



HAL
open science

Etude expérimentale et modélisation Monte Carlo des grandeurs opérationnelles en métrologie des rayonnements ionisants : application à la dosimétrie neutrons par radiophotoluminescence

Youbba Ould Salem

► **To cite this version:**

Youbba Ould Salem. Etude expérimentale et modélisation Monte Carlo des grandeurs opérationnelles en métrologie des rayonnements ionisants : application à la dosimétrie neutrons par radiophotoluminescence. Autre [cond-mat.other]. Université de Strasbourg, 2014. Français. NNT : 2014STRAE016 . tel-01128468

HAL Id: tel-01128468

<https://theses.hal.science/tel-01128468>

Submitted on 9 Mar 2015

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

Docteur de l'Université de Strasbourg

Discipline : Physique

Présentée par

Youbba Ould SALEM

Etude expérimentale et modélisation Monte Carlo des grandeurs opérationnelles en métrologie des rayonnements ionisants : application à la dosimétrie neutrons par radiophotoluminescence

Soutenu le 09 septembre 2014

Membres du jury :

Directeur de thèse : Christelle ROY, IPHC Strasbourg

Rapporteurs externes : Francisco FERNANDEZ, Universitat Autònoma de Barcelona
Regine GSCHWIND, Université de Franche-Comté

Examineurs : Abdel-Mjid NOURREDDINE, Université de Strasbourg
Daniel HUSSON, IPHC Strasbourg
Abdellatif NACHAB, Université Cadi Ayyad

Remerciements

Cette page est l'occasion pour moi de remercier toutes les personnes qui m'ont accompagné durant ces trois années passées au sein du groupe Radioprotection et Mesures Environnementales (RaMsEs) de l'Institut Pluridisciplinaire Hubert Curien (IPHC) de Strasbourg. A l'issue de la rédaction de ces travaux de recherche, j'avoue qu'effectuer une thèse est loin d'être un parcours solitaire. A mon arrivée dans ce groupe, j'ai été accueilli très chaleureusement par tous ses membres, et tout au long de ces années, j'ai reçu un soutien inconditionnel de leur part.

Tout d'abord, je remercie le professeur Abdel-Mjid Nourreddine pour m'avoir accueilli dans son équipe. Je lui suis très reconnaissant pour tout ce qu'il m'a apporté sur le plan pédagogique et scientifique malgré un emploi du temps très chargé.

J'exprime mes plus vifs remerciements et toute ma reconnaissance à ma directrice de thèse Madame Christelle Roy, pour tout le temps qu'elle m'a consacré, sa sympathie et sa bonne humeur.

Mes remerciements vont également à Monsieur Francisco Hernandez (Universitat Autònoma de Barcelona), et madame Régine Gschwind (Université de Franche-Comté) d'avoir accepté d'être les rapporteurs de ce travail. Je tiens aussi à remercier monsieur Daniel Husson (IPHC) d'avoir accepté d'examiner mon travail. Toute ma reconnaissance à monsieur Abdellatif Nachab qui m'a guidé et conseillé pendant tout ce travail de thèse, et qui a accepté de l'examiner.

Je remercie les membres du groupe RaMsEs pour leur contribution à l'aboutissement de ce projet et à mon intégration, notamment Addil Sellam, Abderrahim Bensaida, Nicolas Spanier, Séverine Chefson, Eric Schaeffer sans oublier mes compères d'infortune : Samir Dziri, Issiaka Traoré, Estelle Gasser, François Begin, Bennaceur Najjari, Gregory Beck, Grégoire Dugniaux et Charlène Bisch. Un grand merci à Arthur Pape pour sa disponibilité, sa bonne humeur et ses remarques et discussions pertinentes. Un remerciement particulier à Jean-Pierre Engel pour ses remarques pertinentes et pour la correction du manuscrit.

Je souhaite également remercier ma famille en France, à Renage, Yvan et Viviane Roche ainsi que leur fils et très cher ami Hugo Roche pour leur accueil chaleureux et pour tout le soutien qu'ils m'ont apporté depuis mon arrivée en France. Je voudrais exprimer mes remerciements et ma reconnaissance à Eva Holzhauser pour sa large contribution dans mon intégration.

Je ne saurai finir sans évoquer les miens, en commençant par remercier mes deux parents, Salem Ould Elhadj et Zeinab Mint Mohamed Dedeou, ainsi que mes frères et sœurs : Cheickna Boulker Ould Salem, Attalib Lahbib, Mana Mint Salem, Fatouma Mint Salem, Halima Mint Salem, Mohamed Ould Salem, Abdrahamane Ould Salem et Aboubacar Sidiki Ould Salem, sans oublier les non mentionnés. Je remercie tout spécialement ma tante Gettou Alla et son mari Kader Wangara qui m'ont aidé et soutenu depuis le Baccalauréat. J'en profite aussi pour remercier Kadiatou Cissé et Belco Diallo, deux mamans que j'ai rencontrées au cours de mes études et qui m'ont toujours considéré comme leur propre fils.

Il y a aussi tout un beau monde que je souhaite remercier. Je pense à mes amis d'enfance et à mes collègues de classe avec lesquels j'ai passés de très bons moments. En premier lieu Mahamane Abdoulaye avec qui j'ai galéré à Bamako après le Baccalauréat, Sidi Toure qui était considéré comme mon jumeau, puis Moussa Touré, Sidi Mohamed Alkady Malick, Bocar Alassane, Oumar Dia, Soumeila Abdoulaye, Mahamane Albachir, Assekou Albadja, Baba Abdoulaye, Mohamed Boubacar Cissé, Mohamed N'toullou, Madigata Diagouraga, Issiaka Alkamisse, Dramane Fondo, Aly Dicko, Massaman Sissoko, sans oublier Fatouma Dicko et Fatalmoudou Handane, deux personnes qui me sont très chères. Enfin merci à Youma Dembélé, Abdoul Nassirou Touré, Boubacar Hammadoune Cissé, Amadiou Diakité, Bacary Coulibaly, Abdine Mariko, Kevine Sietambie, Alimata Diarra, Mahamar Dicko, Tinalbaraka Walet Mohamed Aly, Mario Pazzola, Alejandro Segovia, Check Koutam, Daby Kane, Antonella Bochicchio et mon acolyte Boubacar Yalcouye, des personnes extraordinaires que j'ai côtoyées et qui m'ont toujours soutenu et encouragé dans mes études. Je sais aussi que la liste est longue, mais je tiens à remercier toutes les personnes, elles se reconnaissent, qui m'ont toujours aidé et soutenu dans tout ce qui j'ai eu à entreprendre.

Aussi, j'adresse mes sincères remerciements au ministère de l'éducation nationale du Mali qui m'a attribué une bourse de mérite pour pouvoir poursuivre mes études en France.

Cette thèse est dédiée à mon grand frère et à ma grande sœur

Alhourou Ould Salem

(29 juillet 1976 – 22 octobre 2010)

Nana Mint Salem

(18 janvier 1982 – 10 août 2014)

Table des matières

Introduction	17
De l'interaction rayonnement-matière à la dosimétrie	23
I. Photons	25
I.1. Effet photoélectrique	27
I.2. Effet Compton	28
I.3. Création de paire	29
I.4. Loi d'atténuation	30
II. Particules chargées	32
II.1. Pouvoir d'arrêt	32
II.2. Particules lourdes chargées	32
II.2.1. Ionisation à faible transfert d'énergie	33
II.3. Les électrons	34
II.3.1. Interactions électron – électron orbital	34
II.3.1.1. Pouvoir d'arrêt par collision S_{col}	35
II.3.2. Interactions électron – noyau	35
II.3.2.1. Pouvoir d'arrêt par radiation S_{rad}	36
II.4. Parcours	36
II.4.1. Particules lourdes	36
II.4.1.1. Les particules alpha	36
II.4.2. Cas des électrons	39
III. Neutrons	39
III.1. Généralités	39
III.2. Diffusion élastique	40
III.3. Diffusion inélastique	41
III.4. Capture radiative	42
III.5. Capture avec émission des particules chargées	42
III.6. Fission	42
III.7. Loi d'atténuation	43
III.8. Sources des neutrons	43
III.8.1. Sources radioactives	43
III.8.2. Accélérateurs de particules	45
III.8.3. Réacteurs nucléaires	45
III.8.4. Détection des neutrons	46
IV. Dosimétrie des rayonnements ionisants	47
IV.1. Grandeurs en radioprotection et dosimétrie	48
IV.1.1. Grandeurs radiométriques	49
IV.1.1.1. Champs de rayonnement	49
IV.1.1.2. Flux de particules	50
IV.1.1.3. Flux en énergie	50
IV.1.1.4. Fluence et débit de fluence des particules	50
IV.1.1.5. Fluence et débit de fluence en énergie	51
IV.1.2. Grandeurs dosimétriques	52
IV.1.2.1. Energie déposée	52
IV.1.2.2. Dose absorbée et débit de dose absorbée	52
IV.1.2.3. Kerma et débit de kerma	53
IV.1.2.4. Relation entre dose et kerma	54

IV.1.3. Grandeurs de protection	54
IV.1.3.1. Dose équivalente	55
IV.1.3.2. Dose efficace	55
IV.1.4. Grandeurs opérationnelles.....	56
IV.1.4.1. Grandeur opérationnelle pour la dosimétrie de l'ambiance	56
IV.1.4.2. Grandeur opérationnelle pour la dosimétrie individuelle.....	57
IV.1.5. Limites de dose	57
IV.2. Calcul de dose pour les rayonnements ionisants.....	58
IV.2.1. Cas des photons.....	58
IV.2.2. Cas des électrons	59
IV.2.3. Cas des neutrons.....	60
V. Etats de l'art.....	61
V.1. Spectrométrie par sphère de Bonner (SSB).....	61
V.2. Dosimétrie passive	61
V.2.1. Film photographique	61
V.2.2. Détecteurs solides de traces nucléaires	62
V.2.3. Détecteurs thermoluminescents.....	63
V.2.4. Dosimètres à bulles	64
Code Monte Carlo en métrologie des rayonnements ionisants	65
I. La modélisation par la méthode Monte Carlo.....	66
II. Transport des particules	67
II.1. Simulation des interactions avec la matière.....	68
II.2. Modélisation du transport de particules.....	69
III. Code MCNPX	70
III.1. Fiabilité de la simulation	70
III.2. Structure du fichier MCNPX.....	71
III.2.1. Cellules.....	72
III.2.2. Surfaces	72
III.2.3. Données physiques	74
III.2.3.1. Source.....	74
III.2.3.2. Tallies	74
III.2.3.3. Matériaux	75
III.3 Bibliothèques des sections efficaces	75
Propriétés physiques des détecteurs Radio-Photo-Luminescents	77
I. Structure des verres	79
I.1. Qu'est ce qu'un verre.....	79
I.2. Elaboration de verre (fabrication).....	79
I.3. Structure de verre	80
II. Luminescence des cristaux dopés à l'argent.....	81
II.1. Les halogénures alcalins	81
II.2. Les alcalino-terreux	82
III. Propriétés de l'ion Ag^+ dans les verres	82
III.1. Verres silicates photoluminescents	82
III.2. Verres phosphates photoluminescents	83
III.3. Verres radioluminescents	83
IV. La radiophotoluminescence (RPL)	83
IV.1. Principe physique de la RPL.....	83
IV.2. Spectre d'émission et d'excitation	85
V. Système d'exploitation des données.....	85
V.1. Détecteur	85

V.2. Traitement thermique	86
V.3. Système de lecture	87
V.4. Système de réinitialisation.....	88
VI. Caractéristiques intrinsèques du verre RPL	89
VI.1. Analyse par microscopie électronique à balayage (MEB).....	89
VI.2. Homogénéité du signal.....	91
VI.3. Effet de lectures successives	92
VI.4. Évolution du bruit de fond	93
VI.5. Conséquence de l'évolution du bruit de fond et du recuit	94
VII. Conclusion	95
Caractérisation des dosimètres RPL pour les neutrons rapides.....	97
I. Incertitudes appliquées aux mesures de rayonnements	99
I.1. Incertitudes de type A	100
I.1.1. Moyenne arithmétique	100
I.1.2. Ecart type expérimental	100
I.1.3. L'erreur standard de la moyenne	102
I.2. Incertitudes type B	102
II. Dosimétrie des neutrons rapides.....	103
II.1. Détermination des grandeurs physiques et opérationnelles.....	103
II.2. Dosimétrie d'ambiance	105
II.2.1. Etudes préliminaires	105
II.2.1.1. Face sensible du dosimètre RPL.....	105
II.2.1.2. Résultats et discussions	106
II.2.2 Configuration du système dosimétrique	106
II.2.3. Choix du convertisseur	108
II.2.3.1. Le polyéthylène	108
II.2.3.2. Optimisation de l'épaisseur du convertisseur.....	108
II.2.4. Conditions d'irradiation.....	110
II.2.5. Géométrie de la source	111
II.2.6. Résultats et discussions	111
II.2.6.1. Réponse du dosimètre.....	111
II.2.6.2. Dépendance angulaire.....	112
II.2.7. Etude de l'accumulation de doses.....	113
II.2.8. Effet du préchauffage et problème de perte de signal (fading)	114
II.3. Dosimétrie personnelle	115
II.3.1. Albédo	116
II.3.2. Conditions d'irradiation.....	117
II.3.3. Résultats et discussions	118
II.3.3.1. Réponse du dosimètre.....	118
II.3.3.2. Réponse angulaire.....	118
II.3.4. Réponses angulaires et énergétiques simulées	120
II.3.4.1. Réponses angulaires simulées	120
II.3.4.2. Réponses énergétiques simulées.....	122
II.3.5. Problématique de la méthode (n, p) avec le dosimètre RPL	122
II.3.5.1. Décapage chimique.....	123
II.3.6. Problématique du signal γ accompagnant les neutrons	124
II.3.6.1. Amincissement du détecteur RPL	125
III. Conclusion.....	127
Caractérisation des dosimètres RPL pour les neutrons thermiques	129
I. Production des neutrons thermiques	130

I.1. Thermalisation des neutrons	131
II. Dosimétrie des neutrons thermiques.....	132
II.1. Sensibilité du détecteur RPL aux neutrons thermiques	133
II.1.1. A propos des neutrons de la source ²⁴¹ Am-Be thermalisés	133
II.1.2. A propos des neutrons de la source ²⁵² Cf + D ₂ O thermalisés.....	133
II.2. Tests expérimentaux	135
II.2.1. Convertisseurs borés.....	135
II.2.1.1. Effets du pouvoir d'arrêt et de l'activation du verre RPL	136
II.2.1.2. Rapport signal α /signal d'activation.....	137
II.2.2. Convertisseur cadmium comme alternative	139
II.2.3. Configuration d'un autre système de mesure	141
II.3. Evaluation de l'équivalent de dose ambiante	142
II.3.1. Conditions d'irradiation et calculs.....	142
II.3.2. Résultats.....	143
II.3.3. Seuil de détection.....	143
II.4. Application à la dosimétrie personnelle	144
II.4.1. Effets simulés du fantôme	145
II.4.2. Réponse du dosimètre en termes d'équivalent de dose H _p (10)	146
II.4.3 Réponse angulaire.....	147
III. Conclusion.....	148
Conclusion générale	149

Table des figures

Figure I-1 : Classifications des rayonnements.	25
Figure I-2 : Domaine de prédominance des trois principaux effets de l'interaction photon - matière.....	27
Figure I-3 : Effet photoélectrique.	27
Figure I-4 : Effet Compton.....	29
Figure I-5 : Création de paire.	29
Figure I-6 : Coefficients d'atténuation massiques du verre RPL.	31
Figure I-7 : Coefficients d'atténuation massiques du cadmium.....	31
Figure I-8 : Pouvoir d'arrêt des protons dans le verre RPL.	37
Figure I-9 : Pouvoir d'arrêt des particules alphas dans le verre RPL	37
Figure I-10 : Parcours des protons dans le verre RPL.....	38
Figure I-11 : Parcours des particules alpha dans le verre RPL.	38
Figure I-12 : Différents types d'interactions des neutrons avec la matière.....	40
Figure I-13 : Processus de diffusion élastique du neutron.	40
Figure I-14 : Processus de diffusion inélastique du neutron.	41
Figure I-15 : Sections efficaces de diffusion élastique des neutrons sur l'hydrogène et le carbone, extraites de la base des données JEFF 3.1.	46
Figure I-16 : Sections efficaces des neutrons en fonction de l'énergie pour le bore, le lithium et cadmium, extraites de la base des données JEFF 3.1.	47
Figure I-17 : Relation entre les grandeurs utilisées en radioprotection et en dosimétrie.	48
Figure I-18 : Système de coordonnées pour l'émission d'une source étendue cylindrique.	49
Figure I-19 : Fonction de réponse des dosimètres passifs en fonction de l'énergie des neutrons	64
Figure II-1 : Organigramme de l'histoire d'une particule par la méthode Monte Carlo.....	67
Figure II-2 : L'histoire d'un neutron incident dans un milieu fissile.	70
Figure III-1 : Structure d'un cristal à deux dimensions de formule A_2O_3 (gauche) et la structure du verre du même composé (droite).	81
Figure III-2 : Formation de centres Ag^0 et Ag^{++} : $Ag^+ + e^- \rightarrow Ag^0$, $Ag^+ + h^+ \rightarrow Ag^{++}$	84
Figure III-3 : Principe de la radiopholuminescence dans le verre phosphate dopé Ag^+	84
Figure III-4 : Spectres d'excitation et d'émission du verre phosphate dopé Ag^+ , après irradiation aux rayons X.	85
Figure III-5 : Conteneur avec deux plateaux dont l'un y est partiellement enfoncé.	86
Figure III-6 : Spectres RPL en fonction du temps écoulé après une irradiation d'environ 0,5 Gy aux rayons X.....	86
Figure III-7 : Evolution du signal RPL en fonction du temps écoulé après exposition aux rayons γ de la source de ^{60}Co	87
Figure III - 8 : Composition du module de lecture FGD-660.	88
Figure III-9 : Schéma du mécanisme de chauffage.....	89
Figure III-10 : Microscope électronique à balayage de l'IPCMS.	91
Figure III-11 : Positionnement des différents filtres dans le boîtier du dosimètre RPL.	92
Figure III-12 : Représentation en 3D de la variation du signal RPL en fonction de la plage de lecture et du détecteur RPL associé.....	92
Figure III-13 : Lectures successives des signaux RPL des protons de recul.....	93

Figure III-14 : Evolution du bruit de fond intrinsèque du détecteur RPL en fonction du nombre de remises à zéro après exposition aux rayonnements ionisants.	94
Figure III-15 : Représentation en 3D de la variation du signal RPL en fonction de la plage de lecture après plusieurs recuits à 400°C.	95
Figure IV-1 : Processus d'estimation de l'incertitude.....	101
Figure IV-2 : Variation des coefficients de conversion en fonction de l'énergie des neutrons.	104
Figure IV-3 : Montage du système d'irradiation avec les particules α de l' ^{241}Am pour déterminer la face la plus sensible du détecteur RPL.....	105
Figure IV-4 : Réponse des détecteurs pour les α de l' ^{241}Am . a : exposition de la face avant; b : exposition dont 2 en face avant (RPL1 et RPL3) et 2 en face arrière (RPL2 et RPL4), montrant que la face avant est plus sensible aux particules α	106
Figure IV-5 : Schéma du montage dosimétrique. Al : aluminium ; RPL : verre radiophotoluminescent ; $(\text{CH}_2)_n$: polyéthylène.	107
Figure IV-6 : Section efficace des réactions sur l'hydrogène et l'aluminium.....	107
Figure IV-7 : Section efficace des réactions pouvant produire des particules chargées ou des photons dans le polyéthylène.	109
Figure IV-8 : Courbe de l'équilibre protonique pour des neutrons de 10 MeV, obtenue avec un convertisseur en polyéthylène par simulation Monte Carlo.....	109
Figure IV-9 : Schéma de niveau d'énergies pour le carbone ^{12}C avec les transitions électromagnétiques.....	110
Figure IV-10 : Géométrie de la source (à gauche), dimensions en mm (au centre), image de la source visualisée par le logiciel Moritz (à droite).	111
Figure IV-11 : Réponse du dosimètre pour les neutrons de la source $^{241}\text{Am-Be}$ en fonction de l'équivalent de dose ambient $H^*(10)$ pour une incidence normale.	112
Figure IV-12 : Réponse du dosimètre en fonction de l'angle d'incidence des neutrons pour la source $^{241}\text{Am-Be}$	113
Figure IV-13 : Variation des réponses des deux verres RPL du dosimètre en fonction du nombre de préchauffages.	115
Figure IV-14 : Fantôme plaque ISO rempli d'eau.	116
Figure IV-15 : Variation de l'albédo en fonction de la distance pour les neutrons de la source $^{241}\text{Am-Be}$ et les gammas de 4,438 MeV.	117
Figure IV-16 : Spectres des protons créés dans le polyéthylène avec et sans fantôme via la diffusion (n,p), obtenus par simulation Monte Carlo.	118
Figure IV-17 : Réponse du dosimètre pour les neutrons de la source $^{241}\text{Am-Be}$ en fonction de l'équivalent de dose personnel $H_p(10)$ pour une incidence normale.....	119
Figure IV-18 : Réponse angulaire expérimentale normalisée par $H_p(10,\alpha)$ pour la source $^{241}\text{Am-Be}$	119
Figure IV-19 : Variations des coefficients de conversion $h_p(10,\alpha)$ en fonction de l'énergie des neutrons pour différents angles α	120
Figure IV-20 : Réponses angulaires simulées : $^{241}\text{Am-Be}$; ^{252}Cf ; neutrons de 1,2 MeV et 2,8 MeV.....	121
Figure IV-21 : Réponse énergétique simulée du dosimètre par neutron source.	122
Figure IV-22 : Profilomètre (à gauche), et profil du décapage du verre RPL (à droite).....	124
Figure IV-23 : Spectres ISO des sources $^{241}\text{Am-Be}$ et ^{252}Cf	126
Figure IV-24 : Longueurs de trace par particule en fonction de l'énergie des protons issus de la réaction (n, p) pour différentes épaisseurs de verre.....	126

Figure V-1 : Forme des spectres de la source $^{241}\text{Am-Be}$ à la sortie des sphères de Bonner de diamètres (d_{SB}) différents.	132
Figure V-2 : Variation de la fluence des neutrons thermiques en fonction du diamètre de la sphère de Bonner.	132
Figure V-3 : Distribution en énergie des photons γ générés dans le verre RPL suite à l'interaction avec les neutrons de la source $^{241}\text{Am-Be}$ thermalisés.	134
Figure V-4 : Spectre IRSN de la source $^{252}\text{Cf} + \text{D}_2\text{O}$	134
Figure V-5 : Distribution en énergie des photons γ générés dans le verre RPL suite à l'interaction avec les neutrons de la source $^{252}\text{Cf} + \text{D}_2\text{O}$	135
Figure V-6 : Schéma de principe du dispositif utilisé.	136
Figure V-7 : Propagation des α de 2,05 MeV dans le détecteur RPL.	137
Figure V-8 : Signaux RPL obtenus à l'aide du détecteur RPL précédé par les couches $^{10}\text{B} + \text{Al}$ (gauche) et par la couche ^{10}B (milieu) en comparaison avec le signal RPL (droite) pour différents temps d'irradiation. (a) : 5 h, (b) : 15 h, (c) : 72 h	138
Figure V-9 : Distribution en énergie des photons γ générés dans le verre RPL et des α produits par l'interaction des neutrons thermalisés de la source $^{241}\text{Am-Be}$ avec le ^{10}B	139
Figure V-10 : Spectre d'émission des rayons gamma issus de la réaction $^{113}\text{Cd}(n,\gamma)^{114}\text{Cd}$, obtenu avec un détecteur CdZnTe.	140
Figure V-11 : Schéma du principe de la mesure.	142
Figure V-12 : Signaux RPL obtenus à l'aide du verre RPL précédé de Cd, de $^{10}\text{B} + \text{Al}$, de ^{10}B en comparaison avec le signal RPL sans convertisseur.	142
Figure V-13 : Réponse expérimentale du dosimètre pour les neutrons thermiques en fonction de l'équivalent de dose ambiant $H^*(10)$	144
Figure V-14 : Signaux RPL obtenus à l'aide du dosimètre neutrons thermiques avec et sans fantôme.	145
Figure V-15 : Spectres des neutrons avec et sans fantôme plus la composante rétrodiffusée par le fantôme.	146
Figure V-16 : Réponse expérimentale du dosimètre pour les neutrons thermiques en fonction de l'équivalent de dose $H_p(10)$ pour une incidence normale.	147
Figure V-17 : Réponse angulaire expérimentale en termes de l'équivalent de dose $H_p(10)$ pour les neutrons thermalisés de la source $^{241}\text{Am-Be}$	148

Liste des tableaux

Tableau I-1 : Processus d'interactions rayonnement-matière et leurs conséquences.....	26
Tableau I-2 : Classification des neutrons en fonction de leur énergie.	39
Tableau I-3 : Valeurs de W_R dans les dernières recommandations de la CIPR 103.	55
Tableau I-4 : Valeurs recommandées de W_T	56
Tableau I-5 : Limites de dose recommandées dans le cas des situations d'exposition planifiée	58
Tableau II-1 : Fiabilité d'un résultat de simulation Monte Carlo en fonction de l'erreur relative.	71
Tableau II-2 : Cartes des surfaces utilisées par MCNPX.....	73
Tableau II-3 : Présentation des différents tallies du code MCNPX et leurs unités associées. .	75
Tableau III-1 : Composition multi-élémentaire du verre radiophotoluminescent.....	90
Tableau IV-1 : Résultats des mesures obtenues par BSS et des simulations MCNPX en différents points.....	104
Tableau IV-2 : Signaux détectés des protons de recul provenant de la réaction (n, p). Pour le signal total de D2 à 567 h, elle est donnée par la somme quadratique des incertitudes statistiques à 141,27 h , 235,81 h et 189,73 h.	114
Tableau IV-3 : Fantômes utilisés pour la calibration des dosimètres.	116
Tableau IV-4 : Energie des quelques γ issus des produits de fission d'une source de ^{252}Cf . 125	
Tableau IV-5 : Valeurs des absorbances des protons du détecteur RPL pour différentes épaisseurs obtenues par MCNPX.....	127
Tableau V-1 : Comparaison des principaux noyaux modérateurs (Σ_{dif} est prise pour les neutrons épithermiques (quelques eV) et Σ_a pour les neutrons thermiques (0,025 eV)).	131
Tableau V-2 : Comparaison des principaux matériaux modérateurs.	131
Tableau V-3 : Les réactions (n, p), (n, α) susceptibles de se produire avec des neutrons thermiques incidents sur les isotopes du cadmium. Les valeurs entre parenthèse représentent l'abondance naturelle.	141
Tableau V-4 : Données simulées par MCNPX de l'équivalent de dose ambiant $H^*(10)$ des neutrons de la source $^{241}\text{Am-Be}$ thermalisés.	143

Introduction

La radioprotection présente l'ensemble des mesures prises par les pouvoirs publics pour assurer la protection de l'homme et de son environnement contre les effets néfastes des rayonnements ionisants. 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 ionisants en adéquation avec les limites réglementaires. En particulier, la dosimétrie individuelle des neutrons et des extrémités constituent une des difficultés actuelles de la radioprotection. Les valeurs des seuils recommandées par la CIPR 103¹ rendent nécessaire la mise en place d'une nouvelle génération de dosimètres. Le majeur inconvénient 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'ICRU² a introduit le concept de grandeurs opérationnelles (mesurables à l'aide de détecteurs de rayonnements ionisants) ayant pour objectif d'estimer de façon "*raisonnable*" les grandeurs de protection.

En dosimétrie passive, l'équipe de Radioprotection et Mesures Environnementales (RaMsEs) de l'Institut Pluridisciplinaire Hubert Curien (IPHC) de Strasbourg est impliquée dans des programmes mettant en œuvre des techniques différentes allant des détecteurs visuels à l'étude des phénomènes de luminescence stimulés thermiquement et/ou optiquement. Le sujet de cette thèse concerne l'étude et la caractérisation d'un nouveau système de dosimétrie passive par Radiophotoluminescence (RPL), technologie récemment mise en place au laboratoire pour le suivi réglementaire dosimétrique principalement pour la détection des rayonnements X, gamma et béta.

Du point de vue principe physique, la RPL est un phénomène faisant qu'un verre métaphosphate dopé à l'argent émet une fluorescence de couleur orange par excitation aux rayons ultraviolets lorsque le verre a été préalablement exposé à des rayonnements ionisants. L'intensité de cette fluorescence est proportionnelle à la dose reçue. Cette technique offre alors tout un ensemble d'avantages pour la surveillance routinière, qui inclut une exploitation rapide des données, la réutilisation des détecteurs, une insensibilité à la lumière, à la température et à l'humidité, et une stabilité du signal. Cependant, le milieu détecteur constitutif des dosimètres RPL, qui est un verre métaphosphate dopé à l'argent est virtuellement insensible aux rayonnements neutroniques. Fort de cet enseignement, les travaux de recherches de cette thèse ont porté sur l'étude expérimentale et la modélisation

¹ Commission Internationale de Protection Radiologique

² International Commission on Radiation Units and Measurements

Monte Carlo de la fonction de réponse des RPL pour la détection de neutrons rapides et thermiques. Ainsi, cette thèse s'est déroulée selon trois phases, combinant des expériences et des simulations Monte Carlo. La première partie concerne les propriétés intrinsèques du verre RPL. La seconde consiste à caractériser le détecteur RPL pour les neutrons rapides et à mettre en évidence les problématiques qui en découlent. Enfin, la dernière phase est focalisée sur la détermination de la réponse du dosimètre RPL pour les neutrons thermiques, tout en tenant compte de l'activation du détecteur à l'aide d'un convertisseur boré.

Ce manuscrit comporte cinq chapitres dont le premier rappelle brièvement les notions de base nécessaires pour mieux appréhender les différents processus d'interaction des rayonnements ionisants avec la matière et les différentes grandeurs utilisées en radioprotection et dosimétrie. L'état de l'art des quelques dosimètres passifs neutrons, décrivant leurs méthodes de détection et les problèmes auxquels ils sont confrontés y est également exposé. Le deuxième chapitre est dédié à une description générale des méthodes de simulation par le code MCNP (Monte Carlo N-Particules) et au transport des particules. L'accent est mis particulièrement sur la modélisation des interactions neutron-matière.

Dans le troisième chapitre sont décrites les caractéristiques intrinsèques des détecteurs RPL utilisés dans ce travail. Nous abordons la luminescence des cristaux dopés à l'argent et les propriétés des ions Ag^+ dans les verres. L'analyse multi-élémentaire du verre RPL par Microscopie Electronique à Balayage (MEB) réalisée à l'IPCMS (Institut de Physique et de Chimie des Matériaux de Strasbourg), ainsi que certains paramètres pouvant affecter les résultats de mesure sont détaillés.

Le chapitre quatre est consacré à l'étude d'un système dosimétrique basé sur la RPL du verre phosphaté activé Ag^+ pour la mesure des neutrons rapides. La présentation et la discussion des résultats expérimentaux obtenus avec ce nouveau dosimètre neutronique mis au point au laboratoire, ainsi que les différents paramètres le caractérisant sont détaillés. Les résultats expérimentaux sont confrontés aux résultats obtenus par simulation à l'aide du code de calcul MCNPX. Dans cette partie, les résultats scientifiques sont très intéressants et originaux et peuvent être exploités pour la surveillance de routine et environnementale.

Le chapitre cinq concerne la conception d'un dosimètre RPL permettant de détecter les neutrons thermiques dans un champ mixte n- γ . Après des études simulées et expérimentales

menées sur la faisabilité du dosimètre, nous présentons le principe de fonctionnement du nouveau dispositif. Les résultats obtenus sont très prometteurs et constituent déjà un ensemble solide pour la mise en place d'un futur dosimètre qui détectera en les distinguant les rayonnements γ et β , mais également les rayonnements neutroniques.

Enfin le manuscrit se termine par une conclusion générale de la thèse et ses perspectives.

Chapitre 1

De l'interaction rayonnement-matière à la dosimétrie

Les rayonnements sont classés selon deux catégories, les ionisants et les non-ionisants (figure I-1). Dans ce travail on ne s'intéresse qu'aux cas ionisants, c'est-à-dire ceux susceptibles d'ioniser ou d'exciter la matière.

Un rayonnement ionisant est un transport d'énergie sous la forme de particules ou d'ondes électromagnétiques 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 [1].

Parmi ces rayonnements, on a ceux qui sont directement ionisants, à savoir les particules chargées (électrons, protons, particules α , fragments de fission, et les ions) et ceux indirectement ionisants (photons et neutrons). Les premiers déposent directement leur énergie dans le milieu traversé via des interactions coulombiennes avec les électrons orbitaux des atomes et les seconds (indirectement ionisants) par l'intermédiaire des particules secondaires mises en mouvement dans le milieu.

Le tableau I.1 ci-après résume les caractéristiques de ces rayonnements et les différents types d'interactions avec la matière [1].

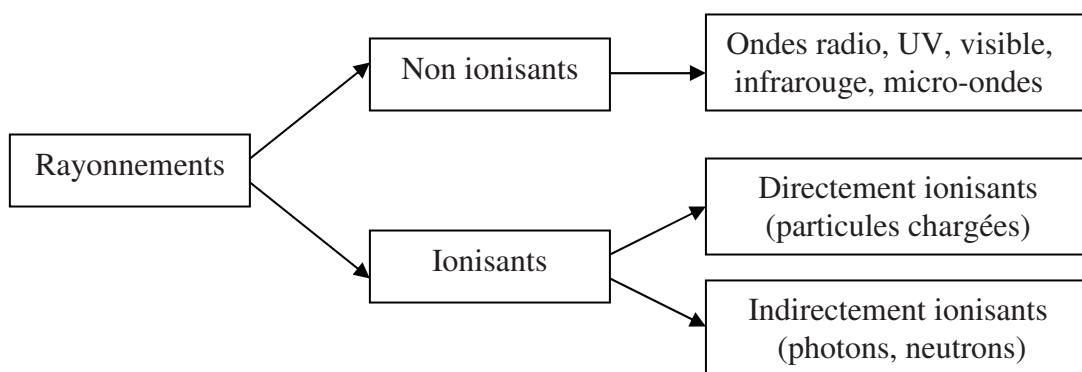


Figure I-1 : Classifications des rayonnements.

I. Photons

Sans masse en repos, les photons sont des rayonnements très pénétrants qui peuvent subir diverses interactions lors de la traversée d'un milieu. La probabilité ou la section efficace de chacune des interactions dépend de l'énergie du photon et du numéro atomique du milieu.

De part leur origine, les photons proviennent des catégories suivantes :

- Les rayons γ , émis à partir des transitions nucléaires lors des décroissances radioactives ou à partir de l'annihilation d'un positron et d'un électron.
- Les rayonnements de freinage ou « Bremsstrahlung », émis par l'interaction électron-noyau.

Rayonnement	Type du processus	Conséquence après interaction
Particules chargées α, β	Ionisation	Mise en mouvement d'électrons du matériau absorbant. Réorganisation du cortège électronique: émission de rayons X et/ou e^- Auger
	Excitation	
	Rayonnement de freinage (β)	Emission d'un rayon X de freinage (spectre continu)
	Cas particulier en fin de parcours des (β^+) : annihilation de la matière	Emission de 2 photons de 511 keV en sens opposé
photons γ, X	Effet photoélectrique (faible énergie)	Absorption total du photon incident et photoélectron Réorganisation du cortège électronique: émission de rayons X et/ou e^- Auger.
	Effet Compton (énergies intermédiaires)	Diffusion du photon incident et éjection d'un électron Compton Réorganisation du cortège électronique: émission de rayons X et/ou e^- Auger
	Effet de production de paires ($E > 1,022$ MeV)	Absorption total du photon incident et mise en mouvement d'une paire e^-/e^+ Emission de 2 photons de 511 keV en sens opposé après annihilation
Neutrons	Absorption (n thermiques)	Emission d'un rayonnement de type : n, p, α, γ
	Diffusion (n rapides)	Diffusion du n incident / projection du noyau de recul

Tableau I-1 : Processus d'interactions rayonnement-matière et leurs conséquences

- Les rayons X, émis dans les transitions atomiques (réarrangement du cortège électronique).

Lors de l'interaction avec la matière, le photon peut complètement disparaître (effet photoélectrique, création de paire, production de triplet) ou diffuser (diffusion Rayleigh, diffusion Thomson, effet Compton). Ici nous nous limitons aux trois processus d'interactions qui prédominent dans la gamme d'énergie qui nous intéresse.

La figure I-2 montre les régions de prédominance des trois effets les plus importants, en fonction de l'énergie du photon et du numéro atomique du milieu traversé [2]. L'effet photoélectrique prédomine à basse énergie, l'effet Compton pour les énergies intermédiaires et la création de paires pour les hautes énergies.

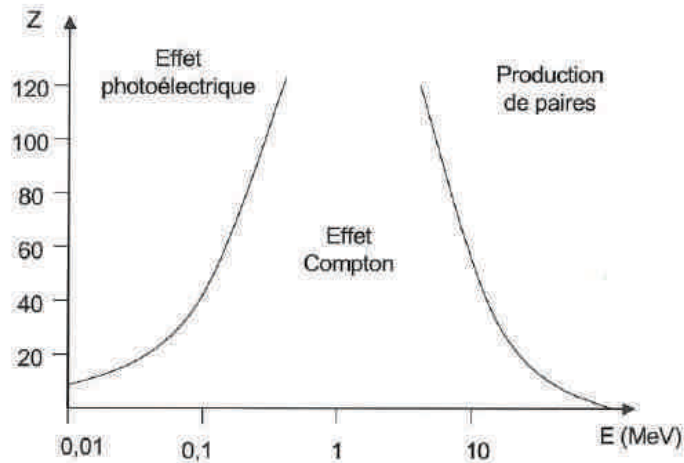


Figure I-2 : Domaine de prédominance des trois principaux effets de l'interaction photon - matière

I.1. Effet photoélectrique

C'est un processus d'absorption où le photon incident interagit avec l'un des électrons des couches profondes (électron fortement lié) de l'atome et disparaît (figure I-3). Le photoélectron est éjecté de l'atome avec une énergie cinétique E_e égale à celle du photon incident E_γ diminuée de son énergie de liaison E_l . Cette dernière varie selon le numéro atomique Z de l'atome.

$$E_e = E_\gamma - E_l \quad (\text{I-1})$$

La section efficace totale de l'effet photoélectrique σ_{pe} dépend du numéro atomique Z de l'atome et de l'énergie du photon incident. Elle est proportionnelle à $Z^5 E_\gamma^{-3.5}$. La contribution de l'effet photoélectrique est cependant sensiblement la même pour des photons d'énergies respectives de 0,15 MeV dans l'aluminium ($Z = 13$) et 2 MeV dans le Plomb ($Z = 82$) [3].

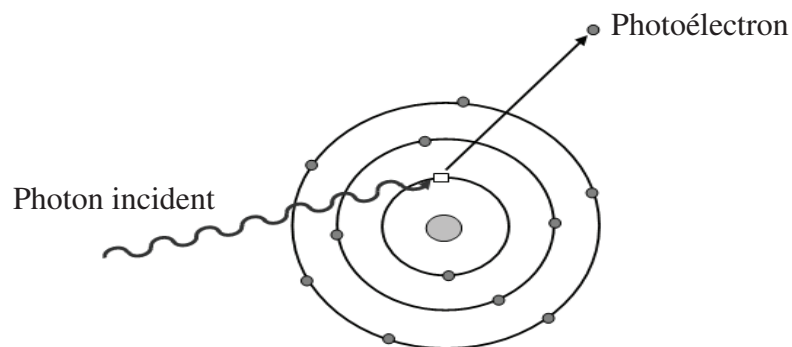


Figure I-3 : Effet photoélectrique.

I.2. Effet Compton

Encore appelé diffusion incohérente, la diffusion Compton représente l'interaction du photon avec les électrons des couches périphériques (électrons quasi libres). Le photon incident, d'énergie E_γ cède une partie de son énergie à un électron de ces couches puis diffuse en un autre photon d'énergie inférieure, comme schématisé dans la figure I-4. L'énergie du photon diffusé $E_{\gamma'}$ et l'énergie cinétique de l'électron Compton E_c sont données par la relation :

$$E_{\gamma'} = \frac{E_\gamma}{1 + \varepsilon(1 - \cos \theta)} \quad (\text{I-2})$$

avec $\varepsilon = \frac{E_\gamma}{m_e c^2}$ l'énergie réduite et $m_e c^2 = 0,511 \text{ keV}$ l'énergie de masse de l'électron.

L'énergie du photon Compton varie sur une gamme allant de $\frac{E_\gamma}{1 + 2\varepsilon}$ pour $\theta = \pi$ (rétrodiffusion du photon) à E_γ pour $\theta = 0$. L'énergie cinétique de l'électron diffusé est donnée par :

$$E_e = E_\gamma - E_{\gamma'} = \frac{\varepsilon(1 - \cos \theta)}{1 + \varepsilon(1 - \cos \theta)} E_\gamma \quad (\text{I-3})$$

Vu que l'énergie du photon incident se répartit entre l'énergie cinétique de l'électron Compton et l'énergie du photon diffusé, la section efficace peut se décomposer en une composante absorbée et une composante diffusée.

$$\sigma_c = \sigma_{\text{ab}} + \sigma_{\text{dif}} \quad (\text{I-4})$$

La section efficace totale de l'effet Compton σ_c dépend linéairement du numéro atomique Z et diminue lorsque l'énergie du photon augmente.

$$\sigma \propto \frac{Z}{E_\gamma} \quad (\text{I-5})$$

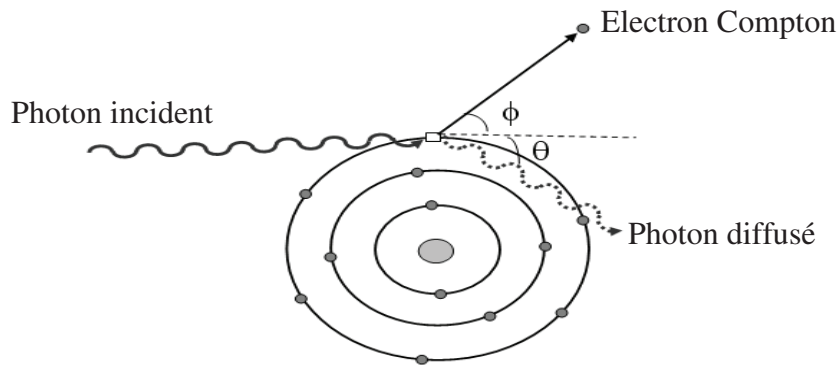


Figure I-4 : Effet Compton.

I.3. Création de paire

Dans la production de paire, le photon disparaît en interagissant avec le champ coulombien du noyau (figure I-5) ou de l'électron (production de triplet). L'énergie minimum nécessaire (énergie seuil d'interaction) que devrait avoir le photon incident pour obtenir la création de paire électron-positron est de 1,022 MeV ($2m_e c^2$). Au-dessous de ce seuil, la probabilité de production de paire est égale à zéro. Pour la production de triplet l'énergie du photon doit être égale 2,044 MeV ($4m_e c^2$). Les énergies cinétiques de l'électron (E_{e^-}) et du positron (E_{e^+}) sont liées à celle du photon (E_γ) par :

$$E_\gamma = 2m_e c^2 + E_{e^-} + E_{e^+} \quad (\text{I-6})$$

L'électron et le positron, mis en mouvement par le photon, sont ralentis dans le milieu matériel. Le positron à la fin de son parcours s'annihile avec un électron en émettant, dans des directions opposées (180°), deux photons de 511 keV chacun.

La section efficace d'interaction σ_{paire} dans le champ coulombien du noyau et dans celui de l'électron varie respectivement en Z^2 et Z .

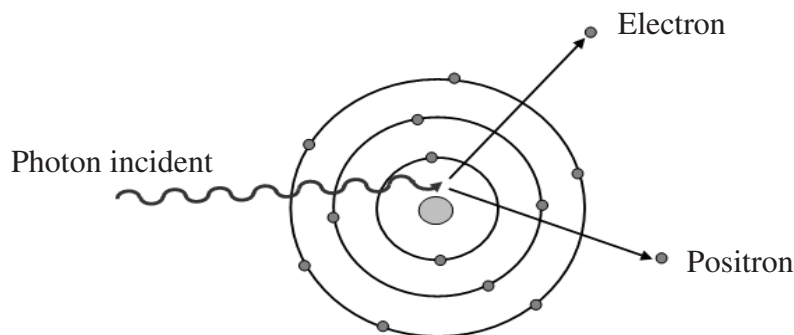


Figure I-5 : Création de paire.

I.4. Loi d'atténuation

L'interaction des rayonnements électromagnétiques avec la matière se traduit par l'atténuation du faisceau incident. Ainsi, dans le cas d'un faisceau monoénergétique parallèle, l'intensité du faisceau I n'ayant pas été atténuée par le milieu traversé d'épaisseur x est liée au faisceau incident I_0 par une loi exponentielle du type :

$$I(x) = I_0 \times e^{-\mu x} \quad (\text{I-7})$$

où μ est le coefficient d'atténuation linéique ; il dépend de l'énergie du photon et du numéro atomique Z du milieu traversé. Il est lié à la section efficace microscopique d'interaction totale σ_{tot} par la relation :

$$\mu = n \times \sigma_{\text{tot}} = n \times (\sigma_{\text{pe}} + \sigma_{\text{c}} + \sigma_{\text{paire}}) \quad (\text{I-8})$$

avec σ_{pe} , σ_{c} et σ_{paire} les sections efficaces des processus d'interaction individuels des photons et n le nombre d'atomes cibles par unité de volume :

$$n = \rho \times \frac{N_A}{M} \quad (\text{I-9})$$

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

Pour une utilisation en dosimétrie des rayonnements photoniques, des coefficients d'atténuation supplémentaires sont définis : le coefficient de transfert en énergie μ_{tr} et le coefficient d'absorption en énergie μ_{ab} . Ces deux coefficients sont liés à μ par [4] :

$$\mu_{\text{tr}} = \mu \times \frac{\overline{E_{\text{tr}}}}{E_{\gamma}} \quad \text{et} \quad \mu_{\text{ab}} = \mu \times \frac{\overline{E_{\text{ab}}}}{E_{\gamma}} \quad (\text{I-10})$$

où $\overline{E_{\text{tr}}}$ est l'énergie moyenne transférée aux particules chargées dans le milieu et $\overline{E_{\text{ab}}}$ l'énergie moyenne déposée par les particules chargées dans le milieu.

Dans la littérature les valeurs de μ sont généralement exprimées sous forme de coefficient d'atténuation massique μ/ρ en cm^2/g calculés couramment avec le logiciel XCOM [5]. Les figures I-6 et I-7 montrent la variation de ces coefficients en fonction de l'énergie du photon dans le verre RPL tenant compte de la composition du verre, et dans le cadmium, matériau qui sera utilisé dans ce travail pour convertir les neutrons thermiques en photons γ .

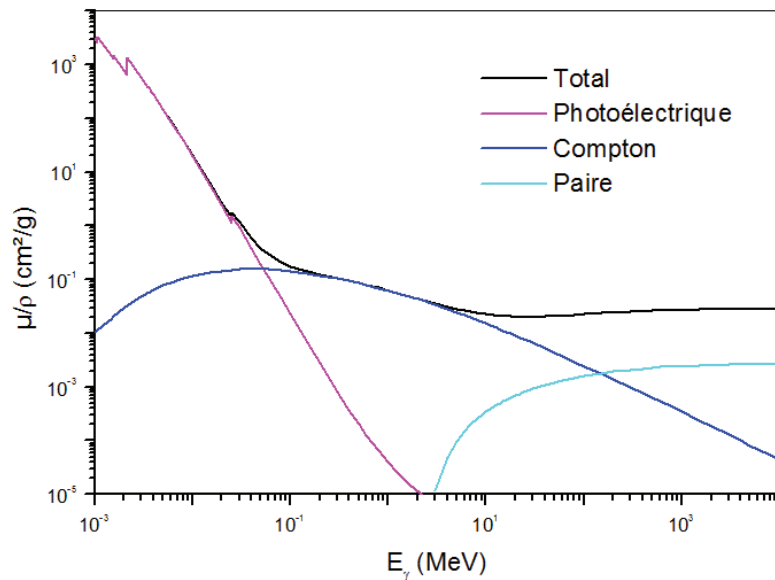


Figure I-6 : Coefficients d'atténuation massiques du verre RPL.

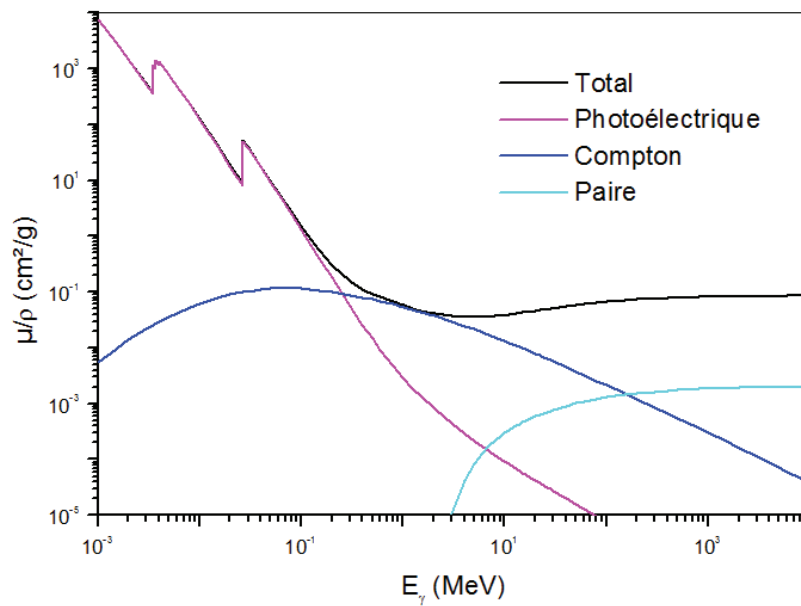


Figure I-7 : Coefficients d'atténuation massiques du cadmium.

II. Particules chargées

Les particules chargées sont classées en deux groupes, les légères (électron et positron) et les lourdes (p, α , fragments de fission ions). A l'inverse des particules neutres, les particules chargées ne disparaissent pas lors de leur interaction avec la matière, mais ralentissent progressivement jusqu'à leur arrêt (si l'épaisseur du matériau cible est suffisante). L'interaction avec le milieu se compose en réalité par un très grand nombre de faibles transferts d'énergie cinétique, accompagnés des faibles changements de directions.

II.1. Pouvoir d'arrêt

L'ionisation et l'excitation atomique se traduisent par une perte d'énergie par collision dans le milieu traversé. On parle de pouvoir d'arrêt S exprimé en $J.m^{-1}$ ou $MeV.cm^{-1}$ qui représente l'énergie perdue par une particule chargée par unité de longueur de la trajectoire parcourue.

$$S = -\frac{dE}{dx} \quad (I-11)$$

Le pouvoir d'arrêt se répartit en deux composantes :

- le pouvoir d'arrêt par collision S_{col} , résultant de l'interaction électron-électron orbital. Ce dernier joue un rôle important dans le calcul de la dose absorbée par un milieu.
- le pouvoir d'arrêt radiatif S_{rad} , résultant de l'interaction électron-noyau.

Le pouvoir d'arrêt total est la somme des pouvoirs d'arrêts par collision et par radiation :

$$S_{tot} = S_{col} + S_{rad} \quad (I-12)$$

II.2. Particules lourdes chargées

Les interactions de ces particules avec le milieu peuvent se faire suivant différentes façons :

- La diffusion élastique sur un noyau atomique, rendue célèbre par Rutherford, plus rare que la diffusion sur des électrons.
- La diffusion élastique sur un électron : elle n'a lieu que pour des particules chargées de faible énergie (<100 eV).

- La diffusion inélastique avec un noyau : dans ce cas, la particule est déviée et peut rayonner une partie de son énergie par Bremsstrahlung. La particule peut aussi céder une partie de son énergie au noyau qui va alors se retrouver dans un état excité (excitation coulombienne), phénomène rare.
- La diffusion inélastique avec un électron : c'est le processus prépondérant d'interaction des particules lourdes chargées. En fonction de l'énergie incidente, la réaction va conduire soit à l'excitation, soit à l'ionisation du milieu. Pendant le ralentissement sont créés principalement des électrons de faible énergie. Dans certains cas, les électrons secondaires sont suffisamment énergétiques pour ioniser à leur tour la matière : ce sont des électrons δ .

II.2.1. Ionisation à faible transfert d'énergie

Pour une particule modérément relativiste, le pouvoir d'arrête ou encore sa perte d'énergie par unité de parcours dE/dx est donnée par la formule de Bethe-Bloch. En dosimétrie, on parle de Transfert Linéique en Energie (TLE) qui correspond à l'énergie moyenne transférée par les particules incidentes à la matière par unité de longueur. Son expression en mécanique relativiste est donnée par :

$$\text{TLE} = \left| -\frac{dE}{dx} \right| = \frac{z^2 e^4}{4\pi \epsilon_0^2 m_e v^2} n Z \left[\log \left(\frac{2m_e v^2}{I} \right) - \log \left(1 - \frac{v^2}{c^2} \right) - \frac{v^2}{c^2} - \xi \right] \quad (\text{I-13})$$

avec :

v, z : la vitesse et la charge de la particule lourde chargée,

m_e, e : respectivement la masse au repos et la charge de l'électron,

$\epsilon_0 = 8,854 \times 10^{-10} \text{ F.cm}^{-1}$ la permittivité du vide,

$c = 3 \times 10^8 \text{ m/s}$ la célérité de la lumière dans le vide,

n, Z : respectivement le nombre d'atomes par unité de volume et le numéro atomique du matériau traversé,

ξ : un terme qui prend en compte différents termes correctifs : effets de couche aux basses énergies, densité apparente du milieu aux très hautes énergies ou pour les ions multichargées. Il dépend aussi de l'énergie et de Z lorsque l'on tient compte de la structure complète des noyaux de la matière,

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

$$I = 9,1 \times Z \left(1 + 1,9 \times Z^{-2/3} \right) \quad (\text{I-14})$$

Notons que la particule chargée peut s'approprier un ou deux électrons au cours de son ralentissement. Dans la formule de Bethe la charge est alors remplacée par la charge effective Z^* . Cette charge effective est calculée par la relation empirique :

$$Z^* = Z \left(1 - e^{-\frac{125 v}{Z^{2/3} c}} \right) \quad (\text{I-15})$$

Pour un milieu composé de N éléments, la loi de Bragg permet de calculer le TEL dans ces milieux :

$$(\text{TLE})_{\text{composé}} = \sum_{i=1}^n m_i (\text{TLE})_i \quad (\text{I-16})$$

TLE_i étant le pouvoir d'arrêt de l'élément i de fraction massique m_i .

II.3. Les électrons

Quand un électron traverse un milieu, il interagit soit avec les électrons orbitaux constituant les atomes du milieu, soit avec leur noyau. Ces interactions peuvent être élastiques (électron dévié de sa trajectoire initiale sans perte d'énergie) ou inélastiques (transfert d'énergie à un électron orbital ou émission d'énergie sous forme de rayonnement de freinage). On parle de collision (ionisation et excitation) lors d'une interaction électron-électron ou de freinage dans le cas d'une interaction électron-noyau.

II.3.1. Interactions électron – électron orbital

L'interaction coulombienne entre un électron incident et un électron orbital d'un milieu atomique se manifeste sous forme d'ionisation ou d'excitation du milieu.

Ionisation : il y a transfert d'énergie à un électron du milieu qui est éjecté de l'atome. Cette interaction n'est possible que si l'électron incident a une énergie supérieure à l'énergie de liaison de l'électron du cortège électronique.

Excitation : le transfert d'énergie de l'électron incident est inférieur à l'énergie de liaison de l'électron orbital. Ce dernier passe d'une couche électronique à une autre couche. On parle

d'excitation du cortège électronique. Il s'ensuit un réarrangement dudit cortège avec émission de rayonnement électromagnétique (X, UV) ou d'électron dit électron "Auger".

II.3.1.1. Pouvoir d'arrêt par collision S_{col}

Pour les électrons et positrons la perte d'énergie par unité de parcours est donnée par l'équation :

$$-\left(\frac{dE}{dx}\right)_{col} = \frac{4\pi e^4 n k_0^2}{m c^2 \beta^2} \left[\ln \frac{m c^2 \tau \sqrt{\tau + 2}}{\sqrt{2} I} \right] + F^\pm(\beta) \quad (I-17)$$

Avec :

$$F^-(\beta) = \frac{1 - \beta^2}{2} \left[1 + \frac{\tau^2}{8} - (2\tau + 1) \ln 2 \right] \quad (I-18)$$

pour les électrons et :

$$F^+(\beta) = \ln 2 - \frac{\beta^2}{24} \left[23 + \frac{14}{\tau + 2} + \frac{10}{(\tau + 2)^2} + \frac{4}{(\tau + 2)^3} \right] \quad (I-19)$$

pour les positrons.

où

$$k_0 : 8,99.10^9 \text{ N.m}^2.\text{C}^{-2}$$

m, e : respectivement la masse au repos et la charge de l'électron,

$c = 3 \times 10^8$ m/s la célérité de la lumière dans le vide,

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

β : v/c

I : la valeur moyenne du potentiel d'ionisation du milieu traversé.

II.3.2. Interactions électron – noyau

Il s'agit d'une interaction coulombienne entre l'électron incident et le noyau de l'atome. Ce phénomène se produit lorsqu'un électron de grande énergie cinétique passe au voisinage d'un noyau. Sa trajectoire est déviée et il subit une accélération due à l'effet du champ coulombien du noyau auquel il est soumis. Selon les lois de l'électromagnétisme classique, toute particule chargée soumise à une accélération émet un rayonnement électromagnétique véhiculant une énergie proportionnelle au carré de l'accélération qu'elle subit. Cela se traduit par un ralentissement ou freinage. L'énergie perdue par la particule est émise sous forme de rayonnement X de freinage appelé encore Bremsstrahlung (en allemand).

II.3.2.1. Pouvoir d'arrêt par radiation S_{rad}

Ce phénomène est plutôt caractéristique de l'électron en raison de sa faible masse. Pour des électrons et positrons avec une énergie cinétique T (MeV) dans un milieu de nombre atomique Z , la perte d'énergie due à cette émission est donnée par l'expression :

$$-\left(\frac{dE}{dx}\right)_{rad} = \frac{ZT}{800} \left(\frac{dE}{dx}\right)_{col} \quad (I-20)$$

II.4. Parcours

II.4.1. Particules lourdes

Le parcours définit la longueur de la trajectoire d'une particule dans la matière. Tout au long de cette trajectoire, la particule perd graduellement et continuellement son énergie cinétique selon un processus appelé Continuous Slowing Down Approximation (CSDA) [4]. Le parcours R_{CSDA} d'une particule chargée d'énergie cinétique T_0 est lié au pouvoir d'arrêt de collision par la relation suivante :

$$R_{CSDA} = \int_{T_0}^0 dx = \int_0^{T_0} \left(-\frac{dE}{dx}\right)^{-1} dE \quad (I-21)$$

Une des grandeurs pratiques en dosimétrie est le parcours projeté (portée) qui correspond à la profondeur de pénétration maximale par la particule dans un milieu. Ce dernier joue un rôle important dans la détection des particules chargées car la plupart des détecteurs pour ces dites particules présentent une zone morte. Donc la détection dépend beaucoup de la longueur du parcours de la particule dans le détecteur.

II.4.1.1. Les particules alpha

II.4.1.1.1. Processus d'interaction

L'interaction de l'alpha avec la matière se fait essentiellement par collision avec les électrons du cortège électronique. Du fait de leur masse plus élevée que celle des électrons, la probabilité d'interaction avec le noyau est très faible et n'apparaît qu'en fin de parcours. Lors de l'interaction, une partie de l'énergie de la particule α est cédée à un électron et on observe

les deux effets connus que sont l'ionisation et l'excitation. La perte d'énergie et le ralentissement dans la matière se caractérisent par le pouvoir d'arrêt.

Les figures I-8 et I-9 représentent les variations du pouvoir d'arrêt électronique en fonction de l'énergie des protons et des alphas dans le verre RPL, obtenues grâce au logiciel SRIM (Stopping and Range of Ions in Matter) [7].

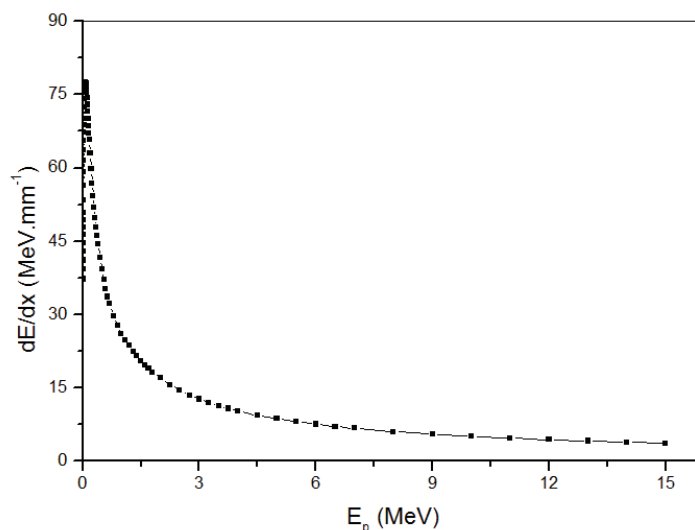


Figure I-8 : Pouvoir d'arrêt des protons dans le verre RPL.

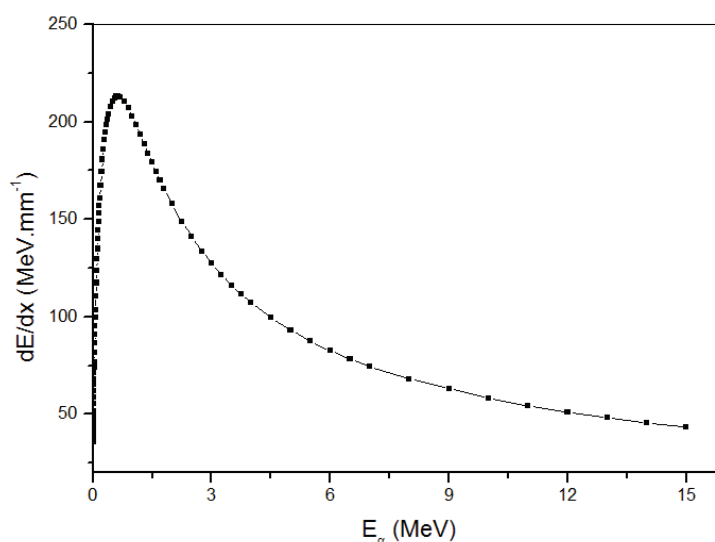


Figure I-9 : Pouvoir d'arrêt des particules alphas dans le verre RPL

La trajectoire des particules lourdes chargées dans la matière est pratiquement rectiligne, ce qui permet d'assimiler le parcours à la portée avec une légère déviation en fin de parcours.

Une relation permettant de calculer la portée des alphas en cm (avec une précision de $\pm 10\%$) dans l'air est donnée par :

$$P_{air} = 0,32 \times E^{1,5} \text{ pour } 3 \text{ MeV} < E < 9 \text{ MeV} \quad (\text{I-22})$$

De cette relation de référence, on peut déterminer la portée dans différents matériaux via la règle de Kleeman donnée par [8] :

$$\frac{P_1}{P_2} = \frac{\rho_2}{\rho_1} \times \sqrt{\frac{A_1}{A_2}} \quad (\text{I-23})$$

avec P_1/P_2 , ρ_1/ρ_2 , A_1/A_2 respectivement le parcours, la masse volumique et le nombre de masse des matériaux 1 et 2. Le matériau étalon le plus souvent utilisé est l'air ($A=14$). Les figures I-10 et I-11 donnent les variations en fonction de l'énergie du parcours projeté des protons et des alphas dans le verre RPL [7].

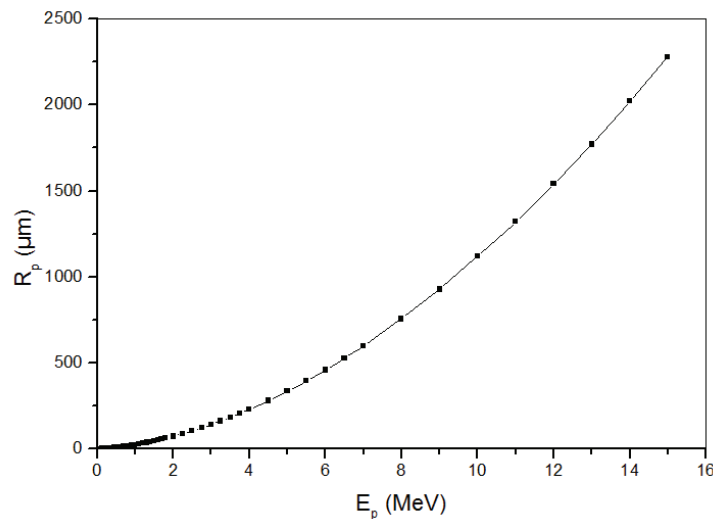


Figure I-10 : Parcours des protons dans le verre RPL.

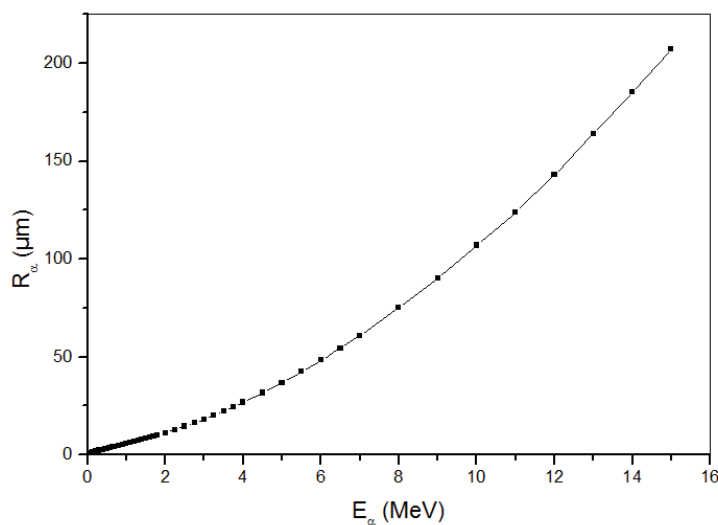


Figure I-11 : Parcours des particules alpha dans le verre RPL.

II.4.2. Cas des électrons

La trajectoire d'un électron est souvent plus erratique et sinueuse que celle d'une particule lourde chargée, et c'est à cause des grands transferts d'énergie possibles à chaque collision. Le parcours moyen est alors défini comme l'épaisseur d'un matériau qui réduit l'intensité d'un faisceau d'électrons monoénergétiques de moitié. Pour estimer la valeur de ce parcours, il n'existe pas de formule analytique mais seulement des relations empiriques.

Il existe plusieurs relations empiriques permettant d'exprimer la portée des électrons dans un matériau dont l'une d'elle est [6] :

$$P = 0,412 \times \frac{E^{1,265-0,0954 \times \ln E}}{\rho} \quad (\text{I-24})$$

où P est la portée (en cm), E l'énergie de l'électron (en MeV) et ρ la masse volumique du matériau (en g/cm^3). Cette relation ne s'applique que si $10 \text{ keV} < E < 2,5 \text{ MeV}$.

III. Neutrons

III.1. Généralités

Le neutron est un rayonnement particulaire indirectement ionisant dépourvu de toute charge. Il est instable lorsqu'il se trouve isolé du noyau, c'est-à-dire non lié, avec une demi-vie de 12 minutes [1]. Les forces coulombiennes n'interviennent pas dans le processus d'interaction des neutrons avec la matière, ce qui rend sa détection difficile compte tenu de l'insensibilité à l'action de tout champ électrique. Les probabilités d'interaction des neutrons avec la matière dépendent beaucoup de leur énergie. Ainsi, les neutrons sont classés en familles en fonction de leur énergie comme indiqué dans le tableau I-1.

Type de neutrons	Energie cinétique
Ultra-froid	< 100 neV
Froid	< 25 meV
Thermique	25 meV – 0,5 eV
Épithermique	0,5 eV – 50 keV
Intermédiaire	50 keV – 1 MeV
Rapide	1 MeV – 20 MeV
Relativiste	> 20 MeV

Tableau I-2 : Classification des neutrons en fonction de leur énergie.

Du fait de l'absence de charge, les neutrons n'interagissent qu'avec les noyaux des atomes du milieu traversé. A l'issue de ces interactions, le neutron peut complètement disparaître (absorption) ou simplement perdre de l'énergie (diffusion). Dans la figure I-12 sont résumés les différents types d'interaction avec la matière.

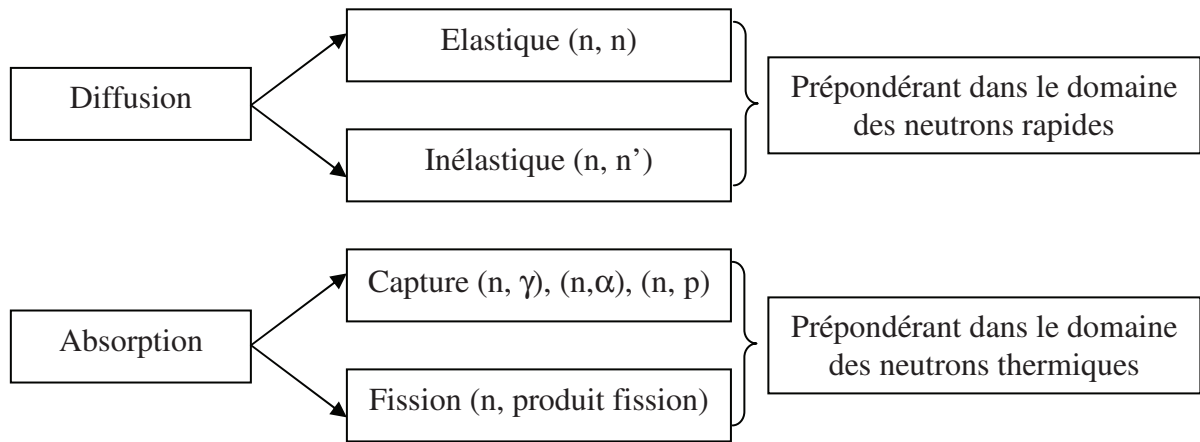


Figure I-12 : Différents types d'interactions des neutrons avec la matière.

III.2. Diffusion élastique

Ce type d'interaction est sans seuil et est possible pour tout neutron de toute énergie. Le neutron incident cède entièrement son énergie cinétique au neutron diffusé et au noyau du milieu traversé appelé noyau de recul. L'énergie transférée au noyau est d'autant plus grande que la masse de ce dernier est faible. L'angle de diffusion du neutron dépend du transfert d'énergie et du nombre de nucléons de la cible. La figure I-13 représente schématiquement une diffusion élastique du neutron.

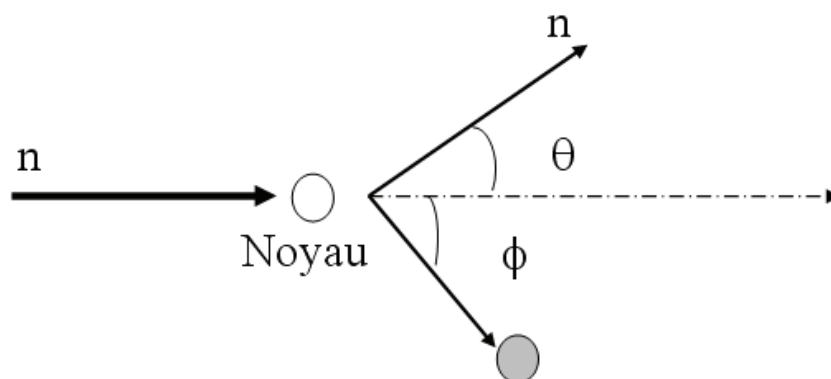


Figure I-13 : Processus de diffusion élastique du neutron.

La conservation de l'énergie et de la quantité de mouvement, permet de calculer l'énergie cinétique E_{noyau} cédée au noyau de recul.

$$E_{\text{noyau}} = \frac{4m_n m_{\text{noyau}}}{(m_n + m_{\text{noyau}})^2} \times E_n \times \cos^2 \phi \quad (\text{I-25})$$

où m_n et m_{noyau} sont respectivement les masses du neutron et du noyau de recul, E_n l'énergie du neutron incident et ϕ l'angle avec lequel recule le noyau dans le système du laboratoire. Dans le cas de l'atome d'hydrogène, donc du proton ($m_p = m_n$), l'énergie cinétique du proton de recul sera $E_p = E_n \cos^2 \phi$. C'est principalement ce processus de ralentissement et de transfert maximum d'énergie du neutron qui a été utilisé pour la dosimétrie des neutrons rapides dans ce travail.

III.3. Diffusion inélastique

Dans ce cas, le neutron incident est momentanément absorbé par le noyau qui est mis dans un état excité. Un neutron de plus faible énergie est réémis et le noyau se désexcite en émettant un rayonnement γ ou un électron de conversion interne. Du fait de l'existence de niveaux d'excitation possibles du noyau, cette réaction est à seuil. Donc elle n'est possible que si le premier niveau énergétique du noyau cible est inférieur à l'énergie du neutron incident [9]. Le noyau subit un recul en emportant une partie de l'énergie fournie par le neutron. La diffusion inélastique est privilégiée pour les neutrons rapides dans les noyaux lourds avec des sections efficaces élevées. La figure I-14 schématise le processus de diffusion inélastique du neutron.

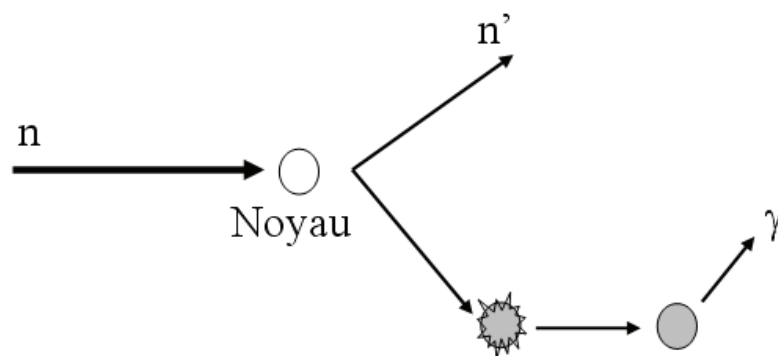


Figure I-14 : Processus de diffusion inélastique du neutron.

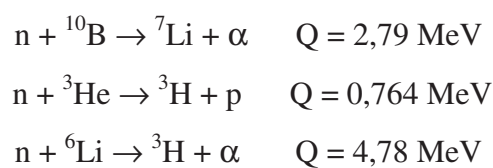
III.4. Capture radiative

L'absorption du neutron incident conduit à la formation d'un noyau composé. Le noyau se trouve alors dans un état énergétique supérieur à son état fondamental (état excité). La désexcitation s'accompagne par l'émission de rayonnement γ . C'est le type de réaction telle que $^{113}\text{Cd}(n,\gamma)^{114}\text{Cd}$. Cette réaction sera privilégiée dans le cadre de ce travail pour la détection des neutrons thermiques. On parle aussi d'activation lorsque le noyau obtenu est radioactif. Ce phénomène est possible avec le détecteur utilisé dans ce travail (activation de l'argent).

La section efficace de capture des neutrons étant inversement proportionnelle à leur vitesse, la réaction est d'autant plus probable que l'énergie des neutrons est faible (maximum pour les neutrons thermiques).

III.5. Capture avec émission des particules chargées

Dans ces réactions à seuil, le neutron est absorbé par le noyau cible. L'énergie d'excitation du noyau composé constitué peut servir à l'émission de particules chargées. Les produits de réaction dans ce cas sont des noyaux d'atomes légers dont le nombre de masse est inférieur à celui du noyau cible. Parmi ces interactions nous avons les réactions (n, p) ou (n, α) dont les produits permettent la détection du neutron suite à son interaction avec le milieu détecteur. Ces réactions sont du domaine des neutrons thermiques pour les noyaux légers.



III.6. Fission

C'est un processus d'absorption où un noyau lourd capte un neutron. Le noyau composé ainsi formé va se scinder en général en deux fragments accompagnés d'un dégagement de chaleur. Il se produit en moyenne la libération de 2 ou 3 neutrons rapides ainsi que des photons gamma. Les produits de fission peuvent être des noyaux instables et se désintégrer par décroissance β suivie de l'émission de plusieurs photons. Ces réactions dont les produits sont

des particules chargées lourdes fortement ionisantes (très énergétiques) ne seront pas exploitées dans ce travail.

III.7. Loi d'atténuation

Comme pour les rayonnements électromagnétiques, l'atténuation des neutrons dans un milieu traversé suit une loi de forme exponentielle :

$$\Phi(x) = \Phi_0 \times e^{-\Sigma x} \quad (\text{I-26})$$

avec

$$\Sigma = n \times \sigma_{\text{tot}} \text{ et } n = \rho \times \frac{N_A}{M} \text{ et } \sigma_{\text{tot}} = (\sigma_{\text{ab}} + \sigma_{\text{dif}})$$

où $\Phi(x)$ et Φ_0 sont respectivement le flux des neutrons n'ayant subi aucune interaction dans le milieu traversé et celui des neutrons incidents,

Σ la section efficace macroscopique,

σ_{ab} et σ_{dif} les sections efficaces partielles d'absorption et de diffusion,

n le nombre d'atomes cible par unité de volume,

ρ la masse volumique,

N_A le nombre d'Avogadro,

M la masse molaire.

III.8. Sources des neutrons

Il existe trois principales méthodes de production des rayonnements neutroniques :

- Les neutrons issus des sources radioactives
- Les neutrons issus d'accélérateurs des particules
- Les neutrons produits par des réacteurs

III.8.1. Sources radioactives

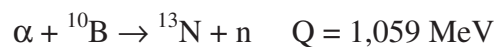
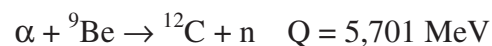
Il s'agit des neutrons produits à partir de la fission spontanée de noyaux ou de réactions nucléaires (α, n) ou (γ, n).

Fission spontanée

Contrairement à la fission induite qui nécessite un apport d'énergie (utilisation d'une particule incidente), celle-ci survient spontanément. Elle peut être observée dans certains noyaux lourds possédant un excédent de nucléons. C'est le cas par exemple de la source de fission spontanée de ^{252}Cf utilisée pour les étalonnages en routine. L'intensité d'émission d'une telle source est de $2,3 \times 10^9$ neutrons/s par milligramme de ^{252}Cf avec une énergie moyenne d'environ 2 MeV [10].

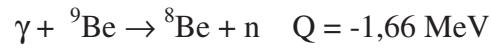
Réaction nucléaire (α, n)

Initiées dans le but de mesurer les rayonnements gamma, ces réactions ont conduit en 1932 le physicien britannique James Chadwick à la découverte du neutron. Il a constaté que pour une source de rayons α donnée, les rayonnements issus des réactions $\text{Be} + \alpha$ ou $\text{B} + \alpha$ produisent des particules chargées (protons de recul) à la suite de leur interaction avec l'hydrogène. C'est ainsi que l'observation des énergies de recul ont conduit à l'hypothèse de l'existence d'une particule très pénétrante non chargée appelée neutron. Les sources neutroniques sont réalisées à partir d'un mélange d'émetteurs α (^{241}Am , ^{210}Po , ^{238}Pu) associés à un élément léger (^9Be , ^{10}B , ^{11}B , ^7Li , ...). Les neutrons émis présentent généralement une distribution angulaire isotrope. Ceux obtenus à partir du ^9Be possèdent le rendement le plus important. Ci-dessous deux réactions exoénergétiques de type (α, n).



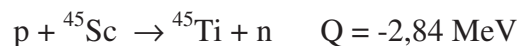
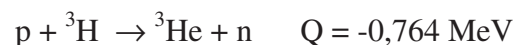
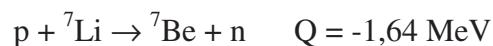
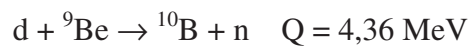
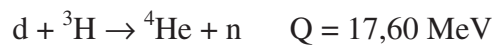
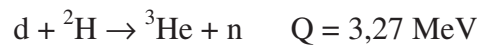
Réaction nucléaire (γ, n)

Dans ce cas les neutrons sont produits via des réactions photonucléaires. Ces dernières se produisent lorsque le noyau d'un atome absorbe un photon de haute énergie. Il en résulte ainsi l'émission d'un neutron et une transformation du noyau en un produit radioactif. Le seuil pour ces types de réactions est de l'ordre de 10 MeV pour la plupart des noyaux à l'exception du béryllium et du deutérium pour lesquels il est de l'ordre de 2 MeV [4]. Ci-dessous quelques réactions endoénergétiques de type (γ, n) :



III.8.2. Accélérateurs de particules

Les neutrons sont produits à partir d'accélérateurs via des réactions nucléaires bien choisies, (p, n), (d, n) ou (t, p). Les particules issues des accélérateurs peuvent induire les réactions citées et conduire à l'émission des neutrons. Leurs énergies varient de quelques keV à plusieurs dizaines de MeV et dépendent de l'angle d'émission. Ci-dessus quelques réactions issues d'accélérateurs de protons ou de deutons [11]. Les neutrons sont produits dans tout l'espace, avec une seule énergie à un angle d'émission donné.



III.8.3. Réacteurs nucléaires

Dans les réactions nucléaires, les neutrons sont majoritairement produits par la fission des noyaux combustibles. Les réactions peuvent être spontanées (cas de l' ${}^{238}\text{U}$ et du ${}^{240}\text{Pu}$) ou induites (dus à l'absorption d'un neutron par les noyaux ${}^{235}\text{U}$, ${}^{233}\text{U}$, ${}^{239}\text{Pu}$, ${}^{241}\text{Pu}$). En moyenne 2 ou 3 neutrons sont émis au cours de ces réactions. En voici quelques exemples :



Des neutrons peuvent également être créés par un mécanisme de réaction appelé spallation. Pour cela, on bombarde des noyaux avec des faisceaux de protons de l'ordre du GeV. Sous le choc du projectile, le noyau cible peut produire des jets de particules légères (neutrons, protons, alphas, etc....).

III.8.4. Détection des neutrons

De façon générale, les rayonnements ne peuvent être détectés qu'à la suite de leur interaction avec la matière. Mais la détection des neutrons, principalement en dosimétrie, reste entravée de limitations, du fait de leur insensibilité à tout champ électrique et du fait que leur émission est quasiment accompagnée de rayonnements gamma dont le signal peut être difficile à séparer de celui des neutrons, selon la technique de détection. Dans ce contexte, ce sont les particules secondaires résultant de l'interaction avec la matière qui permettent leur détection. Ainsi les différentes méthodes de détection des neutrons dépendent du processus d'interaction avec la matière, ce qui nécessite l'utilisation d'écrans en termes de convertisseurs selon chaque famille de neutrons.

Neutrons rapides

La réaction mise à profit pour la détection des neutrons rapides est la collision. Il s'agit d'adjoindre au détecteur un modérateur fait d'un matériau riche en hydrogène. La diffusion élastique ou inélastique sur le modérateur, principalement sur l'hydrogène, permet de produire des protons de recul qui sont détectables. Le matériau le plus utilisé est le polyéthylène car fortement hydrogéné. Sa formule générale est $(CH_2)_n$ avec une densité d'environ 0,93.

La variation des sections efficaces de diffusion élastique sur l'hydrogène et le carbone en fonction de l'énergie des neutrons est représentée sur la figure I-15 [12].

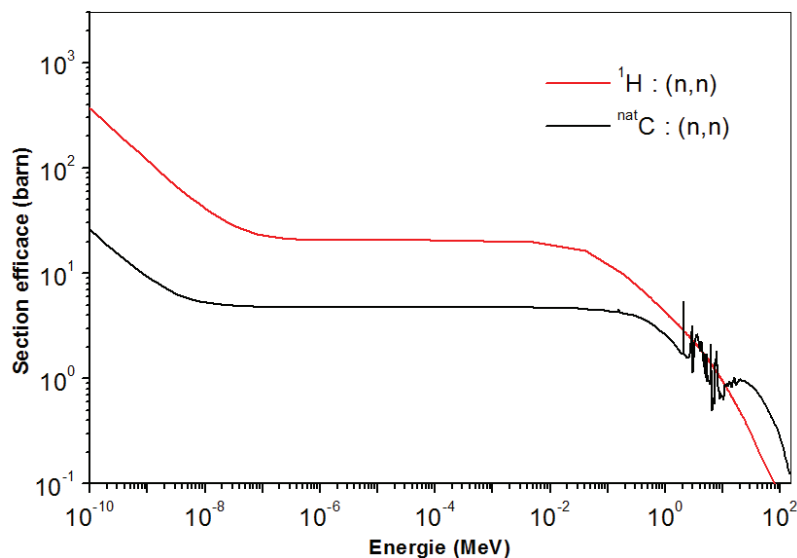


Figure I-15 : Sections efficaces de diffusion élastique des neutrons sur l'hydrogène et le carbone, extraites de la base des données JEFF 3.1.

Neutrons thermiques

Pour détecter les neutrons thermiques, des réactions d'absorption sur des convertisseurs en bore, lithium ou cadmium sont utilisées avec l'émission de particules chargées ou de gammas qui sont facilement détectables. Le matériau convertisseur le plus utilisé pour la détection des neutrons thermiques est le bore. L'interaction de ces neutrons va y provoquer une réaction (n, α) et ce sont les produits de cette réaction qui seront détectés. Cette méthode couramment utilisée a montré, dans cette étude, ses limites avec le dosimètre RPL (verre RadioPhotoLuminescent), lorsque le convertisseur boré était utilisé sous forme d'écran. Pour cette raison nous avons eu recours au cadmium dont l'interaction avec les neutrons thermiques produit des rayonnements gammas qui sont très pénétrants.

La variation de la section efficace en fonction de l'énergie des neutrons pour la réaction (n, α) sur le bore et le lithium et (n, γ) sur le cadmium est représentée sur la figure 1.16 [12].

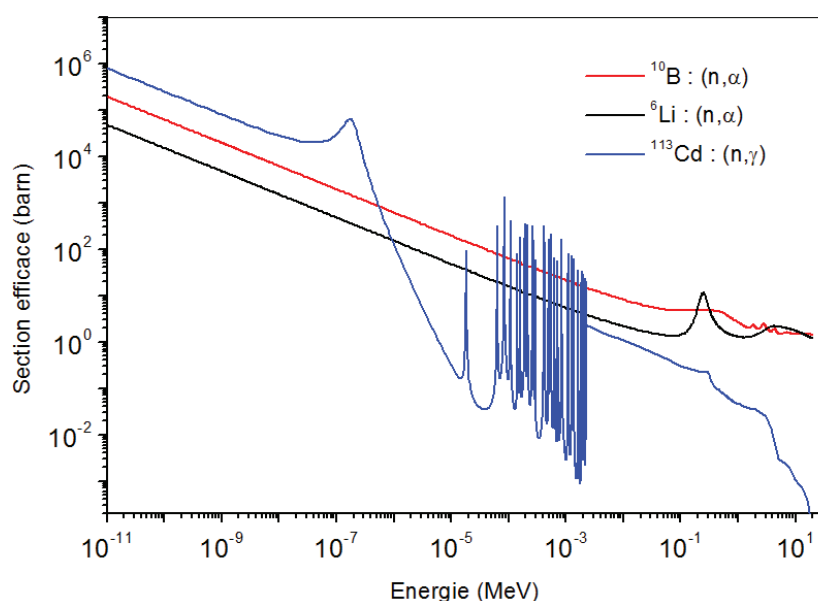


Figure I-16 : Sections efficaces des neutrons en fonction de l'énergie pour le bore, le lithium et cadmium, extraites de la base des données JEFF 3.1.

IV. Dosimétrie des rayonnements ionisants

La dosimétrie joue un rôle primordial dans la métrologie des rayonnements ionisants. Elle permet d'estimer les effets nocifs que peut engendrer tout rayonnement, artificiel (UV, X, γ , α , f, p, n, et β) ou naturel (solaire, cosmique, radioéléments.....), sur les personnes professionnellement et non professionnellement exposées. La Commission Internationale de

Protection Radiologique (CIPR) actualise régulièrement ses recommandations en s'appuyant sur les récentes informations dans les domaines biologique et physique de l'exposition aux rayonnements ionisants. L'application de ces recommandations nécessite une bonne connaissance des grandeurs utilisées en radioprotection et en dosimétrie. A chaque grandeur correspond un concept et une unité spécifique établie par l'ICRU (International Commission on Radiation Units and Measurements). La figure I-17 résume les relations existant entre les différentes grandeurs.

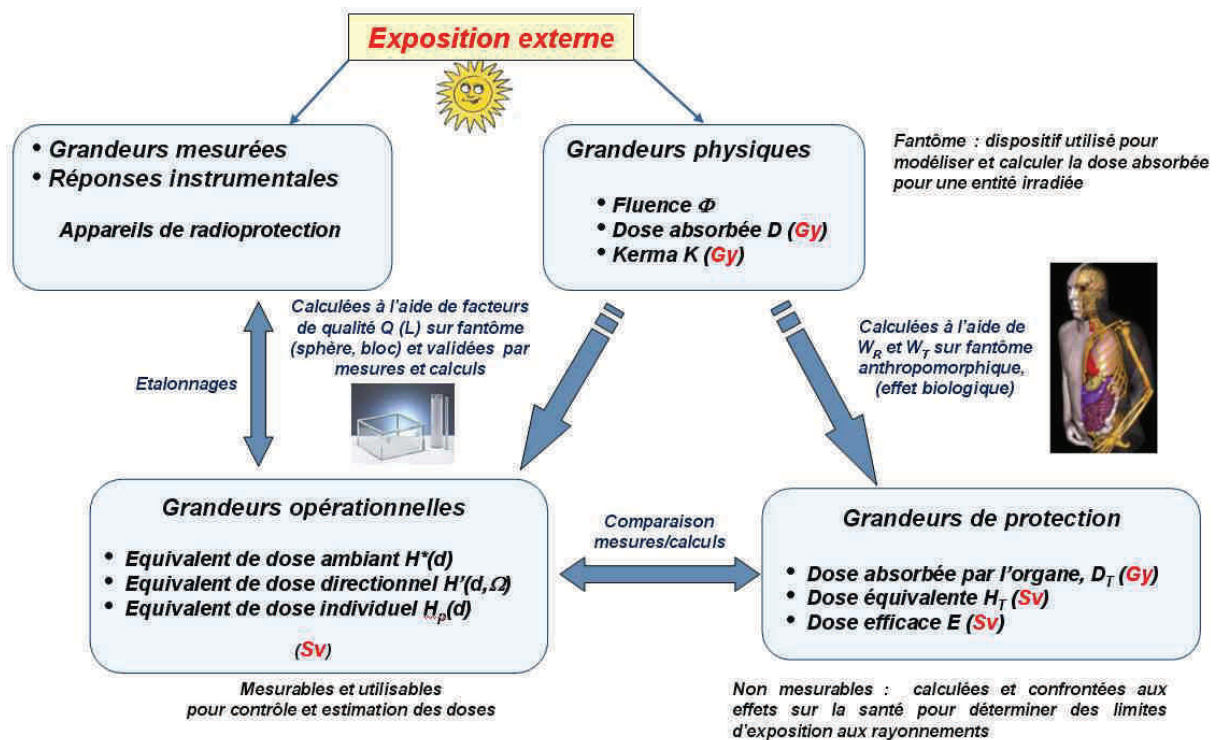


Figure I-17 : Relation entre les grandeurs utilisées en radioprotection et en dosimétrie.

IV.1. Grandeurs en radioprotection et dosimétrie

La radioprotection est définie comme l'ensemble des règles, des procédures et des moyens de prévention et de surveillance visant à empêcher ou à réduire les effets nocifs des rayonnements ionisants produits sur les personnes directement ou indirectement, y compris lors des atteintes portées à l'environnement.

L'appareil qui permet la caractérisation des sources de rayonnement et la prévision des effets biologiques lors d'une exposition est le dosimètre. C'est un instrument qui permet de mesurer ou d'évaluer, directement ou indirectement le kerma, la dose absorbée, la dose équivalente ou

leurs taux (dérivées temporelles) reçus par une personne exposée à un rayonnement ionisant, dans le cadre de son activité professionnelle ou d'un accident. La détermination quantitative de ces grandeurs rentre dans un concept appelé dosimétrie, c'est-à-dire l'étude du dépôt d'énergie par unité de masse par un rayonnement ionisant.

IV.1.1. Grandeurs radiométriques

Ces grandeurs caractérisent le champ de rayonnement dans le vide ou les matériaux, qu'il soit émis, transmis ou reçu.

IV.1.1.1. Champs de rayonnement

La description d'un champ de radiations ionisantes se fait au moyen de grandeurs radiométriques telles que la fluence. Ce champ de radiation peut avoir un large spectre d'énergie et une géométrie variable. Pour déterminer, en un point de l'espace, l'action d'un rayonnement dans un milieu donné, il faut connaître les caractéristiques physiques, géométriques et temporelles de ce rayonnement [13]. La figure I-18 représente une émission à partir de l'origine pour une source étendue cylindrique dans une direction : Ω , caractérisée par les angles θ et α [14]. Cette géométrie est semblable à celle de la source $^{241}\text{Am-Be}$ utilisée dans ce travail.

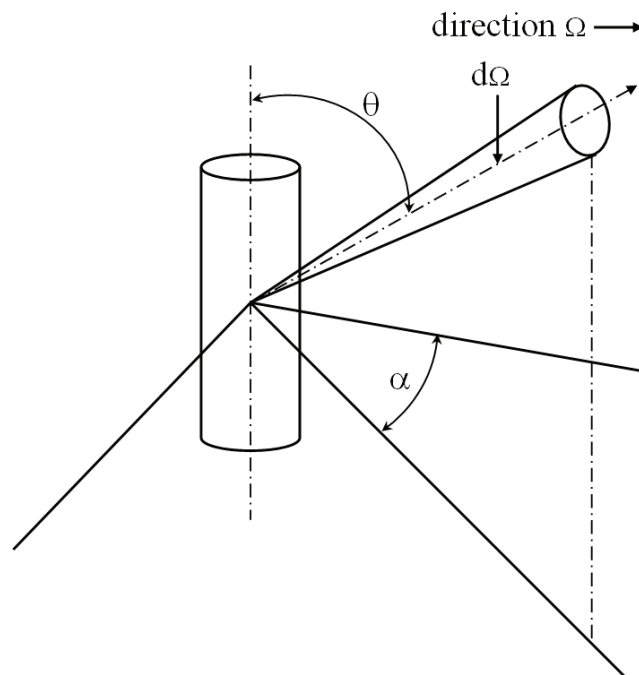


Figure I-18 : Système de coordonnées pour l'émission d'une source étendue cylindrique.

IV.1.1.2. Flux de particules

Le flux de particules \dot{N} exprimé en s^{-1} est le quotient de dN par dt , où dN représente le nombre de particules émises, transférées ou reçues pendant un intervalle de temps dt :

$$\dot{N} = \frac{dN}{dt} \quad (\text{I-27})$$

IV.1.1.3. Flux en énergie

Le flux d'énergie rayonnante \dot{E} exprimé en Watt (W) est le quotient de dE par dt , où dE représente l'énergie rayonnante ou radiante émise, transférée ou reçue pendant un intervalle de temps dt :

$$\dot{E} = \frac{dE}{dt} \quad (\text{I-28})$$

IV.1.1.4. Fluence et débit de fluence des particules

La fluence Φ exprimée en m^{-2} est le quotient de dN par da , où dN représente le nombre de particules traversant une sphère élémentaire de section diamétrale da :

$$\Phi = \frac{dN}{da} \quad (\text{I-29})$$

L'utilisation d'une sphère de section diamétrale da exprime de manière simple le fait qu'on considère une zone da perpendiculaire à la direction de chaque particule. Cette grandeur indépendante de l'angle incident de radiation est calculable si on connaît l'activité, le taux d'émission, le temps d'exposition et la position de la source.

Le débit de fluence $\dot{\Phi}$ ($m^{-2} s^{-1}$) est le quotient de $d\Phi$ par dt , où $d\Phi$ représente le nombre de particules traversant une sphère élémentaire de section diamétrale da pendant un intervalle de temps dt :

$$\dot{\Phi} = \frac{d\Phi}{dt} \quad (\text{I-30})$$

Pour une source ponctuelle isotrope le débit de fluence s'exprime par :

$$\dot{\Phi} = \frac{A \cdot I}{4\pi \cdot d^2} \quad (\text{I-31})$$

où :

- A est l'activité de la source en Becquerel ;
- I est le taux d'émission ;
- d est la distance source – point de mesure.

Cette relation permet, pour une énergie donnée, de calculer la dose ou le kerma connaissant le coefficient d'atténuation massique μ/ρ ou le pouvoir d'arrêt massique S/ρ .

IV.1.1.5. Fluence et débit de fluence en énergie

La fluence énergétique Ψ exprimée en $\text{J}\cdot\text{m}^{-2}$ est le quotient de dE par da, où dE représente l'énergie rayonnante émise, transférée ou reçue dans une sphère élémentaire de section diamétrale da :

$$\Psi = \frac{dE}{da} \quad (\text{I-32})$$

Elle peut aussi être calculée à partir de la fluence de particules à l'aide de la relation suivante :

$$\Psi = \frac{dN}{da} \times E = \Phi \times E \quad (\text{I-33})$$

où E est l'énergie de la particule et dN le nombre de particules d'énergie E.

Le débit de fluence énergétique $\dot{\Psi}$ est le quotient de dΨ par dt, où dΨ représente l'énergie rayonnante émise, transférée ou reçue dans une sphère élémentaire de section diamétrale da, pendant un intervalle de temps dt :

$$\dot{\Psi} = \frac{d\Psi}{dt} \quad (\text{I-34})$$

L'unité du débit de fluence énergétique est le $\text{W}\cdot\text{m}^{-2}$ ou $\text{J}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$.

IV.1.2. Grandeurs dosimétriques

Des grandeurs dosimétriques sont nécessaires pour évaluer de manière quantitative les expositions aux rayonnements ionisants des êtres humains ainsi que d'autres organismes. Cette évaluation est indispensable pour décrire les relations dose-réponse pour les effets des rayonnements, qui constituent la base de l'estimation du risque en protection radiologique [15]. Le mot 'dose' est issu du grec dosis qui signifie "l'action de donner". Il était utilisé initialement en médecine et chez les consommateurs de produits stupéfiants pour évaluer respectivement la quantité de médicament et de drogue à administrer. De nos jours son usage s'est étendu dans le suivi réglementaire dosimétrique. De ce fait différentes sortes de doses sont définies selon la nature du rayonnement.

IV.1.2.1. Energie déposée

L'énergie déposée dans un volume donné se définit comme la somme de tous les dépôts d'énergie dans ce volume :

$$\varepsilon = \sum_i^n \varepsilon_i \quad (\text{I-35})$$

où ε_i , est le dépôt d'énergie consécutif à une interaction.

$$\varepsilon_i = \varepsilon_{\text{in}} - \varepsilon_{\text{out}} + \sum Q$$

où ε_{in} est l'énergie incidente de la particule ionisante (à l'exclusion de l'énergie de masse), ε_{out} est la somme de toutes les énergies sortant de l'interaction sous forme de particules ionisantes (à l'exclusion de l'énergie de masse), et $\sum Q$ est la modification de l'énergie de masse du noyau et de toutes les particules impliquées dans l'interaction.

Son unité est le joule (J).

IV.1.2.2. Dose absorbée et débit de dose absorbée

La dose absorbée D est la grandeur physique de base de la protection radiologique. Elle est applicable à tous les types de rayonnements (directement et indirectement ionisants), quelle que soit la géométrie. Pour les rayonnements indirectement ionisants, l'énergie est d'abord transférée aux particules chargées secondaires du milieu sous forme d'énergie cinétique. Ces dernières vont ensuite y perdre leur énergie par collision ou sous forme de rayonnement de

freinage. Dans ce contexte, la dose absorbée est définie comme la moyenne de la distribution d'énergie déposée dans un volume de matière de masse dm par le rayonnement ionisant.

$$D = \frac{d\bar{\varepsilon}}{dm} \quad (\text{I-36})$$

Son unité est le joule par kilogramme (J.kg^{-1}) ou le gray (Gy) ou $1 \text{ Gy} = 1 \text{ J.kg}^{-1}$.

Le débit de dose absorbée \dot{D} est le quotient de dD par dt où dD est la variation de la dose absorbée pendant l'intervalle de temps dt :

$$\dot{D} = \frac{dD}{dt} \quad (\text{I-37})$$

Son unité est le joule par kilogramme par seconde ($\text{J.kg}^{-1}.\text{s}^{-1}$) ou gray par seconde (Gy.s^{-1}).

IV.1.2.3. Kerma et débit de kerma

Le terme kerma est l'acronyme anglais de « kinetic energy released per unit mass » (énergie cinétique libérée par unité de masse). Il ne s'applique qu'aux rayonnements indirectement ionisants comme les photons et les neutrons. Il permet de quantifier la quantité d'énergie moyenne transférée par les rayonnements indirectement ionisants aux rayonnements directement ionisants. Ainsi, dans un premier temps l'énergie du photon incident est transférée aux particules chargées secondaires via ses différents modes d'interaction. Ensuite la particule chargée transfère l'énergie au milieu via l'excitation et l'ionisation. De ce fait, le kerma est le quotient de la somme des énergies cinétiques initiales dE_{tr} de toutes les particules chargées mises en mouvement par les particules non chargées dans un élément de matière de masse dm .

Son unité est le joule par kilogramme (J.kg^{-1}) ou le gray (Gy) :

$$K = \frac{dE_{tr}}{dm} \quad (\text{I-38})$$

Le débit de kerma \dot{K} est le quotient de dK par dt où dK est la variation du kerma pendant

l'intervalle de temps dt :

$$\dot{K} = \frac{dK}{dt} \quad (\text{I-39})$$

Son unité est le joule par kilogramme par seconde ($\text{J.kg}^{-1}.\text{s}^{-1}$) ou gray par seconde (Gy.s^{-1}).

IV.1.2.4. Relation entre dose et kerma

Dans un élément de volume donné, on parle d'équilibre électronique lorsque les électrons mis en mouvement par les particules non chargées incidentes et qui entrent dans ce volume sont aussi nombreux que les électrons qui en sortent. Quand cet équilibre est atteint, la dose absorbée peut s'exprimer comme étant le produit du kerma par le rapport des coefficients massiques de transfert en énergie (μ_{tr}/ρ) et d'absorption en énergie (μ_{ab}/ρ) :

$$D = K \times \frac{(\mu_{tr} / \rho)}{(\mu_{ab} / \rho)} \quad (\text{I-40})$$

IV.1.3. Grandeurs de protection

Pour le seuil d'exposition aux rayonnements ionisants des personnes professionnelles et non professionnelles, on parle de limite de dose qui fait partie des trois principes généraux de la radioprotection (justification, optimisation et limitation). La réglementation française [décret n° 2003-296 du 31 mars 2003, art.231-76 §II] fixe des normes de base relatives à la protection sanitaire de la population et des travailleurs contre les dangers des rayonnements ionisants. Cette réglementation basée sur les grandeurs de protection que sont, la dose équivalente et la dose efficace, impose des limites de dose plus contraignantes pour les travailleurs exposés et pour le public. Ces grandeurs ne sont pas mesurables mais se basent sur les mesures de l'énergie déposée dans les organes et le tissu du corps humain. Leur calcul nécessite l'utilisation des facteurs de pondération W_R pour le rayonnement et W_T pour les tissus.

La définition des grandeurs dose équivalente et dose efficace a contribué de façon significative à la protection radiologique car elle a permis d'additionner des doses provenant de l'exposition d'une partie ou de la totalité du corps à divers types de rayonnements externes et à des radionucléides incorporés [15].

IV.1.3.1. Dose équivalente

La grandeur de protection dans un organe ou un tissu, H_T , est la dose équivalente reçue par le tissu T du fait d'une exposition à un rayonnement R ayant délivré à ce tissu une dose $D_{T,R}$. La relation de base s'écrit :

$$H_T = \sum W_R \times D_{T,R} \quad (\text{I-41})$$

où $D_{T,R}$ est la dose moyenne absorbée dans un organe ou un tissu T, du fait d'un rayonnement de type R et W_R le facteur de pondération radiologique qui dépend du type et de l'énergie du rayonnement R. Ses valeurs sont données dans le tableau I-2 [15] (FF correspond aux fragments de fission, IL aux ions lourds). L'unité de la dose équivalente est le Sievert (Sv), en hommage au physicien suédois Rolf Maximilian Sievert (1896-1966) à l'initiative de la création de la CIPR et de l'ICRU.

Type de rayonnement	W_R
$\gamma, x, e^\pm, \mu^\pm$	1
p, π^\pm	2
$\alpha, \text{FF}, \text{IL}$	20
neutrons	$\begin{cases} 2,5 + 18,2 \times e^{-[\ln(E_n)]^{2/6}} & \text{si } E_n < 1 \text{ MeV} \\ 5 + 17 \times e^{-[\ln(2E_n)]^{2/6}} & \text{si } 1 \text{ MeV} \leq E_n \leq 50 \text{ MeV} \\ 2,5 + 3,25 \times e^{-[\ln(0,04E_n)]^{2/6}} & \text{si } E_n > 50 \text{ MeV} \end{cases}$

Tableau I-3 : Valeurs de W_R dans les dernières recommandations de la CIPR 103.

IV.1.3.2. Dose efficace

La dose efficace E est la somme des doses équivalentes reçues au niveau de tous les organes ou tissus exposés, chaque dose équivalente au niveau d'un organe ou d'un tissu étant pondérée par un facteur W_T , tenant compte de la radiosensibilité propre du tissu ou de l'organe considéré :

$$E = \sum W_T \times H_T = \sum W_T \times \sum W_R \times D_{T,R} \quad (\text{I-42})$$

où W_T est facteur de pondération tissulaire de l'organe. Ses valeurs, répertoriées dans le tableau I-3 [15] sont choisies pour représenter les contributions des divers organes et tissus, pris individuellement, au détriment global associé aux effets stochastiques radio-induits. L'unité de la dose efficace est également le sievert (Sv).

Tissu	W_T	ΣW_T
Moelle osseuse, colon, poumons, l'estomac, sein, tissus restants	0,12	0,72
Gonades	0,08	0,08
Vessie, œsophage, foie, thyroïde	0,04	0,16
Surface osseuse, cerveau, glandes salivaires, peau	0,01	0,04

Tableau I-4 : Valeurs recommandées de W_T .

IV.1.4. Grandeurs opérationnelles

La dose équivalente et la dose efficace sur lesquelles sont définies les limites de dose n'étant pas directement mesurables, il faut avoir recours à d'autres grandeurs permettant de les évaluer. Dans ce contexte l'ICRU a introduit dès 1985 le concept des grandeurs opérationnelles destinées à fournir une estimation raisonnable des grandeurs de protection sans enfreindre les limites réglementaires. Ces grandeurs, développées dans le but de l'étalonnage des appareils de mesures destinés à la surveillance radiologique, sont les objectifs principaux du présent travail. En effet, il s'agit de leur détermination par mesure à l'aide des dosimètres radiophotoluminescents et par simulation Monte Carlo pour les rayonnements neutroniques. Elles sont définies pour la dosimétrie d'ambiance (surveillance d'ambiance) et pour la dosimétrie personnelle (surveillance individuelle).

IV.1.4.1. Grandeur opérationnelle pour la dosimétrie de l'ambiance

Pour la surveillance de l'environnement et la surveillance de zone, deux concepts liant le champ de rayonnement externe à la dose efficace et à la dose équivalente dans la peau sont introduits. Il s'agit de l'équivalent de dose ambient, $H^*(d)$, approprié aux rayonnements fortement pénétrants, et de l'équivalent de dose directionnel, $H'(d, \Omega)$, pour les rayonnements faiblement pénétrants. Ils sont définis en un point donné de la sphère ICRU composée d'oxygène (76,2 %), de carbone (11,1 %), d'hydrogène (10,1 %) et d'azote (2,6 %), avec un diamètre de 30 cm et une masse volumique de 1 g.cm^{-3} [16].

- ***Equivalent de dose ambiant***

L'équivalent de dose ambiant, $H^*(10)$, en un point dans un champ de rayonnement, est l'équivalent de dose qui serait produit par le champ expansé et unidirectionnel correspondant dans la sphère ICRU à une profondeur de 10 mm sur le rayon vecteur à l'opposé de la direction du champ unidirectionnel. C'est la grandeur opérationnelle qui permet d'estimer la dose efficace pour la surveillance d'ambiance.

- ***Equivalent de dose directionnel***

L'équivalent de dose directionnel, $H'(d,\Omega)$, en un point dans un champ de rayonnement, est l'équivalent de dose qui serait produit par le champ expansé correspondant dans la sphère ICRU à une profondeur d , sur un rayon dans une direction spécifiée Ω . C'est la grandeur opérationnelle qui permet la surveillance d'ambiance pour les rayonnements faiblement pénétrants. Dans ce cas on a $d = 0,07$ mm, et $H'(d,\Omega)$ s'écrit $H'(0,07,\Omega)$.

IV.1.4.2. Grandeur opérationnelle pour la dosimétrie individuelle

L'équivalent de dose individuel, $H_p(d)$, est l'équivalent de dose dans le tissu ICRU (tissu mou) à une profondeur appropriée, d , en dessous d'un point spécifié sur le corps humain. Cette grandeur permet de fournir une approximation raisonnable de la dose efficace en prenant en compte toutes les situations d'irradiation. En effet, pour la surveillance individuelle, le dosimètre est appelé à être porté sur le corps, ce qui va engendrer sur le dosimètre des expositions supplémentaires non propres à la dose réelle reçue, c'est-à-dire les rayonnements rétrodiffusés par l'endroit de l'organisme où est porté le dosimètre. La profondeur d recommandée pour le contrôle des rayonnements fortement pénétrants et pour évaluer la dose efficace E est de 10 mm et l'on peut écrire : $H_p(10)$. Celle recommandée pour le contrôle des rayonnements faiblement pénétrants et pour évaluer la dose équivalente à la peau, aux mains et aux pieds est de 0,07 mm et l'on peut écrire : $H_p(0,07)$.

IV.1.5. Limites de dose

La limitation de dose s'applique à toutes les personnes susceptibles d'être exposées aux rayonnements ionisants dans le cadre d'une activité liée à des situations d'exposition

planifiée, excepté les expositions médicales des patients. De ce fait, les limites de dose prennent en compte toutes les expositions dues aux sources utilisées dans un contexte justifié. Les limites annuelles de dose recommandées par la CIPR 103 sont résumées dans le tableau I-4.

Grandeurs de protection	Grandeurs opérationnelles	Valeurs limites d'exposition par an (mSv)		
		Travailleurs		Publics
		Catégorie A	Catégorie B	
Dose efficace E	$H_p(10)$	20	6	1
Dose équivalente H_T				
<i>Cristallin</i>	$H_p(3)$	150	50	15
<i>Peau, extrémités</i>	$H_p(0,07)$	500	150	50
Femme enceinte	Exposition de l'enfant à naître en dessous de 1 mSv			

Tableau I-5 : Limites de dose recommandées dans le cas des situations d'exposition planifiée

IV.2. Calcul de dose pour les rayonnements ionisants

Il s'agit d'établir les relations entre les grandeurs radiométriques et les grandeurs de protection pour les différents rayonnements décrits précédemment. Ces relations permettront par la suite de pouvoir calculer, pour une énergie (un spectre) donnée, la dose (le kerma) en un point dans un matériau lors d'une exposition externe.

IV.2.1. Cas des photons

Lors de l'interaction des photons avec la matière, l'énergie transférée aux électrons du milieu est dispensée via une interaction par collision ou une interaction radiative (freinage). Ainsi le kerma total est divisé en deux composantes, le kerma de collision k_{col} et le kerma radiatif k_{rad} .

- Le kerma de collision k_{col} est la partie du kerma où l'énergie communiquée aux électrons secondaires sous forme d'énergie cinétique est dissipée dans le milieu par ionisation ou excitation.
- Le kerma radiatif k_{rad} est la partie du kerma qui conduit à la production de photons radiatifs. Dans ce cas les interactions mises en jeu sont les rayonnements de freinage

ou Bremsstrahlung résultant de l'interaction électron-noyau, ou les photons d'annihilation.

Le kerma total K est donc la somme des kermas (collision et radiation) et s'écrit comme suit :

$$K = k_{\text{col}} + k_{\text{rad}} \quad (\text{I-43})$$

Pour des photons mono-énergétiques K est lié à fluence énergétique Ψ en un point du milieu et au coefficient de transfert massique en énergie μ_{tr}/ρ par la relation suivante [17] :

$$K = \Psi \times \frac{\mu_{tr}}{\rho} \quad (\text{I-44})$$

où $\Psi = \Phi \times E_\gamma$ avec E_γ l'énergie du faisceau de photons incidents et Φ la fluence des photons primaires. Si nous avons un spectre de raies, le kerma total en un point du milieu serait [9] :

$$K = \sum_i^n \Phi_i \times E_{\gamma_i} \times \frac{\mu_{tr}}{\rho} \quad (\text{I-45})$$

Lorsqu'on veut déterminer la dose absorbée due aux photons, il faut attendre que l'équilibre électronique des électrons mis en mouvement par les photons se réalise dans le milieu. Dans ce contexte on parle de kerma de collision et on peut écrire la dose absorbée D comme suit :

$$D = \Phi \times E_\gamma \times \frac{\mu_{ab}}{\rho} \quad (\text{I-46})$$

où μ_{ab}/ρ est le coefficient d'absorption massique en énergie du photon dans le milieu.

IV.2.2. Cas des électrons

Pour les particules chargées, il s'agit d'établir la relation entre la fluence des électrons en un point du milieu et la dose absorbée en ce même point. Le mode d'interaction des électrons avec la matière met en évidence le pouvoir d'arrêt massique par collision S_c/ρ et le pouvoir

d'arrêt massique radiatif (freinage) S_r/ρ . Mais étant donné que seule l'énergie perdue par collision est localement absorbée dans le milieu, la dose absorbée D s'écrit alors :

$$D = \Phi \times \frac{S_c}{\rho} \quad (\text{I-47})$$

où S_c/ρ est le pouvoir d'arrêt massique par collision du milieu pour une énergie donnée de l'électron et Φ sa fluence.

Dans le cas particulier des rayonnements bêta, la dose s'écrit en fonction du pouvoir d'arrêt massique moyen $\overline{S_c}/\rho$. Sa valeur correspond au pouvoir d'arrêt massique à l'énergie moyenne du spectre β ($E = E_{\beta_{max}}/3$). La relation de fluence-dose absorbée s'écrit :

$$D = \Phi \times \frac{\overline{S_c}}{\rho} \quad (\text{I-48})$$

IV.2.3. Cas des neutrons

L'interaction des neutrons avec la matière se traduit par le transfert d'énergie cinétique au noyau du milieu via une diffusion ou une réaction nucléaire. Dans le cas de la collision, le neutron perd son énergie par chocs successifs sans qu'il y ait équilibre entre la fluence des particules secondaires mises en mouvement et celle des neutrons incidents. Cependant, à partir d'une certaine profondeur dans le milieu, le rapport des fluences primaire et secondaire est sensiblement constant.

Dans le cas d'une cible mince où le neutron primaire n'a en moyenne qu'une interaction dans le milieu, avec une influence négligeable du rayonnement électromagnétique, la dose absorbée ou kerma de première collision est donnée par la relation suivante [9] :

$$K = n_i \times \sigma_i \times \Phi_i \times E \times X_{(E)} \quad (\text{I-49})$$

avec :

n_i : le nombre de noyaux cibles de l'élément i par unité de masse du milieu,

σ_i : la section efficace de la réaction i ,

Φ_i : la fluence des neutrons sur l'élément i ,

E : l'énergie du faisceau incident,

$X_{(E)}$: la fraction d'énergie cédée aux particules chargées

$X_{(E)} = 2A/(A + 1)^2$ où A est le nombre de masse de l'élément considéré.

V. Etats de l'art

Les neutrons sont des particules indirectement ionisantes et dépourvues de toute charge, donc sans interaction avec les électrons du milieu traversé pouvant amener à la formation d'un signal électrique. Ainsi la détection des neutrons se fait via des réactions intermédiaires conduisant à la formation de particules secondaires chargées ou photons qui sont facilement détectables. Ici, nous ne décrivons que quelques dosimètres individuels passifs, et la méthode par Spectrométrie par Sphères de Bonner (SSB) qui a servi à caractériser la source $^{241}\text{Am-Be}$ avec laquelle nous avons effectuée nos mesures.

V.1. Spectrométrie par sphère de Bonner (SSB)

La méthode par spectrométrie par sphère de Bonner est basée sur l'utilisation de compteurs proportionnels à hélium ^3He qui ont une bonne efficacité aux neutrons thermiques. En effet, ils sont placés aux centres de sphères en polyéthylène ayant des diamètres différents, ce qui permet de réduire l'énergie cinétique des neutrons incidents par collisions successives via le milieu modérateur et d'avoir des réponses énergétiques différentes. Les neutrons thermiques ainsi créés se répartissent suivant une distribution maxwellienne dont l'énergie la plus probable est de 0,025 eV [18]. Le compteur situé au centre de la sphère détecte les neutrons thermalisés. Connaissant le nombre de coups comptés dans chaque sphère et la fonction de réponse associée, la distribution en énergie de la fluence peut être obtenue par une méthode de déconvolution [19], ce qui nécessite une connaissance de la forme approximative du spectre recherché.

V.2. Dosimétrie passive

Les neutrons sont classés selon leur énergie sur une large gamme, ce qui fait qu'en surveillance individuelle, un seul dosimètre ne peut pas couvrir toute la totalité de cette gamme d'énergie. Ainsi nous avons quelques dosimètres très dépendants de l'énergie des neutrons.

V.2.1. Film photographique

C'est le premier des détecteurs qui a permis en 1895 à Röntgen de visionner l'image de l'ombre de la main de sa femme et qui a aussi permis en 1896 à Becquerel de découvrir la radioactivité. Il a été d'une très grande utilité en radiologie et en radiothérapie mais peut aussi

être utilisé comme détecteur des rayonnements (X , γ , β et neutrons). Ici nous ne nous intéressons qu'aux neutrons.

Une émulsion photographique est constituée de grains de bromure d'argent AgBr, d'environ 0,2 μm de diamètre, en suspension dans une matrice de gélatine [16]. Elle est déposée sous forme de film mince sur un support plastique. L'ionisation des grains AgBr, à la suite de l'interaction du rayonnement, va conduire à la formation d'une image latente dans le film. Cette image ne devient visible qu'à la suite d'un développement effectué grâce à un révélateur chimique [2].

Pour la détection des neutrons, les émulsions se répartissent en deux catégories :

- celle où on n'exploite que le noircissement dû à l'effet d'accumulation d'interactions individuelles. En effet le film est muni d'un écran en cadmium qui permet la détection des neutrons thermiques via la réaction (n,γ) . Le noircissement résultant d'une quantité de neutrons thermiques produirait une dose équivalente de 10 mSv comparable à celui résultant d'une quantité de rayonnement gamma de 2,3 mSv [9].
- celle où on dénombre les traces de chaque interaction via une analyse microscopique. C'est le cas typique des émulsions nucléaires ou NTA (Nuclear Track emulsion, type A) où on compte les traces des protons de recul engendrées par les interactions élastiques des neutrons rapides sur la matière hydrogénée de l'émulsion. La mesure de la densité de trace permet d'accéder à la dose reçue.

Ce dosimètre n'est cependant pas très adapté aux conditions climatiques. L'image latente formée s'efface progressivement en fonction de la température et de l'humidité [20].

V.2.2. Détecteurs solides de traces nucléaires

Récemment développés dans la dosimétrie des neutrons, ces détecteurs sont insensibles aux X , γ et aux électrons. Il s'agit très souvent de type CR-39 en PADC (poly-allyl-diglycol carbonate) [21]. Comme les émulsions nucléaires, ils permettent le dénombrement de chaque interaction qui s'y déroule. Pour la détection des neutrons, le détecteur est soit muni d'une couche mince de convertisseur riche en bore 10 ou en lithium 6 de façon à produire sous l'action des neutrons thermiques des particules α , soit muni d'un convertisseur hydrogéné (polyéthylène) afin d'engendrer des protons de recul via une diffusion élastique des neutrons rapides. En effet le milieu détecteur est généralement constitué de matière plastique. Le passage des particules chargées va y produire des dommages tout au long de leur trajectoire. Les défauts ainsi créés constituent des traces latentes qui peuvent être révélés par un

processus d'attaque chimique [22] ou électrochimique en appliquant une tension à travers le détecteur. Enfin le comptage des traces se fait via un microscope optique connecté à un ordinateur. Le nombre de traces déterminé par centimètre carré est relié à la dose équivalente par étalonnage.

V.2.3. Détecteurs thermoluminescents

Les dosimètres thermoluminescents (TLD) sont couramment utilisés pour la dosimétrie personnelle dans les champs photonique et électronique. Ils peuvent également servir de détecteurs pour les neutrons même si leur sensibilité aux neutrons rapides reste très faible. Ils sont constitués de composés minéraux ioniques cristallisés, contenant des défauts ponctuels (lacunes, ions interstitiels, impuretés chimiques) ou des défauts structuraux (ions étrangers au réseau). La façon dont la thermoluminescence est produite dans un cristal soumis à un rayonnement ionisant peut être divisée en deux étapes [23] :

- Ionisation et piégeage de l'électron, et
- Recombinaison électron – trou avec émission de photon.

Lors de l'exposition à un rayonnement directement ou indirectement ionisant, des électrons situés dans la bande de valence sont mis en mouvement par un processus d'ionisation. Ils peuvent alors atteindre un niveau d'énergie supérieur appelé bande de conduction, laissant ainsi des trous dans la bande de valence. Ces électrons (trous) peuvent désormais se déplacer librement dans le cristal, ou être piégés par des impuretés ou défauts dans la bande interdite. Ainsi par excitation thermique, sous l'effet de la chaleur, les électrons ayant acquis une énergie suffisante sont relâchés de leurs pièges puis se recombinent avec le centre de recombinaison qui a capturé des trous, donnant naissance à une émission de lumière. C'est le principe de la thermoluminescence.

Pour la détection des neutrons thermiques, les matériaux les plus fréquemment utilisés sont enrichis au fluorure de lithium (${}^6\text{LiF} : \text{Mg, Ti}$ et ${}^6\text{LiF} : \text{Mg, Cu, P}$), borate de lithium naturel ($\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7 : \text{Mn}$) et le borate de lithium (${}^6\text{Li}_2{}^{10}\text{B}_4\text{O}_7 : \text{Mn}$). Le dosimètre étant sensible aux photons, un détecteur au ${}^6\text{LiF}$ est couplé avec un autre au ${}^7\text{LiF}$ ayant la même sensibilité aux photons mais insensible aux neutrons. La différence des réponses des deux détecteurs permet de remonter à la réponse aux neutrons. Lorsque le dosimètre est porté sur le corps humain, on parle de neutrons à albédo (neutrons thermalisés et rétrodiffusés par le corps).

Ce dosimètre très pratique pour la dosimétrie d'extrémité et réutilisable après la remise à zéro ne peut être lu qu'une seule fois (la lecture détruit l'information).

V.2.4. Dosimètres à bulles

Les détecteurs à bulles sont constitués de microgouttelettes liquides en suspension dans un milieu viscoélastique. Ce substrat permet d'immobiliser les bulles à l'endroit où elles seront formées [24]. Le fluide reste en phase liquide en raison de l'absence des sites de nucléation dans le milieu. Quand les neutrons interagissent avec les atomes des microgouttelettes, les particules chargées secondaires mis en mouvement transfèrent de l'énergie à ces derniers, ce qui va causer la nucléation des bulles. Il aura formation de petites bulles de vapeur qui commenceront à se développer dans le milieu. Si une énergie suffisante est déposée dans le liquide, les bulles deviennent visibles et peuvent être comptées à l'aide d'un système optique ou d'un instrument électro-optique automatique. La sensibilité du détecteur peut varier sur une gamme de 0,01 à 9 bulles/ μ Sv [25]. Le détecteur est réutilisable et la remise à l'état initial se fait par élimination des bulles en appliquant une pression extérieure au moyen d'un dispositif à piston, contenu dans le couvercle du détecteur. Cependant, le détecteur est sensible à la température dont l'élévation vaporiserait spontanément les gouttelettes.

La figure I-19 représente la fonction de réponse des quelques dosimètres passifs [26]. Cette dernière montre que la détection des neutrons à l'aide de ces dosimètres dépend de leur gamme énergétique.

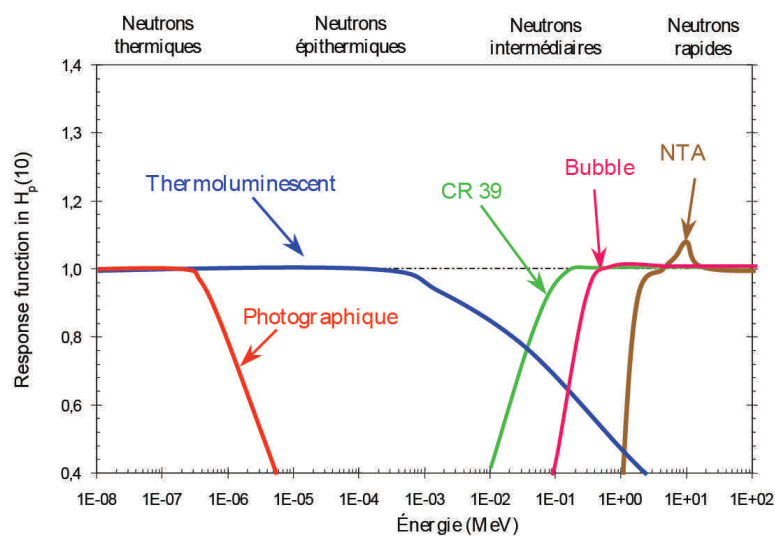


Figure I-19 : Fonction de réponse des dosimètres passifs en fonction de l'énergie des neutrons

Chapitre 2

Code Monte Carlo en métrologie des rayonnements ionisants

Basée sur des techniques probabilistes, la méthode Monte Carlo fut développée dans les années quarante par Nicholas Metropolis et Stanislaw Ulam [27], mais ses origines remontent beaucoup plus loin. Elle repose sur le calcul numérique via des procédés aléatoires. Originellement mises au point pour simuler le fonctionnement des armes nucléaires, les méthodes Monte Carlo sont utilisées aujourd'hui dans de nombreuses branches des sciences et en particulier dans la simulation du transport de particules et des interactions avec la matière. Le recours à cette méthode permet d'apporter une solution statistique à l'approche analytique en simulant le comportement individuel des particules dans un système physique. Cependant, il faut différencier ces méthodes de simulation des méthodes déterministes qui donnent des informations assez complètes dans tout l'espace de phase du système. Elles s'appliquent dans la plupart des cas à la résolution des équations de transport intégral-différentielles tandis que la méthode Monte Carlo résout le problème du transport en simulant les histoires des particules. Plusieurs codes sont utilisés en physique de l'interaction rayonnement-matière, tant dans le domaine de la radioprotection que dans celui de la physique médicale ou de l'instrumentation nucléaire. Les codes employés au sein du groupe RaMsEs sont généralement utilisés pour une validation expérimentale préalable, soit sur des cas identiques à ceux faisant l'objet de la modélisation, soit sur des cas similaires ou jugés suffisamment proches. Ces codes sont les suivants : MCNP, GEANT4 et MCNPX. Il en existe tant d'autres tels que EGS4/EGSnrc, PENELOPE, utilisés dans des laboratoires de métrologie ; mais dans ce travail, c'est le code MCNPX qui a été privilégié.

I. La modélisation par la méthode Monte Carlo

Elle est régie par un processus statistique permettant de résoudre les problèmes complexes qui ne peuvent être modélisés par des codes informatiques utilisant des méthodes de discrétisation numérique. Chaque événement probabiliste composant le système est simulé de façon séquentielle pour décrire l'ensemble des phénomènes. Dans le transport des particules, le principe de la méthode Monte Carlo consiste à suivre l'histoire de chaque particule dans un système, de sa naissance (émission à partir d'une source) à sa mort (capture par un noyau ou fuite hors du système) selon un processus aléatoire afin de simuler le comportement naturel du système à un instant donné. Ce processus est schématisé sur la figure II-1. En effet, l'histoire d'une particule incidente dans un milieu atténuateur (l'ensemble des valeurs des paramètres la caractérisant) peut être produite par une série de nombres aléatoires. Les événements sont décrits via des séquences d'opérations qui consistent en la production des

valeurs aléatoires avec leurs fréquences de distribution et en la détermination des valeurs de chaque nouveau paramètre régi par le processus. La technique est fondée sur un jeu qui consiste à tirer aléatoirement une valeur comprise entre 0 et 1 et ayant une distribution uniforme dans l'espace bidimensionnel ou tridimensionnel. Ceci permet de décrire la trajectoire d'une particule en termes de jeu en attribuant un score de 1 chaque fois que la particule traverse le milieu défini. Ainsi est calculée la moyenne du nombre de particules ayant traversé ledit milieu.

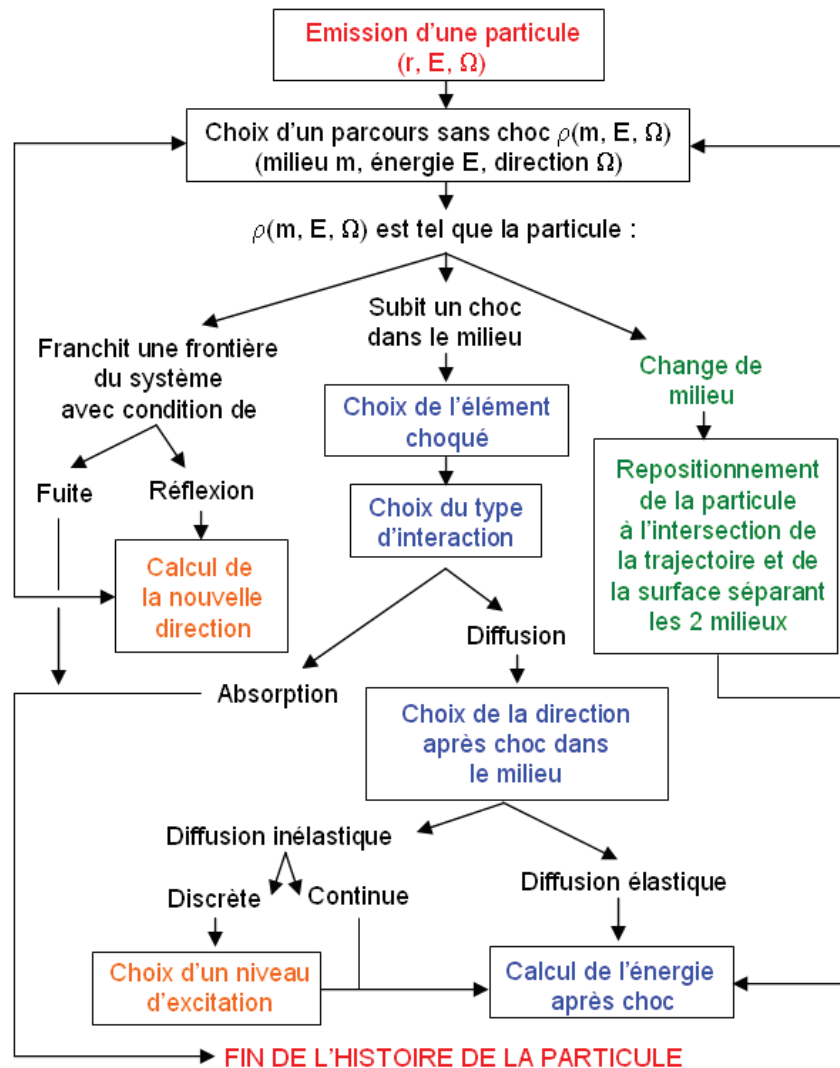


Figure II-1 : Organigramme de l'histoire d'une particule par la méthode Monte Carlo.

II. Transport des particules

Le transport des particules se fait via leur énergie, et dans ce travail nous nous sommes focalisés sur les neutrons. Le neutron interagit difficilement avec la matière qu'il traverse

compte tenu de l'absence de charge. En cas d'interaction, il peut être complètement absorbé ou simplement perdre de l'énergie par diffusion. Le suivi des particules commence dès leur émission et chaque événement que constitue un processus est simulé de manière séquentielle.

II.1. Simulation des interactions avec la matière

L'histoire d'une particule incidente dans un milieu est décrite par sa trajectoire et les probabilités qui régissent le processus d'interaction jusqu'à sa mort. Ces probabilités sont définies par la section efficace totale ou les sections microscopiques selon le mode d'interaction mis en jeu (diffusion, absorption). Ainsi, la probabilité qu'une particule traverse un milieu d'épaisseur l est donnée par :

$$p(l) = e^{-\Sigma l} \quad (\text{II-1})$$

où $\Sigma = n\sigma$ est la section efficace macroscopique totale du milieu, avec n et σ respectivement le nombre de noyaux cibles par unité de volume et la section efficace d'interaction.

Cependant les particules peuvent subir des collisions tout au long de leur trajet dont les traces laissées dans le détecteur permettent d'estimer le nombre d'interactions. La probabilité qu'une collision, pour une particule, se produise à une distance infinitésimale entre l et $l + dl$ est donnée par :

$$p(l)dl = e^{-\Sigma l}\Sigma dl \quad (\text{II-2})$$

L'intégrale le long de l correspond à la probabilité d'interaction avec le milieu. Cette dernière correspond à un nombre aléatoire uniforme $\zeta \in [0,1]$

$$\zeta = \int_0^l e^{-\Sigma x}\Sigma dx = 1 - e^{-\Sigma l} \quad (\text{II-3})$$

On en déduit le libre parcours moyen donné par :

$$l = -\frac{1}{\Sigma} \ln(1 - \zeta) \quad (\text{II-4})$$

Comme $1 - \zeta$ est distribué de la même manière que ζ , donc on peut écrire :

$$l = -\frac{1}{\Sigma} \ln(\zeta) \quad (\text{II-5})$$

Il est à noter que lors du parcours d'une particule dans un milieu, le code MCNP simule chaque événement secondaire produit et suit son histoire. De ce fait, la composition du matériau a une grande influence sur le cours de l'histoire car d'autres processus peuvent être mis en jeu (activation, fission). Dans ce contexte, si la cible contient n éléments et que ζ est un nombre aléatoire pris dans l'intervalle $[0,1]$, alors chaque élément contribuant à l'interaction doit obéir à l'inégalité suivante [28] :

$$\sum_{i=1}^{k-1} \Sigma_i < \zeta \sum_{i=1}^n \Sigma_i \leq \sum_{i=1}^k \Sigma_i \quad (\text{II-6})$$

avec Σ_i les sections efficaces de chaque cible i considérée et k le numéro de cible associé.

II.2. Modélisation du transport de particules

Quand une particule neutronique interagit avec un milieu matériel, il se produit une succession d'événements aléatoires. La séquence se déroule comme suit :

- Identification de la cible de collision,
- Tirage aléatoire de l'interaction (diffusion, capture, fission, fuite et génération des photons et particules chargées),
- Modélisation du processus choisi
- Détermination de la nouvelle énergie et du libre parcours moyen.

A chaque étape de la vie de la particule, un nombre entre 0 et 1 est choisi au hasard pour valider un événement et la probabilité qui régit le processus d'interaction, en tenant compte de la composition de la cible de collision. La figure II-2 représente l'histoire aléatoire d'un neutron incident (n_1) dans un matériau fissile. Dès la première collision, le neutron diffuse dans une direction aléatoire et le photon directement généré (γ_1) subit une capture (meurt). Lors de la seconde interaction, la fission produite entraînera la disparition du neutron incident n_1 pour donner naissance à deux nouveaux neutrons (n_2, n_3) et un photon (γ_2). Un des neutrons de fission (n_2) est capturé et le second neutron (n_3), tout comme le photon (γ_2) de fission sont

suivis par échantillonnage aléatoire jusqu'à leur échappement du matériau. Ils sont considérés comme morts ou en fuites et leur parcours n'est plus suivi. L'histoire complète du neutron initial est ainsi terminée.

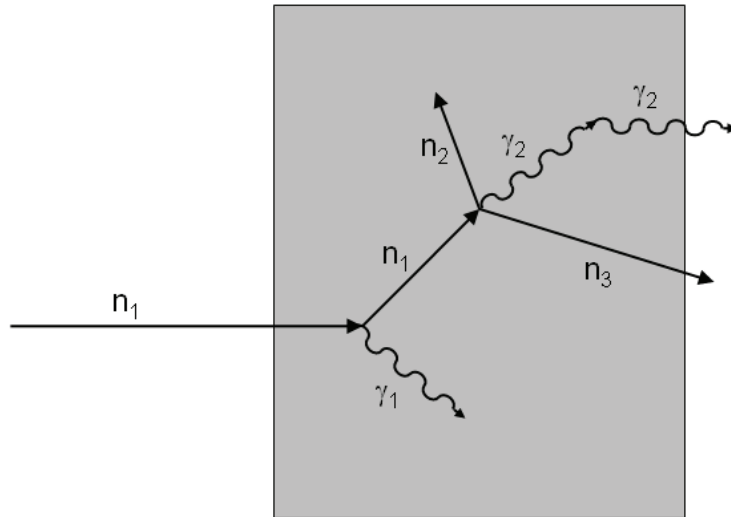


Figure II-2 : L'histoire d'un neutron incident dans un milieu fissile.

III. Code MCNPX

Le code MCNP (Monte Carlo N-Particle) est un code de calcul développé par le laboratoire national de Los Alamos. Ce code, probablement un des plus utilisés, simule le transport des particules selon leur nature, énergie et dans des géométries des plus simples aux plus complexes. Il permet d'estimer des grandeurs physiques telles que l'énergie déposée dans un volume quelconque, la fluence de particules et permet aussi par utilisation de coefficients de conversion d'en déduire une dose.

III.1. Fiabilité de la simulation

Les résultats des simulations nécessitent d'avoir une certaine fiabilité estimée en terme d'incertitude statistique. C'est ainsi qu'au résultat fourni par chaque type de compteurs (tallies), il est associé un estimateur de la qualité du résultat R définie comme l'incertitude standard de la moyenne σ_x divisée par la moyenne estimée \bar{x} . Cette statistique est calculée pour chaque nombre d'événements N associé à un tally dont elle serait proportionnelle en $1/\sqrt{N}$ [28]. Cependant, il est à noter que les estimateurs ne se réfèrent pas à l'exactitude d'un résultat expérimental ou théorique mais uniquement à la fiabilité du calcul Monte Carlo. Ils

peuvent être réduits en augmentant le nombre total d'événements, donc le temps de calcul. Dans le tableau II-1 sont énumérées les valeurs de R permettant d'interpréter la qualité d'un résultat de simulation [29].

Estimateur R (%)	Qualité du résultat
50 à 100	Non significatif
20 à 50	faible
10 à 20	Discutable
$5 \leq R < 10$	Généralement fiable
$R < 5$	Fiable

Tableau II-1 : Fiabilité d'un résultat de simulation Monte Carlo en fonction de l'erreur relative.

III.2. Structure du fichier MCNPX

Le contenu du fichier d'entrée MCNPX nécessite plusieurs paramètres décrits à l'aide de cartes réparties en bloc. Sa structure est constituée de trois grands blocs séparés par une ligne vide : les cartes des cellules, les cartes des surfaces et les cartes des données dont y existent :

- les données pour la source,
- les données pour le matériau,
- les données pour la grandeur à calculer ou tally.

La structure du fichier d'entrée est la suivante :

Titre (1 ligne)
 Les cartes des cellules (bloc 1)

Ligne vide
 Les cartes des surfaces (bloc 2)

Ligne vide
 Les cartes des données (bloc 3)

III.2.1. Cellules

Ce sont des boîtes constituant la géométrie à simuler. Elles se constituent des différents paramètres que sont : les numéros de cellule et de matériau attribués par l'utilisateur, la densité de matériau, les numéros des surfaces désignant la cellule avec les signes adéquats et les importances pour chaque particule. Un numéro de surface muni d'un signe (-) indique l'intérieur de la cellule, sinon son extérieur. Un zéro à la place du numéro de matériau et de la densité indique une cellule vide. La cellule peut être définie par deux opérateurs d'intersection et d'union. Ils sont représentés respectivement par un espace et le caractère (:) entre deux numéros de surface dans la carte cellule. Il est aussi possible d'exclure une cellule d'un espace par l'opérateur symbolisé par (#). Les cellules sont définies verticalement et se déclarent de la manière suivante :

J m d geom params

avec

J : le numéro de la cellule,

m : le numéro du matériau,

d : la densité du matériau, en g/cm³ si négative ou en atome/cm³,

geom : des surfaces définissant la cellule associées aux différents opérateurs (espace, : et #)

params : spécification optionnelle utilisant des mots clés comme IMP, Vol...

III.2.2. Surfaces

C'est dans ce bloc que sont définies la géométrie et les dimensions du matériau à simuler. Les surfaces peuvent être représentées, par des équations (tableau II-2 [28]), des points ou des macrobodies. Dans ce travail, c'est la méthode des macrobodies qui a été principalement utilisée. Ces dernières, déjà prêtes à l'utilisation, représentent une façon alternative de définir les cellules et les surfaces. Les formes prédéfinies sont : BOX (boîte), RPP (parallélépipède), SPH (sphère), RCC (cylindre), HEX (hexagone), REC (cylindre elliptique), TRC (cône), ELL (ellipsoïde), WED (cale, coin), ARB (polyèdre). Ces géométries sont décomposées par MCNPX en équations de surface et les facettes sont assignées des numéros individuels sélectionnés par l'utilisateur en vue de leur exploitation dans les différents tallies.

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	$y^2 + y^2 + (z - \bar{z})^2 - R^2 = 0$	$\bar{z} R$
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	$\sqrt{(y - \bar{y})^2 + (z - \bar{z})^2} - t(x - \bar{x}) = 0$	$\bar{x} \bar{y} \bar{z} t^2 \pm 1$
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	Axis parallel to X-, Y-, or Z-axis	$A(x - \bar{x})^2 + B(y - \bar{y})^2 + C(z - \bar{z})^2$ $+ 2D(x - \bar{x}) + 2E(y - \bar{y})$ $+ 2F(z - \bar{z}) + G = 0$	ABCDE FG $\bar{x} \bar{y} \bar{z}$
GQ	Cylinder Cone Ellipsoid Hyperboloid Paraboloid	Axes not parallel to X-, Y-, or Z-axis	$Ax^2 + By^2 + Cz^2 + Dxy + Eyz$ $+ Fzx + Gx + Hy + Jz + K = 0$	ABCDE FGHIJK
TX	Elliptical or circular torus. Axis is parallel to X-, Y-, or Z-axis		$(x - \bar{x})^2/B^2 + (\sqrt{(y - \bar{y})^2 + (z - \bar{z})^2} - A)^2/C^2 - 1 = 0$	$\bar{x} \bar{y} \bar{z} ABC$
TY			$(y - \bar{y})^2/B^2 + (\sqrt{(x - \bar{x})^2 + (z - \bar{z})^2} - A)^2/C^2 - 1 = 0$	$\bar{x} \bar{y} \bar{z} ABC$
TZ			$(z - \bar{z})^2/B^2 + (\sqrt{(x - \bar{x})^2 + (y - \bar{y})^2} - A)^2/C^2 - 1 = 0$	$\bar{x} \bar{y} \bar{z} ABC$
XYZP	Surfaces defined by points			See pages 3-15 and 3-17

Tableau II-2 : Cartes des surfaces utilisées par MCNPX.

III.2.3. Données physiques

Ce bloc permet de fournir les spécifications des problèmes physiques autres que la géométrie. En effet, il y est décrit les propriétés physiques des matériaux et y est précisé la source de rayonnement et le résultat attendu.

III.2.3.1. Source

La source est principalement définie par la commande SDEF. Celle-ci permet de décrire toutes ses caractéristiques (type de particule émise, son énergie, la position et la répartition géométrique de l'émission) et n'est autorisée qu'une seule fois dans le fichier d'entrée. Certains des paramètres à déclarer sont :

- PAR : le type de particule émise,
- POS : la position de la source,
- ERG : son énergie en MeV,
- CEL : la cellule contenant la source,
- VEC : le vecteur directeur de la source si non isotrope
- RAD : le rayon de la source.

Il existe d'autres paramètres supplémentaires permettant à une variable de prendre plusieurs valeurs. Pour pouvoir les introduire, il faut inscrire la distribution Dn (n étant le numéro de la distribution) à la place d'une valeur numérique. Chaque distribution utilisée est paramétrée par une ou plusieurs cartes : SIn (Source Information) qui spécifie la forme de la distribution (discrète, continue..) et les valeurs variables prises par la source, SPn (Source Probability) qui décrit les probabilités correspondantes à la distribution décrite avec la source.

III.2.3.2. Tallies

Les compteurs (tallies) sont des observables permettant de spécifier la grandeur physique que l'on veut obtenir à la fin du calcul MCNPX. Défini par la carte Fn (n indique le type de tally), un tally se présente par F ou *F précédé de certains paramètres (numéro de cellule, numéro de surface...). Le tableau III-3 représente les différents types de tally disponibles dans MCNPX. Les tallies peuvent être associées à d'autres cartes afin d'avoir un résultat autre que celui spécifié par la carte Fn. Dans ce travail, la carte Fn a été associée aux cartes DE (Dose

Energy) et DF (Dose Function). Ces dernières permettent d'avoir directement l'équivalent de dose associé à une fluence en introduisant les coefficients de conversion.

III.2.3.3. Matériaux

Les cartes de cette section précisent les compositions isotopiques des matériaux auxquels un numéro a déjà été attribué dans les cellules. Les matériaux se déclarent comme suit :

$$Mn \text{ ZAID}_1 \text{ fraction}_1 \text{ ZAID}_2 \text{ fraction}_2 \dots \text{ ZAID}_i \text{ fraction}_i$$

ZAID_i indique le nucléide pour le constituant i et, se décompose en ZZZAAA.abx , avec ZZZ le numéro atomique de l'élément considéré, AAA son nombre de masse, ab la librairie de sections efficaces et x la classe de la donnée. La fraction représente la composition élémentaire du constituant dans le matériau. Elle peut être inscrite en terme de fraction moléculaire ou en terme de masse précédé par un signe moins. Dans le cas des photons ou des électrons ainsi que pour les éléments naturels, la valeur de AAA se ramène à 000 et ZAID s'écrit tout simplement ZZZ000 .

Tally	Description	Unités F	Unités *F
F1	Nombre de particules traversant une surface	-	MeV
F2	Fluence de particules à travers une surface	1/cm ²	MeV/cm ²
F4	Fluence de particules dans une cellule	1/cm ²	MeV/cm ²
F5	Fluence de particules en un point détecteur	1/cm ²	MeV/cm ²
F6	Energie déposée par unité de masse	MeV/g	jerks/g
F7	Energie de fission déposée à travers une cellule	MeV/g	MeV
F8	Energie déposée	événements	MeV

Tableau II-3 : Présentation des différents tallies du code MCNPX et leurs unités associées.

III.3 Bibliothèques des sections efficaces

Dans MCNPX, des bases de données faisant référence aux matériaux avec leurs sections efficaces associées sont spécifiées pour chaque type de particule. Pour ce travail, consacré essentiellement à la dosimétrie des neutrons, la librairie LA-150 [30] dont les données sont issues de la table ENDF/B- VI [31] a été utilisée. Mais cette base de données ne permet pas de générer l'histoire des particules secondaires des interactions des neutrons thermiques avec le ⁶Li et le ¹⁰B. Ainsi pour pouvoir détecter les neutrons thermiques et simuler l'activation

neutronique, nous avons utilisé la version 2.7.0 [32] de MCNPX. Les bibliothèques pour les réactions photonucléaires sont implémentées dans MCNP4C2 [33].

Chapitre 3

Propriétés physiques des détecteurs Radio-Photo-Luminescents

Dans ce chapitre nous allons décrire les propriétés physiques et caractéristiques des détecteurs mis en œuvre dans ce travail. Il s'agit d'exploiter le phénomène de radiophotoluminescence basé sur les propriétés optiques des verres fluorescents dopés à l'argent. Cette technique connue depuis plus d'un demi-siècle est particulièrement utilisée en Asie pour la dosimétrie passive. En effet, le rayonnement de fluorescence émis par certains matériaux placés sous lumière UV présente des comportements bien définis, qui se trouvent modifiés après exposition aux rayonnements ionisants.

I. Structure des verres

I.1. Qu'est ce qu'un verre

Aux yeux de la plupart des utilisateurs, le verre est un matériau fragile et souvent transparent dont les domaines d'applications se limitent au vitrage, à l'éclairage, à l'optique ou à l'industrie électrique. Son usage s'étend également au confinement des déchets radioactifs et à la détection des rayonnements ionisants lorsqu'il est dopé avec certains matériaux. Sa structure est moins bien définie que celle des cristaux car les particules formant la matière ont des positions indépendantes de celles de leurs voisines. Ainsi le verre peut être considéré comme un solide non cristallin dans un état hors d'équilibre, obtenu par figeage d'un liquide et présentant le phénomène de transition vitreuse [34]. On en distingue plusieurs sortes avec diverses proportions de constituants : verres au plomb, verres phosphates, silicates, borates, germanites, aluminates etc....

I.2. Elaboration de verre (fabrication)

Le verre se prépare en portant les mélanges réactifs à la fusion, suivi d'un refroidissement rapide du liquide obtenu. Mais cela nécessite au préalable un cycle de traitement thermique. En effet les verres sont obtenus par réactions des mélanges selon le modèle voulu. Nous évoquons, par exemple, l'élaboration des verres phosphates publiée par Deutschbein et al [35]. Un mélange d'oxydes métalliques avec l'anhydride phosphorique et des sels de néodyme est introduit dans un creuset de platine, puis placé dans un four pour subir un traitement thermique à 1100°C jusqu'à l'obtention d'un mélange fondu clair et transparent. Pour avoir une viscosité affinée, le creuset est porté à 1400°C ou 1600°C pendant 2 ou 3 heures suivant la composition du mélange. Ensuite, le fluide est coulé dans un moule en graphite ou en acier inoxydable, puis recuit et refroidi lentement de manière à éviter toutes

tensions internes d'origine thermique. C'est ainsi qu'un bloc de verre à aspect transparent est obtenu.

I.3. Structure de verre

Le verre est une substance amorphe dont la distribution périodique des atomes à longue distance se caractérise par un désordre (absence de périodicité et de symétrie). Sa structure a été mise en évidence dès 1932 par le physicien américain (d'origine norvégienne) William Houlder Zachariasen qui a développé la théorie du réseau aléatoire de verre [36]. Il compare les propriétés mécaniques des verres à ceux des cristaux en supposant que les forces qui y lient les atomes sont semblables à celles dans les cristaux. Ainsi, il part de l'hypothèse selon laquelle le verre est un réseau tridimensionnel prolongé et que sa structure est composée d'un enchaînement de polyèdres de l'oxygène. La structure de base est la silice vitreuse constituée des tétraèdres d'oxygène. Dans ce contexte, Zachariasen établit des critères qui doivent être remplis afin que le réseau de l'oxyde formant le verre s'apparente à celui d'un cristal. Les règles auxquelles doivent satisfaire l'oxyde sont :

- Un atome d'oxygène est lié au plus à deux cations.
- Le nombre d'atomes d'oxygène entourant chaque cation doit être petit (trois ou quatre).
- Les polyèdres oxygénés ne peuvent partager que des sommets entre eux et non des faces.
- Chaque polyèdre d'oxygène doit partager au moins trois sommets avec ses voisins.

Un verre d'oxyde est alors formé si l'échantillon contient suffisamment de cations qui sont entourés par des tétraèdres d'oxygène et que ces derniers partagent uniquement des sommets les uns avec les autres. La structure du verre est présentée sur la figure III-1 [36].

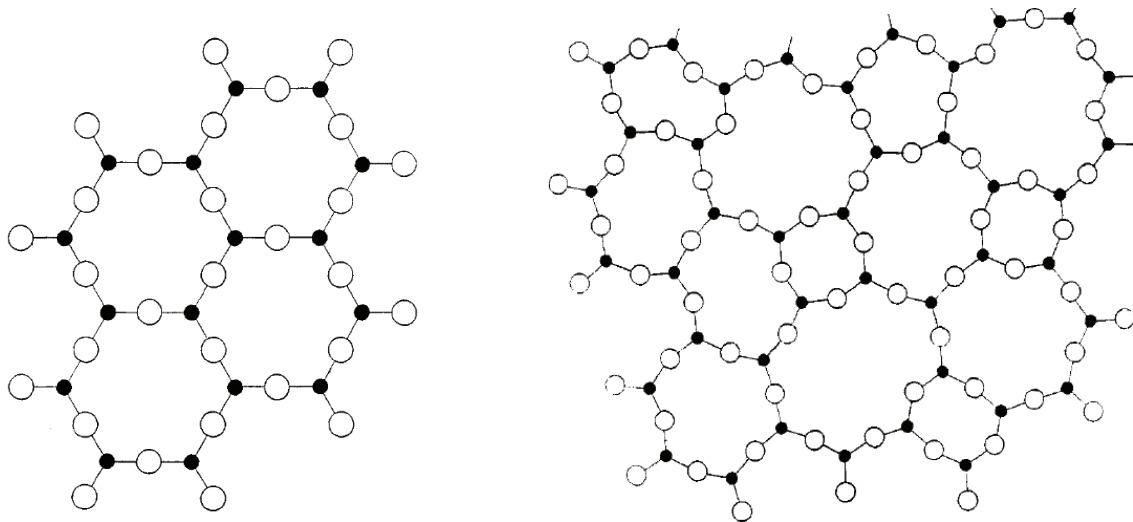


Figure III-1 : Structure d'un cristal à deux dimensions de formule A_2O_3 (gauche) et la structure du verre du même composé (droite).

II. Luminescence des cristaux dopés à l'argent

L'introduction de l'argent dans les matériaux cristallisés ou vitreux a donné naissance à un grand champ d'applications. Ses propriétés spectroscopiques ont fait l'objet de recherches approfondies en ce qui concerne l'utilisation de certains matériaux en tant que dosimètre. Des études sur les cristaux d'halogénures alcalins ont permis en partie la compréhension de la photoluminescence (PL) de l'argent [37]. Les investigations se sont étendues à d'autres matériaux tels que les cristaux d'halogénures alcalino-terreux, les borates, les phosphates à l'état vitreux, afin de mieux appréhender le mécanisme de la PL des ions Ag^+ .

II.1. Les halogénures alcalins

Les premières investigations sur les cristaux d'halogénures alcalins activés à l'argent ont été réalisées par Smakula [38], ce qui lui permet l'observation d'une bande d'absorption avec un pic à 210 nm pour $NaCl : Ag$. Le travail a été poursuivi par Kato [39] qui s'est intéressé aux spectres d'émission et d'excitation. Il trouve que l'excitation dans la bande caractéristique de l'ion Ag^+ donne principalement une bande d'émission dans l'ultraviolet avec un pic à 249 nm plus une seconde bande d'émission pointant à environ 400 nm. De ce fait, dans ces cristaux, une excitation à courte longueur d'onde produit une émission dans l'UV attribuée aux ions Ag^+ . Cependant, sous l'effet d'une irradiation aux rayonnements ionisants, il peut apparaître dans ces cristaux d'autres bandes d'absorption et défauts paramagnétiques. Ce comportement

s'explique par le fait que l'irradiation va ioniser le cristal, et les électrons libérés seront capturés par des lacunes, ce qui va conduire à la formation des centres luminescents.

II.2. Les alcalino-terreux

Les travaux de Boutinaud et al [40] sur les cristaux de fluorure de strontium dopés à l'argent ont montré que les fluorures peuvent générer différents centres optiques en raison de la structure de leur réseau bien défini et de leur stabilité chimique. Avec une faible concentration d'argent, le réseau fluoré offre la possibilité d'avoir deux positions différentes des ions Ag^+ . L'ion Ag^+ peut se substituer à l'ion Sr^{2+} en formant un centre donneur d'électron ou peut occuper un site interstitiel et devenir un centre accepteur d'électrons. Après excitation des deux bandes d'absorption, il apparaît une forte émission dans l'UV, centrée autour de 315 nm. Mais d'autres bandes plus intenses et complexes sont observées sur le spectre d'absorption de ces cristaux, après irradiation aux rayonnements ionisants [41].

III. Propriétés de l'ion Ag^+ dans les verres

Du fait de son attractivité ionique, l'argent en tant que dopant a beaucoup contribué à la sensibilité des verres aux rayonnements ionisants. En effet, la diffusion des ions argent dans ce matériau permet d'y engendrer des pièges radio-induits [42]. Ceci produit des centres émetteurs qui se caractérisent par l'émission d'une fluorescence dans le domaine de l'UV. Dmitryuk et al [43] ont montré que ces effets sont causés par une faible mobilité des ions Ag^+ avec des faibles concentrations alcalines. Dans ce contexte, nous évoquons quelques travaux menés sur les propriétés des verres phosphates et des verres radiophotoluminescents dopés à l'argent.

III.1. Verres silicates photoluminescents

L'étude des propriétés spectroscopiques de l'ion Ag^+ après échange avec l'ion Na^+ dans les verres silicates a permis à Borsella et al [44] d'observer leur comportement optique en fonction de la teneur en argent. Avec une faible concentration molaire en argent, les ions Ag^+ peuvent diffuser dans le verre et devenir des centres isolés dans les sites de sodium. Dans leur analyse, il a été remarqué que la luminescence émise par les ions Ag^+ est d'un ordre de grandeur plus élevé que celle de la contribution du verre. A mesure que la teneur en argent augmente dans le verre, une bande d'émission apparaît (émission bleu-verte) avec une intensité plus importante que la précédente (émission violette). Ce mécanisme s'explique par

les transitions électroniques des états excités de l'ion Ag^+ et le renforcement du transfert d'énergie entre les ions proches les uns des autres. Le comportement thermique du verre montre aussi que le pic du spectre d'absorption est fonction de la température et de la concentration en argent [45].

III.2. Verres phosphates photoluminescents

Les propriétés photoluminescentes des verres phosphates de composition $\text{Ag}_2\text{O-ZnO-P}_2\text{O}_5$ ont permis de mettre en évidence deux centres émetteurs [46]. Au cours d'expériences menées à 300°K , aucune luminescence n'a été détectée dans les échantillons de composé $\text{Zn}(\text{PO}_3)_2$ et ZnP_2O_7 . Par contre, l'émission observée dans les verres étudiés résulte principalement de la présence de l'argent. Une bande d'émission apparaît dans le proche UV-visible entre 280 et 500 nm avec un maximum à 380 nm. Cette dernière a été attribuée à l'ion Ag^+ isolé sans interaction avec les autres voisins. L'autre bande s'étend sur une large gamme de longueur d'onde entre 400 et 750 nm avec un maximum à 550 nm. Elle est attribuée à la formation de paires Ag^+-Ag^+ .

III.3. Verres radioluminescents

L'exposition aux rayonnements ionisants induit un certain nombre de changements dans les propriétés des verres dopés à l'argent. Elle peut y faire apparaître un phénomène de noircissement ou y créer des centres luminescents dont les ions moléculaires jouent le rôle de centres radiophotoluminescents [43]. En effet ces verres, après irradiation, émettent une fluorescence par excitation aux rayons ultraviolets. Ce phénomène est connu sous le nom de la radiophotoluminescence (RPL).

IV. La radiophotoluminescence (RPL)

La radiophotoluminescence est le phénomène faisant qu'un verre méta-phosphate activé à l'argent émet une fluorescence de couleur orange par excitation aux rayons ultraviolets lorsque le verre a été préalablement exposé à des rayonnements ionisants.

IV.1. Principe physique de la RPL

Le milieu actif des dosimètres RPL possède une structure cristalline type verre dopé à l'argent dont les électrons sont initialement dans la bande de valence, ce qui permet d'illustrer son mécanisme de fonctionnement par un modèle de bandes d'énergie. Sous l'effet de

l'irradiation, l'électron (e^-) et le trou (h^+) libérés par un processus d'ionisation, peuvent se mouvoir dans le verre ou être capturés par les ions Ag^+ dans la bande interdite, ce qui va conduire à la formation des centres luminescents Ag^0 et Ag^{++} , comme illustré sur la figure III-2 [47].

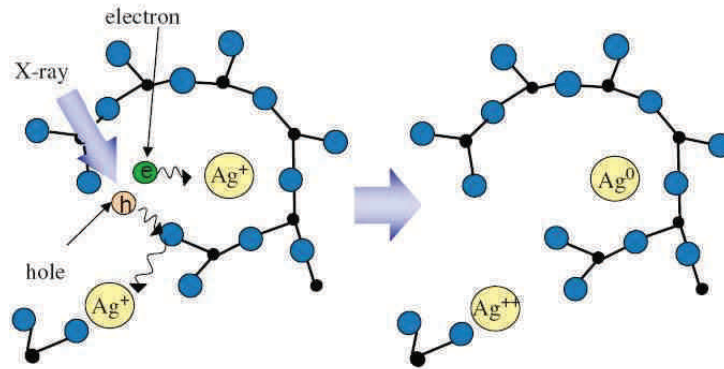


Figure III-2 : Formation de centres Ag^0 et Ag^{++} : $Ag^+ + e^- \rightarrow Ag^0$, $Ag^+ + h^+ \rightarrow Ag^{++}$.

Lorsque le verre est placé sous un faisceau ultraviolet de longueur d'onde d'environ 320 nm, les centres peuvent être excités, et leur désexcitation s'accompagne de l'émission d'une luminescence orange dont la longueur d'onde se situe au voisinage de 606 nm (Figure III-3). Cette fluorescence obtenue est proportionnelle à la quantité d'irradiation reçue, c'est-à-dire la dose. Les centres luminescents Ag^0 et Ag^{++} deviennent des états quasi-stables et ne retournent pas à l'état Ag^+ , à température ambiante [48]. Ceci permet une récupération de l'information après lecture du détecteur RPL. La profondeur du piège apparaît donc, comme une énergie d'activation nécessaire pour faire passer les centres Ag^0 et Ag^{++} desdits états à l'état Ag^+ . Ainsi en chauffant le RPL à des températures élevées, par exemple 400° C pendant 1h, il est possible de l'effacer pour une réutilisation.

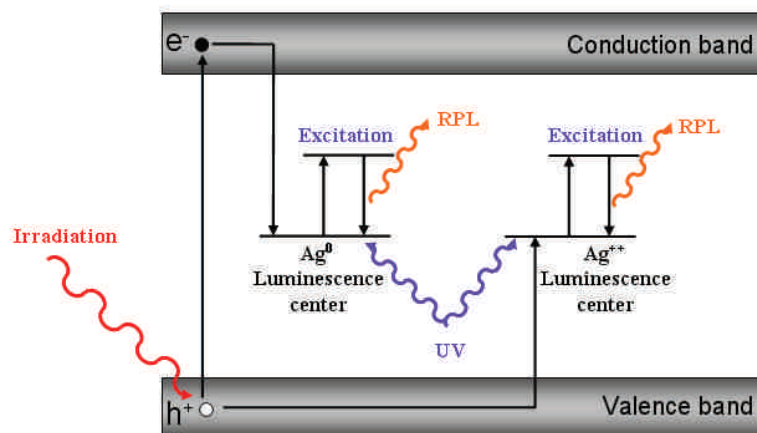


Figure III-3 : Principe de la radiopholuminescence dans le verre phosphate dopé Ag^+ .

IV.2. Spectre d'émission et d'excitation

Les spectres d'excitation et d'émission RPL du verre phosphate dopé Ag^+ irradié avec des rayons X sont montrés sur la figure III-4 [49]. La déconvolution des pics spectraux de forme gaussienne permet d'identifier deux bandes d'excitation à environ 315 nm et 360 nm, et deux bandes d'émission pointant à 460 nm et 560 nm. Les deux premières correspondent aux bandes d'absorption optique dans le domaine de l'UV, et les deux dernières caractéristiques de la radiophotoluminescence dans le domaine du visible. Les centres luminescents Ag^0 et Ag^{++} formés après irradiation correspondent respectivement aux pics à 460 nm et 560 nm [48]. La lumière RPL mesurée provient d'une excitation dont la longueur d'onde se situe autour de 315 nm.

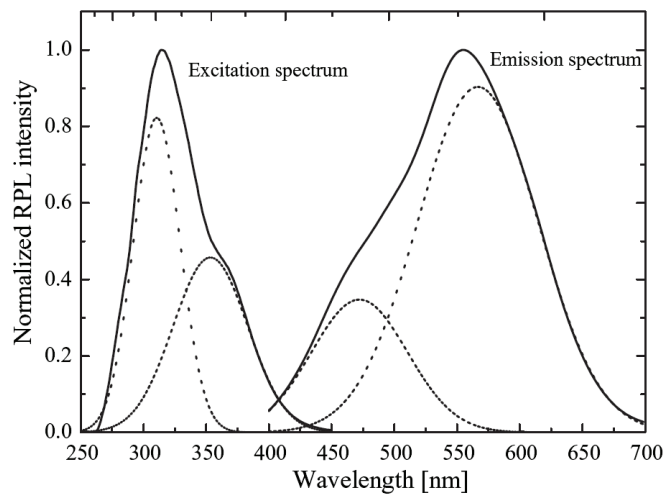


Figure III-4 : Spectres d'excitation et d'émission du verre phosphate dopé Ag^+ , après irradiation aux rayons X.

V. Système d'exploitation des données

V.1. Détecteur

Le détecteur caractérisé pour les neutrons dans ce travail est le même que le dosimètre dédié au suivi réglementaire dans le groupe RAMSES. C'est un verre phosphate activé à l'argent qui se présente sous la forme d'une plaque de 35 mm × 7 mm × 1,5 mm. Ce dosimètre possède cinq positions de détection de la fluorescence. Après irradiation, il est placé dans un plateau pouvant en contenir 20. Celui-ci est ensuite introduit dans un conteneur avant de subir un traitement thermique, puis passer à la lecture. Le conteneur est muni à une extrémité d'un arrêtoir servant à prévenir l'extraction des plateaux au moment de la lecture (figure III-5).

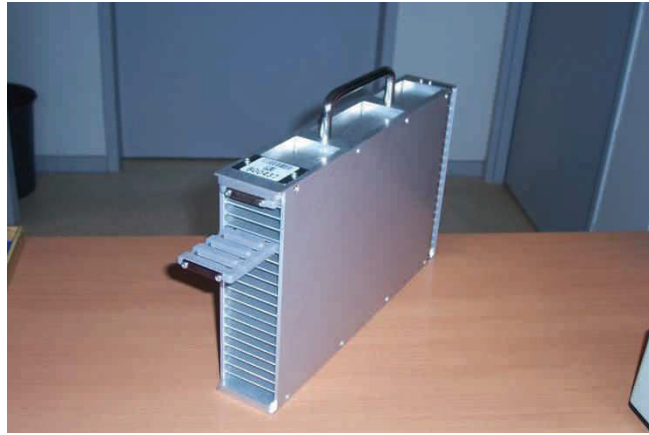


Figure III-5 : Conteneur avec deux plateaux dont l'un y est partiellement enfoncé.

V.2. Traitement thermique

Après irradiation, le verre doit subir un traitement thermique (préchauffage) à 100°C pendant 1 heure avant la lecture des données. C'est une opération de chauffe servant à faire monter en puissance en un temps court l'intensité lumineuse radiophotoluminescente [50]. En effet, après l'arrêt de l'exposition aux rayonnements ionisants, la formation des centres luminescents continue et le signal RPL correspondant à la quantité d'irradiation reçue n'est atteint qu'au bout d'un ou plusieurs jours. Ce phénomène, dénommé "build-up" peut être accéléré en chauffant le détecteur [51]. La figure III-6 montre l'évolution des spectres RPL en fonction du temps écoulé juste après irradiation du verre phosphate dopé Ag^+ [49].

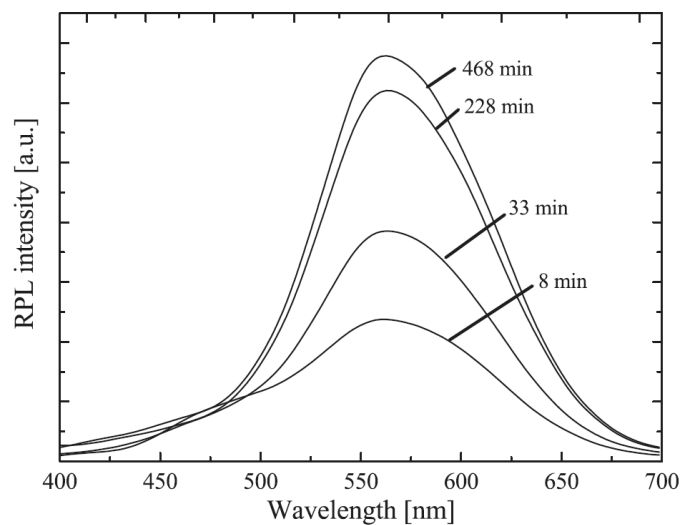


Figure III-6 : Spectres RPL en fonction du temps écoulé après une irradiation d'environ 0,5 Gy aux rayons X.

L'augmentation du signal RPL a été également mise en évidence dans ce travail. Un détecteur à été exposé aux rayons γ d'une source de ^{60}Co d'activité $10\ \mu\text{Ci}$ pendant environ 17h. Suite à cette irradiation, la valeur du signal a été lue après différents intervalles de temps sans que le verre phosphate dopé Ag^+ ait subi un quelconque traitement thermique. Il apparaît clairement sur la figure III-7 que l'intensité du signal RPL continue d'évoluer après exposition. La valeur dans l'histogramme obtenue au temps écoulé $t = 0\ \text{h}$, correspond à la lecture du détecteur juste après irradiation. Ainsi, en effectuant un préchauffage du détecteur avant lecture on gagne du temps pour l'intensité maximum du signal mesuré.

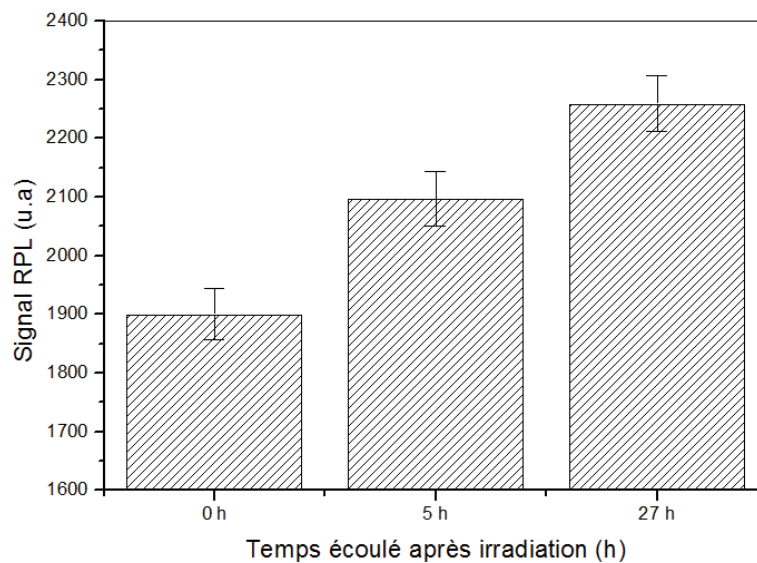


Figure III-7 : Evolution du signal RPL en fonction du temps écoulé après exposition aux rayons γ de la source de ^{60}Co .

V.3. Système de lecture

Le lecteur RPL utilisé au sein du groupe RAMSES est le modèle FGD-660. Il peut lire automatiquement un maximum de 2000 plaques en verre en une seule fois. Le laser solide qu'il contient, fournit les impulsions source d'excitation aux rayons UV. La lumière UV traverse d'abord un filtre avant d'arriver sur un miroir semi-réfléchissant. Ce dernier dévie une partie des rayons UV sur un verre de référence et la partie qui le traverse est renvoyée sur la plaque de verre qui émet la fluorescence RPL. Ce signal lumineux, après avoir traversé les filtres anti-UV et d'interférence, rentre dans le photomultiplicateur pour être transformé en signal de courant électrique. La fluorescence issue du verre de référence est, quant à elle, utilisée pour normaliser la fluorescence émise par la plaque en verre qui est due à son tour à la variation de la puissance du rayon laser. Une seconde plaque de verre RPL est aussi fixée à

l'intérieur du lecteur. Elle est employée comme verre standard secondaire pour servir de calibrage automatique à des intervalles prédéfinis.

Enfin le lecteur équipé d'un ordinateur de contrôle à partir duquel est exploité le résultat, donne l'intensité du signal dans une unité arbitraire (u.a), et la dose reçue par le dosimètre, pour le suivi réglementaire, est calculée via des ordinateurs en amont. Cette conversion s'effectue avec une courbe d'étalonnage prédéfinie qui donne la variation de la réponse du détecteur en fonction de la dose absorbée. La figure III-8 montre le schéma de principe du lecteur et de son système optique [50].

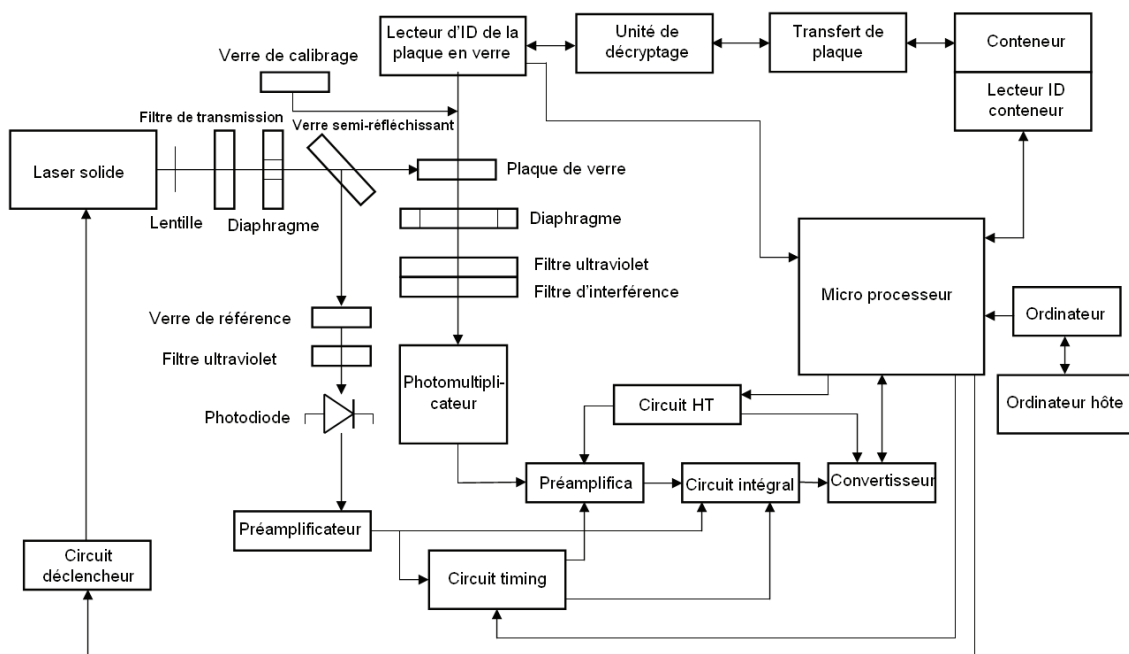


Figure III - 8 : Composition du module de lecture FGD-660.

V.4. Système de réinitialisation

Contrairement au dosimètre thermoluminescent, le verre RPL conserve l'information après lecture grâce à la stabilité des centres luminescents. Mais il est possible de faire une remise à zéro du détecteur en le chauffant à environ 400°C pendant 1h dans un four de recuit. Cette opération libère les électrons piégés et ramène les centres luminescents Ag^0 et Ag^{++} à leur niveau énergétique fondamental Ag^+ .

Le fonctionnement du four peut se faire de façon automatique en réglant une courbe de température qui décrit le profil de chauffage désiré. Dans notre cas, le réglage a été fait suivant deux rampes de chauffage linéaire (time 1 et time 2), un temps de maintien (time 3) et

une rampe de refroidissement (time 4). Ce mécanisme est schématisé sur la figure III-9. Lors du déroulement du programme, une diode lumineuse s'allume à chaque intervalle de chauffage (time 1 à time 4). Une fois le dernier segment terminé, le chauffage s'éteint et le programme s'arrête. Cependant, il faut éviter un refroidissement brusque du verre, cela peut engendrer des anomalies éventuelles de la valeur de la prédose (bruit de fond).

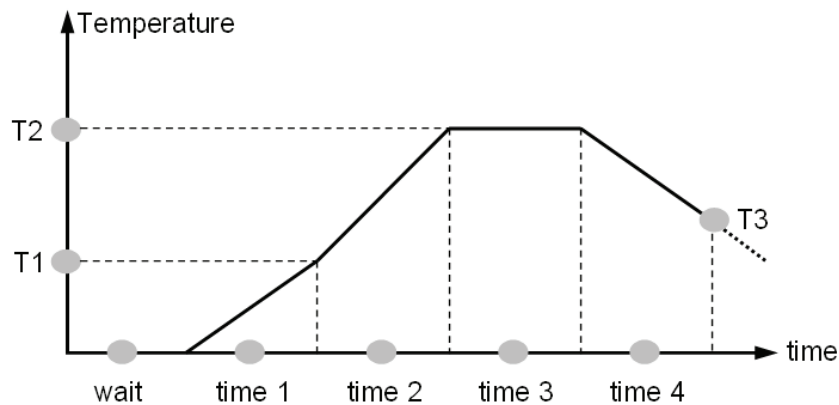


Figure III-9 : Schéma du mécanisme de chauffage

VI. Caractéristiques intrinsèques du verre RPL

VI.1. Analyse par microscopie électronique à balayage (MEB)

La microscopie électronique à balayage (MEB) permet de visualiser les images de surfaces des matériaux solides, à des échelles allant de l'ordre de la loupe à celle du microscope électronique en transmission. Le MEB conventionnel fonctionne dans un vide ordinaire (10^{-5} à 10^{-6} mbar); les échantillons peuvent être massifs, de dimension allant de quelques μm à une dizaine de cm de diamètre. Ils doivent supporter le vide et être conducteurs [52]. Le MEB utilise un fin faisceau d'électrons qui peut être focalisé sur l'échantillon grâce à des lentilles électromagnétiques. L'interaction des électrons avec l'échantillon produit des électrons secondaires qui sont détectés et convertis en signal électrique. Ce processus est réalisé en chaque point de l'échantillon par un balayage du faisceau. Les signaux obtenus permettent de fournir une image en relief. Equipé des détecteurs appropriés, le MEB permet de faire également de la microanalyse X, analyse élémentaire locale, ce qui permet par la suite de détecter les raies caractéristiques X (des couches K, L, M) des éléments présents dans l'échantillon. En effet, le photon X émis lors du réarrangement du cortège électronique à la suite de l'émission d'un électron, est caractéristique de la transition et donc de l'élément concerné. L'identification des raies caractéristiques se superposant au spectre d'émission

continu de rayons X se fait soit en énergie soit en longueur d'onde. Dans ce contexte la microanalyse se pratique sur le MEB en mode spectromètre sélection d'énergie (EDS) ou en spectromètre à dispersion de longueur d'onde (WDS).

- En EDS une diode silicium dopée au lithium, associée à un analyseur multicanal, fait un classement des rayons X en fonction de leur énergie. Il détecte les éléments allant du bore ou du sodium, selon la fenêtre d'entrée de la diode, à l'uranium, avec une résolution de 60 à 160 eV selon l'énergie.
- En WDS un monochromateur fait un tri séquentiel en longueur d'onde selon la loi de Bragg [53]. Il détecte les éléments du béryllium à l'uranium, avec une résolution en énergie de 5 à 35 eV.

Le verre radiophotoluminescent utilisé dans ce travail a été analysé par MEB à l'Institut de Physique et Chimie des Matériaux de Strasbourg (IPCMS). Le verre n'étant pas conducteur, il a été revêtu d'une couche mince de carbone. Le dépôt de cette dernière se fait de manière à ce que le signal X de l'échantillon ne soit pas significativement absorbé par son épaisseur. L'échantillon est ensuite monté sur un plot en laiton par un blocage mécanique avant d'être introduit dans le MEB (figure III-10). Une gamme d'énergie de 0-10 keV permet de couvrir l'ensemble des besoins habituels. Dans notre cas cette gamme a été étendue jusqu'à 20 keV afin de lever les ambiguïtés en cas de superposition des raies. Un spectre a été fait avec une tension (~ 20 kV) afin d'identifier en premier les pics les plus intenses. Puis on s'est intéressé aux traces des raies les moins intenses en refaisant un autre spectre avec une énergie plus adaptée et un temps de comptage différent. Une série de mesures a été réalisée et la composition multi-élémentaire du verre obtenue est donnée dans le tableau III-1. Ce résultat sera par la suite utilisé dans le code de calcul MCNPX.

Eléments	Composition (%)
O	48,33 ± 0,32
Na	13,24 ± 0,12
Al	6,18 ± 0,09
P	31,53 ± 0,29
Ag	0,72 ± 0,18

Tableau III-1 : Composition multi-élémentaire du verre radiophotoluminescent.



Figure III-10 : Microscope électronique à balayage de l'IPCMS.

VI.2. Homogénéité du signal

Le dosimètre RPL utilisé pour le suivi réglementaire au sein du groupe RaMsEs possède cinq positions de lecture en routine associées à des filtres dont le rôle est d'identifier les rayonnements ionisants en fonction de leur nature et de leur énergie (figure III-11). En ce qui concerne la détection des neutrons, seule la partie détecteur (verre phosphate dopé Ag^+) a été caractérisée. Donc en l'absence des filtres, les cinq plages doivent fournir le même signal pour un rayonnement donné. C'est dans ce cadre que l'homogénéité de la réponse de chaque position a été étudiée afin de mieux caractériser le dosimètre RPL pour les neutrons. Pour cette étude, quatre détecteurs ont été soumis au champ mixte n- γ de la source $^{241}\text{Am-Be}$ du calibrateur de l'IPHC pendant 24 heures. Compte tenu de leur insensibilité aux neutrons, les signaux obtenus sont dus essentiellement aux gamma, plus précisément celui de 4,48 MeV émis à 100%. La figure III-12 représente les résultats sous forme de courbes à effet 3D. On peut constater que le signal RPL correspondant à chaque position de lecture, pour chaque dosimètre RPL, est presque identique avec un profil plat. Les valeurs des signaux moyens de chacun des quatre détecteurs RPL sont 394 ± 3 , 393 ± 2 , 393 ± 6 et 384 ± 5 (u.a). Ces résultats compatibles permettent de combiner les signaux RPL des 20 positions qui sont distribués autour d'une valeur moyenne 391 ± 6 (u.a), avec un coefficient de variation de 1,5%. De ces séries de mesure, on peut également déduire que le détecteur RPL fournit une bonne reproductibilité. Cependant au bout d'un certain temps d'utilisation, l'homogénéité et la reproductibilité du signal se dégradent. Cet effet sera mis en évidence dans l'étude de l'évolution du bruit de fond intrinsèque (prédose) après chaque irradiation.

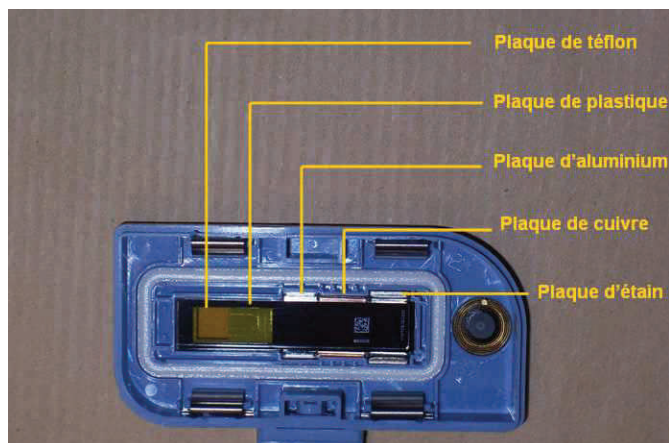


Figure III-11 : Positionnement des différents filtres dans le boîtier du dosimètre RPL.

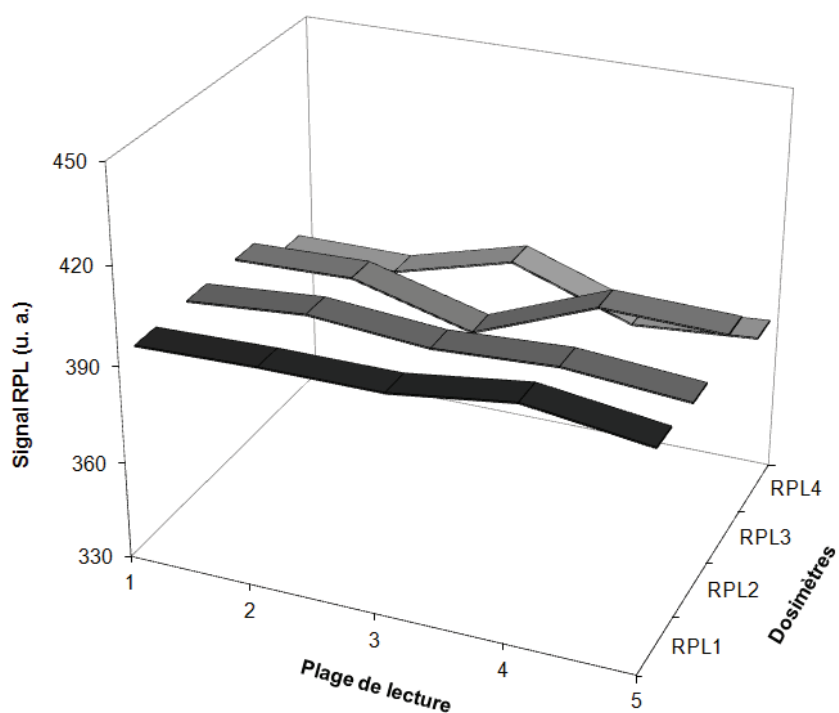


Figure III-12 : Représentation en 3D de la variation du signal RPL en fonction de la plage de lecture et du détecteur RPL associé.

VI.3. Effet de lectures successives

Le dosimètre RPL peut être lu autant de fois que nécessaire sans perdre l'information, ce qui n'est pas le cas des films photostimulables où le signal décroît brusquement en fonction du nombre de lectures [54]. Afin de rester dans un concept de caractérisation de ces dosimètres

pour les neutrons rapides, deux détecteurs, dont l'un était muni d'un convertisseur en polyéthylène ont été exposés aux neutrons de la source $^{241}\text{Am-Be}$. La variation avec la lecture de la différence de la réponse des deux détecteurs, résultat correspondant aux signaux des protons de recul issus du convertisseur est montrée sur la figure III-13. On peut constater que les résultats des lectures successives fluctuent avec une déviation moyenne de 4% par rapport à la première lecture. Les fluctuations sont probablement provoquées par les variations de la puissance du rayon laser du lecteur. Les barres d'erreur représentent la dispersion sur le résultat d'une série de 5 mesures.

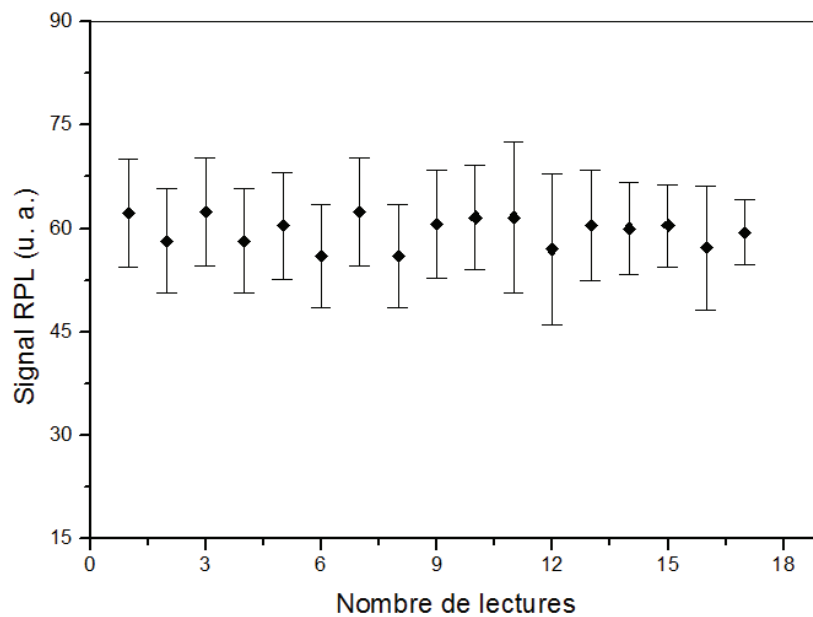


Figure III-13 : Lectures successives des signaux RPL des protons de recul.

VI.4. Évolution du bruit de fond

Un des principaux problèmes des détecteurs RPL est l'évolution du bruit de fond à chaque remise à zéro (effacement du signal RPL). Après exposition et exploitation des données, le détecteur doit être réinitialisé avant une prochaine utilisation. Il s'est avéré, après le suivi des quatre détecteurs RPL, que le bruit de fond (signal résiduel intrinsèque) augmente graduellement. La figure III-14 montre l'évolution de ce signal en fonction du nombre de remises à zéro. On peut voir que cette figure se compose de deux parties linéaires (1^{ère} à la 4^{ème}, 10^{ème} à la 16^{ème} remise à zéro) et une zone de stabilité entre la 4^{ème} et la 10^{ème} remise à zéro. Dans cette zone de stabilité, les signaux RPL moyens résiduels des dosimètres RPL1, RPL2, RPL3 et RPL4 sont respectivement 58 ± 3 , 59 ± 3 , 53 ± 3 et 52 ± 3 en u.a. Ces

valeurs sont de l'ordre de grandeur du signal RPL résiduel correspondant au bruit de fond seuil (55 u.a.) au dessus duquel le logiciel d'analyse du signal, permettant de calculer la dose reçue, indique une anomalie, c'est-à-dire qu'il ne mentionne pas l'exposition reçue par une personne lors du suivi réglementaire. Cet effet est probablement dû au fait que les signaux RPL associés aux doses reçues au cours des expositions de routine sont parfois très inférieurs au bruit de fond.

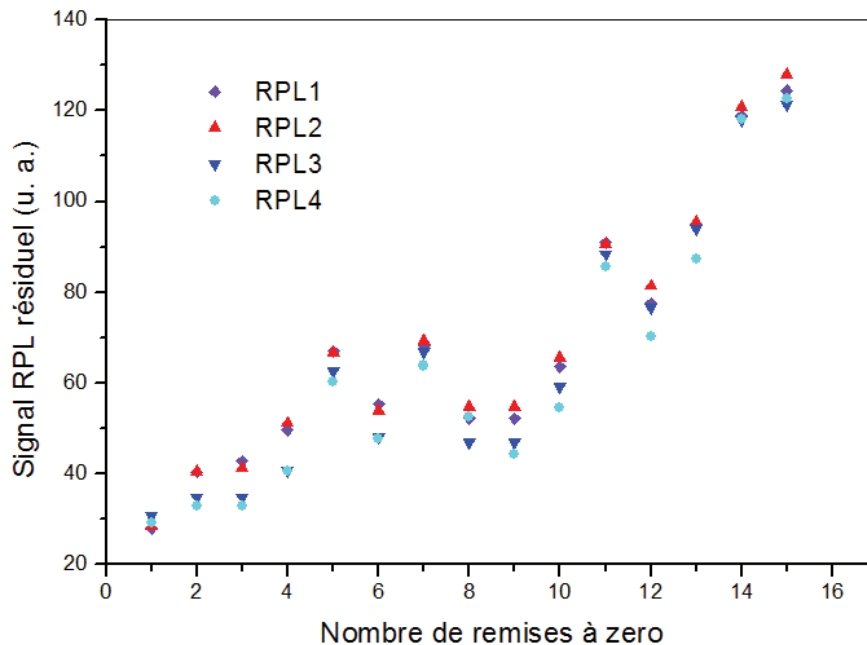


Figure III-14 : Evolution du bruit de fond intrinsèque du détecteur RPL en fonction du nombre de remises à zéro après exposition aux rayonnements ionisants.

VI.5. Conséquence de l'évolution du bruit de fond et du recuit

Dans le cadre du suivi réglementaire, les dosimètres sont appelés à être analysés trimestriellement. Au bout de plus d'une année de mise en service, on commence déjà à atteindre la valeur 55 (u. a.) du bruit de fond seuil résiduel. Cette valeur se stabilise pendant une certaine période d'utilisation avant de croître (figure III-14), ce qui en limite, d'après le fabricant, le nombre de périodes d'utilisation qui s'élève normalement à environ 50. De plus, l'évolution du bruit (donc des chauffages cumulés à 400°C) a un effet indésirable sur l'homogénéité et la reproductibilité du signal RPL. Sur la figure III-15 sont montrés les signaux RPL issus des positions de lecture des quatre RPL, cette fois-ci après qu'ils aient subi environ 5 remises à zéro. On voit clairement que les quatre RPL, exposés au champ mixte n- γ de la source $^{241}\text{Am-Be}$ ont des signaux RPL plus chaotiques, avec une distribution plus grande

plage à plage. De ce contexte, les recuits successifs "affecteraient" les propriétés optiques de l'ion Ag^+ dans le verre. Cependant, le signal RPL reste récupérable au niveau de l'ordinateur de contrôle qui l'affiche et l'enregistre, quelle que soit l'évolution du bruit de fond.

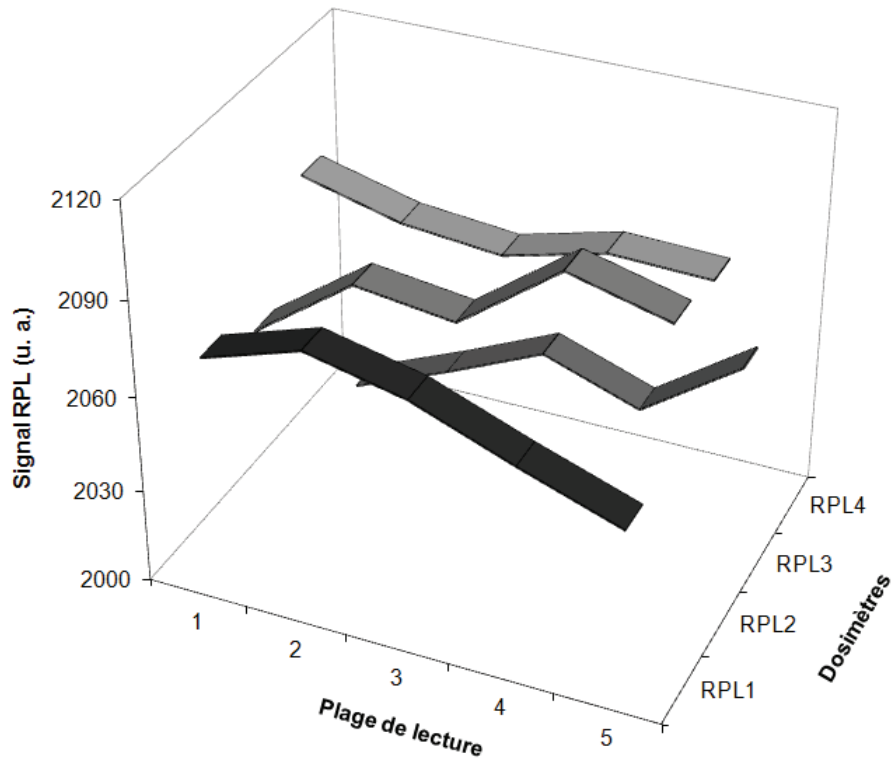


Figure III-15 : Représentation en 3D de la variation du signal RPL en fonction de la plage de lecture après plusieurs recuits à 400°C.

VII. Conclusion

Il ressort de cette étude que les détecteurs RPL présentent une bonne reproductibilité. Les lectures successives des signaux protons d'un même dosimètre ne fluctuent que de 4% par rapport à une première lecture. Cependant, malgré leurs excellentes propriétés dosimétriques par rapport aux autres détecteurs (TLD, OSL, DSTN etc...), ces dosimètres sont confrontés à des problèmes de stabilité de bruit de fond qui évolue après chaque exposition aux rayonnements ionisants, ce qui en limite le nombre d'utilisations dans le cadre du suivi réglementaire. Il a été également observé que l'homogénéité et la reproductibilité sont détériorées avec le recuit cumulé à 400°C qui pourrait affecter les propriétés optiques de l'ion Ag^+ dans le verre et conduire à une sous-estimation de la dose.

Chapitre 4

Caractérisation des dosimètres RPL pour les neutrons rapides

Toutes les mesures même celles réalisées avec des appareils suffisamment précis et répétées en au tant de fois que nécessaires sont entachées d'erreurs. Celles-ci peuvent être plus ou moins importantes selon le protocole choisi, la qualité des instruments de mesure ou le rôle de l'opérateur. Évaluer l'incertitude sur une mesure est un domaine complexe qui fait l'objet d'une branche complète : la métrologie. Celle-ci comprend tous les aspects théoriques et pratiques des mesurages, quels que soient l'incertitude de mesure et le domaine d'application. La maîtrise des gardeurs dosimétriques et opérationnelles présente un grand intérêt en métrologie des rayonnements ionisants et plus particulièrement en dosimétrie neutrons. Les résultats de mesures que nous effectuons ne peuvent pas être absolument précis et donnent souvent des valeurs plus ou moins proches de celle de la réalité. Par conséquent, il faut estimer l'erreur faite sur un résultat en tenant compte des erreurs faites sur les mesures qui ont conduit à ce résultat.

I. Incertitudes appliquées aux mesures de rayonnements

L'incertitude est un paramètre associé au résultat d'une mesure qui caractérise la dispersion des valeurs et pourrait être raisonnablement attribué au mesurande [55]. L'affectation d'un résultat par cette dernière peut provenir de plusieurs sources, dont principalement les conditions de mesure et les effets liés aux appareils (reproductibilité, indication, contamination). Pour obtenir l'incertitude associée à un résultat de mesure, plusieurs tâches doivent être effectuées. Celles-ci se répartissent en quatre étapes illustrées schématiquement sur la figure IV-1:

- Spécification du mesurande : établir clairement la grandeur à mesurer ainsi que les facteurs dont elle dépend.
- Identification des sources d'incertitude : trier les sources éventuelles d'incertitudes liées à la grandeur à mesurer et à l'appareil.
- Quantification des composantes de l'incertitude : identifier et déterminer la valeur de l'incertitude associée à chaque composante de l'incertitude globale afin de s'assurer que tous les paramètres ont été correctement pris en compte.
- Calculer l'incertitude composée : il s'agit de donner une estimation de l'incertitude globale en combinant les incertitudes types des estimations d'entrée.

L'incertitude sur le résultat d'une mesure n'est pas exactement connue mais peut être estimée via des méthodes probabilistes. Dans ce contexte, on introduit quelques modèles statistiques

caractérisant la dispersion des mesures et la détection des rayonnements ionisants. Il s'agit de l'incertitude de type A et l'incertitude de type B principalement utilisées dans ce travail pour évaluer nos erreurs de mesures.

I.1. Incertitudes de type A

L'incertitude de type A est obtenue à partir d'une analyse statistique des mesures répétées, et peut être réduite en augmentant le nombre de mesures. Notée u_A , elle est définie comme l'erreur standard de la moyenne $\sigma_{\bar{x}}$. L'erreur de mesure est la différence entre la valeur mesurée d'une grandeur et une valeur de référence. Si la valeur conventionnellement vraie est égale à celle du mesurande, l'erreur est inconnue.

I.1.1. Moyenne arithmétique

La moyenne arithmétique est l'estimation d'une grandeur x qui varie au hasard et pour laquelle on a obtenu n observations indépendantes x_i dans les mêmes conditions de mesure [56]. Supposons que l'on effectue la mesure d'une grandeur dosimétrique x n fois par la même méthode. La moyenne arithmétique \bar{x} de toutes les mesures x_i est donnée par :

$$\bar{x} = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n x_i \quad (\text{IV-1})$$

La moyenne arithmétique est particulièrement sensible à l'existence d'effets aléatoires provenant de variations temporelles et spatiales de grandeurs d'influences (facteurs dont dépend le mesurande). L'erreur aléatoire Δ d'un mesurage correspond au résultat obtenu x d'une mesure moins la moyenne \bar{x} d'une série de mesures réalisées dans des conditions de répétabilité.

$$\Delta = x - \bar{x} \quad (\text{IV-2})$$

I.1.2. Ecart type expérimental

L'écart type σ_x représente une estimation de la dispersion des valeurs prises par la grandeur x autour de la moyenne \bar{x} .

$$\sigma_x = \sqrt{\frac{1}{n-1} \sum_{i=1}^n (x_i - \bar{x})^2} \quad (\text{IV-3})$$

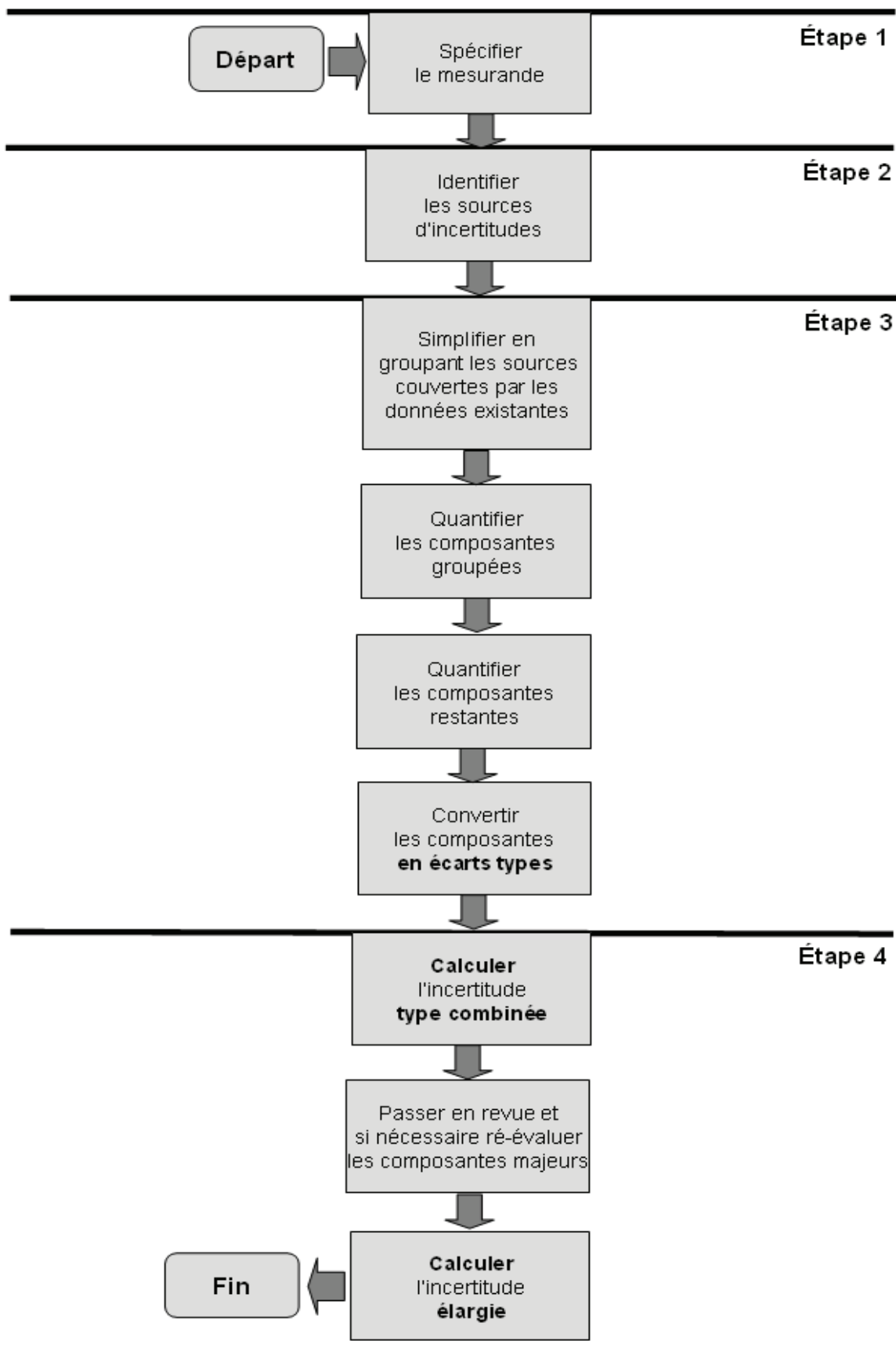


Figure IV-1 : Processus d'estimation de l'incertitude.

Un résultat classique sur les lois d'échantillonnage montre que la meilleure estimation de la variance de la moyenne \bar{x} notée σ_x^2 est $\frac{\sigma_x^2}{n}$ [57].

1.1.3. L'erreur standard de la moyenne

L'incertitude sur la moyenne $\sigma_{\bar{x}}$ d'une grandeur estimée à partir de n mesures répétées et indépendantes est donnée par :

$$\sigma_{\bar{x}} = \frac{1}{\sqrt{n}} \sigma_x = \frac{1}{\sqrt{n}} \sqrt{\frac{1}{n-1} \sum_{i=1}^n (x_i - \bar{x})^2} \quad (\text{IV-4})$$

On voit bien que dans cette relation l'incertitude diminue en augmentant le nombre de mesures. D'où la nécessité de préciser les conditions dans lesquelles les mesures ont été réalisées par rapport aux conditions de répétabilité.

I.2. Incertitudes type B

Très souvent les résultats obtenus de mesures sont combinés à des facteurs correctifs ou à des données physiques tirées de la littérature afin d'accéder à la grandeur finale recherchée. Les expressions finales mettent en jeu en général des opérations de multiplication. Nous pouvons citer en exemple la détermination de l'équivalent de dose ambiant qui correspond au produit de la fluence par les coefficients de conversion fluence-dose. Dans ce cas, on introduit l'incertitude de type B notée u_B dont l'évaluation s'effectue via des moyens autres que l'analyse statistique d'une série de mesures mais plutôt à travers un jugement scientifique tenant compte de toutes les incertitudes sur les paramètres indépendants dont dépend la grandeur recherchée.

Si l'équation qui détermine une grandeur opérationnelle H en un point est de la forme :

$$H = M \times N \quad (\text{IV-5})$$

avec M la lecture fournie par l'instrument de mesure et N le facteur d'étalonnage entaché d'une incertitude, l'incertitude composée associée à la grandeur H est une somme quadratique des incertitudes de type A et de type B.

$$\frac{u_H}{H} = \sqrt{\left(\frac{u_M}{M}\right)^2 + \left(\frac{u_N}{N}\right)^2} \quad (\text{IV-6})$$

Bien que l'incertitude u puisse être utilisée pour évaluer l'erreur sur le résultat d'une mesure, il est souvent nécessaire d'utiliser l'incertitude élargie U qui satisfait à l'exigence de fournir un large intervalle à l'intérieur duquel la distribution des valeurs du mesurande se rapporte à la précision de la mesure. Cette dernière s'obtient en multipliant u_H par un facteur d'élargissement k . Ainsi, le résultat de mesure de la grandeur H peut s'écrire sous la forme $H \pm U$ avec $U = k \times u_H$. Pour $k = 2$ on a un niveau de confiance de 95%.

Dans ce travail, les erreurs représentent la dispersion sur le résultat d'une série de n mesures ou une combinaison quadratique des incertitudes sur les différents paramètres mis en jeu.

II. Dosimétrie des neutrons rapides

II.1. Détermination des grandeurs physiques et opérationnelles

Le code de calcul MCNPX, version 2.6 [29], a été utilisé dans cette partie pour déterminer ces grandeurs. La version 2.7.0 recommandée pour le calcul d'activation neutronique a été utilisée plus tard pour simuler les réactions (n,γ) susceptibles de se produire dans le verre RPL. Tout d'abord, nous avons commencé par simuler le débit de fluence $\dot{\Phi}$ et le débit d'équivalent de dose ambient $\dot{H}^*(10)$ afin de les comparer aux valeurs obtenues par spectrométrie avec les sphères de Bonner (BSS) [58]. La structure de la source [10] et la salle d'irradiation, constituée d'un cube en polyéthylène équipé d'un tube en Al à travers lequel est extraite la source, ont été strictement spécifiées dans le fichier d'entrée du code de simulation. La distribution en énergie de la source $^{241}\text{Am-Be}$ est tirée de la norme ISO 8529-1 [14]. Les informations concernant les sections efficaces des différents matériaux mis en évidence ont été extraites à partir des données nucléaires de la librairie, ENDF/B-VI. Le débit de fluence $\dot{\Phi}$ a été obtenu à l'aide du tally (F5), point détecteur tout en tenant compte de l'intensité de la source $(2,24 \pm 0,12) \times 10^6$ n/s. MCNPX permet de réaliser cette opération grâce à la carte WGT. Le débit d'équivalent ambient $\dot{H}^*(10)$ et le débit d'équivalent de dose personnel $\dot{H}_p(10)$ ont été ensuite obtenus au point détecteur en utilisant respectivement le coefficient de conversion fluence neutronique – équivalent de dose ambient $h^*(10)$ et le coefficient de conversion fluence neutronique – équivalent de dose personnel $h_p(10,0^\circ)$ recommandés par la CIPR 74 [59]. Pour y parvenir nous introduisons les cartes Dose Energie (DE) et Dose Fonction (DF) qui tiennent compte de ces coefficients dans le code de simulation. Les valeurs

de $\dot{\Phi}$, $\dot{H}^*(10)$ et $\dot{H}_p(10)$ pour différentes distances sont répertoriées dans le tableau IV-1. Un bon accord est observé avec les résultats de la mesure par BSS. Par conséquent nous validons nos calculs de simulation et nous considérons que les valeurs de $\dot{H}_p(10)$ sont satisfaisantes. La figure IV-2 montre les variations des facteurs de conversion $h^*(10)$ et $h_p(10,0^\circ)$ en fonction de l'énergie incidente des neutrons [59].

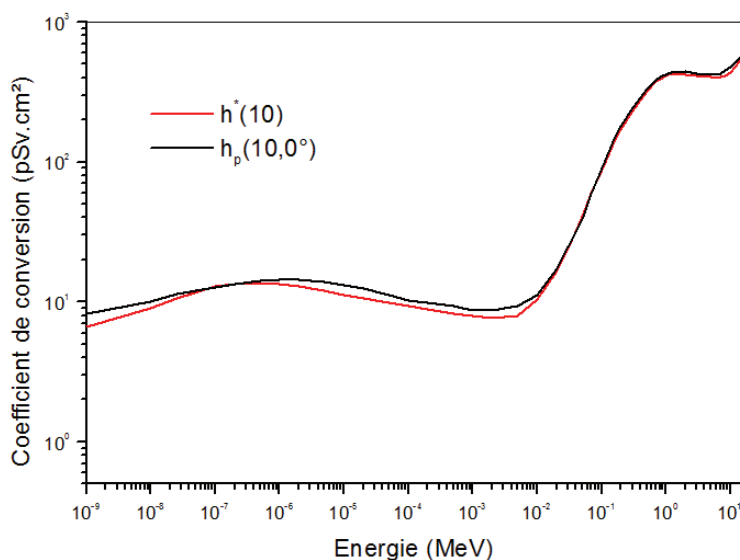


Figure IV-2 : Variation des coefficients de conversion en fonction de l'énergie des neutrons.

Distance (cm)	BSS		MCNPX		
	Φ ($\text{cm}^{-2} \text{s}^{-1}$)	$H^*(10)$ ($\mu\text{Sv h}^{-1}$)	Φ ($\text{cm}^{-2} \text{s}^{-1}$)	$H^*(10)$ ($\mu\text{Sv h}^{-1}$)	$H_p(10)$ ($\mu\text{Sv h}^{-1}$)
75	$41,0 \pm 1,9$	$48,8 \pm 2,4$	43,5	50,6	53,0
110	$23,6 \pm 1,1$	$25,3 \pm 1,3$	25,9	26,2	27,4
145	$17,2 \pm 0,8$	$16,3 \pm 0,7$	19,6	17,1	17,9
180	$15,3 \pm 0,7$	$12,0 \pm 0,6$	16,9	13,0	13,6

Tableau IV-1 : Résultats des mesures obtenues par BSS et des simulations MCNPX en différents points.

II.2. Dosimétrie d'ambiance

II.2.1. Etudes préliminaires

Comme déjà évoqué, la détection des neutrons rapides se fait via la réaction (n,p) sur des convertisseurs hydrogénés. Toutefois, dans certains de nos premiers essais expérimentaux, nous n'avons pas enregistré de protons de recul à l'aide de notre système dosimétrique mis en place. Pour comprendre les raisons de la non détection, une étude a été menée sur la face du verre RPL à exposer.

II.2.1.1. Face sensible du dosimètre RPL

Le dosimètre RPL est constitué d'un verre transparent dont la face avant et la face arrière sont quasi-identiques excepté pour le code d'identification minuscule gravé sur une face. Nous désignons le côté codé comme la face arrière. Les particules chargées lourdes d'énergie de l'ordre du MeV ont en général un faible parcours dans le solide. Afin de déterminer la face la plus sensible du verre RPL aux dites particules (plus précisément les α), un montage composé d'un écran en papier avec des trous carrés couvrant 4 détecteurs a été mis en œuvre comme illustré sur la figure IV-3. Chaque détecteur possède 5 plages de lecture, et la taille d'un trou carré a été estimée à la largeur d'une plage. Les irradiations ont été effectuées avec les particules α de la source d' ^{241}Am au contact de l'écran pendant environ 24 heures. La source fait 5 cm de diamètre pour 25 μm d'épaisseur (zone active) et émet $153 \alpha \text{ s}^{-1}$ sur 2π [60]. La première expérience a consisté à irradier quatre détecteurs par la face avant, la seconde a consisté à irradier les quatre détecteurs, cette fois deux par la face avant et deux par la face arrière. Les énergies incidentes des particules α sur les détecteurs varient entre 0 et 5,48 MeV.

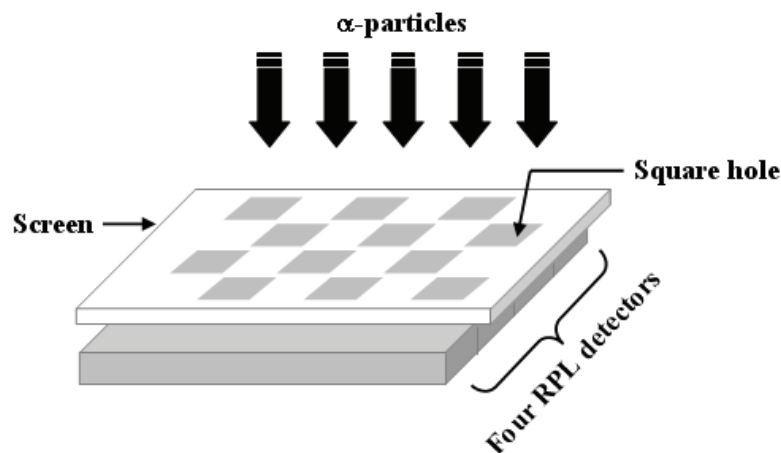


Figure IV-3 : Montage du système d'irradiation avec les particules α de l' ^{241}Am pour déterminer la face la plus sensible du détecteur RPL.

II.2.1.2. Résultats et discussions

Les réponses des détecteurs sont représentées sur la figure IV-4. On voit que les quatre détecteurs irradiés par la face avant enregistrent les particules α traversant les trous de l'écran en papier (figure IV-5 a). Il en est de même pour les détecteurs 1 et 3 (figure IV-4 b), mais par contre on voit dans cette même figure que par irradiation par la face arrière les détecteurs 2 et 4 sont insensibles. Cette expérience démontre que pour détecter les particules α de 0 à 5,48 MeV, et vraisemblablement d'autres particules chargées dans la gamme d'énergie rencontrée ici, le sens de l'orientation du détecteur RPL doit être respecté. Avec cette information, les signaux des protons pourraient être détectés de manière cohérente. Les rayons γ très pénétrants arrivent à bien être détectés par les deux faces.

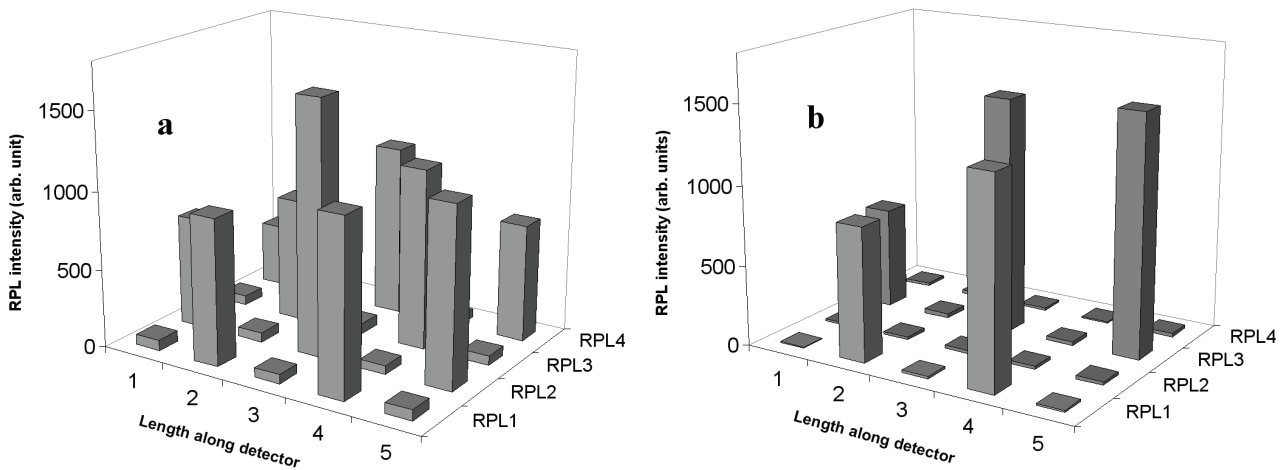


Figure IV-4 : Réponse des détecteurs pour les α de l' ^{241}Am . **a :** exposition de la face avant; **b :** exposition dont 2 en face avant (RPL1 et RPL3) et 2 en face arrière (RPL2 et RPL4), montrant que la face avant est plus sensible aux particules α .

II.2.2 Configuration du système dosimétrique

La figure IV-5 montre la configuration adoptée du dosimètre à neutrons rapides. Elle est constituée d'un assemblage de verre RPL (d'épaisseur 1,5 mm), d'aluminium (d'épaisseur 0,9 mm) et d'un convertisseur en polyéthylène (d'épaisseur 1 mm dans lequel l'équilibre protonique est atteint pour les neutrons de la source $^{241}\text{Am-Be}$), placé dans un boîtier en polyéthylène. Les neutrons sont détectés après leur interaction dans le convertisseur riche en hydrogène qui produit des protons de recul via une collision élastique (n, p). Les variations des sections efficaces de diffusion élastique et de capture radiative sur l'hydrogène et l'aluminium en fonction de l'énergie des neutrons sont montrées sur la figure IV-6 [12]. Compte tenu de la sensibilité du verre RPL aux protons, les trois couches d'aluminium sont

utilisées pour arrêter les protons susceptibles d'être éjectés du boîtier ou d'être rétrodiffusés par le polyéthylène. L'énergie maximum des neutrons issus de la source $^{241}\text{Am-Be}$ est d'environ 11 MeV et elle peut produire des protons de recul de même énergie. L'aluminium utilisé peut arrêter des protons d'énergie 12 MeV [7]. Le verre RPL1 enregistre l'exposition des rayons γ , et le verre RPL2 détecte des rayons γ plus les protons provenant du convertisseur. Les deux verres RPL sont supposés recevoir les mêmes quantités d'irradiation en termes de n et γ . La dose des neutrons rapides est évaluée à partir des protons de recul, considérés comme étant la différence $R_{n,p}$ de mesure entre les verres RPL1 et RPL2.

$$R_{n,p} = R_{\text{RPL(II)}} - R_{\text{RPL(I)}} \quad (\text{IV-7})$$

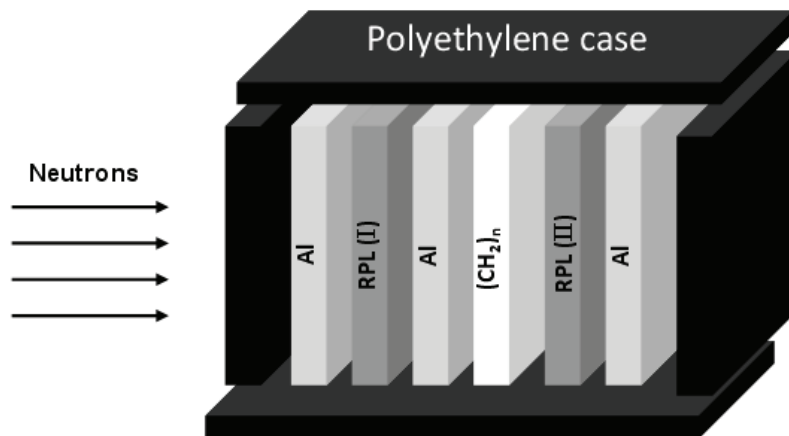


Figure IV-5 : Schéma du montage dosimétrique. Al : aluminium ; RPL : verre radiophotoluminescent ; (CH₂)_n : polyéthylène.

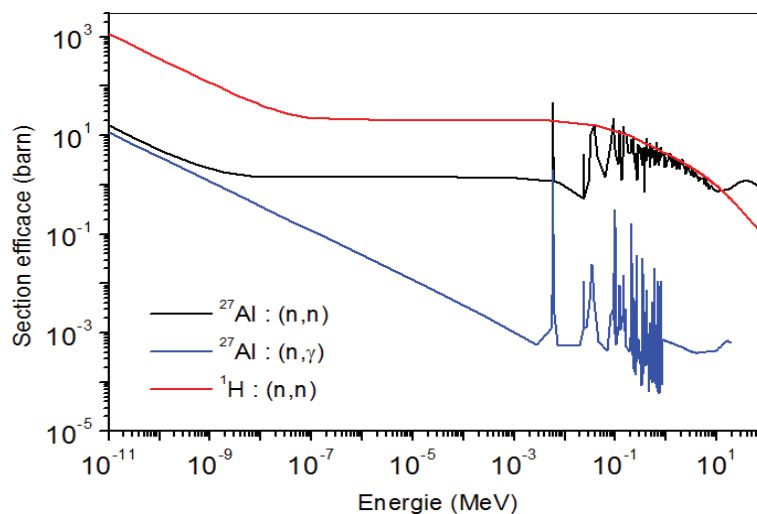


Figure IV-6 : Section efficace des réactions sur l'hydrogène et l'aluminium.

II.2.3. Choix du convertisseur

La détection des neutrons rapides se fait en général via leur diffusion élastique ou inélastique sur des matériaux contenant de l'hydrogène. Pour cela, une étude a été menée sur le choix du convertisseur en vue de son optimisation. Parmi les convertisseurs hydrogénés, nous avons le PADC (polycarbonate d'allyl-diglycol) utilisé dans les détecteurs solides de traces nucléaires, de formule brute $C_{12}H_{18}O_7$, le polyamide $(C_{12}H_{22}N_2O_2)_n$, le polyéthylène $(CH_2)_n$, la paraffine. Notre choix s'est porté sur le polyéthylène afin d'éviter de prendre en compte des sections efficaces additionnelles sur l'azote et l'oxygène dans nos codes de calcul par simulation.

II.2.3.1. Le polyéthylène

Le polyéthylène est le polymère le plus simple, facilement accessible et moins cher. Il est très employé, notamment comme emballage et dans de nombreuses applications industrielles telles que la fabrication de gaines de câbles, les implants chirurgicaux et voire les réservoirs des voitures. Son usage aussi varié s'étend jusqu'à la détection des rayonnements ionisants. Compte tenu de la section efficace (n, p) très élevée dans ce matériau, il est utilisé pour la détection des neutrons rapides. En effet, la diffusion élastique des neutrons rapides sur les noyaux d'hydrogènes qu'il contient produit des protons de recul qui sont détectés par le verre RPL. Cependant, d'autres particules chargées ou rayons γ détectables par le verre RPL peuvent être produits. Les sections efficaces des quelques réactions sont représentées sur la figure IV-7 [12]. On voit que la section efficace de diffusion élastique sur l'hydrogène, qui engendre les protons de recul, est plus importante que celle des réactions avec le carbone jusqu'à 10 MeV. Les particules issues de ces réactions favorisent la détection des neutrons rapides dans le verre RPL2.

II.2.3.2. Optimisation de l'épaisseur du convertisseur

Selon leur énergie et l'épaisseur du convertisseur $(CH_2)_n$, les protons de recul créés peuvent soit être arrêtés dans le convertisseur ou le franchir pour atteindre le verre RPL. Il est donc nécessaire de trouver l'épaisseur optimale pour laquelle le nombre de protons éjectés du convertisseur est constant, c'est-à-dire l'épaisseur de polyéthylène où l'équilibre protonique est réalisé. En effet, pour une énergie donnée des neutrons, il existe une épaisseur de polyéthylène pour laquelle il y a autant des protons de recul créés qui terminent leur parcours qu'il y en a d'absorbés. Le rapport entre la fluence de protons et la fluence de neutrons devient alors constant. Ce rapport correspond à l'efficacité de conversion du convertisseur. La

figure IV-8 représente la courbe de l'équilibre protonique pour le faisceau monoénergétique de neutrons de 10 MeV. Cette-ci a été obtenue par simulation Monte Carlo avec le code MCNPX [29]. L'équilibre protonique est atteint avec une épaisseur d'environ 0,8 mm pour cette énergie. La source $^{241}\text{Am-Be}$ utilisée dans ce travail a une distribution en énergie variant de $4,10^{-7}$ MeV à environ 11 MeV, avec une énergie moyenne en fluence de 4,16 MeV [14]. Nous avons utilisé un convertisseur de 1 mm d'épaisseur pour être certain d'avoir l'efficacité de conversion maximum. Si l'équilibre protonique est atteint avec une telle épaisseur pour une énergie donnée, il l'est également pour les énergies inférieures [61].

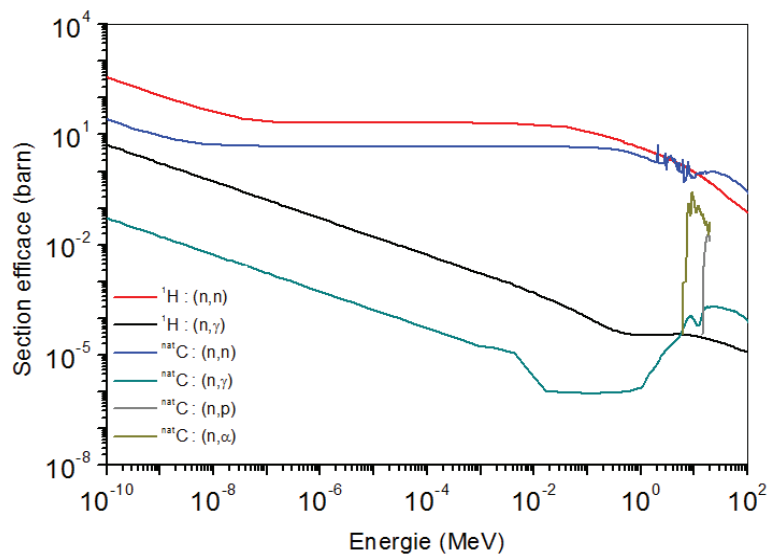


Figure IV-7 : Section efficace des réactions pouvant produire des particules chargées ou des photons dans le polyéthylène.

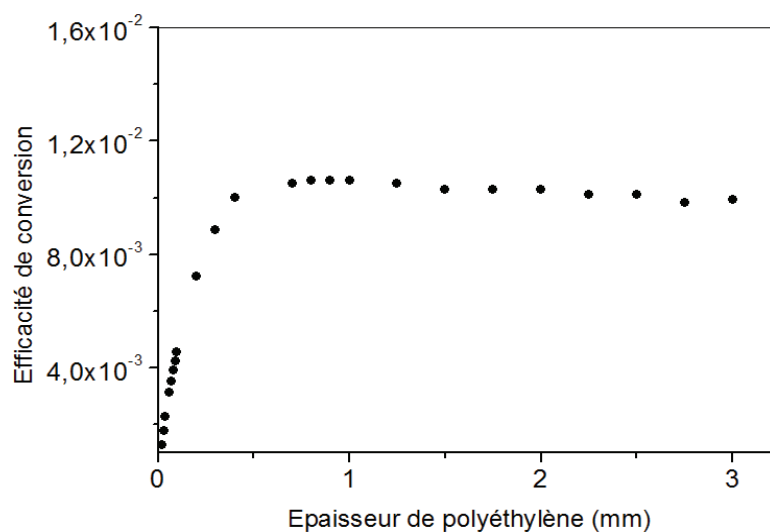
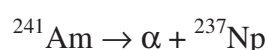


Figure IV-8 : Courbe de l'équilibre protonique pour des neutrons de 10 MeV, obtenue avec un convertisseur en polyéthylène par simulation Monte Carlo.

II.2.4. Conditions d'irradiation

Les irradiations ont été effectuées avec la source calibrée de $^{241}\text{Am-Be}$ de l'Institut Pluridisciplinaire Hubert Curien (IPHC) de Strasbourg. La source est un mélange compacté de dioxyde d'américium avec du béryllium, doublement encapsulée dans de l'acier inoxydable. Elle émet un champ mixte constitué à la fois de rayonnements neutroniques et de rayonnements gammas. L'activité est de 1 Ci en émission α pour un flux estimé à environ $(2.24 \pm 0.10) \times 10^6$ neutrons par seconde. Les neutrons sont produits via la chaîne de réaction suivante :



La désexcitation du $^{13}\text{C}^*$ est à l'origine des rayons gammas de différentes énergies (3,216 MeV ; 4,438 MeV ; 9,641 MeV) accompagnant les neutrons. La figure IV-9 donne le schéma de niveau où sont visibles les différentes transitions électromagnétiques et les rapports d'embranchement [62]. On voit clairement que la raie la plus importante est à 4,438 MeV, émise à 100%. Par conséquent, seule cette dernière a été retenue pour la caractérisation des composants de notre système dosimétrique, c'est-à-dire de manière à avoir les mêmes quantités de rayonnements γ dans les verres RPL 1 et 2 (figure IV-5). Les dosimètres ont été irradiés sur un système rotatif au centre duquel fut placée la source $^{241}\text{Am-Be}$. Pour aussi éviter la possibilité de détecter des neutrons diffusés dans l'environnement, les irradiations ont été réalisées dans une vaste salle avec un minimum de matériel à proximité.

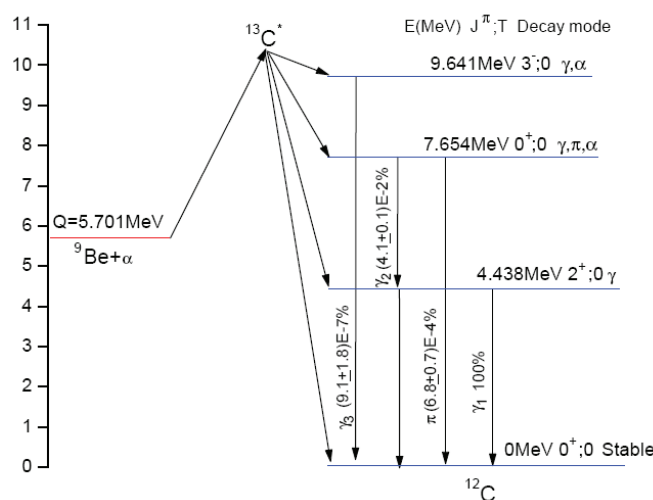


Figure IV-9 : Schéma de niveau d'énergies pour le carbone ^{12}C avec les transitions électromagnétiques.

II.2.5. Géométrie de la source

La poudre de dioxyde d'américium avec le béryllium est logée dans un godet cylindrique en plomb d'épaisseur 1 mm. Ce dernier ne modifie pas le débit d'équivalent de dose neutrons mais permet d'absorber principalement la raie γ de 59 keV de la source d' ^{241}Am ainsi que les α produits par cette même source. La géométrie de la source, ses dimensions ainsi que l'image simulée visualisée par le logiciel Moritz sont représentées sur la figure IV-10.

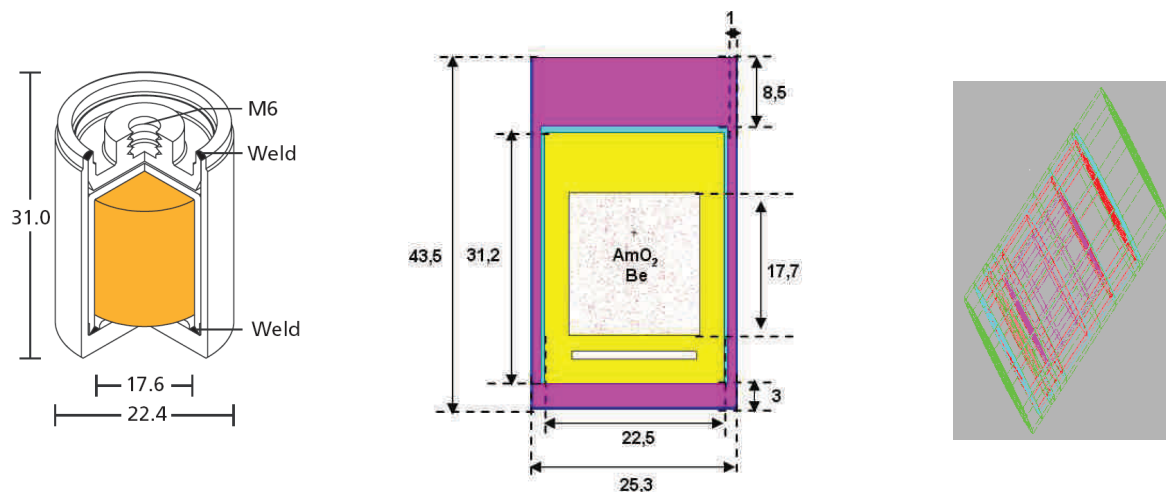


Figure IV-10 : Géométrie de la source (à gauche), dimensions en mm (au centre), image de la source visualisée par le logiciel Moritz (à droite).

II.2.6. Résultats et discussions

II.2.6.1. Réponse du dosimètre

La figure IV-11 présente la réponse $R_{n,p}$ du dosimètre pour les neutrons de la source $^{241}\text{Am-Be}$ en fonction de l'équivalent de dose ambiant $H^*(10)$. Celle-ci est donnée par la différence des résultats de mesure entre les verres RPL2 et RPL1 contenus dans notre système dosimétrique. Cette réponse varie linéairement en fonction de $H^*(10)$ avec un coefficient de corrélation $r^2 = 0,99$. Entre 2 et 433 mSv, le signal issu des protons de recul suit une loi linéaire de la forme :

$$R_{n,p} = (4,17 \pm 0,08) \times H^*(10) \quad (\text{IV-8})$$

Partant des ces mesures expérimentales, on peut déterminer le facteur de calibration du dosimètre défini comme étant l'inverse de la réponse du dosimètre. La valeur obtenue pour la source $^{241}\text{Am-Be}$ est $(24 \pm 0,4) \times 10^{-2} \text{ mSv.cm}^2/\text{signal}$. A partir de cette valeur on peut obtenir

l'équivalent de dose ambiant neutron en multipliant ce facteur par le signal proton de recul obtenu avec le dosimètre.

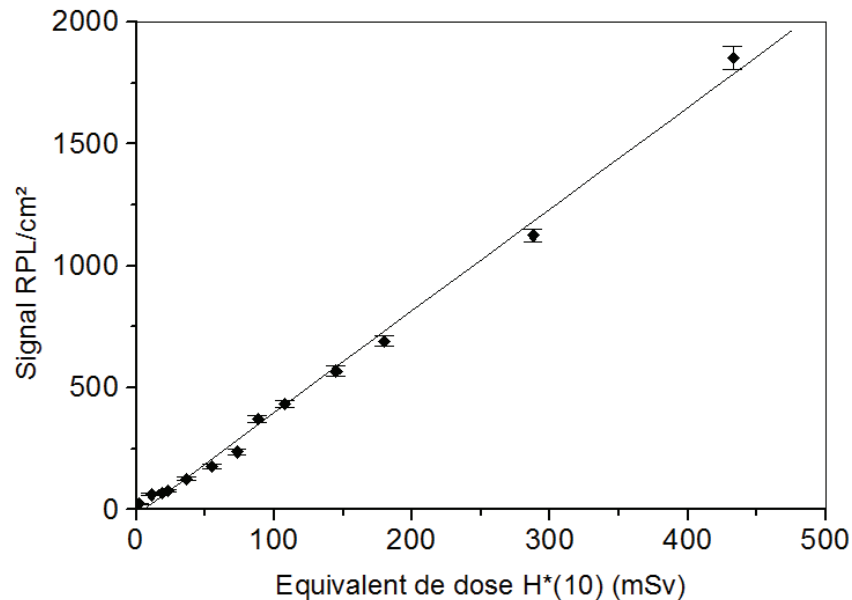


Figure IV-11 : Réponse du dosimètre pour les neutrons de la source $^{241}\text{Am-Be}$ en fonction de l'équivalent de dose ambiant $H^*(10)$ pour une incidence normale.

II.2.6.2. Dépendance angulaire

Contrairement à la dosimétrie personnelle, la connaissance de la dépendance angulaire n'est pas autant nécessaire. En effet, en dosimétrie d'ambiance le détecteur est appelé à être fixé dans le milieu environnant. Donc il n'est soumis à aucun mouvement angulaire comme dans le cas où il est porté sur le tronc humain. La figure IV-12 montre la dépendance angulaire de la réponse du dosimètre jusqu'à 60° par rapport à la normale. La moyenne arithmétique de la réponse du dosimètre aux angles d'incidence de 0° à 60° ne s'écarte que de 15% de la réponse à l'incidence normale. Cet écart satisfait les exigences de la norme ISO 21909 [24] qui stipule que cette différence ne devrait pas dépasser 30%.

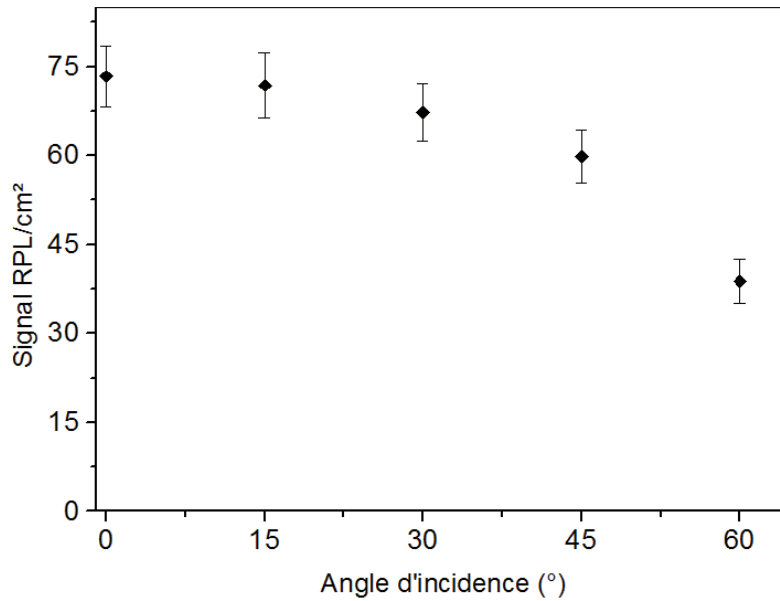


Figure IV-12 : Réponse du dosimètre en fonction de l'angle d'incidence des neutrons pour la source $^{241}\text{Am-Be}$.

II.2.7. Etude de l'accumulation de doses

En dosimétrie d'ambiance, le détecteur est fixé dans le milieu environnant pendant un certain temps avant l'exploitation des données. Nous avons voulu tester jusqu'à quel degré le détecteur RPL permet d'accumuler les doses des protons issus de la réaction (n, p) avec une énergie variable et parfois faible sans perte de signal. Pour cela, trois dosimètres ont été irradiés pour une durée totale d'environ 567 h selon le protocole suivant :

- Dosimètre (D1) : lecture à 567 h.
- Dosimètre (D2) : lecture à 141,27 h et 235,81 h avec remise à zéro puis à 189,73 h.
- Dosimètre (D3) : lecture à 141,27 h ; 377 h et 567 h sans remise à zéro.

Après chaque période d'irradiation, seul deux des trois dosimètres sont lus (D2 et D3). Ensuite, D2 est remis à zéro avant la prochaine période d'irradiation. Les réponses de ces trois dosimètres, c'est-à-dire le signal proton pris comme étant la différence des signaux ($\text{RPL}_{(II)} - \text{RPL}_{(I)}$), sont reportées dans le tableau IV-2. Si le préchauffage que devrait subir le verre RPL avant d'être soumis à la lecture cause une perte du signal proton, l'effet sera visible dans les données du tableau. Plusieurs valeurs sont équivalentes en ce sens qu'elles ont été obtenues

après un seul préchauffage. C'est le cas de la réponse de D1, les trois réponses de D2 et la première réponse de D3. La moyenne des résultats obtenus pour ces réponses est $1,51 \pm 0,04$ signal/h. La réponse de D3 à environ 377 h a été obtenue en suivant la même procédure de préchauffage avant la lecture du verre RPL. Dans ce contexte, le résultat contenant le signal restant après la première lecture a été soumis à un second préchauffage. Les résultats des dosimètres D1 et D3 à 567 h, qui devraient être équivalents, montrent que le préchauffage cumulé avant la lecture supprime une partie du signal proton et un écart de 24% est observé. Ainsi, pour comprendre l'origine de cet écart, il faut s'intéresser à l'effet du préchauffage cumulé qui est le seul paramètre non commun à D1 et D3 lors de leur exploitation.

D1	D2	D3
	$213 \pm 5,8$ à 141,27 h	$217 \pm 5,5$ à 141,27 h
$908 \pm 21,2$ à 567 h	$338 \pm 10,4$ à 235,81 h	$493 \pm 16,4$ à 377,08 h
	$279 \pm 9,9$ à 189,73 h	$690 \pm 21,1$ à 567 h
Total = $908 \pm 21,2$ at 567 h	Total = $830 \pm 15,5$ à 567 h	Total = $690 \pm 21,1$ à 567 h

Tableau IV-2 : Signaux détectés des protons de recul provenant de la réaction (n, p). Pour le signal total de D2 à 567 h, elle est donnée par la somme quadratique des incertitudes statistiques à 141,27 h , 235,81 h et 189,73 h.

II.2.8. Effet du préchauffage et problème de perte de signal (fading)

Un dosimètre a été irradié dans les mêmes conditions que les 3 dosimètres D1, D2 et D3 (tableau IV-2), pendant environ 140 h. Afin d'être dans les mêmes conditions d'exploitation des résultats que le dosimètre D2, il a été lu trois fois avec un préchauffage à 100°C avant chaque lecture. La variation de réponse des verres RPL1 et RPL2 contenus dans le système dosimétrique (figure IV-5) est représentée sur la figure IV-13. On peut voir que la réponse RPL2 (exposition due aux n, γ et p) décroît avec le nombre de préchauffages cumulés alors que la réponse RPL1 (exposition due aux n et γ), est pratiquement constante. Pourtant les verres RPL1 et RPL2 étaient supposés recevoir les mêmes expositions aux n et γ . De ce fait, l'hypothèse selon laquelle les préchauffages cumulés peuvent effacer une partie du signal proton se confirme. L'écart entre le résultat de la première lecture 223 ± 4 (u. a.), c'est-à-dire la réponse du dosimètre considéré comme la différence de mesure RPL1 et RPL2, et celui de la troisième lecture 171 ± 3 (u. a.) est d'environ 23%. Il est en très bon accord avec celui obtenu précédemment entre les dosimètres D1 et D3, soit 24%.

On peut alors en conclure que notre dispositif expérimental peut être considéré comme un dosimètre d'ambiance dans les champs mixtes (neutron-gamma) capable d'évaluer les expositions cumulées sans perte de signal au cours de la mesure. Cependant, il faut penser à réinitialiser les dosimètres après lecture en vue d'une éventuelle réutilisation.

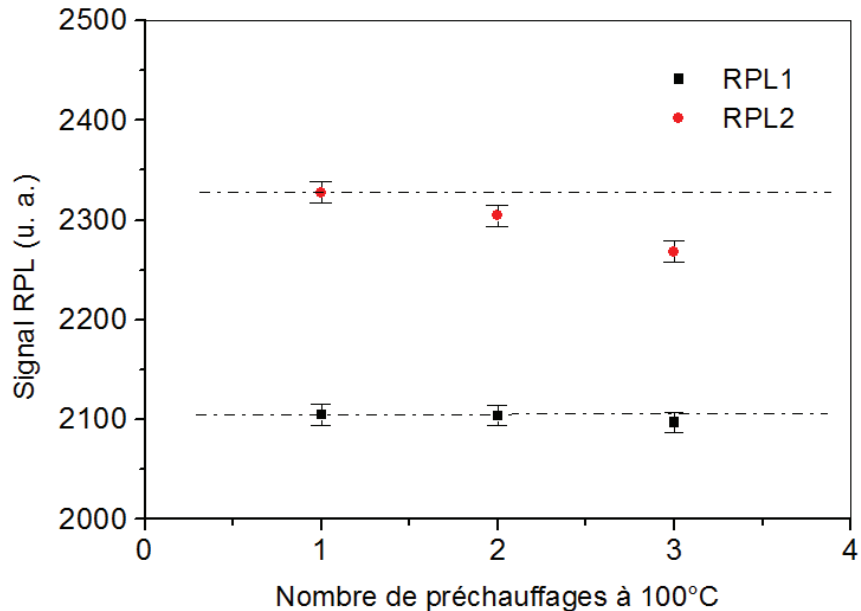


Figure IV-13 : Variation des réponses des deux verres RPL du dosimètre en fonction du nombre de préchauffages.

II.3. Dosimétrie personnelle

En surveillance individuelle, le dosimètre est appelé à être porté sur le tronc humain. Donc la calibration de ce dernier pour la détermination de l'équivalent de dose personnel $H_p(10)$ doit se faire sur un fantôme susceptible de produire une approximation raisonnable des propriétés de rétrodiffusion de la partie du corps sur laquelle il sera placé. Son rôle est de tenir compte des rayonnements rétrodiffusés par l'organisme. Ce phénomène se caractérise par l'albédo. Il existe plusieurs formes de fantômes (tableau IV-3) mais l'ICRU recommande celui de dimensions externes $30 \times 30 \times 15 \text{ cm}^3$ dont les parois sont en PMMA (polyméthacrylate de méthyle) de formule $\text{CH}_2=\text{C}(\text{CH}_3)\text{COOCH}_3$ et rempli d'eau [63]. La figure IV-14 montre une image de ce fantôme, avec une épaisseur de la paroi du côté tronc de 2,5 mm, et une épaisseur des autres parois de 10 mm.

Forme de fantômes	Dimensions (cm)	Equivalent tissu
Sphère	∅ 30	Tissu ICRU
Cube	30 × 30 × 30	Eau
Paroi	30 × 30 × 15	PMMA
Paroi	40 × 40 × 15	PMMA
Cylindre elliptique	30 × 20 × 40	PMMA, Eau

Tableau IV-3 : Fantômes utilisés pour la calibration des dosimètres.



Figure IV-14 : Fantôme plaque ISO rempli d'eau.

II.3.1. Albédo

Le terme albédo a été introduit initialement au XVIII^e siècle en optique par le mathématicien et astronome suisse Johann Heinrich Lambert pour désigner la fraction de lumière diffusée par un corps. Ce concept est aussi utilisé en neutronique et en radioprotection pour définir la rétrodiffusion des neutrons et des gammas ayant interagi avec un milieu matériel. Ainsi en protection radiologique, l'albédo désigne la fraction des rayonnements incidents rétrodiffusée par le corps humain. L'albédo A_D peut être déterminé en fonction du flux ou du courant des particules incidentes et réfléchies, mais dans ce travail nous avons opté pour la relation donnant l'albédo doublement différentiel du flux :

$$A_D = \frac{\Phi(E', \Omega')}{\Phi(E, \Omega)} \quad (\text{IV-9})$$

où $\Phi(E', \Omega')$ est le flux énergétique et angulaire réémis par le fantôme et $\Phi(E, \Omega)$ est le flux incident. Il existe aussi d'autres méthodes permettant de calculer l'albédo [11].

La procédure décrite dans la section II.3.2 a été simulée avec et sans fantôme pour estimer la composante rétrodiffusée du flux incident. L'albédo a été déterminé à différentes distances pour une incidence normale. Les résultats pour les neutrons de la source $^{241}\text{Am-Be}$ et les gammas de 4,438 MeV qui les accompagnent sont montrés sur la figure IV-15. On peut voir que l'albédo décroît graduellement avec la distance jusqu'à devenir presque constant. Sa valeur moyenne, entre 30 et 100 cm, est d'environ 40% et 24% respectivement pour les neutrons de la source $^{241}\text{Am-Be}$ et pour ses gammas.

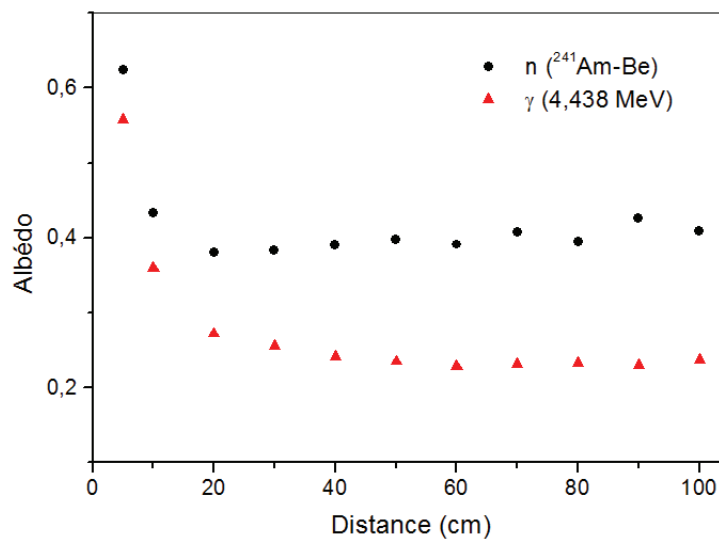


Figure IV-15 : Variation de l'albédo en fonction de la distance pour les neutrons de la source $^{241}\text{Am-Be}$ et les gammas de 4,438 MeV.

II.3.2. Conditions d'irradiation

Les irradiations ont été effectuées avec la même source $^{241}\text{Am-Be}$ de l'IPHC. Cette fois-ci le système dosimétrique décrit au paragraphe § II.2.2 a été placé au centre de la face antérieure du fantôme montré sur la figure IV-14. Le débit d'équivalent de dose personnel $H_p(10)$ à (75 ± 0.1) cm est de $53 \mu\text{Sv/h}$ (tableau IV-1). La distribution des protons créés dans le convertisseur en polyéthylène lors de la diffusion élastique des neutrons de la source $^{241}\text{Am-Be}$ sur les noyaux d'hydrogènes est représentée sur la figure IV-16. Dans la plage d'énergie ≤ 3 MeV, l'écart entre ces deux spectres est de 4,8%. Les neutrons rétrodiffusés sont

majoritairement thermiques. Donc la probabilité qu'ils provoquent une réaction (n, p) dans le convertisseur est très faible.

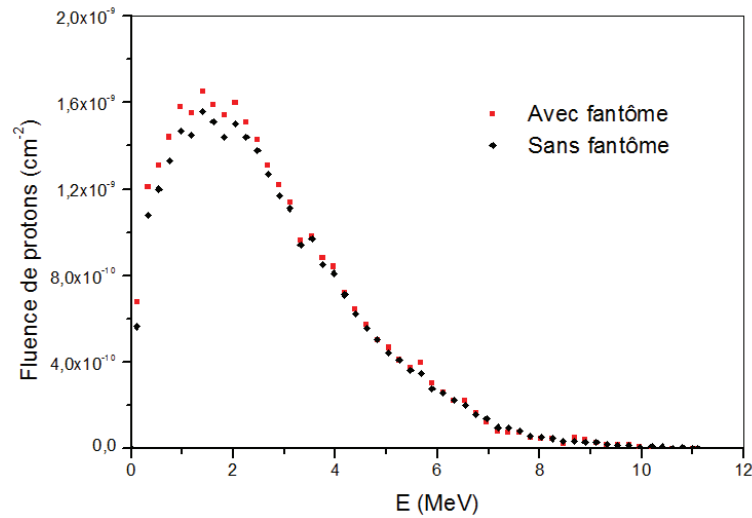


Figure IV-16 : Spectres des protons créés dans le polyéthylène avec et sans fantôme via la diffusion (n,p), obtenus par simulation Monte Carlo.

II.3.3. Résultats et discussions

II.3.3.1. Réponse du dosimètre

La figure IV-17 présente la réponse du dosimètre pour les neutrons de la source $^{241}\text{Am-Be}$ en fonction de l'équivalent de dose personnel $H_p(10)$. On peut voir que cette réponse est linéaire en $H_p(10)$ avec un coefficient de corrélation $r^2 = 0,998$. Le signal RPL issu des protons de recul suit l'équation suivante :

$$R = (11,5 \pm 0,3) \times H_p(10) \quad (\text{IV-10})$$

II.3.3.2. Réponse angulaire

La figure IV-18 montre la variation de la réponse du dosimètre en fonction de l'angle d'incidence des neutrons. Celle-ci a été obtenue en faisant pivoter l'ensemble dosimètre-fantôme autour de l'axe vertical perpendiculaire à la direction du rayonnement incident. Pour chaque angle d'incidence α , le signal proton a été normalisé par la valeur de $H_p(10, \alpha)$.

$$R(\text{Am-Be}, \alpha) = \text{Signal RPL.cm}^{-2} / H_p(10, \alpha) \quad (\text{IV-11})$$

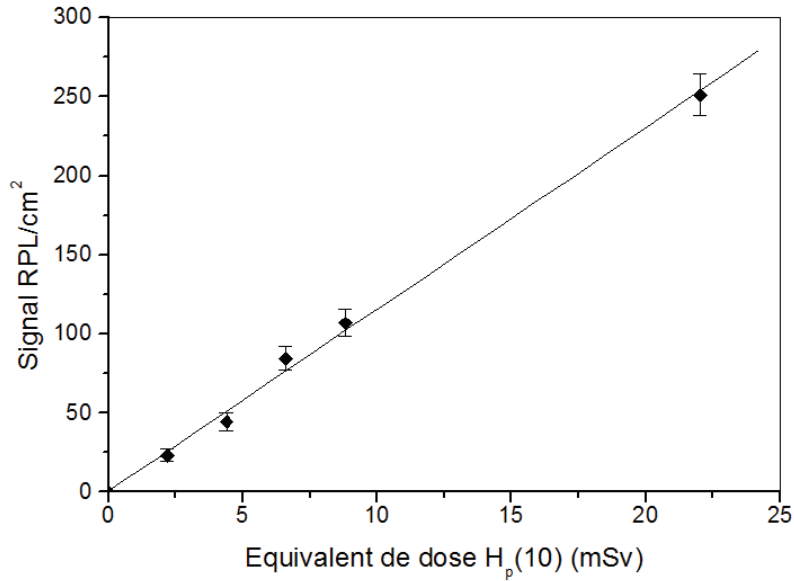


Figure IV-17 : Réponse du dosimètre pour les neutrons de la source $^{241}\text{Am-Be}$ en fonction de l'équivalent de dose personnel $H_p(10)$ pour une incidence normale.

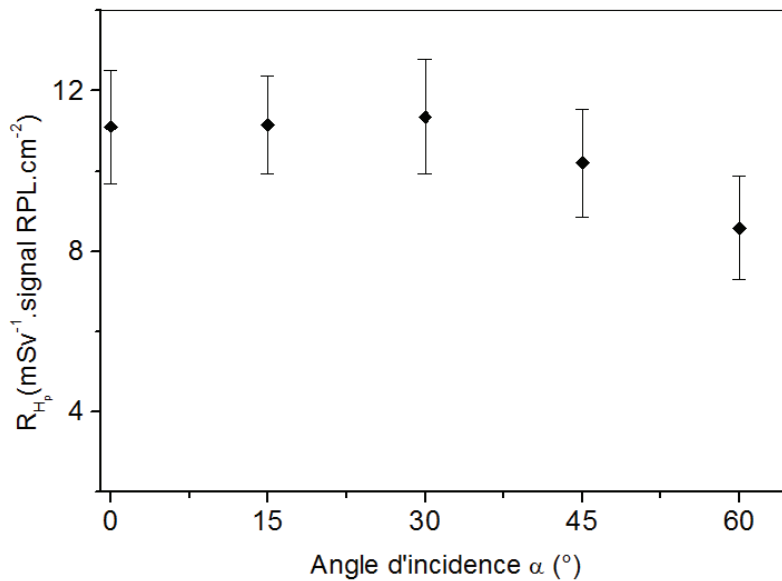


Figure IV-18 : Réponse angulaire expérimentale normalisée par $H_p(10, \alpha)$ pour la source $^{241}\text{Am-Be}$.

La moyenne arithmétique de la réponse du dosimètre aux angles d'incidence de 0° à 60° par rapport à la normale est $10,48 \pm 0,6 \text{ mSv}^{-1} \cdot \text{signal RPL} \cdot \text{cm}^{-2}$. Cette valeur ne diffère que de 8,8% de celle correspondante à $\alpha = 0^\circ$ et satisfait les exigences de la norme ISO 21909 [24]. Mais pour une utilisation pratique du dosimètre dans le contrôle de routine, un facteur de calibration tenant compte de l'angle d'incidence des neutrons est défini. Il correspond à

l'inverse de la valeur de la moyenne arithmétique de la réponse du dosimètre à 0°, 15°, 30°, 45° et 60°. La valeur obtenue pour la source $^{241}\text{Am-Be}$ est de $(9,54 \pm 0,5) \times 10^{-2} \text{ mSv.cm}^2/\text{signal RPL}$. La figure IV-19 représente les variations du coefficient de conversion fluence-équivalent de dose personnel $h_p(10,\alpha)$ en fonction de l'énergie pour différents angles [59].

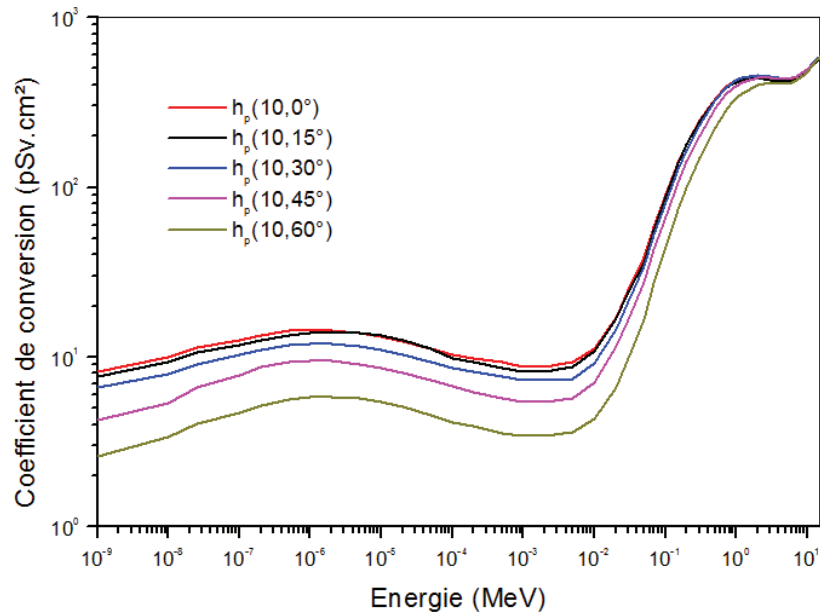


Figure IV-19 : Variations des coefficients de conversion $h_p(10,\alpha)$ en fonction de l'énergie des neutrons pour différents angles α .

II.3.4. Réponses angulaires et énergétiques simulées

Les rayonnements de référence qui doivent être utilisés pour l'étalonnage des appareils de mesures ne sont disponibles que dans quelques laboratoires spécialisés. Leur accès nécessite des prises de rendez-vous avec plusieurs mois d'avance. Néanmoins on peut retrouver leurs caractéristiques et méthodes de production dans la littérature. Ainsi, il est possible de simuler la réponse énergétique de notre système dosimétrique et de voir le profil de la réponse angulaire pour d'autres sources de neutrons, autres que la source $^{241}\text{Am-Be}$ utilisée.

II.3.4.1. Réponses angulaires simulées

La géométrie du dosimètre a été simulée dans les conditions expérimentales d'irradiation décrites dans la section II.3.2. La réponse angulaire théorique a été calculée pour des angles d'incidences de neutrons de 0°, 15°, 30°, 45° et 60°. Les simulations ont été réalisées pour des champs neutroniques de références des sources $^{241}\text{Am-Be}$ (d'énergie moyenne en fluence 4,16

MeV), ^{252}Cf (d'énergie moyenne en fluence 2,13 MeV) ainsi que pour des neutrons monoénergétiques de 1,2 et 2,8 MeV. Nous avons généré suffisamment de particules afin d'avoir une bonne statistique représentative. Il faut aussi noter que tous les résultats des simulations MCNPX (réponses angulaires) sont donnés par neutron source. La figure IV-20 montre l'évolution de la réponse du dosimètre qui décroît lorsque l'angle d'incidence croît pour lesdites énergies. On voit que tous les résultats ont un même profil qualitatif. Pour les résultats de la figure 4.20 ($^{241}\text{Am-Be}$), la moyenne arithmétique de la réponse du dosimètre aux angles d'incidence de 0° à 60° par rapport à la normale ne diffère que de 9,9% de la réponse correspondant à l'incidence normale. Cette différence qui satisfait également les exigences de la norme ISO 8529 est en bon accord avec la valeur 8,8% obtenue expérimentalement avec la source $^{241}\text{Am-Be}$. Le léger écart pourrait s'expliquer par le fait qu'avec l'expérience, nous avons probablement d'autres particules secondaires que les protons de recul qui sont mises à contribution. D'ailleurs la figure IV-7 montre que le convertisseur peut engendrer d'autres particules chargées et rayonnements gammas même si la réaction (n, p) sur les noyaux d'hydrogène reste de loin la plus importante.

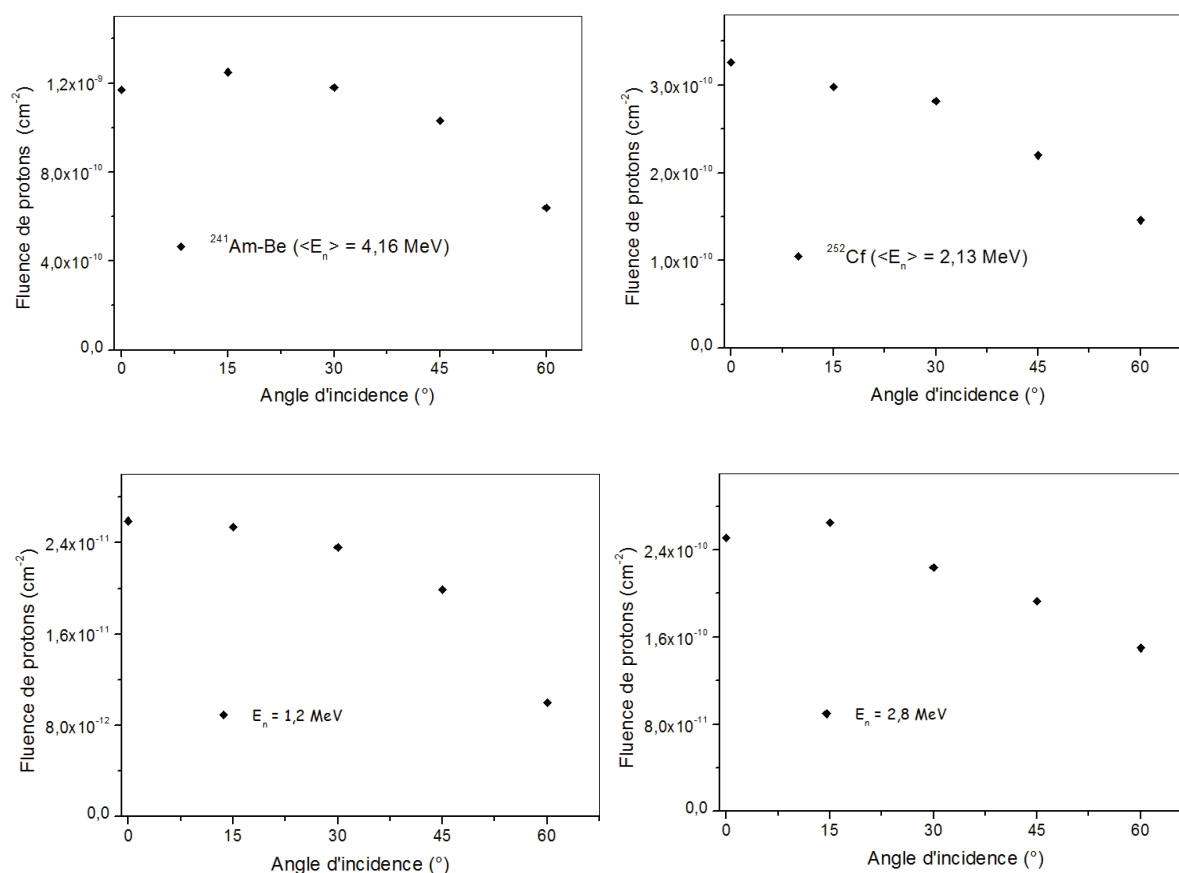


Figure IV-20 : Réponses angulaires simulées : $^{241}\text{Am-Be}$; ^{252}Cf ; neutrons de 1,2 MeV et 2,8 MeV.

II.3.4.2. Réponses énergétiques simulées

Pour des applications en dosimétrie personnelle, la connaissance de la dépendance en énergie de la réponse du dosimètre en termes de $H_p(10)$ est essentielle. Pour obtenir cette réponse, chaque résultat des simulations pour chacune des sources de neutrons monoénergétiques (0,144 ; 0,565 ; 1,2 ; 2,8 ; 5 et 14 MeV) a été normalisé par son propre coefficient de conversion fluence-équivalent de dose personnel [59]. La figure IV-21 représente la réponse énergétique R_H ($\text{mSv}^{-1} \cdot \text{cm}^2$) du dosimètre par neutron-source en fonction de l'énergie des neutrons. Cette dernière suit une distribution polynomiale du second ordre.

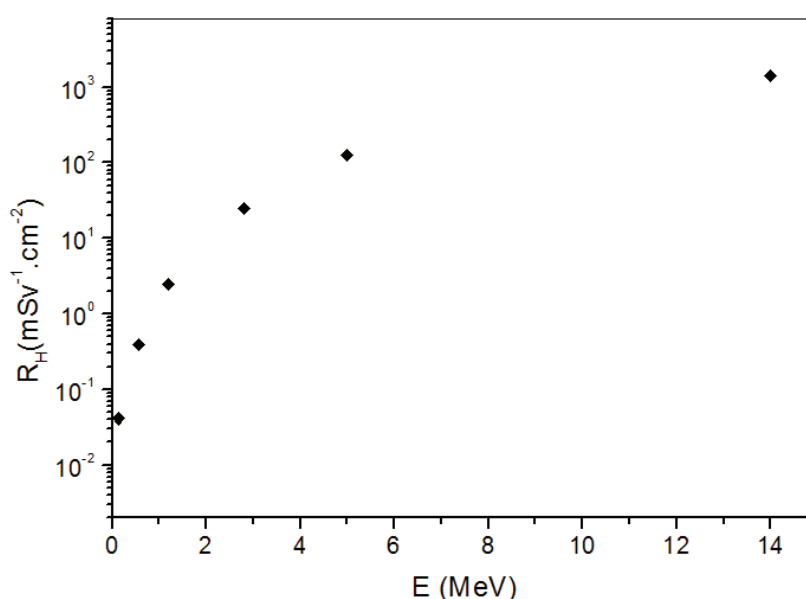


Figure IV-21 : Réponse énergétique simulée du dosimètre par neutron source.

II.3.5. Problématique de la méthode (n, p) avec le dosimètre RPL

En ce qui concerne la détection des neutrons rapides, on utilise la réaction (n, p) dans une large gamme d'énergies. Pour les dosimètres passifs existant (DSTN, NTA...), ce sont les protons de recul que l'on dénombre par comptage des traces ou par analyse d'images des traces laissées par ces protons. Le principe de la RPL n'est pas basé sur cette méthode mais plutôt sur la formation des centres luminescents engendrant l'émission d'une fluorescence caractéristique de la dose. Le dopant en argent qui est la cause de la formation des centres luminescents se situe à une certaine profondeur dans le détecteur. Cependant, même si tous les protons produits déposent leur énergie dans le détecteur (1,5 mm d'épaisseur totale), ils

seront confrontés au pouvoir d'arrêt du verre dont l'augmentation diminue sa sensibilité. Donc avec un spectre d'énergie large et parfois faible, seule une partie du signal protons sera observée.

Les mesures réalisées lors de l'analyse par MEB n'ont pu détecter le dopant en argent que vers 1,7 μm en profondeur de la face avant du verre RPL, ce qui implique la présence d'une couche morte par-dessus cette profondeur. Dans le modèle considéré par Lommler et al. [64], la distribution de dose en énergie dans le solide, due aux particules chargées diminue de quelques ordres de grandeur dans les 10 à 10^3 nm d'épaisseur. La conséquence de cette analyse est que les protons issus de la réaction (n, p) doivent avoir au moins une énergie $E \geq 115$ keV pour être détectés. Ainsi, il serait nécessaire d'effectuer un dopage surfacique du verre afin de pouvoir détecter les particules lourdes chargées de très faible énergie. Nous mentionnons ici aussi la possibilité de relever le seuil de détection des protons de faible énergie de moins de 115 keV en découpant chimiquement une couche du détecteur.

II.3.5.1. Décapage chimique

Afin d'améliorer la sensibilité du détecteur aux particules chargées, nous avons pensé à procéder à un décapage chimique de la couche surfacique du détecteur RPL. Ce genre de méthode a déjà été employé pour la détermination du parcours des particules chargées de faible énergie dans le solide [65]. Notre procédure expérimentale a consisté à immerger le détecteur dans une solution aqueuse composée de 90 ml de NH_4F (40%) et 1 ml de HF (48%) pendant 15 min à 25°C. Après rinçage et séchage, l'épaisseur de la couche surfacique décapée est déterminée à l'aide d'un profilomètre mécanique stylet (DEKTAK 150). Cette expérience a été menée plusieurs fois au laboratoire ICube (laboratoire des sciences de l'ingénieur, de l'informatique et de l'imagerie) de Strasbourg. La rugosité du verre avant et après traitement est restée inchangée. La figure IV-22 représente le profil de vitesse d'attaque pour un temps d'immersion de 15 minutes dans ladite solution. Il y a 433 ± 15 nm de verre en moins sur les 2 faces, ce qui correspond à une vitesse de décapage d'environ 29 ± 1 nm/mn. Cependant la variation de la concentration de HF et de la température peuvent changer le taux de décapage.

Même si cette méthode de décapage constitue une solution prometteuse pour améliorer le seuil énergétique des RPL aux protons des faibles énergies, nous n'avons pas pu le vérifier expérimentalement. L'accélérateur 4 MV dont peut disposer l'IPHC possède plusieurs voies

d'irradiation, mais celle susceptible de produire des protons d'énergie inférieure à 150 keV n'était pas opérationnelle au moment où cette étude se déroulait.

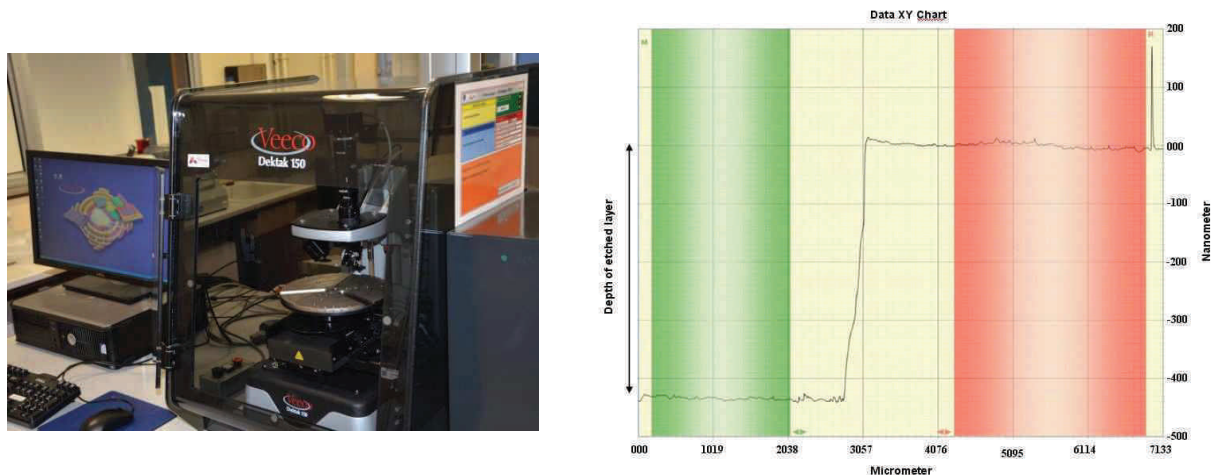


Figure IV-22 : Profilomètre (à gauche), et profil du décapage du verre RPL (à droite).

II.3.6. Problématique du signal γ accompagnant les neutrons

La détection des neutrons dans le champ mixte n- γ via la réaction (n, p) à l'aide des détecteurs RPL est confrontée au signal des γ qui constitue un bruit de fond conséquent à soustraire au signal des protons de recul. L'étalonnage des dosimètres neutroniques se fait principalement avec une source $^{241}\text{Am-Be}$ ou de ^{252}Cf . Ces deux sources émettent toutes des rayonnements γ d'énergie variable, même si la raie, la plus importante pour le cas $^{241}\text{Am-Be}$ est de 4,438 MeV sans oublier la raie à 59 keV issue de la désintégration de l' ^{241}Am , mais absorbée par le blindage en plomb de la source. Quant à la source de ^{252}Cf avec laquelle nous n'avons pas pu faire d'expériences, il y a les rayons γ d'énergie 43,38 keV, 100,4 keV et 155 keV [66] issus de la désintégration alpha de ce noyau. A ceux-ci s'ajoutent ceux des possibles particules résultant des fissions (tableau IV-4 [67]).

Pour le système dosimétrique (figure IV-5) le signal dans le verre RPL(I) est 9,5 fois le signal protons dans le verre RPL (II), de sorte qu'à faible dose, l'incertitude statistique sur le signal proton limite la détermination de $H^*(10)$ à des valeurs supérieures à environ 2 mSv. Avec une très forte sensibilité aux γ de faible énergie (jusqu'à 10 keV), une augmentation du signal γ serait désavantageux pour l'aspect dosimètre personnel. Donc, il est préférable d'optimiser l'épaisseur actuelle du verre RPL pour la détection des protons, d'où la nécessité de

poursuivre des tests d'amincissement du détecteur RPL pour baisser la limite inférieure de détection des neutrons rapides à moins de 2 mSv.

Energy (keV)	Fission product ${}^A Z^a$	$P_\gamma(E_\gamma)$	γ -ray emission rate (3/19/02) ^b	γ -rays/spf (%) ^c	Decays/spf (%) ^d	Yield values (%)	
						Cumulative (${}^A Z$)	Independent ${}^A(Z+1)$
240.7	110Tc	0.824	$(1.86 \pm 0.10) \times 10^2$	5.9 ± 0.4	5.9 ± 0.5^e	0.88	3.62
242.3	108Tc	0.816 ± 0.07	$(2.01 \pm 0.11) \times 10^2$	5.20 ± 0.3	6.4 ± 0.7	4.01	1.98
249.8	9h 135Xe	0.90 ± 0.03	$(1.80 \pm 0.11) \times 10^2$	5.7 ± 0.4	6.3 ± 0.5	4.19	0.002
293.3	143Ce	0.428 ± 0.005	$(1.10 \pm 0.06) \times 10^2$	3.5 ± 0.2	8.2 ± 0.6	6.25	2.27×10^{-5}
306.8	101Tc	0.89 ± 0.05	$(1.56 \pm 0.08) \times 10^2$	5.0 ± 0.3	5.6 ± 0.5	3.93	1.90×10^{-7}
358.0	104Tc	0.89 ± 0.03	$(2.58 \pm 0.14) \times 10^2$	8.2 ± 0.5	9.2 ± 0.6	5.65	3.14×10^{-3}
376.7	140I	0.905 ± 0.011	$(8.86 \pm 0.50) \times 10^1$	2.8 ± 0.2	3.1 ± 0.2	0.12	2.55
381.4	46s 136I	1.00 ± 0.06	$(7.75 \pm 0.42) \times 10^1$	2.47 ± 0.16	2.5 ± 0.2	0.939	
447.0	102Nb	0.196 ± 0.020	$(3.81 \pm 0.23) \times 10^1$	1.22 ± 0.08	6.2 ± 0.8	3.57	0.464
453.9	146Pr	0.48 ± 0.03	$(9.60 \pm 0.52) \times 10^1$	3.1 ± 0.2	6.5 ± 0.6	4.43	9.21×10^{-5}
465.6	108Tc	0.143 ± 0.013	$(7.60 \pm 0.41) \times 10^1$	2.43 ± 0.15	17 ± 2	4.01	1.98
475.2	4m 102Tc	0.87 ± 0.01	$(1.02 \pm 0.05) \times 10^2$	3.3 ± 0.2	3.8 ± 0.2	4.04	7.61×10^{-6}
497.1	103Ru	0.910 ± 0.013	$(2.08 \pm 0.11) \times 10^2$	6.6 ± 0.4	7.3 ± 0.5	5.45	9.5×10^{-4}
541.2	144La	0.392 ± 0.010	$(1.22 \pm 0.07) \times 10^2$	3.9 ± 0.3	9.9 ± 0.8	5.80	0.10
588.8	6s 138I	0.56 ± 0.06	$(1.61 \pm 0.09) \times 10^2$	5.1 ± 0.3	9.2 ± 1.1	1.06	3.63
602.4	140Cs	0.53 ± 0.03	$(1.04 \pm 0.06) \times 10^2$	3.3 ± 0.2	6.2 ± 0.5	5.44	0.52
667.7	${}^{132}\text{I}$	0.987	$(9.73 \pm 0.55) \times 10^1$	3.1 ± 0.2	3.1 ± 0.3^e	2.15	2.44×10^{-5}
756.8	95Zr	0.54 ± 0.05	$(2.87 \pm 0.17) \times 10^1$	0.92 ± 0.06	1.7 ± 0.2	1.24	9.12×10^{-6}
798.7	143Ba	0.156 ± 0.019	$(3.95 \pm 0.23) \times 10^1$	1.26 ± 0.08	8.1 ± 1.1	5.18	1.05
815.8	140La	0.2328 ± 0.0020	$(6.79 \pm 0.37) \times 10^1$	2.17 ± 0.14	9.5 ± 0.6	5.96	
912.7	133Te	0.55 ± 0.03	$(4.61 \pm 0.26) \times 10^1$	1.47 ± 0.10	2.7 ± 0.2	1.40	0.22
1009.8	33m ${}^{138}\text{Cs}$	0.298 ± 0.007	$(6.75 \pm 0.37) \times 10^1$	2.16 ± 0.14	7.4 ± 0.5	5.47	
1072.7	52m ${}^{134}\text{I}$	0.149 ± 0.005	$(2.54 \pm 0.15) \times 10^1$	0.81 ± 0.06	5.4 ± 0.5	3.85	0.026
1131.5	135I	0.226 ± 0.008	$(2.80 \pm 0.16) \times 10^1$	0.89 ± 0.06	3.9 ± 0.3	3.78	0.186
1133.9	135Te ^f	0.00	$(2.80 \pm 0.16) \times 10^1$	0.89 ± 0.11		1.91	1.85
1180.9	${}^{151}\text{Nd}$	0.133 ± 0.009	$(2.20 \pm 0.13) \times 10^1$	0.70 ± 0.05	5.3 ± 0.5	1.93	0.022
1260.4	${}^{135}\text{I}$	0.287 ± 0.010	$(4.35 \pm 0.25) \times 10^1$	1.39 ± 0.09	4.9 ± 0.4	3.78	0.186
1279.1	0.8s ${}^{134}\text{Sb}$	0.0	$(7.55 \pm 0.41) \times 10^1$	2.41 ± 0.15^e		0.571	2.35
1313.0	46s 136I	1.00 ± 0.006	$(1.08 \pm 0.06) \times 10^2$	3.4 ± 0.2	3.4 ± 0.3	0.939	
1427.7	94Sr	0.942 ± 0.009	$(2.74 \pm 0.25) \times 10^1$	0.87 ± 0.08	0.93 ± 0.09	1.02	0.060
1435.8	33m ${}^{138}\text{Cs}$	0.763 ± 0.016	$(1.39 \pm 0.11) \times 10^2$	4.4 ± 0.4	5.8 ± 0.5	5.47	
1524.7	146Pr	0.156 ± 0.009	$(2.85 \pm 0.26) \times 10^1$	0.91 ± 0.09	5.8 ± 0.7	4.43	9.25×10^{-5}
1596.2	${}^{140}\text{La}$	0.954 ± 0.015	$(1.77 \pm 0.14) \times 10^2$	5.7 ± 0.5	6.0 ± 0.5	5.96	

Tableau IV-4 : Energie des quelques γ issus des produits de fission d'une source de ${}^{252}\text{Cf}$.

II.3.6.1. Amincissement du détecteur RPL

Les sources ${}^{241}\text{Am}$ -Be et ${}^{252}\text{Cf}$ ont des spectres d'énergie larges (figure IV-23) et peuvent produire des protons dans la même gamme d'énergie. Afin de détecter tous les protons susceptibles d'être générés via une quelconque réaction (n,p) et en même temps baisser la contribution du signal γ , l'épaisseur du verre RPL doit être optimisée. Partant du spectre des protons obtenu avec la source ${}^{241}\text{Am}$ -Be, la longueur des traces des protons dans le verre RPL a été déterminée pour différentes épaisseurs (figure IV-24). Elle a été obtenue par simulation Monte Carlo en multipliant, pour chaque épaisseur donnée de verre RPL, la fluence des protons par le volume correspondant. On peut constater que le profil est le même pour les

différentes épaisseurs de verre à cause du faible parcours des protons de recul. Cependant, il faut choisir une épaisseur de verre susceptible de résister aux chocs en vue d'optimiser le rapport proton/ γ .

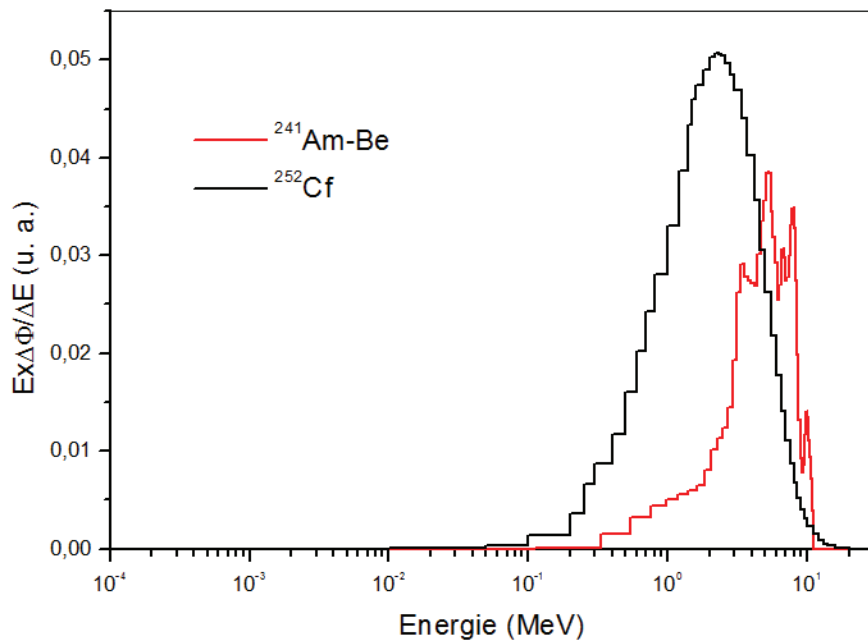


Figure IV-23 : Spectres ISO des sources $^{241}\text{Am-Be}$ et ^{252}Cf .

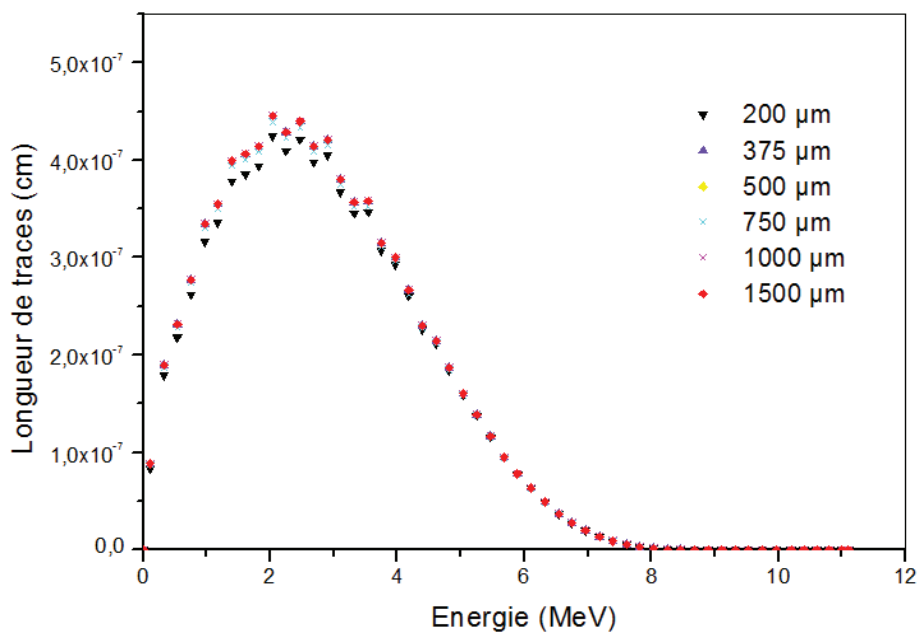


Figure IV-24 : Longueurs de trace par particule en fonction de l'énergie des protons issus de la réaction (n, p) pour différentes épaisseurs de verre.

II.3.6.2 Optimisation de l'épaisseur du verre

Afin d'optimiser l'épaisseur du détecteur sans perdre une partie du signal (n, p), l'absorbance en protons du verre RPL a été déterminée pour différentes épaisseurs. Le tableau IV-5 regroupe les valeurs obtenues avec le spectre de protons issus de la réaction (n, p) de la source de $^{241}\text{Am-Be}$. On ne perd presque pas des protons avec une épaisseur de 375 μm aussi bien qu'avec l'épaisseur réelle 1500 μm du détecteur RPL. Le choix raisonnable de l'épaisseur de verre RPL doit tenir compte, en premier, des interactions des photons de faibles énergies des sources $^{241}\text{Am-Be}$ et ^{252}Cf dans le verre RPL tout en tenant compte de la résistance aux chocs. On peut voir clairement dans le tableau 4.5 qu'une épaisseur comprise entre 375 μm et 500 μm est convenable. Cependant, même si cette proposition constitue une solution probable pour baisser la limite inférieure à moins de 2 mSv, il faut d'abord en discuter avec le fabricant afin d'étudier le signal γ . Malheureusement au moment de cette rédaction, un détecteur RPL tenant compte des toutes ces considérations n'est pas encore disponible sur le marché. MCNPX permet de simuler les coefficients d'absorption des photons, mais pas d'évaluer la fluorescence des γ que devrait émettre le verre RPL après irradiation, ce qui ne suffit pas à étudier conséquemment le comportement du dosimètre dans le cas de la réaction (n, p).

Epaisseur (μm)	Flux entrant (cm^{-2})	Flux sortant (cm^{-2})	Absorbance (%)
200	$4,6 \times 10^{-5}$	$2,47 \times 10^{-6}$	94
375	$4,6 \times 10^{-5}$	$4,38 \times 10^{-8}$	99
500	$4,6 \times 10^{-5}$	$6,8 \times 10^{-10}$	100
750	$4,6 \times 10^{-5}$	0	100
1000	$4,6 \times 10^{-5}$	0	100
1500	$4,6 \times 10^{-5}$	0	100

Tableau IV-5 : Valeurs des absorbances des protons du détecteur RPL pour différentes épaisseurs obtenues par MCNPX.

III. Conclusion

Cette étude a permis de démontrer que les neutrons rapides peuvent être détectés dans un champ mixte n- γ à l'aide d'un dosimètre compact intégrant des détecteurs radiophotoluminescents (RPL) dopés à l'argent associés avec un convertisseur neutron-

proton. La réponse expérimentale du dosimètre en termes d'équivalent de dose ambiant $H^*(10)$ et d'équivalent de dose personnel $H_p(10)$ est linéaire avec une dépendance angulaire satisfaisante selon les recommandations de la norme ISO 21909. De cette étude aussi, un facteur de calibration de $(9,54 \pm 0,5) \times 10^{-2}$ mSv.cm²/signal RPL a été obtenu pour la source ²⁴¹Am-Be. Cette valeur permet par la suite de déterminer l'équivalent de dose personnel neutrons en multipliant ledit facteur par le signal proton de recul obtenu avec le dosimètre. Actuellement les protons issus de la réaction (n, p) doivent avoir au moins une énergie $E \geq 115$ keV pour pouvoir être détectés, ce qui en limite l'utilisation à la surveillance des personnes travaillant dans les installations de l'industrie nucléaire où les neutrons d'énergies supérieures à 115 keV sont prépondérants. Néanmoins un dopage surfacique ou un décapage de la zone morte du verre RPL permettrait d'améliorer la sensibilité du détecteur RPL aux protons de faibles énergies.

L'étude préliminaire a montré que la sensibilité du verre RPL aux particules chargées lourdes dépend de la face irradiée et aussi de l'énergie de la particule. De plus, il a été observé que les préchauffages cumulés sans réinitialisation peuvent biaiser les résultats en ce qui concerne les particules chargées, principalement les protons de faible énergie.

Chapitre 5

Caractérisation des dosimètres RPL pour les neutrons thermiques

La détection des neutrons à l'aide des dosimètres existants dépend de l'énergie des neutrons, ce qui, dans un milieu où règnent toutes les classes de neutrons, peut causer une ambiguïté au niveau de la surveillance individuelle. Par conséquent, ayant déterminé la réponse du détecteur RPL pour les neutrons rapides, nous poursuivons la caractérisation jusqu'aux neutrons thermiques. Pour y parvenir, il faut faire des tests avec des neutrons d'énergie comprise entre 0,025 et 0,5 eV. Il est possible de générer des neutrons thermiques à partir des neutrons rapides via des modérateurs.

I. Production des neutrons thermiques

La génération de neutrons thermiques peut se faire à partir de n'importe quelle source émettant des neutrons rapides. Le calibrateur de l'IPHC avec lequel les expériences sont effectuées contient une source $^{241}\text{Am-Be}$ n'émettant que des neutrons rapides (figure IV-23). Mais grâce à des modérateurs, on peut produire, en plus du spectre initial, les neutrons thermiques et les neutrons intermédiaires. La thermalisation consiste à faire subir aux neutrons primaires des collisions successives jusqu'à ce qu'ils atteignent l'équilibre thermique avec les noyaux du milieu modérateur supposé à une température de 20°C. Les neutrons thermiques ainsi créés se répartissent suivant une distribution Maxwell-Boltzmann dont l'énergie la plus probable est de 0,025 eV. Cette distribution s'étend jusqu'à 0,5 eV (seuil de coupure du cadmium des neutrons thermiques). Il existe plusieurs matériaux modérateurs, mais les plus indiqués sont les noyaux légers et peu capturant (^2H , ^4He , Be, C, O...), sous peine de voir disparaître les neutrons à ralentir. Les matériaux contenant ces noyaux doivent avoir un bon pouvoir modérateur $\xi \times \Sigma_s$, caractérisant leur capacité à ralentir les neutrons, avec ξ le gain moyen de léthargie (paramètre de ralentissement) et Σ_s la section efficace macroscopique. En effet, pour un bon matériau ralentisseur, il faut qu'il ait le plus de diffusions possibles par rapport aux absorptions, donc un rapport de modération $\frac{\xi \times \Sigma_s}{\Sigma_a}$ important, avec Σ_a la section efficace macroscopique d'absorption. Les données des tableaux V-1 et V-2, comparant respectivement les noyaux et matériaux ralentisseurs, montrent que l'hydrogène et les matériaux hydrogénés sont les meilleurs modérateurs [11].

Noyau	A	ξ	Σ_{dif}	Σ_a
H	1	1	20,4	0,332
D	2	0,72	3,4	0,00051
Be	9	0,20	6	0,0076
C	12	0,15	4,74	0,00337
O	16	0,12	3,89	0,000191

Tableau V-1 : Comparaison des principaux noyaux modérateurs (Σ_{dif} est prise pour les neutrons épithermiques (quelques eV) et Σ_a pour les neutrons thermiques (0,025 eV)).

Matériaux	$\rho(\text{g/cm}^3)$	$\xi \times \Sigma_s (\text{cm}^{-1})$	Valeur relative matériau/H ₂ O
H ₂ O	0,998	1,3772	1
D ₂ O	1,105	0,1795	0,130
Be	1,85	0,1548	0,112
Glucine	3,01	0,1246	0,090
Graphite	1,6	0,0604	0,044

Tableau V-2 : Comparaison des principaux matériaux modérateurs.

I.1. Thermalisation des neutrons

La source ²⁴¹Am-Be de l'IPHC ne présente pas de composante thermique. Afin d'en obtenir, elle a été placée au centre d'une sphère en polyéthylène connue sous le nom de sphère de Bonner (SB). A l'intérieur de la sphère, les neutrons émis subissent des diffusions successives et une partie a perdu de son énergie à la sortie de la sphère. Le spectre des neutrons obtenus, d'énergie comprise entre 25 meV et 0,5 eV, ayant une forme Maxwell-Boltzmann, correspond au spectre des neutrons thermiques. L'intensité de ce dernier varie en fonction du diamètre de la sphère. Afin de trouver celui qui produit le plus de neutrons thermiques, nous avons fait des simulations à l'aide du code de calcul MCNPX en faisant varier le diamètre de la sphère. Les figures V-1 et V-2 représentent les spectres obtenus avec des sphères de diamètres différents et la variation de la fluence des neutrons thermiques en fonction de ces mêmes diamètres. On peut voir sur la figure V-2 que la sphère de diamètre compris entre 10 et 11 pouces

(1 pouce = 2,54 cm) produit la fluence des neutrons thermiques la plus importante. Cependant toutes nos expériences ont été réalisées avec la sphère de 9 pouces, taille disponible dans le laboratoire pour une fluence maximum la plus proche des sphères de 10 et 11 pouces.

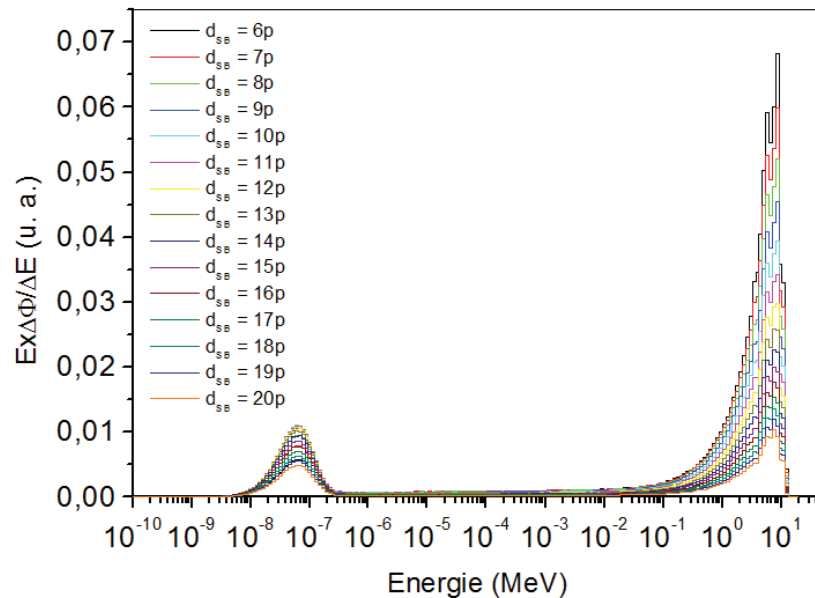


Figure V-1 : Forme des spectres de la source $^{241}\text{Am-Be}$ à la sortie des sphères de Bonner de diamètres (d_{SB}) différents.

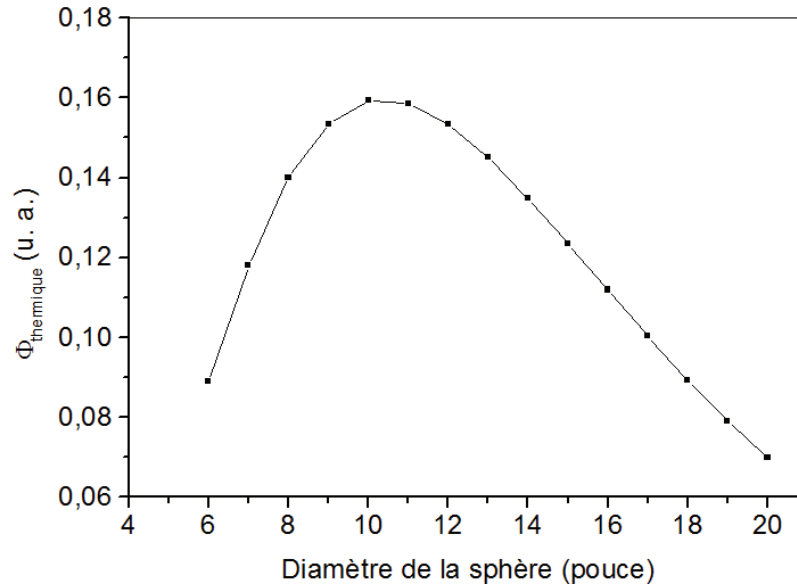


Figure V-2 : Variation de la fluence des neutrons thermiques en fonction du diamètre de la sphère de Bonner.

II. Dosimétrie des neutrons thermiques

En ce qui concerne la dosimétrie des neutrons thermiques dans un champ mixte n- γ , on utilise majoritairement la technique basée sur les réactions (n, α) et une méthode différentielle

permettant d'éliminer la composante des photons γ [68] [69] [70]. Cette technique est cependant difficilement transposable au détecteur RPL. En effet, les particules chargées secondaires issues de ces réactions ont un parcours très faible dans ledit détecteur. De plus nous sommes confrontés à la sensibilité intrinsèque du verre RPL aux neutrons thermiques qui est due à l'activation neutronique des éléments composant le verre dopé Ag^+ . Dans ce contexte, le choix des convertisseurs à associer au verre RPL joue un rôle déterminant dans la détection des neutrons thermiques. Par conséquent l'étude doit tenir compte de toutes ces considérations, aussi bien théoriquement qu'expérimentalement.

II.1. Sensibilité du détecteur RPL aux neutrons thermiques

L'interaction des neutrons thermiques avec le verre RPL composé d'oxygène (O), de sodium (Na), de phosphore (P), d'aluminium (Al) et d'argent (Ag), peut générer des photons par capture radiative (n, γ), ce qui rend le verre sensible à ces neutrons par la détection des photons produits. Miljanić et al. [71] avaient montré que la faible sensibilité des détecteurs RPL aux neutrons permet de les utiliser comme dosimètre γ dans des champs mixtes $n\text{-}\gamma$. Mais dans notre cas, il s'agit d'en faire aussi un dosimètre neutronique dans ces champs mixtes.

II.1.1. A propos des neutrons de la source $^{241}\text{Am}\text{-Be}$ thermalisés

Le spectre de la source $^{241}\text{Am}\text{-Be}$ obtenu avec la sphère de Bonner de 9 pouces a été introduit dans le fichier d'entrée du code de simulation. Ce spectre est composé à la fois des neutrons thermiques et rapides. La figure V-3 montre la distribution en énergie des photons créés par l'activation de certains éléments contenus dans le verre RPL. Ce résultat de simulation montre que le détecteur est sensible aux neutrons thermiques. Pour $2,24 \times 10^6$ neutrons émis par seconde, nous avons $331 \text{ } \gamma \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ créés dans le verre RPL, donc le signal que peuvent engendrer ces photons ne doit pas être négligé. Par la suite, avec la méthode différentielle, il sera nécessaire de s'affranchir de ces photons et vraisemblablement aussi des particules chargées.

II.1.2. A propos des neutrons de la source $^{252}\text{Cf} + \text{D}_2\text{O}$ thermalisés

La même simulation effectuée avec les neutrons thermalisés de la source $^{241}\text{Am}\text{-Be}$ a été réalisée avec les neutrons issus de la source de californium entourée d'eau lourde ($^{252}\text{Cf} +$

D₂O). Le spectre de cette configuration étant connu (donnée de l'IRSN³, figure V-4), il a été introduit dans le fichier d'entrée du code de simulation, ce qui nous a permis de ne pas simuler la sphère d'eau lourde. La distribution en énergie des photons d'activation est représentée sur la figure V-5. Cette dernière est semblable à celle de la figure V-3 obtenue avec les neutrons thermalisés de la source de ²⁴¹Am-Be et, confirme que la sensibilité du RPL est due majoritairement à l'activation de l'argent.

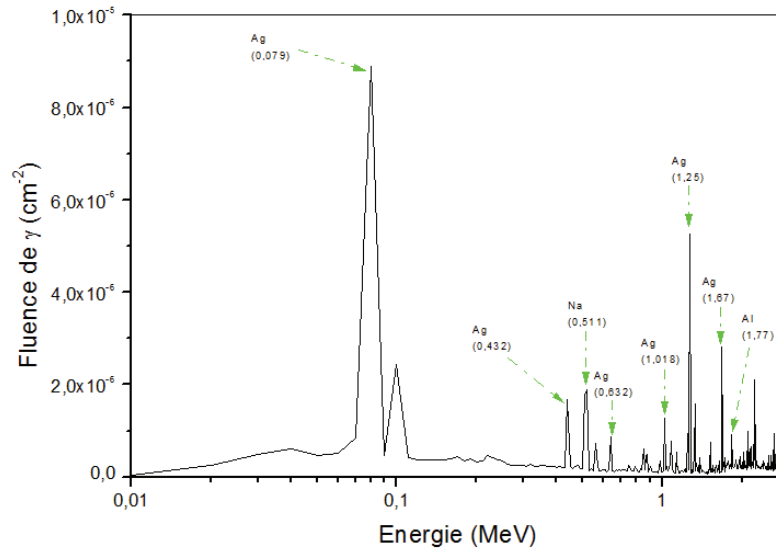


Figure V-3 : Distribution en énergie des photons γ générés dans le verre RPL suite à l'interaction avec les neutrons de la source ²⁴¹Am-Be thermalisés.

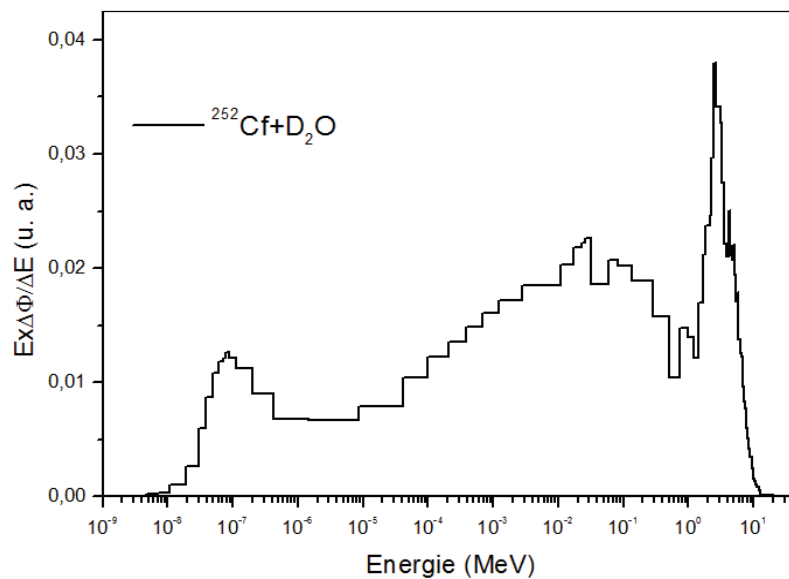


Figure V-4 : Spectre IRSN de la source ²⁵²Cf + D₂O.

³ Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire

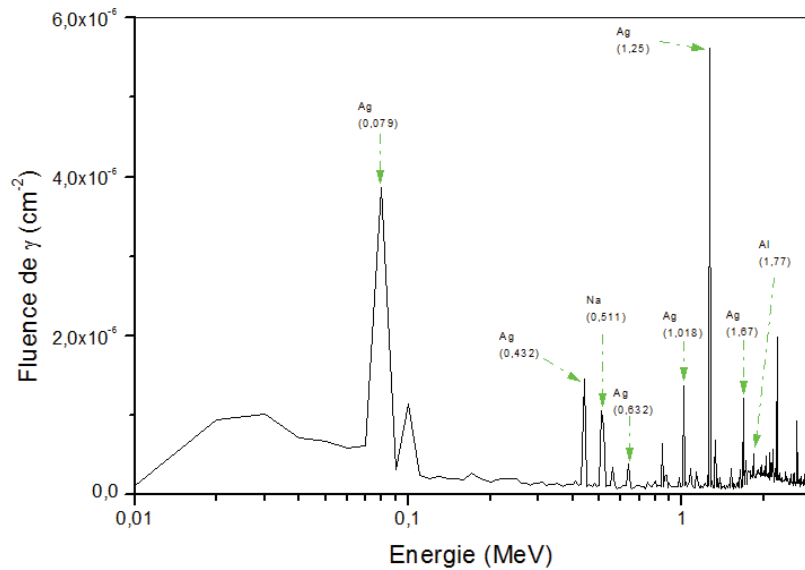


Figure V-5 : Distribution en énergie des photons γ générés dans le verre RPL suite à l'interaction avec les neutrons de la source $^{252}\text{Cf} + \text{D}_2\text{O}$.

II.2. Tests expérimentaux

La technique de détection des neutrons, basée sur les réactions (n, α) à l'aide de la méthode différentielle est confrontée à des effets indésirables liés au verre RPL. Ces effets sont dus essentiellement au pouvoir d'arrêt et à la sensibilité du détecteur aux neutrons. Le rapport des signaux issus de la capture radiative (n, γ) sur l'argent et des particules α , joue un rôle déterminant dans le comportement d'un dosimètre utilisant la réaction (n, α) . Les contributions de ces signaux peuvent être du même ordre de grandeur. Ainsi, la différence des réponses obtenues peut être non significative. Cependant, cette méthode (n, α) n'est pas la seule possibilité. Les réactions (n, γ) peuvent aussi être exploitées. Dans ce qui suit, nous allons étudier plusieurs cas afin de mettre en place un dispositif aussi précis que possible pour estimer la dose neutron.

II.2.1. Convertisseurs borés

Le ^{10}B possède une section efficace d'absorption des neutrons thermiques très élevée (3840 barns), raison pour laquelle il est très sollicité pour leur détection. La capture des neutrons thermiques par le ^{10}B va générer des particules α d'énergies 1,47 et 1,777 MeV plus les ions ^7Li d'énergies 0,84 MeV et 1,015 MeV [72]. L'ion ^7Li (0,84 MeV) produit dans le premier état excité se désexcite rapidement ($\sim 10^{-13}$ s) vers l'état fondamental, restant dans le ^{10}B où son parcours moyen est de 1,6 μm en libérant un rayon γ de 478 keV. La détection des

particules chargées issues de l'absorption permet ainsi d'évaluer la dose neutron. Mais dans le champ mixte n- γ , il faut penser à distinguer le signal γ des signaux des produits de conversion. Le premier test a consisté à mettre en place un système constitué d'un ensemble convertisseur boré – détecteur RPL (figure V-6). Il comporte deux voies de mesure symétriques par rapport aux rayonnements incidents (n + γ). Une des voies, servant de référence (détecteur RPL sans convertisseur), enregistre les grandeurs d'entrée et l'autre voie, dont le verre RPL est précédé d'un convertisseur en ^{10}B , détecte ces mêmes grandeurs plus les α et ions ^7Li issus du convertisseur. La différence des réponses de chacune des voies permet de remonter au signal dû principalement aux neutrons thermiques. Cependant cette méthode avec laquelle nous avons utilisé un convertisseur BE10 constitué à 99% de ^{10}B et d'épaisseur 40 μm , donnait un résultat non significatif. Avant de recourir au cadmium comme convertisseur alternatif, nous nous sommes intéressés aux possibles causes du résultat non significatif constaté avec le convertisseur en ^{10}B : pouvoir d'arrêt du détecteur, activation, rapport signal neutrons thermiques au signal γ_{act} d'activation.

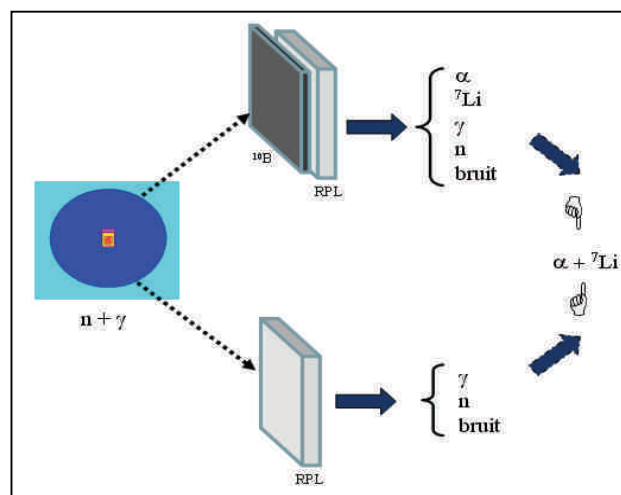


Figure V-6 : Schéma de principe du dispositif utilisé.

II.2.1.1. Effets du pouvoir d'arrêt et de l'activation du verre RPL

Les particules lourdes chargées d'énergie de l'ordre du MeV ont un parcours très faible dans les solides. Grace au logiciel SRIM [7], on peut visualiser et déterminer la profondeur des particules α dans les matériaux. La figure V-7 illustre la propagation des α de 2,05 MeV dans le détecteur RPL. Cette énergie correspond à celle des α issus de la réaction $^6\text{Li}(n,\alpha)^3\text{H}$ même si la section efficace pour les neutrons thermiques du ^6Li (940 b) reste inférieure à celle du ^{10}B . La profondeur maximale atteinte par de telles particules α est de 11,5 μm , soit 0,7% de

l'épaisseur totale de 1500 μm du détecteur RPL. Le dopant Ag^+ servant de piège et cause des centres luminescents se trouve à une certaine profondeur qui n'est pas atteinte par une partie des α issus des convertisseurs ^{10}B et ^6Li . Donc, le détecteur RPL précédé de ^{10}B ne voit qu'une partie des α . Cependant, ce phénomène propre à une seule voie ne peut être la seule cause du manque de signal significatif (différence des réponses de chaque voie). La question se pose au niveau du signal de la voie sans convertisseur. En effet, l'interaction directe des neutrons thermiques dans le verre RPL peut y engendrer un signal γ_{act} significatif dû à l'activation de ses composants. Par conséquent, il faut évaluer le rapport signal α issu du convertisseur au signal γ_{act} d'activation en vue de son exploitation dans un autre dispositif.

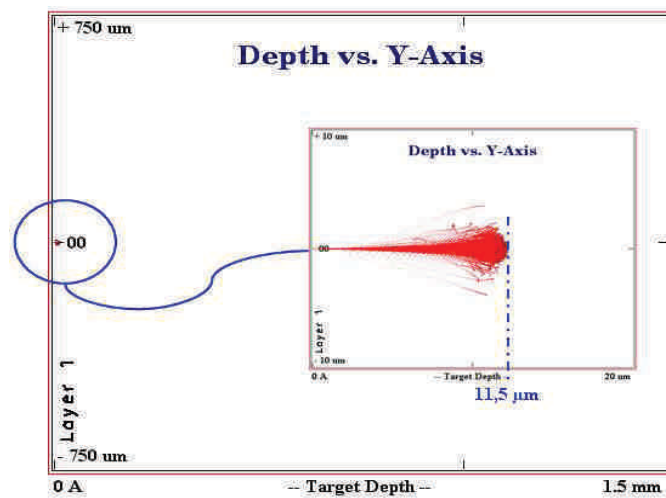


Figure V-7 : Propagation des α de 2,05 MeV dans le détecteur RPL.

II.2.1.2. Rapport signal α /signal d'activation

- *Expérience*

Le rapport des signaux $\alpha/\gamma_{\text{act}}$ a été estimé expérimentalement en coupant d'une part la composante des neutrons thermiques et d'autre part en intercalant une couche d'aluminium entre le convertisseur boré et le verre RPL. La couche d'Al d'épaisseur 11 μm permet de stopper les α et les ions ^7Li issus du ^{10}B . En retranchant aux réponses des deux voies de la figure V-6 la réponse de la configuration ($^{10}\text{B}+\text{Al}+\text{RPL}$), on obtient les signaux propres aux γ_{act} et aux α issus du convertisseur. Pour des irradiations au contact de la source de 5 h, 15 h et 72 h, les ratios sont respectivement 65%, 84% et 83%. Ces résultats montrent que le signal dû aux γ_{act} est supérieur à celui des α . Les figures V-8 (a, b, c) illustrent sous forme d'histogramme les différences de sensibilité entre les réponses des configurations

$^{10}\text{B}+\text{Al}+\text{RPL}$, $^{10}\text{B}+\text{RPL}$ et RPL. La configuration $^{10}\text{B}+\text{Al}+\text{RPL}$ est logiquement non efficace aux neutrons thermiques. Les α issus de la réaction $^{10}\text{B}(n,\alpha)^7\text{Li}$ sont tous stoppés par la couche d'Al et l'activation du verre RPL est optimisée (absorption des neutrons thermiques par le bore). Au vu de ces faits, il faut éviter l'interaction des neutrons thermiques avec le détecteur dans un éventuel dispositif utilisant la méthode différentielle.

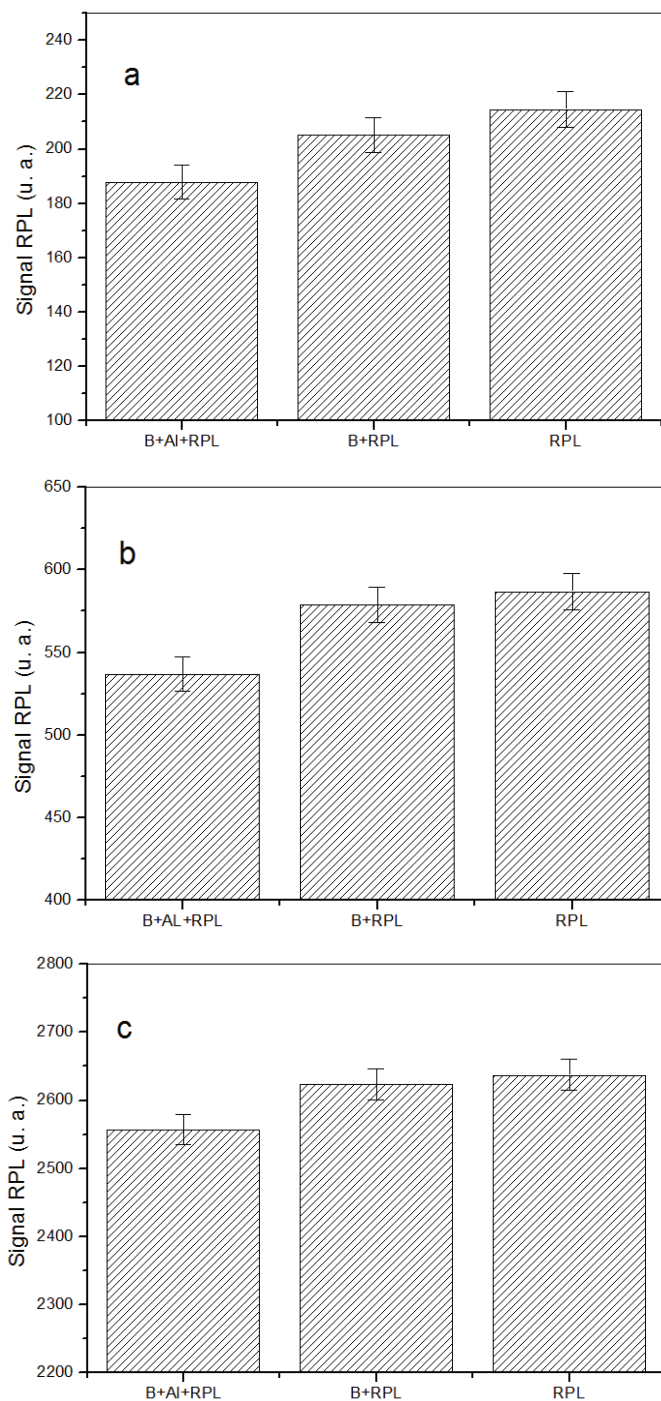


Figure V-8 : Signaux RPL obtenus à l'aide du détecteur RPL précédé par les couches $^{10}\text{B} + \text{Al}$ (gauche) et par la couche ^{10}B (milieu) en comparaison avec le signal RPL (droite) pour différents temps d'irradiation. **(a)** : 5 h, **(b)** : 15 h, **(c)** : 72 h

- **Simulation**

La base de données correspondant à la table ENDF/B-VI de MCNPX ne permet pas de générer les particules chargées secondaires résultant des interactions des neutrons thermiques avec le ${}^6\text{Li}$ et le ${}^{10}\text{B}$. Les particules α (1,47 et 1,777 MeV) issues du convertisseur boré étant connues, une source de bore 10 contenant ces α a été créée dans le fichier d'entrée du code de simulation. La figure V-9 montre la fluence des particules α issus de la réaction ${}^{10}\text{B}(n,\alpha){}^7\text{Li}$ ainsi que celle des γ d'activation, telles qu'elles sont produites dans le verre RPL. La distribution de photons ($1,47 \times 10^{-4} \text{ } \gamma \cdot \text{cm}^{-2}$) est plus importante que celle des α ($7,32 \times 10^{-5} \text{ } \alpha \cdot \text{cm}^{-2}$). En comparant ces valeurs, nous obtenons un rapport $\alpha/\gamma_{\text{act}}$ d'environ 50% montrant que le signal des γ_{act} d'activation domine le signal α . Cependant, la simulation ne reflète pas les réalités de l'expérience du fait que la réponse du verre RPL n'est pas modélisée par MCNPX.

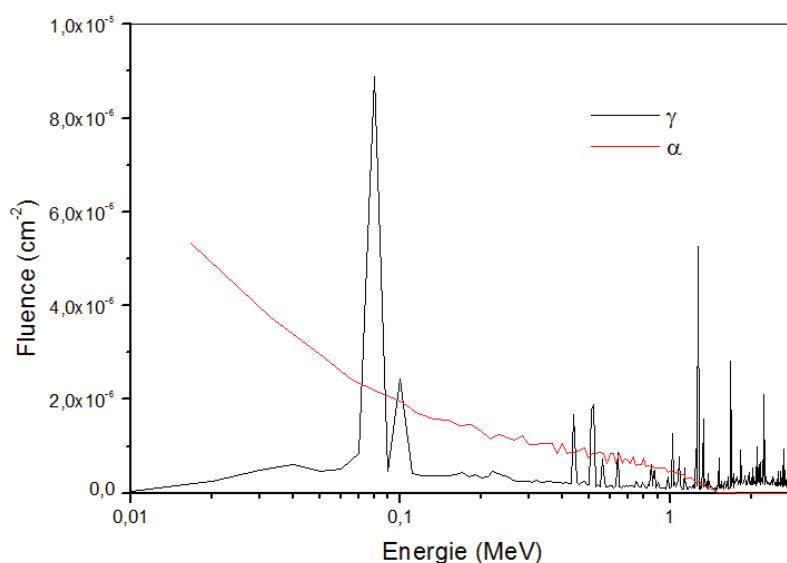


Figure V-9 : Distribution en énergie des photons γ générés dans le verre RPL et des α produits par l'interaction des neutrons thermalisés de la source ${}^{241}\text{Am-Be}$ avec le ${}^{10}\text{B}$.

II.2.2. Convertisseur cadmium comme alternative

Sous l'action des neutrons, le cadmium peut générer des particules chargées et des rayonnements électromagnétiques. Nous nous sommes, dans ce travail, intéressés principalement aux photons issus de la capture radiative (n, γ). En effet, l'isotope ${}^{113}\text{Cd}$ du cadmium possède une section efficace d'absorption très importante (20800 barns) dont

l'interaction avec les neutrons thermiques produit des rayons γ facilement détectables. Contrairement au ^{10}B dont les ions produits à partir des réactions (n, α) sont moins pénétrants et leur signal souvent faible vis-à-vis du signal γ_{act} d'activation, le cadmium est un excellent convertisseur pour détecter les neutrons thermiques. Le spectre des rayons γ résultant de la réaction $^{113}\text{Cd}(n,\gamma)^{114}\text{Cd}$ est représenté sur la figure V-10 [73]. On peut y voir les pics principaux d'émission à 558,6 keV et à 651,3 keV. Il existe d'autres convertisseurs mettant en jeu la capture radiative des neutrons thermiques. C'est le cas du gadolinium dont l'isotope ^{157}Gd possède une très importante section efficace d'absorption (240000 barns), du manganèse ou de l'ytterbium. Il faut aussi savoir que le cadmium est composé de plusieurs isotopes où des réactions (n, p) et (n, α) peuvent être produites. Le tableau V-3 regroupe ces réactions possibles des neutrons avec ces isotopes [74]. On peut y remarquer que les réactions (n,α) sont largement exoénergétiques pour la plupart.

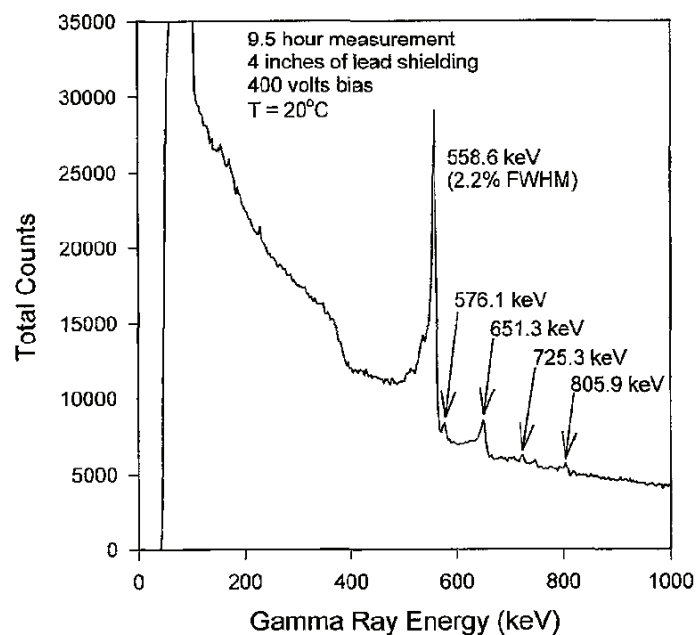


Figure V-10 : Spectre d'émission des rayons gamma issus de la réaction $^{113}\text{Cd}(n,\gamma)^{114}\text{Cd}$, obtenu avec un détecteur CdZnTe.

Isotope du Cd	Réactions	Q (MeV)
^{106}Cd (1,22%)	$^{106}\text{Cd} (n,p) ^{106}\text{Ag}$	0,587
	$^{106}\text{Cd} (n,\alpha) ^{103}\text{Pd}$	5,993
^{108}Cd (0,89%)	$^{108}\text{Cd} (n,p) ^{108}\text{Ag}$	-0,868
	$^{108}\text{Cd} (n,\alpha) ^{105}\text{Pd}$	4,807
^{110}Cd (12,43%)	$^{110}\text{Cd} (n,p) ^{110}\text{Ag}$	-2,11
	$^{110}\text{Cd} (n,\alpha) ^{107}\text{Pd}$	3,665
^{111}Cd (12,86%)	$^{111}\text{Cd} (n,p) ^{111}\text{Ag}$	-0,225
	$^{111}\text{Cd} (n,\alpha) ^{108}\text{Pd}$	5,912
^{112}Cd (23,79%)	$^{112}\text{Cd} (n,p) ^{112}\text{Ag}$	-3,174
	$^{112}\text{Cd} (n,\alpha) ^{109}\text{Pd}$	2,673
^{113}Cd (12,34%)	$^{113}\text{Cd} (n,p) ^{113}\text{Ag}$	-1,234
	$^{113}\text{Cd} (n,\alpha) ^{110}\text{Pd}$	4,946
^{114}Cd (28,81%)	$^{114}\text{Cd} (n,p) ^{114}\text{Ag}$	-4,29
	$^{114}\text{Cd} (n,\alpha) ^{111}\text{Pd}$	1,629
^{116}Cd (7,66%)	$^{116}\text{Cd} (n,p) ^{116}\text{Ag}$	-5,367
	$^{116}\text{Cd} (n,\alpha) ^{113}\text{Pd}$	0,617

Tableau V-3 : Les réactions (n, p), (n, α) susceptibles de se produire avec des neutrons thermiques incidents sur les isotopes du cadmium. Les valeurs entre parenthèse représentent l'abondance naturelle.

II.2.3. Configuration d'un autre système de mesure

Le dispositif doit s'affranchir de tous les effets perturbateurs qui peuvent biaiser le résultat de la mesure des neutrons thermiques recherché. Ces effets sont dus principalement à l'interaction des neutrons thermiques avec le verre RPL (gamma d'activation) et aux gamma propres de la source émettrice. Le schéma éclaté du principe de la mesure est présenté sur la figure V-11. Il est constitué de deux détecteurs RPL repartis sur deux voies. Sur une des voies, le détecteur RPL est précédé respectivement d'un écran en Al et d'un convertisseur en ^{10}B . Ce dernier sert à enlever la composante des neutrons thermiques afin d'éviter l'activation du verre RPL. L'Al d'épaisseur 11 μm est utilisé pour stopper les produits de la réaction $^{10}\text{B}(n,\alpha)^7\text{Li}$. Ainsi, nous ne détectons que les grandeurs d'entrée (n + γ) sur cette voie. L'autre voie, dont le verre RPL est muni d'un convertisseur en Cd (naturel) d'épaisseur 0,5 mm, enregistre les mêmes grandeurs d'entrée que celles précédentes (n + γ) plus les γ issus de la capture radiative (n, γ) sur le Cd. S'y ajoutent également d'autres particules chargées possibles comme indiquées dans le tableau V-3. La réponse du dosimètre aux neutrons thermiques, due principalement au signal γ issu du convertisseur en Cd, est obtenue par soustraction des réponses de chaque voie. Le γ principal accompagnant les neutrons de la source $^{241}\text{Am-Be}$ est celui d'énergie 4,438 MeV émis à 100%. A titre d'exemple, on peut voir

sur la figure V-12 l'effet du cadmium (Cd+RPL), pour un temps d'irradiation de 5 h au contact de la source. Le signal RPL qui en résulte se détache significativement de celui des autres configurations $^{10}\text{B}+\text{Al}+\text{RPL}$, $^{10}\text{B}+\text{RPL}$ et RPL pour ce temps d'irradiation. Ceci indique que le détecteur RPL muni de cadmium seul est plus sensible qu'un détecteur RPL muni de ^{10}B .

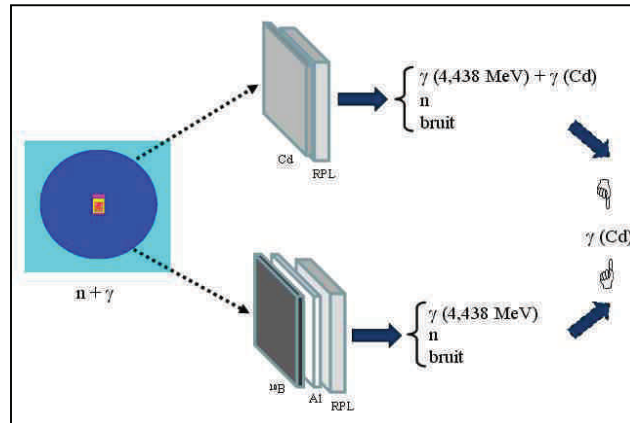


Figure V-11 : Schéma du principe de la mesure.

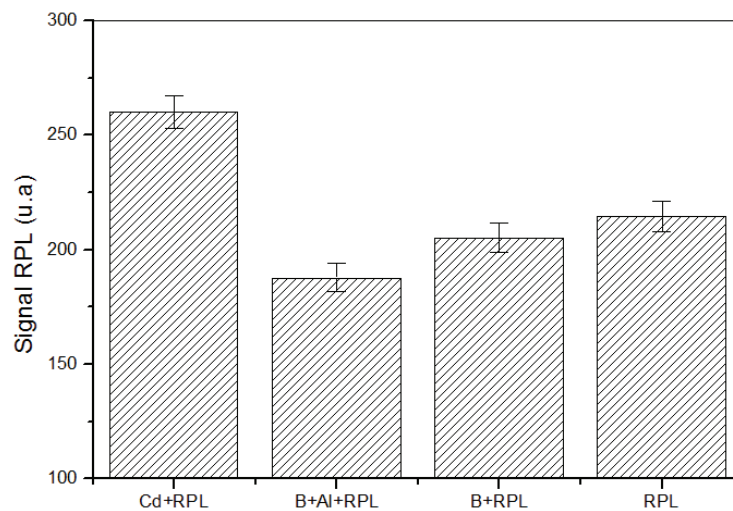


Figure V-12 : Signaux RPL obtenus à l'aide du verre RPL précédé de Cd, de $^{10}\text{B} + \text{Al}$, de ^{10}B en comparaison avec le signal RPL sans convertisseur.

II.3. Evaluation de l'équivalent de dose ambiante

II.3.1. Conditions d'irradiation et calculs

Les irradiations ont été effectuées avec la source $^{241}\text{Am-Be}$ entourée de la sphère de Bonner de 9 pouces. Les configurations des voies d'entrée, Cd+RPL et $^{10}\text{B}+\text{Al}+\text{RPL}$ (figure V-11)

placées dans des pochettes en Mylar, ont été simultanément exposées aux neutrons sortant de la sphère. La source de l'IPHC n'étant pas calibrée pour les neutrons thermalisés ($^{241}\text{Am-Be} + \text{SB}$), les équivalents de dose ambiants ont été simulés à l'aide du code de calcul MCNPX. Le tableau V-4 regroupe quelques valeurs simulées pour différentes distances.

Distance (cm)	$H^*(10)$ en $\mu\text{Sv.h}^{-1}$	
	$^{241}\text{Am-Be} + \text{SB}$	$^{241}\text{Am-Be} + \text{SB} + \text{Cd}$
Contact	1015	999,62
25	86,59	85,27
50	31,88	31,27
75	16,99	16,62
100	10,95	10,69

Tableau V-4 : Données simulées par MCNPX de l'équivalent de dose ambiant $H^*(10)$ des neutrons de la source $^{241}\text{Am-Be}$ thermalisés.

II.3.2. Résultats

Les résultats des mesures, constituant la réponse du dosimètre, sont présentés sur la figure V-13. On peut voir que le signal RPL, essentiellement dû aux rayons γ issus du convertisseur Cd, croît linéairement avec l'équivalent de dose ambiant $H^*(10)$ avec un coefficient de corrélation $r^2 = 0,999$. Ce signal correspond aux neutrons thermiques. Tout au long de la gamme d'équivalent de dose, le signal RPL suit une loi linéaire de la forme :

$$R_{n,\gamma} = (43,0 \pm 0,5) \times H^*(10) \quad (\text{V-1})$$

II.3.3. Seuil de détection

La méthode d'évaluation d'une limite de détection, dans un processus de mesure, est relative à la réponse instrumentale. Dans la littérature, il existe de nombreuses définitions incompatibles et limitées de la limite de détection. Cette problématique a conduit à une ré-examen de la question de la détection du signal. Ainsi, Currie a défini des limites de détectabilité, basées sur la théorie statistique des tests d'hypothèse [75]. Il commence par définir les concepts de limites quantitatives et d'analyses quantitatives dont il établit trois niveaux de limitation. Mais celle qui nous intéresse est la limite de détection L_D . Cette

dernière, correspondant à la valeur minimum détectable du signal net, peut donc être exprimée comme :

$$L_D (\text{signal RPL/cm}^2) = 2,71 + 3,29 \times \sigma_B \quad (\text{V-2})$$

où σ_B représente la déviation standard du signal RPL net sans irradiation. Les verres RPL ont un signal RPL résiduel moyen par centimètre carré de $57 \pm 5,6$, ce qui correspond à L_D (signal RPL/cm²) = 21. Donc la valeur minimale mesurable de $H^*(10)$ correspondant à cette limite de détection L_D est 0,48 mSv, selon l'équation d'étalonnage (V-1). Mais, comme le montre la figure III-14, cette valeur peut varier en fonction du bruit de fond intrinsèque du détecteur RPL qui croît après chaque irradiation.

Expérimentalement, le plus faible signal RPL/cm² détecté par le dispositif mis en place et compatible avec la limite L_D est 20 ± 3 . Il correspond à un équivalent de dose ambiant $H^*(10)$ égal à $0,47 \pm 0,07$ mSv, d'après l'équation (V-1). Cette valeur est en bon accord avec la valeur seuil de 0,48 mSv.

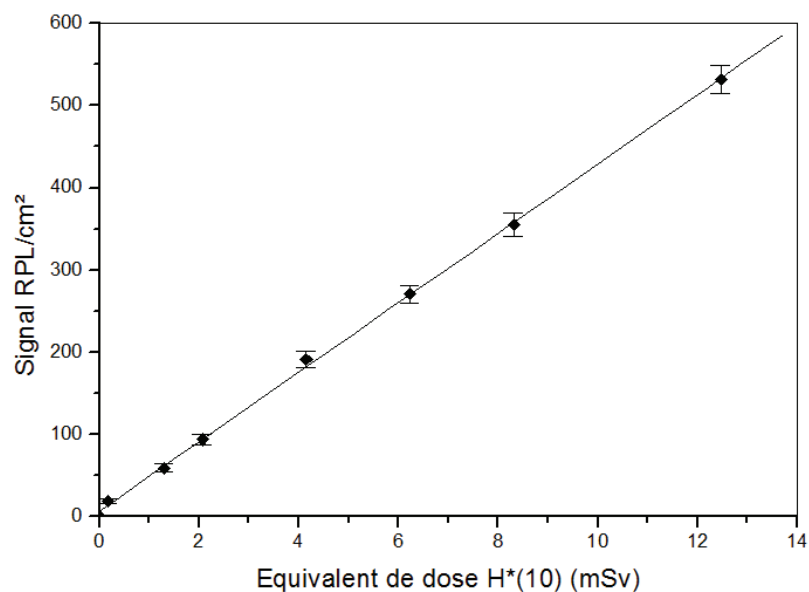


Figure V-13 : Réponse expérimentale du dosimètre pour les neutrons thermiques en fonction de l'équivalent de dose ambiant $H^*(10)$.

II.4. Application à la dosimétrie personnelle

Comme évoqué dans le chapitre IV, en dosimétrie personnelle le détecteur est appelé à être porté sur le tronc humain. Ainsi, les irradiations ont été effectuées avec les mêmes neutrons de la source ²⁴¹Am-Be thermalisés en plaçant les configurations de voies d'entrée, Cd+RPL et

$^{10}\text{B}+\text{Al}+\text{RPL}$ (figure V-11) au centre de la face antérieure du fantôme représenté sur la figure IV-14. Les signaux RPL du dosimètre avec et sans fantôme pour deux temps d'irradiation (24 et 96h) et à la même distance de la sphère de Bonner (51 cm) sont montrés sur la figure V-14. On peut voir que le fantôme contribue significativement au signal enregistré. Les écarts entre ces signaux avec et sans fantôme pour les temps d'irradiation 24 h et 96 h sont respectivement de 35% et 33%. Ceci indique que pour une surveillance de routine individuelle, notre dosimètre doit être étalonné sur un fantôme pour éviter de biaiser le résultat. Les effets du fantôme dans ce cas précis ont également été mis en évidence en vue de déterminer la composante des neutrons rétrodiffusés.

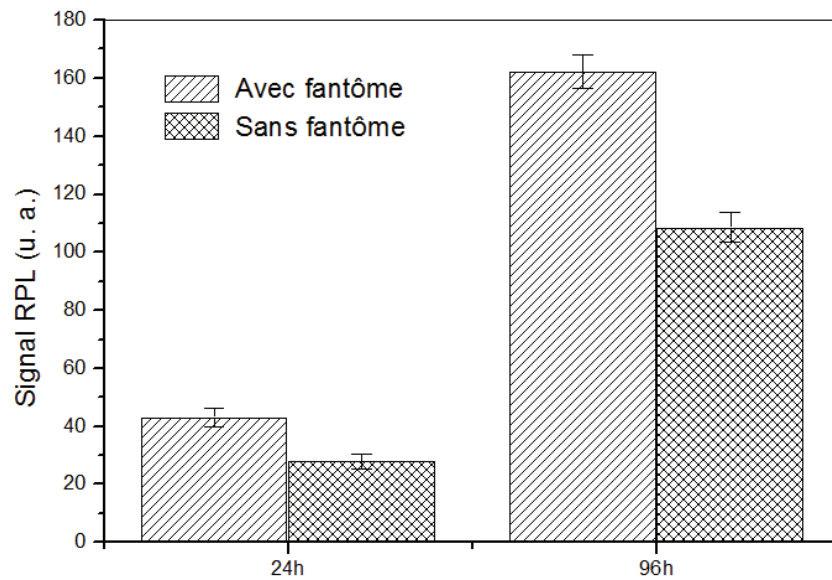


Figure V-14 : Signaux RPL obtenus à l'aide du dosimètre neutrons thermiques avec et sans fantôme.

II.4.1. Effets simulés du fantôme

La source $^{241}\text{Am-Be}$ entourée de la sphère de Bonner de 9 pouces a été simulée avec le code MCNPX dans les conditions expérimentales d'irradiation. Les spectres des neutrons arrivant au point détecteur par neutron-source avec et sans fantôme ainsi que la composante rétrodiffusée sont reportés sur la figure V-15. Il apparaît sur cette figure que la contribution du fantôme à la réponse du dosimètre est due principalement à des neutrons rapides thermalisés et rétrodiffusés par le fantôme. Cette rétrodiffusion correspond à la différence des spectres neutroniques avec et sans fantôme.

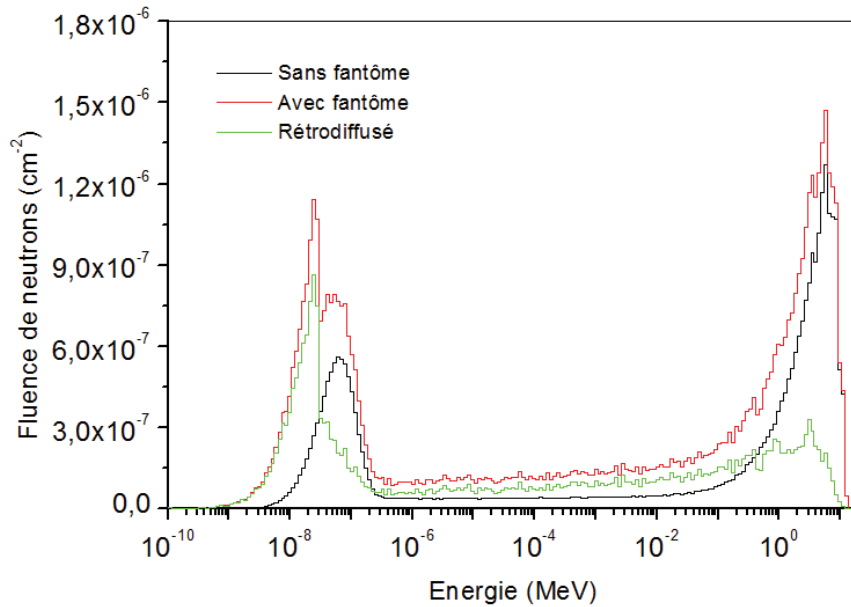


Figure V-15 : Spectres des neutrons avec et sans fantôme plus la composante rétrodiffusée par le fantôme.

II.4.2. Réponse du dosimètre en termes d'équivalent de dose $H_p(10)$

La figure V-16 montre la réponse du dosimètre pour les neutrons thermiques en fonction de l'équivalent de dose personnel $H_p(10)$. On peut voir que cette réponse est linéaire en terme de $H_p(10)$ avec un coefficient de corrélation $r^2 = 0,998$. Cette réponse tenant compte de la rétrodiffusion du fantôme représentant le tronc humain suit une loi linéaire de la forme :

$$R_{n,\gamma} = (110 \pm 3) \times H_p(10) \quad (\text{V-3})$$

En comparaison avec la réponse du dosimètre en terme d'équivalent de dose ambiant $R_{n,\gamma} = (43 \pm 0,5) \times H^*(10)$ (équation V-1), on voit qu'on a un coefficient de proportionnalité plus élevé qui correspond à (110 ± 3) signal RPL/cm².mSv. Avec L_D (signal RPL/cm²) = 21, cette fois-ci, la valeur minimale mesurable en terme d'équivalent de dose personnel $H_p(10)$ est 0,19 mSv, selon l'équation d'étalonnage (V-3).

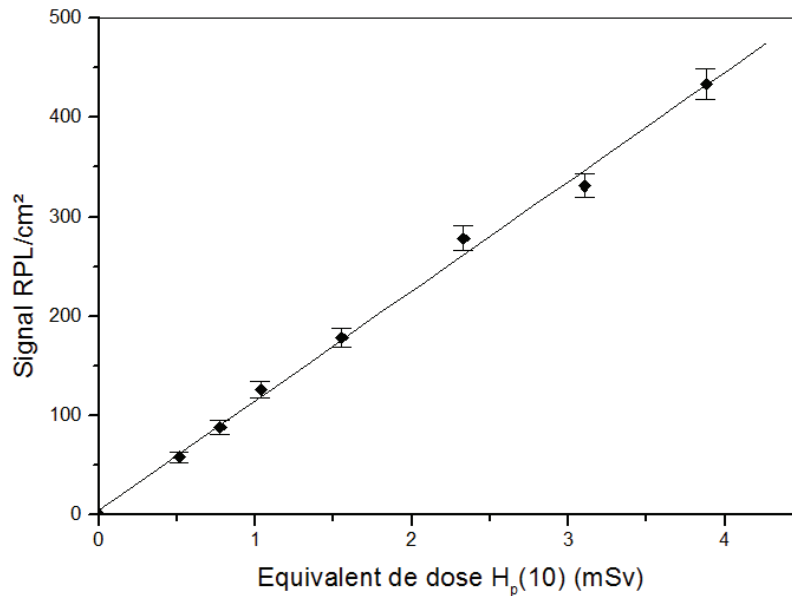


Figure V-16 : Réponse expérimentale du dosimètre pour les neutrons thermiques en fonction de l'équivalent de dose $H_p(10)$ pour une incidence normale.

II.4.3 Réponse angulaire

La figure V-17 représente la variation de la réponse du dosimètre en fonction de l'angle d'incidence des neutrons thermalisés de la source $^{241}\text{Am-Be}$. Celle-ci a été évaluée en termes d'équivalent de dose $H_p(10, \alpha)$, comme dans le cas des neutrons rapides (chapitre IV). La réponse en équivalent de dose personnel moyenne du dosimètre aux angles d'incidence de 0° à 60° par rapport à la normale est $103 \pm 4 \text{ mSv}^{-1} \cdot \text{signal RPL} \cdot \text{cm}^{-2}$. Elle correspond à 85% de la réponse aux neutrons thermalisés de la source $^{241}\text{Am-Be}$ à l'incidence normale. L'écart de 15% observé satisfait les exigences de la norme ISO 21909 [24].

Avec cette dépendance angulaire, un facteur de calibration pour mesurer les neutrons thermiques doit être défini. Ce dernier correspond à l'inverse de la valeur de la moyenne arithmétique de la réponse du dosimètre à 0° , 15° , 30° , 45° et 60° . Sa valeur pour estimer $H_p(10)$ est de $(9,7 \pm 0,3) \times 10^{-3} \text{ mSv} \cdot \text{cm}^2 / \text{signal RPL}$.

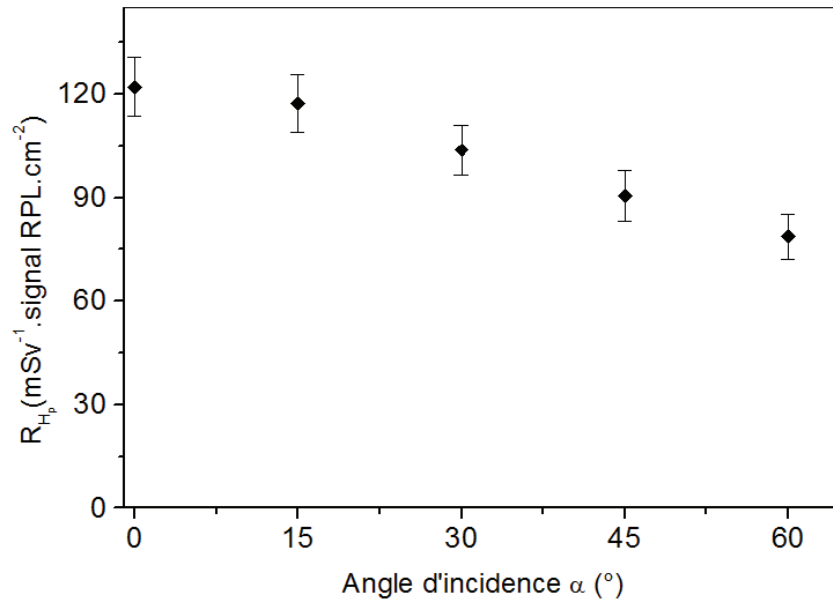


Figure V- 17 : Réponse angulaire expérimentale en termes de l'équivalent de dose $H_p(10)$ pour les neutrons thermalisés de la source $^{241}\text{Am-Be}$.

III. Conclusion

Cette étude a montré qu'un dosimètre RPL associé à un convertisseur n- γ de cadmium naturel pour détecter les neutrons thermiques dans un champ mixte n- γ est faisable. La réponse expérimentale du dosimètre en termes des équivalents de dose $H^*(10)$ et $H_p(10)$, due principalement au signal γ issu du convertisseur en Cd est linéaire avec des seuils de détection de 0,19 mSv en $H_p(10)$ et 0,48 mSv en $H^*(10)$. Cependant, l'étude menée sur l'évolution du bruit de fond des détecteurs RPL après irradiation a montré que ces seuils peuvent varier. Le système dosimétrique proposé présente une dépendance angulaire acceptable par rapport à l'incidence normale. Le facteur de calibration obtenu pour les neutrons thermalisés de la source $^{241}\text{Am-Be}$ est $(9,7 \pm 0,3) \times 10^{-3} \text{ mSv} \cdot \text{cm}^2 / \text{signal RPL}$. Enfin, il ressort de cette étude que la détection des neutrons thermiques dans un champ mixte n- γ , basée sur l'utilisation des réactions (n, α) n'est pas transposable aux détecteurs RPL en raison du signal d'activation très important par rapport au signal α .

Conclusion générale

Cette étude, réalisée dans un contexte expérimental et de simulations numériques sur la recherche et le développement en instrumentation nucléaire a mis en évidence la faisabilité d'un dosimètre RadioPhotoLuminescent (RPL) pour les neutrons dans un champ mixte n- γ . L'introduction d'un nouveau système de dosimétrie passive pour neutrons à base de verres RPL dans le domaine de la métrologie nucléaire, et particulièrement le suivi réglementaire dosimétrique, représente une alternative intéressante aux dosimètres actuellement utilisés (film NTA, TLD et DSTN).

Les résultats de l'étude portée sur les caractéristiques intrinsèques des détecteurs RPL ont montré que le verre RPL présente une bonne reproductibilité du signal avec un coefficient de variation de 1,5%, ce qui est satisfaisant en terme de fonctionnement de routine. Les lectures successives des signaux des protons de recul, issus d'une réaction (n, p) sur cible, d'un même dosimètre, ne fluctuent que de 4% ; donc les données peuvent être lues autant de fois que nécessaire sans perte de signal. Cependant, le bruit de fond résiduel des verres RPL augmente après chaque exposition aux rayonnements ionisants. Ce phénomène peut en limiter la période d'utilisation dans le cadre de suivi réglementaire. Il s'est avéré aussi que pour détecter les particules lourdes chargées, le sens de l'orientation du détecteur RPL doit être respecté.

L'étude détaillée consacrée à la caractérisation des détecteurs RPL pour les neutrons rapides et les neutrons thermiques, dont l'évaluation des doses reçues par les personnes exposées constitue un des challenges actuels de la radioprotection, a abouti à des résultats originaux et prometteurs.

Il ressort de la première partie de cette étude que les neutrons rapides peuvent être détectés dans un champ mixte n- γ à l'aide d'un dosimètre compact intégrant des verres RPL associés avec un convertisseur neutron-proton. La réponse expérimentale du dosimètre en termes des équivalents de dose $H^*(10)$ et $H_p(10)$ est linéaire, avec une dépendance angulaire satisfaisante selon les recommandations de la norme ISO 21909. Cette dépendance angulaire a également été confirmée par simulation Monte Carlo pour les champs neutroniques de référence de la source $^{241}\text{Am-Be}$ (d'énergie moyenne en fluence 4,16 MeV) et celle de ^{252}Cf (d'énergie moyenne en fluence 2,13 MeV) ainsi que pour des neutrons monoénergétiques de 1,2 et 2,8 MeV. Egalement, de cette étude, un facteur de calibration de $(9,54 \pm 0,5) \times 10^{-2}$ mSv.cm²/signal RPL a été obtenu pour la source $^{241}\text{Am-Be}$. Cette valeur permettra par la suite

de déterminer l'équivalent de dose personnel neutronique en multipliant ledit facteur par le signal des protons de recul fourni par le lecteur. Cependant les protons issus de la réaction (n, p) dans le convertisseur doivent avoir une énergie $E \geq 115$ keV pour pouvoir être détectés. Ceci limite actuellement l'utilisation de ce nouveau dispositif à la surveillance des personnes travaillant dans les installations de l'industrie nucléaire où les neutrons d'énergie supérieure à 115 keV sont prépondérants. De plus, lors de l'étude de l'accumulation des doses successives de neutrons, il a été observé que des préchauffages cumulés, sans réinitialisation du détecteur, peuvent biaiser les résultats en sous-estimant le nombre de protons de recul et donc l'exposition aux neutrons rapides.

Dans la seconde partie, l'étude a montré que la conception d'un dosimètre RPL associé à un convertisseur n- γ qui détecte les neutrons thermiques dans un champ mixte n- γ est faisable. La réponse expérimentale du dosimètre en termes des équivalents de dose $H^*(10)$ et $H_p(10)$ est linéaire avec des seuils de détection respectifs de 0,48 et 0,19 mSv. Le système dosimétrique proposé présente une dépendance angulaire acceptable par rapport à l'incidence normale. Le facteur de calibration obtenu pour les neutrons thermalisés de la source $^{241}\text{Am-Be}$ est $(9,7 \pm 0,3) \times 10^{-3}$ mSv.cm²/signal RPL. Enfin, il ressort de cette étude que la technique de détection des neutrons thermiques dans les champs mixtes n- γ , basée sur l'utilisation des réactions (n, α), à l'aide de la méthode différentielle n'est pas transposable aux détecteurs RPL.

En résumé, ces travaux de recherche basés sur la technologie RPL ont montré qu'il est possible de détecter les neutrons d'énergies variées à l'aide de verres méta-phosphates dopés à l'argent grâce à l'ajout de convertisseurs appropriés. Par conséquent, un futur dosimètre commun permettant de détecter à la fois les particules chargées et les rayonnements photoniques et neutroniques peut dès à présent être envisagé.

Il reste encore des points à améliorer : le dopant en argent qui est responsable de la formation des centres luminescents se situe à partir d'une profondeur d'environ 1,7 μm de la surface du verre RPL. La conséquence en est que les protons issus de la réaction (n, p) doivent avoir au moins une énergie $E \geq 115$ keV pour être détectés. Il serait utile d'effectuer un dopage surfacique du verre ou un décapage de la couche morte par-dessus les 1,7 μm afin de rendre détectables des protons d'énergies de moins de 115 keV. Faute aussi d'un convertisseur plus épais de ^{10}B , nous avons utilisé pour la conception du nouveau dosimètre

neutrons thermiques un convertisseur de ^{10}B d'épaisseur 40 μm , qui selon la simulation MCNPX n'arrête qu'environ 86% de ces neutrons. Il y a donc une certaine activation de l'argent du détecteur RPL précédé respectivement d'un écran en Al et d'un convertisseur en ^{10}B . Cela aura pour conséquence de surestimer les rayons γ du champ mixte n- γ dans ce RPL et par conséquent de biaiser la réponse du système dosimétrique mis en place. De ce fait, il serait souhaitable de mener une étude plus approfondie sur les fonctions de réponse des RPL en termes des équivalents $\text{H}^*(10)$ et $\text{H}_p(10)$ en vue de baisser les limites de détection.

En conclusion, le travail réalisé dans cette thèse a permis de répondre à un besoin exprimé par le laboratoire pour la mise en place d'un nouveau système de dosimétrie passive pour les neutrons. Les résultats seront confrontés à d'autres techniques de dosimétrie passive développées au laboratoire pour compléter cette étude, en particulier les TLD (LiF), photostimulables (BaFBr-Eu) et DSTN (PN3). L'estimation de la dose neutrons par ces détecteurs est entravée par des limitations que les RPL sont susceptibles d'améliorer. Il est donc possible d'introduire la technologie des verres RPL dans une démarche qualité en vue de son application dans le domaine de la dosimétrie ambiante et personnelle des neutrons.

En perspective, cette étude servira de base pour continuer cette thématique afin de caractériser le nouveau système de dosimétrie neutron active (DOSIPIX-N) en cours de réalisation utilisant la technologie des capteurs à pixels actifs amincis.

Bibliographie

- [1] C. Jimonet et H. Métivier. *Personne compétente en radioprotection. Principes de radioprotection - réglementation*. EDP Sciences, 209.
- [2] A. Lyoussi. *Détection de rayonnements et instrumentation nucléaire*. EDP Sciences, 2010.
- [3] C. L. Sech et C. Ngô. *Physique nucléaire. Des quarks aux applications*. DUNOD, 2010.
- [4] E. Podgorsak. *Radiation Oncology Physics : A handbook for teachers and students*. Vienna: Technical Editor, IAEA, 2005.
- [5] M. J. Berger, J. H. Hubbell, J. Chang, J. S. Coursey, R. Sukumar et D. S. Zucker. *NIST XCOM: Element/Compound/Mixture*, 2005.
<http://physics.nist.gov/PhysRefData/Xcom/html/Xcom1.html>.
- [6] L. Katz et A. S. Penfold. Range-Energy Relations for Electrons and the determination of Beta-Ray End-point Energies by Absorption. *Rev. Mod. Phys*, vol. 24, pp. 28-44, 1952.
- [7] J. Biersack et J. Ziegler. <http://www.srim.org/SRIM/SRIM2003.htm>.
- [8] R. D. Evans. *The atomic nucleus*, McGraw-Hill. Book company, 1955.
- [9] H. Métivier. *Radioprotection et ingénierie nucléaire*. EDP Sciences, 2006.
- [10] High technology sources LTD. Americium-241/Beryllium.
http://www.hightechsource.co.uk/Americium_Beryllium.pdf.
- [11] P. Reuss. *Précis de neutronique*. EDP Sciences, 2003.
- [12] A. Nouri, P. Nagel, N. Soppera, A. Ahite, B. Taton, J. Patroux, F. Lecompanon, C. Cunin, O. Rioland et L. d'Eurveilher. JANIS : a new software for nuclear data service. Available: <http://www.oecd-ena.org/janis/>.
- [13] A. Ammerich. *Radioprotection Cirkus. Initiation à la dosimétrie, Version 1*.
<http://www.rpcirkus.org/site-web/>.
- [14] International Organisation for Standardisation. *Neutron reference radiations - Part 1: characteristics and methods of production*. ISO 8529-1, 2001.
- [15] J. Nénot, J. Brenot, D. Laurier, A. Rannou et D. Thierry. *Publication 103 de la CIPR. Recommandations 2007 de la commission internationale de protection radiologique*. TEC & DOC, 2007.
- [16] International Commission on radiation Units and Measurements. *Determination of operational dose equivalent for neutrons*. ICRU report 66, 2001.
- [17] F. H. Attix. *Introduction to Radiological Physics and Radiation Dosimetry*, Wiley, New York, 1986.
- [18] S. Serre. *Définition par modélisation, optimisation et caractérisation d'un système de spectrométrie de neutron par sphères de Bonner étendu au domaine des hautes énergies*. Ph.D. thesis, Université Paul Cézanne Aix - Marseille III, France, 2010.
- [19] M. Matzke. *Unfolding Pulse Height Spectra : The HEPRO Program System*. Technical report, PTB (1994).
- [20] A. R. Lakshmanan. A review on the role of thermoluminescent dosimeter in fast-neutron personnel dosimetry. *Nucl. Tracks*, vol. 6, pp. 59-78, 1982.
- [21] L. Makovicka, L. G. Decossas et J. C. Vareille. Experimental study of the dosimetry efficiency of a radiator CR-39 fast neutron dosimeter. *Radiat. Prot. Dosim*, vol. 30, pp. 63-66, 1987.

- [22] A. Belafrites, A. Nourreddine, S. Higuieret, T. L^ê et M. Trocmé. Dependence of PN3 response to Am-Be neutrons on etching and reading process. *Radiat. Meas*, vol. 43, pp. 482-486, 2008.
- [23] A. F. McKinlay. *Thermoluminescence Dosimetry. Medical Physics Handbooks*. Ed. A. Hilger, 1981.
- [24] International Organisation for Standardisation. *Passive personal neutron dosimeters - Performance and test requirements. ISO-21909*, 2005.
- [25] P. Tune, B. J. Lewis, L. G. Bennett et T. Cousins. Characterisation of neutron-sensitive bubble detectors for application in the measurement of jet aircrew exposure to natural background radiation. *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. A*, vol. 406, pp. 153-168, 1998.
- [26] Q. Chan. Dosimétrie passive, Dosimétrie active, Microdosimétrie. In *INSTN - Dosimétrie des neutrons*, 2006.
- [27] N. Metropolis et S. Ulam. The Monte Carlo method. *Journal of American Statistical Association*, vol. 44, n^o.247, pp. 335-341, 1949.
- [28] X5 Monte Carlo Team. *MCNP - A general Monte Carlo Ntransport particle code, version 5*. Los Alamos National Laboratory, LA-UR-03-1987, 2003.
- [29] D. B. Pelowitz. *MCNPX user's manual, version 2.6.0*. Los Alamos National Laboratory, LA-CP-07-1473, 2007.
- [30] M. Chadwick, P. Young, R. MacFarlane, P. Moller, G. Hale, R. Little, A. Konning et S. Chiba. *LA150 Documentation of cross sections, Heating, and Damage : Part A (incident neutrons) and Part B (incident protons)*. Technical report, Los Alamos National Laboratory, 1999.
- [31] BNL. *ENDF-6 Format Manual*. Technical report, 2009.
- [32] D. B. Pelowitz, J. W. Durkee, J. S. Elson, M. L. Fensin, M. R. James, R. C. Johns, G. W. McKinney, S. G. Mashnik, L. S. Waters et T. A. Wilcox. *MCNPX version 2.7.0 Extensions*. Los Alamos National Laboratory, LA-UR-11-02295, 2011.
- [33] *MCNP4C2 - Monte Carlo N-transport particle code system*. Los Alamos National Laboratory, 2001.
- [34] J. Videau et G. L. Flem. *Les verres phosphates. De la spécificité de l'atome de phosphore à la formation, la structure et la durabilité chimique de phosphate vitreux*. Institut de la Chimie de Matière Condensée de Bordeaux, CNRS, Université de Bordeaux, 2010.
- [35] K. Deutschbein, C. C. Pautrat et I. M. Svirchevski. *Les verres phosphates nouveaux matériaux lasers*. *Revue de physique appliquée*. Tome 2, pp. 29-37, 1967.
- [36] W. H. Zachariasen. The atomic arrangement in glass. *J. of Am. Chem. Soc*, vol. 54, pp. 3841-3851, 1932.
- [37] F. Seitz. Speculations on the properties of the silver halide crystals. *Rev. Mod. Phys*, vol. 23, pp. 328-352, 1951.
- [38] A. Smakula, *Nachr. Akad. Wiss. Göttingen Math.-physik*. Kl. 110, 1929.
- [39] M. Kato, *Sci. Papers Phys. Chem. Research Tokyo* 41, 113, 1943.
- [40] M. Boutinaud et H. Bille. Optical centers related to silver in Ag+- doped strontium fluoride crystals. *J. Phys. Chem. Solids*, vol. 57, pp. 55-64, 1996.
- [41] A. Monnier, P. Boutinaud et H. Bill. Silver-doped alkaline earth fluorides: Crystal growth and physico-chemical processes studied by optical spectroscopy and EPR. *J. Phys. Chem. Solids*, vol. 55, pp. 559-573, 1994.
- [42] V. M. Syutkin, V. A. Tolkatchev, A. V. Dmitryuk et S. E. Paramzina. Diffusion of silver ions towards radiation-induced traps in the glass 37.2Na₂O-12.8CaO-50P₂O₅. *Chem.*

- Phys, vol. 196, pp. 139-147, 1945.
- [43] A. V. Dmitryuk, S. E. Paramzina, A. S. Perminov, N. D. Solov'eva et N. T. Timofeev. The influence of glass composition on the properties of silver-doped radiophotoluminescent phosphate glasses. *Journal of Non-Crystalline Solids*, vol. 202, pp. 173-177, 1996.
- [44] E. Borsella, F. Gonella, P. Mazzoldi, A. Quaranta, G. Battaglin et R. Polloni. Spectroscopic investigation of silver in soda-lime glass. *Chemical Physics Letters*, vol. 284, pp. 429-434, 1998.
- [45] E. Borsella, E. Cattaruzza, G. D. Marchi, F. Gonella, G. Mattei, P. Mazzoldi, A. Quaranta, G. Battaglin et R. Polloni. Synthesis of silver clusters in silica-based glasses for optoelectronics applications. *Journal of Non-Crystalline Solids*, vol. 245, pp. 122-128, 1999.
- [46] I. Belharouak, C. Parent, B. Tanguy, G. L. Flem et M. Couzi. Silver aggregates in photoluminescent phosphate glasses of 'Ag₂O-ZnO-P₂O₅' system. *Journal of Non-Crystalline Solids*, vol. 244, pp. 238-249, 1999.
- [47] Y. Miyamoto, K. Kinoshita, S. Koyama, Y. Takei, H. Nanto, T. Yamamoto, M. Sakakura, Y. Shimotsuma, K. Miura et K. Hirao. Emission and excitation mechanism of radiophotoluminescent in Ag⁺-activated phosphate glass. *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. A*, vol. 619, pp. 71-74, 2010.
- [48] T. Yamamoto, D. Maki, F. Sato, Y. Miyamoto, H. Nanto et T. Iida. The recent investigations of radiophotoluminescence and its application. *Rad. Meas*, vol. 46, pp. 554-559, 2011.
- [49] Y. Miyamoto, T. Yamamoto, K. Kinoshita, S. Koyama, Y. Takei, H. Nanto, Y. Shimotsuma, M. Sakakura, K. Miura et K. Hirao. Emission mechanism of radiophotoluminescence in Ag-doped phosphate glass. *Rad. Meas*, vol. 45, pp. 546-549, 2010.
- [50] Chyoda Techno Glass Corporation. User's manual for reading module FGD-660 (ref : AS-04-21-0010-R0, 2008.
- [51] W. Jahn et W. Schumann. Glass for radiophotoluminescence dosimetry. U.S. Patent n° 4,204,976; 27 mai 1980.
- [52] J. Faerber. Microscope électronique à balayage, Microanalyse X par sonde électronique. Institut de Physique et Chimie de Matériaux de Strasbourg (IPCMS), 2004.
- [53] Q. Yang et L. R. Zhao. Characterization of nano-layered multilayer coatings using modified Bragg law. *Materials characterization*, vol. 59, pp. 1285-1291, 2008.
- [54] D. Mouhssine, A. Nourreddine, A. Nachab, A. Pape et F. Fernandez. A new environmental dosimeter with imaging plates for the fast neutron monitoring. *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B*, vol. 227, pp. 609-616, 2005.
- [55] Quantifier l'incertitude dans les mesures analytiques. http://www.lne.fr/publications/eurachem_guide_incertainite_fr.pdf.
- [56] Guide pour l'expression de l'incertitude de mesure. <http://www.bipm.org/fr/publications/guides/gum/html>.
- [57] Nombres, mesures et incertitudes. <http://media.eduscol.education.fr>.
- [58] K. Amgarou, M. Trocmé, M. J. Garcia-Fusté, M. Vanstalle, E. Baussan, A. Nourreddine et C. Domingo. Characterization of the neutron field from the ²⁴¹Am-Be isotopic source of the IPHC calibrator. *Radiat. Meas*, vol. 50, pp. 61-66, 2013.
- [59] International Commission on Radiological Protection. Conversion coefficients for use in

- radiological protection against external radiation. ICRP Publication 74.
- [60] Source pour l'étalonnage des moniteurs de contamination surfacique, type AM241. Certificat d'étalonnage N°CT/020169/02/0421.
- [61] A. Nachab. Etudes expérimentales et modélisations Monte Carlo de l'auto-absorption gamma et de la dosimétrie active par capteurs CMOS. Ph.D. thesis, Université Louis Pasteur, Strasbourg, France, 2003.
- [62] A. A. Mowlavi et R. Koochi-Fayegh. Determination of 4.438 MeV g-ray to neutron emission ratio from a ^{241}Am - ^9Be neutron source. *Applied Radiation and Isotopes*, vol. 60, pp. 959-962, 2004.
- [63] International Commission on Radiation Units and measurements. Measurement of dose equivalents from external photon and electron radiation. ICRU report 47, 1992.
- [64] B. Lommel, E. Pitt, A. Scharmann et S. Guldbackke. Fast neutron dosimetry by photoluminescence detection of proton recoil tracks in laser scanned RPL glasses. *Radiat. Prot. Dosim*, vol. 47, pp. 285-288, 1993.
- [65] K. Becker. Range and depth dose distribution of low energy charged particles in dosimeter glasses. 1st International Congress of the International Radiation Protection, Rome, 1969.
- [66] M. R. Schmorak. Nuclear data sheets of $A = 246-266$ (even). *Nuclear data Sheets*, vol. 57, pp. 515-629, 1989.
- [67] R. J. Gehrke, R. Aryaeinejad, J. K. Hartwell, W. Y. Yoon, E. Reber et J. R. Davidson. The g-ray spectrum of ^{252}Cf and the information contained within it. *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B*, vol. 213, pp. 10-21, 2004.
- [68] L. Makovicka, B. Barelaud, J. L. Decossas et J. C. Vareille. Detection of thermal neutrons by CR-39 using a boron implanted converter. *Radiat. Prot. Dosim*, vol. 23, pp. 191-194, 1988.
- [69] T. Tsuruta et M. Takagaki. Neutron dosimetry by the spark counting of tracks in boron-doped film. *Health. Phys*, vol. 43, pp. 705-713, 1985.
- [70] R. Bedogni, G. Gualdrini, A. Esposito, R. Mishra et S. Tripathy. Design and test of an albedo personal neutron dosimeter based on PADC detectors. *Radiat. Meas*, vol. 44, pp. 972-976, 2009.
- [71] S. Miljanic, M. Ranogajec-Komor, S. Blagus, J. K. Palfalvi, T. Pàzmàndi, S. Deme et P. Szànto. Response of radiophotoluminescent dosimeters to neutrons. *Radiat. Meas*, vol. 43, pp. 1068-1071, 2008.
- [72] D. S. McGregor, R. T. Klann, H. K. Gersch et Y. H. Yang. Thin-film-coated bulk GaAs detectors for thermal and fast neutron measurements. *Nucl. Inst. Meth. Phys. Res. A*, vol. 466, pp. 126-141, 2001.
- [73] D. S. McGregor, J. T. Lindsay et R. W. Olsen. Thermal neutron detection with cadmium_{1-x} zinc_x telluride semiconductor detectors. *Nucl. Inst. Meth. Phys. Res. A*, vol. 381, pp. 498-501, 1996.
- [74] R. Pannetier. Table des caractéristiques physiques et chimiques des éléments, nucléaires et radioactives de leurs isotopes, Tome II, 1980.
- [75] L. A. Currie. Limits for quantitative detection and quantitative determination : Application to radiochemistry. *Anal. Chem*, vol. 40, pp. 586-593, 1968.

Résumé :

Nous mettons au point un dosimètre passif capable de détecter les neutrons rapides et thermiques, destiné à la fois à la dosimétrie d'ambiance et personnelle. Ce dosimètre détecte les neutrons au moyen de convertisseurs appropriés (polyéthylène et cadmium). Cette étude s'est appuyée sur des simulations Monte Carlo, qui ont aidé à la conception géométrique du dosimètre et au choix des matériaux. La caractérisation expérimentale du dosimètre montre que les réponses à ces neutrons en termes de $H^*(10)$ et $H_p(10)$ sont linéaires, avec des seuils de détection de 2 mSv pour les neutrons rapides et de 0,19 mSv pour les neutrons thermiques. Les dépendances angulaires sont satisfaisantes selon les recommandations de la norme ISO 21909. Un facteur de calibration de $(9,5 \pm 0,5) \times 10^{-2}$ mSv.cm²/signal RPL a été obtenu pour les neutrons rapides de la source calibrée de ²⁴¹Am-Be de l'IPHC. Ce facteur est de $(9,7 \pm 0,3) \times 10^{-3}$ mSv.cm²/signal RPL pour les neutrons thermalisés.

Abstract :

We characterize a passive dosimeter capable of measuring both fast and thermal neutrons for ambient and personal dosimetry. These neutrons can be detected in a mixed neutron-gamma field with appropriate converters (polyethylene for fast neutrons, cadmium for thermal neutrons). Monte Carlo simulations with MCNPX helped with the geometrical conception of the dosimeter and the choice of materials. The responses of the RPL dosimeter to these neutrons are linear in $H^*(10)$ and $H_p(10)$ with detection limits of 2 mSv for fast neutrons and 0.19 mSv for thermal neutrons. The angular dependencies are satisfactory according to the ISO 21909 norm. A calibration factor of $(9.5 \pm 0.5) \times 10^{-2}$ mSv.cm²/ RPL signal is obtained to the fast neutrons of the IPHC's ²⁴¹Am-Be calibrator. This factor is $(9.7 \pm 0.3) \times 10^{-3}$ mSv.cm²/ RPL signal for the thermalized neutrons.

