'une épaisseur de 1 mm et faisant office de la fenêtre d'entrée. Les figures 4.24 et 4.25 montrent le dispositif simulé.

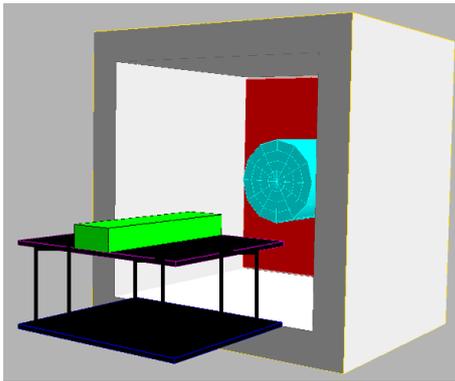


FIGURE 4.24 – Visualisation 3D du dispositif mis en place pour une source ponctuelle simulé par MCNPX.

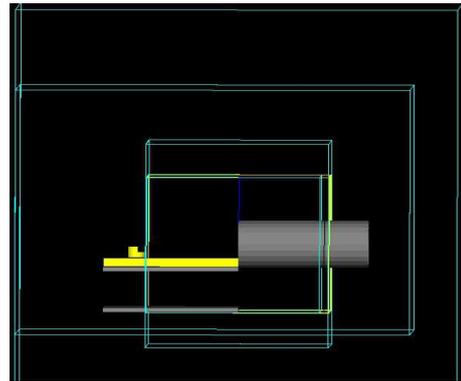


FIGURE 4.25 – Visualisation 3D du dispositif mis en place pour une source ponctuelle simulé par GEANT4.

Les sources de ^{137}Cs , de ^{60}Co et de ^{133}Ba sont positionnées à 10 cm de la fenêtre d'entrée. Les courbes d'efficacité sur la figure 4.26 correspondent aux efficacités expérimentales et simulées par MCNPX et GEANT4.

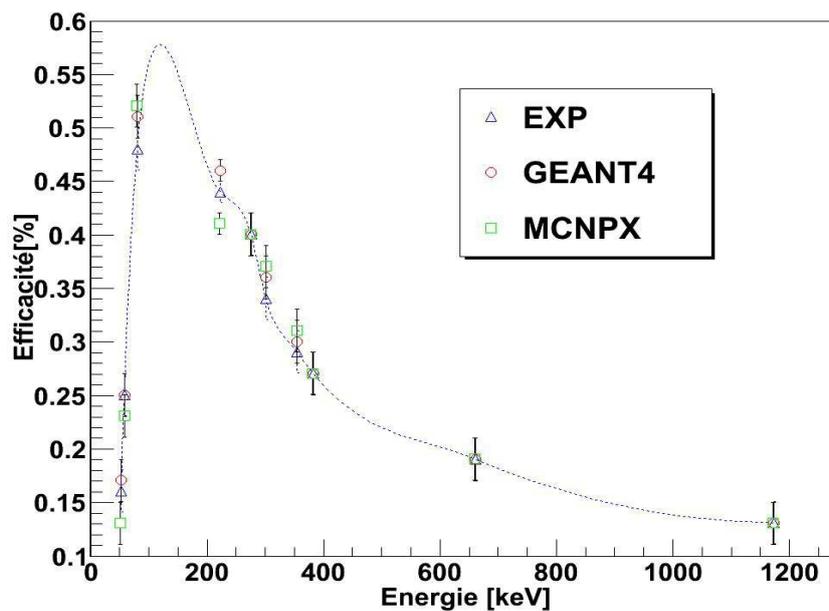


FIGURE 4.26 – Courbes d'efficacité obtenues pour le détecteur INTER par mesure et par simulations MCNPX et GEANT4. La courbe en pointillé représente la tendance.

4.9.1.2 Sources étendues

Afin de maintenir les sources volumiques au contact du détecteur, des supports en PVC ont été utilisés comme représentés sur la figure 4.27. Le tout est confiné dans un blindage en plomb.

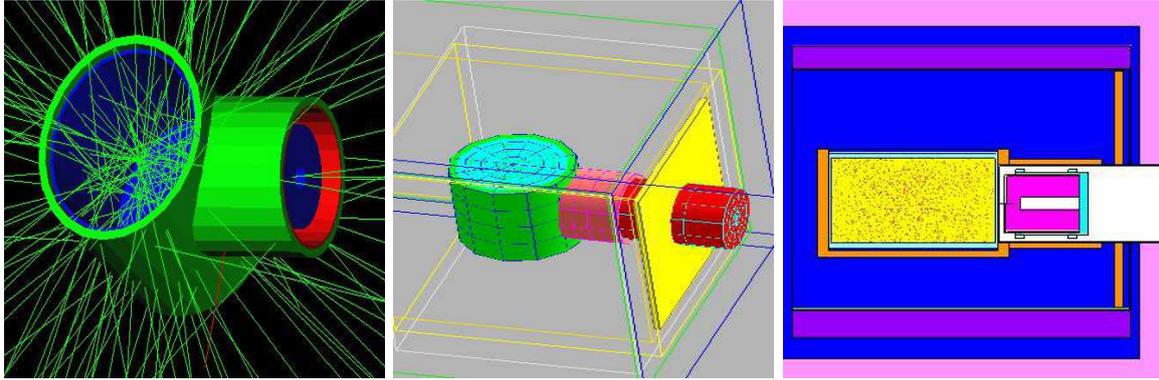


FIGURE 4.27 – A gauche : dispositif simulé par GEANT4. Au milieu : visualisation du dispositif expérimental simulé par MCNPX. A droite : positionnement de la source visualisé par Vised.

Pour l'étalonnage du détecteur, l'étalon SG500 est utilisé. Les mêmes émetteurs γ sont affectés par l'effet de PS à savoir le ^{60}Co et le ^{88}Y . La table 4.9 indique les efficacités ainsi que les corrections apportées par la simulation MCNPX et GEANT4.

Radioélément	E(keV)	$\varepsilon_{EXP}(\%)$	$\varepsilon_{MCNPX}(\%)$	$\varepsilon_{GEANT}(\%)$	f_{cMCNPX}	f_{cGEANT}	$f_{c\text{référence}}$
^{88}Y	898	$0,34 \pm 0,01$	0,35	0,35	1,03	1,03	1,04
^{60}Co	1173	$0,28 \pm 0,01$	0,28	0,29	1,00	1,03	1,02
^{60}Co	1332	$0,25 \pm 0,01$	0,25	0,26	1,00	1,04	1,02
^{88}Y	1836	$0,19 \pm 0,01$	0,20	0,19	1,05	1,00	1,04

TABLE 4.9 – Comparaison des efficacités et estimation du coefficient de correction de pic-somme par MCNPX et GEANT4. Les erreurs sont calculées pour 1σ .

Les valeurs représentées dans cette table sont comparées aux valeurs références [Le Petit 2002] qui sont obtenues dans des conditions quasi-similaires au cas présenté ici. Les deux codes Monte Carlo fournissent des facteurs de corrections compatibles.

Les simulations d'une source ponctuelle de ^{133}Ba avec GEANT4 et MCNPX montrent un bon accord avec l'expérience (rouge). Le décalage des spectres simulés permet une meilleure visualisation des hauteurs des pics d'absorption totale (figure 4.28). En faisant varier le volume de la source, les efficacités sont différentes de celles obtenues par MCNPX et par la mesure. En plus de la fonction de réponse à basse énergie, la forme du spectre montre des pertes d'impulsions dans le fond Compton par rapport à la mesure (figure 4.29).

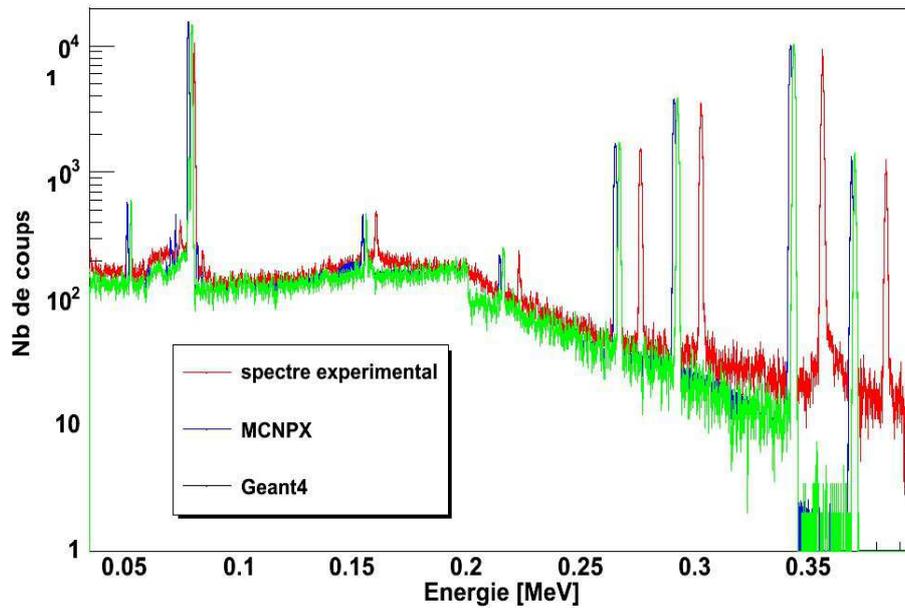


FIGURE 4.28 – Source de ^{133}Ba ponctuelle mesurée et simulée, positionnée à 10 cm du détecteur. Les pics simulés sont décalés vers la gauche.

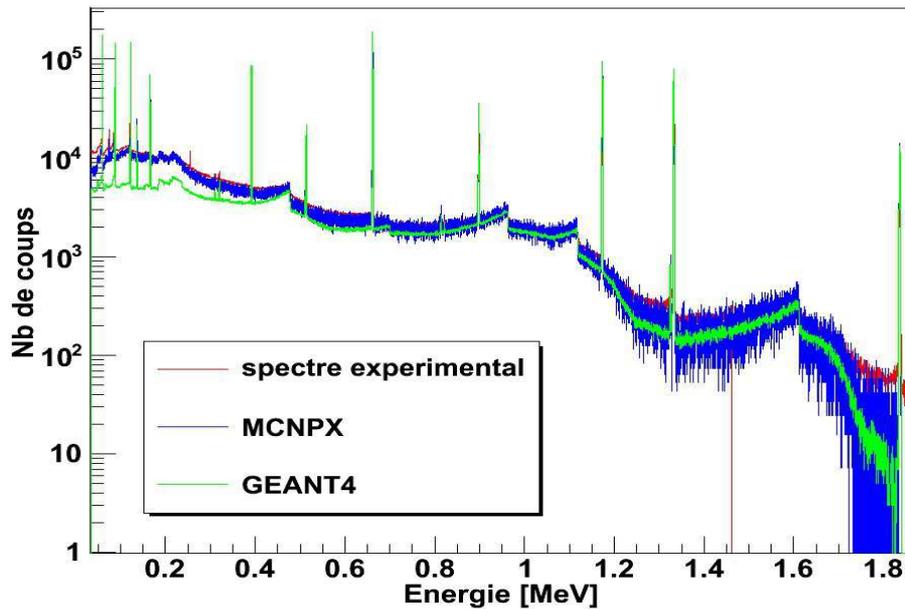


FIGURE 4.29 – Etalon SG500 multigamma mesuré et simulé, positionné au contact du détecteur. A basse énergie le fond Compton simulé est sous-estimé.

On observant de plus près les spectres, on réalise que les simulations avec MCNPX reproduisent plus fidèlement les pics d'absorption totale en particulier, et le spectre expérimental en général, contrairement au spectre (vert) obtenu par GEANT4 (version 4.9.4, basses énergies

inclus). Cette différence est probablement liée à la façon dans laquelle sont traités les processus du transport des photons et des particules dans l'échantillon d'une source étendue et l'environnement du détecteur par les deux codes. On peut aussi mettre en avant le traitement par GEANT4 des atténuations dans la matrice des sources volumiques. Par manque de temps, on n'a pas pu approfondir et comprendre les raisons de ce décalage. Cependant, John Alison de l'Université de Manchester avait souligné concernant GEANT4 que plusieurs processus sont bien compris à l'image des processus électromagnétiques, bremsstrahlung, production de paire, diffusion Compton,.... Au-dessous de quelques keV, la simulation dans cette zone est complexe [Agostinelli 2003] ce qui peut être une source d'erreur en soit.

4.10 Conclusions

Pour la correction du phénomène de pic-somme sur un détecteur GeHP planaire (BEGe), on a calculé les coefficients de correction pour les géométries SG50 et SG500 au contact de ce dernier, et pour des radio-isotopes qui sont répertoriés dans la base de données du logiciel ETNA. Elle est complétée par le rendement d'absorption totale et le rendement total simulés par MCNPX. La figure ci-dessous (figure 4.30) montre certains des **244 radio-isotopes corrigés** des effets de pic-somme pour les géométries SG50 et SG500 positionnées au contact du détecteur BEGe.

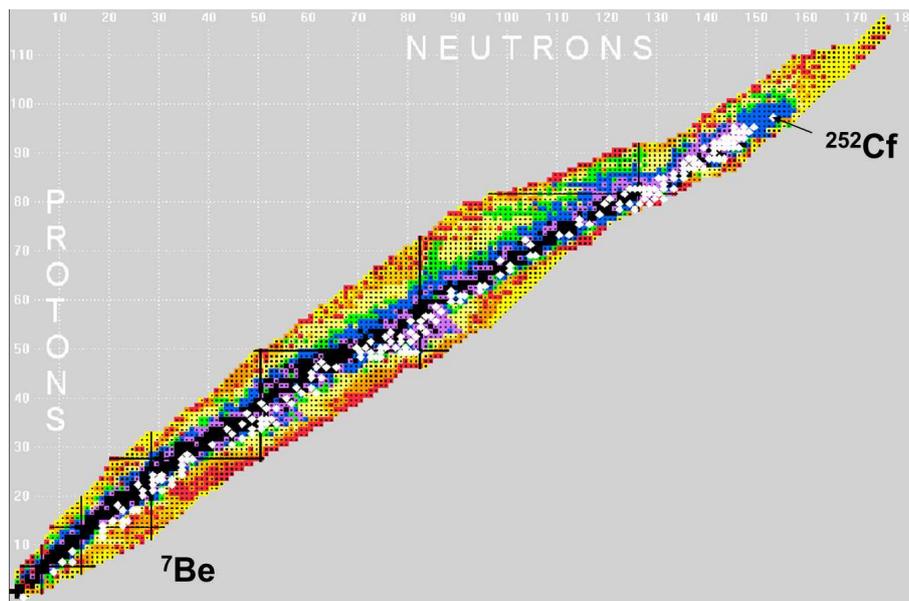


FIGURE 4.30 – Représentation de certains radio-isotopes corrigés des effets de pic-somme sur la charte des nucléides. Ils sont représentés en blanc.

La caractérisation précise du système de détection, la nature de la source, et les interactions photon-matière, nous ont permis d'évaluer les coefficients de correction des effets de pic-somme pour corriger et améliorer les analyses quantitatives des échantillons mesurés par spectrométrie γ . Il ressort de cette étude que les coefficients de correction de pic-somme peuvent atteindre des valeurs supérieures à 30 %.

L'objectif qui est de corriger les effets de pic-somme sans utiliser plusieurs sources mono-énergétiques au préalable est atteint. Ces corrections permettent un étalonnage plus précis de la chaîne de mesure. Néanmoins, certains cas méritent des précisions. Si des radioéléments qui font l'objet de pic-somme sont utilisés pour l'étalonnage de la chaîne de mesure, et que ces mêmes radioéléments se trouvent dans un échantillon à analyser, les effets de pic-somme sont négligeables [Gilmore 2008].

Dans certains cas de la capture électronique et de la conversion interne, des rayons X sont émis lors du réarrangement du cortège électronique. Généralement, ces radioéléments

subissent les effets de pic-somme γX et XX . Cependant on s'est rendu compte que la correction à apporter est très faible voire négligeable. En effet, à cause du volume de l'étalon et des différents matériaux traversés, les X peuvent être totalement absorbés ou atténués. La nature et l'épaisseur de la fenêtre d'entrée sont les causes déterminantes de l'importance de la correction de pic-somme.

Un autre cas qui mérite d'être souligné est le ^{57}Co . La désintégration de ce radioélément émet en cascade des photons de 14 et 122 keV. Néanmoins il n'est pas nécessaire d'apporter des corrections. Une des explications est liée à la durée de vie longue des niveaux excités qui est de l'ordre d'une centaine de nanosecondes pour le 14 keV et d'une dizaine de ns pour le 122 keV. La longue vie de ces niveaux se traduit par une faible probabilité que les deux photons soient détectés ensemble dans la fenêtre de résolution temporelle du détecteur, contrairement à certains autres radioéléments qui sont présents dans l'étalon en particulier et les échantillons en général.

Le ^{109}Cd décroît par une capture électronique, suivi par l'émission d'un rayonnement X de l'Ag. Le rayonnement γ (88 keV) émis est attribué à l'état ^{99m}Ag de 39,6 s de durée de vie. Cela se traduit par un retard d'émission du rayonnement γ et donc l'absence de coïncidence avec les X de l'argent. Ce même raisonnement est aussi vrai pour le ^{113}Sn .

Certains cas particuliers des effets de pic-somme méritent qu'on s'y attarde. Lors de la désintégration β^+ , les photons de l'annihilation sont émis en opposition, ce qui rend la probabilité de les détecter ensemble faible. Cependant, ces photons peuvent être détectés avec un autre (cas du ^{22}Na). Dans certaines situations (parois minces du flacon, fine zone morte et une faible auto-absorption), le rayonnement de freinage [Korun 2010] peut être détecté en coïncidence avec une émission γ , ainsi des impulsions seront enregistrées tout au long du spectre.

La notion de corrélation n'a pas été mentionnée dans ce travail [McCallum 1975], car le grand angle solide de comptage rend les coefficients de corrélation voisins de l'unité. Lorsque la corrélation entre deux γ est faible, son effet est négligeable [Le Petit 2002].

Il est utile de signaler que pour les deux détecteurs utilisés dans ce travail, l'effet de pic-somme est moins important pour le détecteur coaxial avec une zone morte d'environ 1 mm d'épaisseur et un capot d'aluminium de la même épaisseur. Les photons de faible énergie sont atténués avant d'atteindre le cristal. Les sommations de type γX sont négligeables, contrairement au détecteur planaire décrit dans la première partie de cette thèse. En pratique, d'autres coïncidences peuvent se manifester, en l'occurrence des rayonnements β avec leur bremsstrahlung. Pour en tenir compte, les calculs développés dans ce chapitre doivent être adaptés. Dans le cas du détecteur coaxial de type p utilisé ici, son épaisse zone morte constitue un écran supplémentaire pour absorber ces rayonnements. Dans d'autres cas, des écrans peuvent être positionnés entre la source et le détecteur afin de les atténuer.

Compte tenu de cette étude, le coaxial de type P est privilégié pour minimiser les effets de sommation. Cependant, le calcul des coefficients de correction pour le détecteur planaire et

pour les radioéléments couramment mesuré, offre le choix de l'utilisation pour l'un ou l'autre de ces deux détecteurs.

La faible statistique et la mauvaise déconvolution des pics peuvent être à l'origine de la sur-estimation et de la sous-estimation des facteurs de correction de pic-somme. Le cas du ^{85}Sr avec l'émission d'un photon à 514 keV et le pic d'annihilation à 511 keV en est un exemple.

Les effets de pic-somme augmentent avec la diminution du volume de la source. Le choix de ce volume est basé sur différents critères. Dans le cas de faibles activités, où l'objectif est d'atteindre les limites de détection, un SG500 est privilégié. Inversement, si l'activité de la source est relativement intense, il est préférable d'utiliser un SG50 pour éviter d'augmenter le temps mort et limiter les empilements (pile-up) qui affectent considérablement l'efficacité de détection (perte de comptage).

L'autre aspect qu'il ne faut pas négliger et celui de l'auto-absorption. En effet, pour des matrices d'échantillons différentes de celles de l'étalon et pour des faibles énergies, l'auto-absorption influe sur le rendement de détection et introduit un biais dans le calcul de l'activité. Pour compléter l'étude de l'effet de pic-somme, le prochain chapitre est consacré aux phénomènes d'auto-absorption. Au terme de cette étude, les facteurs déterminants de la spectrométrie γ seront corrigés et intégrés dans les déterminations de routine de l'activité de l'échantillon.

Phénomène d'auto-absorption

Sommaire

5.1	Introduction	113
5.2	Méthodes de correction	114
5.2.1	Méthode de transmission	114
5.2.1.1	Formalisme	114
5.2.1.2	Principe	115
5.2.2	Méthodes Monte Carlo	116
5.3	Notion de Z effectif	116
5.4	Mesures et simulations	117
5.4.1	Influence de la densité sur l'auto-absorption	117
5.4.2	Influence de Z_{eff}	119
5.4.2.1	Contributions quantitatives de ρ et Z_{eff} dans la correction totale	120
5.4.2.2	Correction globale	122
5.5	Applications	122
5.5.1	Matrice de sédiment	123
5.5.2	Matrice de phosphogypse	123
5.5.3	Matrice de sol	124
5.6	Résultats des analyses	124
5.6.1	Z effectif connu	124
5.6.1.1	Comparaison éthanol et gypse	124
5.6.1.2	Les sols	126
5.6.2	Cohérence des résultats mesurés et simulés	128
5.6.2.1	Comparaison des méthodes	128
5.6.2.2	Utilisation des équilibres radioactifs	130
5.7	Conclusion	131

5.1 Introduction

L'auto-absorption est un facteur déterminant en spectrométrie γ . Il se manifeste par des pertes d'impulsions et la sous-estimation de l'efficacité pour un rayonnement γ d'une énergie donnée. Il dépend de l'énergie incidente, de la densité de l'échantillon, de son volume et du nombre atomique Z du milieu (matrice) [Bolivar 1997]. Il concerne les échantillons qui ont des propriétés différentes de celles de l'étalon. Afin de prendre en considération les pertes causées par ce phénomène, il est nécessaire de corriger la surface du pic d'absorption totale. L'auto-absorption concerne les photons qui n'atteignent pas le détecteur à cause de leur atténuation

dans la matrice elle-même, les conteneurs ou bien les capots des détecteurs [Dziri 2012]. Dans ce chapitre, on mettra l'accent sur la contribution de la composition chimique dans les pertes de comptage pour des énergies inférieures à 100 keV [Dziri 2013a].

5.2 Méthodes de correction

Plusieurs études ont été proposées pour la correction des effets de l'auto-absorption. La méthode théorique développée par Appleby et al. [K 1992] consiste à calculer le coefficient de correction en utilisant les facteurs d'atténuation. Il s'agit du rapport du facteur d'atténuation d'un photon dans l'étalon à celui de l'échantillon. Cette méthode nécessite la connaissance du coefficient d'atténuation linéique des échantillons mesurés. D'autres méthodes expérimentales [Bouisset 1999, Nachab 2003] ou simulations Monte Carlo sont aussi développées afin de corriger l'auto-absorption.

5.2.1 Méthode de transmission

Cette méthode a été développée par Cutshall et al. [Cutshall 1983]. L'auto-absorption est l'atténuation qu'exerce un volume de matière sur sa propre émission de photon. Le facteur d'auto-absorption F_{att} lors de la mesure d'un étalon ou d'un échantillon, comparé à une mesure analogue sans matière, ne dépend que des aspects géométriques de détection. L'utilisation de cette méthode nécessite la validité de deux hypothèses : la première est que le volume de la source soit homogène en ses éléments, sa densité ρ (par abus de langage, c'est la masse volumique) et sa concentration en activité. La deuxième hypothèse est que le parcours des photons soit normal à l'échantillon et au détecteur. L'exactitude de l'hypothèse d'homogénéité dépend de la préparation de l'étalon ou de l'échantillon. Celle sur la trajectoire est plus approximative. Le rapport du parcours parallèle à l'axe et le parcours oblique est le cosinus de leur angle. Cette hypothèse est d'autant plus vraie que l'échantillon est positionné loin du détecteur. En effet, à grande distance, l'angle solide est quasiment le même quel que soit le point d'émission dans la source. La trajectoire de chaque photon émis est quasiment normal à la surface d'entrée du détecteur. Cependant l'efficacité de détection est réduite.

5.2.1.1 Formalisme

La diminution du nombre de photons dN/dx lors du parcours d'un faisceau dans un milieu, est proportionnelle au nombre N de photons et au coefficient d'atténuation linéique μ_l . On compte comme perdus les photons qui n'ont pas nécessairement interagi mais qui n'ont plus leur énergie initiale suite à une interaction Compton ou autre [Debertin 1988].

$$\frac{dN}{dx} = -\mu_l \cdot N \Leftrightarrow \int \frac{dN}{N} = \int -\mu_l \cdot dx \quad (5.1)$$

d'où :

$$N = N_0 e^{-\mu_m \cdot \rho \cdot x} \quad (5.2)$$

avec μ_m , ρ et x qui sont respectivement le coefficient d'atténuation massique, la densité et l'épaisseur du milieu traversé.

L'atténuation dans l'échantillon F_{att} est définie [Cutshall 1983] par :

$$F_{att} = \frac{I - I_0}{I_0} \Rightarrow F_{att} = \frac{1 - e^{-\mu_m \cdot \rho \cdot x}}{\mu_m \cdot \rho \cdot x} \quad (5.3)$$

On définit le facteur de correction de l'auto-absorption C_{auto} comme étant le rapport du facteur d'auto-absorption de l'étalon à celui de l'échantillon.

$$C_{auto} = \frac{F_{att_{echan}}}{F_{att_{etalon}}} = \frac{\left(\frac{1 - e^{-\mu_m \cdot \rho \cdot x}}{\mu_m \cdot \rho \cdot x} \right)_{echan}}{\left(\frac{1 - e^{-\mu_m \cdot \rho \cdot x}}{\mu_m \cdot \rho \cdot x} \right)_{etalon}} \quad (5.4)$$

5.2.1.2 Principe

Dans ce travail, nous avons utilisé la méthode proposée par Cutshall [Cutshall 1983] que nous avons adaptée à notre dispositif expérimental. Les coefficients d'atténuation linéiques ont été déterminés expérimentalement en positionnant une ou plusieurs sources en amont de l'échantillon alignées horizontalement avec le détecteur (figure 5.1). Les sources d' ^{152}Eu et de ^{133}Ba sont couramment utilisées car elles couvrent une large gamme d'énergie (53 à 1408 keV). Un flacon vide (air) de géométrie SG50 ou SG500 d'une épaisseur équivalente soit à la hauteur du flacon, soit à son diamètre (notre cas) notée X , est placé entre la source et le détecteur. Le nombre N_i enregistré par le détecteur permet de déterminer le facteur d'atténuation linéique de l'air μ_{air} et par la relation 5.5 on remonte au coefficient d'atténuation linéique de l'échantillon μ_{echan} .

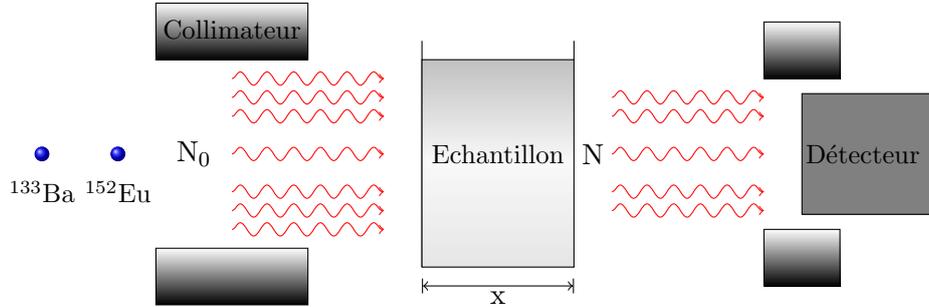


FIGURE 5.1 – Schéma descriptif de la méthode de transmission.

$$\mu_{echan}(E) = \mu_{air}(E) + \frac{1}{x} \cdot \ln\left(\frac{N_{air}}{N_{echan}}\right) \quad (5.5)$$

L'incertitude associée au coefficient d'atténuation linéique est donnée par la formule [Lépy 2004], en négligeant l'erreur sur le coefficient d'atténuation dans l'air :

$$u(\mu_{echan}(E))^2 = \frac{1}{x^2} \cdot \left[\frac{u^2(x)}{x^2} \cdot \ln\left(\frac{N_{air}}{N_{echan}}\right)^2 + \left(\frac{u^2(N_{air})}{N_{air}^2} + \frac{u^2(N_{echan})}{N_{echan}^2} \right) \right] \quad (5.6)$$

5.2.2 Méthodes Monte Carlo

On fait appel aux méthodes Monte Carlo (MCNPX, GEANT4, PENELOPE, EGS4, ...) qui consistent à modéliser séparément les échantillons et/ou les étalons dont les densités et les compositions chimiques sont différentes. En considérant une géométrie de référence et en supposant que la simulation est correcte, le rapport entre les efficacités de référence (étalon) sur les efficacités à même énergie de l'échantillon fournit les coefficients d'auto-absorption.

$$C_{auto} = \frac{\varepsilon_{etalon}}{\varepsilon_{echan}} \quad (5.7)$$

La non connaissance de la composition chimique de l'échantillon rend l'utilisation de cette méthode quasi-impossible ou son utilisation approximative, surtout en dessous de 100 keV.

Pour cette application, nous avons aussi utilisé le logiciel GESPECOR qui offre en plus du calcul des coefficients de correction de pic-somme, la possibilité de calculer les coefficients d'auto-absorption (voir chapitre 3). Le point fort de ce logiciel est la possibilité de rajouter des matériaux et de modifier leurs densités. Cette flexibilité permet de calculer les coefficients d'auto-absorption si l'on connaît la composition chimique de la matrice.

Nous avons également utilisé le code XCOM [Berger 005] pour calculer les coefficients d'atténuation massiques $\mu_m = \mu_l/\rho$ élémentaires qui sont injectés dans la formule 5.4. Il est important de s'assurer que les conditions de l'utilisation de la formule 5.4 soient vérifiées pour obtenir des valeurs significatives.

5.3 Notion de Z effectif

La notion du Z effectif (Z_{eff}) est très utilisée dans les applications médicales pour estimer les atténuations dans les différents tissus. Pour expliquer la perte de comptage due à la composition chimique des échantillons, on revient sur les définitions du Z_{eff} . Pour des matrices composées d'un seul élément (carbone, oxygène, ...) les trois processus d'interaction, à savoir l'effet photoélectrique, Compton et création de paire peuvent être exprimés en fonction de l'énergie du photon E et du nombre atomique Z de l'élément (c.f chapitre 2). Cependant pour les matrices des échantillons mesurés, la composition chimique est hétérogène. Elle est en général composée de plusieurs éléments avec différentes proportions, comme rapporté dans la communication de R.C. Murty [Murty 1965] dans la revue Nature. Il précise que dans ces conditions, la matrice peut être considérée comme un élément *fictif* possédant un nombre atomique *fictif*. Différentes expressions ont été proposées pour le calcul du Z_{eff} . La formule ainsi utilisée est :

$$Z_{eff} = \left(\alpha_i \cdot Z_i^{2,94} \right)^{\frac{1}{2,94}} \quad (5.8)$$

avec Z_i , le nombre atomique du ième élément et α_i sa fraction électronique. G.E. Hine [Hine 1952] avait démontré que chaque processus d'interaction peut être caractérisé par un Z_{eff} . La généralisation de la formule 5.8 donne :

$$Z_{eff} = (\alpha_i \cdot Z_i^{n-1})^{\frac{1}{n-1}} \quad (5.9)$$

avec $n = 4$ à 5 pour l'effet photoélectrique, $n = 1$ et 2 pour l'effet Compton et la création de paire respectivement. La notion de Z_{eff} n'est théoriquement pas démontrée [Hawkes 1980]. Cependant, à faible énergie, l'effet photoélectrique prédomine et la notion de Z_{eff} permet d'expliquer les variations d'efficacités obtenues pour les énergies inférieures à 100 keV mesurées ou simulées dans un échantillon dont la composition chimique est différente de celle de l'étalon. Dans ce travail, la formule utilisée pour le calcul de Z_{eff} [Pantelis 2004, Meynard 2009, Jones 2003] est :

$$Z_{eff} = \left(\sum_i a_i Z_i^{3,5} \right)^{\frac{1}{3,5}} \quad (5.10)$$

avec

$$a_i = \frac{\left(\frac{w_i Z_i}{A_i} \right)}{\left(\sum_i \frac{w_i Z_i}{A_i} \right)} \quad (5.11)$$

où w_i est la fraction en masse de l'élément i dans la matrice, Z_i est le nombre atomique et A_i son nombre de masse.

Dans la même communication, Murty [Murty 1965] avait validé les différentes expressions et avait suggéré la notion de Z_{eff} pour les matériaux hétérogènes.

5.4 Mesures et simulations

Afin de mettre en évidence l'influence de la densité ρ et de Z_{eff} , des mesures et des simulations Monte Carlo (MCNPX) ont été réalisées sur un étalon SG50 au contact du détecteur planaire (GeHP). L'étalon couvre une gamme d'énergie de 46 keV du ^{210}Pb à 1836 keV de l' ^{88}Y . La table 5.1 récapitule les caractéristiques de ces radioéléments.

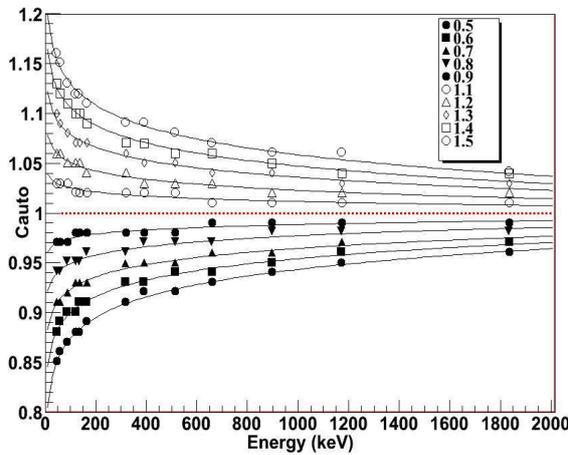
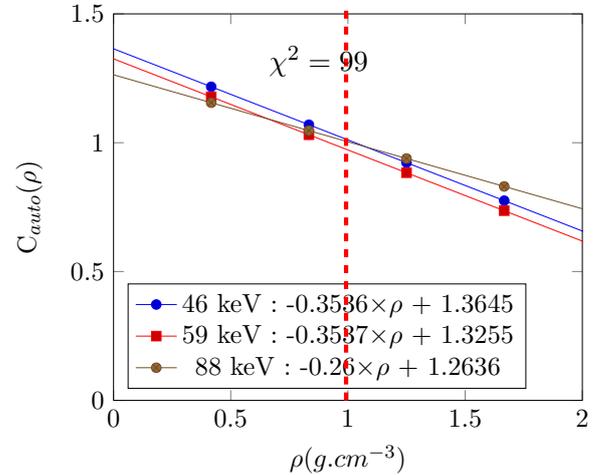
5.4.1 Influence de la densité sur l'auto-absorption

Les mesures de routine sont effectuées sur des échantillons naturels avec différentes densités apparentes. En utilisant le code MCNPX on a pu modéliser des masses volumiques arbitraires allant de $0,5$ à $1,5$ g.cm $^{-3}$. Les énergies considérées dans les simulations sont celles de l'étalon rapportées dans la table 5.1.

La figure 5.2 résume les résultats des simulations. Les courbes représentent les coefficients de correction en fonction de l'énergie pour les différentes densités ρ . Les corrections de l'auto-absorption sont importantes à basses énergies et décroissent avec l'augmentation de l'énergie. La linéarité des corrections en fonction de la densité est un autre aspect qui est mis en avant par ces courbes. A 46 keV, on peut avoir une correction de 20% : l'efficacité est surestimée pour une masse volumique de $0,5$ g.cm $^{-3}$; en revanche, elle est sous-estimée pour $1,5$ g.cm $^{-3}$. Les courbes de la figure 5.3 viennent appuyer cette observation.

Les équations représentées sur la figure 5.3 montrent une dépendance linéaire entre le facteur de correction C_{auto} et la densité ρ pour les énergies de 46 , 59 et 88 keV. Cette

Radionucléide	Période	Activité (Bq)	Energie (keV)	Intensité (%)
^{210}Pb	$22,23\pm 0,12$ a	19800 ± 115	46	4,25
^{241}Am	$432,6\pm 0,6$ a	704 ± 115	59	35,92
^{109}Cd	$461,4\pm 1,2$ j	3700 ± 529	88	3,63
^{57}Co	$271,80\pm 0,05$ j	174 ± 20	122	85,51
	-	-	136	10,71
^{139}Ce	$137,641\pm 0,020$ j	174 ± 21	166	79,90
^{51}Cr	$27,703\pm 0,003$ j	6930 ± 250	320	9,87
^{113}Sn	$115,09\pm 0,03$ j	990 ± 118	391	64,97
^{85}Sr	$64,850\pm 0,007$ j	712 ± 119	514	98,5
^{137}Cs	$30,05\pm 0,08$ a	1140 ± 134	661	84,99
^{88}Y	$106,626\pm 0,021$ a	1050 ± 95	898	93,90
^{60}Co	$5,271\pm 0,001$ a	1140 ± 155	1173	99,85
	-	-	1332	99,98
^{88}Y	$106,626\pm 0,021$ a	1050 ± 95	1836	99,32

TABLE 5.1 – Etalon certifié SG50 avec une matrice équivalent-eau de densité $\rho = 1$.FIGURE 5.2 – Facteurs de correction d'auto-absorption $C_{auto} = F(E, \rho)$ simulés par MCNPX pour une matrice eau avec des densités arbitrairesFIGURE 5.3 – Facteurs de correction d'auto-absorption $C_{auto} = F(E, \rho)$ simulés par MCNPX pour les énergies inférieures à 100 keV pour la matrice eau.

paramétrisation permet de calculer le coefficient de correction à ces énergies pour n'importe quelle densité utilisée dans ce dispositif expérimental.

5.4.2 Influence de Z_{eff}

Comme évoquer plus haut, un matériau hétérogène (échantillon) peut être assimilé à un élément *fictif*, avec un nombre atomique *fictif* Z_{eff} . Dans cette optique, des simulations de l'étalon de densité 1 et un $Z_{eff} = 7,51$ ont été effectuées. En faisant varier le nombre atomique Z de la matrice, on a obtenu les courbes de la figure 5.4 ($\varepsilon = f(E, Z)$) et les corrections C_{auto} de la figure 5.5 ($C_{auto} = f(E, Z)$).

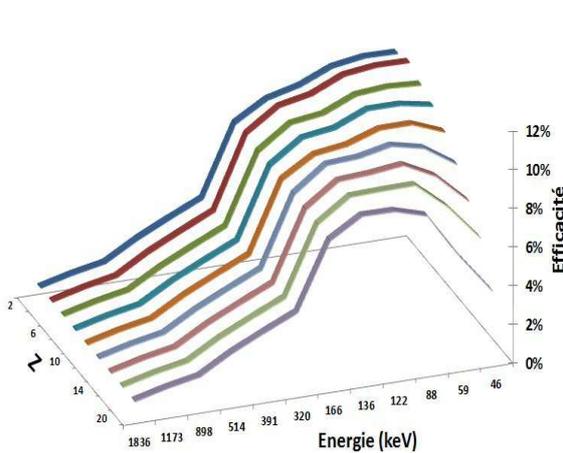


FIGURE 5.4 – Variation de l'efficacité ε en fonction de l'énergie et du nombre atomique Z .

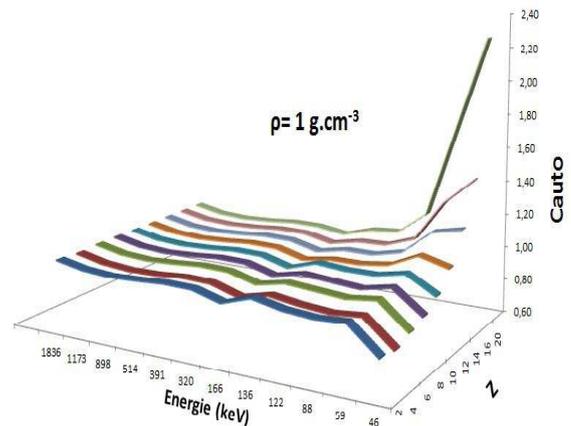


FIGURE 5.5 – Variation des coefficients de correction de l'auto-absorption en fonction de l'énergie et du nombre atomique Z .

L'idée est d'interpoler depuis ces courbes les efficacités correspondantes à un Z_{eff} entre deux nombres atomiques voisins. Pour vérifier le fonctionnement de ces interpolations, on a considéré la silice SiO_2 ($Z_{eff} = 11,75$). Le coefficient d'atténuation massique de l'élément se trouve par interpolation entre celui de Na ($Z = 11$) et celui de Mg ($Z = 12$) avec la valeur de $\mu_m = 0,3568 \text{ cm}^2 \cdot \text{g}^{-1}$. Une valeur équivalente $\mu_m = 0,3571 \text{ cm}^2 \cdot \text{g}^{-1}$ est obtenue par XCOM. Une procédure similaire est utilisée par Manohara et al. [Manohara 2008] pour l'étude des acides gras.

Généralement, le Z_{eff} des sédiments et des sols oscille entre 12 et 20. Les écarts relatifs des efficacités de l'étalon ($Z_{eff} = 7,51$) et de l'échantillon avec un Z_{eff} de 12 et 20 pour une énergie de 46 keV sont de 12 et 64 % respectivement. Ces écarts sont de 6 et 43 % pour 59 keV. Ils sont réduits et deviennent constants pour les énergies élevées. C'est le cas à 122 keV où les écarts sont de 3 %. La figure 5.6 montre les variations de l'efficacité en fonction du Z_{eff} et la figure 5.7 montre l'importance de C_{auto} pour les basses énergies.

Au-delà d'un Z_{eff} égal à 10, la perte en efficacité est importante pour le pic à 46 keV. Cette perte est moins prononcée pour le pic à 59 keV de l' ^{241}Am (figure 5.7). L'augmentation des énergies rend l'atténuation moins sensible aux effets du Z , comme on peut le voir pour le pic à 88 keV du ^{109}Cd . L'efficacité n'est pas affectée ou peu au-delà de 100 keV. C'est le cas du pic à 122 keV du ^{57}Co et celui à 320 keV du ^{51}Cr .

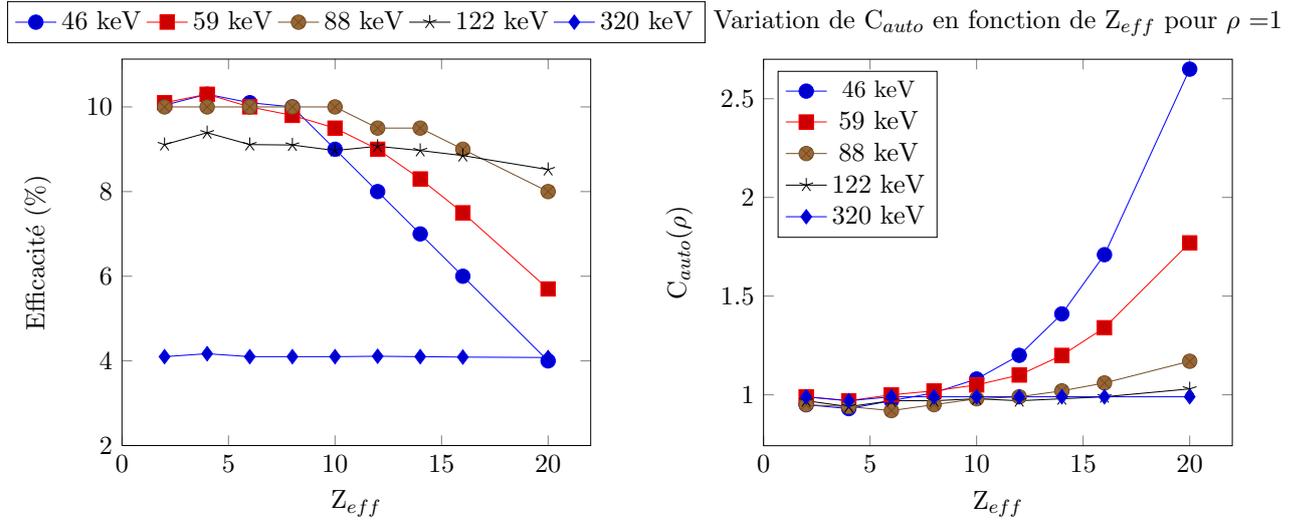


FIGURE 5.6 – Variation de l'efficacité pour différentes énergies en fonction de Z_{eff} et pour $\rho = 1,0$.

FIGURE 5.7 – Variation de C_{auto} en fonction de Z_{eff} pour des énergies inférieures à 100 keV et $\rho = 1,0$.

5.4.2.1 Contributions quantitatives de ρ et Z_{eff} dans la correction totale

Le facteur de correction de l'auto-absorption C_{auto} est le résultat de l'effet des deux paramètres ρ et Z_{eff} . La modélisation Monte Carlo permet de quantifier les contributions dues à ρ notée $C_{auto}(\rho)$ et à Z_{eff} notée $C_{auto}(Z_{eff})$. Considérons le pic à 46 keV du ^{210}Pb , la densité ρ est fixée à 1,0 et Z_{eff} varie entre 10, 12, 15 et 17.

Cette première procédure permet d'obtenir le facteur $C_{auto}(\rho)$. Par le même raisonnement, on a fixé Z_{eff} , et pour chacune de ces valeurs on fait varier la densité de 0,8 à 1,4. Cette seconde procédure fournit $C_{auto}(Z_{eff})$. Si on suppose que C_{auto} est la somme des deux facteurs de correction, on obtient la figure 5.8 représentant la fraction de correction pour chaque paramètre pour l'énergie de 46 keV. La contribution de chacun d'eux est obtenue par la normalisation au facteur de correction total, en utilisant les paramétrisations des facteurs de correction relatifs à ρ et Z_{eff} .

Pour une densité de 0,8 et un $Z_{eff} = 10$, les corrections sont équivalentes. Elle avoisinent les 50% pour chacun des paramètres. L'efficacité de détection à 46 keV pour cette densité est sur-estimée par rapport à celle de l'étalon pour la même énergie. En revanche, le Z_{eff} est légèrement supérieur à celui de l'étalon, en conséquence l'efficacité est sous-estimée. Il y a une contribution équivalente des deux paramètres.

Pour un échantillon de même densité que l'étalon, la correction de l'efficacité, si elle existe, est liée à la composition élémentaire. Dans presque tous les cas, la composition élémentaire joue un rôle prépondérant dans la perte d'efficacité comme on peut le constater sur la figure 5.8 pour des Z_{eff} de 12, 15 et 17. Pour une haute densité apparente de 1,4, l'effet de la composition élémentaire est inférieur à celui de la densité pour un $Z_{eff} = 10$.

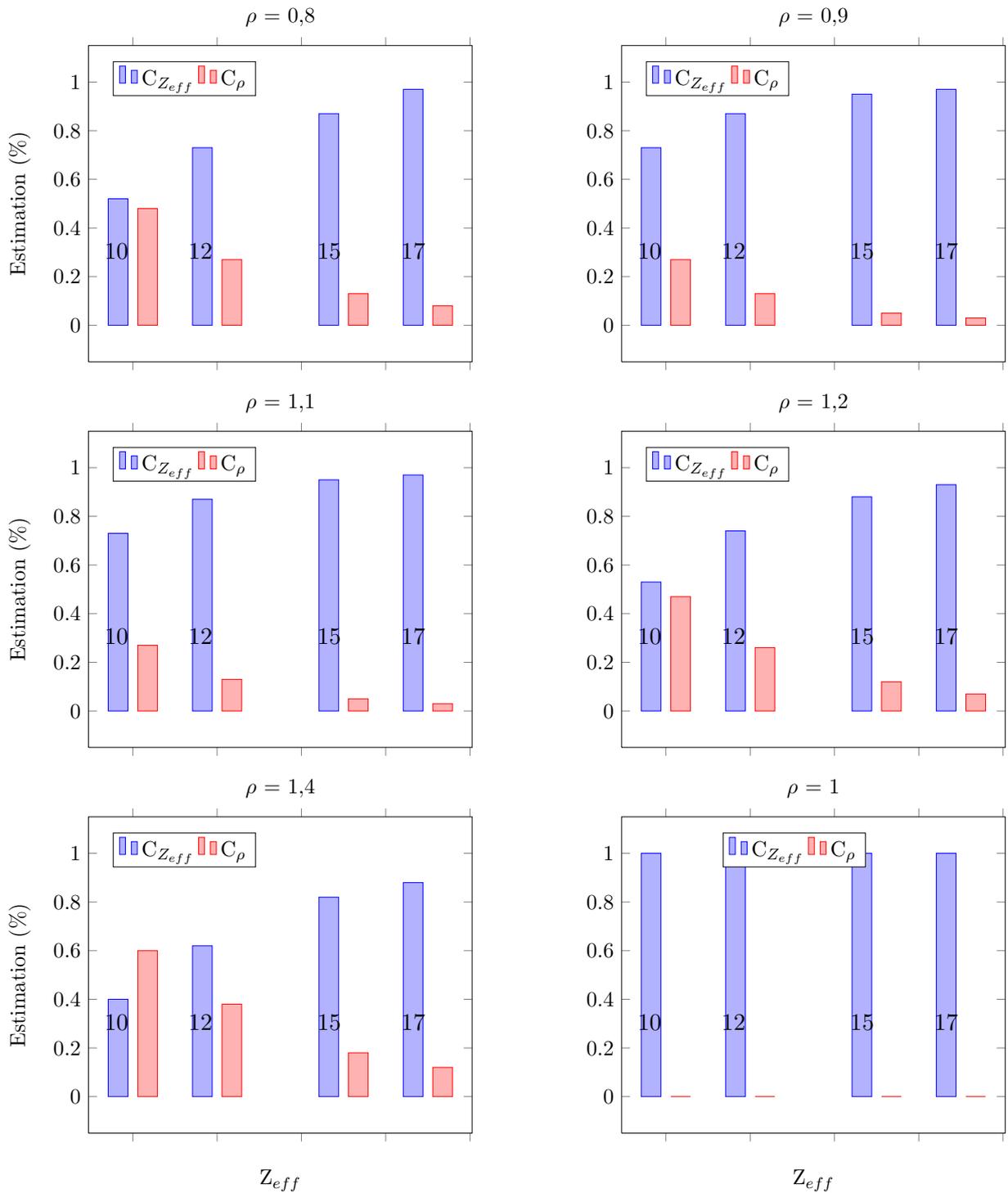


FIGURE 5.8 – Corrections dues à la densité ρ et la composition élémentaire Z_{eff} de l'échantillon à 46 keV.

5.4.2.2 Correction globale

A partir des paramétrisations des figures 5.3 et 5.7, on a calculé la correction C_{auto} comme étant la somme des corrections relatives à la densité et celles relatives au Z_{eff} . L'utilisation des deux paramètres est régie par l'équation 5.12.

$$C_{auto} = |1 - C_{auto}(\rho)| + |1 - C_{auto}(Z_{eff})| \quad (5.12)$$

Si la densité de l'échantillon est la même que celle de l'étalon ($\rho = 1,0$), le premier terme de l'équation s'annule. Inversement si le Z_{eff} équivaut à celui de l'étalon, c'est le deuxième terme qui s'annule. La représentation de cette équation en 3D (figure 5.9) montre la symétrie par rapport à $\rho = 1,0$ et l'importance des corrections selon la densité et Z_{eff} .

Par la méthode de transmission, on a obtenu une correction à 46 keV de 68 % pour le gypse et 13 % pour l'éthanol ($\rho=0,8$). Pour obtenir des corrections distinctes dues aux deux paramètres, on fait une interpolation à partir des équations des figures 5.3 et 5.7 simulées. Les valeurs ainsi trouvées sont 8 % de correction relative à ρ et 60 % due à Z_{eff} pour le cas du gypse. Pour l'éthanol une correction de 4 % est relative à ρ et 8 % relative à Z_{eff} . Sur la figure 5.10, les échantillons sont représentés par leurs coordonnées $C_{auto}(Z_{eff}, \rho)$. Les corrections sont obtenues par la méthode de transmission. Elles sont en bon accord avec la somme des corrections obtenus séparément par la simulation.

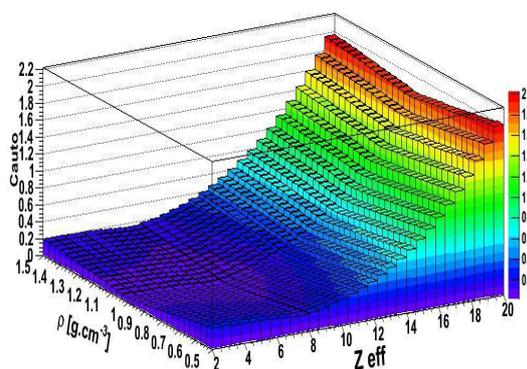


FIGURE 5.9 – Représentation en 3D de la correction de l'auto-absorption en fonction de Z_{eff} et ρ .

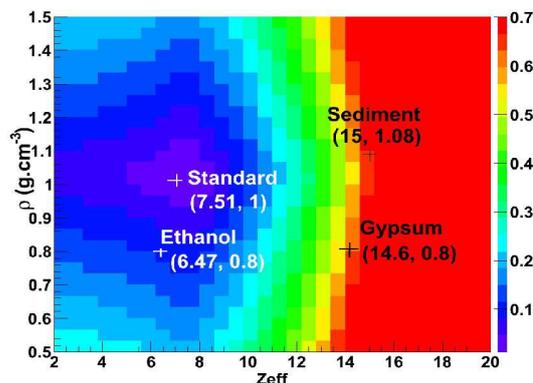


FIGURE 5.10 – Représentation en 2D de la correction de l'auto-absorption. Projection horizontale de C_{auto} sur les axes Z_{eff} et ρ .

5.5 Applications

Le laboratoire RaMsEs est accrédité par le COFRAC (Comité Français d'ACcréditation) pour deux essais dans le programme 135 relatif à l'analyse d'échantillons dans l'environnement par spectrométrie γ vecteur eau et vecteur solide. Ce deuxième essai nécessite la correction de l'auto-absorption. Dans ce contexte, il est sollicité par les collectivités locales, les organismes nationaux (AREVA, EDF, ANDRA,...) et des sociétés privées pour assurer des prestations

d'analyses.

Les échantillons environnementaux mesurés sont généralement différents de l'étalon de par leurs densités et leurs compositions chimiques. Quelques matrices sont étudiées et corrigées des effets de l'auto-absorption par les différentes méthodes rappelées au début de ce chapitre.

5.5.1 Matrice de sédiment

Un sédiment est l'accumulation par dépôt de particules de taille variable ayant subi un transport ou provenant de la précipitation des minéraux d'un liquide. Ces matériaux proviennent soit de l'érosion de roches anciennes, soit résultent d'une activité biologique. Après avoir été transportés et déposés, les sédiments gorgés d'eau subissent des transformations. Sous l'effet des épaisseurs accumulées au-dessus. Ils perdent alors leur eau, les particules se lient entre elles, le sédiment devient une roche sédimentaire dure.

En ce qui concerne le sédiment utilisé, il est composé de 11 atomes [Sima 2001] : SiO_2 , TiO_2 , Al_2O_3 , FeO , Fe_2O_3 , MnO , MgO , CaO , Na_2O , C , H_2O . Le Z_{eff} est calculé par la formule 5.10 avec les proportions indiquées dans la table 5.2.

Elément	O	Si	Al	Fe	C	H	Ti	Mg	Ca	Na	Mn	Z_{eff}
w_i (%)	30	11	4,5	5	25,4	0,23	0,5	1,5	17,2	4,6	0,096	15,2

TABLE 5.2 – Composition chimique et son Z_{eff} du sédiment avec les différentes proportions w_i .

5.5.2 Matrice de phosphogypse

Le phosphogypse est un gypse non naturel (résidu) qui provient des minerais calciques fluorophosphatés pour la fabrication de l'acide phosphorique et des engrais phosphatés. Il est composé de sulfate dihydraté de calcium. Sa formule chimique est $\text{CaSO}_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ (table 5.3).

Elément	O	S	Ca	H	Z_{eff}
w_i (%)	55,7	18,7	23,3	2,3	14,2

TABLE 5.3 – Composition chimique du phosphogypse et son Z_{eff} avec les différentes proportions w_i .

5.5.3 Matrice de sol

Selon l'ICRU (rapport 53), il existe plusieurs types de sol. Ils sont classés en fonction de leurs compositions chimiques, rapportés dans la table 5.4. Les valeurs correspondent aux fractions relatives en poids des différents éléments qui constituent les sols.

Sol					
Elément	1	2	3	4	5
H	2,2	2,2	1,1	10	-
C	-	-	1,2	11,4	-
O	57,5	58,2	55,8	78	45,2
N	-	-	-	0,4	-
Mg	-	-	-	-	2,5
Al	8,5	10,6	7,2	-	8,3
Si	26,2	26,2	31,6	-	25
S	-	-	-	0,2	-
K	-	-	-	-	1,8
Ca	-	-	-	-	4,1
Ti	-	-	-	-	0,7
Mn	-	-	-	-	0,2
Fe	5,6	2,8	3,1	-	12,2
Z_{eff}	13,35	12,32	12,62	7,37	16,12

TABLE 5.4 – Compositions chimiques en (%) et leurs Z_{eff} des sols données dans le rapport 53 de l'ICRU .

5.6 Résultats des analyses

5.6.1 Z effectif connu

5.6.1.1 Comparaison éthanol et gypse

Afin de mettre en pratique l'étude développée sur le Z_{eff} , l'échantillon de phosphogypse est comparé à celui d'éthanol (C_2H_5OH) de $Z_{eff} = 6,47$. Les deux échantillons (SG50) ont la même densité apparente 0,79. Les mesures et les simulations sont représentées dans la figure 5.11. Il est clair qu'à 46 keV, l'efficacité est plus importante pour l'éthanol que celle pour l'étalon. En revanche, elle est nettement inférieure pour le gypse. Ce constat est valable

pour toutes les énergies inférieures à 100 keV.

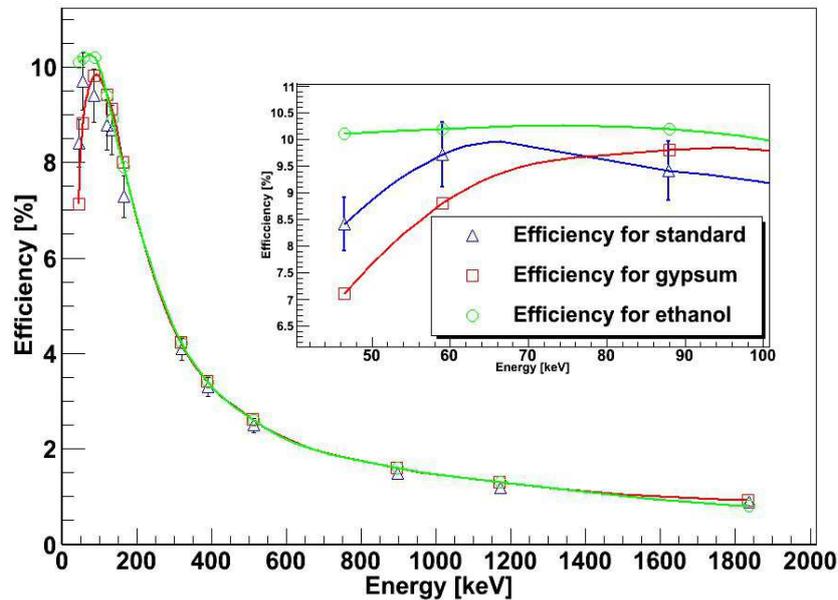


FIGURE 5.11 – Comparaison des efficacités et influence du Z_{eff} sur les deux échantillons (l'éthanol et le gypse). Les efficacités sont comparées à celle pour l'étalon.

La différence d'efficacité entre les deux échantillons ne peut être expliquée que par la différence de Z_{eff} car ils ont la même densité (0,79). Une autre observation qui attire l'attention est qu'au-delà de 120 keV, le Z_{eff} n'influe pas d'une manière significative sur l'efficacité. Dans la table 5.5 sont rapportées les valeurs des efficacités.

Echantillons	Eau (H_2O)	Ethanol (C_2H_5OH)	Gypse ($CaSO_4 \cdot 2H_2O$)
ρ apparent	1	0,79	0,79
ε_{46keV} (%)	8,2	9,26	7,2
ε_{59keV} (%)	9,7	10,67	8,8
Z_{eff}	7,51	6,47	14,60

TABLE 5.5 – Comparaison des efficacités pour l'éthanol et le gypse de 0,79 de densité et Z_{eff} différents.

Le Z_{eff} de l'éthanol est inférieur à celui de l'étalon ce qui explique la faible influence de la

composition chimique dans la perte d'efficacité. Le Z_{eff} du gypse est presque le double de celui de l'étalon. La perte de comptage est accentuée pour le pic d'absorption totale. Autrement dit, l'influence de la composition est prépondérante pour les deux énergies notées dans la table 5.5.

5.6.1.2 Les sols

Les sols sont des échantillons fréquemment analysés dans les laboratoires de mesure de la radioactivité. Les différentes compositions chimiques de ces sols influent sur la correction de l'auto-absorption. Par des simulations GESPECOR de ces sols (table 5.4) avec une densité de 1, on a pu mettre en avant cette influence. La table 5.6 résume les valeurs de C_{auto} calculées. Les corrections sont plus ou moins importantes selon le type de sol analysé. Les sols 1, 2 et 3 sont similaires par leur composition chimique et leur Z_{eff} . En revanche, le sol 4 est organique vu sa composition. Quant au sol 5, il est très minéralisé, donc un Z_{eff} plus grand, ainsi les corrections de l'auto-absorption augmentent sous 100 keV.

E(keV)	46	59	88	122	320	514	1173	1836
Sol1	0,79	0,89	0,98	1,01	1,02	1,01	1,01	1,01
Sol2	0,84	0,93	0,99	1,01	1,02	1,01	1,01	1,01
Sol3	0,83	0,92	0,99	1,01	1,02	1,01	1,01	1,01
Sol4	1,01	1,00	1,00	1,00	1,00	1,00	1,00	1,00
Sol5	0,64	0,79	0,95	1,00	1,02	1,01	1,01	1,01

TABLE 5.6 – Facteurs de correction des effets d'auto-absorption pour 5 sols de densité équivalent-eau ($\rho=1$) obtenus par GESPECOR.

Les figures 5.12, 5.13, 5.14 et 5.15 montrent la dépendance de l'efficacité à la variation de Z_{eff} pour les différentes énergies représentées 46, 59, 88 et 122 keV, avec des densités de 1. Les différentes matrices analysées dans ce travail pour la même densité, sont représentées sur ces courbes. Grâce à ces simulations, il est possible de déduire les efficacités en fonction du Z_{eff} .

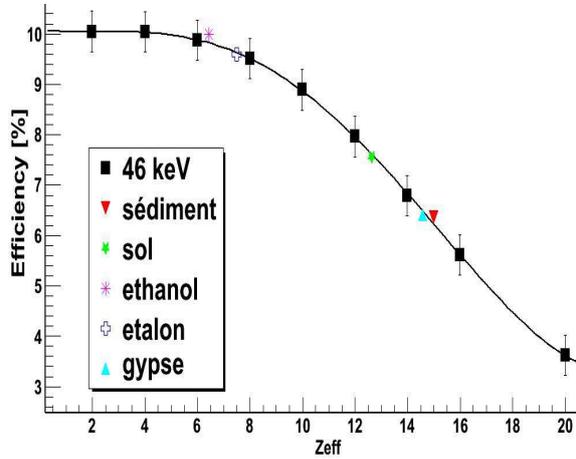


FIGURE 5.12 – Simulation de l'influence de Z_{eff} sur l'efficacité à 46 keV.

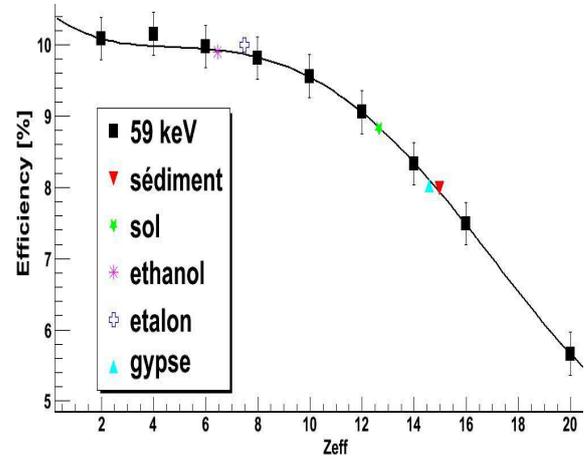


FIGURE 5.13 – Simulation de l'influence de Z_{eff} sur l'efficacité à 59 keV.

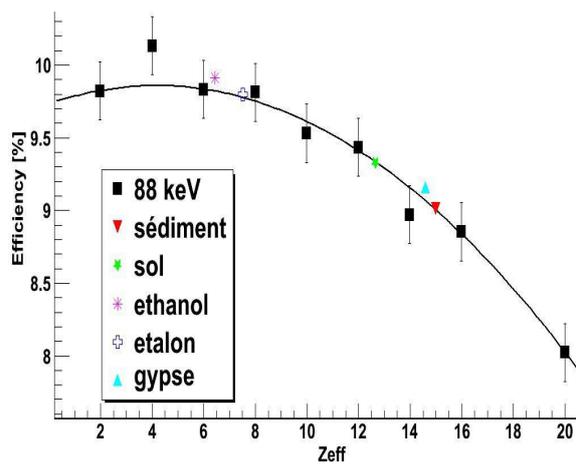


FIGURE 5.14 – Simulation de l'influence de Z_{eff} sur l'efficacité à 88 keV.

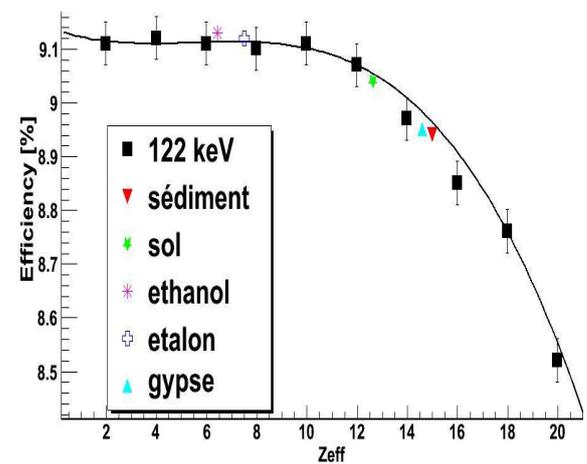


FIGURE 5.15 – Simulation de l'influence de Z_{eff} sur l'efficacité à 122 keV.

5.6.2 Cohérence des résultats mesurés et simulés

5.6.2.1 Comparaison des méthodes

Les coefficients de correction de l'auto-absorption sur les échantillons analysés sont calculés par trois méthodes, transmission, MCNPX et GESPECOR. Les résultats des différentes méthodes de calcul du coefficient d'auto-absorption sont représentés respectivement de haut en bas dans la figure 5.16, 5.17 et 5.18 pour un sédiment d'une densité apparente de 1,08 et d'un Z_{eff} de 15, pour un gypse d'une densité apparente de 0,79 et d'un Z_{eff} de 14,2 et pour un sol d'une densité apparente de 1,15 et d'un Z_{eff} de 16.

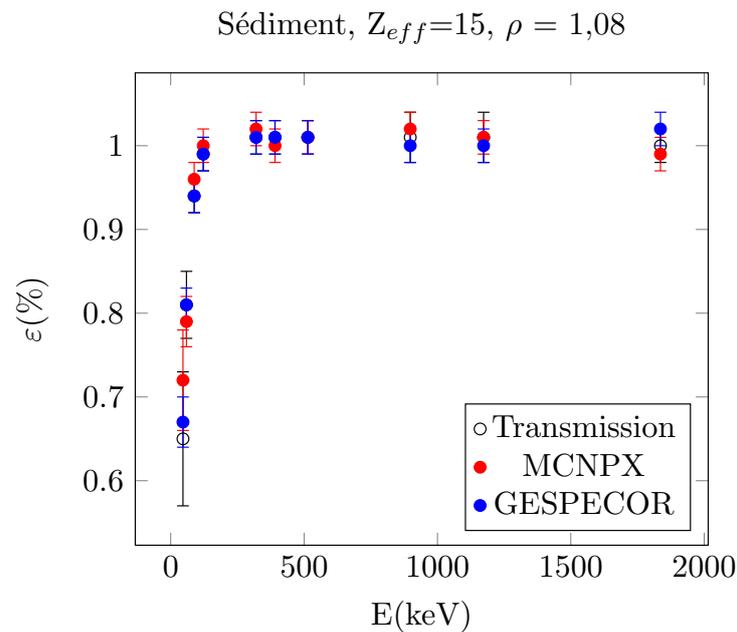


FIGURE 5.16 – Comparaison des résultats expérimentaux et simulation Monte Carlo pour le sédiment.

Les différentes méthodes convergent vers le même résultat. A basse énergie, les incertitudes sont plus importantes, avoisinant les 15 %. Ces vérifications permettent de valider la méthode Monte Carlo qui est proposée dans ce travail.

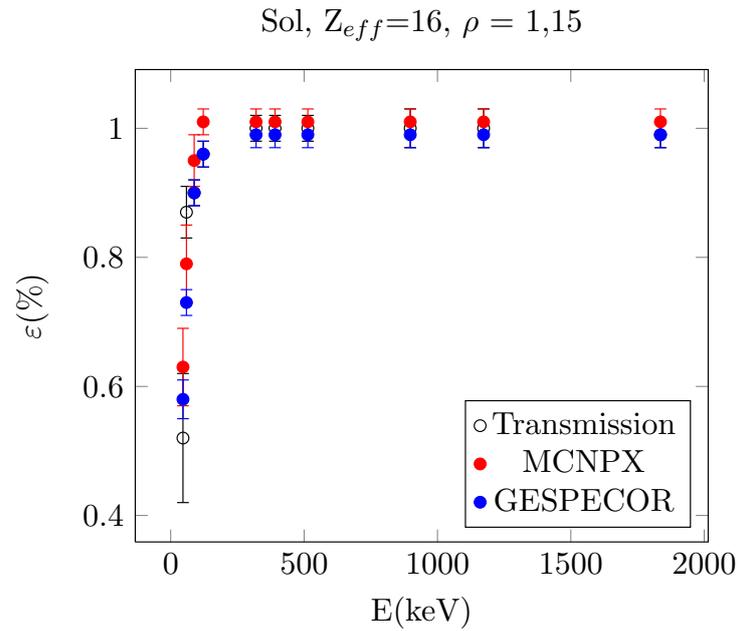


FIGURE 5.17 – Comparaison des résultats expérimentaux et simulation Monte Carlo pour le sol.

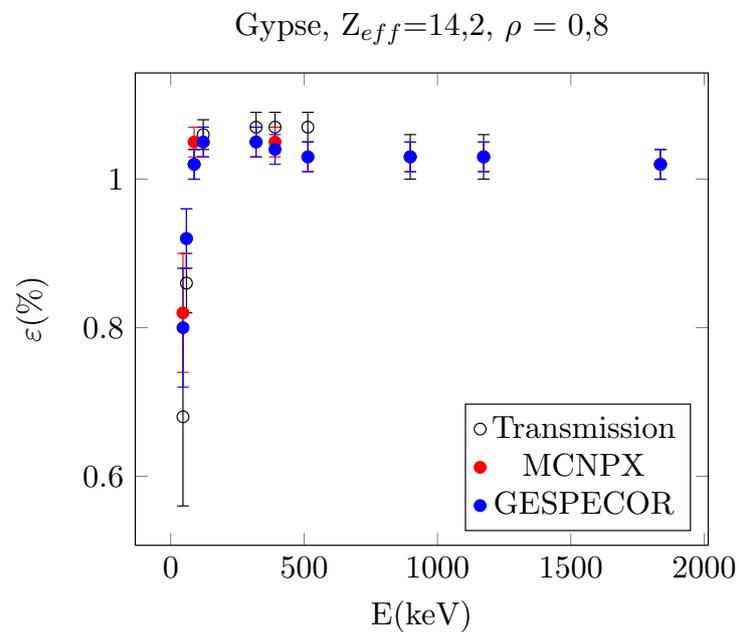


FIGURE 5.18 – Comparaison des résultats expérimentaux et simulation Monte Carlo pour le gypse.

5.6.2.2 Utilisation des équilibres radioactifs

La filiation radioactive est la désintégration en cascade de certains noyaux. On distingue trois filiations principales qui concernent des noyaux dont la durée de vie est de l'ordre du milliard d'années. Il s'agit de l' ^{238}U , l' ^{235}U et du ^{232}Th . Les descendants de ces noyaux sont retrouvés dans des échantillons naturels lors de l'analyse. L'équilibre entre les noyaux produits et leurs parents est dit équilibre séculaire. Cet équilibre garde une activité constante égale à celle du noyau père. Cette dernière caractéristique peut être exploitée en spectrométrie γ afin de vérifier la cohérence des coefficients d'auto-absorption.

A titre d'exemple, l'équilibre séculaire dans la famille de l' ^{238}U permet d'ajuster les coefficients d'auto-absorption de la raie de 63 keV du ^{234}Th avec celle obtenue pour la raie de 1001 keV du ^{234m}Pa dont la correction d'auto-absorption est négligeable. Pour une utilisation fiable de cette méthode, une déconvolution rigoureuse des surfaces des pics de basse énergie est nécessaire. Il est important de tenir compte des incertitudes relatives aux différents paramètres qui entrent dans le calcul de l'activité.

5.7 Conclusion

Afin de minimiser les termes correctifs en spectrométrie γ , il est nécessaire de faire des mesures dans des conditions similaires à celles de l'étalonnage. En conséquence, les incertitudes relatives à la mesure seront réduites. Cela n'est pas toujours le cas comme on l'a démontré le long de ce chapitre. La non maîtrise de la composition chimique de l'échantillon peut s'avérer problématique pour la correction de l'auto-absorption.

Même si la notion de Z_{eff} n'est pas démontrée théoriquement, on a pu donner néanmoins des explications sur certains écarts observés pendant cette étude. Une autre problématique consiste à bien définir les matrices et leurs compositions élémentaires. Prenons le cas du sol, généralement il est composé d'éléments récurrents (table 5.4). Dans certains sols, on retrouve d'autres éléments avec des quantités non négligeables. La variation de ces compositions influence l'atténuation et ainsi les facteurs de correction des effets de l'auto-absorption.

Dans le domaine des énergies inférieures à 100 keV, l'interaction dominante est l'effet photoélectrique, lui-même très dépendant des éléments présents dans la matrice. La connaissance de la nature de la matrice est donc indispensable pour effectuer des corrections aux faibles énergies. Cette connaissance doit être d'autant plus précise que l'on prétend travailler à une énergie plus basse.

Des méthodes ont été développées pour déterminer la composition chimique des échantillons. Pour des mesures précises en spectrométrie γ , il est utile d'associer ces mesures à l'une des techniques telle que l'analyse par la diffusion Rutherford RBS (Rutherford Backscattering Spectrometry). Elle consiste à envoyer un faisceau de particules α sur la cible. On détecte les particules incidentes diffusées vers l'arrière. L'énergie de ces particules porte l'information sur la masse de l'atome avec lequel l'interaction a eu lieu. Cette procédure rallonge le temps de la mesure et de l'analyse en spectrométrie γ .

Pour estimer l'auto-absorption, il faut connaître le coefficient d'atténuation massique. Pour certains composés et éléments ces coefficients sont tabulés [Berger 005]. Le coefficient d'atténuation massique μ_m d'un composé est la somme des coefficients des constituants élémentaires μ_i multipliés par leur proportion en masse w_i .

$$\mu_m = \sum_i w_i \mu_i \quad (5.13)$$

Dans le cas où l'échantillon ne contient pas d'éléments de nombre atomique Z supérieur à 20, Dryak et al. [Dryak 1989] proposent une formule pour calculer les coefficients d'atténuation massique.

$$\mu_m = 1,28E^{-0,435} \quad (5.14)$$

Cette approximation présente cependant des écarts importants pour des énergies en dessous de 80 keV avec les valeurs réelles.

Application aux mesures environnementales et à la dosimétrie

Sommaire

6.1 Test d'intercomparaison	133
6.1.1 Ecart relatif	134
6.1.2 Test de compatibilité	134
6.1.3 Le score Z	134
6.1.4 Critères d'acceptabilité	135
6.1.5 Analyse de l'échantillon de test d'intercomparaison	135
6.1.6 Résultats de l'analyse avant la correction PS	137
6.1.7 Résultats de l'analyse après la correction PS	138
6.2 Matériaux de construction	140
6.2.1 Correction de l'auto-absorption et de l'effet de pic-somme	140
6.2.2 Dosimétrie des rayonnements γ	142
6.2.3 Radium équivalent	144
6.2.4 Indice du risque interne et externe	145
6.2.5 Dose efficace annuelle	145
6.3 Comparaison des mesures avec les simulations	147
6.3.1 Distribution de dose	147
6.3.2 Calcul et simulation de la dose	149
6.4 Conclusion	151

Les études réalisées le long de ce travail à savoir les corrections des effets de pic-somme et de l'auto-absorption ont été appliquées pour l'analyse de différents échantillons. Ces études ont permis en particulier de valider les tests d'intercomparaison organisés par l'IRSN (Institut de Radioprotection et de la Sûreté Nucléaire) pour les mesures de la radioactivité dans l'environnement. Elles ont conduit, d'autre part à des applications sur des mesures fines de la radioactivité concernant des échantillons de matériaux de construction afin d'évaluer les expositions interne et externe.

6.1 Test d'intercomparaison

Dans le nouveau contexte réglementaire lié à la protection de la population contre les rayonnements ionisants, en application des articles R.1333-11 et R.1333-11-1 du code de la

santé publique et de l'article 15 de la décision homologuée n° 2008-DC-0099 du 29 avril 2008 de l'ASN fixant les modalités d'agrément des laboratoires de la mesure de la radioactivité de l'environnement, l'IRSN organise des essais de comparaison interlaboratoire. La participation à ces essais est l'un des critères auxquels doivent satisfaire les laboratoires agréés. C'est dans ce cadre que le groupe RaMsEs a participé au test d'intercomparaison N° 95 EE300 ayant eu lieu au premier semestre 2009. L'objectif est de mesurer des émetteurs γ artificiels dans un échantillon d'eau.

Pour valider ces tests, trois critères sont à respecter, l'écart relatif, le test de compatibilité et le score Z.

6.1.1 Ecart relatif

L'écart relatif e_i (en %) enregistré entre les valeurs assignées par l'organisateur et celles obtenues par le laboratoire est défini par le rapport :

$$e_i = \frac{|x_{ref} - x_i|}{x_{ref}} \quad (6.1)$$

où x_{ref} et x_i sont respectivement les valeurs de référence et du laboratoire.

6.1.2 Test de compatibilité

Le test de compatibilité E (ISO/CEI 43-1) du résultat du laboratoire à la valeur de référence permet de vérifier la compatibilité des résultats et leurs incertitudes associées avec les données de référence. Le test E est calculé par la relation suivante :

$$E_i = \frac{|x_{ref} - x_i|}{\sqrt{U_{ref}^2 + U_i^2}} \quad (6.2)$$

où x_{ref} et x_i sont respectivement les valeurs de référence et du laboratoire i, U_{ref} et U_i sont les incertitudes élargies à $k = 2$ associées.

6.1.3 Le score Z

Ce test est proposé dans la norme ISO/CEI 43-1. Il caractérise la tolérance sur l'écart entre la valeur du laboratoire et celle du laboratoire de référence par rapport à l'écart-type interlaboratoire. Ce critère est utilisé lorsqu'on ne dispose pas de l'incertitude associée à chacun des résultats des participants. Il est calculé par la relation suivante

$$Z_i = \frac{|x_{ref} - x_i|}{\sigma} \quad (6.3)$$

où x_{ref} et x_i sont les valeurs de référence et du laboratoire i, σ est l'écart-type interlaboratoire. Le score Z n'a pas été utilisé dans ce travail par manque d'information sur les autres laboratoires.

6.1.4 Critères d'acceptabilité

Ces trois critères sont associés à des valeurs numériques. Selon ces valeurs, on note trois niveaux d'acceptabilité :

- S : pour Satisfaisant
- D : pour Discutable
- NS : pour Non Satisfaisant.

La table 6.1 résume ces critères et les valeurs numériques qui leurs sont associées.

Niveaux d'acceptabilité	Ecart e (%)	Test de compatibilité E	Score Z
Satisfaisant (S)	$ e \leq 15$	$ E \leq 1$	$ Z \leq 2$
Discutable (D)	$15 < e < 20$	$1 < E < 1,3$	$2 < Z < 3$
Non Discutable (ND)	$ e \geq 20$	$ E \geq 1,3$	$ Z \geq 3$

TABLE 6.1 – Critères de validation des tests d'intercomparaison.

6.1.5 Analyse de l'échantillon de test d'intercomparaison

L'analyse de l'échantillon de test d'intercomparaison [Dziri 2012] a révélé la présence de six radioéléments artificiels comme le montre le spectre de la figure 6.1. Ce spectre est obtenu par la chaîne de mesure BEGe caractérisée dans ce travail. Les informations sur l'échantillon sont rapportées dans la table 6.2.

Pour effectuer l'analyse quantitative de l'échantillon, des raies caractérisant les radioéléments ont été sélectionnées au préalable dans la bibliothèque pour ne tenir compte que des raies les plus intenses.

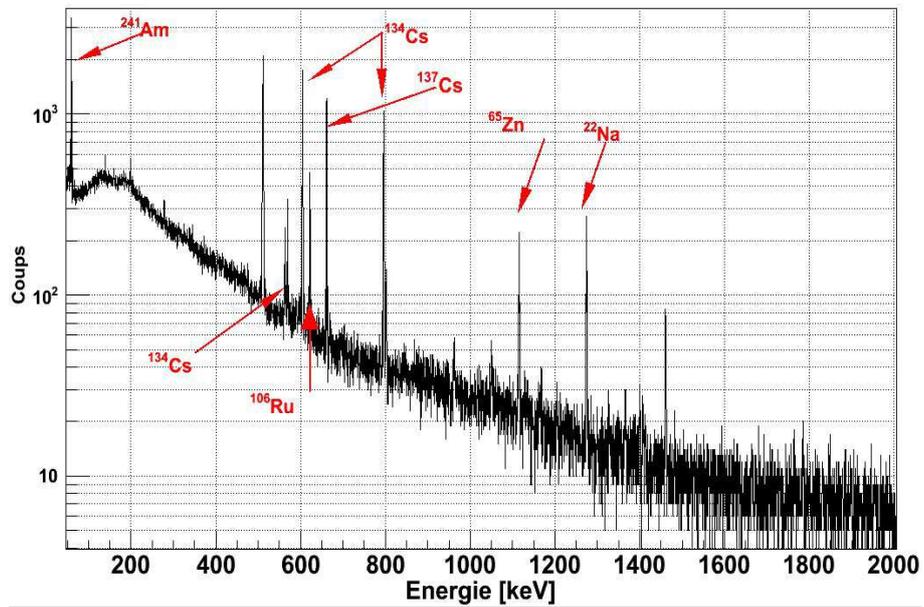


FIGURE 6.1 – Spectre de l'échantillon de test d'intercomparaison N°95 EE300.

Radioélément	E (keV)	I (%)	$T_{1/2}$
^{241}Am	59,54	35,78	432,6 ans
^{134}Cs	569	15,38	2,06 ans
	604	97,62	-
	796	85,53	-
$^{106}\text{Ru}/^{106}\text{Rh}$	622	9,93	372,06 jours
^{137}Cs	661	84,99	30,05 ans
^{65}Zn	1115	50,22	244,01 jours
^{22}Na	1275	99,94	2,603 ans

TABLE 6.2 – Radioéléments artificiels présents dans l'échantillon de test d'intercomparaison N°95 EE 300.

6.1.6 Résultats de l'analyse avant la correction PS

L'échantillon a été conditionné en géométrie SG500 et compté pendant 200000 s. Les activités obtenues pour les différents radioéléments dans l'échantillon sont données dans la deuxième ligne de la table 6.4. Elles sont corrigées au préalable des effets de l'auto-absorption. L'activité du ^{134}Cs est obtenue en utilisant la formule de la moyenne pondérée (chapitre 2) des trois raies caractéristiques.

La comparaison de ces valeurs à celles assignées par l'IRSN montre des écarts considérables pour certains radioéléments. Pour le ^{22}Na l'écart est de 18 %, 13 % pour le ^{106}Rh et 17 % pour le ^{134}Cs . Le schéma de décroissance de ces noyaux est complexe, ce qui accentue les effets de pic-somme (voir chapitre 4). Certains des critères de validation ne sont pas réalisés. En effet, si on s'intéresse au ^{106}Rh , il est le résultat de la désintégration par émission β^- du radionucléide ^{106}Ru dont la période n'excède pas 30 s. Le ^{106}Rh se désintègre à son tour par émission β^- , principalement vers le niveau fondamental et des niveaux excités de 511,86 (~ 20 %), 622 (~ 10%) et 1050 keV (~1,5%) du ^{106}Pd . Le schéma de niveau de ce dernier est très complexe. Pour un temps supérieur à 5 mn, le ^{106}Rh et le ^{106}Ru sont en équilibre radioactif. La correction observée de 17 % trouve son origine dans le nombre important de transitions qui alimentent le troisième niveau du schéma de désexcitation, d'où la transition de 622 keV utilisée pour calculer l'activité. Malgré les faibles intensités de ces transitions, leur nombre fait augmenter la correction de l'effet de PS. En analysant de plus près, on observe que le pic à 622 keV est aussi détecté en coïncidence avec le pic à 511,86 keV.

Radioélément	A_{IRSN} (Bq/L)	A_{RaMsEs}	Ecart relatif e (%)	Test E
^{241}Am	0,571±0,032	0,644±0,073	13	0,92
^{134}Cs	1,231±0,061	1,02±0,06	17	2,41
^{106}Rh	3,27±0,17	2,85±0,36	13	1,05
^{137}Cs	0,893±0,044	0,929±0,082	4	0,39
^{65}Zn	0,693±0,041	0,702±0,095	1,3	0,09
^{22}Na	0,495±0,027	0,404±0,048	18	1,65

TABLE 6.3 – Application des critères de validation pour le test d'intercomparaison pour les valeurs assignées et celles que nous avons obtenues A_{RaMsEs} sans correction des effets de pic-somme.

Le radio-isotope ^{22}Na est un cas qui retient l'attention. Il a un schéma de niveau très simple. Il se désintègre par β^+ à 90,3 % et à 9,64 % par capture électronique (EC) vers le niveau à 1275 keV. Les X émis lors de la capture électronique sont détectés en coïncidence avec la raie γ provoquant des pertes de comptage. Les photons d'annihilation émis à 511 keV sont détectés en coïncidence avec la raie γ .

Le critère discutable D pour certains radioéléments est dû essentiellement aux effets de pic-somme. Afin de réduire ces écarts, les corrections des effet de PS sont appliquées et une nette amélioration des résultats est enregistrée.

6.1.7 Résultats de l'analyse après la correction PS

Le calcul des coefficients de correction des effets de pic-somme sont effectués avec le logiciel ETNA (chapitre 4) complétés au préalable par nos propres valeurs relatives à notre dispositif expérimental obtenues par des simulations MCNPX. Les valeurs ainsi obtenues reflètent la complexité des schémas de décroissance de certains de ces radioéléments. Les coefficients de correction sont donnés dans l'annexe (C).

Radioélément	A_{IRSN} (Bq/L)	F_c	A_{RaMsEs}	Ecart relatif e (%)	Test E
^{241}Am	0,571±0,032	1,00	0,644±0,073	13	0,92
^{134}Cs	1,231±0,061	(1)	1,20±0,07	2,5	0,33
^{106}Rh	3,27±0,17	1,12	3,19±0,40	2,4	0,18
^{137}Cs	0,893±0,044	1,00	0,929±0,082	4	0,39
^{65}Zn	0,693±0,041	1,00	0,702±0,095	1,3	0,09
^{22}Na	0,495±0,027	1,28	0,517±0,061	4,5	0,33

TABLE 6.4 – Application des critères de validation pour le test d'intercomparaison pour les valeurs assignées et celles que nous avons obtenues A_{RaMsEs} et corrigées des effets de pic-somme, [Dziri 2012].

Par ce test d'intercomparaison, on a démontré l'importance de la correction des effets de pic-somme. Tenir compte de ce phénomène pour l'analyse semble être une condition sine qua non pour des résultats plus précis. Les figures 6.2 et 6.3 présentent la validation des deux critères traités dans ce travail, à savoir l'écart relatif et le test de compatibilité. Ils sont représentés par les deux traits horizontaux. Après les corrections (flèches verticales), les écarts relatifs enregistrés sont tous inférieurs à 15 %, autrement dit, ils sont satisfaisants. Ce constat est aussi vrai pour le test de compatibilité où tous les résultats sont inférieurs à l'unité.

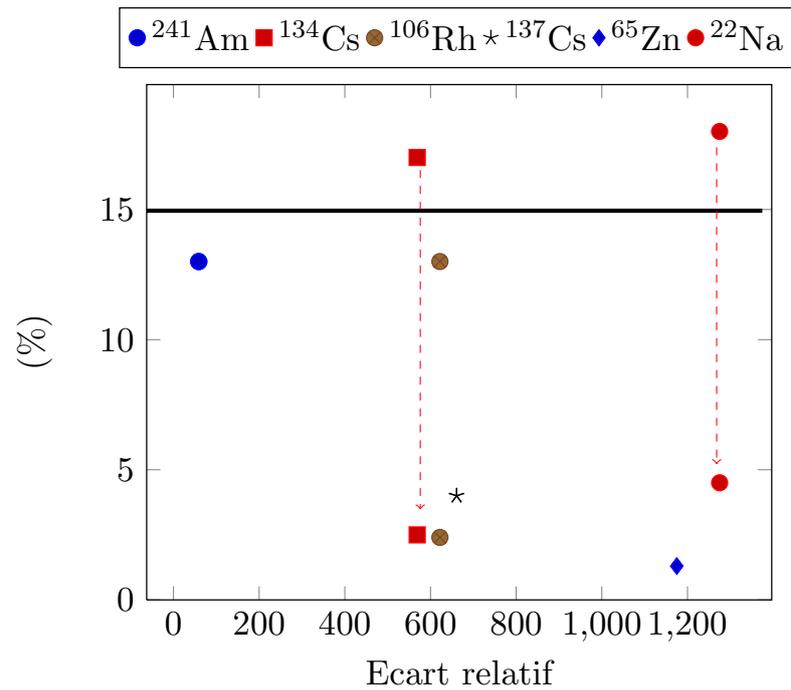


FIGURE 6.2 – Ecart relatif avant et après correction. L'écart relatif est satisfaisant suite aux corrections des effets de pic-somme.

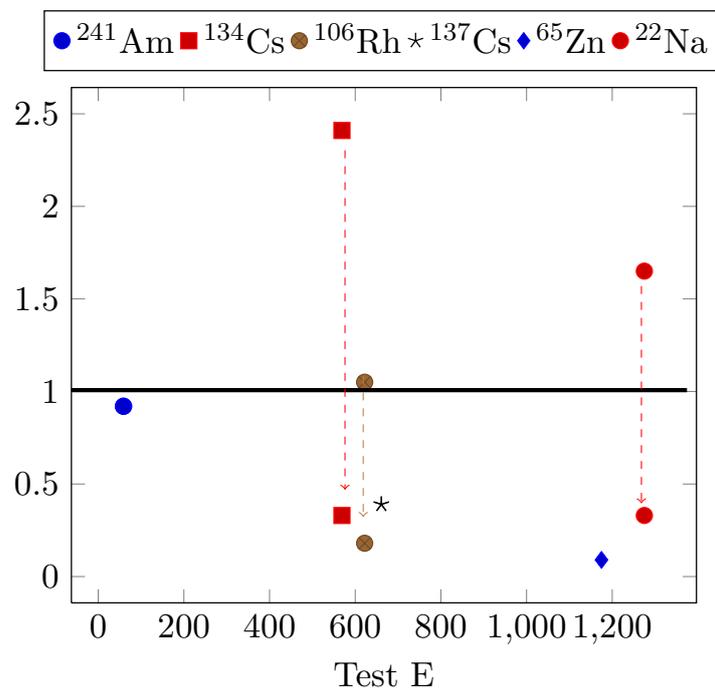


FIGURE 6.3 – Ecart relatif avant et après correction. Le test de compatibilité est satisfaisant suite aux corrections des effets de pic-somme.

6.2 Matériaux de construction

La dosimétrie des rayonnements γ est l'une des applications de la spectrométrie γ . L'analyse des échantillons de matériaux de construction révèle la présence de la radioactivité naturelle due au ^{226}Ra , ^{232}Th et ^{40}K dans ces matériaux. En connaissant la radioactivité de ces trois éléments on peut remonter à la dose absorbée (KERMA). Pour ce faire, des modèles ont été développés à cet effet (chapitre 2). Les corrections des effets de pic-somme et de l'auto-absorption sont effectuées avant l'utilisation des modèles comme on pourra le voir le long de cette partie.

6.2.1 Correction de l'auto-absorption et de l'effet de pic-somme

Certains radio-isotopes trouvés dans ces échantillons nécessitent une importante correction des deux phénomènes (PS et auto-absorption). Dans la table 6.5 est donnée la liste des radio-isotopes analysés à savoir : ^{40}K , ^{208}Tl , ^{210}Pb , ^{212}Bi , ^{212}Pb , ^{214}Bi , ^{214}Pb , ^{226}Ra , ^{228}Ac , ^{228}Th , ^{234}Th , ^{234}Th , ^{235}U [Dziri 2013b]. Une dizaine d'échantillons a été analysée : gypse, parpaing (brique grise), sable, gravier, plâtre (Ba13), béton cellulaire, brique rouge et béton fibré.

Elément	E(keV)	I(%)	F_c	C_{auto}								
				gypse	parpaing	sable	gravier	Ba13	bétonC	brique	bétonF	ciment
^{40}K	1460,822	10,55	1,00	1,00	0,95	0,95	0,94	1,03	1,04	0,97	0,92	0,93
^{208}Tl	583,187	85	1,21	1,00	0,87	0,90	0,90	1,04	1,04	0,91	0,89	0,90
	860,53	12,4	1,07	1,00	0,89	0,91	0,93	1,04	1,03	0,93	0,91	0,92
^{210}Pb	46,539	4,252	1,00	0,49	0,42	0,50	0,35	0,64	0,72	0,47	0,48	0,26
^{212}Bi	727,330	6,65	1,05	1,00	0,88	0,91	0,92	1,04	1,04	0,92	0,91	0,91
	785,37	1,11	1,17	1,00	0,88	0,91	0,92	1,04	1,04	0,92	0,91	0,91
^{212}Pb	238,632	43,6	1,00	0,98	0,87	0,91	0,91	1,05	1,05	0,93	0,89	0,84
	300,089	3,18	1,27	0,98	0,87	0,89	0,91	1,05	1,05	0,93	0,90	0,85
^{214}Bi	609,316	46,42	1,16	0,98	0,88	0,91	0,92	1,04	1,04	0,92	0,90	0,90
	1120,295	15,14	1,19	0,99	0,91	0,94	0,92	1,03	1,03	0,95	0,93	0,93
^{214}Pb	1764,498	15,39	1,00	1,00	0,93	0,94	0,95	1,03	1,03	0,96	0,93	0,93
	295,224	18,414	1,00	0,98	0,87	0,90	0,87	1,05	1,05	0,93	0,90	0,85
^{214}Po	351,932	35,60	1,00	0,98	0,87	0,89	0,88	1,05	1,05	0,93	0,89	0,87
	186,211	3,555	1,00	0,97	0,86	0,91	0,86	1,05	1,06	0,91	0,89	0,83
^{228}Ac	911,196	26,2	1,00	0,99	0,90	0,92	0,91	1,04	1,03	0,93	0,91	0,92
	968,890	15,9	1,00	0,99	0,90	0,92	0,91	1,04	1,03	0,93	0,91	0,92
^{234}Th	63,30	3,75	1,04	0,7	0,56	0,64	0,52	0,84	0,88	0,63	0,62	0,45
^{235}U	185,720	57,0	1,02	0,97	0,86	0,91	0,86	1,05	1,06	0,91	0,89	0,83

TABLE 6.5 – Facteurs de correction des effets de pic-somme et de l’auto-absorption. Les facteurs de PS (F_c) sont calculés avec ETNA et MCNPX (c.f chapitre 3). Les facteurs de l’auto-absorption C_{auto} sont obtenus par la méthode de transmission.

Pour appliquer ces corrections, l'opérateur qui analyse doit tenir compte du nombre de raies choisies pour le calcul de l'activité. En d'autres termes, pour un radio-isotope dont le nombre de raies est supérieur à 1, il faut corriger chacune des raies pour les deux effets avant de calculer la moyenne pondérée de l'activité selon les formules 1.31 et 1.32 mentionnées dans le chapitre 1. Les activités corrigées sont indiquées dans la table 6.6. Les raies utilisées pour le ^{226}Ra et l' ^{235}U sont respectivement 186 et 185,7 keV. La déconvolution précise de ces deux pics est primordiale afin d'obtenir des activités correctes. En ce qui concerne ce travail, on a procédé d'une manière indirecte pour déduire l'activité du ^{226}Ra . A l'équilibre séculaire, l'activité du ^{214}Pb et celle du ^{214}Bi sont égales à celle du ^{226}Ra . La soustraction de la surface de la raie du ^{226}Ra de la surface commune des deux raies permet de calculer l'activité de l' ^{235}U .

6.2.2 Dosimétrie des rayonnements γ

Avant d'aborder le calcul de la dosimétrie des rayonnements γ , la correction de l'auto-absorption et de l'effet du pic-somme sont prises en compte si nécessaire. La table 6.6 récapitule les activités des radioéléments avant et après les corrections.

La détermination de la radioactivité naturelle des matériaux de construction se fait par le ^{226}Ra , le ^{232}Th et le ^{40}K . Cependant, 98,5 % des effets de l'uranium sont produits par le radium et ses descendants; quant aux précurseurs, ils sont ignorés [Beretka 1985]. Depuis la préparation des échantillons jusqu'à leurs mesures, l'équilibre séculaire est atteint pour le ^{226}Ra et ses produits ^{214}Bi et ^{214}Pb . Concernant le ^{232}Th à l'équilibre, on pourra prendre les raies à 911 et 969 keV de l' ^{228}Ac . Une autre façon de faire est de considérer le ^{208}Tl qui est un descendant du ^{212}Bi à 36 %. Le produit de l'activité du ^{208}Tl par 2,8 permet de remonter jusqu'à l'activité de l' ^{228}Ac à l'équilibre (table 6.6). La formule du calcul de l'activité est rappelée ci-dessous en injectant les facteurs de correction de l'effet pic-somme et de l'auto-absorption.

$$A = \frac{N_{net}(E)}{\varepsilon_E \times t \times I_\gamma \times F_c \times C_{auto}} \quad (6.4)$$

N \ S	gypse		parpaing		sable	
	A ₁	A ₂	A ₁	A ₂	A ₁	A ₂
⁴⁰ K	9,35±5,57	9,29±5,63	336,46±30,77	354,24±58,47	613,73±53,19	649,14±79,75
²⁰⁸ Tl	-	-	4,28±0,50	6,10±0,85	4,70±0,50	6,50±0,86
²¹⁰ Pb	5,45±	7,90±3,60	9,58±1,66	23,17±10,22	8,80±2,18	17,34±3,67
²¹² Bi	-	-	16,17±4,20	19,36±5,27	14,18±3,66	16,48±4,47
²¹² Pb	1,00±0,24	0,98±0,24	12,70±1,22	14,72±1,83	15,13±1,70	17,40±2,40
²¹⁴ Bi	3,53±0,67	4,15±0,78	12,77±1,27	17,17±1,80	11,25±1,46	13,90±1,50
²¹⁴ Pb	4,43±0,50	4,37±0,56	14,00±1,21	16,07±1,54	12,18±1,05	13,625±1,30
²²⁶ Ra	3,98±1,06	4,26±1,09	13,39±2,34	15,49±2,41	11,72±4,80	12,82±5,29
²²⁸ Ac	-	-	14,35±1,72	15,90±2,17	17,66±1,86	19,17±2,36
²³⁴ Th	-	-	11,54±2,46	21,41±7,66	10,68±2,27	17,25±4,00
²³⁵ U	0,43±0,11	0,401±0,11	0,85±0,15	0,98±0,15		
N \ S	gravier		Ba13		béton cellulaire	
	A ₁	A ₂	A ₁	A ₂	A ₁	A ₂
⁴⁰ K	89,22±10,23	95,86±13,51	22,00±8,07	21,15±7,90	130,00±15,58	125,40±18,00
²⁰⁸ Tl	1,06±0,24	1,45±0,35	0,95±0,30	1,11±0,35	1,702±0,40	2,17±0,44
²¹⁰ Pb	15,03±3,70	41,28±16,25	8,30±2,38	12,19±4,38	5,24±2,60	5,20±2,60
²¹² Bi	-	-	-	-	-	-
²¹² Pb	3,59±0,44	3,93±0,60	2,26±0,43	2,09±0,42	5,91±0,70	5,22±0,76
²¹⁴ Bi	26,27±2,05	34,40±2,83	7,71±1,60	8,57±1,70	9,53±1,22	10,71±1,41
²¹⁴ Pb	28,56±2,32	32,30±3,26	8,07±0,85	7,55±0,91	10,87±1,04	10,13±1,30
²²⁶ Ra	27,42±3,24	31,31±6,62	7,90±1,95	7,51±2,07	10,20±2,10	9,70±2,10
²²⁸ Ac	4,63±0,93	5,07±1,07	3,16±1,21	3,05±1,20	7,43±1,42	7,20±1,44
²³⁴ Th	22,61±3,14	45,07±8,93	6,73±2,14	8,54±3,11	-	-
²³⁵ U	1,54±0,18	1,68±0,35	0,12±0,15	0,56±0,16	0,87±0,18	0,752±0,16
N \ S	brique		béton fibré		ciment	
	A ₁	A ₂	A ₁	A ₂	A ₁	A ₂
⁴⁰ K	1109,63±96,84	1136,34±139,60	134,41±14,40	147,55±24,00	177,16±17,83	197,61±25,82
²⁰⁸ Tl	20,68±1,82	28,83±3,36	2,30±0,35	3,12±0,55	6,20±0,64	8,61±1,13
²¹⁰ Pb	36,22±9,80	75,62±26,68	10,20±3,72	20,86±8,47	18,30±2,50	66,65±24,16
²¹² Bi	66,20±10,46	86,10±14,10	-	-	21,50±4,43	29,19±5,76
²¹² Pb	62,23±5,43	67,02±7,74	6,64±0,73	7,45±1,02	19,80±1,78	22,30±2,61
²¹⁴ Bi	50,80±4,84	62,02±5,60	14,05±1,34	18,04±1,84	46,45±3,45	60,76±4,72
²¹⁴ Pb	53,20±4,10	57,71±5,84	15,78±1,32	17,65±1,90	50,76±3,73	57,36±5,73
²²⁶ Ra	52,00±6,44	56,47±8,33	14,92±2,26	16,72±2,85	48,60±4,77	55,45±7,26
²²⁸ Ac	68,24±6,06	71,86±8,00	7,93±1,30	8,58±1,50	21,04±2,22	22,74±2,81
²³⁴ Th	44,22±7,34	72,67±16,20	11,90±2,53	19,84±4,81	34,57±4,70	77,22±21,02
²³⁵ U	2,64±0,33	2,82±0,42	0,97±0,15	1,33±0,23	3,16±0,31	3,72±0,50

TABLE 6.6 – Activités spécifiques en Bq.kg⁻¹ corrigées par les coefficients du tableau 6.5. A₁ et A₂ sont les activités avant et après les corrections des deux effets. N pour nucléide et S pour échantillon

6.2.3 Radium équivalent

Plusieurs travaux ont été consacrés ces dernières années pour la mesure de radium-équivalent [Ngachin 2007, Hewamanna 2001, Amrani 2001, Amin 2013]. En utilisant la formule 6.4 du modèle proposé dans le chapitre 2, on trouve les valeurs enregistrées dans le tableau 6.7 avec les notation ci-dessous

$$R_{a_{eq}} = A_{Ra} + 1,43 \times A_{Th} + 0,077 \times A_K \quad (6.5)$$

Echantillon	Bq/kg				
	ρ	A_{Ra}	A_{Th}	A_K	Ra_{eq}
Gypse	1,16	4,26±1,09	-	9,32±5,6	4,98±1,17
Parpaing	1,87	15,49±2,41	15,90±2,17	345,35±44,62	64,82±5,22
Béton fibré	1,74	16,72±2,85	8,58±1,50	140,98±19,2	39,84±3,86
Gravier	1,91	31,31±6,62	5,07±1,07	92,54±11,87	45,70±6,86
plâtre	0,89	7,90±1,95	3,05±1,20	21,58±8,00	13,92±2,67
Ciment	1,67	55,45±7,26	22,74±2,81	187,40±21,83	102,40±8,7
Brique	1,63	56,47±8,33	71,86±8,00	1136±139,60	245,70±16,83
Sable	1,78	12,82±5,30	19,17±2,36	333,46±66,47	65,91±8,10
Béton cellulaire	0,90	9,70±2,10	7,20±1,44	127,70±16,80	29,83±3,21

TABLE 6.7 – Valeurs mesurées du radium-équivalent.

Les valeurs résumées dans la table permettent de comparer la radioactivité spécifique des matériaux de construction contenant du ^{226}Ra , du ^{232}Th et du ^{40}K . Comme on peut le voir dans ce même tableau, leurs activités varient de 4,26 à 56 Bq.kg $^{-1}$, de 3 à 71 et de 9 à 1123 Bq.kg $^{-1}$, respectivement. Le modèle utilisé ici est suggéré par Krisiuk [Krisiuk 1971]. Dans ce modèle, la valeur de la dose tolérée doit être inférieure ou égale à 1 mSv.an $^{-1}$ à l'intérieur des habitations. Autrement dit, malgré les variations considérables du radium-équivalent Ra_{eq} des différents matériaux, il doit rester inférieur à la valeur maximale de 370 Bq.kg $^{-1}$ (cf. chapitre 2).

6.2.4 Indice du risque interne et externe

Dans le souci de maintenir la dose d'exposition externe et interne due aux matériaux de construction à une valeur de 1 mSv.an^{-1} (c.f chapitre 2), les indices de risque externe et interne sont calculés. L'indice de risque interne est lié aux conséquences du ^{222}Rn et ses descendants sur les organes respiratoires. Dans ce travail, on s'est limité aux effets des rayonnements γ car la concentration du radon dépend de la circulation de l'air dans la pièce, de la nature et des porosités des matériaux. En se basant sur les formules 6.5 et 6.6, les indices obtenus (figure 6.4) sont inférieurs à l'unité comme le stipule la norme [Directive 1996].

$$H_{ex} = \frac{A_{Ra}}{370} + \frac{A_{Th}}{259} + \frac{A_K}{4810} \leq 1 \quad (6.6)$$

et

$$H_{in} = \frac{A_{Ra}}{185} + \frac{A_{Th}}{259} + \frac{A_K}{4810} \leq 1 \quad (6.7)$$

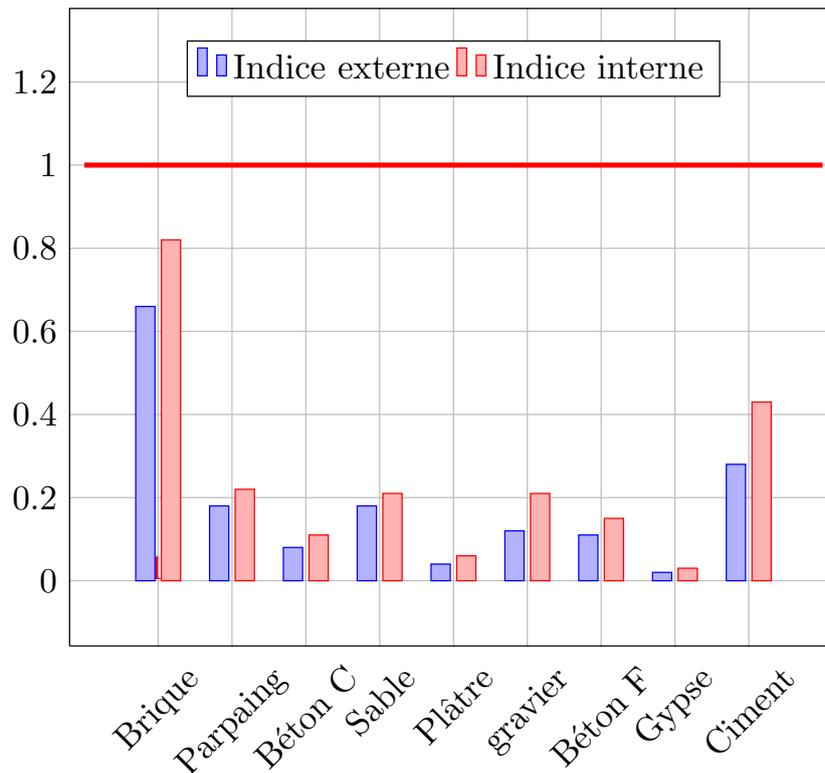


FIGURE 6.4 – Indices de risque externe et interne calculés selon le modèle.

6.2.5 Dose efficace annuelle

La dose efficace annuelle est un indicateur des effets stochastiques des radiations, et est calculée pour un adulte et un bébé selon le modèle dédié (c.f chapitre 2). La table 6.8

Radionucléides	Dose efficace (Sv.Gy ⁻¹)		
	Bébé	Enfant	Adulte
⁴⁰ K	0,926	0,803	0,709
²³² Th	0,907	0,798	0,695
²²⁶ Ra	0,899	0,766	0,672
Moyenne	0,91	0,79	0,69

TABLE 6.8 – Coefficients de conversion du KERMA dans l’air à la dose efficace pour les rayonnements γ .

[Nations 2000, Directive 1996] résume les coefficients de conversion de la dose absorbée dans l’air à une dose efficace.

Les résultats de la dose efficace annuelle montrent des valeurs inférieures au seuil toléré. Les matériaux analysés dans ce travail peuvent être utilisés pour la construction sans risque. Si on se réfère à la valeur de 1 mSv.an⁻¹, la brique rouge présente un léger excès de dose efficace pour l’adulte et pour l’enfant (figure 6.5).

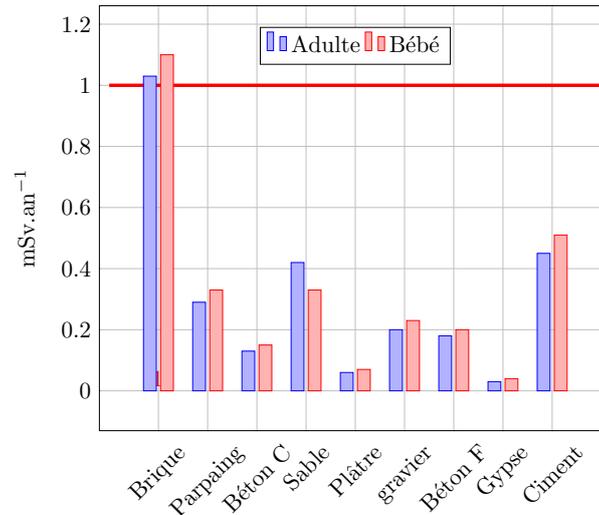


FIGURE 6.5 – Dose efficace annuelle pour un bébé de 8 semaines et un adulte au-delà de 14 ans.

6.3 Comparaison des mesures avec les simulations

Afin de vérifier la fiabilité du modèle étudié, on a eu recours aux simulations avec MCNPX des différentes grandeurs étudiées jusque-là. Pour les murs simulés, ils sont composés par de la brique rouge.

L'activité mesurée (Bq/kg) par la spectrométrie γ pour un flacon SG50 a permis d'estimer l'activité émanant de toute la pièce simulée basée sur le modèle proposé dans le chapitre 1. En connaissant son volume et la masse volumique des matériaux, on peut calculer le nombre de photons émis par toute la pièce à des énergies caractéristiques des noyaux.

Pour reproduire le modèle, les noyaux ^{40}K , ^{226}Ra , ^{232}Th et ^{226}Ra équivalent (descendants) sont simulés pour tous les matériaux cités dans la table 6.8.

6.3.1 Distribution de dose

Le débit de dose en exposition externe varie en $1/d^2$ d'une source ponctuelle au point où est estimée la dose. Avec la simulation du modèle, on a pu visualiser la contribution de chaque mur dans la dose finale. La modélisation est opérée par la carte MCNPX mesh tally qui permet un maillage de la pièce. Selon les différents axes (x, y, z), le long des murs, la dose est relevée dans différents points positionnés à 10 cm l'un de l'autre dans les trois plans.

Pour obtenir cette distribution, on a considéré des pièces construites uniquement avec de la brique. La brique a une masse volumique apparente de $1,63 \text{ g.cm}^{-3}$. L'activité de radium-équivalent obtenue est de $246 \pm 17 \text{ Bq/kg}$. La multiplication de cette valeur par la masse de la pièce donne une activité totale de 8023 kBq. Pour la modélisation par MCNPX, c'est le taux d'émission des photons qui est utilisé par la carte WGT. Les figures 6.6 et 6.7 illustrent respectivement le maillage de la pièce et à droite la distribution de la dose dans la pièce.

En chaque point du maillage, la dose est calculée en utilisant les coefficients de conversion

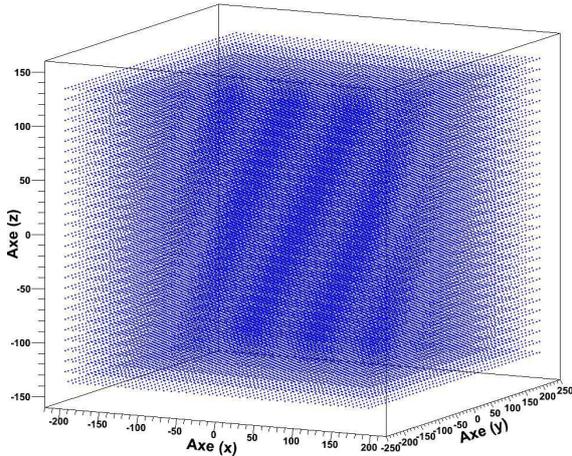


FIGURE 6.6 – Maillage du local simulé de dimensions $4\text{ m} \times 5\text{ m} \times 2,8\text{ m}$ et des murs de 20 cm .

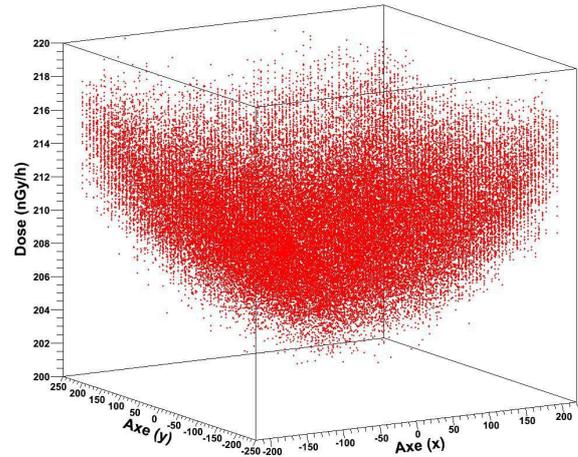


FIGURE 6.7 – Distribution de la dose dans le même local.

de la CIRP 74 [J.C. 2007] avec le tally F5 de MCNPX qui calcule la fluence en un point. L'association de la carte WGT et ce tally permet d'obtenir le débit de fluence nécessaire pour le calcul de la dose absorbée. La projection de la dose sur chacun des murs (axe) montre une distribution de forme similaire (figures 6.8).

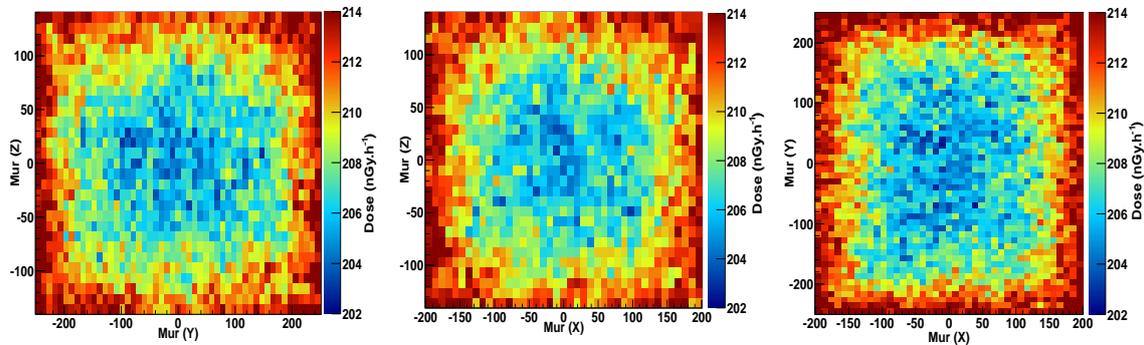


FIGURE 6.8 – Contribution à la dose des différents murs deux par deux. Les doses représentées sur les figures de gauche vers la droite sont relevées sur des plans passant par le milieu de la pièce à des positions respectives $z=0$, $y=0$ et $x=0$.

Sur chacune des figures, un des axes est fixé au centre de la pièce et la variation de la dose est calculée selon les deux axes restants. Les figures représentent les configurations suivantes : (x, y, dose) , (x, z, dose) et (y, z, dose) . Le dépôt de la dose est maximal le long des murs et diminue au centre de la pièce. Pour ce modèle la variation de la dose n'est pas importante compte tenu des erreurs liées à l'activité qui sont de l'ordre de 5 %. L'erreur statistique est inférieure à 1% comme on peut le voir sur la figure 6.9.

Avec MCNPX, on peut modéliser différentes dimensions. C'est dans cette optique qu'on

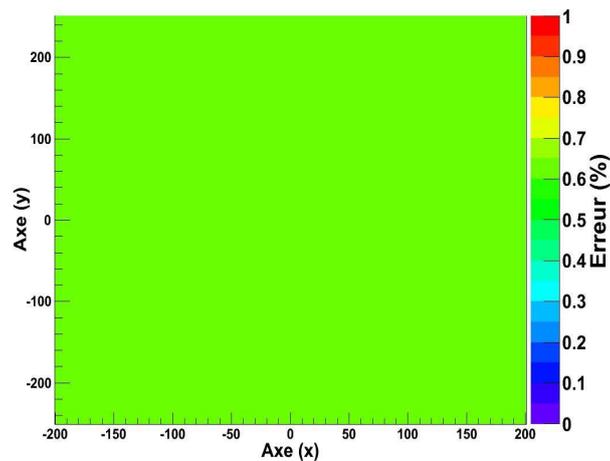


FIGURE 6.9 – Erreur statistique liée à la simulation

a simulé une pièce de dimensions $10 \times 10 \times 10 \text{ m}^3$ avec des murs de 20 cm d'épaisseur, la dose chute au centre de la pièce. La figure 6.10 montre une variation à hauteur de 50 %. On enregistre une dose qui avoisine 100 nGy/h (équivalent au nSv) le long des murs contre une valeur moitié au centre de la pièce. L'erreur statistique pour ce modèle est inférieure à 1% (figure 6.11).

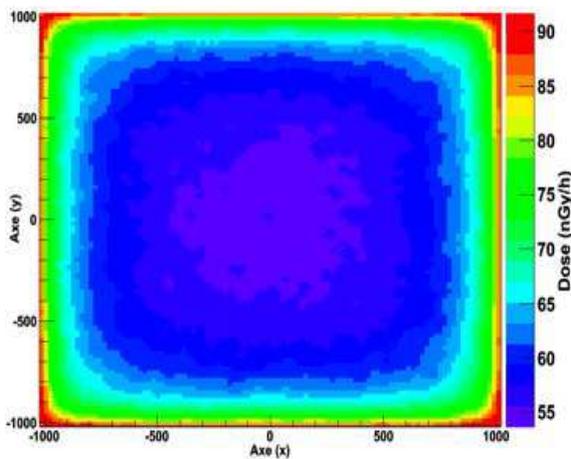
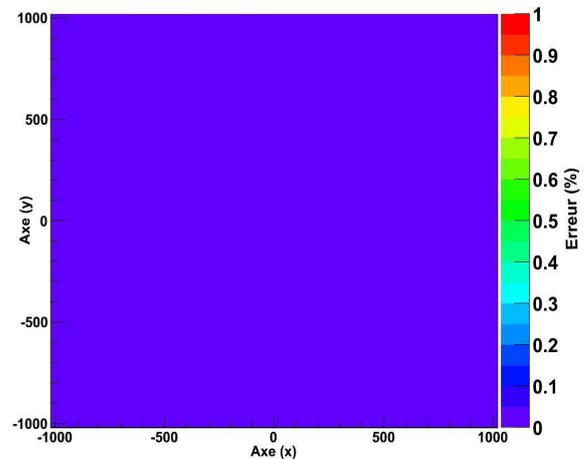
FIGURE 6.10 – Distribution de la dose dans une pièce de $10 \text{ m} \times 10 \text{ m} \times 10 \text{ m}$.

FIGURE 6.11 – Erreur statistique liée à la simulation.

6.3.2 Calcul et simulation de la dose

Cette partie est réalisée pour faire une comparaison entre les résultats obtenus par les mesures selon le modèle proposé dans le chapitre 2 qui représente une pièce de dimensions de $4\text{m} \times 5\text{m} \times 2,8\text{m}$ et de densité liée au matériau considéré (table 6.7). La simulation consiste à modéliser la dose absorbée due aux rayonnements γ des radioéléments suivants : ^{40}K , ^{226}Ra , ^{232}Th . Les figures 6.12, 6.13, 6.14 et 6.15 montrent un bon accord. Le même constat est à

souligner pour la dose obtenue pour le radium-équivalent Ra_{eq} . La dose efficace annuelle est représentée dans la figure 6.5.

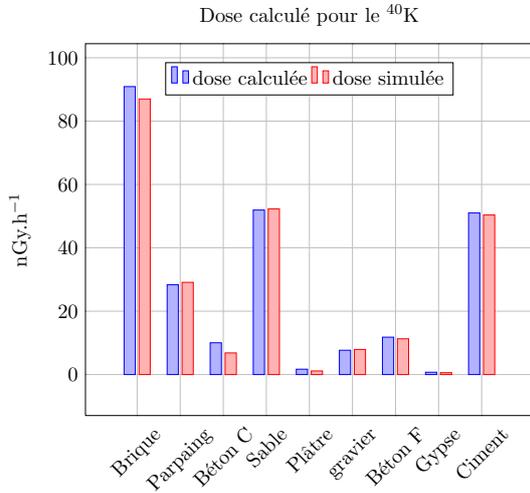


FIGURE 6.12 – Comparaison entre les modèles proposés et la simulation Monte Carlo pour le ^{40}K .

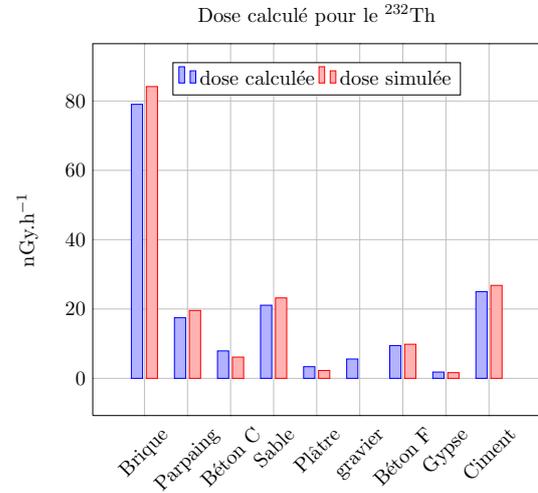


FIGURE 6.13 – Comparaison entre les modèles proposés et la simulation Monte Carlo pour le ^{232}Th .

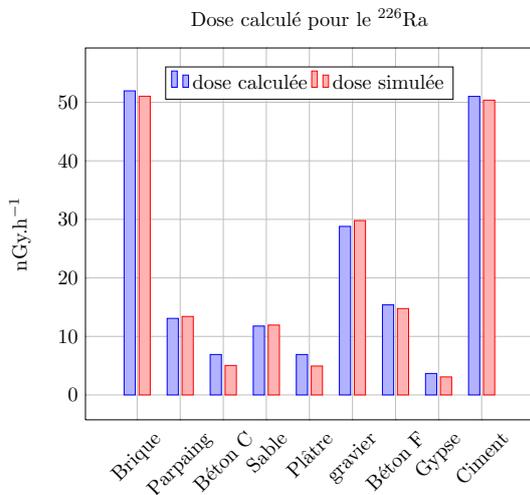


FIGURE 6.14 – Comparaison entre les modèles proposés et la simulation Monte Carlo pour le ^{226}Ra .

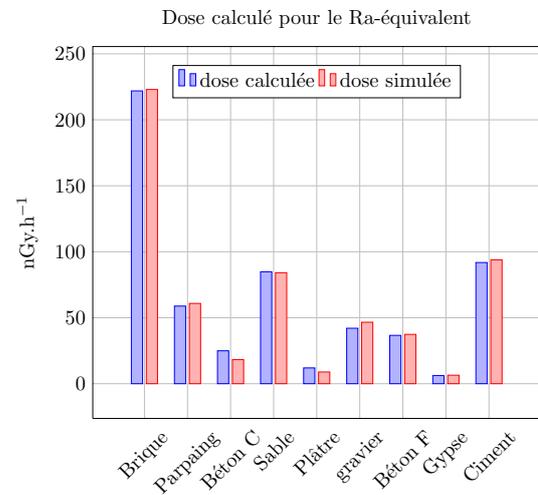


FIGURE 6.15 – Comparaison entre les modèles proposés et la simulation Monte Carlo pour le Ra-équivalent.

6.4 Conclusion

La correction des effets de pic-somme et de l'auto-absorption est d'une nécessité irrévocable pour apporter une précision aux calculs finaux de l'activité. Cette correction a permis de valider le test d'intercomparaison et d'améliorer les résultats des différentes grandeurs calculées le long de ce chapitre, à savoir le radium-équivalent, les indices de risque interne et externe, la dose absorbée (KERMA) et la dose efficace annuelle.

La concentration de la radioactivité naturelle de ^{40}K , ^{226}Ra , ^{232}Th pour les matériaux de construction est mesurée par la spectrométrie γ . Les valeurs obtenues sont comparables à celles des autres pays [Ngachin 2007]. Cette radioactivité varie selon les matériaux et leur origine géologique. L'activité de ^{40}K prédomine dans la brique rouge, le parpaing et le sable. Cependant, l'activité du ^{226}Ra prédomine dans la brique et le ciment. La brique rouge est caractérisée par l'activité la plus élevée pour le ^{232}Th . Le gypse est le matériau qui a l'activité la plus faible suivie de celle du plâtre (Ba13).

Le calcul du radium-équivalent montre une prédominance de la radioactivité naturelle dans la brique. En tenant compte de bruit de fond de 50 nGy/h, on trouve que la dose efficace annuelle est inférieure à 1mSv/an. Au terme de cette étude, les matériaux de construction potentiellement utilisés répondent aux normes européennes à l'exception de la brique rouge qui frôle la limite supérieure de la dose efficace annuelle.

La distribution de la dose dans une pièce avec des dimensions 4m \times 5m \times 2,8m et des murs de 20 cm d'épaisseur est homogène. En revanche, pour une pièce avec des dimensions supérieures, la dose au centre de cette dernière est largement inférieure à la dose enregistrée le long des murs.

Une fois de plus, la modélisation Monte Carlo (MCNPX) est d'un apport considérable dans ce travail car elle a permis de valider le modèle de calcul de la dose d'une part, et d'étudier la distribution de la dose dans des pièces de différentes dimensions.

Conclusion générale

Le travail de cette thèse porte sur le développement des méthodes d'analyse fines par la spectrométrie γ . Les principaux objectifs concernent l'amélioration des analyses et des mesures des échantillons au laboratoire. Deux problématiques ont été étudiées à savoir le phénomène de pic-somme et de l'auto-absorption.

La spectrométrie γ reste un outil performant non destructif pour effectuer des mesures environnementales. Elle permet un dosage en une seule mesure des radionucléides émetteurs γ pour une gamme d'énergies allant de 20 keV à 3 MeV. Des étalonnages qualitatifs (énergie) et quantitatifs (efficacité) sont des étapes importantes pour une mesure précise. Or, les radioéléments utilisés pour ces étalonnages sont affectés généralement par l'effet de pic-somme dû aux transitions en cascade. Les échantillons mesurés ne sont pas toujours semblables à l'étalon du point de vue de la densité, de la géométrie et de la composition chimique. Les deux phénomènes pic-somme et auto-absorption sont donc à l'origine des valeurs biaisées (gain ou perte d'impulsions) en spectrométrie γ . Tenir compte de ces deux phénomènes dans le processus d'analyse est capital comme on l'a montré tout le long de ce travail.

La première partie de la thèse a été consacrée aux études des effets de pic-somme. Nous étions amenés à établir les fonctions de réponses des deux chaînes de spectrométrie γ (BEGe et INTER) utilisées au RaMsEs dans le cadre des accréditations COFRAC et des agréments ASN. Cela permet désormais de calculer l'efficacité de détection pour deux géométries SG50 et SG500. Les premières simulations Monte Carlo (MCNPX) n'ont pas été concluantes du fait que les deux chaînes ne sont pas caractérisées. Après sollicitation du constructeur (CANBERRA) nous avons pu obtenir plus de précisions sur les dimensions et les zones mortes des détecteurs. La connaissance précise de ces paramètres a permis d'obtenir d'excellents résultats avec un écart expérience-simulation inférieur à 5 %.

L'optimisation des simulations Monte Carlo, MCNPX, GEANT4 et GESPECOR ont permis d'atteindre les objectifs définis au début de cette thèse. Pour ce faire, les modélisations ont été effectuées en trois étapes. La première consiste à reproduire d'une manière fidèle le détecteur et la source en termes de dimensions, géométrie, composition chimique et densité des matériaux. Dans la seconde partie on s'est intéressé aux processus de transport des rayonnements γ dans la matière. Dans la dernière partie sont définies les observables souhaitées (dépôt d'énergie, flux surfacique ou volumique, ...). Toute une série de simulations a été réalisée dans différentes configurations géométriques (sources ponctuelles, SG50 et SG500) afin de reproduire au mieux les résultats expérimentaux.

L'utilisation d'une source étalon permet de définir la valeur du rendement d'absorption totale d'une manière expérimentale. La courbe d'efficacité établie avec une source étalon de géométrie identique à celles des matrices analysées doit prendre en compte le rendement géométrique. Un soin particulier a été porté sur l'étude des effets de la distance source-détecteur, volume du détecteur et schéma de décroissance sur le rendement géométrique.

Dans le cas des mesures environnementales, les activités mises en jeu sont très faibles, ce qui contraint à rapprocher l'échantillon du détecteur afin d'augmenter ce rendement géométrique d'où la problématique des pics-sommes. En effet, ce phénomène est dû aux interactions simultanées de plusieurs photons émis en cascade par la source. Il conduit à une variation (perte et/ou gain) de nombre d'impulsions mesurées dans le pic d'absorption totale. Pour s'affranchir des effets des coïncidences lors de l'étalonnage en efficacité, l'idéal est d'utiliser des étalons contenant des mélanges de radioéléments à schémas de niveaux simples, de préférence avec une seule raie. Dans la pratique, les standards multi- γ mis en œuvre contiennent la série de radio-isotopes ^{241}Am , ^{109}Cd , ^{57}Co , ^{139}Ce , ^{51}Cr , ^{113}Sn , ^{85}Sr , ^{137}Cs , ^{60}Co et ^{88}Y . Cependant, certains de ces radionucléides sont affectés par le phénomène de pic-somme tels que le ^{60}Co et l' ^{88}Y .

Pour pallier le manque des sources mono-énergétiques, on a eu recours aux modélisations par MCNPX et GEANT4. Ceci a permis de reproduire d'une manière indépendante la fonction de réponse du détecteur pour chaque raie, afin de remonter à la courbe d'étalonnage en efficacité dépourvue des effets de pic-somme, donnée indispensable pour l'utilisation du code ETNA. Le fonctionnement de ce dernier nécessite également l'introduction de la courbe de rendement total. On a ainsi obtenu les courbes de rendement d'absorption totale et du rendement total pour les géométries SG50 et SG500 au contact du détecteur BEGe positionné verticalement. L'ensemble de cette étude a été validé par le test d'intercomparaison. Au terme de cette étude, on a pu corriger 244 radionucléides des effets de pic-somme qu'on peut désormais inclure dans l'analyse des spectres. On note que les corrections de pic-somme nécessaires pour certaines énergies peuvent atteindre 85 %, c'est le cas du ^{210}Tl et ^{153}Sm . Ce travail a fait l'objet d'une publication dans la revue *Applied Radiation and Isotopes*.

Dans la deuxième partie de la thèse, nos études ont été focalisées sur le phénomène de l'auto-absorption (perte d'impulsions). Il ressort des travaux antérieurs que ce phénomène dépend de trois paramètres : l'énergie du photon incident, la densité apparente et la composition chimique de l'échantillon. L'originalité de ce travail est l'introduction de la notion de nombre atomique effectif (Z_{eff}). Toute une série de mesures expérimentales complétées par des simulations Monte Carlo ont été effectuées sur différentes matrices. A titre d'exemple aux alentours de 50 keV, les pertes d'impulsions pour les échantillons de gypse et d'éthanol de $0,8 \text{ g.cm}^{-3}$ de masses volumiques apparentes sont de 68 et 13 % respectivement. D'autre part, nous avons montré à l'aide des outils de simulation MCNPX et GESPECOR l'influence des paramètres l'énergie, densité ainsi que composition chimique sur l'auto-absorption. La contribution de chacun des paramètres dans la correction de ce phénomène a été quantifiée. Les coefficients de correction obtenus, englobant ces différents paramètres, sont en bon accord avec les résultats expérimentaux obtenus par la méthode de transmission.

Dans les mesures de la radioactivité en laboratoire, la raie à 46 keV du ^{210}Pb est souvent rencontrée dans les échantillons environnementaux et sa mesure est problématique. Dans certains cas, elle est sévèrement affectée par l'auto-absorption, cas des échantillons denses. Lorsque la différence entre l'échantillon et l'étalon réside uniquement dans la densité, la correction augmente avec cette dernière. Si la densité est inférieure à celle de l'étalon, les

coefficients de correction sont inférieurs à l'unité. Ce constat montre la dépendance linéaire entre les coefficients de correction de l'auto-absorption et la densité.

Ces observations sont à prendre avec précaution si la composition chimique de l'étalon et celle de l'échantillon sont différentes. En effet, pour deux échantillons de même densité et compositions chimiques différentes, les pertes de comptage sont plus importantes pour l'échantillon dont le Z_{eff} s'éloigne de celui de l'étalon.

L'étalon que nous avons utilisé est une matrice équivalent-eau avec une densité de 1 et un Z_{eff} de 7,51. La séparation de la contribution de chaque paramètre dans la correction a montré que pour une même densité et des Z_{eff} compris entre 9 et 18 (gamme des échantillons analysés dans le laboratoire) la correction totale est essentiellement due au Z_{eff} . En revanche, pour un Z_{eff} proche de celui de l'étalon, la correction est plutôt propre à la densité. Ces travaux sont soumis pour une publication dans *Nuclear Instrument And Methods B*.

Au terme de ces deux parties de la thèse, on a pu caractériser deux systèmes de spectrométrie gamma (BEGe et INTER). Ces études sont d'une utilité capitale pour le groupe RaMsEs afin de maintenir ses compétences dans le domaine de l'analyse fine de radioactivité dans l'environnement selon les normes ISO/CEI 17025. Les deux corrections seront d'un apport considérable de point de vue métrologique pour améliorer les limites de détection. On a pu améliorer la technique d'analyse par l'incorporation des facteurs de correction de pic-somme et de l'auto-absorption aux traitements des spectres.

Dans la dernière partie de la thèse, nous avons réalisé des applications directes de la spectrométrie γ . Il s'agit de la dosimétrie des rayonnements γ pour les matériaux de construction. Ces derniers sont à l'origine d'expositions aux radiations à cause des descendants des radionucléides des familles naturelles à savoir ^{232}Th , ^{226}Ra (^{238}U) et ^{40}K dont la radioactivité est déterminée par la spectrométrie γ . En se basant sur les modèles existants dans la littérature, on a pu estimer les grandeurs relatives à la dosimétrie en l'occurrence le radium-équivalent, les indices de risque interne et externe, la dose absorbée et la dose efficace annuelle. Les analyses effectuées ont révélé que les taux de radioactivité dans les matériaux de construction (gypse, parpaing (brique grise), sable, gravier, plâtre (Ba13), béton cellulaire, brique rouge et béton fibré) sont en dessous des normes. En dépit du cas de la brique rouge, le reste des échantillons est largement en dessous des valeurs réglementaires.

Les indices de risque interne et externe sont inférieurs à l'unité, ce qui signifie que ces matériaux de construction n'excèdent pas la limite annuelle de 1 mSv. Les valeurs de radium-équivalent radium-équivalent sont comprises entre 5 à 246 Bq.kg^{-1} , la dose absorbée se situe entre 6 à 222 nGy.h^{-1} . Les variations de radium-équivalent et la dose absorbée d'un matériau à un autre montre la variation de la radioactivité du ^{226}Ra , ^{232}Th et ^{40}K . Malgré cette dispersion des valeurs d'un matériau à un autre, le radium-équivalent reste en dessous de la valeur recommandée de 370 Bq.kg^{-1} . Concernant la dose absorbée dans l'air, les valeurs obtenues sont comparables à celles obtenues dans d'autres pays. D'ailleurs plusieurs travaux ont été publiés à ce sujet. L'étude de la distribution de la dose dans l'air a révélé la diminution de celle-ci en allant vers le centre d'une pièce, pour des dimensions importantes. Ce constat n'est pas vérifié pour une pièce de petites dimensions. En effet, la distribution est homogène. Le

code MCNPX a permis le calcul de la dose en chaque point de l'espace, en considérant la radioactivité émanant des murs, du sol et du plafond de la pièce. Par la modélisation, on a pu valider le modèle de calcul de la dose absorbée dans l'air. Ces travaux ont fait l'objet d'un article publié dans *World Journal of Nuclear Science and Technology*.

La modélisation Monte Carlo est un outil très performant qui peut se substituer à la mesure expérimentale lorsque celle-ci est complexe à réaliser. Suite aux différentes mesures et simulations effectuées, on peut conclure que par la simulation on peut maîtriser les processus d'interaction rayonnement-matière relatifs à la spectrométrie γ . En connaissant la composition chimique et la densité de l'échantillon ainsi que les radioéléments qu'il contient, la méthode Monte Carlo s'est avérée très adaptée aux calculs des coefficients de pic-somme, de l'auto-absorption ainsi que des calculs de dosimétries des rayonnements γ .

Rayonnements γ et bruit de fond

En spectrométrie γ , l'apparition de certains pics est toujours associée à d'autres dont l'origine est différente. Certains d'entre eux sont répertoriés dans les tableaux suivants, l'abréviation activ fait référence à activation :

E (keV)	Radionucléide	I(%)	Pics associés (keV)	Origines
46,54	^{210}Pb	4,25	-	^{238}U
53,23	^{214}Pb	1,06	295, 351	^{238}U
53,44	^{73m}Ge	10,34	-	^{72}Ge (n, γ), ^{74}Ge (n, 2n)
63,28	^{234}Th	4,8	92,58	^{238}U
74,82	BiK_{α_2}	27,7	77,11	$^{212,214}\text{Pb}$
74,97	PbK_{α_1}	46,2	72,81	^{208}Tl
77,11	PbK_{α_1}	46,2	74,82	$^{212,214}\text{Pb}$
84,94	PbK_{β_1}	10,7	74,97	^{208}Tl
87,30	PbK_{β_2}	3,91	74,97	^{208}Tl
87,35	BiK_{β_1}	10,7	74,82	$^{212,214}\text{Pb}$
89,78	BiK_{β_2}	3,93	74,82	$^{212,214}\text{Pb}$
89,96	ThK_{α_2}	28,1	93,35	^{235}U , ^{228}Ac
92,58	^{234}Th	5,58	63,28	^{238}U
93,35	ThK_{α_1}	45,4	89,96	^{235}U , ^{228}Ac
105,60	ThK_{β_1}	10,7	93,35	^{235}U , ^{228}Ac

E (keV)	Radionucléides	I(%)	Pics associés (keV)	Origines
109,16	^{235}U	1,54	185,72	Primordial
112,81	^{234}Th	0,28	63,28, 92,58	^{238}U
122,32	^{223}Ra	1,192	269,49	^{235}U
129,06	^{228}Ac	2,42	911,20, 968,97	^{232}Th
163,33	^{235}U	5,08	185,72	Primordial
174,95	^{71m}Ge	faible	198,39	^{70}Ge (n, γ)
185,72	^{235}U	57,2	143,76	Primordial
186,21	^{226}Ra	3,55	-	^{238}U
205,31	^{235}U	5,01	185,72	Primordial
209,26	^{228}Ac	3,89	911,20, 968,97	^{232}Th
238,63	^{212}Pb	43,6	300,09	^{232}Th
242,00	^{214}Pb	7,268	295,22, 351,93	^{238}U
269,49	^{223}Ra	13,7	9122,32	^{235}U

E (keV)	Radionucléide	I(%)	Pics associés (keV)	Origines
270,24	^{228}Ac	3,46	911,20, 968,97	^{232}Th
277,37	^{208}Tl	2,37	583,19, 2614,51	^{232}Th
295,22	^{214}Pb	18,50	351,93	^{238}U
300,09	^{231}Pa	3,18	238,63	^{232}Th
328,00	^{228}Ac	2,95	911,20, 968,97	^{232}Th
336,24	$^{115m}\text{Cd}/^{115m}\text{In}$	45,9	527,90	Activ de Cd
338,32	^{228}Ac	11,27	911,20, 968,97	^{232}Th
351,93	^{214}Pb	35,60	295,22	^{238}U
300,09	^{231}Pa	3,18	238,63	^{232}Th
328,00	^{228}Ac	2,95	911,20, 968,97	^{232}Th
336,24	$^{115m}\text{Cd}/^{115m}\text{In}$	45,9	527,90	Activ de Cd
338,32	^{228}Ac	11,27	911,20, 968,97	^{232}Th
351,93	^{214}Pb	35,60	295,22	^{238}U
409,46	^{228}Ac	1,92	911,20, 968,97	^{232}Th
447,60	^7Be	10,44	911,20, 968,97	Cosmic
462,00	^{214}Pb	0,213	295,22, 351,93	^{238}U
463,00	^{228}Ac	4,40	911,20, 968,97	^{232}Th
510,7	^{208}Tl	6,29	583,19, 2614,51	^{232}Th
511,00	Annihilation	-	-	$\beta+$
527,90	^{115}Cd	27,5	336,2	Activ ^{114}Cd (n, γ)
570,82	^{228}Ac	0,182	911,20, 968,97	^{232}Th

E (keV)	Radionucléide	I(%)	Pics associés (keV)	Origines
583,19	^{208}Tl	30,6	2614,51	^{232}Th
609,31	^{214}Bi	45,49	1120,29, 1764,49	^{238}U
661,66	^{137}C	84,99	-	Fission
726,86	^{228}Ac	0,62	911,20, 968,97	^{232}Th
727,33	^{212}Bi	6,74	1620,74	^{232}Th
755,31	^{228}Ac	1,00	911,20, 968,97	^{232}Th
768,36	^{214}Bi	4,891	609,31, 1764,49	^{238}U
794,95	^{228}Ac	4,25	911,20, 968,97	^{232}Th
806,17	^{214}Bi	1,262	609,31, 1764,49	^{238}U
835,71	^{228}Ac	1,61	911,20, 968,97	^{232}Th
839,04	^{214}Pb	0,587	295,22, 351,93	^{238}U
860,56	^{208}Tl	4,48	583,19, 2614,51	^{232}Th
911,20	^{228}Ac	25,8	968,97	^{232}Th
934,06	^{214}Bi	3,096	609,31, 1764,49	^{238}U
964,77	^{228}Ac	4,99	911,20, 968,97	^{232}Th
968,97	^{228}Ac	15,8	911,20	^{232}Th
1097,3	^{116}In	56,2	1293,54	^{115}In (n, γ)
1120,29	^{214}Bi	14,907	609,31, 1764,49	^{238}U
1155,56	^{214}Bi	1,635	609,31, 1764,49	^{238}U
1173,23	^{60}Co	99,85	1332,49	Activ
1238,11	^{214}Bi	5,827	609,31, 1764,49	^{238}U

E (keV)	Radionucléide	I(%)	Pics associés (keV)	Origines
1377,67	²¹⁴ Bi	3,967	609,31, 1764,49	²³⁸ U
1407,98	²¹⁴ Bi	2,389	609,31, 1764,49	²³⁸ U
1459,14	²²⁸ Ac	0,83	911,20, 968,97	²³² Th
1460,82	⁴⁰ K	10,66	-	Primordiale
1588,20	²²⁸ Ac	3,22	911,20, 968,97	²³² Th
1620,74	²¹² Bi	1,51	727,33	²³² Th
1630,63	²²⁸ Ac	1,51	911,20, 968,97	²³² Th
1729,60	²¹⁴ Bi	2,843	609,31, 1764,49	²³⁸ U
1764,49	²¹⁴ Bi	15,28	609,31, 1764,49	²³⁸ U
1847,42	²¹⁴ Bi	2,023	609,31, 1764,49	²³⁸ U
2204,21	²¹⁴ Bi	4,913	609,31, 1764,49	²³⁸ U
2614,51	²⁰⁸ Tl	35,85	583,19	²³² Th, ²⁰⁸ Pb (n, p)
1293,54	¹¹⁶ In	84,4	1097,3	Activ ¹¹⁵ In (n, γ)
1332,49	⁶⁰ Co	99,98	1173,23	Activ

Bibliographie

- [Agency 2012] Nuclear Energy Agency. *SACALC3, calculates the average solid angle subtended by a volume*. <http://www.iaea.org/tools/abstract/detail/nea-1688/>, 2012. (Cité en page 78.)
- [Agostinelli 2003] S. Agostinelli, J. Allison, K. Amako, J. Apostolakis, H. Araujo, P. Arce, M. Asai, D. Axen, S. Banerjee, G. Barrand *et al.* *GEANT4-a simulation toolkit*. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, vol. 506, no. 3, pages 250–303, 2003. (Cité en pages 71 et 108.)
- [Amin 2013] S.A. Amin et M. Naji. *Natural Radioactivity in Different Commercial Ceramic Samples Used in Yemeni Buildings*. Radiation Physics and Chemistry, 2013. (Cité en page 144.)
- [Amrani 2001] D. Amrani et M. Tahtat. *Natural radioactivity in Algerian building materials*. Applied Radiation and Isotopes, vol. 54, no. 4, pages 687–689, 2001. (Cité en pages 56 et 144.)
- [Arrêté 2003] Arrêté. *1er Septembre 2003 définissant les modalités de calcul des doses efficaces et des doses équivalentes résultants de l'exposition des personnes aux rayonnements ionisants, NOR : SANC0323527A*. <http://www.legifrance.gouv.fr>, 2003. (Cité en page 54.)
- [Arrêté 2005] Arrêté. *25 mai 2005 relatif aux expositions aux rayonnements ionisants dont les activités utilisant les matières premières contenant naturellement des radionucléides, non utilisés en raison de leurs propriétés radioactives. NOR : SANY0521951A*. <http://www.legifrance.gouv.fr>, 2005. (Cité en page 55.)
- [Barrera 1999] M. Barrera, I. Ramos-Lerate, RA Ligerio et M. Casas-Ruiz. *Optimization of sample height in cylindrical geometry for gamma spectrometry measurements*. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, vol. 421, no. 1, pages 163–175, 1999. (Cité en page 42.)
- [Beretka 1985] J. Beretka, PJ Matthew *et al.* *Natural radioactivity of Australian building materials, industrial wastes and by-products*. Health Physics, vol. 48, no. 1, page 87, 1985. (Cité en pages 55, 56 et 142.)
- [Berger 005] M.J. Berger, JH Hubbell, SM Seltzer, J. Chang, JS Coursey, R. Sukumar et DS Zucker. *XCOM : Photon cross sections database*. <http://physics.nist.gov/PhysRefData/Xcom/html/xcom1.html>, web site (2005). (Cité en pages 26, 116 et 131.)
- [Bickel 2000] M. Bickel, L. Holmes, C. Janzon, G. Koulouris, R. Pilviö, B. Slowikowski et C. Hill. *Radiochemistry : inconvenient but indispensable*. Applied Radiation and Isotopes, vol. 53, no. 1, pages 5–11, 2000. (Cité en pages 39 et 171.)
- [BIPM 2008] IEC BIPM, ISO IFCC et I. IUPAC. OIML. *Guide to the Expression of Uncertainty in Measurement*. International Organization for Standardization, Geneva. ISBN, 2008. (Cité en page 62.)
-

- [Blanc 1997] D. Blanc, G. Portal, J. Barthe et M. Buxerolle. Les rayonnements ionisants : détection, spectrométrie, dosimétrie. Masson, 1997. (Cité en pages 23 et 47.)
- [Bolivar 1997] JP Bolivar, M. García-León et R. Garcia-Tenorio. *On self-attenuation corrections in gamma-ray spectrometry*. Applied radiation and isotopes, vol. 48, no. 8, pages 1125–1126, 1997. (Cité en page 113.)
- [Bouisset 1999] P. Bouisset, O. Lefèvre, X. Cagnat, G. Kerlau, A. Ugron et D. Calmet. *Direct gamma-X spectrometry measurement of ^{129}I in environmental samples using experimental self-absorption corrections*. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, vol. 437, no. 1, pages 114 – 127, 1999. (Cité en page 114.)
- [Bourgeois 1998] C. Bourgeois. *Interaction particule-matière. Théorie*. Technique de l'ingénieur. Science fondamentales, no. AF3530, pages AF3530–1, 1998. (Cité en pages 21 et 171.)
- [Canberra 2005] Canberra. *Genie2000, version 3.2.1*. Canberra Industries, Inc, 2005. (Cité en pages 44 et 83.)
- [Cashwell 1973] ED Cashwell, JR Neergaard, CJ Everett, RG Schrandt, WM Taylor et GD Turner. *Monte Carlo photon codes : MCG and MCP*. Rapport technique, Los Alamos Scientific Lab., N. Mex.(USA), 1973. (Cité en page 69.)
- [CASSETTE 2004] Philippe CASSETTE. Mesures de radioactivité par scintillation liquide. Ed. Techniques Ingénieur, 2004. (Cité en page 45.)
- [Chalet 2006] Yves Chalet. La radioactivité : manuel d'initiation. EDP Science, 2006. (Cité en pages 13, 17 et 175.)
- [Christine Jimonet 2009] Henri Métivier Christine Jimonet. Personnes compétente en radioprotection. EDP Science, 2009. (Cité en pages 12, 19, 54 et 175.)
- [Claude Le Sech 2010] Christian Ngô Claude Le Sech. Physique nucléaire : Des quarks aux applications. Dunod, 2010. (Cité en page 9.)
- [Commission 1999] European Commission. *Radiation protection 112- Radiological Protection Principles concerning the Natural Radioactivity of Building Materials*. Directorate-General : Environment, Nuclear Safety and civil Protection, 1999. (Cité en page 56.)
- [Cullen 1997] D.E. Cullen, J.H. Hubbell et L. Kissel. *EPDL97 : The evaluated photon data library, '97 version*. UCRL-50400, vol. 6, pages 1–100, 1997. (Cité en page 70.)
- [Currie 1968] L.A. Currie. *Limits for qualitative detection and quantitative determination. Application to radiochemistry*. Analytical Chemistry, vol. 40, no. 3, pages 586–593, 1968. (Cité en page 44.)
- [Cutshall 1983] N.H. Cutshall, I.L. Larsen et C.R. Olsen. *Direct analysis of ^{210}Pb in sediment samples : self-absorption corrections*. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, vol. 206, no. 1-2, pages 309–312, 1983. (Cité en pages 114 et 115.)
- [Debertain 1988] K. Debertain et R.G. Helmer. Gamma-and x-ray spectrometry with semiconductor detectors. Elsevier science publishing company, 1988. (Cité en pages 43, 85, 87, 114 et 172.)
-

- [DeMarco 2002] J.J. DeMarco, R.E. Wallace et K. Boedeker. *An analysis of MCNP cross-sections and tally methods for low-energy photon emitters*. Physics in medicine and biology, vol. 47, page 1321, 2002. (Cité en page 69.)
- [Directive 1996] C. Directive. 96/29. Euratom of, vol. 13, pages 1–114, 1996. (Cité en pages 46, 55, 145 et 146.)
- [Dryak 1989] P. Dryak, P. Kovář, L. Plchova et J. Šuráň. *Corrections for the Marinelli geometry*. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, vol. 135, no. 4, pages 281–292, 1989. (Cité en page 131.)
- [Dziri 2012] S. Dziri, A. Nourreddine, A. Sellam, A. Pape et E. Baussan. *Simulation approach to coincidence summing in spectrometry*. Applied Radiation and Isotopes, vol. 70, no. 7, pages 1141–1144, 2012. (Cité en pages 84, 85, 92, 114, 135, 138 et 176.)
- [Dziri 2013a] S. Dziri, A. Nachab, A. Nourreddine et A. Sellam. *Composition and density effects on self absorption for photons below 100 keV in γ -ray spectrometry*. Nuclear Instruments Measurements B, vol. submitted, waiting for answer, 2013. (Cité en page 114.)
- [Dziri 2013b] S. Dziri, A. Nachab, A. Nourreddine, A. Sellam et D. Gelus. *Experimental and simulated effective dose for some building materials in France*. World Journal of Nuclear Science and Technology, vol. 3, no. 2, 2013. (Cité en page 140.)
- [Evans 1955] R.D. Evans. The atomic nucleus. McGraw-Hill New-York, 1955. (Cité en page 17.)
- [Freck 1962] DV Freck et J. Wakefield. *Gamma-Ray Spectrum obtained with a Lithium-drifted p-i-n Junction in Germanium*. 1962. (Cité en page 35.)
- [Gerardy 2011] Isabelle Gerardy. Evaluation d'un système de planification pour un traitement de brachythérapie gynécologique en utilisant des techniques monte carlo et des mesures expérimentales. Ph.D. thesis, Universidad Politécnic de Valencia, Spain., 2011. (Cité en page 65.)
- [Gilmore 2008] G. Gilmore. Practical Gamma-ray spectrometry. Wiley & Son, Ltd, 2008. (Cité en pages 11, 29, 37, 38, 109 et 175.)
- [Hawkes 1980] DJ Hawkes et D.F. Jackson. *An accurate parametrisation of the x-ray attenuation coefficient*. Physics in medicine and biology, vol. 25, page 1167, 1980. (Cité en page 117.)
- [Hendricks 2003] J.S. Hendricks. MCNPX Model/Table Comparison. Report LA-14030. Los Alamos, 2003. (Cité en page 61.)
- [Hewamanna 2001] R Hewamanna, C.S Sumithrarachchi, P Mahawatte, H.L.C Nanayakkara et H.C Ratnayake. *Natural radioactivity and gamma dose from Sri Lankan clay bricks used in building construction*. Applied Radiation and Isotopes, vol. 54, no. 2, pages 365 – 369, 2001. (Cité en pages 56 et 144.)
- [Hine 1952] G.J. Hine. *Secondary electron emission and effective atomic numbers*. Nucleonics (US) Ceased publication, vol. 10, 1952. (Cité en page 116.)
- [Hurtado 2009] S. Hurtado, R. Garcia-Tenorio et M. Garcia-Leon. *Coincidence Summing Corrections in Gamma-Ray Spectrometry Using GEANT4 Code*. Nuclear Science, IEEE Transactions on, vol. 56, no. 3, pages 1531 –1536, june 2009. (Cité en page 84.)
-

- [J.C. 2007] Nénot J.C., Brenot J., Laurier D., Rannou A. et Dominique T. *The ICRP 2007 recommendations*. Radiation Protection Dosimetry, vol. 127, no. 1-4, pages 2–7, 2007. (Cité en pages 50 et 148.)
- [Jones 2003] AK Jones, DE Hintenlang et WE Bolch. *Tissue-equivalent materials for construction of tomographic dosimetry phantoms in pediatric radiology*. Medical physics, vol. 30, page 2072, 2003. (Cité en page 117.)
- [K 1992] Appleby. K, Richardson. N et P.J Nolan. *Self-absorption correction for well-type germanium detector*. Nuclear Instruments Methods B, vol. 71, pages 228–233, 1992. (Cité en page 114.)
- [Kerneis 2012] J. Kerneis. *Calcul d'un flux de particules, émises par une source ponctuelle isotrope, à travers une surface plane et application à un radiamètre cylindrique*. Radioprotection, vol. 47, no. 3, pages 375–385, 2012. (Cité en page 78.)
- [Knoll 1999] Glenn F. Knoll. Radiation detection and measurement. Wiley & Son, Ltd, 1999. (Cité en pages 36, 37, 38, 43 et 175.)
- [Korun 2010] M. Korun et P. Maver Modéc. *Measurements of ^{106}Ru activity in thin samples*. Applied Radiation and Isotopes, vol. 68, pages 1392–1396, 2010. (Cité en page 110.)
- [Krisiuk 1971] EM Krisiuk, SI Tarasov, VP Shamov, NI Shalak, EP Lisachenko et LG Gommelsky. *A study on radioactivity in building materials*. Research Institute for Radiation Hygiene, Leningrad, 1971. (Cité en page 144.)
- [laboratory 1994] Los Alamos laboratory. *A Monte Carlo for Particle Transport*. Los Alamos Science, vol. 22, 1994. (Cité en page 70.)
- [Laboratory 2011] Brookhaven National Laboratory. *National Nuclear Data Center*. www.nndc.bnl.gov/chart/help/glossary.jsp#nucleardecay, 2011. (Cité en pages 7 et 175.)
- [Le Petit 2002] G. Le Petit et G. Granier. Spectrométrie gamma appliquée aux échantillons de l'environnement. TEC & DOC, 2002. (Cité en pages 12, 37, 42, 87, 106 et 110.)
- [LNHB 2010] LNHB. *Recommended nuclear data*. http://www.nucleide.org/DDEP_WG/DDEPdata.htm, 2010. (Cité en pages 29, 77, 82, 171, 172 et 175.)
- [Lépy 2004] Marie-Christine Lépy, Laurent Ferreux et Johan Plagnard. *A tunable monochromatic X-ray source for metrological studies in the 1-20 keV energy range : application to the measurement of attenuation coefficient*. Applied Radiation and Isotopes, vol. 60, no. 2, pages 159 – 165, 2004. (Cité en page 115.)
- [Lépy 2008] M.C Lépy, J Plagnard, J Moune, E Verdeau et F Damoy. *La spectrométrie de photons au LNHB : Principes et applications*. Note technique, no. 5, 2008. (Cité en page 45.)
- [Lépy 2010] M.C. Lépy. *Discussion sur les incertitudes générées par ETNA*. Private communication, 2010. (Cité en page 92.)
- [Lépy 2012] Marie-Christine Lépy, Laurent Ferreux et Sylvie Pierre. *Coincidence summing corrections applied to volume sources*. Applied Radiation and Isotopes, 2012. (Cité en page 92.)
-

- [Magurno 1982] BA Magurno, RR Kinsey et FM Scheffel. *Guidebook for the ENDF/BV nuclear data files*. Rapport technique, National Nuclear Data Center, Upton, NY (USA), 1982. (Cité en page 69.)
- [Manohara 2008] SR Manohara, SM Hanagodimath et L. Gerward. *Studies on effective atomic number, electron density and kerma for some fatty acids and carbohydrates*. Physics in Medicine and Biology, vol. 53, pages N377–N386, 2008. (Cité en page 119.)
- [Marie-Christine 2007] Lépy Marie-Christine. *Total efficiency calibration for coincidence-summing corrections*. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, vol. 579, no. 1, pages 284 – 287, 2007. (Cité en page 85.)
- [M.C. Lépy 2012] F. Piton M.C. Lépy M.M. Bé. *Efficiency Transfer for Nuclide Activity measurements*. http://www.nucleide.org/Gamma_spectro/NT_01_09F_Doc_etna_fr.pdf, 2012. (Cité en page 81.)
- [McCallum 1975] G.J. McCallum et G.E. Coote. *Influence of source-detector distance on relative intensity and angular correlation measurements with Ge(Li) spectrometers*. Nuclear Instruments and Methods, vol. 130, no. 1, pages 189–197, 1975. (Cité en pages 87 et 110.)
- [Media 2007] CID Media. *Manual GESPECOR, version 4.2*. 2007. (Cité en page 93.)
- [Metropolis 1949] N. Metropolis et S. Ulam. *The monte carlo method*. Journal of the American Statistical Association, vol. 44, no. 247, pages 335–341, 1949. (Cité en page 60.)
- [Metropolis 1987] N. Metropolis. *The beginning of the Monte Carlo method*. Los Alamos Science, vol. 15, no. 584, pages 125–130, 1987. (Cité en page 60.)
- [Meynard 2009] Kahina Meynard. *Polymérisation radio-induite : Calcul de dose et modélisation dans le cas d’irradiations prolongées de sources non scellées*. Ph.D. thesis, Université de Toulouse III- Paul Sabatier, Toulouse, France., 2009. (Cité en pages 62 et 117.)
- [Moens 1981] L. Moens, J. De Donder, L. Xi-Lei, F. De Corte, A. De Wispelaere, A. Simonits et J. Hoste. *Calculation of the absolute peak efficiency of gamma-ray detectors for different counting geometries*. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, vol. 187, no. 2-3, pages 451–472, 1981. (Cité en page 84.)
- [Morel 2007] Christian Morel. *La simulation Monte Carlo en médecine nucléaire*. Médecine Nucléaire, vol. 31, no. 4, pages 160 – 164, 2007. (Cité en page 60.)
- [Murty 1965] RC Murty. *Effective atomic numbers of heterogeneous materials*. Nature, pages 398–399, 1965. (Cité en pages 116 et 117.)
- [Métivier 2006] Henri Métivier. *Radioprotection et ingénierie nucléaire*. EDP Science, 2006. (Cité en pages 22 et 47.)
- [Nachab 2003] Abdellatif Nachab. *Etude expérimentales et modélisations monte carlo de l’auto-absorption gamma et de la dosimétrie active par capteur cmos*. Ph.D. thesis, Université Louis Pasteur, Strasbourg, France., 2003. (Cité en pages 61, 114 et 171.)
- [Nations 2000] United Nations. *Sources and effects of ionizing radiation : Sources*. scientific committee on the effects of atomic radiation. United Nations Publications, 2000. (Cité en page 146.)
-

- [Ngachin 2007] M. Ngachin, M. Garavaglia, C. Giovani, M.G. Kwato Njock et A. Nourredine. *Assessment of natural radioactivity and associated radiation hazards in some Cameroonian building materials*. Radiation Measurements, vol. 42, no. 1, pages 61 – 67, 2007. (Cité en pages 144 et 151.)
- [Ngachin 2008] M. Ngachin, M. Garavaglia, C. Giovani, MG Kwato Njock et A. Nourredine. *Radioactivity level and soil radon measurement of a volcanic area in Cameroon*. Journal of environmental radioactivity, vol. 99, no. 7, pages 1056–1060, 2008. (Cité en page 57.)
- [Otoo 2011] F. Otoo, OK Adukpo, EO Darko, G. Emi-Reynolds, A.R. Awudu, H. Ahiamadjie, J.B. Tandoh, F. Hasford, S. Adu et O. Gyampo. *Assessment of Natural Radioactive Materials in Building Materials Used along the Coast of Central Region of Ghana*. Research Journal of Environmental and Earth Sciences, vol. 3, 2011. (Cité en page 56.)
- [Pantelis 2004] E. Pantelis, AK Karlis, M. Kozicki, P. Papagiannis, L. Sakelliou et JM Rosiak. *Polymer gel water equivalence and relative energy response with emphasis on low photon energy dosimetry in brachytherapy*. Physics in medicine and biology, vol. 49, page 3495, 2004. (Cité en page 117.)
- [Pelowitz 2008] D.B. Pelowitz *et al.* MCNPX *user's manual, version 2.6.0*. Los Alamos National Laboratory, LA-CP, pages 07–1473, 2008. (Cité en pages 63, 65, 66, 69, 71 et 175.)
- [Pirard 2006] Benoît Pirard. Etude et validation d'un spectromètre gamma pour la mesure de la composition chimique des surfaces planétaires. Ph.D. thesis, Université Toulouse III, Toulouse, France, 2006. (Cité en page 32.)
- [Quintana 1995] Begoïa Quintana et Francisco Fernandez. *An empirical method to determine coincidence-summing corrections in gamma spectrometry*. Applied Radiation and Isotopes, vol. 46, no. 9, pages 961 – 964, 1995. (Cité en page 84.)
- [Ramos-Lerate 1997] I Ramos-Lerate, M Barrera, R.A Ligerio et M Casas-Ruiz. *A new summing-correction method for gamma-efficiency calibration with multi-gamma-ray radionuclides*. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, vol. 395, no. 2, pages 202 – 206, 1997. (Cité en page 84.)
- [Sima 2001] O. Sima, D. Arnold et C. Dovlete. *GESPECOR : A versatile tool in gamma-ray spectrometry*. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, vol. 248, no. 2, pages 359–364, 2001. (Cité en pages 84, 93, 94 et 123.)
- [Storm 1970] E. Storm et H.I. Israel. *PHOTON CROSS SECTIONS FROM 1 keV TO 100 MeV FOR ELEMENTS Z = 1 To Z= 100*. Rapport technique, Los Alamos Scientific Lab., N. Mex., 1970. (Cité en page 69.)
- [GEANT4 Collaboration] GEANT4 Collaboration. <http://www.lcsim.org/software/geant4/doxygen/html/classes.html>. (Cité en page 71.)
- [GEANT4 Collaboration 2008] GEANT4 Collaboration. User's guide for application developers, version 4.9.3. 2008. (Cité en page 72.)
- [Vesic 1989] D. Vesic *et al.* *Some practical aspects of gamma-ray spectroscopy of voluminous cylindrical sources with germanium detectors*. Nuclear Instruments and Methods in
-

Physics Research Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, vol. 276, no. 1-2, pages 216–222, 1989. (Cité en page 42.)

[Vivier 2012] Alain Vivier et Gérald Lopez. Calculs de doses générées par les rayonnements ionisants. EDP Science, 2012. (Cité en page 48.)

Table des figures

1.1	Charte des nucléides.	6
1.2	Schéma de désintégration du ^{60}Co	9
1.3	Schéma de transitions donnant lieu aux raies d'émission X dans les couches électroniques internes.	10
1.4	Chaînes radioactives naturelles de ^{238}U , ^{235}U et ^{232}Th	15
1.5	Chaîne de décroissance de descendants du ^{222}Rn	18
1.6	Classification des radiations électromagnétiques selon leur énergie, fréquence et longueur d'onde.	19
1.7	Types d'interaction prépondérants suivant l'énergie du photon et le numéro atomique Z du milieu [Bourgeois 1998].	21
1.8	Effect photoélectrique.	22
1.9	Diffusion Compton.	23
1.10	Section efficace différentielle de l'effet Compton en fonction de l'énergie du photon incident et de l'angle solide.	24
1.11	Création de paire.	25
1.12	Coefficients massiques d'atténuation total et partiels pour le plomb.	27
1.13	Coefficients massiques d'atténuation total et partiels pour le germanium.	27
1.14	Coefficients massiques d'atténuation total et partiels pour l'eau.	27
2.1	Spectre gamma haute résolution obtenu par simulation Monte Carlo.	33
2.2	Schéma simplifié d'une chaîne de spectrométrie γ	34
2.3	Bande de valence, bande de conduction et gap dans un isolant, un semi-conducteur et un conducteur.	35
2.4	Jonction P-N polarisée en inverse pour augmenter l'efficacité de détection.	36
2.5	Schéma de différentes configurations de détecteurs GeHP utilisés en spectrométrie γ . Détecteur planaire (gauche), coaxial (milieu) et détecteur puits (droite).	38
2.6	Schéma comparatif des sensibilités de mesure des différentes techniques pour l'uranium [Bickel 2000].	39
2.7	Différentes géométries de conditionnement utilisées en spectrométrie γ	42
2.8	Schéma représentant le seuil de décision SD et la limite de détection LD.	44
2.9	Relation entre les doses absorbées, équivalentes et efficaces.	49
2.10	Relation entre les différentes grandeurs utilisées en radioprotection et dosimétrie.	53
3.1	Schéma descriptif de la méthode Monte Carlo.	61
3.2	Organigramme de l'histoire d'une particule par la méthode Monte Carlo [Nachab 2003].	61
3.3	Simulation Monte Carlo des interactions photons-matière.	64
3.4	Carte des surfaces utilisées par MCNP.	68
4.1	Schéma de désintégration du ^{60}Co [LNHB 2010].	77

4.2	Différentes configurations de détection de deux γ émis simultanément par le ^{60}Co . (a) : pas de coïncidence, (b) : coïncidence entre $\gamma_1+\gamma_2$, avec les énergies totalement absorbées. (c) : $\gamma_1+\gamma_{2\text{Compton}}$ ou inversement.	77
4.3	Géométrie décrivant la généralisation de l'angle solide.	78
4.4	Configuration des différents cas d'angle solide.	79
4.5	Spectre simulé par GEANT4 d'une source ponctuelle de ^{60}Co à différentes distances du détecteur.	80
4.6	Intensité du pic-somme à 2505 keV du ^{60}Co en fonction de la variation de volume du détecteur.	81
4.7	Schéma de désintégration du ^{134}Cs [LNHB 2010].	82
4.8	Schéma de désintégration du ^{133}Ba [LNHB 2010].	82
4.9	Spectre expérimental de l'étalon. Les flèches indiquent les différents pics-sommes observés.	84
4.10	Résultat de l'étalonnage en efficacité avec des sources monoénergétiques et des sources multigamma [Debertin 1988].	85
4.11	Schéma de désexcitation à deux niveaux excités.	86
4.12	De gauche à droite : schéma du détecteur dans son capot ; visualisation en 3D du dispositif expérimentale simulé par MCNPX ; visualisation par Vised de dispositif expérimental.	89
4.13	Spectre de l'étalon SG500 simulé et décalé de 3 canaux vers la gauche du spectre expérimental brut pour une meilleure visualisation.	90
4.14	Comparaison des efficacités expérimentales et simulées pour une géométrie SG500 en contact.	90
4.15	Spectre de l'étalon non corrigé pour les effets de sommation (rouge) à comparer avec le spectre simulé (bleu). Les autres spectres représentent les raies de l'étalon simulé par MCNPX séparément pour se substituer aux sources mono-énergétiques.	93
4.16	Comparaison des efficacités corrigées par les coefficients de correction de PS déterminés par les trois méthodes sus-citées. Le zoom sur la fin du spectre montre un bon accord entre les trois méthodes.	95
4.17	Validation des simulations par une source SG500 de ^{40}K . A l'énergie 1460 keV l'efficacité est interpolée sur la partie quasi-linéaire des courbes d'efficacité.	96
4.18	Efficacités simulées et expérimentales d'un SG500 à 4,5 cm et leurs écarts dus au effets de PS.	98
4.19	Efficacités simulées et expérimentales d'un SG500 à 6,5 cm et leurs écarts dus au effets de PS.	98
4.20	A gauche : schéma du dispositif expérimental pour une géométrie SG50 au contact du détecteur, centrée par le support en PVC. A droite : comparaison entre la courbe d'efficacité expérimentale et simulée par MCNPX avec les écarts entre les deux efficacités dus au effets de PS.	100
4.21	Comparaison entre les efficacités expérimentales et simulées pour un SG50 positionné à 4,5 cm et leurs écarts dus au effets de PS.	100
4.22	Comparaison entre les efficacités expérimentales et simulées pour un SG50 positionnée à 6,5 cm et leurs écarts dus au effets de PS.	101

4.23	Schéma et dimensions du détecteur INTER.	104
4.24	Visualisation 3D du dispositif mis en place pour une source ponctuelle simulé par MCNPX.	105
4.25	Visualisation 3D du dispositif mis en place pour une source ponctuelle simulé par GEANT4.	105
4.26	Courbes d'efficacités obtenues pour le détecteur INTER par mesure et par simulations MCNPX et GEANT4. La courbe en pointillé représente la tendance. 105	
4.27	A gauche : dispositif simulé par GEANT4. Au milieu : visualisation du dispositif expérimental simulé par MCNPX. A droite : positionnement de la source visualisé par Vised.	106
4.28	Source de ^{133}Ba ponctuelle mesurée et simulée, positionnée à 10 cm du détecteur. Les pics simulés sont décalés vers la gauche.	107
4.29	Etalon SG500 multigamma mesuré et simulé, positionné au contact du détecteur. A basse énergie le fond Compton simulé est sous-estimé.	107
4.30	Représentation de certains radio-isotopes corrigés des effets de pic-somme sur la charte des nucléides. Ils sont représentés en blanc.	109
5.1	Schéma descriptif de la méthode de transmission.	115
5.2	Facteurs de correction d'auto-absorption $C_{auto} = F(E, \rho)$ simulés par MCNPX pour une matrice eau avec des densités arbitraires	118
5.3	Facteurs de correction d'auto-absorption $C_{auto} = F(E, \rho)$ simulés par MCNPX pour les énergies inférieures à 100 keV pour la matrice eau.	118
5.4	Variation de l'efficacité ε en fonction de l'énergie et du nombre atomique Z	119
5.5	Variation des coefficients de correction de l'auto-absorption en fonction de l'énergie et du nombre atomique Z	119
5.6	Variation de l'efficacité pour différentes énergies en fonction de Z_{eff} et pour $\rho = 1,0$	120
5.7	Variation de C_{auto} en fonction de Z_{eff} pour des énergies inférieures à 100 keV et $\rho = 1,0$	120
5.8	Corrections dues à la densité ρ et la composition élémentaire Z_{eff} de l'échantillon à 46 keV.	121
5.9	Représentation en 3D de la correction de l'auto-absorption en fonction de Z_{eff} et ρ	122
5.10	Représentation en 2D de la correction de l'auto-absorption. Projection horizontale de C_{auto} sur les axes Z_{eff} et ρ	122
5.11	Comparaison des efficacités et influence du Z_{eff} sur les deux échantillons (l'éthanol et le gypse). Les efficacités sont comparées à celle pour l'étalon.	125
5.12	Simulation de l'influence de Z_{eff} sur l'efficacité à 46 keV.	127
5.13	Simulation de l'influence de Z_{eff} sur l'efficacité à 59 keV.	127
5.14	Simulation de l'influence de Z_{eff} sur l'efficacité à 88 keV.	127
5.15	Simulation de l'influence de Z_{eff} sur l'efficacité à 122 keV.	127
5.16	Comparaison des résultats expérimentaux et simulation Monte Carlo pour le sédiment.	128
5.17	Comparaison des résultats expérimentaux et simulation Monte Carlo pour le sol. 129	

5.18	Comparaison des résultats expérimentaux et simulation Monte Carlo pour le gypse.	129
6.1	Spectre de l'échantillon de test d'intercomparaison N°95 EE300.	136
6.2	Ecart relatif avant et après correction. L'écart relatif est satisfaisant suite aux corrections des effets de pic-somme.	139
6.3	Ecart relatif avant et après correction. Le test de compatibilité est satisfaisant suite aux corrections des effets de pic-somme.	139
6.4	Indices de risque externe et interne calculés selon le modèle.	145
6.5	Dose efficace annuelle pour un bébé de 8 semaines et un adulte au-delà de 14 ans.	147
6.6	Maillage du local simulé de dimensions 4 m × 5 m × 2,8 m et des murs de 20 cm.	148
6.7	Distribution de la dose dans le même local.	148
6.8	Contribution à la dose des différents murs deux par deux. Les doses représentées sur les figures de gauche vers la droite sont relevées sur des plans passant par le milieu de la pièce à des positions respectives z=0, y=0 et x=0.	148
6.9	Erreur statistique liée à la simulation	149
6.10	Distribution de la dose dans une pièce de 10 m × 10 m × 10 m.	149
6.11	Erreur statistique liée à la simulation.	149
6.12	Comparaison entre les modèles proposés et la simulation Monte Carlo pour le ^{40}K	150
6.13	Comparaison entre les modèles proposés et la simulation Monte Carlo pour le ^{232}Th	150
6.14	Comparaison entre les modèles proposés et la simulation Monte Carlo pour le ^{226}Ra	150
6.15	Comparaison entre les modèles proposés et la simulation Monte Carlo pour le Ra-équivalent.	150

Liste des tableaux

1.1	Statistiques relatives aux isotopes stables et radioactifs [Laboratory 2011]. . .	7
1.2	Rayons X (keV) et leurs éventuelles origines, fréquemment rencontrés lors des analyses en spectrométrie γ [Gilmore 2008].	11
1.3	Les radionucléides primordiaux, classés par périodes croissantes [Chalet 2006]	13
1.4	Types d'interactions rayonnement-matière et leurs conséquences.	20
1.5	Les rayonnements γ émis par le ^{40}K et les différents radionucléides des différentes chaînes de décroissance [Gilmore 2008, LNHB 2010].	29
2.1	Caractéristiques des semi-conducteurs à 300 K sauf pour le cas du Ge à 77 K [Knoll 1999, Gilmore 2008].	38
2.2	Valeurs des facteurs de pondération radiologiques selon les recommandations de la CIPR 103.	50
2.3	Valeurs des facteurs de pondération tissulaires selon les recommandations de la CIPR 103.	51
2.4	Valeurs des limites annuelles des doses équivalentes et des doses efficaces [Christine Jimonet 2009].	54
2.5	Modèle utilisé pour le calcul de la dose absorbée.	57
3.1	Fiabilité d'un calcul Monte Carlo en fonction de l'erreur relative [Pelowitz 2008].	66
3.2	Différents tallies utilisés par MCNPX.	69
4.1	Etalon certifié SG500 avec une matrice équivalente-eau.	83
4.2	Ecart relatif entre l'efficacité simulée par MCNPX et l'efficacité expérimentale.	91
4.3	Comparaison des efficacités expérimentales et simulées par MCNPX et les facteurs de correction de PS pour l'étalon SG500 au contact.	91
4.4	Facteurs de correction F_c obtenus par les trois méthodes pour l'étalon SG500 au contact d'un détecteur planaire de 118 cm^3	95
4.5	Coefficients du polynôme d'ordre 4 obtenus à partir de la fonction apolog. . .	97
4.6	Correction des effets de pic-somme sur le détecteur BEGe.	99
4.7	Correction des effets de pic-somme sur le détecteur BEGe.	101
4.8	Valeurs des corrections de PS obtenues par ETNA pour ^{152}Eu , ^{214}Pb et ^{134}Cs dans les deux géométries SG50 et SG500 au contact.	103
4.9	Comparaison des efficacités et estimation du coefficient de correction de pic-somme par MCNPX et GEANT4. Les erreurs sont calculées pour 1σ	106
5.1	Etalon certifié SG50 avec une matrice équivalent-eau de densité $\rho = 1$	118
5.2	Composition chimique et son Z_{eff} du sédiment avec les différentes proportions w_i	123
5.3	Composition chimique du phosphogypse et son Z_{eff} avec les différentes proportions w_i	123

5.4	Compositions chimiques en (%) et leurs Z_{eff} des sols données dans le rapport 53 de l'ICRU	124
5.5	Comparaison des efficacités pour l'éthanol et le gypse de 0,79 de densité et Z_{eff} différents.	125
5.6	Facteurs de correction des effets d'auto-absorption pour 5 sols de densité équivalent-eau ($\rho=1$) obtenus par GESPECOR.	126
6.1	Critères de validation des tests d'intercomparaison.	135
6.2	Radioéléments artificiels présents dans l'échantillon de test d'intercomparaison N°95 EE 300.	136
6.3	Application des critères de validation pour le test d'intercomparaison pour les valeurs assignées et celles que nous avons obtenues A_{RaMsEs} sans correction des effets de pic-somme.	137
6.4	Application des critères de validation pour le test d'intercomparaison pour les valeurs assignées et celles que nous avons obtenues A_{RaMsEs} et corrigées des effets de pic-somme, [Dziri 2012].	138
6.5	Facteurs de correction des effets de pic-somme et de l'auto-absorption. Les facteurs de PS (F_c) sont calculés avec ETNA et MCNPX (c.f chapitre 3). Les facteurs de l'auto-absorption C_{auto} sont obtenus par la méthode de transmission.	141
6.6	Activités spécifiques en $Bq.kg^{-1}$ corrigées par les coefficients du tableau 6.5. A_1 et A_2 sont les activités avant et après les corrections des deux effets. N pour nucléide et S pour échantillon	143
6.7	Valeurs mesurées du radium-équivalent.	144
6.8	Coefficients de conversion du KERMA dans l'air à la dose efficace pour les rayonnements γ	146
