



**HAL**  
open science

# Amélioration de la méthode de mesure de l'activité de dosimètres émetteurs de rayons X irradiés en réacteur nucléaire

Jonathan Riffaud

► **To cite this version:**

Jonathan Riffaud. Amélioration de la méthode de mesure de l'activité de dosimètres émetteurs de rayons X irradiés en réacteur nucléaire. Instrumentations et Détecteurs [physics.ins-det]. Université Paris Saclay (COMUE), 2018. Français. NNT : 2018SACLS225 . tel-02000988

**HAL Id: tel-02000988**

**<https://theses.hal.science/tel-02000988v1>**

Submitted on 1 Feb 2019

**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.

# Amélioration de la méthode de mesure de l'activité de dosimètres émetteurs de rayons X irradiés en réacteur nucléaire

Thèse de doctorat de l'Université Paris-Saclay  
préparée à l'Université Paris-Sud

École doctorale n°576 Particules Hadrons Énergie et Noyau :  
Instrumentation, Image, Cosmos et Simulation (Pheniics)  
Spécialité de doctorat: Imagerie médicale et Radioactivité

Thèse présentée et soutenue à Saclay, le 11 juillet 2018, par

**Jonathan Riffaud**

Composition du Jury :

Elias Khan Professeur, Université Paris-Sud (Institut de Physique Nucléaire)	Président
Gilles Ban Professeur, ENSI Caen (Laboratoire de Physique Corpusculaire)	Rapporteur
Olivier Sérot Directeur de Recherche, CEA Cadarache (SPRC/LEPh)	Rapporteur
Annick Billebaud Directrice de Recherche, CNRS Grenoble (Laboratoire de Physique Subatomique et de Cosmologie)	Examineur
Vincent Gressier Ingénieur, IRSN (SDOS/LMDN)	Examineur
Claire Michelet Maître de conférences, CENBG (IRIBio)	Examinatrice
Marie-Christine Lépy Directrice de Recherche, CEA Saclay (LNHB)	Directeur de thèse
Christophe Domergue Ingénieur, CEA Cadarache (SPESI/LDCI)	Invité



# Remerciements

Je tiens à adresser mes plus profonds et sincères remerciements aux personnes suivantes pour leur soutien, leur amitié et leur aide qui ont donné tout son sens à cette entreprise qu'est le doctorat :

En premier lieu à Loïc et Thierry, respectivement chefs du LNHB et du LMA lors de ma thèse.

À ma Directrice de thèse Marie Christine qui a également assuré la partie encadrement au LNHB, mais je ne pense pas qu'il y ait suffisamment de mots pour la remercier, pour m'avoir accueilli dans son équipe de recherche, pour m'avoir fourni un environnement de travail aussi stimulant et enrichissant, pour toute son aide, ses conseils, tout le temps qu'elle a su me consacrer malgré son emploi du temps chargé. Pour tous ces moments passés à discuter, sur un sujet scientifique ou non, à l'heure du thé, au SOLEIL ou en conférence. Enfin, pour son soutien jusqu'au dernier moment, pendant la difficile épreuve qu'est la rédaction du mémoire.

À Christophe Domergue, qui a assuré la partie encadrement sur le site du CEA-Cadarache au LDCI, je le remercie chaleureusement pour ses contributions à l'accomplissement de ce travail et pour le temps qu'il a consacré à nos discussions téléphoniques et visioconférences. Son aide et son soutien auront été d'une grande importance.

Aux membres du jury et plus particulièrement aux rapporteurs pour leurs retours et le temps qu'ils m'ont consacré.

À l'ensemble des personnes du pôle Spectro du LNHB, Laurine, Benoît, Sylvie et Yves pour leur apport sur le plan scientifique et technique ainsi que le temps qu'ils m'ont accordé lors du Round Robin, pour la mise en mesure des dosimètres.

À l'ensemble du pôle Source, leur assistance a été très précieuse pour de nombreuses expériences menées au cours de cette thèse. Merci à Valérie, Margot et Sophie pour leur aide apportée à la séparation chimique du Pd/Rh et à la pesée des dosimètres. À Isabelle, avec qui j'ai partagé mon bureau au cours des six premiers mois de ma thèse, et à Didier pour leur collaboration sur les tentatives de dissolution du rhodium.

À Philippe pour son concours sur les mesures du  $^{103m}\text{Rh}$ , assurant les mesures primaires de l'activité des sources. Merci pour ces conseils et pour avoir accepté de lire et corrigé mon mémoire.

Aux membres de la Cellule de Données Fondamentales, Xavier, Mark et Christophe. Notam-

ment, Christophe pour son aide précieuse en informatique et Mark pour toute son assistance concernant les données des radionucléides et sa maîtrise de l'anglais qui m'a été d'un grand secours.

Aux personnes qui m'ont apporté leur concours lors de mes travaux. Cheick, sur la simulation avec GEANT4 et son assistance afin de me servir du cluster du département. Jean pour la réception des sources radioactives au sein du labo.

À Christian, très aimable ancien SPR du LNHB, pour toute son aide, alors qu'elle sortait souvent du cadre de sa fonction portant sur la radioprotection du personnel.

À Hubert, qui travaille aujourd'hui au SERMA, pour sa coopération à l'irradiation des échantillons de Rhodium dans le réacteur ISIS et qui a, malgré lui, organisé le Round Robin, qui n'aurait certainement jamais eu lieu sinon.

À Olivier, du LARC à Cadarache, pour sa participation à la dissolution du rhodium.

À Jean-Michel, auparavant au LDCL, Christophe Destouches, Hervé, Jonathan et Nicolas, pour leur contribution tout au long de ma thèse.

À Paulo et Pascal, de la ligne Métrologie du synchrotron SOLEIL, pour tous les services qu'ils m'ont rendu.

Enfin, à l'ensemble des personnes travaillant au LNHB pour leur accueil et tous les bons moments passés au sein du laboratoire au cours de mon doctorat et à toutes les personnes du bâtiment 602, pour tous les instants partagés autour d'un café ou d'un pot. Ce sont trois merveilleuses années que je garderais en mémoire et dans un avenir immédiat, ces moments vont me manquer.

Pour finir, à mes amis et à mes parents qui m'auront apporté leur soutien et leur aide, notamment lors des derniers mois. Mes parents, pour l'amour sans limites dont ils m'ont entouré et l'éducation qu'ils m'ont donnée. Pour m'avoir poussé et encouragé à vivre mes passions et mes rêves.

# Table des matières

<b>1</b>	<b>Processus radioactifs et interactions photon-matière</b>	<b>13</b>
1.1	Décroissance radioactive et relaxation atomique . . . . .	13
1.1.1	Modes de désintégration . . . . .	13
1.1.2	Transition $\gamma$ . . . . .	15
1.1.3	Relaxation atomique . . . . .	18
1.1.4	Loi de décroissance radioactive . . . . .	24
1.1.5	Autres sources de photons . . . . .	26
1.2	Interactions photon-matière . . . . .	27
1.2.1	Effet photoélectrique . . . . .	28
1.2.2	Diffusion cohérente (Rayleigh) . . . . .	28
1.2.3	Diffusion incohérente (Compton) . . . . .	29
1.2.4	Création de paires . . . . .	30
1.2.5	Coefficients d'interaction . . . . .	31
1.2.6	Loi d'atténuation de Beer-Lambert . . . . .	33
1.3	Données et schémas de désintégration . . . . .	34
1.3.1	Schémas de désintégration . . . . .	34
1.3.2	Principales sources et évaluation des données . . . . .	34
1.3.3	Équilibrage du schéma de désintégration . . . . .	35
<b>2</b>	<b>Mesure de l'activité d'échantillons solides par spectrométrie X et <math>\gamma</math></b>	<b>37</b>
2.1	Chaîne d'acquisition . . . . .	37
2.1.1	Détecteurs à semi-conducteur . . . . .	38
2.1.2	Électronique pour la spectrométrie $\gamma$ . . . . .	39
2.1.3	Géométrie de mesure . . . . .	42
2.2	Étalonnage . . . . .	42
2.2.1	Sources étalons . . . . .	43
2.2.2	Étalonnage en énergie . . . . .	43
2.2.3	Étalonnage en résolution . . . . .	44
2.2.4	Étalonnage en rendement . . . . .	45
2.3	Facteurs de correction . . . . .	47
2.3.1	Correction de décroissance à la date de référence . . . . .	48
2.3.2	Correction de décroissance . . . . .	48
2.3.3	Correction d'atténuation . . . . .	48
2.3.4	Correction de géométrie . . . . .	48
2.3.5	Correction des coïncidences . . . . .	49
2.4	Traitement des spectres . . . . .	49

2.4.1	Description d'un spectre . . . . .	50
2.4.2	Traitement d'un pic . . . . .	51
2.4.3	Diffusion à basse énergie . . . . .	52
2.5	Mesure d'échantillons solides émetteurs de rayons X . . . . .	54
2.5.1	Étalonnage et sources étalons . . . . .	55
2.5.2	Correction d'auto-absorption et transfert de géométrie . . . . .	55
2.6	Incertitudes en spectrométrie $\gamma$ . . . . .	56
<b>3</b>	<b>Dosimètre niobium et rhodium</b>	<b>59</b>
3.1	Interactions neutron-matière . . . . .	59
3.1.1	Classification neutronique . . . . .	59
3.1.2	Types d'interactions . . . . .	60
3.1.3	Section efficace d'interaction . . . . .	61
3.2	Dosimètres niobium et rhodium . . . . .	63
3.2.1	Le niobium . . . . .	63
3.2.2	Le rhodium . . . . .	66
3.3	Fluorescence et auto-fluorescence . . . . .	69
3.4	Mesure d'activité des dosimètres . . . . .	70
3.4.1	Raccordement des étalons niobium de travail . . . . .	70
3.4.2	Mesure d'activité des dosimètres niobium . . . . .	71
3.4.3	Limite de la méthode « relative » de mesure d'activité . . . . .	72
<b>4</b>	<b>Dispositifs expérimentaux et étalonnage</b>	<b>75</b>
4.1	Spectromètres X du LNE-LNHB et du LDCI . . . . .	75
4.1.1	GENIX . . . . .	75
4.1.2	Voie X1 et Voie X2 . . . . .	78
4.2	Comparaison électroniques analogique et numérique . . . . .	79
4.2.1	Courte présentation du module de labZY . . . . .	79
4.2.2	Tests effectués sur le module . . . . .	81
4.3	Outils Monte Carlo . . . . .	90
4.3.1	GEANT4 . . . . .	90
4.3.2	PENELOPE . . . . .	91
4.3.3	PENNUC . . . . .	92
4.4	Étalonnage en rendement des détecteurs . . . . .	94
4.4.1	Étalonnage expérimental . . . . .	95
4.4.2	Ajustement des points expérimentaux . . . . .	99
4.4.3	Calcul du rendement de détection par méthode Monte Carlo . . . . .	102
4.4.4	Modèles semi-empiriques . . . . .	109
4.4.5	Essais sur la Voie X2 de MADERE . . . . .	114
4.4.6	Comparaison entre PENELOPE et GEANT4 . . . . .	115
4.4.7	Scan de GENIX . . . . .	116
4.4.8	Second étalonnage de GENIX . . . . .	119
<b>5</b>	<b>Facteurs de correction</b>	<b>127</b>
5.1	Transfert de rendement . . . . .	127
5.1.1	Méthodes de transfert . . . . .	127

5.1.2	Application aux dosimètres . . . . .	128
5.2	Diffusion . . . . .	129
5.2.1	Origine de la traîne basse énergie . . . . .	130
5.2.2	Traîne de diffusion dans le calcul de la surface . . . . .	131
5.2.3	Proposition d'une méthode de correction de la diffusion . . . . .	135
5.3	Coefficients de fluorescence . . . . .	137
5.3.1	Problématique liée au phénomène de fluorescence . . . . .	137
5.3.2	Correction de fluorescence . . . . .	137
5.3.3	Cas des dosimètres niobium . . . . .	139
5.3.4	Cas des dosimètres rhodium . . . . .	151
<b>6</b>	<b>Données fondamentales et schémas de désintégration</b>	<b>155</b>
6.1	Mesure des rendements de fluorescence K . . . . .	155
6.1.1	Description de SOLEIL et de la ligne de métrologie . . . . .	156
6.1.2	Sélection de l'énergie . . . . .	157
6.1.3	Choix des cibles et critère sur l'épaisseur . . . . .	158
6.1.4	Mesure des coefficients d'atténuation massique . . . . .	159
6.1.5	Rendements de fluorescence . . . . .	161
6.2	Mesure de radioactivité par scintillation liquide . . . . .	169
6.2.1	Scintillation liquide . . . . .	169
6.2.2	Méthode RCTD . . . . .	170
6.3	Mesure des intensités d'émission des rayons XK du $^{103m}\text{Rh}$ . . . . .	172
6.3.1	Choix de la source radioactive . . . . .	172
6.3.2	Mesures par activation du rhodium . . . . .	174
6.3.3	Mesures à partir d'une source de $^{103}\text{Pd}$ . . . . .	189
6.4	Mesures supplémentaires . . . . .	199
6.4.1	Périodes radioactives . . . . .	199
6.4.2	Résultats supplémentaires sur les intensités d'émission . . . . .	202
<b>A</b>	<b>Données de décroissance du <math>^{133}\text{Ba}</math></b>	<b>224</b>
<b>B</b>	<b>Certificat d'étalonnage de l'<math>^{241}\text{Am}</math></b>	<b>233</b>
<b>C</b>	<b>Certificats de pureté des lots de niobium et rhodium utilisés pour la dosimétrie en réacteur</b>	<b>236</b>
<b>D</b>	<b>Diagrammes et probabilités de réarrangements</b>	<b>244</b>



# Introduction

Selon la définition du Vocabulaire International de Métrologie [1], la métrologie est la « science des mesurages et ses applications ». Elle est coordonnée au niveau international par le Bureau International des Poids et Mesures (BIPM), installé à Paris, qui a pour mission « d'assurer l'unification mondiale des mesures physiques et d'assurer leur traçabilité au Système international d'unités (SI) » [2]. La métrologie internationale est divisée en plusieurs organisations régionales associant de nombreux laboratoires nationaux de métrologie. Ces organisations assument un grand nombre de missions différentes, dont l'organisation d'intercomparaisons pour le maintien des références. L'organisation régionale regroupant les laboratoires nationaux de métrologie en Europe est l'European Association of Metrology Institutes (EURAMET) [3]. En France, en 1949 est créé la SMR (Section de Mesure des Radioéléments) dans le contexte du premier réacteur expérimental français Zoé, au fort de Châtillon, qui sera ensuite désigné comme le Laboratoire de Mesure des Radioéléments puis le Laboratoire de Métrologie des Rayonnements Ionisants (LMRI). En 1969, sous l'impulsion du Bureau National de Métrologie (BNM), le LMRI, du Commissariat à l'Énergie Atomique est désigné comme laboratoire national dans le domaine des rayonnements ionisants. En 1999, le LMRI change d'identité au sein du CEA, et devient le Laboratoire National Henri Becquerel (LNHB) [4]. Le 25 janvier 2005, le Laboratoire National de métrologie et d'Essais (LNE) remplace le BNM [5]; il a pour rôle de coordonner et piloter la métrologie française et fédère ainsi neuf laboratoires, dont le LNHB. La principale mission confiée à ce dernier est la réalisation de références dans le domaine des rayonnements ionisants. Le périmètre du LNHB inclut les mesures de radioactivité (activité de sources radioactives exprimée en becquerel ou autres unités dérivant du becquerel), de débit d'émission de source neutronique (en  $s^{-1}$ ) et la dosimétrie des photons et particules chargées : la dose absorbée et le kerma dans l'air, ainsi que les équivalents de dose respectivement exprimés en gray (Gy) et sievert (Sv). Le Laboratoire de Métrologie de l'Activité (LMA) est en charge de la métrologie primaire pour la mesure d'activité et du transfert des références vers les laboratoires d'étalonnage secondaires et les utilisateurs des domaines d'application tels que : la médecine nucléaire, l'industrie nucléaire ou la surveillance de l'environnement. Les ressources du LMA incluent la préparation de sources radioactives et la réalisation de mesures primaires ainsi que secondaires qui sont adaptées aux différents états physiques que peuvent revêtir les radionucléides, à leur période radioactive et à leur schéma de désintégration. Le LNHB a pour mission de répondre aux besoins des utilisateurs, en particulier en termes de données de désintégrations. C'est le rôle de la Cellule de Données Fondamentales qui est en charge de l'évaluation de données nucléaires et atomiques associées à la désintégration des radionucléides ainsi que de leur publication.

L'interaction des neutrons avec la matière n'est pas sans effet sur celle-ci, ses propriétés ayant tendance à être modifiées sous un bombardement d'une source intense de ces particules. Lors

d'une réaction de fission nucléaire, des neutrons sont émis et, dans le cas de réactions en chaîne, comme dans le cœur des réacteurs nucléaires, cette émission peut être très intense [6]. Par exemple, les propriétés des matériaux de la cuve d'un réacteur évoluent sous l'effet de l'irradiation des neutrons. Ainsi, dès la construction des premiers réacteurs, les neutrons ont fait l'objet de mesures visant à estimer leur population au cours des divergences. Dans le cas du parc des centrales nucléaires français, leur suivi est effectué par dosimétrie en réacteur, qui consiste à évaluer le flux de neutrons dans le cœur du réacteur. Plus les neutrons ont une énergie élevée et plus les dommages sur les matériaux sont importants. Depuis plus d'une trentaine d'années, le seuil de 1 MeV a été retenu pour désigner l'énergie à partir de laquelle les dégâts sont les plus élevés. Depuis, de nombreuses méthodes permettent de remonter efficacement au flux neutronique d'énergie supérieure à 1 MeV, et de plus en plus pour des énergies inférieures à ce seuil. Ainsi, actuellement, de nombreux moyens permettent d'évaluer le spectre neutronique dans le domaine d'énergie des neutrons thermiques et rapides [7]. Par contre, ce n'est pas le cas des neutrons situés dans le domaine d'énergie épithermique (situés entre le domaine thermique et rapide) [8]. Les différentes techniques de mesure peuvent être classées en trois grandes catégories :

- Détection neutronique en ligne : l'information est enregistrée directement, par exemple avec une chambre à fission ;
- Détection neutronique par activation : l'information est obtenue par des mesures consécutives à l'irradiation ;
- Détection neutronique par des méthodes alternatives.

La cas de la détection neutronique par activation consiste à insérer une cible métallique dans un emplacement du réacteur qui reçoit un certain flux neutronique durant un temps d'irradiation défini. Cette cible est appelée « dosimètre » et celui-ci est constitué de métaux de très grande pureté ou d'alliages dont la composition est parfaitement connue. La forme des dosimètres est plus généralement celle d'un fil ou d'un disque. La réponse d'un dosimètre au flux de neutrons est choisie selon sa composition et correspond à une région d'énergie bien définie, qui dépend de la section efficace d'interaction. Ces dosimètres sont utilisés soit dans le but de comparer les résultats avec un code de calcul d'activation, soit pour reconstruire le spectre neutronique correspondant à l'emplacement du dosimètre. Dans le cas d'un réacteur du parc nucléaire français, réacteurs de puissance (EDF) ou de recherche (OSIRIS par exemple), les dosimètres sont envoyés au Laboratoire de Dosimétrie, Capteurs et Instrumentation (LDCI, CEA/DER) pour les mesures ainsi que l'interprétation des résultats. Le tableau 1 présente un ensemble de matériaux couramment utilisés en dosimétrie en réacteur, avec les réactions d'intérêts correspondantes. Consécutivement à l'irradiation, les dosimètres sont radioactifs et la valeur d'activité permet de remonter aux informations du spectre neutronique, mesure effectuée le plus souvent par spectrométrie X et  $\gamma$ . La valeur de l'activité  $A$  (en Bq) d'un dosimètre est relié au débit de fluence neutronique  $\Phi$  ( $\text{cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$ ) par la relation suivante [9] :

$$A(t = t_{irrad} + t_{refroid}) = N_0 \sigma \Phi (1 - e^{-\lambda t_{irrad}}) e^{-\lambda t_{refroid}} \quad (1)$$

où  $\sigma$  est la section efficace microscopique de la réaction d'intérêt,  $N_0$  le nombre de noyaux de l'isotope dans la cible,  $\lambda$  la constante radioactive du radioisotope activé,  $t_{irrad}$  la durée de l'irradiation et  $t_{refroid}$  est la durée qui s'écoule entre la fin de l'irradiation et le début des mesures (temps de refroidissement).

Les dosimètres niobium et rhodium sont très importants pour la dosimétrie en réacteur [10], [11] et [12] : le niobium fournit des informations sur les neutrons à partir de 1,2 MeV, énergie à laquelle les neutrons provoquent le plus de dégâts sur les matériaux, et les dosimètres rhodium sont actuellement les seuls capables de fournir des informations sur les neutrons dont l'énergie est située vers la fin du domaine épithermique (seuil à environ 0,7 MeV).

Alors que l'ensemble des dosimètres peuvent être mesurés par spectrométrie  $\gamma$  classique, la mesure des dosimètres niobium et rhodium s'effectue par spectrométrie de photons de basse énergie, plus complexe que la première. En effet, le  $^{93m}\mathbf{Nb}$  et le  $^{103m}\mathbf{Rh}$  possèdent des émissions photoniques dont l'énergie est comprise entre 16 et 23 keV. Actuellement, leurs activités sont fournies avec des incertitudes supérieures à 6 % (à  $k=2$ ). De plus, les résultats expérimentaux obtenus à partir des dosimètres rhodium présentent des écarts relatifs d'environ 8 % en moyenne par rapport aux calculs des codes de neutronique et, que ce soit l'expérimental ou les simulations, dans les deux cas les résultats sont obtenus avec de grandes incertitudes ( $> 8$  % à  $k=2$ ) [13].

C'est dans ce contexte que le LDCI a engagé une collaboration avec le LNHB avec comme objectif principal d'améliorer la méthode de mesure d'échantillons solides émetteurs de rayons X, qui est l'objet de cette thèse. Les trois premiers chapitres de ce mémoire sont consacrés à la partie théorique en rappelant les différents processus liés à la radioactivité, l'interaction photon-matière, les différentes informations liées à la spectrométrie de photons, l'interaction neutron-matière ainsi que les particularités liées aux mesures d'activité des dosimètres niobium et rhodium, rappels permettant une compréhension optimale de la suite du mémoire. Le chapitre 4 présente les dispositifs expérimentaux et détaille l'étalonnage des détecteurs qui constitue une étape clé pour l'analyse des résultats expérimentaux. Les facteurs de corrections inhérents aux mesures des dosimètres sont présentés dans le chapitre 5. Le sixième chapitre présente l'ensemble des mesures expérimentales avec les résultats pour les facteurs correctifs pour les mesures de niobium et les données du schéma de désintégration du  $^{103m}\mathbf{Rh}$ , ainsi que quelques informations supplémentaires obtenues pour le  $^{103}\mathbf{Pd}$ . Ce manuscrit se termine avec un chapitre de conclusions et de perspectives.

Matériau du dosimètre	Réaction d'intérêt	Domaine d'énergie	Période du radioisotope
Au	$^{197}\text{Au}(n,\gamma)^{198}\text{Au}$	th + épith	2,7 d
Co	$^{59}\text{Co}(n,\gamma)^{60}\text{Co}$	th + épith	5,27 a
Ag	$^{109}\text{Ag}(n,\gamma)^{110m}\text{Ag}$	th + épith	249,8 d
In	$^{115}\text{In}(n,\gamma)^{116m}\text{In}$	th + épith	54,3 min
Sn	$^{117}\text{Sn}(n,n')^{117m}\text{Sn}$	$\geq 0,3$ MeV	13,6 d
Rh	$^{103}\text{Rh}(n,n')^{103m}\text{Rh}$	$\geq 0,7$ MeV	56,115 min
Nb	$^{93}\text{Nb}(n,n')^{93m}\text{Nb}$	$\geq 1,0$ MeV	16,12 a
In	$^{115}\text{In}(n,n')^{115m}\text{In}$	$\geq 1,1$ MeV	4,5 h
Ni	$^{58}\text{Ni}(n,p)^{58}\text{Co}$	$\geq 2,1$ MeV	71 d
Fe	$^{54}\text{Fe}(n,p)^{54}\text{Mn}$	$\geq 2,3$ MeV	312 d
Zn	$^{64}\text{Zn}(n,p)^{64}\text{Cu}$	$\geq 2,8$ MeV	12,7 h
Ti	$^{46}\text{Ti}(n,p)^{46}\text{Sc}$	$\geq 3,7$ MeV	83,8 d
Cu	$^{63}\text{Cu}(n,\alpha)^{60}\text{Co}$	$\geq 4,7$ MeV	5,27 a
Fe	$^{56}\text{Fe}(n,p)^{56}\text{Mn}$	$\geq 5,4$ MeV	2,6 h
Ti	$^{48}\text{Ti}(n,p)^{48}\text{Sc}$	$\geq 5,9$ MeV	43,6 h
Al	$^{27}\text{Al}(n,\alpha)^{24}\text{Na}$	$\geq 6,4$ MeV	15 h
Mg	$^{24}\text{Mg}(n,p)^{24}\text{Na}$	$\geq 6,5$ MeV	15 h
V	$^{51}\text{V}(n,\alpha)^{48}\text{Sc}$	$\geq 11,4$ MeV	43,6 h

Tableau 1 – Liste de dosimètres couramment utilisés ainsi que leur sensibilité énergétique aux neutrons [14]

# Chapitre 1

## Processus radioactifs et interactions photon-matière

Lors de la mesure de radioactivité, il est impossible de mesurer directement la désintégration d'un radionucléide. Ce sont les interactions, dans le détecteur, des particules émises lors de la désintégration qui permettent d'évaluer le niveau de radioactivité. Pendant la mesure, un certain nombre de photons sont émis par le radionucléide et seulement une fraction du nombre total d'entre eux interagissent dans le détecteur. Le principe de la spectrométrie de photons est d'interpréter le résultat de ces interactions pour remonter à la valeur d'activité de la source, à l'aide notamment des données des schémas de désintégration propre à chaque radionucléide. Ce chapitre présente un rappel sur les définitions des différents phénomènes liés à la désintégration radioactive et aux interactions photon-matière.

### 1.1 Décroissance radioactive et relaxation atomique

Suite à la désintégration d'un radionucléide, le processus s'accompagne de l'émission d'au moins une particule primaire et l'atome se retrouve la plupart du temps dans un état excité. Plusieurs processus sont alors possibles pour lui permettre d'atteindre un état plus stable. De même, le cortège électronique se retrouve dans un état instable. Il s'ensuit alors une cascade de désexcitations lors du processus de relaxation atomique.

#### 1.1.1 Modes de désintégration

Sont présentés ici les principaux modes de désintégration radioactive  $\alpha$ ,  $\beta$  et par capture électronique,  $\varepsilon$ . Il en existe d'autres comme la fission spontanée, l'émission de neutrons ou de protons, la désintégration double  $\beta$ , etc. Cependant, ces modes de désintégration n'ont pas été rencontrés dans le cadre de ce travail de thèse et ne seront donc pas développés ici.

#### Désintégration $\alpha$

Ce type de désintégration se rencontre très majoritairement dans le cas des éléments lourds et se caractérise par l'émission d'une particule  $\alpha$ , un noyau d'hélium-4. Lors de cette désintégration, le numéro atomique  $Z$  du nucléide père diminue de 2 et son nombre de masse  $A$  de 4 :

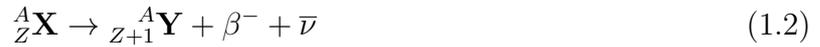


Où  $X$  est le nucléide père et  $Y$  le nucléide fils. La quasi-totalité de l'énergie de réaction est emportée par la particule  $\alpha$ , le reste correspondant à l'énergie du niveau excité (dans le cas où le nucléide fils est dans un état d'énergie supérieure à l'état fondamental) et à l'énergie du noyau de recul, qui est généralement aux environs de 300 keV.

### Désintégration $\beta$

Il s'agit de la forme de désintégration la plus courante. C'est une transition isobarique : le numéro atomique  $Z$  de l'élément change mais le nombre de masse  $A$  est conservé. Lors de cette désintégration, un électron (désintégration  $\beta^-$ ) ou un positron (désintégration  $\beta^+$ ) est émis ainsi qu'un anti-neutrino ou un neutrino, respectivement. L'énergie de la transition  $\beta$  est partagée entre l'électron (ou positron), l'anti-neutrino (ou neutrino) et le noyau de recul (très faible cependant) ce qui conduit à un spectre continu d'émission  $\beta$  dont la forme dépend de la nature de la transition.

**Désintégration  $\beta^-$  :** Il s'agit du type de désintégration où un électron et un anti-neutrino sont émis, avec une transformation du noyau :



Où  $\bar{\nu}$  désigne l'anti-neutrino.

**Désintégration  $\beta^+$  :** Lors de cette désintégration un positron et un neutrino sont émis :



Où  $\nu$  désigne le neutrino. La désintégration  $\beta^+$  ne peut avoir lieu que si l'énergie de réaction  $Q$  est supérieure à 1,022 MeV. Elle est toujours en compétition avec la capture électronique.

**Classification des transitions  $\beta$  :** Le spectre d'émission des particules  $\beta$  dépend de la nature de la transition : Permise (en anglais *Allowed*), Interdite unique (*Forbidden unique*) ou Interdite non-unique (*Forbidden non-unique*). La nature de la transition est déterminée par deux paramètres :

- La différence entre les nombres quantiques du moment angulaire total de l'état initial  $J_i$  et final  $J_f$  du noyau :  $\Delta J = |J_i - J_f|$  ;
- Le changement de parité entre l'état initial  $\pi_i$  et final  $\pi_f$  :  $\pi_i\pi_f$ , qui équivaut à +1 si la parité reste inchangée et -1 s'il y a changement de parité lors de la décroissance.

Les transitions sont classifiées comme détaillé dans le tableau 1.1.

### Capture électronique $\epsilon$

Contrairement à la désintégration  $\beta^+$ , la capture électronique n'est pas une réaction à seuil, elle peut se produire quelle que soit l'énergie de réaction. Dans ce processus, c'est un électron d'une des couches internes de l'atome, la couche K le plus souvent, qui est capturé par le noyau :



Nature de la transition	Ordre d'interdiction	$\Delta J$	$\pi_i \pi_f$
Permise	0	0, 1	+1
Interdite unique	1	$\pm 2$	-1
	2	3	+1
	3	4	-1
	4	5	+1
	$(\Delta J - 1)$	$> 1$	$(-1)^{\Delta J - 1}$
Interdite non-unique	1	0, 1	-1
	2	2	+1
	3	3	-1
	4	4	+1
	$\Delta J$	$> 1$	$(-1)^{\Delta J}$

Tableau 1.1 – Classification des transitions  $\beta$  [15]

On note  $P_X$ , la probabilité de capture d'un électron dans la couche  $X$  (où  $X = K, L, M$ , etc.). Dans le cas de cette désintégration, l'émission du neutrino est mono-énergétique. À la suite de la transition, une lacune est créée dans une couche électronique. Il s'ensuit alors une émission de rayons  $X$  et/ou d'électrons Auger dont les mécanismes seront expliqués dans la section 1.1.3.

### 1.1.2 Transition $\gamma$

Le spectre du rayonnement électromagnétique est conventionnellement découpé en plusieurs types d'ondes électromagnétiques dont la distinction se fait majoritairement selon l'énergie, ou la longueur d'onde, ou la fréquence de l'onde (photon) : ondes radio, micro-ondes, infrarouges, etc. Dans le domaine des hautes énergies, les photons sont nommés rayonnements  $X$  ou  $\gamma$  dont la distinction se fait non pas à partir de l'énergie mais à partir de l'origine du rayonnement. Si l'émission électromagnétique est d'origine électronique, l'onde est appelée rayon  $X$ , et si elle est d'origine nucléaire, l'onde est appelée rayon  $\gamma$ . En général, les rayons  $\gamma$  ont une énergie supérieure à celle des rayons  $X$ . Dans le cadre de la désintégration radioactive, la transition gamma recouvre deux processus distincts qui génèrent directement ou indirectement ces deux types de photons : l'émission  $\gamma$  et la conversion interne.

### Émission $\gamma$

À la suite d'une désintégration radioactive,  $\alpha$  ou  $\beta$  par exemple, le noyau fils résultant du processus de désintégration peut se retrouver dans un état excité. À chaque niveau d'énergie correspond un nombre quantique du moment angulaire total  $J$ , qui résulte de la configuration des nucléons à l'intérieur du noyau. En effet, comme les électrons, les protons et les neutrons sont arrangés selon des couches dans le noyau. Les états nucléaires, chacun défini par une configuration collective spécifique des nucléons, suivent donc un schéma de niveaux énergétiques propres à chaque radionucléide. Lorsque le noyau se désexcite vers un niveau d'énergie inférieure, qui peut être ou non l'état fondamental, cela modifie son moment angulaire total et provoque une modification de la configuration des nucléons dans le noyau. Lors de cette reconfiguration du noyau, la différence d'énergie et de moment angulaire total est emportée par un photon  $\gamma$ .

L'énergie de l'émission  $E_\gamma$  correspond ainsi à la différence entre les énergies du niveau initial  $E_i$  et du niveau final  $E_f$  de la transition :

$$E_\gamma = E_i - E_f(-E_r) \quad (1.5)$$

Où  $E_r$  est l'énergie de recul du noyau. Ce terme est négligeable, il ne dépasse pas dans la très grande majorité des cas quelques dizaines d'eV et il s'agit de situations où l'énergie de l'émission  $\gamma$  est supérieure à 1 MeV.

### Durée de vie des niveaux nucléaires

Les niveaux d'énergie excités ne sont pas stables et la durée de vie de chaque niveau dépend de plusieurs paramètres : le numéro atomique, l'énergie de la transition et sa multipolarité. La durée de vie peut varier de  $10^{-14}$  seconde à plusieurs années, cependant, pour la majorité des niveaux, elle est inférieure à  $10^{-12}$  seconde. Mais il arrive que dans certains cas, elle soit suffisamment longue pour être mesurable. On dit alors que le niveau excité du noyau est un état isomérique, ou encore métastable (état d'équilibre instable). L'état isomérique est ainsi indiqué par un petit « m » à la suite du nombre de masse du nucléide et dans ce cas on indique la période du niveau et non sa durée de vie (voir paragraphe 1.1.4), comme pour le  $^{99m}\text{Tc}$  (6 h), le  $^{93m}\text{Nb}$  (16,12 a), le  $^{103m}\text{Rh}$  (56,115 min) ou le  $^{125m}\text{Te}$  (57,4 j) (pour les périodes voir [16]), tous se désexcitant par ce que l'on appelle une transition isomérique.

### Conversion interne

L'émission d'un rayonnement  $\gamma$  n'est pas la seule voie de désexcitation d'un noyau excité, il existe également le processus de conversion interne. La probabilité d'une transition  $\gamma$  est :

$$P_\gamma = I_{ce} + I_\gamma = 1 \quad (1.6)$$

Où  $I_{ce}$  et  $I_\gamma$  sont respectivement les intensités d'émission des électrons de conversion et d'émission  $\gamma$ . Le processus de création de paires internes pour les énergies supérieures à 1,022 MeV est négligé ici, car sa probabilité est de l'ordre de  $10^{-3}$ - $10^{-4}$  [15]. Dans le cas où l'énergie de la transition  $\gamma$  n'est pas émise sous forme d'un photon, c'est un électron d'une des couches de l'atome qui est éjecté et emporte l'énergie de la transition. Celui-ci est alors appelé électron de conversion et son émission est mono-énergétique :

$$E_{ce_X} = E_\gamma - E_X \quad (1.7)$$

Où  $E_{ce_X}$  est l'énergie de l'électron de conversion de la couche électronique X et  $E_X$  est l'énergie de liaison de cette couche. On définit ainsi le coefficient de conversion total par :

$$\alpha_T = \frac{I_{ce}}{I_\gamma} \quad (1.8)$$

Et les coefficients de conversion dans les différentes couches électroniques par :

$$\alpha_K = \frac{I_{ceK}}{I_\gamma}, \alpha_L = \frac{I_{ceL}}{I_\gamma}, \alpha_M = \frac{I_{ceM}}{I_\gamma}, \text{ etc.} \quad (1.9)$$

On a ainsi :  $\alpha_T = \alpha_K + \alpha_L + \alpha_M + \text{etc.}$ ,  $\alpha_L = \alpha_{L_1} + \alpha_{L_2} + \alpha_{L_3}$  (où  $L_i$  est la sous-couche de la couche L, voir le tableau 1.3) et de même pour les autres couches électroniques. Des équations (1.6), (1.8) et (1.9), on obtient alors les relations suivantes :

$$I_{ce} = \frac{\alpha_T}{1 + \alpha_T} P_\gamma \quad (1.10)$$

$$I_\gamma = \frac{1}{1 + \alpha_T} P_\gamma \quad (1.11)$$

$$I_{ce_X} = \frac{\alpha_X}{1 + \alpha_T} P_\gamma \text{ avec } X = K, L, M, \text{ etc.} \quad (1.12)$$

Où  $I_{ce_X}$  est l'intensité d'émission d'électrons de conversion provenant de la couche X. La valeur des coefficients de conversion interne est influencée par le numéro atomique du noyau, l'énergie et la multipolarité de la transition.

## Multipolarité

Comme il a été expliqué précédemment, les protons et les neutrons n'occupent que certains niveaux d'énergie à l'intérieur du noyau. Une transition  $\gamma$  correspond à un changement de la configuration des nucléons au sein du noyau. Il existe deux types de transitions, *électrique* et *magnétique*, qui peuvent être classées en plusieurs ordres en fonction du moment angulaire orbital  $L$ , emporté par le photon lors de la transition. Pour  $J_i$  et  $J_f$ , les nombres quantiques du moment angulaire total du niveau initial et du niveau final, la relation entre les moments orbitaux donne :

$$|J_i - J_f| \leq L \leq |J_i + J_f| \quad (1.13)$$

Le plus souvent  $L = |J_i - J_f|$ , mais il peut y avoir une compétition avec  $L = |J_i - J_f| + 1$  et plus rarement avec  $L = |J_i - J_f| + 2$ . Si  $L = 0$ , on parle de transition monopolaire, si  $L = 1$  dipolaire,  $L = 2$  quadripolaire, etc.

De la distribution des charges contenues dans le noyau, les protons, résulte un dipôle électrique. Dans ce cas, pour l'émission  $\gamma$ , on parle de transition électrique,  $E$ , qui est due à l'oscillation des charges électriques, et le changement de parité est  $(-1)^L$ . Ainsi suivant la valeur de  $L$  et du changement de parité, la transition est notée E1, E2, E3, E4, etc. Le moment magnétique nucléaire résulte des spins des protons et neutrons au sein du noyau et peut être modifié lors de la transition  $\gamma$ . Dans ce cas on parle de transition magnétique  $M$ , le changement de parité est  $(-1)^{L+1}$ . Ainsi suivant la valeur de  $L$  et du changement de parité, la transition est notée M1, M2, M3, M4, etc. Une transition  $\gamma$  peut être un mélange de deux transitions multipôles, par exemple  $y\%M1 + x\%E2$ . Un mélange est caractérisé par  $\delta^2 = E2/M1$  qui est le rapport de la probabilité de la transition E2 sur celle de la transition M1. La classification des transitions  $\gamma$  et les mélanges possibles sont présentés dans le tableau 1.2. L'ordre de la multipolarité de la transition a une influence sur la période des niveaux excités du noyau ainsi que sur la valeur des coefficients de conversion. Plus la multipolarité est élevée plus ces derniers sont importants, et il en va de même pour la période.

$L =  J_i - J_f $	$\pi_i/\pi_f = -1$		$\pi_i/\pi_f = +1$	
	Transition	Mélange possible	Transition	Mélange possible
0(0 → 0)	Interdite		Interdite	
0(1/2 → 1/2)	E1		M1	
0(1 → 1)	E1	M2	M1	E2
1	E1	M2	M1	E2
2	M2	E3	E2	M3
3	E3	M4	M3	E4
4	M4	E5	E4	M5
L pair ( $J_i$ ou $J_f = 0$ )	ML		EL	
L impair ( $J_i$ ou $J_f = 0$ )	EL		ML	

Tableau 1.2 – Classification des transitions  $\gamma$  [15]

### 1.1.3 Relaxation atomique

Lors de la désintégration d'un radionucléide et de la désexcitation du noyau fils, il est fortement probable que le cortège électronique ait été perturbé et qu'il se retrouve dans un état excité. Un électron d'une couche électronique proche du noyau a pu être éjecté ou capturé et une vacance est ainsi créée. Un électron d'une couche d'un niveau d'énergie supérieure va alors venir combler cette lacune. Ce phénomène de désexcitation (ou relaxation) va s'accompagner de deux types d'émissions : radiative ou non-radiative. L'émission résultant de la désexcitation est alors mono-énergétique, et son énergie correspond à la différence d'énergie des deux couches électroniques entre lesquelles a lieu la transition atomique.

#### Processus de création d'une vacance dans une couche électronique

Plusieurs processus peuvent être à l'origine de la création d'une lacune dans une des couches électroniques de l'atome. Pour les cas internes à l'atome, l'ionisation est due à la désintégration et aux processus subséquents, pour les cas externes, elle est due à l'environnement.

**Processus internes :** Ils résultent de la désintégration d'un radionucléide ou d'une transition isomérique, cette ionisation fait suite à une capture électronique ou à une conversion interne. La probabilité de capture d'un électron de la couche K est généralement plus élevée que pour les autres couches électroniques. Dans le cas de la conversion interne, les probabilités d'une conversion dans les couches K et L sont les plus élevées [17].

**Processus externes :** Si les rayonnements d'une source externe ont une énergie supérieure à l'énergie de liaison de l'électron de sa couche, celui-ci en sera éjecté. L'ionisation peut être provoquée par un photon, on parle de photoionisation, ou par une particule chargée (électron, proton, etc.) ou même par un autre atome. Deux processus peuvent être la cause d'une photoionisation : l'effet photo-électrique et l'effet Compton qui sont décrits dans la section 1.2. Pour ce qui est de l'ionisation par une particule chargée, les principales interactions sont des

collisions élastiques et inélastiques, le freinage ou l'annihilation matière-antimatière (voir par exemple la documentation de PENELOPE [18]).

### Organisation de la structure électronique dans l'atome

Selon la description quantique de l'atome, les électrons du cortège électronique occupent des orbitales liées, ou couches électroniques, dont les niveaux d'énergie sont discrets. Ces orbitales sont identifiées par le nombre quantique principal  $n$  : K pour  $n = 1$ , L pour  $n = 2$ , M pour  $n = 3$ , etc. Les orbitales électroniques sont également définies par le nombre quantique azimutal  $l$ , correspondant au moment orbital  $L$  de l'électron, avec  $l \leq n - 1$  (il est noté s pour  $l = 0$ , p pour  $l = 1$ , d pour  $l = 2$ , etc.), par le nombre quantique magnétique  $m$ , correspondant au moment magnétique de l'électron, où  $-l \leq m \leq l$ , ainsi que par le spin de l'électron  $s$  ( $= \pm 1/2$ ) et par le moment cinétique total  $j = l + s$ . Les couches électroniques et les différentes sous-couches sont nommées à partir des valeurs de  $n$  et de  $l$  (1s pour la couche K, 2s et 2p pour la couche L, etc.). En spectrométrie de rayons X, la notation créée par Siegbahn est souvent utilisée pour la dénomination des couches et sous-couches électroniques, elle est indiquée dans le tableau 1.3, qui synthétise le nom des couches  $X_i$ , où  $X$  représente le nombre quantique principal et  $i$  l'ordre des sous-couches dans une couche principale. Lorsqu'une vacance est créée dans une des couches (ou sous-couches) selon l'un des processus d'ionisation décrits dans le paragraphe 1.1.3, plusieurs transitions peuvent avoir lieu. Par exemple, si la lacune est créée dans la couche K et que l'électron qui vient la combler provient de la couche L<sub>1</sub>, on note la transition K-L<sub>1</sub>. L'électron, lorsqu'il passe d'une couche à une autre, perd de l'énergie sous forme de rayonnement électromagnétique, transition radiative, ou transférée à un autre électron d'une orbitale, transition non-radiative.

n	l	j	nl <sub>j</sub>	Notation de Siegbahn	Nombre d'électrons par couche
⋮	⋮	⋮	⋮	⋮	⋮
4	3	7/2	4f <sub>7/2</sub>	N <sub>7</sub>	8
4	3	5/2	4f <sub>5/2</sub>	N <sub>6</sub>	6
4	2	5/2	4d <sub>5/2</sub>	N <sub>5</sub>	6
4	2	3/2	4d <sub>3/2</sub>	N <sub>4</sub>	4
4	1	3/2	4p <sub>3/2</sub>	N <sub>3</sub>	4
4	1	1/2	4p <sub>1/2</sub>	N <sub>2</sub>	2
4	0	1/2	4s <sub>1/2</sub>	N <sub>1</sub>	2
3	2	5/2	3d <sub>5/2</sub>	M <sub>5</sub>	6
3	2	3/2	3d <sub>3/2</sub>	M <sub>4</sub>	4
3	1	3/2	3p <sub>3/2</sub>	M <sub>3</sub>	4
3	1	1/2	3p <sub>1/2</sub>	M <sub>2</sub>	2
3	0	1/2	3s <sub>1/2</sub>	M <sub>1</sub>	2
2	1	3/2	2p <sub>3/2</sub>	L <sub>3</sub>	4
2	1	1/2	2p <sub>1/2</sub>	L <sub>2</sub>	2
2	0	1/2	2s <sub>1/2</sub>	L <sub>1</sub>	2
1	0	1/2	1s <sub>1/2</sub>	K	2

Tableau 1.3 – Configuration électronique en couches selon les nombres quantiques n, l et j

## Transition non-radiative

Dans le cas où l'énergie de la transition est transférée à un autre électron qui se trouve éjecté, on parle de désexcitation, ou transition non-radiative. L'électron mis en mouvement est appelé électron Auger. Il existe deux sortes de transition non-radiative : Auger et Coster-Kronig.

**Effet Auger :** Dans le cas, par exemple, d'une transition d'un électron de la couche  $L_1$  vers la couche K (lacune initiale), cette transition fournit l'énergie qui va éjecter un électron de la couche  $L_2$ , l'électron Auger émis aura une énergie cinétique égale à l'énergie de la transition K- $L_1$  moins l'énergie de liaison de la couche  $L_2$ . Ce processus de désexcitation est appelé effet Auger. La notation de la transition spécifie les couches mises en jeu lors de la transition, comme  $KL_1L_2$  dans l'exemple. De manière générale si la lacune initiale est produite dans la couche K, la transition Auger est notée  $KXY$ , où  $X = L, M, N, \text{ etc.}$  et  $Y = L, M, N, \text{ etc.}$ , on parle alors d'électron Auger  $KXY$  (voir figure 1.1). Dans le cas d'une vacance créée dans la couche L, la notation est similaire :  $LXY$  où  $X = M, N, \text{ etc.}$  et  $Y = M, N, \text{ etc.}$ , et on parle alors d'électron Auger  $LXY$ , et ainsi de suite pour les autres couches électroniques. L'énergie de l'électron Auger dépend seulement de l'énergie des niveaux mis à contribution lors de la transition, la distribution en énergie pour une même transition est donc mono-énergétique :

$$E_A = E_X - E_Y - E_Z - \delta E \quad (1.14)$$

Où  $E_A$  est l'énergie de l'électron Auger,  $E_X$ ,  $E_Y$ ,  $E_Z$  sont respectivement les énergies de liaison des couches X, Y et Z,  $\delta E$  est une correction tenant en compte la différence d'énergie de liaison des électrons entre l'atome dans un état excité et l'atome dans son état fondamental.

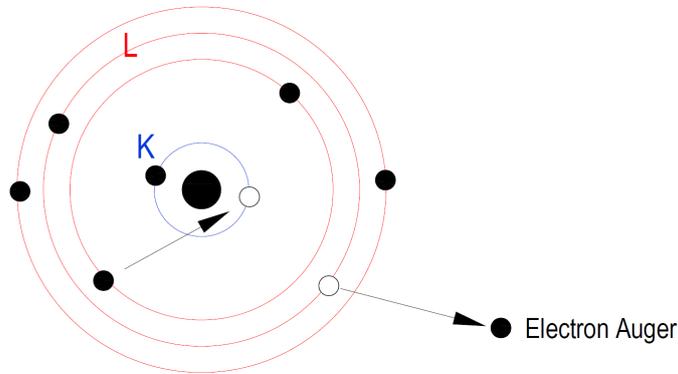


FIGURE 1.1 – Réarrangement électronique par effet Auger  $KL_1L_2$

**Transition Coster-Kronig :** Dans certains cas, la transition électronique a lieu entre deux sous-couches électroniques, par exemple de  $L_3$  vers  $L_1$ , et l'énergie est transférée à un électron d'une couche supérieure. Il s'agit d'un cas particulier d'émission Auger, appelé transition Coster-Kronig. Dans le cas d'une vacance initiale dans la couche L, la transition est accompagnée d'une émission d'un électron Auger  $L_iL_jX$ , où  $i = 1$  ou  $2$ ,  $j = 2$  ou  $3$  et  $X = M, N, \dots$  (exemple figure 1.2) et il en va de même pour les couches électroniques d'énergie supérieure. L'énergie emportée par l'électron issu d'une transition Coster-Kronig, en prenant un exemple avec la couche L, est :

$$E_{CK} = E_{L_i} - E_{L_j} - E_X - \delta E \quad (1.15)$$

Où  $E_{CK}$  est l'énergie de l'électron Auger suite à la transition Coster-Kronig,  $E_{L_i}$ ,  $E_{L_j}$ ,  $E_X$  sont respectivement les énergies de liaison des couches  $L_i$ ,  $L_j$  et X. De même que pour l'émission Auger, une correction d'énergie  $\delta E$  est apportée pour tenir compte de l'augmentation des niveaux d'énergie lorsqu'un atome se trouve dans un état excité.

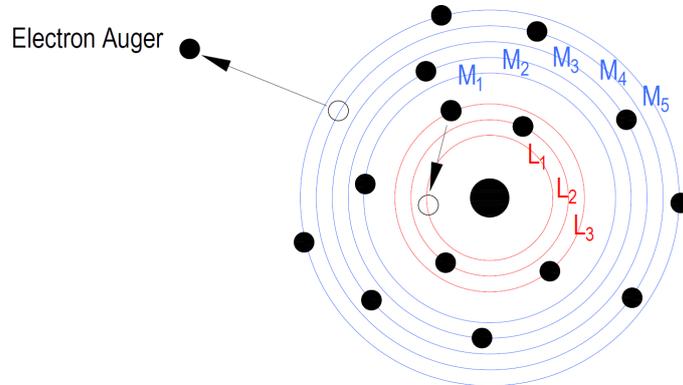


FIGURE 1.2 – Réarrangement électronique par transition Coster-Kronig  $L_1L_3M_4$

### Transition radiative : émission de photons X

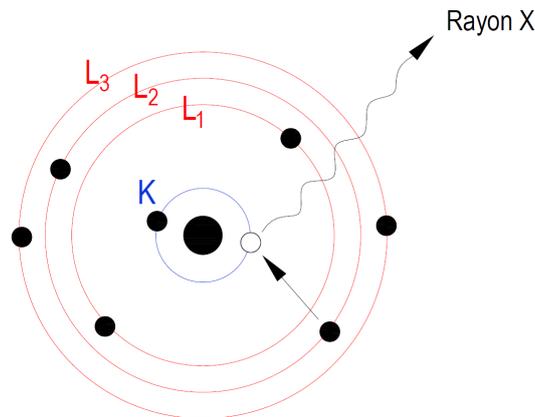


FIGURE 1.3 – Réarrangement électronique avec émission d'un rayon XK

Si l'énergie de la transition n'est pas transférée à un autre électron, elle est émise sous forme de rayonnement électromagnétique. Il s'agit alors d'une transition radiative (voir figure 1.3). Un photon X mono-énergétique est ainsi émis lors de cette transition. L'énergie du photon X correspond à la différence d'énergie entre les deux niveaux mis en jeu lors de la transition :

$$E_{X_Y} = E_Y - E_Z \quad (1.16)$$

Où  $E_{X_Y}$  est l'énergie du rayon X provenant de la couche Y,  $E_Y$  et  $E_Z$  sont respectivement les énergies de liaison des couches Y et Z. Contrairement à la transition non-radiative, l'émission d'un photon obéit à certaines règles de sélection issues de la mécanique quantique et la probabilité d'émission est très faible si elles ne sont pas respectées, on les appelle « interdites ». Les raies d'émissions principales respectent les règles suivantes :  $\Delta l = \pm 1$  et  $\Delta m = 0$  ou  $\pm 1$ .

Les transitions entre les orbitales s ( $l = 0$ ) sont très rares et ne sont jamais indiquées. Par exemple, les transitions « interdites » sont K-L<sub>1</sub>, K-M<sub>1</sub>, K-M<sub>4</sub>, K-M<sub>5</sub>, L<sub>1</sub>-M<sub>1</sub>, ... Une transition radiative n'a lieu en théorie que lorsque la couche électronique L<sub>2</sub> commence à être remplie, soit à partir de l'atome de bore.

## Classification des transitions

La notation des transitions K-L<sub>1</sub>, ... a été adoptée par l'IUPAC (*International Union of Pure and Applied Chemistry*)[20]. Elles ont également une notation historique : « Siegbahn », du nom de Karl Manne Georg Siegbahn qui en est l'auteur. Le tableau 1.4 propose la classification des transitions avec les deux notations et un exemple avec le neptunium (descendant de l'américium-241). La liste présentée dans le tableau n'est pas exhaustive, elle ne rend pas compte des transitions avec les couches O, P et Q, ni des séries M. Il manque dans la notation Siegbahn présentée dans le tableau, les raies suivantes : L $\gamma_4$ , L $\gamma_8$ , L $\gamma_6$ , L $\beta_7$  et L $\beta_5$  (correspondant aux transitions L<sub>1</sub>-O<sub>2,3</sub>, L<sub>2</sub>-O<sub>1</sub>, L<sub>2</sub>-O<sub>3</sub>, L<sub>3</sub>-O<sub>1</sub> et L<sub>3</sub>-O<sub>3,4</sub> respectivement) et les notations des raies des séries M qui sont équivalentes : M $\alpha$ , M $\beta$ , M $\gamma$  et M $\xi$ . Les probabilités indiquées sont normalisées à 1, pour une lacune dans la couche ou sous-couche considérée (K, L<sub>1</sub>, L<sub>2</sub>, L<sub>3</sub>) suivie d'une émission radiative. Pour obtenir les probabilités sur l'ensemble du schéma, il faut tenir compte de plusieurs paramètres fondamentaux tels que le rendement de fluorescence.

## Rendement de fluorescence

Nous avons vu que lors de la création d'une vacance dans une couche électronique, deux types de transitions sont possibles : transition radiative ou non-radiative. En prenant le cas simple de la couche K, suite à une vacance créée dans celle-ci, la somme des probabilités d'émission des rayons X,  $\omega_K$ , et des électrons Auger,  $a_K$ , doit être égale à un, puisque aucun autre processus de relaxation atomique n'existe :

$$a_K + \omega_K = 1 \quad (1.17)$$

$\omega_K$  est appelé également rendement de fluorescence de la couche K et il traduit la probabilité que le remplissage d'une vacance dans la couche K soit accompagné d'une émission radiative. Dans ce cas simple, le rendement de fluorescence  $\omega_K$  peut être défini également ainsi :

$$\omega_K = \frac{\text{Nombre de photons émis}}{\text{Nombre de vacances dans la couche K}} = \frac{I_{XK}}{n_K} \quad (1.18)$$

Où  $I_{XK}$  est l'intensité du rayonnement X<sub>K</sub> et  $n_K$  le nombre de vacances créées dans la couche K. En prenant le cas d'une désintégration nucléaire :

$$n_K = \sum P_\epsilon P_K + \sum P_\gamma \frac{\alpha_K}{1 + \alpha_T} \quad (1.19)$$

Le premier terme correspond à la probabilité de créer une vacance dans la couche K suite à une capture électronique avec  $P_\epsilon$ , la probabilité de désintégration par capture électronique, et  $P_K$ , la probabilité que la capture ait lieu dans la couche K pour chacune des raies  $\gamma$ . Le second terme correspond à la probabilité de conversion interne dans la couche K. Le cas des autres couches électroniques est plus complexe car elles sont divisées en plusieurs sous-couches et les réarrangements dus aux transitions Coster-Kronig doivent être pris en compte car ils ne sont

Notation des transitions			Exemple du Np (les énergies sont indiquées en keV)							
Siegbahn	IUPAC	Arrivée	Énergie	Départ	Énergie	Énergie de la raie	Probabilité			
K $\alpha$		K-L <sub>1</sub>	K	118,669	L <sub>1</sub>	22,427	96,242	-		
		K $\alpha_2$	K-L <sub>2</sub>	K	118,669	L <sub>2</sub>	21,6	97,069	0,29947	
		K $\alpha_1$	K-L <sub>3</sub>	K	118,669	L <sub>3</sub>	17,61	101,059	0,47631	
K' $\beta_1$		K-M <sub>1</sub>	K	118,669	M <sub>1</sub>	5,739	112,93	-		
	K $\beta_3$		K-M <sub>2</sub>	K	118,669	M <sub>2</sub>	5,366	113,303	0,05654	
	K $\beta_1$		K-M <sub>3</sub>	K	118,669	M <sub>3</sub>	4,435	114,234	0,11064	
	K $\beta_5$	K $\beta'_5$		K-M <sub>4</sub>	K	118,669	M <sub>4</sub>	3,849	114,82	-
		K $\beta''_5$		K-M <sub>5</sub>	K	118,669	M <sub>5</sub>	3,664	115,005	-
K' $\beta_2$		K-N <sub>1</sub>	K	118,669	N <sub>1</sub>	1,501	117,168	-		
	K $\beta_2$	K $\beta''_2$	K-N <sub>2</sub>	K	118,669	N <sub>2</sub>	1,328	117,341	0,01457	
		K $\beta'_2$	K-N <sub>3</sub>	K	118,669	N <sub>3</sub>	1,085	117,584	0,02981	
	K $\beta_4$	K $\beta''_4$	K-N <sub>4</sub>	K	118,669	N <sub>4</sub>	0,816	117,853	-	
		K $\beta'_4$	K-N <sub>5</sub>	K	118,669	N <sub>5</sub>	0,771	117,898	-	
			K-N <sub>6</sub>	K	118,669	N <sub>6</sub>	0,414	118,255	-	
			K-N <sub>7</sub>	K	118,669	N <sub>7</sub>	0,403	118,266	-	
		L <sub>1</sub> -L <sub>2</sub>	L <sub>1</sub>	22,427	L <sub>2</sub>	21,6	0,827	0,00008		
		L <sub>1</sub> -L <sub>3</sub>	L <sub>1</sub>	22,427	L <sub>3</sub>	17,61	4,817	0,05831		
		L <sub>1</sub> -M <sub>1</sub>	L <sub>1</sub>	22,427	M <sub>1</sub>	5,739	16,688	0,00002		
	L $\beta_4$	L <sub>1</sub> -M <sub>2</sub>	L <sub>1</sub>	22,427	M <sub>2</sub>	5,366	17,061	0,35133		
	L $\beta_3$	L <sub>1</sub> -M <sub>3</sub>	L <sub>1</sub>	22,427	M <sub>3</sub>	4,435	17,992	0,29716		
	L $\beta_{10}$	L <sub>1</sub> -M <sub>4</sub>	L <sub>1</sub>	22,427	M <sub>4</sub>	3,849	18,578	0,01664		
	L $\beta_9$	L <sub>1</sub> -M <sub>5</sub>	L <sub>1</sub>	22,427	M <sub>5</sub>	3,664	18,763	0,02476		
		L <sub>1</sub> -N <sub>1</sub>	L <sub>1</sub>	22,427	N <sub>1</sub>	1,501	20,923	0,00001		
	L $\gamma_2$	L <sub>1</sub> -N <sub>2</sub>	L <sub>1</sub>	22,427	N <sub>2</sub>	1,328	21,099	0,09534		
		L <sub>1</sub> -N <sub>3</sub>	L <sub>1</sub>	22,427	N <sub>3</sub>	1,085	21,342	0,09290		
	L $\gamma_3$	L <sub>1</sub> -N <sub>4</sub>	L <sub>1</sub>	22,427	N <sub>4</sub>	0,816	21,611	0,00286		
		L <sub>1</sub> -N <sub>5</sub>	L <sub>1</sub>	22,427	N <sub>5</sub>	0,771	21,656	0,00459		
	L $\gamma_{11}$	L <sub>1</sub> -N <sub>6</sub>	L <sub>1</sub>	22,427	N <sub>6</sub>	0,414	22,013	-		
		L <sub>1</sub> -N <sub>7</sub>	L <sub>1</sub>	22,427	N <sub>7</sub>	0,403	22,024	-		
		L <sub>2</sub> -L <sub>3</sub>	L <sub>2</sub>	21,6	L <sub>3</sub>	17,61	3,99	0,00009		
	L $\eta$	L <sub>2</sub> -M <sub>1</sub>	L <sub>2</sub>	21,6	M <sub>1</sub>	5,739	15,861	0,02148		
		L <sub>2</sub> -M <sub>2</sub>	L <sub>2</sub>	21,6	M <sub>2</sub>	5,366	16,234	0,000003		
	L $\beta_{17}$	L <sub>2</sub> -M <sub>3</sub>	L <sub>2</sub>	21,6	M <sub>3</sub>	4,435	17,165	0,00113		
	L $\beta_1$	L <sub>2</sub> -M <sub>4</sub>	L <sub>2</sub>	21,6	M <sub>4</sub>	3,849	17,751	0,75961		
		L <sub>2</sub> -M <sub>5</sub>	L <sub>2</sub>	21,6	M <sub>5</sub>	3,664	17,936	0,00010		
	L $\gamma_5$	L <sub>2</sub> -N <sub>1</sub>	L <sub>2</sub>	21,6	N <sub>1</sub>	1,501	20,099	0,00585		
		L <sub>2</sub> -N <sub>2</sub>	L <sub>2</sub>	21,6	N <sub>2</sub>	1,328	20,272	0,000001		
		L <sub>2</sub> -N <sub>3</sub>	L <sub>2</sub>	21,6	N <sub>3</sub>	1,085	20,515	0,00034		
	L $\gamma_1$	L <sub>2</sub> -N <sub>4</sub>	L <sub>2</sub>	21,6	N <sub>4</sub>	0,816	20,784	0,17373		
		L <sub>2</sub> -N <sub>5</sub>	L <sub>2</sub>	21,6	N <sub>5</sub>	0,771	20,829	0,00003		
	L $\nu$	L <sub>2</sub> -N <sub>6</sub>	L <sub>2</sub>	21,6	N <sub>6</sub>	0,414	21,186	0,00111		
		L <sub>2</sub> -N <sub>7</sub>	L <sub>2</sub>	21,6	N <sub>7</sub>	0,403	21,197	-		
	L $l$	L <sub>3</sub> -M <sub>1</sub>	L <sub>3</sub>	17,61	M <sub>1</sub>	5,739	11,871	0,04710		
	L $t$	L <sub>3</sub> -M <sub>2</sub>	L <sub>3</sub>	17,61	M <sub>2</sub>	5,366	12,244	0,00061		
	L $s$	L <sub>3</sub> -M <sub>3</sub>	L <sub>3</sub>	17,61	M <sub>3</sub>	4,435	13,175	0,00055		
	L $\alpha_2$	L <sub>3</sub> -M <sub>4</sub>	L <sub>3</sub>	17,61	M <sub>4</sub>	3,849	13,761	0,07634		
	L $\alpha_1$	L <sub>3</sub> -M <sub>5</sub>	L <sub>3</sub>	17,61	M <sub>5</sub>	3,664	13,946	0,67034		
	L $\beta_6$	L <sub>3</sub> -N <sub>1</sub>	L <sub>3</sub>	17,61	N <sub>1</sub>	1,501	16,109	0,01206		
		L <sub>3</sub> -N <sub>2</sub>	L <sub>3</sub>	17,61	N <sub>2</sub>	1,328	16,282	0,00013		
		L <sub>3</sub> -N <sub>3</sub>	L <sub>3</sub>	17,61	N <sub>3</sub>	1,085	16,525	0,00015		
	L $\beta_{15}$	L <sub>3</sub> -N <sub>4</sub>	L <sub>3</sub>	17,61	N <sub>4</sub>	0,816	16,794	0,01545		
	L $\beta_2$	L <sub>3</sub> -N <sub>5</sub>	L <sub>3</sub>	17,61	N <sub>5</sub>	0,771	16,839	0,14154		
		L <sub>3</sub> -N <sub>6</sub>	L <sub>3</sub>	17,61	N <sub>6</sub>	0,414	17,196	0,00021		
	L $u$	L <sub>3</sub> -N <sub>7</sub>	L <sub>3</sub>	17,61	N <sub>7</sub>	0,403	17,207	0,00113		

Tableau 1.4 – Classification des transitions radiatives à partir d'une lacune dans les couches K, L<sub>1</sub>, L<sub>2</sub> ou L<sub>3</sub> pour le neptunium. Energies et probabilités [19]

pas négligeables. L'équation (1.17) s'écrit alors :

$$a_{X_i} + \omega_{X_i} + \sum_{j=i+1}^k f_{X_{ij}} = 1 \quad (1.20)$$

Où  $a$  et  $\omega$  désignent les mêmes paramètres que précédemment,  $f_{X_{ij}}$  représente la probabilité de transition Coster-Kronig dans la couche X, entre les sous-couches  $i$  et  $j$ , jusqu'à la dernière sous-couche  $k$  ( $k = 3$  pour la couche L,  $k = 5$  pour la couche M, ...). En prenant un exemple avec la couche L :

$$a_{L_3} + \omega_{L_3} = 1 \quad (1.21)$$

$$a_{L_2} + \omega_{L_2} + f_{L_{23}} = 1 \quad (1.22)$$

$$a_{L_1} + \omega_{L_1} + f_{L_{12}} + f_{L_{23}} = 1 \quad (1.23)$$

### 1.1.4 Loi de décroissance radioactive

Étant par définition instables, les radionucléides se désintègrent au cours du temps. Mais les radionucléides n'ont pas tous la même durée de vie et, pour une population d'un même radionucléide, les atomes radioactifs ne se désintègrent pas spontanément tous au même instant. La loi régissant l'ensemble des désintégrations d'une population d'atomes radioactifs suit une décroissance exponentielle au cours du temps, appelée loi de décroissance radioactive.

#### Loi mathématique

La désintégration d'un radionucléide au sein d'une population d'une même espèce au cours du temps a une certaine probabilité  $\lambda$  de se réaliser.  $\lambda$ , également appelée « constante radioactive », est homogène à l'inverse d'un temps et caractéristique d'un radionucléide. Pour une population de  $N$  radionucléides, on a :

$$A = -\frac{dN}{dt} = \lambda N \quad (1.24)$$

Où  $dN$  est le nombre de désintégrations spontanées durant l'intervalle de temps  $dt$  et  $A$  est l'activité de la source radioactive. Elle est exprimée en becquerels (Bq) et représente le nombre moyen de désintégrations par seconde dans une population donnée. De l'intégration de l'équation précédente, est déduite la loi de décroissance radioactive :

$$A(t) = A_0 e^{-\lambda t} \quad (1.25)$$

Où  $A_0$  est l'activité de la source à l'instant  $t = 0$ .

#### Période radioactive

Pour représenter la durée de vie d'un radionucléide, il est plus aisé d'utiliser une autre grandeur temporelle que la constante radioactive : la « période radioactive », notée  $T_{1/2}$ . Elle correspond à l'intervalle de temps au bout duquel l'activité de la source est diminuée d'un

facteur deux (voir figure 1.4) et se définit ainsi :

$$T_{1/2} = \frac{\ln(2)}{\lambda} \quad (1.26)$$

La période s'exprime donc dans l'unité inverse de la constante radioactive, en secondes, minutes, jours ou années. De la constante radioactive, il est possible d'introduire une autre grandeur : la « durée de vie moyenne », notée  $\tau$  :

$$\tau = \frac{1}{\lambda} \quad (1.27)$$

La durée de vie moyenne s'exprime dans la même unité que la période radioactive et représente le temps moyen d'existence d'un radionucléide avant sa désintégration. La durée de vie moyenne est peu utilisée dans le cas d'un radionucléide, mais s'utilise plutôt pour les niveaux excités des noyaux.

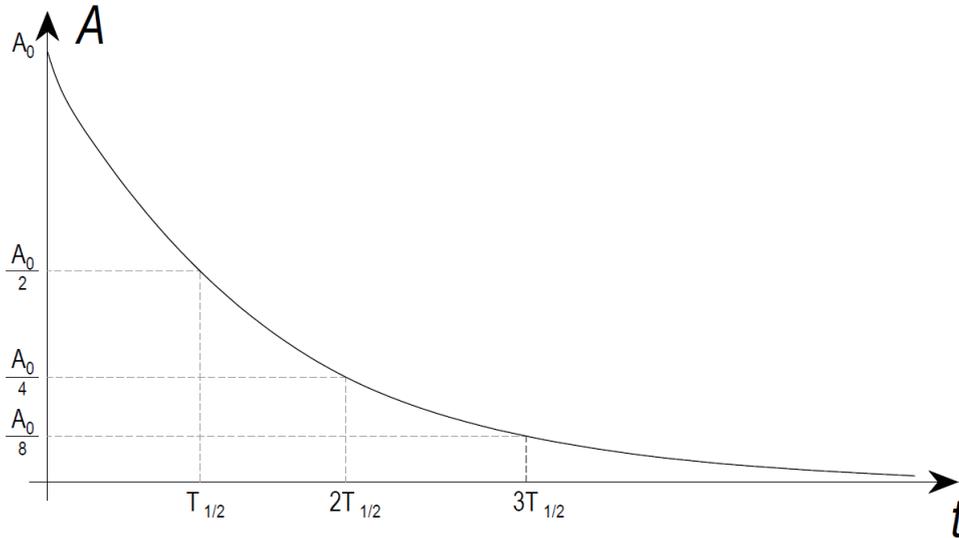


FIGURE 1.4 – Exemple d'une courbe de décroissance radioactive

### Filiation radioactive

Il arrive que lors de la désintégration d'un radionucléide, le descendant ne soit pas stable et se désintègre à son tour. Les radionucléides ainsi formés sont issus les uns des autres, et ils constituent ce que l'on appelle une chaîne de désintégration radioactive dont le dernier élément est stable (comme celle du  $^{238}\text{U}$  par exemple). Dans ce cas les activités mesurées ne sont pas totalement indépendantes les unes des autres [21]. Pour une chaîne courte avec un radionucléide intermédiaire, on a :



Pour chaque corps  $X_i$  est associé un nombre d'atome  $N_i$ , une activité  $A_i$ , l'activité à l'origine ( $t = 0$ )  $A_{i_0}$ , une constante radioactive  $\lambda_i$  et une période  $T_i$ . On suppose qu'à  $t = 0$ ,  $A_{2_0} = 0$ . On note ainsi les variations de  $N_1$  et  $N_2$  au cours du temps :

$$A_1 = -\frac{dN_1}{dt} = \lambda_1 N_1 \quad (1.29)$$

$$A_2 = -\frac{dN_2}{dt} = \lambda_2 N_2 - \lambda_1 N_1 \quad (1.30)$$

Par intégration des deux équations précédentes, on obtient  $A_1$ , et  $A_2$  en fonction de  $A_1$  :

$$A_1 = A_{10} e^{-\lambda_1 t} \quad (1.31)$$

$$A_2 = A_1 \frac{\lambda_2}{\lambda_2 - \lambda_1} \left[ 1 - e^{-(\lambda_2 - \lambda_1)t} \right] \quad (1.32)$$

Il existe un cas particulier d'équilibre lorsque  $T_1 \gg T_2$ . Pour un temps suffisamment long,  $t \geq 10 T_2$ , on obtient  $A_2 \approx A_1$ . L'activité du noyau fils ne dépend plus que de celle du noyau père. On dit alors qu'ils sont en équilibre séculaire. La figure 1.5 présente la courbe typique d'une filiation radioactive en présence d'équilibre séculaire entre le noyau père et le noyau fils.

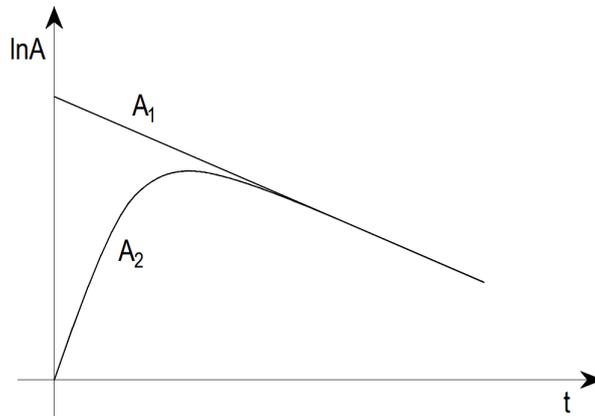


FIGURE 1.5 – Exemple d'équilibre séculaire

### 1.1.5 Autres sources de photons

Outre les sources radioactives, il existe d'autres sources de photons provenant pour la plupart de la décélération de particules chargées ou de la modification de leur trajectoire, comme c'est le cas dans les générateurs de rayons X et les synchrotrons.

#### Générateur de rayons X

Les générateurs de rayons X sont des tubes sous vide auxquels une forte tension (de plusieurs dizaines de kV généralement) est appliquée entre une anode et une cathode. Des électrons sont émis par la cathode vers l'anode et percutent une cible métallique située au niveau de l'anode (ionisation), émettant alors des rayons X dans toutes les directions. Ce phénomène est provoqué par le rayonnement de freinage (Bremsstrahlung) : lorsqu'un électron est décéléré, l'énergie cinétique perdue est transformée sous forme de rayonnement électromagnétique. À cela s'ajoute l'émission des raies X caractéristiques de la cible [22] consécutive au réarrangement électronique suivant l'ionisation.

## Sources synchrotrons

De la théorie de l'électromagnétisme, on sait que lorsque qu'une particule chargée se déplace dans un champ magnétique, elle est déviée par celui-ci. La particule émet alors un rayonnement électromagnétique, appelé rayonnement synchrotron. De ce principe, on appelle les accélérateurs de particules utilisant ce phénomène un « Synchrotron ». Un faisceau continu d'électrons tourne dans un anneau de stockage où leur course est déviée par un puissant champ magnétique; le rayonnement électromagnétique qui résulte de cette déviation est ensuite extrait sur plusieurs directions tangentielles. Le rayonnement, très focalisé, est ainsi très intense et produit une gamme de photons allant des infrarouges aux rayons X plus ou moins durs, selon les synchrotrons. Des monochromateurs (cristaux) sont utilisés pour « sélectionner » l'énergie, permettant ainsi d'obtenir un faisceau de photons monochromatiques de très forte intensité [22].

## 1.2 Interactions photon-matière

Toute mesure de radioactivité par spectrométrie de photons dépend de leurs interactions dans les matériaux du détecteur. Dans cette section, nous rappellerons les principaux types interactions dans la matière et les lois régissant l'atténuation d'un faisceau de photons, tout en limitant le formalisme mathématique. Le cas de l'interaction des neutrons avec la matière sera introduit dans la section 3.1. Il existe quatre principaux types d'interactions photons-matière : l'*effet photoélectrique*, la *diffusion cohérente*, la *diffusion incohérente* et la *création de paires*. Il existe d'autres types d'interactions, comme l'absorption résonante ou la diffusion Delbruck [23], mais elles n'ont pas d'intérêt dans le cas qui nous concerne, et ne seront donc pas traitées. La figure 1.6 présente les régions de prévalence de chacune des interactions en fonction de l'énergie du photon et du numéro atomique du matériau cible.

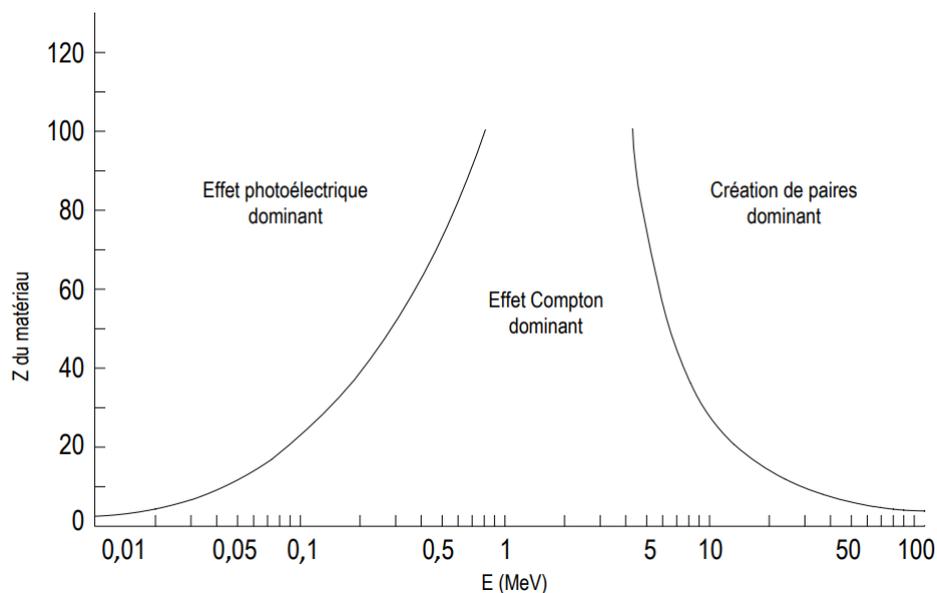


FIGURE 1.6 – Prédominance de chaque type d'interaction dans la matière en fonction de l'énergie du photon incident et du numéro atomique du matériau cible

### 1.2.1 Effet photoélectrique

Dans le processus de l'interaction par effet photoélectrique, le photon est absorbé par la matière et cède entièrement son énergie à un électron, qui est éjecté de l'atome, voir figure 1.7. Cet électron est appelé photo-électron et il est émis avec une énergie  $E_e$  correspondant à :

$$E_e = E_\gamma - E_X \quad (1.33)$$

Où  $E_\gamma$  est l'énergie du photon incident et  $E_X$  est l'énergie de liaison de la couche d'où l'électron est éjecté. Une partie de l'énergie du photon incident est également transférée à l'atome mais celle-ci est négligeable au regard des énergies considérées. L'effet photoélectrique a davantage de probabilité de se réaliser dans les couches électroniques les plus liées à l'atome, ainsi, si l'énergie est suffisante, la probabilité qu'il se produise dans la couche K est plus élevée que dans les autres couches. De l'effet photoélectrique, résulte un réarrangement électronique tel que décrit dans la section 1.1.3. L'effet photoélectrique est prédominant pour les rayons X et  $\gamma$  de faible énergie (voir figure 1.6).

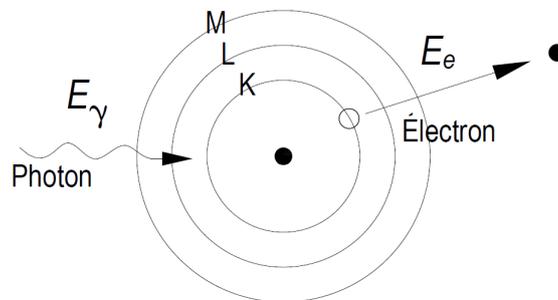


FIGURE 1.7 – Effet photoélectrique

### 1.2.2 Diffusion cohérente (Rayleigh)

Pour pouvoir expliquer le phénomène de la diffusion cohérente, l'onde électromagnétique est considérée sous un aspect ondulatoire. Deux processus de diffusion cohérente peuvent être distingués : la diffusion Thompson et la diffusion Rayleigh. La diffusion Rayleigh est l'interaction d'une onde incidente avec l'ensemble du cortège électronique d'un atome considéré, qui oscille alors à la même fréquence que l'onde. Dans l'atome, l'ensemble des électrons d'une couche suit le champ d'oscillation de l'onde et ainsi réémet l'énergie sous forme d'une onde avec la même fréquence mais dans une direction différente (voir figure 1.8). La diffusion Thompson est un cas particulier de la diffusion Compton (voir section 1.2.3), il s'agit de la diffusion d'une onde électromagnétique incidente sur un électron libre, c'est-à-dire non lié à un atome. Tant que l'énergie du photon est suffisamment faible devant l'énergie de masse de l'électron, le modèle de Thompson permet de décrire correctement la diffusion. À plus haute énergie, ce modèle de diffusion cohérente n'est plus suffisant et c'est le modèle de Compton (diffusion incohérente) qui s'applique. Lorsque l'on considère l'interaction d'un photon de faible énergie (50 keV ou moins) avec la matière, la diffusion cohérente est non négligeable et c'est plutôt le modèle de Rayleigh qui s'applique. On parle donc de diffusion Rayleigh en spectrométrie de photons de basse énergie. La transition entre diffusion cohérente et incohérente n'est pas brusque mais

elle est graduelle en fonction de l'énergie du photon  $E_\gamma$  et dépend également de la liaison des électrons avec l'atome.

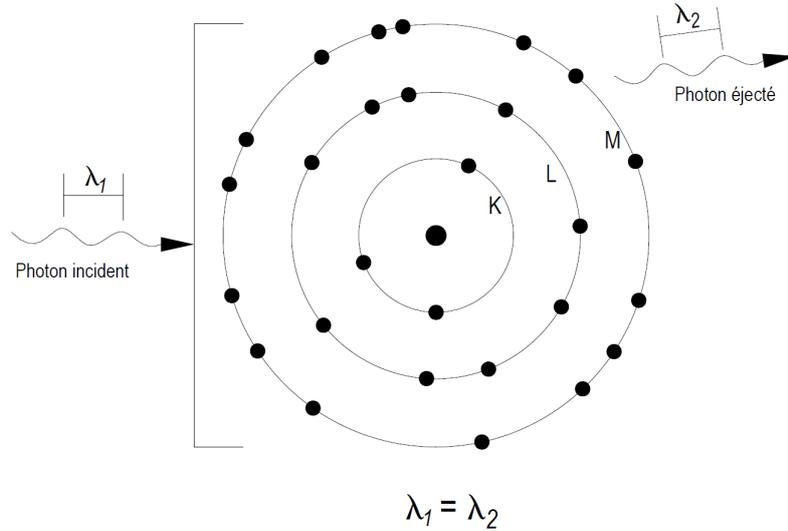


FIGURE 1.8 – Diffusion Rayleigh

### 1.2.3 Diffusion incohérente (Compton)

Dans le cas de la diffusion incohérente, comme pour l'effet photo-électrique, l'onde électromagnétique incidente est considérée sous un aspect corpusculaire (photon). Il s'agit de l'interaction d'un photon avec un électron non lié à un atome, où le photon cède une partie de son énergie à l'électron (voir figure 1.9). Dans le cas où un photon incident interagit avec un atome, classiquement une collision élastique, il est considéré comme une particule et seule son interaction avec un unique électron du cortège est prise en compte. Ainsi, contrairement à la diffusion cohérente, le photon ne transfère pas son énergie à l'ensemble du cortège mais à un seul électron, généralement parmi les moins liés à l'atome, comme s'il était libre. Il en résulte un changement de direction du photon après la collision (diffusion) et une éjection d'un électron du cortège qui emporte une partie de l'énergie du photon incident sous forme d'énergie cinétique. En prenant en compte la conservation de l'énergie totale et de l'impulsion lors de la collision, on montre que :

$$E'_\gamma = \frac{E_\gamma}{1 + \frac{E_\gamma}{m_0c^2}(1 - \cos \theta)} \quad (1.34)$$

Où  $E'_\gamma$  est l'énergie du photon diffusé,  $E_\gamma$  l'énergie du photon incident,  $m_0c^2$  l'énergie de masse de l'électron au repos et  $\theta$  l'angle de diffusion du photon. De là, on en déduit l'énergie cinétique  $E_e$  de l'électron de recul :

$$E_e = E_\gamma - E'_\gamma = E_\gamma \left[ 1 - \frac{1}{1 + \frac{E_\gamma}{m_0c^2}(1 - \cos \theta)} \right] \quad (1.35)$$

Dans le cas d'un électron lié à un atome, il est nécessaire de prendre en compte l'énergie de liaison de l'électron. La diffusion Thompson est un cas particulier de la diffusion Compton, elle s'applique dans le cas où l'énergie du photon incident  $E_\gamma$  devient très faible devant l'énergie de

masse de l'électron au repos (non lié à un atome), visible avec le terme  $E_\gamma/m_0c^2$ . La diffusion Compton est prédominante dans les énergies intermédiaires de photons incidents, voir figure 1.6.

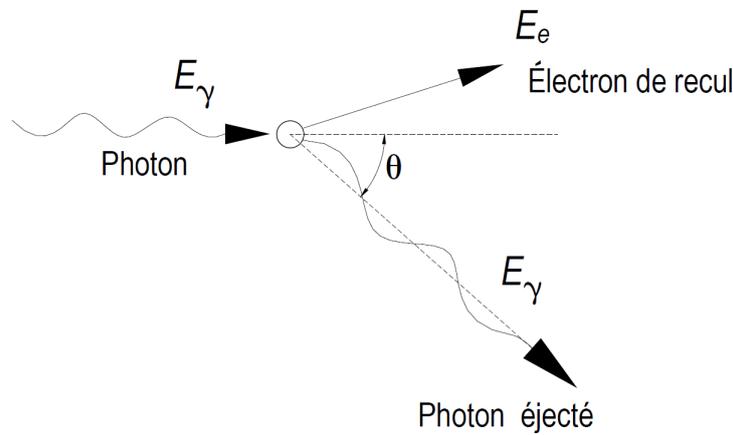


FIGURE 1.9 – Diffusion Compton

### 1.2.4 Création de paires

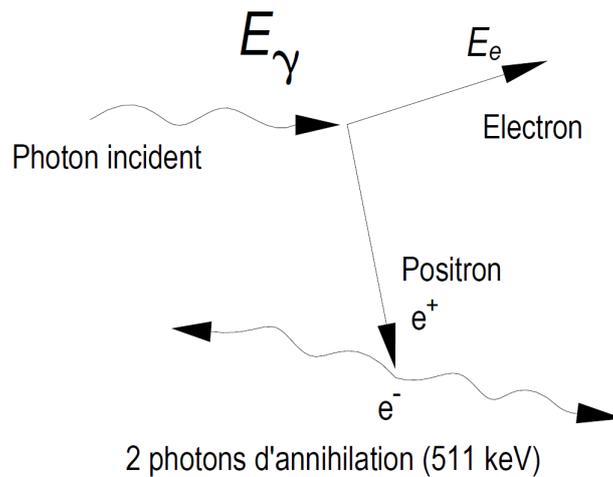


FIGURE 1.10 – Création de paires et annihilation

Ce type d'interaction du photon avec la matière est une réaction à seuil. Dans le cas de la création de paires, le photon interagit généralement au niveau du champ coulombien du noyau et il en résulte une conversion du rayon  $\gamma$  en une paire électron-positron. Comme pour l'effet photo-électrique, le photon incident est entièrement absorbé. Pour pouvoir avoir lieu, l'énergie incidente doit dépasser la somme de l'énergie de masse au repos de l'électron et du positron (identique à celle de l'électron), soit 1022 keV. L'électron et le positron ainsi créés se partagent l'excédant d'énergie du photon, c'est-à-dire l'énergie du rayonnement moins l'énergie nécessaire pour créer la paire. Lors de son parcours dans la matière, le positron perd rapidement son énergie et lorsqu'il atteint l'énergie thermique (25 meV), il interagit inévitablement avec un électron. Les deux particules s'annihilent, créant deux photons de 511 keV émis dans la même direction mais dans des sens opposés. La figure 1.10 représente l'interaction par création de paires suivie

de l'annihilation électron-positron. L'interaction par création de paires est prédominante pour des énergies de photons très élevées (voir figure 1.6).

### 1.2.5 Coefficients d'interaction

Jusqu'à présent, nous avons considéré l'interaction d'un unique photon avec la matière. Les photons ont une certaine probabilité d'interagir avec la matière, il s'agit d'un processus parfaitement aléatoire et il est donc impossible de prédire si un tel photon, dans un faisceau, va interagir par effet photoélectrique, effet Compton, ou ne pas interagir du tout. Lorsque l'on considère un faisceau de photons, il est seulement possible de déterminer qu'une certaine proportion de photons va interagir avec la matière. Pour cela, deux grandeurs sont utilisées : la section efficace d'interaction, exprimée en barns ( $= 10^{-24} \text{ cm}^2$ ), et le coefficient d'atténuation massique  $\mu/\rho$ , exprimé en  $\text{cm}^2 \cdot \text{g}^{-1}$  ou linéique  $\mu$ , exprimé en  $\text{cm}^{-1}$ . La *section efficace* traduit la probabilité pour un photon d'interagir par un des effets décrits dans les précédentes sections à l'échelle microscopique, le *coefficient d'atténuation* fait plutôt référence à l'atténuation (absorption et diffusion) d'un faisceau de photons mono-énergétiques dans une couche de matériau et correspond à la section efficace macroscopique. On distingue donc l'*absorption* de l'*atténuation*, cette dernière incluant à la fois l'absorption et la diffusion.

#### Coefficient d'atténuation par effet photoélectrique

La section efficace d'interaction par effet photoélectrique est généralement notée  $\tau$ . Il n'existe pas une unique expression analytique pour la décrire, on sait qu'elle varie en fonction du numéro atomique  $Z$  et de l'énergie  $E_\gamma$  du photon incident tel que :

$$\tau \propto \frac{Z^n}{E_\gamma^m} \quad (1.36)$$

Où  $n$  et  $m$  sont compris entre 3 et 5 et sont fonction de l'énergie (par exemple  $n = 5$  et  $m = 3,5$ ) [23], [17] et [22]. De la section efficace est déduit le coefficient d'atténuation par effet photoélectrique  $\mu_\tau$  :

$$\mu_\tau = \tau \rho \frac{N_A}{A} \quad (1.37)$$

Où  $N_A$  est le nombre d'Avogadro,  $\rho$  la masse volumique du matériau dans lequel le photon interagit et  $A$  sa masse atomique moyenne.

#### Probabilité d'une absorption dans une couche spécifique

Dans l'hypothèse où le photon est absorbé, on définit la probabilité d'absorption dans une couche  $X$  à partir de la section efficace d'interaction par effet photoélectrique. Il s'agit du rapport de la section efficace  $\tau_X$  dans la couche spécifique  $X$  sur la section efficace totale  $\tau$  :

$$p_X = \frac{\tau_X}{\tau} = \frac{\tau_X}{\tau_K + \tau_{L_1} + \tau_{L_2} + \tau_{L_3} + \tau_{M_1} + \tau_{M_2} + \dots} \quad (1.38)$$

Il est parfois plus commode d'utiliser le rapport du *saut d'absorption*  $S_X$  d'une couche  $X$ , qui est défini comme le rapport de la section efficace d'effet photoélectrique juste avant l'énergie

de liaison de la couche  $X$  sur celle juste après l'énergie de liaison de cette même couche. Par exemple avec la couche  $K$  :

$$S_K = \frac{\tau_K + \tau_{L_1} + \tau_{L_2} + \tau_{L_3} + \tau_{M_1} + \tau_{M_2} + \dots}{\tau_{L_1} + \tau_{L_2} + \tau_{L_3} + \tau_{M_1} + \tau_{M_2} + \dots} = \frac{\tau}{\tau - \tau_K} \quad (1.39)$$

On en déduit ainsi :

$$p_K = \frac{\tau_K}{\tau} = 1 - \frac{1}{S_K} \quad (1.40)$$

*Note* :  $1/S_K$  correspond à la probabilité que le photon ne soit pas absorbé dans la couche  $K$ .

### Coefficient d'atténuation par diffusion incohérente

La section efficace d'interaction par diffusion incohérente est généralement notée  $\sigma_{inc}$ . Pour un électron lié, elle est définie à partir de la distribution angulaire de la formule de *Klein-Nishina*, par intégration sur tout l'espace de la relation suivante [24] :

$$\sigma_{inc} = \int S(x, Z) \frac{d\sigma_{KN}(\theta)}{d\Omega} d\Omega \quad (1.41)$$

Où  $S(x, Z)$  est la fonction de diffusion incohérente,  $\theta$  est l'angle de diffusion et  $d\sigma_{KN}/d\Omega$  est la section efficace différentielle de diffusion incohérente de Klein-Nishina, pour un électron libre. De manière simplifiée, la section efficace totale de diffusion incohérente varie approximativement selon l'énergie incidente du photon  $E_\gamma$  et le numéro atomique  $Z$  du matériau, telle que :

$$\sigma_{inc} \propto \frac{Z}{E_\gamma} \quad (1.42)$$

De même que dans le cas de l'effet photo-électrique, on déduit le coefficient d'atténuation de diffusion incohérente  $\mu_{\sigma_{inc}}$ , à partir de la section efficace :

$$\mu_{\sigma_{inc}} = \sigma_{inc} \rho \frac{N_A}{A} \quad (1.43)$$

### Coefficient d'atténuation par diffusion cohérente

La section efficace d'interaction par diffusion cohérente, notée  $\sigma_{coh}$ , est définie pour un électron lié, par la relation suivante [24] :

$$\sigma_{coh} = \int [F(x, Z)]^2 \frac{d\sigma_T(\theta)}{d\Omega} d\Omega \quad (1.44)$$

Où  $F(x, Z)$  est le facteur de diffusion atomique et  $d\sigma_T/d\Omega$  est la section efficace différentielle par diffusion Thompson (diffusion cohérente dans le cas d'un électron libre) définie par intégration sur tout l'espace de la relation suivante :

$$\frac{d\sigma_T(\theta)}{d\Omega} = \frac{r_e^2}{2} (1 + \cos^2\theta) \quad (1.45)$$

Où  $r_e$  est le rayon de l'électron. Le coefficient d'atténuation de diffusion cohérente  $\mu_{\sigma_{coh}}$  se

déduit ainsi de la même manière :

$$\mu_{\sigma_{coh}} = \sigma_{coh} \rho \frac{N_A}{A} \quad (1.46)$$

### Coefficient d'atténuation par création de paires

La section efficace d'interaction par création de paires est généralement notée  $\kappa$  ; elle varie de manière très complexe en fonction du numéro atomique  $Z$  du matériau et de l'énergie  $E_\gamma$  du photon incident et peut être exprimée ainsi [23] et [17] :

$$\kappa \propto Z^2 f(E_\gamma, Z) \quad (1.47)$$

La variation de la section efficace est dominée par le terme  $Z^2$ , quant à sa dépendance en fonction de l'énergie, elle est déterminée par la fonction  $f$  qui croît continûment à partir du seuil à 1,022 MeV. La création de paires est ainsi le mécanisme dominant d'interaction aux alentours de 10 MeV. Le coefficient d'atténuation par création de paires  $\mu_\kappa$  est :

$$\mu_\kappa = \kappa \rho \frac{N_A}{A} \quad (1.48)$$

### Coefficient d'atténuation massique total

Le coefficient d'atténuation massique total  $\mu/\rho$  est une grandeur très utilisée pour déterminer l'atténuation d'un faisceau de photons d'énergie  $E_\gamma$  dans un matériau. La grandeur  $\mu$ , également utilisée, est appelée coefficient d'atténuation linéique. Le coefficient d'atténuation massique total se définit à partir des coefficients d'interaction partiels de la manière suivante :

$$\mu = \mu_\tau + \mu_{\sigma_{inc}} + \mu_{\sigma_{coh}} + \mu_\kappa \quad (1.49)$$

Ou encore :

$$\frac{\mu}{\rho} = \frac{N_A}{A} (\tau + \sigma_{inc} + \sigma_{coh} + \kappa) \quad (1.50)$$

## 1.2.6 Loi d'atténuation de Beer-Lambert

La loi d'atténuation détermine la transmission d'un faisceau de photons au travers d'un matériau d'épaisseur  $e$ . Il est préférable d'utiliser le terme d'« atténuation » que celui d'« absorption » car le photon n'est pas nécessairement absorbé dans le matériau, il peut être diffusé et ne transférer qu'une partie de son énergie. Malgré tout, ces interactions mènent à une *atténuation* de l'intensité du faisceau originel. L'intensité transmise  $I$  du faisceau de photons et son intensité initiale  $I_0$  sont reliées par la relation différentielle suivante :

$$dI = -I_0 \mu dx \quad (1.51)$$

Où  $dx$  est l'épaisseur infinitésimale dans laquelle le photon interagit. Par intégration de l'équation 1.51 sur l'épaisseur  $e$  de la cible, on obtient la loi de *Beer-Lambert* d'atténuation dans un matériau :

$$I = I_0 e^{-\frac{\mu}{\rho} \rho e} \quad (1.52)$$

Ou encore :

$$I = I_0 e^{-\mu e} \quad (1.53)$$

De l'équation 1.52, on en déduit la transmission  $T$  et l'absorption  $A$  dans un matériau :

$$T = \frac{I}{I_0} = e^{-\frac{\mu}{\rho} \rho e} \quad (1.54)$$

$$A = 1 - T = 1 - e^{-\frac{\mu}{\rho} \rho e} \quad (1.55)$$

## 1.3 Données et schémas de désintégration

L'étalonnage des spectromètres et la mesure de radioactivité par spectrométrie X et  $\gamma$  nécessitent de disposer des meilleures données de décroissance pour chaque radionucléide mesuré, en particulier la période de désintégration, les énergies et intensités d'émissions des photons, etc. Pour de nombreux radionucléides, quantité d'articles ont été publiés depuis des dizaines d'années. Cependant les résultats ne sont pas toujours compatibles entre eux et une compilation rigoureuse prenant en compte tous les résultats pour une même donnée de décroissance est nécessaire. Ceci permet d'obtenir des valeurs recommandées avec des incertitudes bien maîtrisées.

### 1.3.1 Schémas de désintégration

Le schéma de désintégration regroupe toutes les informations caractéristiques du radionucléide, qui sont cruciales pour les mesures de radioactivité. Les tableaux des données recommandées sont présentés de la manière suivante (Exemple avec  $^{133}\text{Ba}$  en annexe) :

- Une courte description du radionucléide ;
- Les données nucléaires : période radioactive, énergie de la réaction, données (énergies, probabilités de transition, etc.) sur les différentes transitions possibles ( $\alpha$ ,  $\beta$ ,  $\varepsilon$ ) dans l'ordre croissant des énergies de transition et les données sur les transitions  $\gamma$  (énergies, probabilités, multipolarités, etc.) ;
- Les données atomiques : rendement de fluorescence, probabilités de vacances, énergies des transitions des rayons X et des transitions Auger ;
- Les émissions alpha : notations (indication du niveau initial et du niveau final), énergie des émissions et intensités absolues ;
- Les émissions électroniques : notations, noyau à l'origine de l'émission (uniquement dans le cas des électrons Auger et de conversion), énergie des émissions et intensités absolues ;
- Les émissions de photons : rangées suivant le type d'émission (X et  $\gamma$ ), notations des transitions (Siegbahn pour les rayons X), énergie des émissions et intensités absolues ;
- Les principaux modes de production ;
- Les références utilisées ;
- Le schéma de désintégration.

### 1.3.2 Principales sources et évaluation des données

La principale source sur les données utilisées par le laboratoire provient de la Table des Radionucléides, basée sur des données recommandées par les membres du projet *DDEP* (*Decay Data Evaluation Project*), qui comprend le LNE-LNHB (France), le PTB (Allemagne), le

CIEMAT (Espagne), le NIST (États-Unis), le INEEL (États-Unis), le KRI (Russie), le NPL (Royaume-Uni), le LNBL (États-Unis), le CNDC (Chine), le NIM (Chine) et le IFIN-HH (Roumanie) [4]. Les évaluateurs de chacun de ces laboratoires effectuent une analyse aussi exhaustive que possible sur un radionucléide en particulier. Deux types de sources sont utilisés pour obtenir ces données : des valeurs expérimentales publiées et des données compilées par des spécialistes. Les règles suivies pour effectuer les évaluations sont indiquées dans l'introduction à la table des radionucléides [15] : «

- Une analyse critique des résultats publiés et, si nécessaire, la correction de ces résultats pour tenir compte des valeurs plus récentes jusqu'alors indisponibles. Généralement, les résultats sans incertitude sont écartés et les rejets des valeurs sont documentés ;
- Des données obtenues au moyen de communications privées ne sont utilisées que lorsqu'il n'existe aucune publication valable sur celles-ci ;
- Des ajustements peuvent être apportés aux incertitudes indiquées ;
- Un unique résultat, généralement le plus récent, est pris en compte par laboratoire (ou auteur), pour limiter les corrélations entre les données utilisées ;
- Les valeurs recommandées sont obtenues à partir d'une analyse de toutes les mesures disponibles (ou valeurs théoriques), avec des incertitudes-types données à  $1 \sigma$ . »

L'estimation de la meilleure valeur et de son incertitude associée dépend de la méthode de mesure employée par l'auteur de la publication. Les incertitudes indiquées dans les évaluations sont obtenues suivant les recommandations du GUM [25], (*Guide to the expression of Uncertainty in Measurement*), le guide pour l'expression de l'incertitude de mesure édité par le JCGM (Joint Committee for Guides in Metrology). Dans le cadre du travail de cette thèse, si un radionucléide n'a pas été évalué par le DDEP, les données sont issues de la table ENSDF (*Evaluated Nuclear Structure and Decay File*), disponibles sur le site de l'AIEA (Agence Internationale pour l'Énergie Atomique) [26] ou du BNL (*Brookhaven National Laboratory*) [27]. Elles sont également compilées dans la carte des radionucléides [28] et [29].

### 1.3.3 Équilibrage du schéma de désintégration

L'ensemble des résultats obtenus pour les radionucléides permettent ainsi de construire un schéma de désintégration par radionucléide, mais celui-ci doit être équilibré ce qui implique que [15] : «

- La somme des probabilités de transition pour tous les modes de désintégration ( $\alpha$ ,  $\beta$ ,  $\gamma$ ,  $\varepsilon$ ) pour chaque niveau d'un schéma de désintégration est égale à 1 (ou 100 %) ;
- Pour un niveau excité du noyau, la somme des probabilités de transition alimentant le niveau ( $\alpha$ ,  $\beta$ ,  $\gamma$ ,  $\varepsilon$ ) est égal à la somme des probabilités de transition dépeuplant ce niveau ;
- Lorsque les probabilités d'émission relatives  $P(rel)_{\gamma i}$  des intensités d'émission  $\gamma$  sont connues par rapport à l'une d'elles, telle que  $\gamma_k$ , en supposant que l'état fondamental n'est pas alimenté par transition  $\alpha$ ,  $\beta$  et  $\varepsilon$ , toutes les intensités d'émission  $\gamma$  absolues  $I(abs)_{\gamma i}$  peuvent être calculées à partir de l'équation suivante :

$$I(abs)_{\gamma i} = P(rel)_{\gamma i} \times N \quad (1.56)$$

Où le « facteur de normalisation »  $N$  est déterminé par :

$$N \sum P(rel)_{\gamma_i}(1 + \alpha_{t_i}) = 1 \quad (1.57)$$

Où la somme comprend les transitions  $\gamma$  alimentant l'état fondamental. »

# Chapitre 2

## Mesure de l'activité d'échantillons solides par spectrométrie X et $\gamma$

La spectrométrie de rayons X et  $\gamma$  est une technique utilisée par de nombreux laboratoires ; elle permet d'identifier les radionucléides présents dans un échantillon radioactif mais aussi de déterminer leur activité. Une autre application de cette technique est la mesure d'intensités d'émission photonique pour contribuer à l'amélioration de la connaissance des données de décroissance. Les spectromètres peuvent être conçus autour de différents détecteurs : les plus utilisés sont les scintillateurs inorganiques (NaI(Tl), CsI, CdZnTe, LaBr<sub>3</sub>, etc.) et les détecteurs à semi-conducteur. Cette partie se limitera à cette dernière catégorie. Si le processus de mesure par spectrométrie est relativement simple à mettre en œuvre pour les photons de haute énergie (supérieure à 100 keV environ), il en est autrement à basse énergie (entre 10 et 50 keV). En effet, les intensités d'émission photonique sont généralement mal connues (incertitudes élevées) et la forte absorption du rayonnement dans le détecteur, la source et leur environnement rendent les mesures plus complexes. Ce chapitre rappellera la constitution d'une chaîne de spectrométrie et détaillera les procédures d'étalonnage pour leur utilisation. Les principales corrections seront présentées, avec leur application lors du traitement d'un spectre. Les incertitudes associées et le cas spécifique des échantillons solides seront abordés en fin de chapitre.

### 2.1 Chaîne d'acquisition

L'interaction des photons dans la zone de déplétion d'un semi-conducteur crée des paires électrons-trous, dont l'origine et la mobilité sont expliquées par la théorie des bandes [30]. Mais cette interaction dans le détecteur n'est pas directement mesurable et nécessite une chaîne d'acquisition pour obtenir un spectre en énergie exploitable [22] et [17]. Des électrodes polarisées aux extrémités du détecteur (zones dopées ou électrodes métalliques) créent un champ électrique dans le semi-conducteur permettant la collection des charges (les électrons et les trous) vers l'anode et la cathode ce qui induit une tension aux bornes du détecteur. Le signal est ensuite collecté par une électronique de mesure composée d'un préamplificateur, d'un amplificateur et d'un analyseur multi-canaux (MCA) qui sont chargés de mesurer l'amplitude de chaque signal et de le faire apparaître comme un histogramme, avec le numéro de canal en abscisse et le nombre d'occurrence en ordonnée. Cet histogramme est ensuite récupéré via un logiciel d'acquisition sous forme d'un spectre caractéristique de la source radioactive étudiée. La figure 2.1 présente de manière simplifiée un système typique utilisé en spectrométrie avec

un détecteur semi-conducteur.

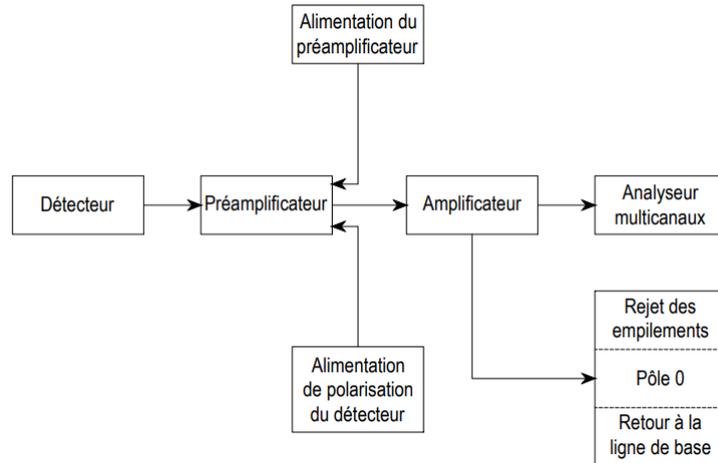


FIGURE 2.1 – Exemple de schéma d'un système électronique pour un détecteur semi-conducteur

### 2.1.1 Détecteurs à semi-conducteur

Dans le cadre de la spectrométrie de photons, les détecteurs à semi-conducteur les plus couramment utilisés sont en silicium ou en germanium. Ils fonctionnent pour la plupart à la température de l'azote liquide ( $-196\text{ }^{\circ}\text{C}$ ), permettant de réduire les effets de l'agitation thermique. Il existe deux principaux types de détecteurs en silicium, les détecteurs au silicium-lithium, Si(Li), et les détecteurs au silicium à dérive (*silicon drift detectors* ou SDD). Les Si(Li) ont une zone de déplétion (partie active du détecteur) de quelques millimètres d'épaisseur au maximum et la faible densité du matériau limite la mesure des photons à une énergie maximale de  $100\text{ keV}$ , puisque, au-delà, l'absorption dans le matériau est trop faible. Les SDD présentent une anode avec une structure annulaire et l'énergie du gap plus élevée du silicium. Ces deux caractéristiques permettent de réduire le bruit dû à l'agitation thermique et un fonctionnement à une température aux alentours de  $-30\text{ }^{\circ}\text{C}$ , obtenue par un module de refroidissement fonctionnant par effet Peltier [31] et [32]. Leur épaisseur est actuellement limitée à  $450\text{ }\mu\text{m}$ , l'énergie maximale de détection étant donc encore plus basse ( $60\text{ keV}$ ).

Comme pour le silicium, il existe deux principaux types de détecteurs en germanium, les détecteurs germanium-lithium, Ge(Li), et les détecteurs en germanium de haute pureté, GeHP (*high-purity germanium*, HPGe), qui sont majoritairement employés et ne nécessitent pas d'être refroidis par azote liquide lorsqu'ils ne sont pas en utilisation. Les GeHP permettent d'obtenir un volume actif de mesure plus important ce qui permet de détecter les photons de haute énergie. Ce type de semi-conducteur présente une faible proportion d'impuretés, composées soit de centres accepteurs, il s'agit alors de GeHP de type p, soit de centres donneurs, GeHP de type n. Les détecteurs GeHP se présentent sous deux sortes de disposition, plane ou coaxiale. La figure 2.2 présente un exemple de détecteur GeHP plan où les contacts électriques sont disposés aux extrémités plates du cristal cylindrique. Cette configuration permet d'obtenir les meilleures résolutions en énergie pour de faibles diamètres de cristal. Cependant, il n'est pas possible d'atteindre des épaisseurs supérieures de 2 à 3 cm, ce qui s'avère insuffisant pour mesurer des photons de haute énergie. La configuration, autour d'un axe cylindrique, d'un détecteur GeHP coaxial est présentée dans la figure 2.3. Dans ce cas, une des électrodes est placée autour

de la surface extérieure du cylindre, tandis que l'autre est placée à l'intérieur de la partie du cœur du cristal de germanium qui a été retirée. Dans le cas des GeHP, le contact  $n^+$  est obtenu par diffusion d'ions de lithium dans le germanium et le contact  $p^+$  est obtenu par implantation d'ions de bore à la surface du cristal. Ces zones ne font ainsi pas partie de la zone active du GeHP (zone de déplétion), ce sont des zones dites mortes ou inactives. Le contact  $p^+$  étant obtenu par implantation, l'épaisseur de cette zone est généralement très fine (quelques  $\mu\text{m}$ ). En revanche, l'épaisseur de la zone du contact  $n$  est plus importante, à cause de la méthode de diffusion. Dans le cas de la mesure de photons de faible énergie, il est préférable que la zone d'entrée dans le détecteur soit le contact  $p$ , donc d'utiliser un GeHP de type  $n$ . Lorsqu'un photon interagit dans la zone de déplétion, celui-ci crée un certain nombre de paires électrons-trous qui dépend de l'énergie absorbée. Les charges migrent alors vers leur électrode respective (voir figure 2.3), ce qui induit une différence de charge caractéristique de l'énergie absorbée.

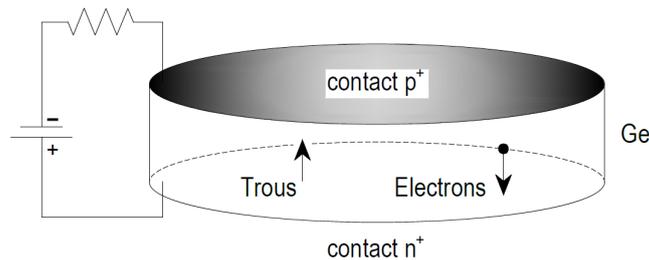


FIGURE 2.2 – Configuration d'un détecteur GeHP plan

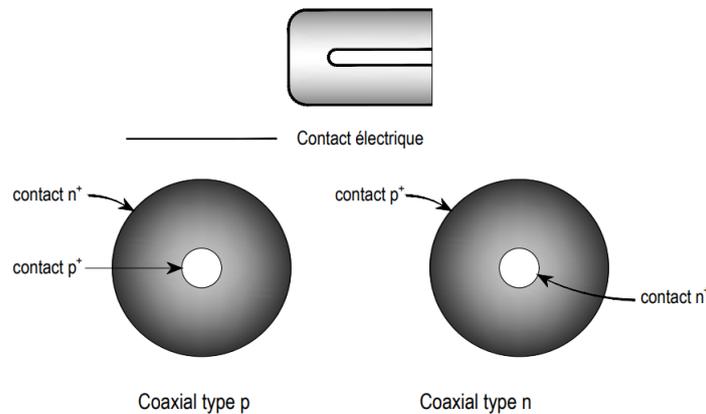


FIGURE 2.3 – Configuration d'un détecteur GeHP coaxial

### 2.1.2 Électronique pour la spectrométrie $\gamma$

En sortie du détecteur, la fonction du système électronique est de polariser en tension le détecteur, de collecter les charges issues des interactions des photons dans celui-ci, de les transformer en un signal mesurable et de stocker l'information, tout en l'altérant le moins possible. En électronique analogique, les différentes fonctions sont assurées par des modules individuels qui sont décrits ci-dessous, mais de plus en plus, ces fonctions sont effectuées par un module de traitement numérique du signal (Digital Signal Processing), après la numérisation du signal en sortie du préamplificateur.

## Alimentation en tension de polarisation

Il s'agit d'une haute tension appliquée aux bornes du détecteur comme sur les figures 2.2 et 2.3. La valeur de la tension optimale est propre au détecteur et généralement indiquée par le fabricant. Elle peut varier de quelques centaines à plusieurs milliers de volts suivant le volume du cristal. Cette tension permet d'augmenter le volume de la zone de déplétion et la mobilité des porteurs de charges dans le détecteur, facilitant ainsi leur collection vers les électrodes. Par contre, si la tension est trop élevée, elle peut provoquer une augmentation très rapide du courant (claquage électronique) et endommager le cristal.

## Préamplificateurs

Le préamplificateur, situé au plus près du cristal, a pour fonction de collecter les charges aux électrodes du détecteur et de les transformer en signal mesurable pour l'amplificateur. Le préamplificateur est pourvu d'un condensateur qui, à partir d'une quantité de charge  $Q$  en entrée, délivre une tension en sortie. Il existe deux types de préamplificateurs : les préamplificateurs à retour résistifs et les préamplificateurs à « *reset* » (voir figure 2.4) : soit c'est une résistance qui est placée en parallèle du condensateur (retour résistif), soit c'est un transistor (*reset*). Du fait du temps de descente du signal long et du bruit de Johnson [33], l'utilisation d'un préamplificateur à retour résistif ne permet pas d'enregistrer des taux de comptage très élevés ( $10^5$ - $10^6$ .s<sup>-1</sup>). L'emploi d'un préamplificateur à « *reset* » rend possible cette application, mais il y a une période de réinitialisation du signal durant laquelle le comptage n'est pas permis.

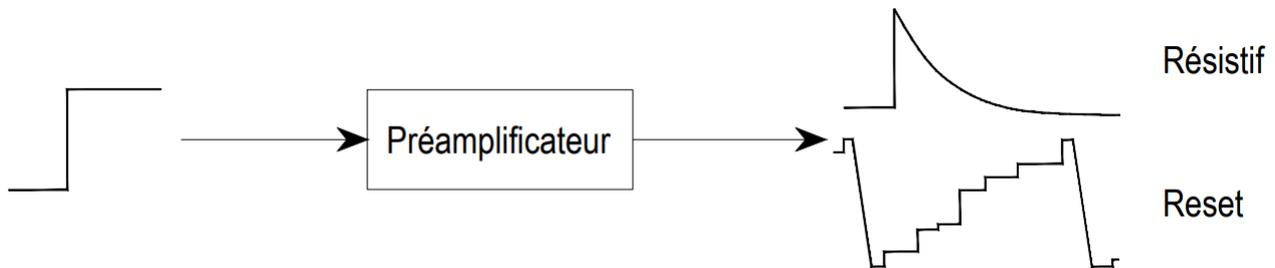


FIGURE 2.4 – Signal en sortie du préamplificateur à retour résistif ou à « *reset* »

## Amplificateurs

L'amplificateur a plusieurs fonctions : outre l'amplification du signal, il a pour but de le mettre en forme, d'annuler le pôle zéro, d'assurer le retour à la ligne de base ainsi que le rejet des empilements et autres fonctions. Plusieurs types de mise en forme du signal sont possibles. Parmi celles-ci, la mise en forme gaussienne est très utilisée en spectrométrie de photons, cependant elle n'est pas parfaite et le signal de sortie a plutôt une forme semi-gaussienne. Sur les amplificateurs modernes, la mise en forme triangulaire est possible, le bruit relatif est plus faible. Cependant, comme pour la mise en forme gaussienne, elle est quasi-triangulaire ou trapézoïdale. La figure 2.5 présente un exemple de mise en forme gaussienne ou triangulaire. Dans le cas de l'utilisation d'un préamplificateur à retour résistif, une longue traîne est visible sur le signal en sortie. Il se peut que, lors du retour à zéro de la tension, le signal passe par des valeurs négatives avant de revenir à une valeur nulle (ligne de base). Il s'agit de ce que l'on appelle le pôle zéro. Si une seconde impulsion arrive alors que le pôle zéro n'est pas compensé, elle risque de

ne pas être correctement interprétée par l'électronique. Pour corriger cet effet, l'amplificateur est équipé d'un circuit de compensation du pôle zéro (circuit PZ). Lors de taux de comptage très élevés, il est possible d'observer une variation de la ligne de base ce qui a pour effet de dégrader la résolution. L'amplificateur est pourvu d'un circuit de restauration de ligne de base permettant de corriger ce problème. Il permet également de corriger d'autres effets indésirables comme les empilements, mais sa fonction première est l'amplification du signal en provenance du préamplificateur afin que la tension atteigne des valeurs suffisantes pour être facilement sélectionnée par l'analyseur multi-canaux.

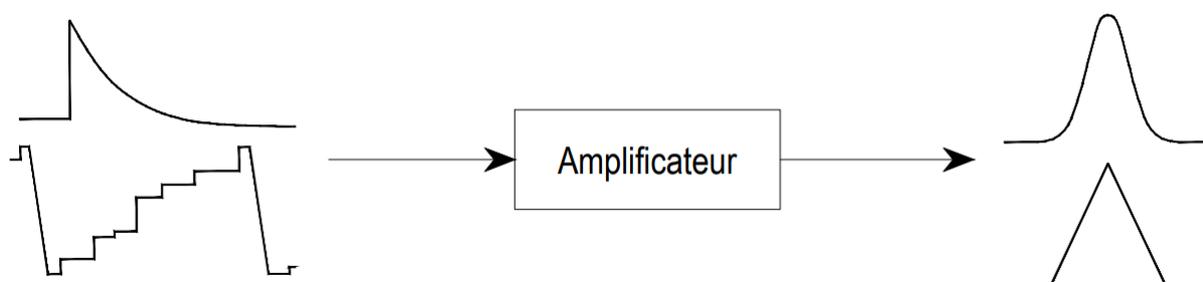


FIGURE 2.5 – Schéma du signal en sortie de l'amplificateur avec une mise en forme gaussienne (haut) ou triangulaire (bas)

## Analyseur multi-canaux

L'analyseur multi-canaux combine un convertisseur analogique-numérique (CAN) et une suite de circuits logiques permettant le stockage des données. Le CAN convertit le signal analogique en provenance de l'amplificateur en un signal numérique, dont l'amplitude dépend de l'énergie déposée dans le détecteur par le photon. Cette information est ensuite stockée et rangée dans un canal, correspondant à la hauteur d'impulsion du signal. De plus, l'analyseur enregistre les diverses informations de l'acquisition. Le résultat obtenu grâce à un logiciel de visualisation est un histogramme des impulsions enregistrées pendant la durée de l'acquisition. Grâce à un étalonnage en énergie, il est possible de relier chaque canal à une énergie.

## Logiciel d'acquisition

Le logiciel d'acquisition est l'interface entre l'utilisateur et la chaîne de spectrométrie. Il permet de piloter l'acquisition d'une source radioactive depuis un ordinateur puis d'enregistrer le spectre ainsi obtenu. Il est possible, en outre, de récupérer certaines informations sur cette acquisition qui ont été stockées par le MCA : la date d'acquisition, le temps actif, le temps réel, le temps mort, etc. Il existe plusieurs logiciels d'acquisitions disponibles dans le commerce comme GENIE2000 (CANBERRA), GammaVision (ORTEC), InterWinner (ITECH), etc.

## Temps mort

Lorsqu'un photon interagit avec le détecteur, la chaîne d'acquisition transforme le signal provenant du détecteur en un signal mesurable, cependant cela prend un certain temps (quelques  $\mu\text{s}$ ). Pendant la durée de ce traitement, le système est inactif, si un autre photon arrive dans le détecteur, il ne sera pas détecté. Un temps de latence est requis pour que la chaîne d'acquisition

puisse à nouveau enregistrer le passage d'un photon. Ce temps dit mort permet de définir le temps réel d'acquisition comme étant le temps pendant lequel le détecteur est actif (temps actif) auquel est ajouté le temps mort. Bien souvent le programme d'acquisition du détecteur estime lui-même la durée de ce temps mort.

**Remarque** : Pour des acquisitions à fort taux de comptage, il convient de vérifier la linéarité de la réponse lorsque le temps mort augmente de façon significative ( $> 10\%$ ) (voir section 4.2).

## Électronique numérique

Depuis plusieurs années, le traitement numérique des signaux se développe dans l'ensemble des systèmes de mesure nucléaire. Les vitesses accrues d'échantillonnage et les techniques de programmation de type FPGA (Field Programmable Gate Array) permettent de traiter les signaux en reproduisant les différents traitements (mise en forme, amplification, codage) initialement effectués par des circuits analogiques, et qui peuvent désormais être effectués par un module unique. En complément, des traitements spécifiques sont envisageables, permettant de tenir compte de la forme de signaux, à des fins de discrimination ou d'autres types de reconnaissance. De manière pratique, pour la spectrométrie  $\gamma$ , des modules numériques commerciaux sont désormais disponibles et sont amenés à remplacer l'ensemble de la chaîne électronique traditionnelle. Cette simplification de la chaîne d'analyse est contrebalancée par la nécessité de régler un ensemble de paramètres afin d'optimiser le système : ainsi une partie des réglages d'amplification, de mise en forme et de codage sont alors effectués à partir d'un logiciel intégré au module numérique ; d'autres options plus avancées sont également disponibles. Un exemple de comparaison d'un module numérique avec l'électronique analogique est développé dans la section 4.2.

### 2.1.3 Géométrie de mesure

Lors de la mesure d'une source radioactive par spectrométrie de photons, il est important de définir au mieux la géométrie de mesure. Une géométrie de référence, conventionnellement adoptée, au LNE-LNHB pour les étalonnages en rendement est la « source ponctuelle », il s'agit d'une goutte de solution radioactive séchée et déposée entre deux films minces de Mylar<sup>®</sup>. Le tout est inséré dans une bague en plastique permettant sa manipulation. Elle est placée à une grande distance du détecteur par rapport à la taille de la goutte radioactive, typiquement une dizaine de centimètres. De cette façon, la source peut être considérée comme ponctuelle et cela limite le phénomène des coïncidences vraies. Mais il arrive que la source mesurée ne puisse plus être considérée comme ponctuelle, ce qui est le cas pour les dosimètres. Un facteur de correction prenant en compte l'absorption dans la source, la variation de l'angle solide de détection ainsi que le changement d'autres paramètres doit alors être déterminé afin de tenir compte du changement des conditions de mesures par rapport aux conditions d'étalonnage. Cette correction est d'autant plus importante que l'énergie des photons est faible ; elle sera détaillée dans la section 5.1.

## 2.2 Étalonnage

L'étalonnage du détecteur est une étape fondamentale pour les mesures par spectrométrie de photons [23], [22] et [17]. Celle-ci n'étant pas une méthode primaire de mesure de la radioactivité,

l'utilisation de sources étalons est requise pour étalonner le détecteur en énergie, en résolution et en rendement. Le paramètre important en spectrométrie de photons est le pic d'absorption totale (*full-energy peak* ou *FEP*) qui résulte du dépôt de toute l'énergie du photon incident dans le volume actif du détecteur. La position et la surface du pic permettent de déterminer l'énergie incidente, et donc d'identifier le radionucléide, et de quantifier son niveau de radioactivité. En effet, la surface de ce pic est proportionnelle au nombre de photons émis par la source, au rendement du détecteur et à la durée d'acquisition du spectre :

$$N_P = A I(E) \varepsilon(E) t \prod_i C_i \quad (2.1)$$

Où  $A$  est l'activité de la source,  $I(E)$  l'intensité d'émission de la raie d'énergie  $E$ ,  $\varepsilon(E)$  le rendement du détecteur à l'énergie  $E$ ,  $t$  la durée d'acquisition et  $\prod_i C_i$  le produit de l'ensemble des facteurs de correction. Si l'activité de la source mesurée est connue, c'est à dire mesurée par une méthode primaire, et que le rendement du détecteur est connu, il est possible d'utiliser la même formule pour déterminer les intensités d'émission du radionucléide présent dans la source radioactive mesurée. À partir de la surface du pic d'absorption totale  $N_P$  et en connaissant le rendement du détecteur, il est possible également de déterminer l'activité d'une source radioactive.

### 2.2.1 Sources étalons

Pour l'étalonnage, il convient d'utiliser des sources étalons les plus pures possibles où un seul radionucléide est présent. Les radionucléides sont choisis en fonction de la gamme d'énergie d'utilisation du détecteur et selon les connaissances de leurs données de décroissance. C'est-à-dire avec la plus faible incertitude possible sur les intensités d'émissions des photons et la période. Au LNHB, l'activité des sources étalons est déterminée par des méthodes primaires (sans étalon) et un certificat d'étalonnage mentionnant le radionucléide et son activité à la date de référence atteste de cette traçabilité (voir annexe). Parmi les radionucléides couramment utilisés, se trouvent  $^{22}\text{Na}$ ,  $^{57}\text{Co}$ ,  $^{59}\text{Fe}$ ,  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{88}\text{Y}$ ,  $^{109}\text{Cd}$ ,  $^{131}\text{I}$ ,  $^{133}\text{Ba}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{152}\text{Eu}$ ,  $^{241}\text{Am}$ .

### 2.2.2 Étalonnage en énergie

Comme nous l'avons vu dans le paragraphe 2.1.2, les impulsions provoquées par l'interaction des photons dans le détecteur sont stockées dans des canaux par le système électronique. À partir de l'énergie des photons des radionucléides utilisés lors de l'étalonnage, il est possible de faire correspondre un numéro de canal à une énergie donnée. Ainsi on obtient la courbe d'étalonnage en énergie par la relation polynomiale suivante :

$$E(\text{keV}) = E_0 + G_1 C + G_2 C^2 + G_3 C^3 + \dots \quad (2.2)$$

Où  $C$  est le numéro de canal,  $E_0$  est l'énergie au canal 0 et  $G_i$  est le gain de conversion canal-énergie. Dans la majorité des cas, un ajustement linéaire est suffisant. L'étalonnage en énergie dépend directement de l'estimation de la position du centroïde du pic.

### 2.2.3 Étalonnage en résolution

Comme il a été expliqué dans le paragraphe 2.1.1, pour une même énergie incidente, le nombre de paires électrons-trous créées lors de l'interaction d'un photon dans le détecteur n'est pas constant et lors de la migration des charges vers les électrodes, elles peuvent se recombiner ou en produire de nouvelles. De ce fait, le pic induit par un faisceau de photons mono-énergétiques ne correspondra pas à une fonction de Dirac sur le spectre en énergie mais il aura une certaine largeur s'apparentant à une fonction de Gauss ou de Voigt (voir paragraphe 2.4.2). De plus, le bruit de fond de la chaîne électronique contribue également à la largeur du pic. La résolution en énergie, ou largeur à mi-hauteur (*FWHM* en anglais), est généralement approximée par la relation suivante :

$$W_T^2 = W_P^2 + W_C^2 + W_E^2 \quad (2.3)$$

Le premier terme  $W_P^2$  correspond à la fluctuation du nombre de porteurs de charges créés dans le détecteur :

$$W_P^2 = 2,355^2 F \epsilon E \quad (2.4)$$

Où  $\epsilon$  est l'énergie moyenne pour créer une paire électron-trou (2,96 eV pour le Ge),  $E$  est l'énergie du photon incident et  $F$  le facteur de Fano. La présence de ce dernier s'explique par le fait que la statistique de création de paires n'obéit pas exactement à une loi de Poisson, où les événements sont indépendants les uns des autres. Le facteur de Fano [34], [35] et [36] est le rapport de la variance observée du nombre de paires créées sur la variance suivant la loi de Poisson. Ce facteur est très difficile à calculer théoriquement car il dépend de la qualité du cristal de détection, il est en général mesuré. Il est typiquement de 0,1 pour le germanium et le silicium.

Le deuxième terme de l'équation 2.3,  $W_C^2$ , correspond à la statistique de collection de charges et il est admis qu'il varie en fonction du carré de l'énergie du photon incident.

Le dernier terme de l'équation,  $W_E^2$ , correspond au bruit électronique, qui est indépendant de l'énergie du photon incident. On obtient alors l'équation suivante :

$$FWHM = W_T^2 = a E^2 + b E + c \quad (2.5)$$

Où  $a$ ,  $b$  et  $c$  sont des constantes. La résolution d'un détecteur varie donc quadratiquement en fonction de l'énergie. Comme dans le cas de l'étalonnage en énergie, pour étalonner le détecteur en résolution, les émissions  $\gamma$  de radionucléides étalons sont utilisés. L'ajustement de celles-ci étant des fonctions de Gauss, la largeur à mi-hauteur est directement proportionnelle à l'écart-type  $\sigma$  :

$$FWHM \approx 2,355 \sigma \quad (2.6)$$

La figure 2.6 présente un exemple de l'étalonnage en résolution d'un spectromètre. Le graphe représente l'évolution du carré de l'écart-type de la gaussienne en fonction de l'énergie ; ainsi sa variation est quasiment linéaire. La pente de cette droite permet de déduire le facteur de Fano caractéristique de ce détecteur, en utilisant l'énergie moyenne de création de paires  $\epsilon=2,96$  eV pour le germanium à 77 K.

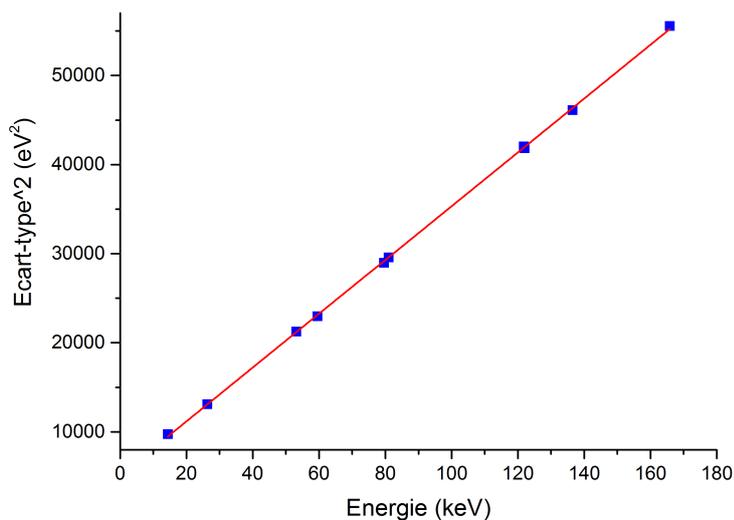


FIGURE 2.6 – Carré de l'écart-type de la gaussienne en fonction de l'énergie

## 2.2.4 Étalonnage en rendement

Le rendement d'absorption totale du détecteur est un paramètre critique pour la mesure de radioactivité ou d'intensités d'émission de photons. Sa valeur dépend fortement de l'angle solide de la géométrie de mesure ainsi que des phénomènes physiques, interactions électron et rayonnement-matière, à l'œuvre dans le détecteur. Le rendement d'absorption totale du détecteur est défini par le rapport entre le nombre de photons déposant toute leur énergie dans le détecteur et le nombre total de photons émis par la source sur  $4\pi$  sr. Autrement dit, le produit de la probabilité que le photon soit émis dans la direction du détecteur ( $\varepsilon_G$ ) par la probabilité qu'il soit détecté par celui-ci ( $\varepsilon_I$ ) :

$$\varepsilon = \varepsilon_G \varepsilon_I = \frac{\Omega}{4\pi} \varepsilon_I \quad (2.7)$$

Où  $\Omega$  est l'angle solide de détection. Le rendement d'absorption totale peut être séparé en deux composantes :  $\varepsilon_I$  qui est le rendement intrinsèque du détecteur et  $\varepsilon_G$  le rendement géométrique. Si ce dernier peut être aisément déterminé par calcul, dans le cas d'une source ponctuelle, puisqu'il est possible de définir précisément les paramètres géométriques dans les conditions d'étalonnage, le rendement intrinsèque est plus complexe à déterminer théoriquement. Effectivement, il requiert les caractéristiques du cristal de germanium comme son volume actif (zone de déplétion du semi-conducteur), son épaisseur des zones mortes, etc. Ainsi que la prise en compte de l'ensemble des interactions.

### Rendement expérimental

L'approche traditionnelle est l'utilisation de sources radioactives étalons dont l'activité est certifiée à une date de référence indiquée (voir paragraphe 2.2.1). Pour une géométrie de référence donnée, le rendement du détecteur pour l'énergie  $E$  de l'émission est défini par la relation

suivante :

$$\varepsilon(E) = \frac{N_P}{A I(E) t} \prod_i C_i \quad (2.8)$$

Ainsi, grâce à l'utilisation de nombreux radionucléides différents dans les mêmes conditions de mesure, il est possible d'avoir un ensemble de valeurs discrètes du rendement. Le rendement de détection est alors déterminé. Pour cela, une fonction mathématique est ajustée avec le logiciel ACORES [37] développé au LNHB pour permettre un tel ajustement grâce à deux types de fonctions mathématiques polynomiales « Apolog » et « Apocope » :

$$\text{Apolog} : \log(\varepsilon) = \sum_{k=1}^n a_k \log(E)^{k-1} \quad (2.9)$$

$$\text{Apocope} : \log(\varepsilon) = \sum_{k=1}^n a_k \left(\frac{1}{E}\right)^{k-1} \quad (2.10)$$

L'ajustement des fonctions s'effectue par la méthode du  $\chi^2$ . L'utilisation d'un polynôme de faible degré est recommandé, pour éviter des oscillations dans la fonction d'ajustement ne correspondant à aucune réalité physique. La figure 2.7 présente un exemple d'ajustement avec une fonction Apolog. La forme de la courbe est influencée par l'interaction des photons dans le détecteur. En basse énergie, l'absorption dans les matériaux de la fenêtre et la zone morte du cristal ont une forte influence sur la forme de la courbe de rendement. Ensuite la courbe passe par un maximum, qui correspond au maximum d'absorption des photons, puis diminue à nouveau vers les hautes énergies du fait de la diminution de l'absorption des photons dans le cristal.

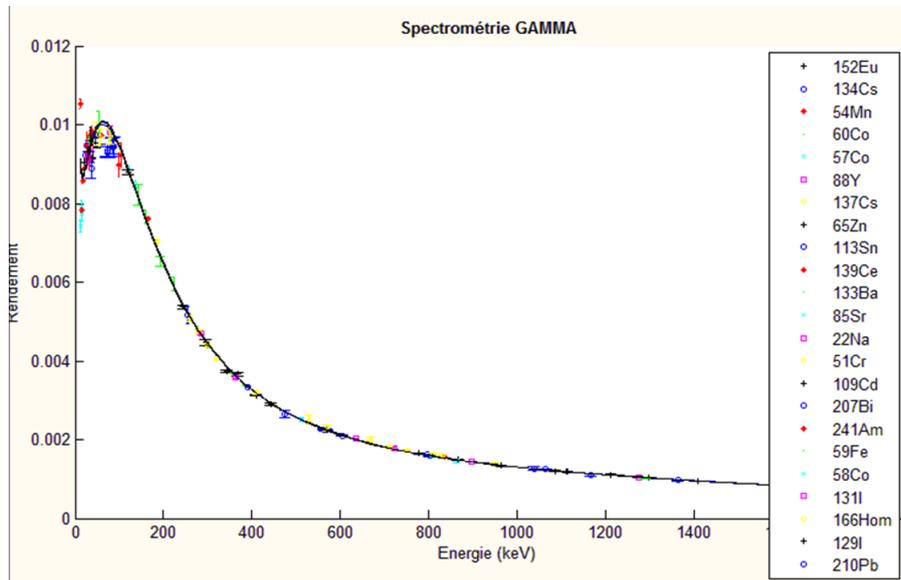


FIGURE 2.7 – Exemple d'un ajustement d'une fonction Apolog à des points expérimentaux du rendement

## Rendement théorique

Le rendement d'absorption totale est également défini par :

$$\varepsilon(E) = \frac{\Omega}{4\pi} \varepsilon_I(E) \quad (2.11)$$

L'angle solide peut être calculé facilement à partir du moment où le diamètre du détecteur est connu, généralement indiqué par son fabricant. Le rendement intrinsèque peut être déterminé soit de manière analytique, soit par l'utilisation d'outil de transport de particules par méthode Monte Carlo, comme GEANT4 ou PENELOPE. Pour calculer le rendement à l'aide d'une expression analytique, il convient de tenir compte des atténuations durant le parcours des photons entre la source et le détecteur (dans l'air, la fenêtre d'entrée, la zone morte, ...), l'absorption dans le volume actif, la probabilité d'échappement des rayons XK du germanium ainsi que de tous les autres événements ne conduisant pas à un dépôt complet de l'énergie du photon incident (échappement du photoélectron de la zone active, effet Compton, ...). Dans le cas d'un détecteur plan, le rendement intrinsèque peut s'exprimer ainsi [23] :

$$\varepsilon_I = e^{-\sum_i \frac{\mu}{\rho}(i) \rho_i e_i} (1 - e^{-\frac{\mu}{\rho}(Ge) \rho_{Ge} e_{Ge}}) C_e C_c \quad (2.12)$$

Le premier terme représente l'atténuation dans le matériau  $i$  de coefficient d'atténuation  $\frac{\mu}{\rho}(i)$ , de masse volumique  $\rho_i$  et d'épaisseur  $e_i$ . Le second terme est l'absorption dans le détecteur,  $C_e$  est un facteur de correction pour les échappements des rayons XK du germanium et  $C_c$  un facteur de correction pour tenir compte des autres événements ne conduisant pas au dépôt total de l'énergie par le photon dans le détecteur, qui ne peut être déterminé qu'expérimentalement.

## Rendement total

Le rendement total  $\varepsilon_T$  d'un détecteur est défini comme le rapport du nombre d'événements enregistrés sur l'ensemble du spectre par le nombre total de photons émis par la source à l'énergie  $E$ . Il représente donc la probabilité de déposer tout ou partie de l'énergie incidente dans le détecteur. Le rendement total tient compte des interactions en dehors du détecteur (support de source, blindage, etc.) et des diffusions ; il est donc plus élevé que le rendement d'absorption totale. Pour le déterminer expérimentalement, il est préférable d'utiliser des radionucléides monoénergétiques, comme le  $^{137}\text{Cs}$ . Une autre méthode consiste à le calculer par simulation Monte Carlo.

**Remarque** : Par défaut, le rendement d'absorption totale sera désigné par rendement dans la suite du mémoire.

## 2.3 Facteurs de correction

Lors de la mesure de l'activité d'une source, d'intensités d'émission ou même lors de l'éta-lonnage en rendement, différents facteurs de correction [38] doivent être pris en compte et déterminés le plus rigoureusement possible afin d'obtenir des résultats fiables. Pour un même radionucléide, certains de ces facteurs sont indépendants de l'énergie tandis que d'autres ont des valeurs différentes suivant l'énergie des photons émis par la source.

### 2.3.1 Correction de décroissance à la date de référence

Ce facteur de correction prend en compte la décroissance radioactive entre la date  $T_0$  de référence de la mesure d'activité de la source (si celle-ci est connue) et la date  $T_m$  du début de l'acquisition :

$$C_T = e^{-\ln 2 \frac{T_m - T_0}{T_{1/2}}} \quad (2.13)$$

Il s'agit uniquement du cas où le radionucléide mesuré ne fait pas partie d'une chaîne de désintégration. Dans ce dernier cas, le facteur de correction doit être calculé en tenant compte de la décroissance du nucléide père et du nucléide fils.

### 2.3.2 Correction de décroissance

Pendant la durée de l'acquisition, l'activité de la source mesurée diminue également. Si sa période est très grande devant la durée de la mesure, cet effet peut être négligé, sinon un facteur de correction tenant compte de cette décroissance pendant l'acquisition doit être calculé. Si le radionucléide ne fait pas partie d'une chaîne de désintégration, le facteur de correction de décroissance est :

$$C_{Dec} = \frac{\ln 2 \frac{T_r}{T_{1/2}}}{1 - e^{-\ln 2 \frac{T_r}{T_{1/2}}}} \quad (2.14)$$

Où  $T_r$  est la durée réelle d'acquisition (temps réel, voir paragraphe 2.1.2). Le cas d'une chaîne de désintégration nécessite un traitement spécifique qui est dépendant de la chaîne étudiée [21].

### 2.3.3 Correction d'atténuation

Dans le but de réduire le taux de comptage ou les effets de coïncidences, un écran absorbant les rayons X peut être placé entre la source et le détecteur. L'atténuation des photons dans celui-ci doit alors être calculée en utilisant simplement la loi de Beer-Lambert :

$$C_{Att}(E) = e^{-\frac{\mu}{\rho}(E) \rho e} \quad (2.15)$$

Où  $\frac{\mu}{\rho}(E)$  est le coefficient d'atténuation massique du matériau de l'écran,  $\rho$  sa masse volumique et  $e$  l'épaisseur de l'écran.

### 2.3.4 Correction de géométrie

La distance de mesure des sources étalons lors de l'étalonnage en rendement est définie et sert de référence lors de la mesure d'autres sources radioactives. Pour augmenter le taux de comptage, si l'activité de la source est faible, ou dans le cas contraire pour le diminuer, et donc limiter le temps mort, il arrive toutefois que la distance source-détecteur soit différente de celle définie par l'étalonnage. Le facteur de correction tenant compte du changement de distance est simplement le rapport entre l'angle solide de l'étalonnage et l'angle solide de mesure, sa valeur ne dépendant pas de l'énergie des photons émis par la source dans le cas où les phénomènes de diffusion sont négligeables. Si la géométrie de la source change, il faut également tenir compte de la variation de l'auto-absorption dans le matériau de la source. C'est le cas des dosimètres qui sera développé au paragraphe 2.5.2).

### 2.3.5 Correction des coïncidences

Le phénomène de coïncidences résulte de l'impossibilité du détecteur à séparer les signaux produits lorsque deux photons ou plus sont émis en cascade. En effet, lorsqu'un radionucléide se désintègre et que le noyau fils se retrouve dans un niveau excité, il ne se désexcite pas toujours vers l'état fondamental et peut passer par plusieurs niveaux excités. Les durées de vie des niveaux intermédiaires (de l'ordre de la picoseconde) sont, dans la majorité des cas, très inférieures au temps de résolution du détecteur (quelques microsecondes). Dans le cas où ces photons sont absorbés par le détecteur, un signal unique correspondant à la somme des énergies déposées par les photons, au lieu de signaux individuels, est délivré en sortie du préamplificateur. Cet effet est propre à un radionucléide, il dépend du schéma de décroissance de celui-ci. Il est également fortement lié à la géométrie de mesure et donc au rendement du détecteur. Dans le cas d'une source ponctuelle, le facteur de correction peut être calculé par l'association du rendement d'absorption totale et du rendement total avec le schéma de désintégration :

$$\begin{aligned}
 C_{coic}(E_i; X) = & 1 - \sum_j \frac{p_{ij}}{p_i} \varepsilon_{T_j} + \sum_{j,k} \frac{p_{ijk}}{p_i} \varepsilon_{T_j} \varepsilon_{T_k} - \dots \\
 & + \sum_{p,q} \frac{p_{pq}}{p_i} \frac{\varepsilon_p \varepsilon_q}{\varepsilon_i} - \sum_{p,q,r} \frac{p_{pqr}}{p_i} \frac{\varepsilon_p \varepsilon_q \varepsilon_r}{\varepsilon_i} + \dots
 \end{aligned} \tag{2.16}$$

Ce facteur pour l'énergie  $E_i$  d'un radionucléide  $X$  est défini comme le rapport entre le rendement d'absorption totale apparent à l'énergie  $E_i$  et le rendement à la même énergie sans coïncidences.  $p_i$  est la probabilité d'émission d'un photon d'énergie  $E_i$ , de même que  $p_{ij}$  et  $p_{ijk}$  représentent les probabilités d'émissions conjointes de photons d'énergie  $(E_i, E_j)$  et  $(E_i, E_j, E_k)$ , respectivement.  $\varepsilon_i$  et  $\varepsilon_{T_i}$  sont le rendement d'absorption totale et le rendement total du détecteur pour l'énergie  $E_i$ , respectivement. Il existe des logiciels dédiés au calcul de la correction de coïncidences comme ETNA, développé par le LNHB, ou GESPECOR [39], [40] et [41], ANGLE [42], etc. Il est possible de déterminer également ce facteur de correction par l'utilisation de méthodes Monte Carlo.

## 2.4 Traitement des spectres

Le résultat d'une acquisition est un spectre en énergie s'apparentant à un ensemble de pics superposés à un fond continu. Un pic est caractérisé par sa position, propre à l'énergie émise par le radionucléide, sa largeur à mi-hauteur, et sa surface qui est proportionnelle au nombre de photons émis, lui-même dépendant du radionucléide mesuré et à l'activité de la source. Ces informations sont les plus importantes pour une mesure et leur précision impacte significativement la qualité des résultats. Les logiciels commerciaux permettent des traitements de pics avec des formes simples comme un triangle ou une gaussienne (voir paragraphe 2.1.2), et sont utilisés pour des analyses comparatives. Cependant, les modèles proposés par ces logiciels sont inadaptés à la précision requise en métrologie. Un logiciel a été spécifiquement conçu dans cette optique au LNHB, COLEGRAM [43], qui propose différentes formes de pics et de fonds à ajuster aux données expérimentales, par une méthode des moindres carrés non-linéaire.

### 2.4.1 Description d'un spectre

Le pic d'absorption totale est le résultat du dépôt total de l'énergie d'un photon dans le détecteur lorsque celui-ci interagit par un effet photoélectrique ou par une ou plusieurs diffusions Compton, suivies ou non d'une absorption (voir figure 2.9). Cependant, suite à ces interactions, il arrive que des électrons primaires (photoélectrons ou électrons Compton) ou secondaires (Auger), et des photons diffusés s'échappent du détecteur, générant des événements à plus basse énergie.

De même, suite au réarrangement de la structure électronique du germanium, des rayons XK du germanium peuvent être émis et s'échapper du volume du détecteur, emportant avec eux une partie de l'énergie du photon incident. Ce phénomène contribue à diminuer le nombre d'événements sous le pic d'absorption totale. Les pics correspondants à l'énergie du photon moins l'énergie des rayons XK sont appelés pics d'échappement du germanium.

Dans le cas d'unique ou de multiples interactions par effet Compton dans le détecteur ou son environnement, les photons sont enregistrés avec une énergie plus faible que leur énergie incidente. Un fond continu dit fond Compton apparaît ainsi aux énergies intermédiaires, avec son front Compton, correspondant au dépôt d'énergie maximum par effet Compton dans le détecteur. Il est possible également de remarquer des événements entre le front Compton et le pic d'absorption totale, correspondant aux dépôts d'énergie successifs suite à de multiples interactions Compton dans le détecteur.

Si le photon incident a une énergie supérieure à 1022 keV, celui-ci a une certaine probabilité d'interagir par création de paire électron-positron. Suite à cette interaction, le positron va s'annihiler très rapidement avec un électron et créer deux photons ayant une énergie de 511 keV. À partir de là, il existe plusieurs possibilités. La première est l'échappement des deux photons sans aucune interaction dans le détecteur, provoquant ainsi l'apparition d'un pic à l'énergie du photon incident moins 1022 keV, appelé pic de double échappement. Deuxième possibilité, un seul des deux photons de 511 keV s'échappe du germanium et soit l'autre interagit par effet photo-électrique et contribue à générer des événements dans le pic de simple échappement (énergie du photon incident moins 511 keV), soit il interagit par effet Compton et contribue alors au fond Compton. La troisième et dernière possibilité est que les deux photons interagissent dans le détecteur soit par effet photo-électrique, et contribuent aux événements dans le pic d'absorption totale, soit par effet Compton et ils contribuent ainsi au fond Compton.

Les photons interagissent également dans l'ensemble de l'environnement du détecteur (cellule en plomb, support de source, collimateurs, etc.) ce qui ajoute des événements supplémentaires dans le spectre : fond Compton, pics de fluorescence, pic d'annihilation à 511 keV, pic de rétrodiffusion, fond de Bremsstrahlung, etc. Les figures 2.8 et 2.9 résument ces différentes interactions et leurs effets sur un spectre (exemple avec un spectre de  $^{28}\text{Al}$ ).

Le mouvement propre du détecteur contribue également au fond continu, mais il peut être soustrait à partir du spectre enregistré sans source radioactive. Le fond continu du spectre ne contient aucune information utile et doit être soustrait du pic d'absorption totale. De forme continue et monotone, en dehors des angles préférentiels de diffusion Compton, le fond est généralement représenté par une fonction polynomiale de faible degré. La méthode retenue sur le logiciel COLEGRAM est de soustraire le fond continu dans une région d'intérêt au début du traitement, en tenant compte de la discontinuité induite par la présence du (des) pic(s) d'absorption totale.

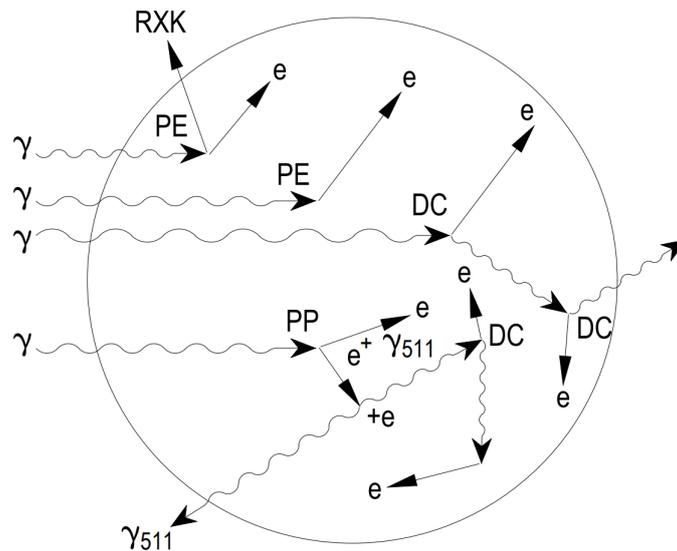


FIGURE 2.8 – Illustration de différentes interactions des photons dans un détecteur. PE = Effet PhotoÉlectrique ; PP = Production de Paires ; DC = Diffusion Compton ; RXK = photons de fluorescence K du germanium

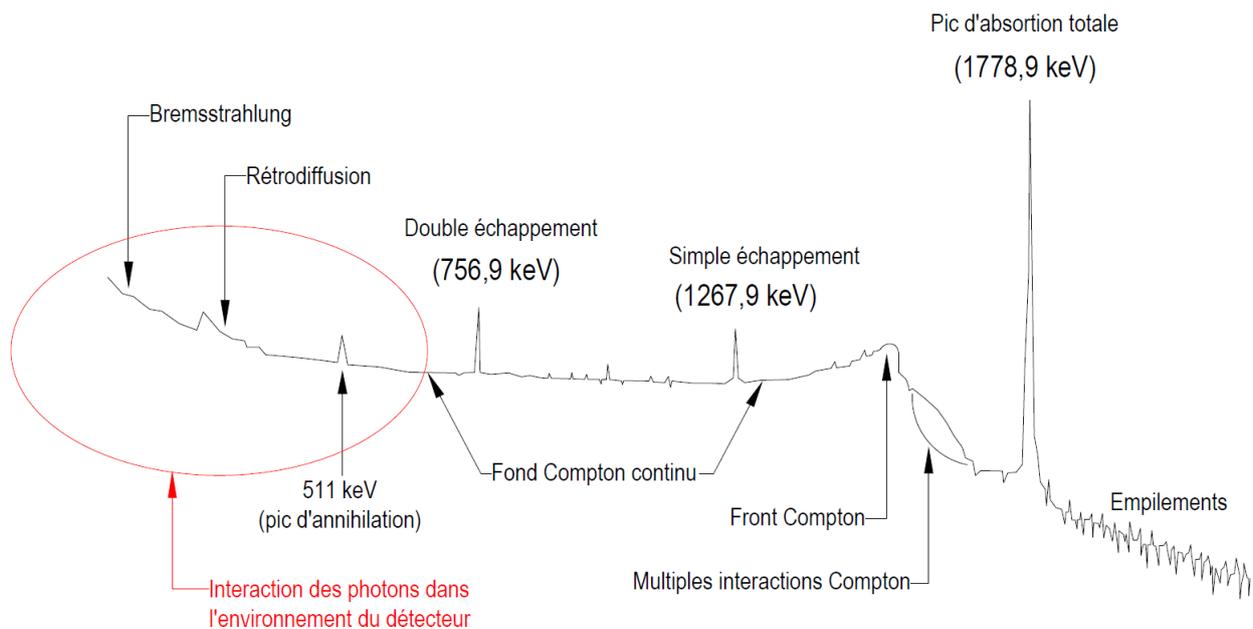


FIGURE 2.9 – Illustration des différents effets dans un spectre, exemple de  $^{28}\text{Al}$

## 2.4.2 Traitement d'un pic

Après avoir défini une région d'intérêt associée à un (ou plusieurs) pic(s), dont le calcul de la surface est souhaité, il est possible d'ajuster les contenus de canaux par des fonctions de différentes natures selon la nature de la particule à l'origine du pic (photon,  $\alpha$ , électron). Dans notre cas, nous nous intéressons uniquement au cas du traitement de pics induits par l'interaction des photons. Cependant, il existe plusieurs types d'ajustements possibles selon l'origine du rayonnement (X ou  $\gamma$ ). Dans le cas d'un rayonnement  $\gamma$ , l'ajustement par une

fonction de Gauss est généralement bien adapté :

$$G(E) = \frac{A}{\sigma\sqrt{2\pi}} e^{-\frac{(E-E_0)^2}{2\sigma^2}} \quad (2.17)$$

Où  $A$  est l'amplitude de la gaussienne,  $\sigma$  son écart-type et  $E_0$  est le centroïde. La surface du pic est déterminée à partir des paramètres d'ajustement, comme la surface totale de la Gaussienne :

$$S(E) = \sqrt{2\pi} \sigma G \quad (2.18)$$

Dans le cas des basses énergies, il est possible d'observer une traîne à gauche du pic. La convolution de la fonction gaussienne avec une fonction exponentielle décroissante tronquée permet de prendre en compte cet effet avec la composante  $T(E)$  :

$$GT(E) = G(E) + T(E) \quad (2.19)$$

Avec :

$$T(E) = A e^{\frac{E-E_0}{\tau} + \frac{\sigma^2}{2\tau^2}} \operatorname{erfc} \left[ \frac{1}{\sqrt{2}} \left( \frac{E-E_0}{\sigma} + \frac{\sigma}{\tau} \right) \right] \quad (2.20)$$

Le cas des rayons X est un peu plus compliqué à traiter. En effet, en plus de la largeur gaussienne, il faut tenir compte de la largeur naturelle due à la durée de vie des états électroniques. Dans certains cas, cette largeur peut atteindre quelques dizaines d'eV en basse énergie, ce qui peut être non-négligeable au regard de la résolution en énergie des détecteurs. Cette largeur est prise en compte par le résultat de la convolution d'une fonction lorentzienne,  $L(E)$ , par une fonction gaussienne, appelée fonction de Voigt,  $V(E)$  :

$$V(E) = \int_{-\infty}^{+\infty} L(E') \cdot G(E-E') dE' \quad (2.21)$$

Avec :

$$L(E) = \frac{\Gamma/2\pi}{(E-E_0)^2 + (\Gamma/2)^2} \quad (2.22)$$

Où  $\Gamma$  est la largeur de la fonction lorentzienne. De même que pour la fonction gaussienne, il est possible d'ajouter une traîne à la fonction de Voigt pour prendre en compte ces effets à basse énergie.

### 2.4.3 Diffusion à basse énergie

La diffusion Compton peut avoir lieu dans la source (une source réelle n'étant jamais parfaitement ponctuelle), le support de source, le détecteur ou son capot. La figure 2.10 présente l'évolution de la différence entre l'énergie des photons provenant directement de la source et celle des photons diffusés en fonction de la distribution angulaire de la diffusion, selon l'équation 1.34. Pour des énergies inférieures à 30 keV, la différence en énergie est assez faible pour que, en tenant compte de la résolution du détecteur, les photons diffusés soient enregistrés très près du pic d'absorption totale. L'enregistrement de ces événements prend l'apparence d'une pente sur la gauche du pic et perturbe ainsi le traitement des pics. Pour les énergies supérieures, l'écart en énergie est suffisamment important et la surface du pic peut être déterminée sans ambiguïté. Les figures 2.11, 2.12 et 2.13 présentent l'évolution des photons diffusés (surfaces en rouge) par rapport au pic d'absorption totale pour différents radionucléides.  $^{88}\text{Y}$  : entre 14 et 16 keV ;

$^{133}\text{Ba}$  : entre 30 et 36 keV ;  $^{241}\text{Am}$  : environ 60 keV.

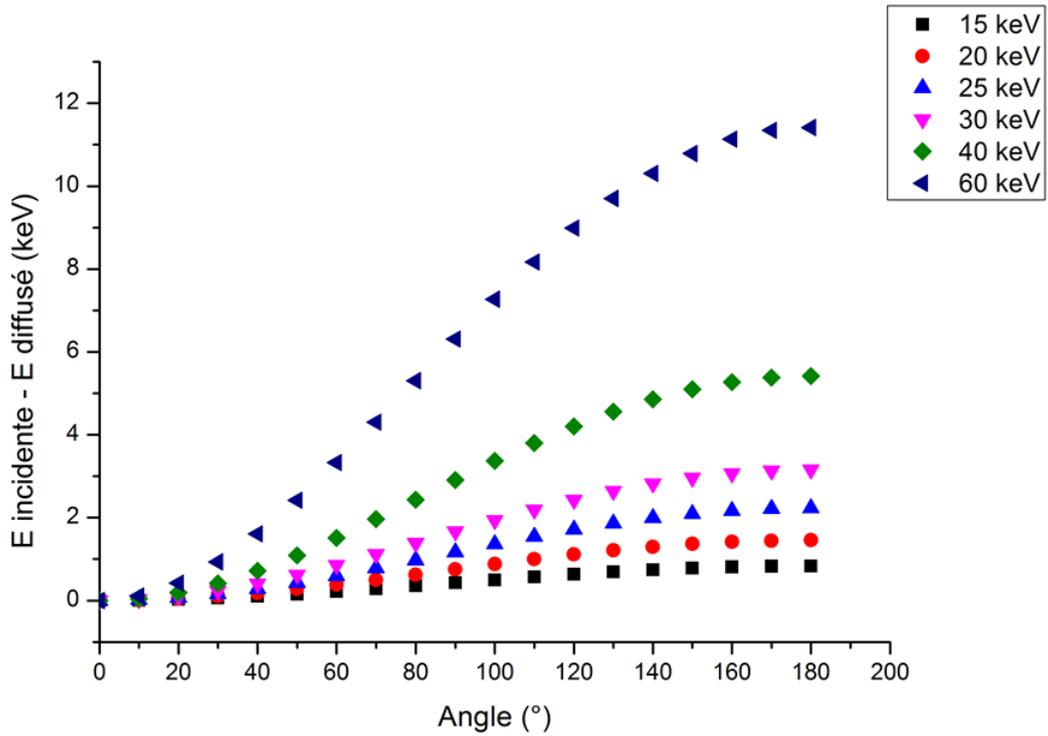


FIGURE 2.10 – Différence entre l'énergie des photons incidents et celle des photons diffusés en fonction de l'angle de diffusion pour différentes énergies de photons incidents

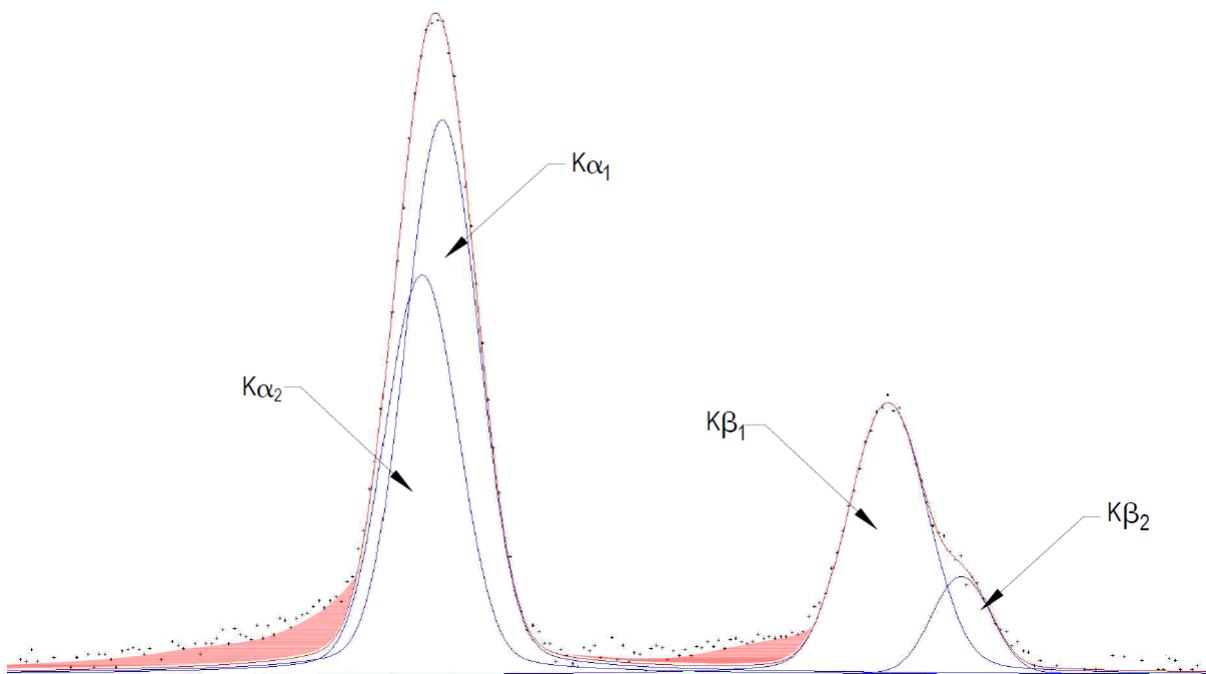


FIGURE 2.11 – Spectre de  $^{88}\text{Y}$  avec des XK dans la région 14-16 keV

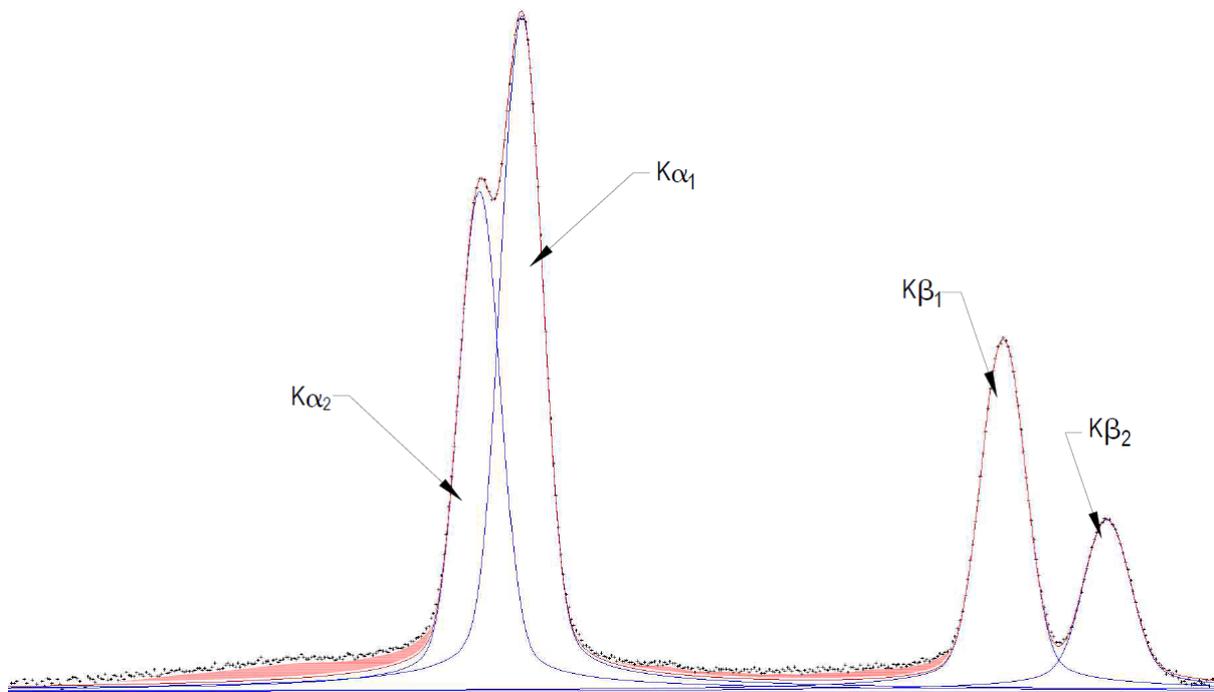


FIGURE 2.12 – Spectre de  $^{133}\text{Ba}$  avec des XK dans la région 30-36 keV

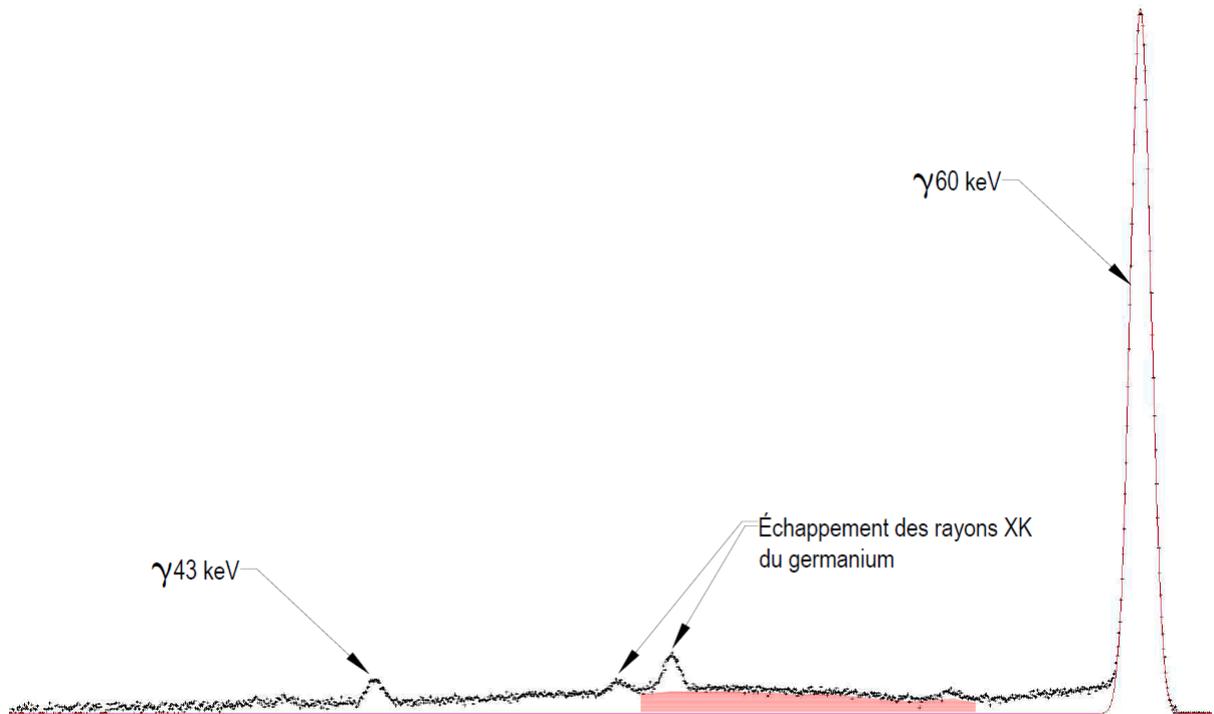


FIGURE 2.13 – Spectre de  $^{241}\text{Am}$  dans la région d'énergies comprises entre 40 et 60 keV

## 2.5 Mesure d'échantillons solides émetteurs de rayons X

Jusqu'ici, il a été présentée la mesure par spectrométrie de photons de manière générale. Si la technique est bien maîtrisée en haute énergie, le travail devient plus complexe lorsque l'énergie des photons diminue en-dessous de 100 keV. Dans cette gamme d'énergie, le rayonnement X est issu des réarrangements électroniques (voir paragraphe 1.1.3) et l'exploitation de

spectres multi-raies est souvent plus difficile que dans le cas des raies  $\gamma$ . De plus, la connaissance moindre des données d'émissions X apporte une contribution supplémentaire à la difficulté de la mesure dans cette gamme d'énergie. En effet, si les intensités d'émission des rayons  $\gamma$ , indiquées dans les tables de données, sont très souvent issues de mesures expérimentales, et plus largement étudiées, celles indiquées pour les rayons X sont issues de calculs, relatifs à l'équilibrage du schéma de désintégration du radionucléide concerné et des données atomiques de celui-ci (comme le rendement de fluorescence par exemple) et sont généralement affectées d'incertitudes-types relatives de l'ordre de quelques pourcents.

### 2.5.1 Étalonnage et sources étalons

Comme pour la spectrométrie  $\gamma$  classique, des détecteurs à semi-conducteur sont utilisés pour mesurer les photons de faible énergie, GeHP, SDD ou Si(Li). Dans le cas de l'utilisation d'un détecteur au germanium, la configuration plane du cristal et de faible volume est préférable pour cette gamme de mesure, notamment pour optimiser la résolution en énergie. L'étalonnage en rendement d'un tel détecteur est plus difficile, car seul un petit nombre de raies d'émission est disponible. De plus, les effets de diffusion à basse énergie (voir paragraphe 5.2) conjugués à un spectre multi-raies, augmentent la difficulté des mesures. Afin de diminuer ces effets de diffusion et les corrections de coïncidences, la source radioactive est placée à une distance très grande devant la taille de la source et du détecteur. De même, il est courant d'utiliser des collimateurs placés entre la source et le détecteur, dans le but de limiter le nombre de photons diffusés, principalement dans le support de source, interagissant dans le détecteur. Pour l'étalonnage, des sources ponctuelles sont utilisées de préférence afin d'éviter la diffusion dans la source elle-même. En ce qui concerne les radionucléides, le  $^{241}\text{Am}$  est couramment utilisé en raison de ses émissions de rayons XL entre 11 et 21 keV et  $\gamma$  à 26, 33 et 59 keV,  $^{133}\text{Ba}$  et  $^{57}\text{Co}$  sont également souvent employés pour étalonner les détecteurs.

### 2.5.2 Correction d'auto-absorption et transfert de géométrie

Dans la section 2.3 a été évoqué un ensemble de facteurs de correction pour la mesure du rendement ou d'activité. Dans ce paragraphe seront évoqués ceux spécifiques à la mesure de sources solides ne pouvant être considérées comme ponctuelles. Dans le cas d'une source solide, et plus particulièrement dans le cas d'une source volumique, les photons, suivant l'origine de leur émission dans la source, ne parcourent pas tout à fait la même distance avant d'en sortir. L'absorption des photons dans la source elle-même, ou auto-absorption, doit être prise en compte, et peut l'être analytiquement par intégration de l'équation 2.15 :

$$C_{Abs}(E) = \frac{1 - e^{-\frac{\mu}{\rho}(E)\rho e}}{\frac{\mu}{\rho}(E)\rho e} \quad (2.23)$$

Cette approximation, qui considère que les photons suivent un parcours normal à la surface du détecteur, est valable pour des sources de faible diamètre et éloignées du détecteur.

De manière générale, il est possible d'obtenir une valeur de l'auto-absorption par simulation de Monte Carlo, en prenant le rapport du rendement simulé pour le type de source utilisée lors de l'étalonnage et pour une source volumique de géométrie différente. L'avantage de cette méthode, qui sera appelé par la suite transfert de géométrie [44], est qu'ainsi le facteur de correction prend également en compte le changement de distance source-détecteur (correction

de géométrie) et le changement d'angle solide de la mesure. Enfin, dans le cas d'une source solide, il est possible de rencontrer un phénomène de fluorescence dans la source pouvant compliquer la mesure d'activité, phénomène qui sera détaillé dans le paragraphe 3.3.

## 2.6 Incertitudes en spectrométrie $\gamma$

Que ce soit dans le cas de la mesure d'activité d'une source, des intensités d'émission d'un radionucléide ou du rendement du détecteur, il est nécessaire de déterminer les incertitudes affectant ces mesures [38]. Elles sont obtenues en suivant les recommandations du GUM [25]. Les trois types de mesures citées ci-avant utilisent la même formule, classique en spectrométrie  $\gamma$ , mais elle est inversée suivant le cas :

$$A = \frac{N_P}{I(E) \varepsilon(E) t} \prod_i C_i \quad (2.24)$$

$$I(E) = \frac{N_P}{A \varepsilon(E) t} \prod_i C_i \quad (2.25)$$

$$\varepsilon(E) = \frac{N_P}{I(E) A t} \prod_i C_i \quad (2.26)$$

Le calcul d'incertitudes associées résulte de la combinaison quadratique des incertitudes relatives des différents composants :

$$\left(\frac{u(A)}{A}\right)^2 = \left(\frac{u(N_P)}{N_P}\right)^2 + \left(\frac{u(\varepsilon(E))}{\varepsilon(E)}\right)^2 + \left(\frac{u(I(E))}{I(E)}\right)^2 + \sum_i \left(\frac{u(C_i)}{C_i}\right)^2 \quad (2.27)$$

$$\left(\frac{u(I(E))}{I(E)}\right)^2 = \left(\frac{u(N_P)}{N_P}\right)^2 + \left(\frac{u(\varepsilon(E))}{\varepsilon(E)}\right)^2 + \left(\frac{u(A)}{A}\right)^2 + \sum_i \left(\frac{u(C_i)}{C_i}\right)^2 \quad (2.28)$$

$$\left(\frac{u(\varepsilon(E))}{\varepsilon(E)}\right)^2 = \left(\frac{u(N_P)}{N_P}\right)^2 + \left(\frac{u(I(E))}{I(E)}\right)^2 + \left(\frac{u(A)}{A}\right)^2 + \sum_i \left(\frac{u(C_i)}{C_i}\right)^2 \quad (2.29)$$

Lorsque l'activité de la source est connue, c'est-à-dire déterminée par une méthode primaire, l'incertitude sur la mesure de l'activité est mentionnée sur le certificat d'étalonnage. L'incertitude sur les intensités d'émission est quant à elle prise sur les tables de données recommandées. En ce qui concerne l'incertitude sur la surface du pic, elle est calculée par l'association de l'incertitude statistique et de l'incertitude de l'ajustement effectué par COLEGRAM. Une incertitude est également déterminée pour chaque facteur de correction pris en compte lors de la mesure. L'incertitude sur le facteur de correction de décroissance à la date de référence est calculée ainsi :

$$\frac{u(C_T)}{C_T} = \ln 2 \frac{T_m - T_0}{T_{1/2}} \frac{u(T_{1/2})}{T_{1/2}} \quad (2.30)$$

L'incertitude sur la correction de décroissance est :

$$\frac{u(C_{Dec})}{C_{Dec}} = \left[ C_{Dec} e^{-\ln 2 \frac{T_r}{T_{1/2}}} - 1 \right] \frac{u(T_{1/2})}{T_{1/2}} \quad (2.31)$$

L'incertitude sur la correction d'atténuation :

$$\frac{u(C_{Att})}{C_{Att}} = \frac{\mu}{\rho}(E) e \sqrt{\left(\frac{u(e)}{e}\right)^2 + \left(\frac{u\left(\frac{\mu}{\rho}(E)\right)}{\frac{\mu}{\rho}(E)}\right)^2} \quad (2.32)$$

L'incertitude sur la correction des coïncidences ne peut être calculée que par méthode Monte Carlo. Dans ce cas, elle est déterminée en suivant les recommandations de l'annexe 1 au GUM [45]. La correction de géométrie et d'auto-absorption étant incluse dans le calcul du facteur de transfert de géométrie, les incertitudes le sont également. L'incertitude sur le transfert de rendement, à l'instar de la correction des coïncidences, peut être calculée par méthode Monte Carlo. Lorsque toutes les incertitudes sur une mesure sont déterminées, elles sont regroupées dans un tableau appelé bilan des incertitudes. Ainsi, cela permet d'identifier le ou les paramètres critiques lors d'une mesure et, également d'essayer d'en diminuer la contribution. Les valeurs des composantes de l'incertitude sur la mesure sont très variables et dépendent de la géométrie de mesure, de l'activité de la source, du schéma de désintégration, etc.

**Remarque** : Par défaut, toutes les incertitudes mentionnées sont des incertitudes-types ( $k = 1$ ).



# Chapitre 3

## Dosimètre niobium et rhodium

Ce chapitre introduit la problématique liée à la mesure d'activité des dosimètres niobium et rhodium. Une première partie de ce chapitre est consacrée à une courte introduction sur les interactions des neutrons avec la matière, contribuant à la compréhension de la suite du chapitre. Ensuite, les données sur les émissions des produits de la réaction d'intérêt (n,n') des neutrons dans les dosimètres :  $^{93m}\text{Nb}$  et  $^{103m}\text{Rh}$ , et les autres réactions d'activation induisant des phénomènes de fluorescence qui perturbe la mesure sont détaillées. La dernière partie souligne les limites de la méthode de mesure actuelle et besoins d'améliorations des données.

### 3.1 Interactions neutron-matière

Tout comme le photon, le neutron est une particule de charge nulle. Ainsi, il n'interagit pas avec la matière selon les lois de l'électromagnétisme mais par des réactions de diffusion ou de capture. Au cours des processus de fission à l'œuvre dans un réacteur nucléaire, de nombreux neutrons sont émis lors de la fragmentation des noyaux lourds. La durée de vie moyenne des neutrons de fission dans un réacteur est inférieure à la milliseconde, ce qui est largement plus faible que sa période (le neutron libre étant instable, il subit une désintégration  $\beta$  avec une période de 15 minutes environ). La très grande majorité des neutrons interagit donc à l'intérieur du réacteur avant de subir une désintégration [46].

#### 3.1.1 Classification neutronique

Le spectre énergétique des neutrons issus des fissions des noyaux à l'intérieur d'un réacteur couvre un domaine assez large allant de  $10^{-11}$  MeV à 20 MeV. La nature des interactions des neutrons avec la matière change selon leur énergie. Ils sont ainsi souvent classés selon différentes dénominations. Le classement le plus souvent utilisé en physique des réacteurs répartit les neutrons en trois groupes :

1. Les neutrons thermiques : leur énergie est inférieure à 0,5 eV ;
2. Les neutrons épithermiques : cette catégorie désigne les neutrons dont l'énergie est comprise entre l'énergie thermique et celle des neutrons rapides ;
3. Les neutrons rapides : leur énergie est supérieure à 1 MeV.

Il existe d'autres classifications utilisant plus de trois groupes, mais c'est celle-ci qui sera utilisée pour désigner les neutrons selon leur énergie. Dans le domaine d'énergie des neutrons épithermiques, les sections efficaces d'interactions varient très rapidement avec l'énergie du neutron et présentent généralement des phénomènes de résonance.

### 3.1.2 Types d'interactions

Le neutron n'interagit pas avec les électrons, seule son interaction avec le noyau atomique est prise en compte. Les différentes interactions des neutrons avec le noyau peuvent être classées en deux grandes catégories : les réactions de diffusion ou d'absorption.

#### Diffusions

Lors d'une réaction de diffusion, le noyau cible conserve son numéro atomique et son nombre de masse, mais il peut se retrouver dans un état excité, suivant le type de diffusion. En effet, il existe deux types de diffusion selon que l'énergie cinétique totale de la réaction est conservée ou non : la diffusion élastique ou inélastique.

**Diffusion élastique :** Lors d'une diffusion élastique, l'énergie cinétique portée par le neutron est transférée en partie au noyau, elle est donc conservée lors de la réaction. Le neutron peut directement interagir avec le noyau ou, un noyau composé se forme lors de la réaction pour réémettre un neutron. Dans les deux cas, le noyau est dans un état identique avant et après la réaction. Cette réaction est notée  $(n,n)$ .

**Diffusion inélastique :** Dans le cas de la diffusion inélastique, une partie de l'énergie cinétique du neutron est conservée tandis qu'une autre partie, non conservée lors de la réaction, est absorbée par le noyau et est convertie en énergie d'excitation. Cette diffusion est une réaction à seuil, elle ne se produit qu'à partir d'une certaine énergie du neutron incident et dépend des niveaux d'énergie excités du noyau cible. Suite à une diffusion inélastique, le noyau cible se retrouve dans un état excité voire dans un état métastable. Cette réaction est notée  $(n,n')$  ou  $(n,n'\gamma)$ .

#### Absorptions

Dans ce type de réaction, le neutron est absorbé par le noyau. Suite à cette absorption, ou capture, plusieurs événements sont possibles. Mais dans tous les cas, l'absorption d'un neutron provoque une modification du numéro atomique et/ou du nombre de masse. Il existe quatre types d'absorption : la capture radiative, l'émissions de particules chargées, l'émission de neutrons et la fission.

**Capture radiative :** La capture du neutron est suivie par l'émission d'un rayonnement  $\gamma$  ; le noyau se retrouve en possession d'un neutron supplémentaire, formant alors un autre isotope du même élément que le noyau initial. Dans la majorité des cas, l'isotope ainsi formé est radioactif. La capture radiative est nommée  $(n,\gamma)$ .

**Émissions de particules chargées :** Il y a plusieurs cas de figure possibles, ce type de capture étant suivie de l'émission d'un proton ou d'une particule chargée plus lourde : noyau de deutérium, de tritium, d'une particule  $\alpha$ , etc. Le noyau change de nature, et le noyau résultant est souvent radioactif. Cette capture est appelée  $(n,p)$ ,  $(n,\alpha)$ ,  $(n,d)$ ,  $(n,t)$ , etc. suivant la particule chargée émise.

**Émissions de neutrons :** Dans ce cas, la capture est suivie de l'expulsion de plusieurs neutrons du noyau. Le noyau conserve le même numéro atomique mais un autre isotope est ainsi créé, majoritairement radioactif. Cette réaction est notée  $(n,2n)$ ,  $(n,3n)$ ,  $(n,4n)$ , etc. selon le nombre de neutrons émis.

**Fission :** Cette réaction survient dans le cas d'éléments très lourds. Dans ce cas, la capture du neutron conduit à la scission du noyau en deux fragments ainsi qu'à l'émission d'un ou plusieurs neutrons et de photons. Cette réaction est conventionnellement désignée  $(n,f)$ .

*Remarque :* Lors de l'absorption d'un neutron, l'isotope ou le radioisotope formé n'est pas toujours dans son état fondamental. Il y a une probabilité, dépendant de l'énergie, pour qu'il se retrouve dans un état excité.

### 3.1.3 Section efficace d'interaction

Tout comme pour les photons, la probabilité d'interaction d'un neutron, d'énergie  $E$ , avec un noyau est représentée par la section efficace  $\sigma$ , exprimée en *barns*. Chacune des réactions nucléaires, de diffusion ou d'absorption, a sa propre section efficace. Ainsi, la section efficace totale est considérée comme la somme de toutes les sections efficaces partielles des interactions, elle est également nommée section efficace microscopique.

$$\sigma(E)_{tot} = \sum_i^n \sigma_i \quad (3.1)$$

En considérant un flux de neutrons d'intensité  $I$ , incident sur une cible d'épaisseur  $e$  et d'épaisseur infinitésimale  $dx$  et de densité  $N$ , qui représente le nombre d'atomes par unité de volume, le flux en transmission est donné par la relation suivante :

$$dI(E, x) = -N \sigma(E) I(x) dx \quad (3.2)$$

Par intégration sur l'épaisseur totale  $e$ , l'intensité transmise devient :

$$I(E) = I_0 e^{-N \sigma(E) e} \quad (3.3)$$

La quantité  $N\sigma$  est définie comme étant la section efficace macroscopique et traduit la probabilité d'interaction par unité de longueur :

$$\Sigma(E) = N \sigma(E) \quad (3.4)$$

Où  $\Sigma$  est exprimé en  $\text{cm}^{-1}$ . Lorsque tous les processus d'interaction sont pris en compte, la

section efficace totale est :

$$\Sigma(E)_{\text{tot}} = \Sigma(E)_{\text{diff. élas.}} + \Sigma(E)_{\text{diff. inélas.}} + \Sigma(E)_{\text{capt. rad.}} + \dots = N \sum_i^n \sigma_i \quad (3.5)$$

Et l'intensité en transmission du flux de neutrons est :

$$I(E) = I_0 e^{-\Sigma(E)_{\text{tot}} e} \quad (3.6)$$

La section efficace  $\sigma_i$  correspond à une section efficace d'interaction partielle pour une énergie  $E$  du neutron. Comme présenté dans le paragraphe 3.1.2, les neutrons sont classés selon leur énergie et la section efficace peut être classée en trois zones énergétiques distinctes correspondant aux catégories des neutrons. La figure 3.1 présente la section efficace totale du  $^{93}\text{Nb}$  (courbe bleue) et les sections efficaces partielles et illustre la différence entre les trois régions d'énergie des neutrons. La courbe rouge et la courbe verte représentent respectivement la section efficace de capture radiative et la section efficace de diffusion inélastique. Dans le domaine thermique, la section efficace varie approximativement en  $1/\sqrt{E}$ . La région des neutrons épithermiques présente de fortes variations en fonction de l'énergie, avec généralement la présence de phénomènes de résonance. Ils se produisent lorsque l'énergie du neutron est proche de l'énergie de l'un des états excités du noyau cible. Ensuite, dans la zone des neutrons rapides, les valeurs de la section efficace diminuent rapidement en fonction de l'énergie.

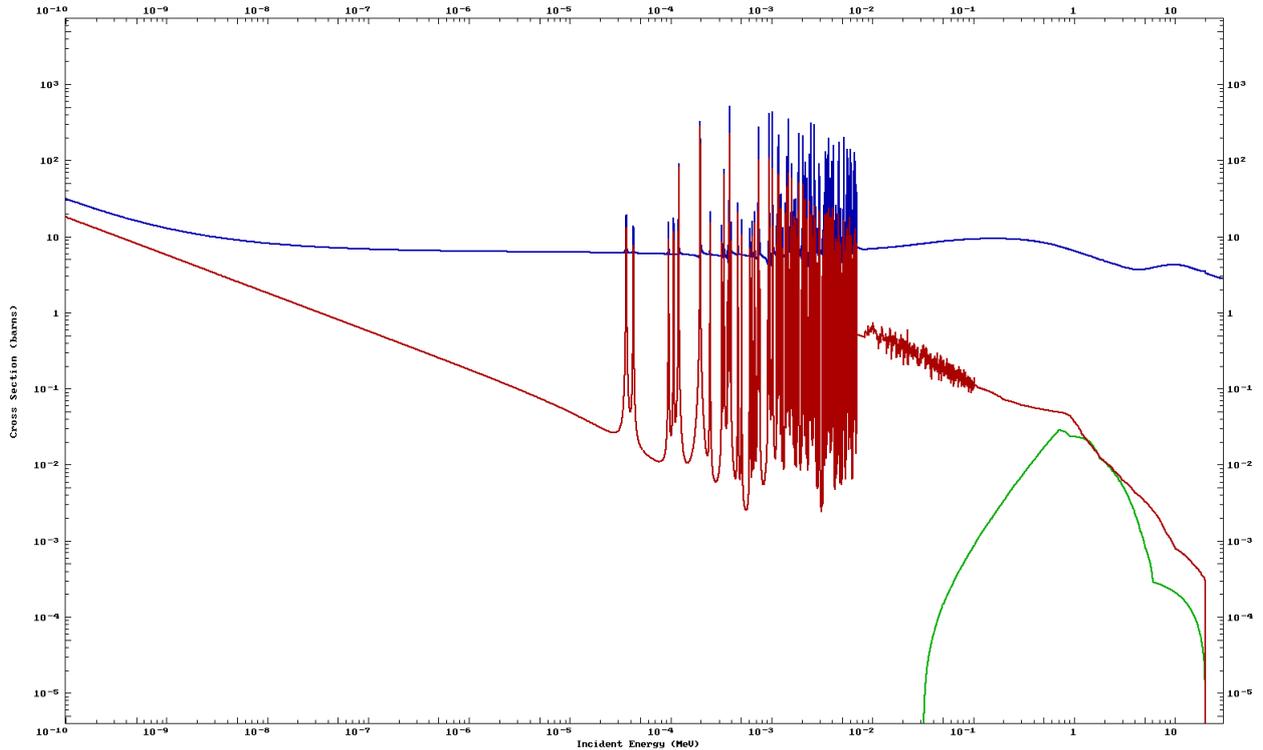


FIGURE 3.1 – Sections efficaces du  $^{93}\text{Nb}$  en fonction de l'énergie. La courbe en bleu représente la section efficace totale, en rouge la section efficace de capture radiative et en vert la section efficace de diffusion inélastique [47]

## 3.2 Dosimètres niobium et rhodium

Il a été présenté en introduction la dosimétrie en réacteur, les besoins et les intérêts liés à l'utilisation des dosimètres en niobium et en rhodium ainsi que les limites actuelles quant à leur mesure. Cette section sera principalement consacrée aux différentes propriétés et aux données fondamentales de ces deux éléments et aux deux radionucléides d'intérêt :  $^{93m}\text{Nb}$  et  $^{103m}\text{Rh}$ . Il sera également décrit la spécificité des lots utilisés pour la dosimétrie en réacteur et les différentes réactions possibles des neutrons avec le matériau des dosimètres : niobium ou rhodium ainsi que les impuretés présentes dans les dosimètres respectifs [8] et [7].

### 3.2.1 Le niobium

À l'état naturel, le niobium se trouve sous forme de mélange avec différents autres métaux et particulièrement avec le tantale. C'est pour cette raison que le nom de niobium lui a été attribué : celui-ci dérive de Niobé, la fille de Tantale, dans la tradition grecque ancienne. Le numéro atomique  $Z$  du niobium est 41, de symbole Nb, et un seul isotope du niobium est stable : le  $^{93}\text{Nb}$ . Il se présente sous forme d'un métal de couleur grise, de densité avoisinant 8,57 et ductile qui trouve des applications dans des nombreux domaines : métallurgie de l'acier (automobile, aérospatial, etc.), aimants supraconducteurs, médecine (implants), matériau de réacteurs nucléaires, optique, joaillerie, etc. [48] Pour rappel, l'évaluation du flux neutronique grâce aux dosimètres niobium dans les réacteurs nucléaires, se fait à partir de la mesure du  $^{93m}\text{Nb}$  formé à partir de la réaction :  $^{93}\text{Nb}(n,n')^{93m}\text{Nb}$ .

#### Données sur le $^{93m}\text{Nb}$

Le  $^{93m}\text{Nb}$  est un état métastable du  $^{93}\text{Nb}$  qui se désexcite vers l'état fondamental par une transition isomérique (transition  $\gamma$ ) unique très fortement convertie. Les données évaluées sont disponibles dans la base Nucléide [16] et sont détaillées ci-dessous.

**Données nucléaires :** L'énergie de réaction de la transition est de 30,77 (2) keV et la période est évaluée à 16,12 (15) ans (voir figure 3.2). Les données caractéristiques de la transition  $\gamma$  du  $^{93m}\text{Nb}$  sont indiquées dans le tableau 3.1 [16].

	Énergie (keV)	$P_{\gamma+ce}$ (%)	Multipolarité	$\alpha_K$ ( $10^5$ )	$\alpha_L$ ( $10^5$ )	$\alpha_M$ ( $10^5$ )	$\alpha_T$ ( $10^5$ )
$\gamma_{1,0}(\text{Nb})$	30,77 (2)	100	M4	0,260 (4)	1,151 (17)	0,249 (4)	1,693 (25)

Tableau 3.1 – Données de la transition  $\gamma$  et coefficients de conversion interne

**Données atomiques :** Le tableau 3.2 présente la valeur recommandée du rendement de fluorescence de la couche K ainsi que les énergies de liaison de la couche K et des sous-couches L [16] et [49]. Le tableau 3.3 résume les intensités d'émission des électrons de conversion et Auger ainsi que les intensités d'émission des photons du  $^{93m}\text{Nb}$  et les largeurs naturelles des émissions XK [16] et [50].

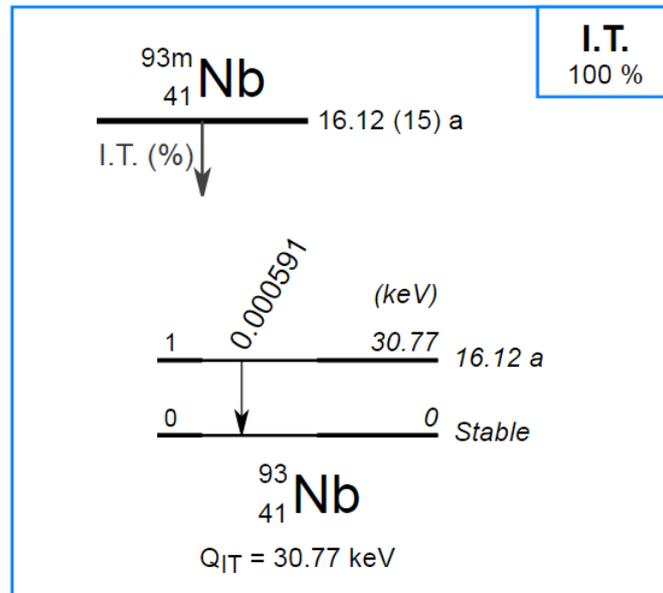


FIGURE 3.2 – Schéma de désintégration du  $^{93m}\text{Nb}$  - I.T. = « Transition Isomérique »

$\omega_K$	$E_K$ (keV)	$E_{L_1}$ (keV)	$E_{L_2}$ (keV)	$E_{L_3}$ (keV)
0,751	18,9907	2,7005	2,4693	2,7350

Tableau 3.2 – Rendement de fluorescence et énergie de liaison des couches électroniques du niobium

	Énergie (keV)	Électrons (pour 100 désint.)		Énergie (keV)	Photons (pour 100 désint.)	Largeurs naturelles (eV)
$e_{AL}$	1,4 - 2,6	81,25 (28)	XL	1,9 - 2,67	2,88 (6)	
$e_{AK}$						
KLL	13,49 - 14,14		$XK\alpha_2$	16,5213	3,32 (8)	5,89
KLX	15,79 - 16,58	3,83 (11)	$XK\alpha_1$	16,6152	6,34 (15)	$XK\alpha$ 5,76
KXY	18,02 - 18,91		$XK\beta_3$	18,607		6,21
$ec_{1,0T}$	11,78 - 30,77	99,999409 (9)	$XK\beta_1$	18,623	1,64 (4)	$XK'\beta_1$ 6,21
$ec_{1,0K}$	11,78 (2)	15,37 (33)	$XK\beta_5''$	18,78		4,26
$ec_{1,0L}$	28,07 - 28,40	68,0 (14)	$XK\beta_2$	18,952	0,246 (11)	$XK'\beta_2$ 5,41
$ec_{1,0M}$	30,30 - 30,57	14,72 (33)	$XK\beta_4$	18,982		4,16
$ec_{1,0N+}$	30,71 - 30,77	1,91 (4)	$\gamma_{1,0}$	30,77 (2)	0,000591 (9)	

Tableau 3.3 – Énergies et intensités des émissions électroniques et des rayons X du  $^{93m}\text{Nb}$

### Niobium pour la dosimétrie

Les dosimètres niobium utilisés pour la dosimétrie en réacteur se présentent sous la forme d'une bande dont les dimensions sont les suivantes :

— Longueur :  $\approx 7$  mm ;

- Largeur :  $\approx 1$  mm ;
- Épaisseur :  $\approx 20$   $\mu$ m.

L'épaisseur moyenne du niobium a été mesurée au LNHB à partir d'un échantillon issu du même lot, grâce à une machine à système optique équipée d'une caméra et un logiciel de traitement permettant un surfacage précis de la feuille. Sa masse a été ensuite déterminée avec une balance de précision. Ainsi, à partir de la masse volumique du niobium, il est possible d'en déterminer l'épaisseur moyenne. Une analyse de la pureté de ce même lot avait été également effectuée en 1990 par spectrométrie de masse et une analyse plus précise par activation neutronique spécifiquement pour le tantale. Le tableau 3.4 résume les impuretés trouvées ainsi que leur quantité en partie par million, en masse. Le certificat d'analyse est présenté en annexe C.

Ni	Fe	Ta	W	Mo	Zr	Cr	Co
0,02	0,06	4	12	14	$\leq 2$	$\leq 0,004$	$\leq 0,0003$

Tableau 3.4 – Impuretés présentes dans le niobium (données en masse, exprimées en ppm)

**Remarque** : L'analyse par spectrométrie a donné une quantité de Ta de 4,6 ppm et par activation neutronique de 4 ppm. C'est la valeur de 4 ppm qui avait été retenue sur le certificat d'analyse du lot de niobium.

### Réactions possibles dans un dosimètre

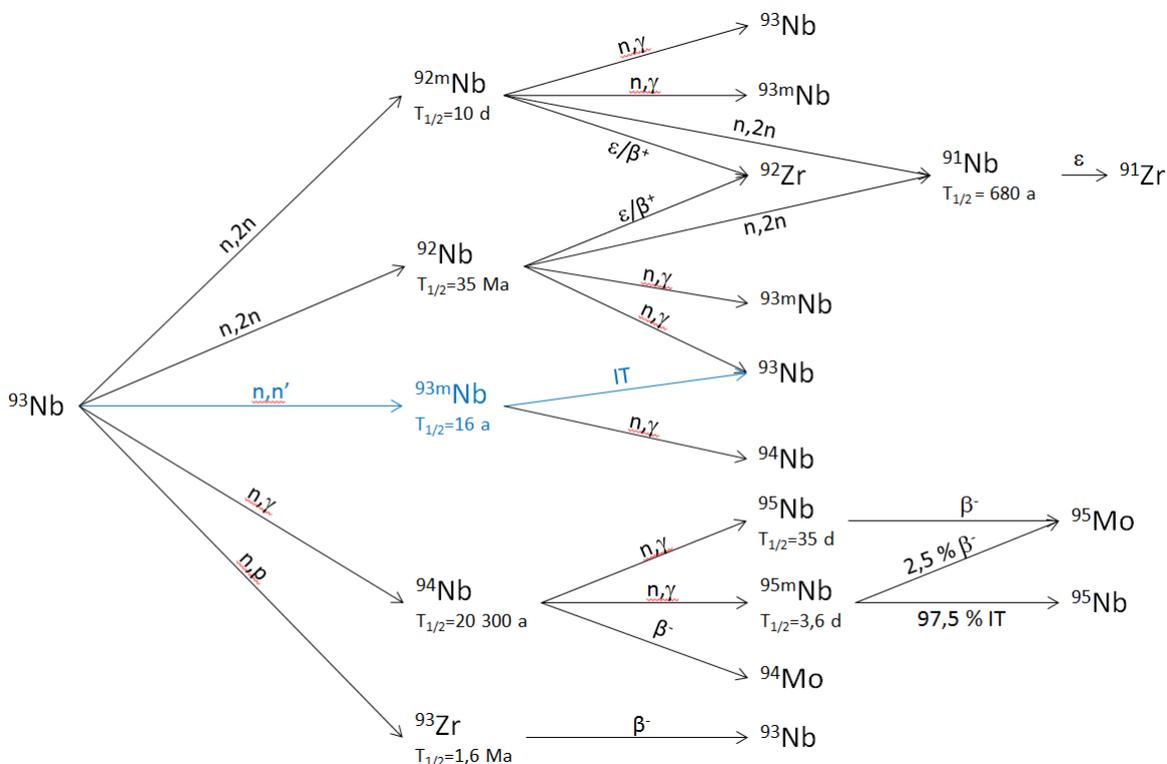


FIGURE 3.3 – Réactions possibles dans un dosimètre niobium à partir du  $^{93}\text{Nb}$ . En bleu est indiquée la réaction d'intérêt du dosimètre

Conformément aux nombreuses réactions survenant par interaction des neutrons avec la matière, un nombre considérable de nucléides peuvent résulter de l'irradiation d'un dosimètre niobium, à partir du niobium ou de ses impuretés. Une liste non-exhaustive des interactions des neutrons avec le niobium est présentée sur la figure 3.3. En premier lieu, la réaction de fission (n,f) a été écartée puisque le niobium est un atome trop léger pour se fissionner en deux fragments. De même, les probabilités de réactions (n, $\alpha$ ), (n,d), (n,t) ou d'émission de particules chargées plus lourdes sont très faibles et peuvent être largement négligées. La probabilité de réaction (n,p) est également faible mais elle est tout de même indiquée comme exemple. La réaction de diffusion élastique ne produisant pas de radioisotopes, il n'est pas nécessaire de l'indiquer. De nombreuses réactions sont également possibles à partir des différentes impuretés présentes dans le niobium. S'agissant des mêmes processus, il n'est pas nécessaire de les détailler. Pour le moment, l'unique interaction à retenir est la production du  $^{182}\text{Ta}$  par capture radiative sur le  $^{181}\text{Ta}$ .

### 3.2.2 Le rhodium

Le rhodium, du grec *rhodon* qui signifie rose, est le 45<sup>ème</sup> élément du tableau périodique des éléments, de symbole Rh. Seul un isotope du rhodium est stable : le  $^{103}\text{Rh}$ . Le rhodium fait partie du groupe des platinoïdes, qui regroupe le ruthénium, le rhodium, le palladium, l'osmium, l'iridium et le platine. C'est un métal dur et cassant, de couleur gris argenté et de densité avoisinant 12,4. Étant un métal très peu réactif et présentant un point de fusion élevé (environ 2 000 °C), le rhodium est principalement utilisé comme catalyseur dans l'industrie chimique et le chauffage à très haute température. Il est également employé en joaillerie, dans les anodes de tube à rayons X, etc. [48] La mesure du flux neutronique à partir des dosimètres rhodium dans les réacteurs nucléaires, est effectuée à partir de la mesure de  $^{103m}\text{Rh}$  créée à partir de la réaction :  $^{103}\text{Rh}(n,n')^{103m}\text{Rh}$ .

#### Données sur le $^{103m}\text{Rh}$

Le  $^{103m}\text{Rh}$  est un état métastable du  $^{103}\text{Rh}$  qui se désexcite vers l'état fondamental par une transition  $\gamma$  unique fortement convertie. Les données qui seront présentées dans les paragraphes ci-après, proviennent d'une évaluation partielle, et donc non publiée, qui sont celles indiquées sur le site de Laraweb [51] et utilisées par le LDCI pour les mesures de radioactivité de ce radionucléide. Le  $^{103m}\text{Rh}$  ne fait pas donc pas partie de la table des données recommandées parce que son schéma de désintégration n'est pas équilibré.

**Données nucléaires :** L'énergie de réaction de la transition est de 39,756 (6) keV et la période est évaluée à 56,115 (6) min (voir figure 3.4). Les données sur la transition  $\gamma$  du  $^{103m}\text{Rh}$  sont indiquées dans le tableau 3.5. La probabilité de la transition est indiquée à 99 % alors que c'est l'unique voie de désintégration du  $^{103m}\text{Rh}$ , elle devrait donc être de 100 %.

	Énergie (keV)	$P_{\gamma+ce}$ (%)	Multipolarité	$\alpha_K$	$\alpha_L$	$\alpha_M$	$\alpha_N$	$\alpha_T$
$\gamma_{1,0}(\text{Rh})$	39,756 (6)	99 (8)	E3(+0,08%M4)	135 (6)	1049 (52)	215 (11)	31,6 (16)	1431 (71)

Tableau 3.5 – Données de la transition  $\gamma$  et coefficients de conversion interne

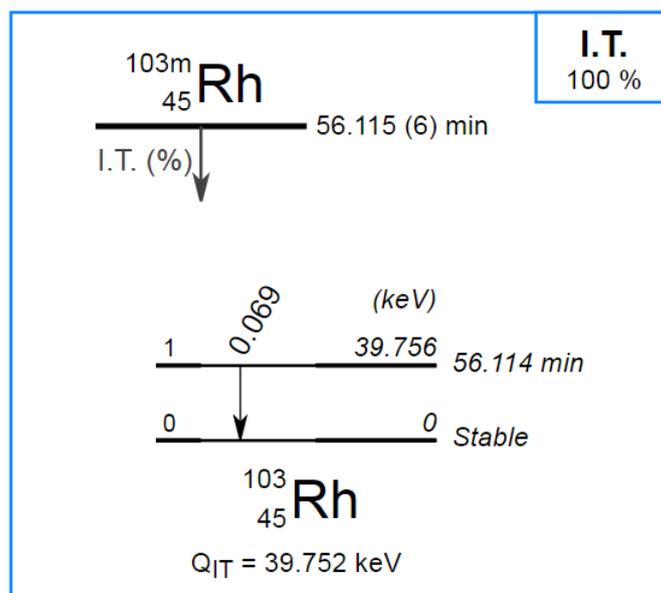


FIGURE 3.4 – Schéma de désintégration du  $^{103m}\text{Rh}$  - I.T. = « Transition Isomérique »

**Données atomiques :** Le tableau 3.6 présente la valeur recommandée du rendement de fluorescence de la couche K ainsi que les énergies de liaison de la couche K et des sous-couches L [16] et [49]. Le tableau 3.7 résume les intensités d'émission des électrons de conversion et Auger ainsi que les intensités d'émission des photons présentées dans l'évaluation non publiée ainsi que les largeurs naturelles des rayons XK [50].

$\omega_K$	$E_K$ (keV)	$E_{L_1}$ (keV)	$E_{L_2}$ (keV)	$E_{L_3}$ (keV)
0,809	23,2302	3,4209	3,1567	3,0145

Tableau 3.6 – Rendement de fluorescence et énergie de liaison des couches électroniques du rhodium

### Rhodium pour la dosimétrie

Les dosimètres rhodium utilisés par le LDCI pour la dosimétrie en réacteur se présentent sous la forme d'un disque dont les dimensions sont les suivantes :

- Diamètre :  $\approx 8 \text{ mm}$  ;
- Épaisseur : 50, 12 ou 6  $\mu\text{m}$ .

L'épaisseur indiquée est l'épaisseur nominale des différents lots. La surface de plusieurs disques a été mesurée au LNHB. Ce sont les disques de rhodium de 50  $\mu\text{m}$  qui constituent les mesures principales pour la dosimétrie en réacteur. Le lot de rhodium de 50  $\mu\text{m}$  provient de l'Institut for Reference Materials and Measurements (IRMM aujourd'hui JRC-Geel) et un certificat d'analyse par spectrométrie de masse et par activation neutronique certifie un taux de pureté d'environ 99,997 % en masse. Le tableau 3.8 résume les impuretés trouvées ainsi que leur quantité en partie par million, en masse. Le certificat d'analyse est présenté en annexe C.



Une liste non-exhaustive des interactions des neutrons avec le rhodium est présentée sur la figure 3.5. Comme pour le niobium, seules les réactions (n,n'), (n,2n), (n, $\gamma$ ) et (n,p) ont été indiquées.

### 3.3 Fluorescence et auto-fluorescence

Comme cela a été décrit ci-dessus, de nombreuses réactions sont possibles dans les dosimètres. Ainsi, différents radionucléides peuvent se former consécutivement à une irradiation, par des réactions différentes de celle d'intérêt. De plus, des impuretés déjà présentes dans les dosimètres peuvent également être activées. Certains de ces radionucléides, autres que  $^{93m}\text{Nb}$  ou  $^{103m}\text{Rh}$  sont encore présents lors des mesures en spectrométrie de photons et peuvent gêner l'évaluation de la valeur de l'activité recherchée des deux radionucléides.

En effet, la mesure s'effectue à partir des rayons XK du niobium et du rhodium respectivement. Toutefois, d'autres radionucléides sont encore présents lors des mesures et, par décroissance, ils émettent des photons, électrons ou des positrons. Toutes ces particules ont une certaine probabilité d'interagir dans le volume du dosimètre et, en particulier, par effet photoélectrique dans la couche K du niobium ou du rhodium. Suite à la création d'une telle lacune et par désexcitation atomique, des rayons XK caractéristiques du niobium ou du rhodium sont émis. Ces rayons X, issus de la fluorescence du niobium ou du rhodium, ont donc la même énergie que ceux émis lors de la désintégration de  $^{93m}\text{Nb}$  ou de  $^{103m}\text{Rh}$ .

Ces deux derniers émettent également des électrons dont l'énergie est supérieure à l'énergie de liaison de la couche K de ces deux éléments, il n'est pas exclu qu'ils induisent également une fluorescence sur le niobium et le rhodium, processus pouvant être qualifié d'auto-fluorescence. Par conséquent, les rayons XK du niobium ou du rhodium comptabilisés dans le détecteur peuvent avoir trois origines différentes : la désintégration du radionucléide dont l'activité est recherchée, la fluorescence induite par les impuretés et l'auto-fluorescence. Or, seule la détection des rayons XK issus de la désintégration du  $^{93m}\text{Nb}$  ou du  $^{103m}\text{Rh}$  est souhaitée, les autres rayons XK amplifiant le nombre de coups sous les pics d'absorption totale (voir figure 3.6). Une correction est donc nécessaire pour rectifier la mesure de l'activité des dosimètres niobium et rhodium. Par exemple, dans le cas des dosimètres niobium, le  $^{94}\text{Nb}$  et  $^{95}\text{Nb}$  induisent de la fluorescence.

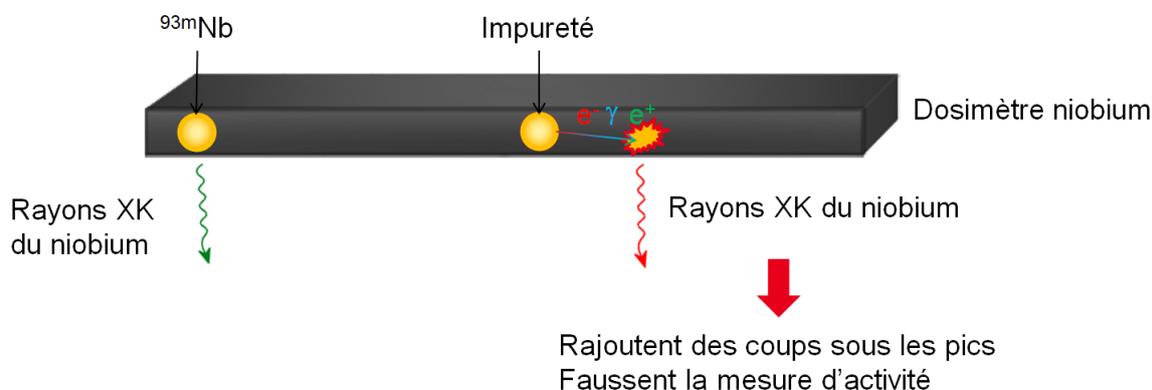


FIGURE 3.6 – Schéma simplifié du phénomène de fluorescence dans les dosimètres - exemple avec le dosimètre niobium

La correction apportée sur la mesure de l'activité liée aux phénomènes de fluorescence induite par les impuretés et d'auto-fluorescence sera amplement développée dans la section 5.3.

## 3.4 Mesure d'activité des dosimètres

Cette section est consacrée à la méthode de mesure d'activité des dosimètres niobium à la plateforme MADERE du LDCI. La mesure d'un dosimètre niobium consiste à évaluer son activité à partir de la mesure des rayons XK du niobium. Actuellement, les dosimètres niobium sont mesurés selon une méthode qualifiée de « relative », c'est-à-dire par comparaison avec un échantillon de travail préalablement caractérisé à partir d'un échantillon de référence. Les deux échantillons, de travail et celui à caractériser, sont mesurés puis comparés et l'activité est obtenue à partir d'une règle de trois [52] et [53].

### 3.4.1 Raccordement des étalons niobium de travail

Les mesures des dosimètres niobium sont systématiquement comparées à la mesure d'un étalon de travail de la plateforme. Il existe plusieurs étalons de travail permettant de couvrir une large gamme de flux de photons. Ces étalons de travail sont en premier lieu raccordés à un étalon de référence dont la mesure a été effectuée au LNHB.

#### Étalonnage du dosimètre de référence

L'étalonnage du dosimètre niobium de référence est réalisé au LNHB, par spectrométrie X. La référence avait été choisie de sorte que l'activité des radionucléides indésirables, c'est-à-dire provoquant de la fluorescence, soit la plus faible possible. Ainsi, le seul radionucléide encore présent, autre que  $^{93m}\text{Nb}$ , est  $^{94}\text{Nb}$ , dont les perturbations induites sur les mesures dû à l'effet de fluorescence est très limité (voir paragraphe 5.3.3) notamment parce que son activité est généralement faible. Cet échantillon est ré-étalonné tous les cinq ans et donne lieu à un certificat d'étalonnage indiquant l'activité du dosimètre ainsi que l'angle solide de mesure, l'activité du dosimètre n'étant certifiée que pour un angle solide de mesure équivalent ou inférieur à celui de l'étalonnage. Le dosimètre de référence est nommé Nb45-réf.

#### Étalons de travail

La plateforme MADERE utilise sept étalons de travail, c'est-à-dire sept dosimètres identiques en géométrie à la référence et aux dosimètres habituellement mesurés. Le raccordement des étalons de travail a lieu tous les cinq ans, consécutivement à l'étalonnage de la référence au LNHB. Les mesures en spectrométrie X sont effectuées dans la géométrie de référence avec une distance source-détecteur d'environ 9 cm, soit un angle solide de mesure de  $1,3 \cdot 10^{-2}$  sr. Dans le cas où des radionucléides autres que le  $^{93m}\text{Nb}$  sont encore présents, les étalons sont mesurés en spectrométrie  $\gamma$  pour déterminer la valeur de leur activité respective. La date de référence du certificat d'étalonnage du Nb45-réf est prise comme date d'origine pour l'étalonnage des étalons de travail. Pour chaque étalon de travail, le taux d'émission (rayons X.s $^{-1}$  sur  $4\pi$  sr) est comparé à celui de référence. Ensuite, l'activité est obtenue par :

$$A_{travail} = A_{réf} \frac{\tau_{travail}}{\tau_{réf}} C_{fluo} C_{déc} \quad (3.7)$$

- $A_{travail}$  : Activité de l'étalon de travail, déterminée au LDCI ;
- $A_{réf}$  : Activité de l'étalon de référence, déterminée au LNHB ;
- $\tau_{travail}$  : Taux d'émission de l'étalon de travail (en  $s^{-1}$  sur  $4\pi$  sr) ;
- $\tau_{réf}$  : Taux d'émission de l'étalon de référence (en  $s^{-1}$  sur  $4\pi$  sr) ;
- $C_{fluo}$  : Correction de fluorescence apportée à la mesure de l'activité de l'étalon de travail ;
- $C_{déc}$  : Correction liée à la décroissance du  $^{93m}\text{Nb}$  durant la mesure.

**Remarque** : Le taux d'émission correspond au flux de rayons XK du niobium sortant du dosimètre, il est donc exprimé en  $s^{-1}$  sur  $4\pi$  sr. Il ne prend pas en compte les intensités d'émission ni l'auto-absorption dans le dosimètre.

Chaque dosimètre a une dénomination correspondant approximativement à son taux d'émission respectif sous le pic d'absorption totale du rayon  $\text{XK}\alpha$  du niobium, en géométrie usuellement choisie pour les mesures des niobium :

- Nb001 :  $\approx 1 s^{-1}$  ;
- Nb005 :  $\approx 5 s^{-1}$  ;
- Nb020 :  $\approx 20 s^{-1}$  ;
- Nb040 :  $\approx 40 s^{-1}$  ;
- Nb130 :  $\approx 130 s^{-1}$  ;
- Nb200 :  $\approx 200 s^{-1}$  ;
- Nb300 :  $\approx 300 s^{-1}$ .

### 3.4.2 Mesure d'activité des dosimètres niobium

La mesure des dosimètres niobium sur la plateforme MADERE est le plus couramment effectuée dans la géométrie de référence (distance source-détecteur d'environ 9 cm). Elle se fait toujours relativement à celle d'un étalon de travail, le dosimètre mesuré est donc comparé à un étalon de travail présentant un taux d'émission proche. Les acquisitions de l'échantillon et de l'étalon sont consécutives et effectuées dans les mêmes conditions de mesure. L'acquisition est gérée par le logiciel GENIE2000 et lancée pendant une durée permettant d'obtenir si possible 200 000 coups sous le pic d'absorption totale de la raie  $\text{K}\alpha$ .

#### Traitement des spectres

Le traitement des spectres est effectué avec le logiciel COLEGRAM. Par la suite, l'ajustement des pics est effectué avec la plus grande précision possible avec un recalage en énergie si nécessaire (dans le cas où il y a un écart entre l'énergie des RX sur le spectre et l'énergie théorique) et en tenant compte des rapports des intensités  $\text{K}\beta/\text{K}\alpha$ ,  $\text{K}\alpha_2/\text{K}\alpha_1$  et  $\text{K}'\beta_2/\text{K}'\beta_1$ . S'agissant de l'ajustement de pics provenant de l'émission de rayons X, des fonctions de Voigt sont utilisées. Afin de prendre en compte le phénomène de diffusion, une fonction de Gauss avec une pente sur la gauche est ensuite ajoutée.

**Remarque** : Le traitement de la diffusion est nettement approfondi dans le paragraphe sur la diffusion (§ 5.2).

## Facteurs de correction

Les échantillons étant directement comparés à un dosimètre étalon de travail, seuls deux facteurs de correction sont nécessaires pour calculer la valeur d'activité : la correction de fluorescence et la correction de décroissance. Cette dernière est liée à la décroissance du  $^{93m}\text{Nb}$  durant la mesure. La correction de fluorescence prend en compte les perturbations des différentes impuretés sur les mesures. Pour pouvoir déterminer la correction de fluorescence, les échantillons sont également mesurés sur un spectromètre  $\gamma$  afin de quantifier l'activité de chacune des impuretés présentes.

## Calcul de l'activité

La mesure d'un échantillon en spectrométrie X fournit un taux d'émission de rayons X. Par la suite, un étalon de travail, dont l'activité est connue, est également mesuré. L'activité massique  $Am_{éch}$  en  $^{93m}\text{Nb}$  (Bq/mg) de l'échantillon est donc simplement déterminée par la relation suivante :

$$Am_{éch} = \frac{1}{m} A_{travail} \frac{\tau_{éch}}{\tau_{travail}} C_{fluo} C_{déc} \quad (3.8)$$

Les incertitudes sur les mesures sont évaluées conformément à la méthode présentée dans la section 2.6.

### 3.4.3 Limite de la méthode « relative » de mesure d'activité

L'avantage de cette méthode relative est qu'elle ne nécessite pas d'étalonnage en rendement du détecteur. Cependant, les mesures d'activité des échantillons sont effectuées par comparaison à des étalons de travail, eux-même étalonnés par rapport à un étalon de référence. Ces procédures demandent un temps considérable et intègrent de nombreuses incertitudes de mesure, qui peuvent induire une incertitude relative sur l'activité massique des échantillons supérieure à 6 % (à  $k = 2$ ). Par conséquent, une méthode permettant de supprimer ces étapes avait commencé à être développée sur les spectromètre X de la plateforme MADERE, en recourant à l'étalonnage des détecteurs à l'aide de sources ponctuelles étalons et en prenant en compte l'ensemble des facteurs de correction (voir section 2.3). Toutefois, les résultats obtenus présentaient des écarts relatifs systématiques compris entre 4 et 6 % par rapport aux mesures effectuées par la méthode relative. Ces écarts sont certes compris dans les incertitudes de mesure mais cela traduit un certain biais de mesure. Par ailleurs, il a été tenté d'utiliser les étalons de référence et de travail pour l'étalonnage en rendement du détecteur, mais les résultats présentent un écart relatif systématique compris entre 1,5 et 2 % par rapport aux résultats issus des sources ponctuelles. Les résultats de mesure des activités des dosimètres niobium sont fortement pénalisés par la méthode de mesure dite relative employée à ce jour. Actuellement, l'incertitude-type sur l'activité de l'échantillon de référence est de 3 % environ (à  $k = 1$ ), ce qui entraîne une incertitude sur les mesures d'activité des dosimètres niobium de 3,5 %, voire 4 %. À titre de comparaison, les mesures réalisées sur des dosimètres complémentaires sont obtenues avec des incertitudes d'environ 1,5 %. Or, pour la dosimétrie en réacteur, le niobium est très important, car il apporte des informations dans un domaine énergétique neutronique peu connu, le seuil de la réaction étant proche de 1 MeV.

Ainsi, le principal objectif de la présente thèse consiste à proposer une évolution vers une mé-

thode comparable à la spectrométrie  $\gamma$  classique, ce qui nécessite l'analyse détaillée de l'étalonnage en rendement des détecteurs et des termes correctifs inhérents à la mesure des échantillons solides. Cette méthode pourra ensuite être appliquée aux cas d'autres échantillons solides émetteurs de rayons X, tels les dosimètres rhodium. L'importance de ceux-ci pour la dosimétrie en réacteur est comparable à celle des dosimètres niobium, mais ils sont employés dans le cas des réacteurs de faible puissance (réacteurs maquettes par exemple). Dans ce cas, la mesure d'activité est réalisée sur le  $^{103m}\text{Rh}$ , dont la période radioactive est très courte, environ 56 min. La mesure ne peut donc être effectuée à partir d'un étalon de référence, puisqu'il est impossible d'en maintenir un avec une période aussi faible. En outre, pour la mesure de ce radionucléide, il apparaît nécessaire d'améliorer la connaissance de ses données nucléaires et atomiques ; trois expériences spécifiques seront présentées à cet effet.



# Chapitre 4

## Dispositifs expérimentaux et étalonnage

L'étalonnage d'un spectromètre de photons est une étape cruciale pour la mesure de radioactivité d'échantillons. Pour cela, une connaissance et une parfaite maîtrise du détecteur et de la chaîne de mesure sont importantes. La première partie de ce chapitre est consacrée à la présentation de la chaîne de mesures utilisée et un exemple de comparaison entre les électroniques numérique et analogique est présenté par la suite. La troisième partie introduit les outils de Monte Carlo qui seront largement utilisés au cours de cette étude. La dernière partie du chapitre détaille l'étalonnage de référence en sources ponctuelles du détecteur avec trois approches : expérimentale, Monte Carlo et semi-empirique.

### 4.1 Spectromètres X du LNE-LNHB et du LDCI

Au LNHB, de nombreux spectromètres de photons sont disponibles pour les activités du laboratoire : raccordements internes, prestations externes, études de schémas de désintégration. Un de ces spectromètres est adapté aux mesures de sources de très forte activité, qui peuvent être placées à plusieurs mètres du détecteur, et un autre est réservé aux sources de très faible activité, le détecteur étant muni d'un dispositif anti-cosmique. Mais un seul spectromètre au germanium est dédié à la mesure des photons de faible énergie, baptisé GENIX ; il sera désigné ainsi par la suite. D'autres spectromètres sont disponibles au LNHB pour ce type de mesure, mais ce sont des détecteurs au silicium. Ils permettent de mesurer les photons d'énergie inférieure à 20 keV. Dans la plateforme MADERE du LDCI, deux détecteurs au germanium sont dédiés à la mesure des photons de faible énergie, la Voie X1 et la Voie X2.

#### 4.1.1 GENIX

GENIX est un détecteur plan de type N de faible volume ( $2,6 \text{ cm}^3$ ) fourni par ORTEC (modèle PopTop GLP). Le préamplificateur est à retour résistif, il est alimenté par une alimentation NIM ORTEC 4006. La haute tension est délivrée par un module ORTEC n°659 avec une polarisation de  $-1000 \text{ V}$ . Le signal du préamplificateur est envoyé vers un module d'amplification ORTEC n°672, sur une entrée normale à impulsions négatives. La sortie de l'amplificateur est unipolaire, la suppression du pôle zéro est automatique, comme la restauration à la ligne de base. La mise en forme des impulsions en sortie de l'amplificateur est gaussienne avec une

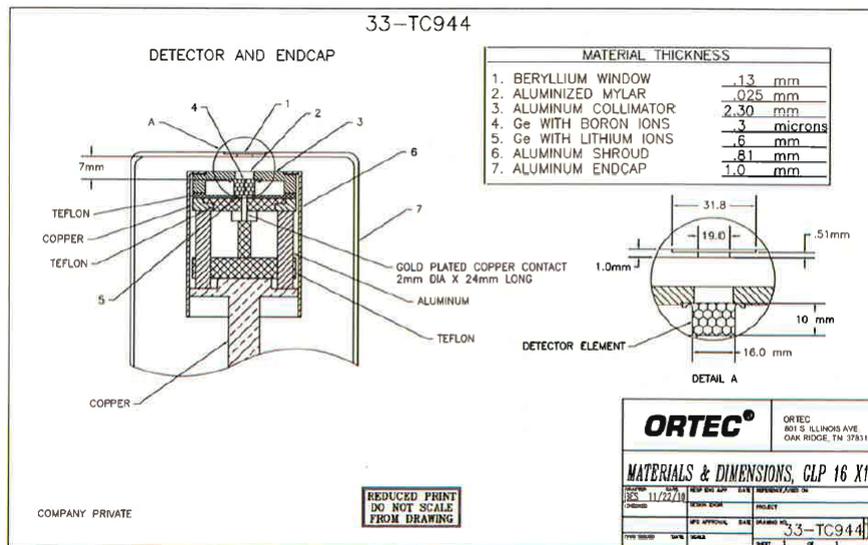


FIGURE 4.1 – Plan du détecteur GENIX

constante de temps de  $6 \mu\text{s}$ . Le signal de l'amplificateur est ensuite transmis vers un codeur ORTEC ESB n°926, qui va convertir le signal analogique en signal numérique, le sélectionner et le ranger dans un canal. La résolution en énergie du détecteur indiquée par ORTEC est de 169 eV à 5,9 keV ( $^{55}\text{Fe}$ ) et de 487 eV à 122 keV ( $^{57}\text{Co}$ ). Le gain est réglé à 20 et le gain fin est à 1,088, ainsi il est possible de mesurer des photons dont les énergies vont de 3 keV à 168 keV. Le tableau 4.1 indique les dimensions du détecteur et la figure 4.1 son plan de montage tels qu'ils ont été fournis par le constructeur. Ce détecteur a pour but d'effectuer des mesures de radioactivité et d'intensités d'émission photonique avec un souci de précision métrologique. Un support de source en plexiglas cranté a été usiné pour positionner correctement les sources radioactives au-dessus du détecteur, le positionnement de référence de la source étant défini au cran n°7, comme indiqué sur la figure 4.2, soit une distance d'environ 8 cm entre la source et le cristal de germanium. Dans le cas où des sources peu actives sont à mesurer, une autre position d'étalonnage a été définie au cran n°3, soit une distance source-cristal d'environ 4 cm. Cependant l'interaction des photons dans le support de source augmente le nombre de photons diffusés arrivant dans le détecteur. Cette diffusion Compton dans le support vient s'ajouter à celle qui se produit dans le Mylar® et l'anneau des sources. Pour des énergies inférieures à 30 keV cela entraîne une « bosse » de diffusion à proximité du pic d'absorption totale. Ces énergies correspondent à un angle de diffusion préférentiel d'environ  $90^\circ$ , c'est-à-dire une diffusion dans les éléments du support et de la source, situés à proximité de celle-ci. Ces bosses sont très élargies et interfèrent avec le pic d'absorption totale; elles doivent donc être prises en compte dans l'ajustement lors du traitement des spectres augmentant alors l'incertitude sur la surface du pic (voir section 5.2). Il est toutefois possible de diminuer le nombre de photons diffusés en direction du détecteur par l'ajout de collimateurs. Deux emplacements permettent la mise place de deux collimateurs en tantale, l'un avec une ouverture circulaire de 14 mm de diamètre près du détecteur et l'autre avec ouverture de 10 mm de diamètre près de la source radioactive (voir figure 4.2). La figure 4.3 compare deux spectres de  $^{109}\text{Cd}$  obtenus sans et avec les collimateurs et montre une réduction notable de la diffusion dans le deuxième cas.

Diamètre du cristal	16 mm
Épaisseur totale du cristal	10 mm
Épaisseur de la zone morte de germanium en entrée (dopé au bore)	0,3 $\mu\text{m}$
Épaisseur de la zone morte de germanium en sortie (dopé au lithium)	0,6 mm
Distance cristal-fenêtre en béryllium	7 mm
Épaisseur de la fenêtre en béryllium	0,127 mm

Tableau 4.1 – Dimensions du détecteurs et caractéristiques du cristal de germanium

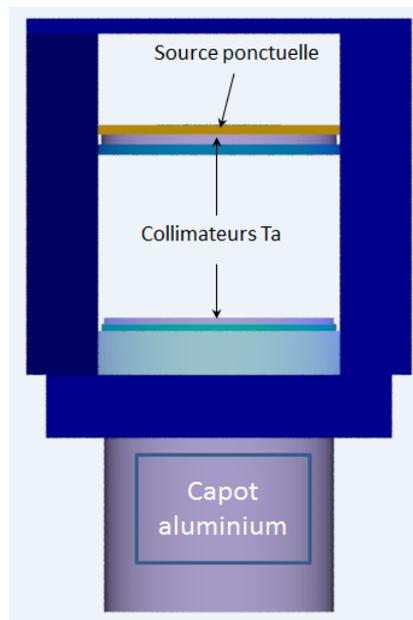


FIGURE 4.2 – Configuration géométrique de référence du détecteur GENIX

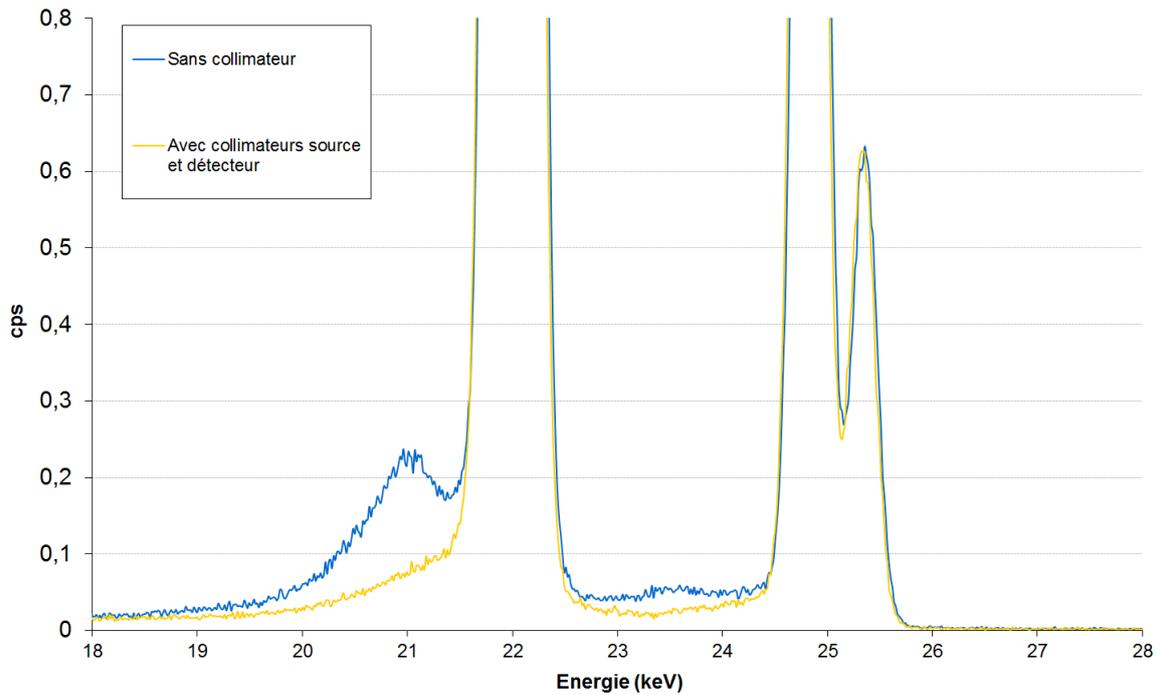


FIGURE 4.3 – Spectre du  $^{109}\text{Cd}$  dans le domaine d'énergie des rayons X sans et avec collimateurs

#### 4.1.2 Voie X1 et Voie X2

Les deux spectromètres de la plateforme MADERE sont à base de détecteur LGe (*Low-Energy Germanium*) fabriqués par Canberra. Les cristaux ont une configuration de type plan ayant un volume de  $22,5\text{ cm}^3$  dans le cas de la Voie X1 et de  $41,6\text{ cm}^3$  dans le cas de la Voie X2. Il n'y a pas de zone morte en sortie, l'électrode est assurée par un contact métallique et le préamplificateur est à retour résistif. La sortie est reliée à un module d'analyse de signaux numériques, *LYNX*, fourni par Canberra. Il a pour fonctionnalité de transformer le signal analogique en provenance du préamplificateur en un signal numérique, mais il a également la fonction d'amplificateur, d'alimentation du préamplificateur et de polarisation haute tension du détecteur, et d'analyseur multi-canaux. Le *LYNX* délivre une haute tension aux bornes des détecteurs d'environ  $-2000\text{ V}$  et  $-4000\text{ V}$  pour la Voie X1 et la Voie X2, respectivement. Les résolutions en énergie des détecteurs indiquées par Canberra sont de  $350\text{ eV}$  à  $5,9\text{ keV}$  et  $620\text{ eV}$  à  $122\text{ keV}$  pour la Voie X1 et  $400\text{ eV}$  à  $5,9\text{ keV}$  et  $680\text{ eV}$  à  $122\text{ keV}$  pour la Voie X2. La gamme de mesure dans le cas de la Voie X1 est comprise entre  $11$  et  $90\text{ keV}$  et celle de la Voie X2 est comprise entre  $11\text{ keV}$  et  $200\text{ keV}$ . Le tableau 4.2 résume les dimensions des détecteurs, à partir des données fournies par CANBERRA. Comme pour le détecteur GENIX, des supports de sources en plexiglas crantés ont été fabriqués et ainsi deux géométries de référence ont été définies : une géométrie où la source est positionnée au cran n°9, soit une distance de mesure d'environ  $9\text{ cm}$ , et une autre où la source est positionnée au cran n°4, soit une distance de mesure d'environ  $4\text{ cm}$ . De même, pour les deux détecteurs, deux collimateurs en tantale sont positionnés l'un proche du détecteur, l'autre proche de la source, afin de diminuer la contribution des photons diffusés.

Voie X1	
Diamètre du cristal	21,85 mm
Épaisseur totale du cristal	15 mm
Épaisseur de la zone morte en entrée	0,3 $\mu\text{m}$
Distance cristal-fenêtre en beryllium	5 mm
Épaisseur de la fenêtre en beryllium	0,5 mm

Voie X2	
Diamètre du cristal	25,4 mm
Épaisseur totale du cristal	20,5 mm
Épaisseur de la zone morte en entrée	0,3 $\mu\text{m}$
Distance cristal-fenêtre en beryllium	5,5 mm
Épaisseur de la fenêtre en beryllium	0,5 mm

Tableau 4.2 – Dimensions du cristal et du détecteur de la Voie X1 et de la Voie X2

## 4.2 Comparaison électroniques analogique et numérique

Une étude a été réalisée afin d’analyser précisément les performances actuelles de la dernière génération de module compact proposé par *labZY*, le *nanoMCA*, en comparant les résultats à ceux obtenus avec une chaîne d’acquisition analogique traditionnelle. Ces tests sont effectués dans les conditions de mesure du LNHB, à but métrologique, donc en limitant les taux de comptage et en privilégiant la qualité des spectres en termes de résolution et de surface des pics.

### 4.2.1 Courte présentation du module de *labZY*

Le module *nanoMCA* est un petit ensemble compact de  $92 \times 38 \times 25 \text{ mm}$  (voir figure 4.4), comprenant l’amplificateur et la mise en forme du signal. L’alimentation en haute tension et celle du préamplificateur sont fournies par l’alimentation ORTEC de la chaîne électronique analogique.

Sa face avant (voir figure 4.5) présente :

- Deux connecteurs USB : IO et PWR. Le premier sert de liaison et d’alimentation entre l’ordinateur et le module, le second peut être utilisé comme alimentation indépendante du *nanoMCA* ;
- Un bouton switch permettant de basculer l’alimentation du module sur ON/OFF ;
- Une LED d’indication d’état du *nanoMCA*.

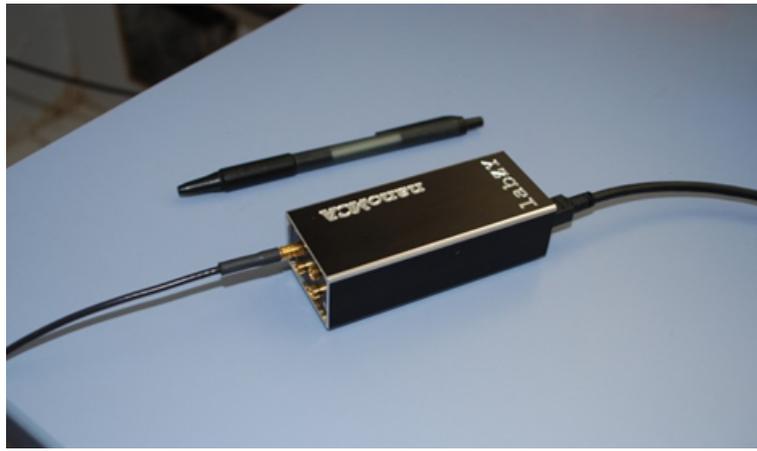


FIGURE 4.4 – Module nanoMCA de labZY



FIGURE 4.5 – Face avant du module nanoMCA

Sa face arrière (voir figure 4.6) présente 4 entrées. Les entrées A et B servent à recevoir les signaux provenant du détecteur, les entrées C et D sont des entrées numériques ou analogiques/numériques ayant différentes fonctions (signaux inhibiteurs, entrée vers un CAN de 12 bits, ...).

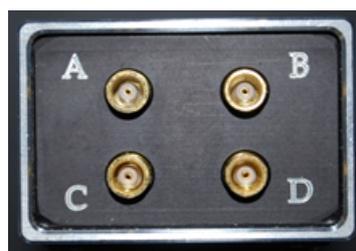


FIGURE 4.6 – Face arrière du module nanoMCA

La mise en forme des signaux est uniquement trapézoïdale. Celle-ci est caractérisée par son temps de montée (*Rise Time*), de descente (*Fall Time = Rise Time*), et la durée du plateau (*Flat Top*). Un logiciel, *labZY-MCA*, permettant de configurer le module, l'acquisition de spectre et d'opérer des traitements basiques est également intégré dans le nanoMCA. Ainsi, il est possible d'effectuer différents réglages de la trapézoïde et des constantes de mise en forme : *Slow* et *Fast Shaper*. Le Slow Shaper est destiné à la mise en forme principale des signaux provenant du détecteur, tandis que le Fast Shaper est utilisé pour identifier la présence d'événements et d'empilements. Par conséquent, il convient de régler le Rise Time (RT) et le Flat Top (FT)

pour les deux types de Shaper. Typiquement, un temps de montée de 100 à 200 ns est utilisé pour le Fast Shaper.

Le logiciel fourni avec le module ne permet qu'un traitement simple des spectres et les fichiers sortent avec une extension propre à celui-ci : « lzs ». Cependant, il est possible de les exporter au format « chn » afin de pouvoir ouvrir les spectres avec le logiciel GammaVision® et de les exploiter. Un premier onglet de la fenêtre du logiciel permet de modifier les réglages propres à l'acquisition d'un spectre comme le nombre de canaux (16 384 au maximum) ou le temps d'acquisition. Il est possible également de déclencher une impulsion numérique qui génère une gaussienne entre les canaux 15 000 et 16 383. Ce test est très utile pour régler les paramètres numériques de mise en forme du signal provenant du détecteur afin d'obtenir une gaussienne sans traîne sur la gauche ou la droite. Cela permet également de déterminer la contribution électronique à la largeur de la gaussienne sur le spectre, contribution indépendante de l'énergie du photon incident. Sur un autre onglet, il est possible d'indiquer le type de préamplificateur du détecteur (reset ou RC), le gain et le pôle-zéro, P/Z. Différents réglages sont permis suivant les entrées utilisées (A, B, C ou D). Dans le cas présent, seule l'entrée A est utilisée et l'unique champ indique le choix entre l'entrée A ou B ainsi que la polarité (positive ou négative) des impulsions. L'onglet suivant propose les paramètres modifiables de la mise en forme de la trapézoïde : RT et FT pour le Slow et Fast Shaper, Short et Long Time Constant (TC), BLR Response (restauration de la ligne de base), FD Guard (la capacité d'empilement) et le seuil, en canaux, des Slow et Fast Shaper. Le module est également pourvu d'un oscilloscope qui permet d'observer les modifications effectuées sur les paramètres des autres onglets. Il est notamment utile pour le réglage de la valeur du pôle-zéro, du Fast Shaper et du BLR.

### 4.2.2 Tests effectués sur le module

Les paramètres que nous cherchons à étudier, sont la largeur à mi-hauteur des pics (résolution en énergie) et la surface de ceux-ci en faisant varier le RT et le FT du Slow Shaper ainsi que le taux de comptage, ce qui peut affecter les valeurs du rendement du détecteur. Cela permet également de vérifier si l'électronique numérique permet d'obtenir de meilleurs résultats en terme de résolution que l'analogique. Deux séries de tests ont été effectuées avec la même source de  $^{133}\text{Ba}$ . Une première série avec un taux de comptage constant en modifiant les paramètres de la trapézoïde, une seconde en utilisant les mêmes paramètres fixés tout en augmentant progressivement le taux de comptage grâce à une source de  $^{55}\text{Fe}$ . Les résultats sont ensuite comparés à ceux obtenus dans les mêmes conditions avec l'électronique analogique. L'étalonnage en énergie est réalisé sur GammaVision® en utilisant les pics à 53, 80 et 160 keV du spectre du baryum. L'analyse est ensuite effectuée avec le logiciel COLEGRAM pour les pics des raies  $XK\alpha$  et  $XK\beta$  ainsi que les raies  $\gamma$  de 53, 80 et 160 keV, et consiste à relever la largeur à mi-hauteur et la surface sous chacun des pics. Les raies X sont déconvoluées avec des fonctions de Voigt et les raies  $\gamma$  avec des fonctions gaussiennes.

#### Variation de la résolution en fonction des paramètres du Slow Shaper

Étant donné que le Slow Shaper est le paramètre principal de mise en forme du signal, nous nous intéresserons principalement à lui dans cette étude. Ces séries de mesure sont effectuées en utilisant une source de  $^{133}\text{Ba}$ , placée à 3 cm du détecteur (cran n°2). Quels que soient les paramètres du temps de montée et de la largeur du plateau de la trapézoïde, le taux de

comptage est de l'ordre  $420 \text{ s}^{-1}$ , ce qui correspond à un temps mort compris entre 0,1 et 1,4 %, selon les paramètres du Slow Shaper. La série de mesures est réalisée selon le procédé suivant : le plateau de la trapézoïde (Flat Top) est fixé à plusieurs valeurs : 2 ; 0,5 ; 0,25 ; 0,125  $\mu\text{s}$  et, pour chacune de ces valeurs, le temps de montée (Rise Time) varie de 1 à 12  $\mu\text{s}$  par pas de 1  $\mu\text{s}$ . Pour chaque spectre, la durée d'acquisition en temps actif est identique (5 000 secondes), de sorte à avoir un bon compromis entre la statistique de comptage et le nombre d'acquisitions à réaliser.

La variation de la résolution en fonction de l'énergie pour différents temps de montée avec une valeur de largeur de plateau de 2  $\mu\text{s}$  est présentée sur la figure 4.7. Nous pouvons alors observer qu'à partir d'un temps de montée de 4  $\mu\text{s}$  la résolution n'évolue presque plus. Elle est quantitativement inférieure à celle obtenue avec l'électronique analogique.

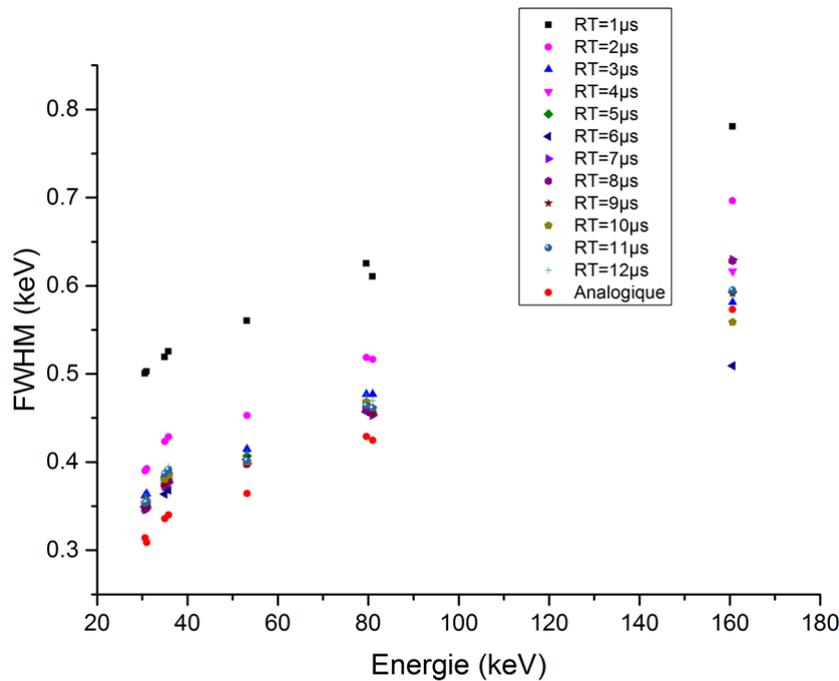


FIGURE 4.7 – Résolution en fonction de l'énergie pour une largeur de plateau fixée à 2  $\mu\text{s}$

Les figures 4.8 à 4.10 représentent les variations de la résolution en fonction de l'énergie pour des largeurs de plateau plus courtes. Nous pouvons remarquer qu'il n'y a presque pas de différence entre ces graphiques et qu'à partir d'une valeur de 6  $\mu\text{s}$  du temps de montée, la résolution n'évolue quasiment plus. Toutefois, celle-ci atteint une valeur comparable à celle obtenue avec l'électronique analogique, voire très légèrement meilleure. Par exemple, pour une largeur de plateau de 0,125  $\mu\text{s}$  et un temps de montée de 12  $\mu\text{s}$ , la résolution a une valeur inférieure de 1,5 %, en moyenne, comparée à celle obtenue avec l'analogique.

La figure 4.11 détaille la variation de la résolution obtenue pour le pic à 53 keV du baryum en fonction du temps de montée pour différentes largeurs de plateau, et permet de mieux comparer les différents paramètres de la trapézoïde. La figure 4.12 représente la variation de la résolution selon l'énergie pour différentes largeurs de plateau et une comparaison avec la résolution obtenue avec l'électronique analogique. Nous pouvons observer qu'avec une largeur de plateau de 0,125  $\mu\text{s}$  le résultat avec le nanoMCA est de qualité légèrement meilleure, environ 1 %, que celui acquis avec l'analogique.

**Remarque** : Les résultats obtenus pour le pic à 160 keV n'ont pas été pris en compte dans

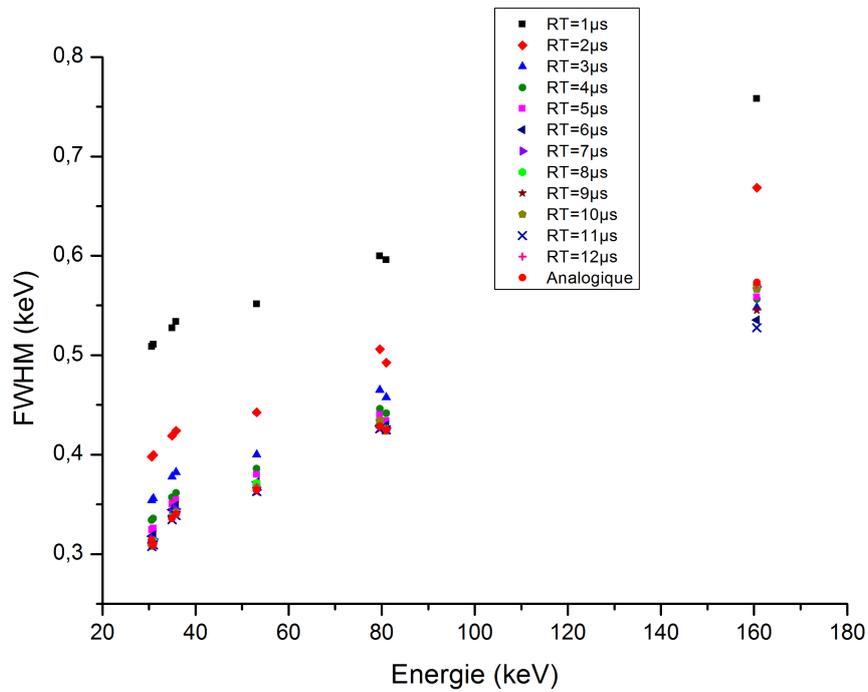


FIGURE 4.8 – Résolution en fonction de l'énergie pour une largeur de plateau fixée à  $0,5 \mu\text{s}$

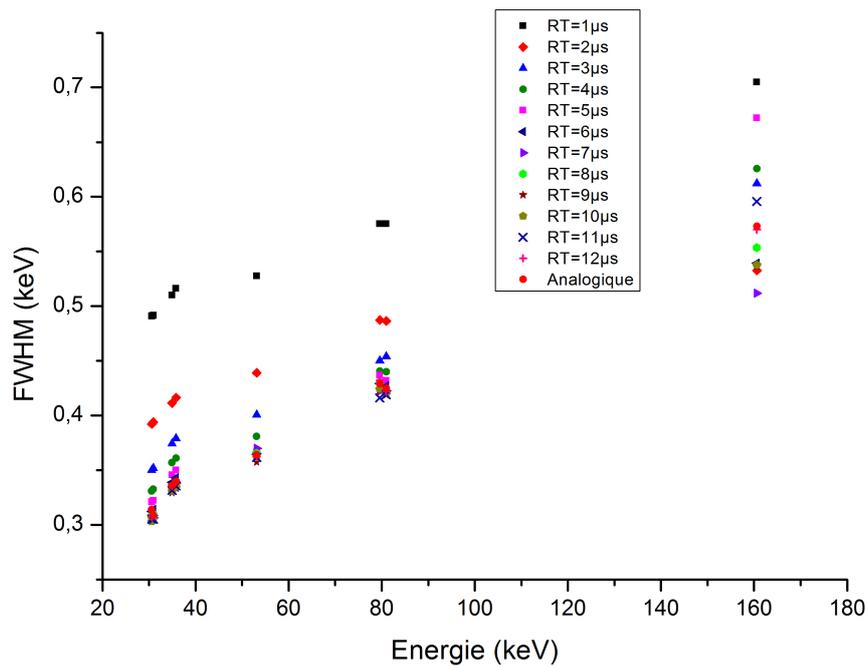


FIGURE 4.9 – Résolution en fonction de l'énergie pour une largeur de plateau fixée à  $0,25 \mu\text{s}$

les analyses du fait de la faible intensité d'émission de la raie  $\gamma$  donc de la faible statistique de comptage donnant lieu à des résultats parfois incohérents par rapport à ceux des autres pics.

### Variation de la surface en fonction des paramètres du Slow Shaper

Les conditions de mesures sont identiques, mais au lieu de calculer la largeur à mi-hauteur, c'est la surface sous chaque pic du baryum qui est relevée. Nous considérerons par la suite la

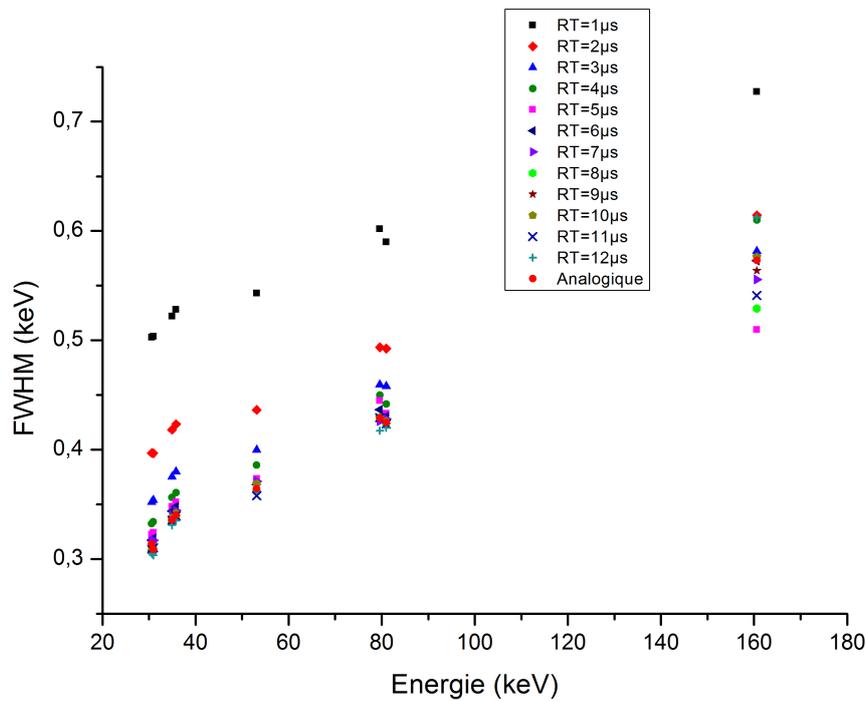


FIGURE 4.10 – Résolution en fonction de l'énergie pour une largeur de plateau fixée à  $0,125 \mu\text{s}$

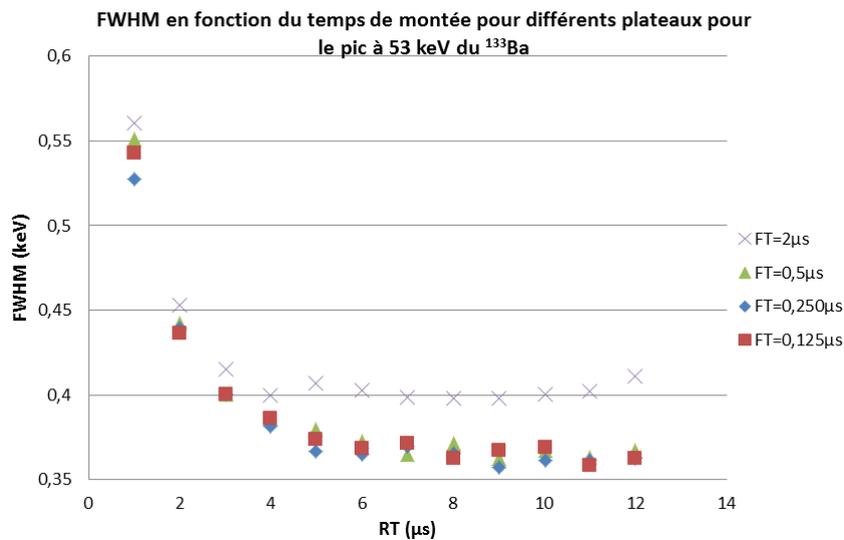


FIGURE 4.11 – Résolution en fonction du temps de montée

variation relative de la surface de chaque pic en prenant comme référence la surface mesurée sous le pic lors d'une acquisition effectuée dans les mêmes conditions avec l'électronique analogique. Les figures 4.13 à 4.16 représentent les surfaces relatives des pics en fonction de l'énergie pour différents temps de montée de la trapézoïde. Nous constatons que plus la largeur du plateau de la trapézoïde est petite, plus les écarts relatifs des surfaces sont faibles.

Avec des constantes de  $0,250$  et  $0,125 \mu\text{s}$ , ces écarts sont inférieurs à  $2 \%$  par rapport à l'électronique analogique, excepté pour la surface du pic à  $160 \text{ keV}$ . Mais de manière générale, quel que soit le temps de montée et la largeur de plateau, les valeurs des surfaces varient autour de celles obtenues avec l'électronique analogique. Les écarts dépendent des fluctuations

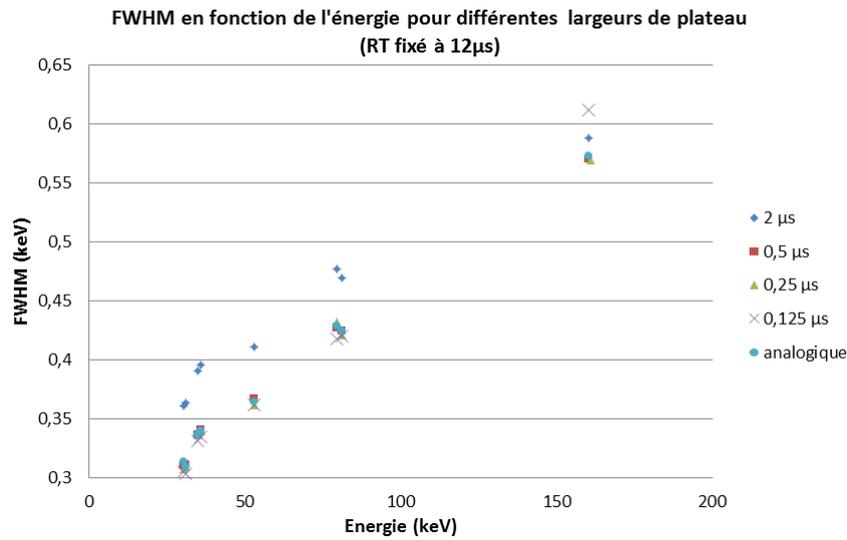


FIGURE 4.12 – Résolution en fonction de l'énergie des pics du  $^{133}\text{Ba}$  pour un temps de montée de  $12 \mu\text{s}$

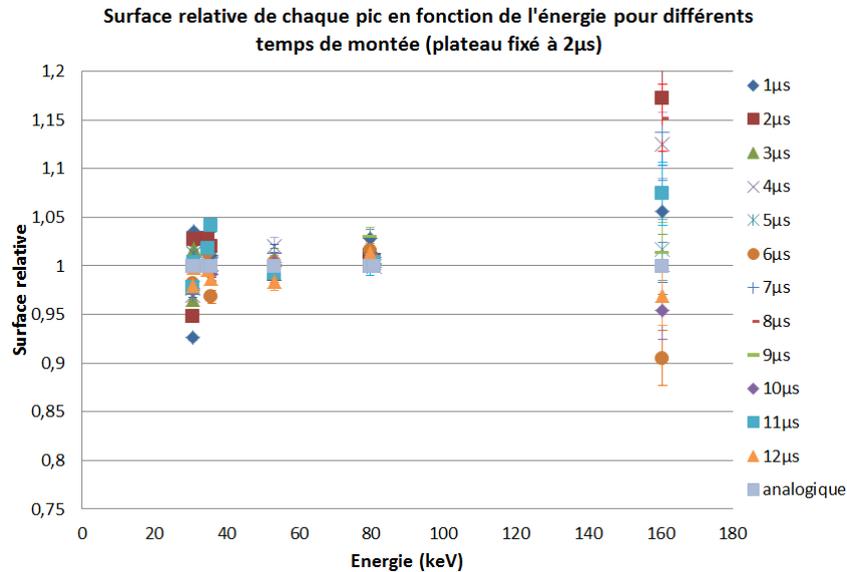


FIGURE 4.13 – Surface relative en fonction de l'énergie pour une largeur de plateau fixée à  $2 \mu\text{s}$

statistiques plutôt que d'une perte de comptage ou d'une mauvaise gestion du temps mort. Pour les mêmes raisons que dans la partie précédente, les résultats obtenus à 160 keV ne sont pas cohérents avec ceux obtenus aux autres énergies, exceptée la tendance observée précédemment, c'est-à-dire la diminution des écarts relatifs en fonction de la largeur du plateau.

### Variation de la surface sous pic en fonction du taux de comptage

Dans cette partie de l'étude, nous utilisons les réglages du Slow Shaper suivants :  $RT = 12 \mu\text{s}$  et  $FT = 0,125 \mu\text{s}$  et le temps d'acquisition est fixé à 1 000 s. Les mesures sont effectuées avec la même source de  $^{133}\text{Ba}$  placée à 3 cm du détecteur. Trois pics du  $^{133}\text{Ba}$  sont exploités : 30, 35 et 80 keV. Les autres pics ne sont pas utilisés en raison de leurs faibles intensités et par conséquent de la faible statistique de comptage résultante. Une acquisition de référence est effectuée avec la

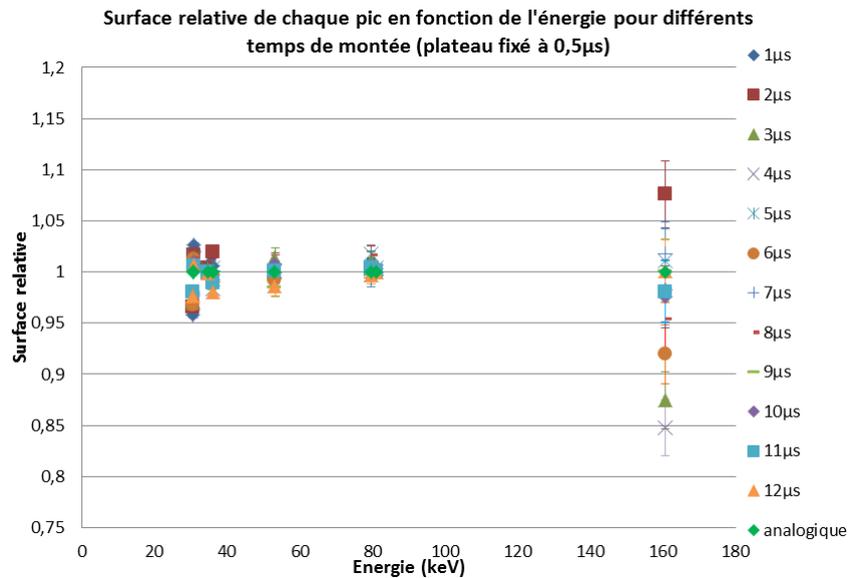


FIGURE 4.14 – Surface relative en fonction de l'énergie pour une largeur de plateau fixée à  $0,5 \mu s$

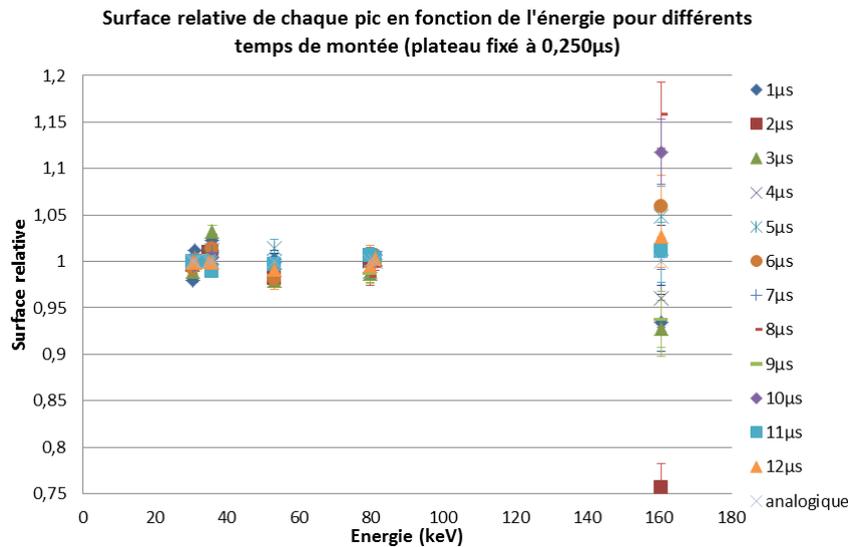


FIGURE 4.15 – Surface relative en fonction de l'énergie pour une largeur de plateau fixée à  $0,250 \mu s$

source de  $^{133}\text{Ba}$  seule, et par la suite, avec une source additionnelle de  $^{55}\text{Fe}$  (figure 4.17) qui est déplacée sur le support dans le but d'augmenter progressivement le taux de comptage global. Nous avons observé ainsi l'évolution des surfaces relatives des trois pics par rapport à celles de l'acquisition de référence, en fonction de ce taux. Les spectres sont traités avec COLEGRAM pour éviter de prendre en compte des empilements apparaissant dans les régions d'intérêt. Par exemple, la somme des raies  $\text{XK}\alpha$  du Ba et des raies X du Fe donne un pic à environ 35 keV à côté de la raie  $\text{XK}\beta$  du Ba.

La figure 4.18 présente les variations relatives des pics du baryum en fonction du taux de comptage. Une diminution relative des surfaces d'environ 2 % au maximum jusqu'à un taux de comptage de  $25\,000 \text{ s}^{-1}$  est observée, puis un effondrement de la surface des pics à 30 et

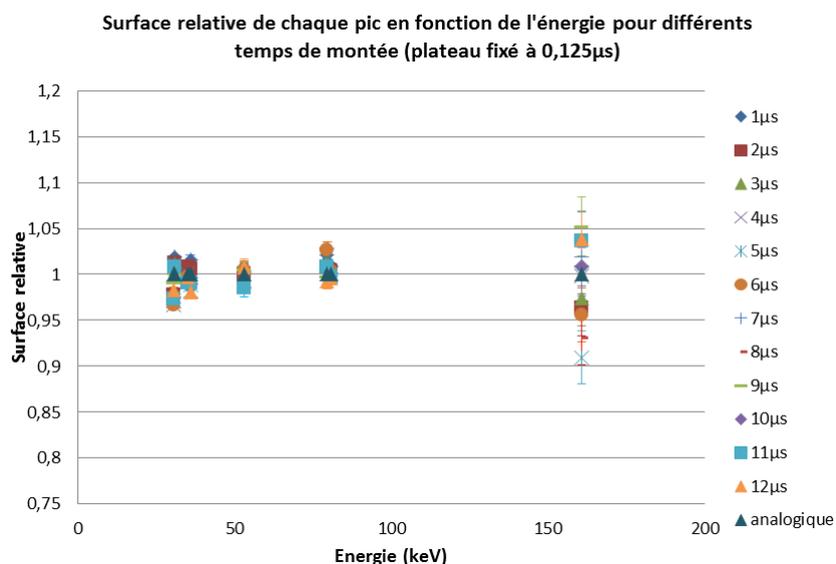


FIGURE 4.16 – Surface relative en fonction de l'énergie pour une largeur de plateau fixée à 0,125  $\mu$ s

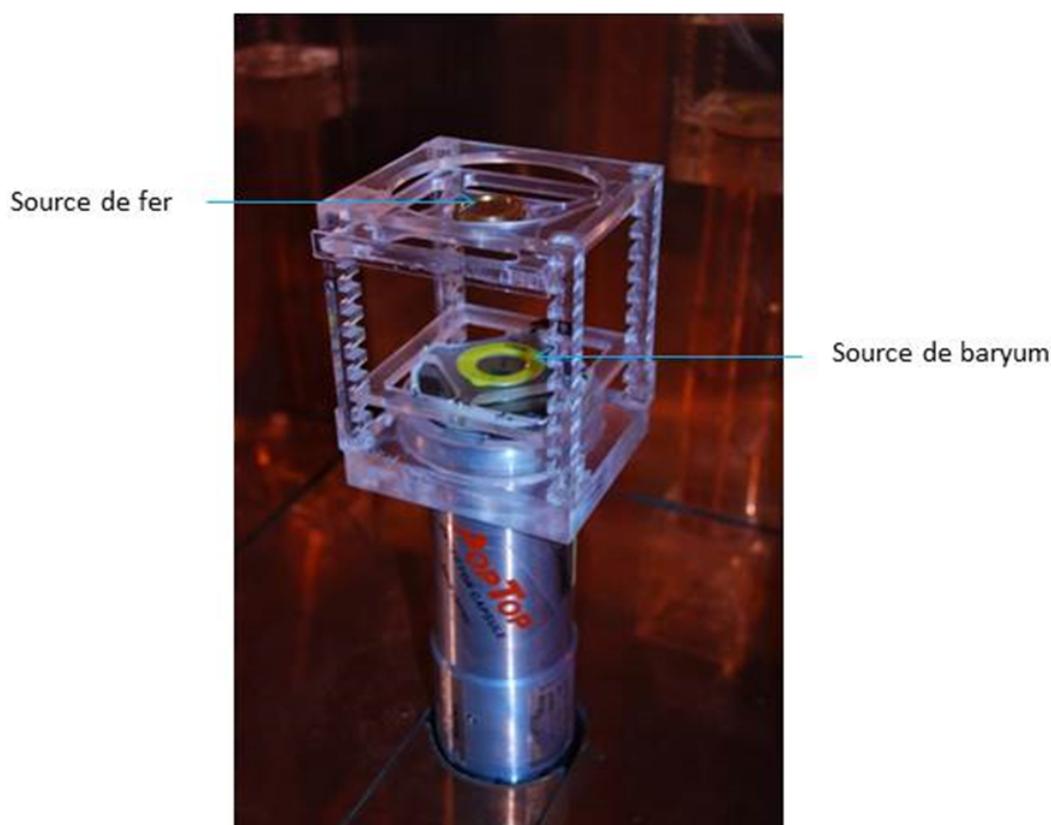


FIGURE 4.17 – Détecteur GENIX avec les sources de baryum et de fer

80 keV au-delà. Cette diminution s'explique par la coïncidence de deux photons provenant du fer et du baryum. L'électronique n'a pas le temps de les séparer et « enregistre » une énergie comme étant la somme des énergies des deux photons coïncidents. Plus le taux de comptage est élevé et plus la probabilité d'un tel événement est importante, faisant apparaître sur le spectre

ce que nous appelons des *pics sommes*, ou encore *empilements fortuits*. Ceux-ci ont les valeurs des énergies des  $K\alpha$ ,  $K\beta$  et  $\gamma$  du baryum, additionnées avec celles des  $K\alpha$  et  $K\beta$  du fer. Ainsi, ce sont des événements soustraits aux pics principaux du baryum, par rapport au spectre de référence. En calculant la surface des pics sommes et en les ajoutant à celles des pics principaux du baryum, les surfaces relatives résultantes ont des valeurs aux alentours de 1, exceptées celles du taux de comptage à  $35\,000\text{ s}^{-1}$ .

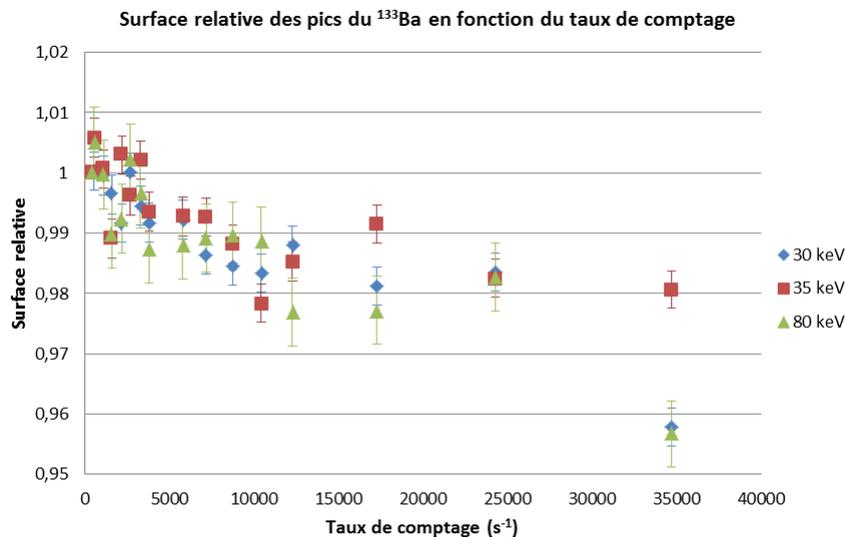


FIGURE 4.18 – Variation de la surface relative en fonction du taux de comptage

Ainsi, sur ce module numérique, grâce à un traitement manuel des spectres et si les sources radioactives sont bien connues, il est possible de corriger les effets d'un taux de comptage élevé, et par conséquent d'un temps mort important. La figure 4.19 compare les performances entre les modules d'acquisition analogique et numérique. Dans le cas présent, c'est l'évolution des surfaces moyennes des trois pics de  $^{133}\text{Ba}$ , relatives à l'acquisition de référence (absence de la source de fer), qui est représentée. Contrairement à l'électronique numérique, une augmentation des surfaces relatives en fonction du temps mort dans le cas de l'électronique analogique est remarquée, cela suggère une mauvaise gestion du temps mort.

De même qu'avec l'électronique numérique, la surface relative moyenne s'effondre pour un taux de comptage de  $35\,000\text{ s}^{-1}$  (équivalent à 62 % et 82 % de temps mort environ pour l'électronique numérique et analogique respectivement). Une des conséquences pouvant en être déduite est qu'au-delà de 50 % de temps mort, l'électronique numérique ne gère plus correctement celui-ci. Enfin, la figure 4.20 compare l'évolution du temps mort en fonction du taux de comptage entre le module d'acquisition analogique et le module numérique. Ces résultats démontrent bien la meilleure gestion du taux de comptage du module numérique par rapport au module analogique.

Les essais réalisés avec le module nanoMCA de labZY montrent que les réglages des paramètres de mise en forme des signaux ont une influence non négligeable sur la qualité des spectres. La maîtrise de ces paramètres est donc nécessaire, notamment par souci d'obtenir des résultats suffisamment fiables pour la métrologie. En comparant les résultats obtenus à ceux de l'électronique analogique, il est possible de constater également la faculté du module numérique à obtenir de meilleures performances que l'analogique. Le temps de montée de la trapézoïde

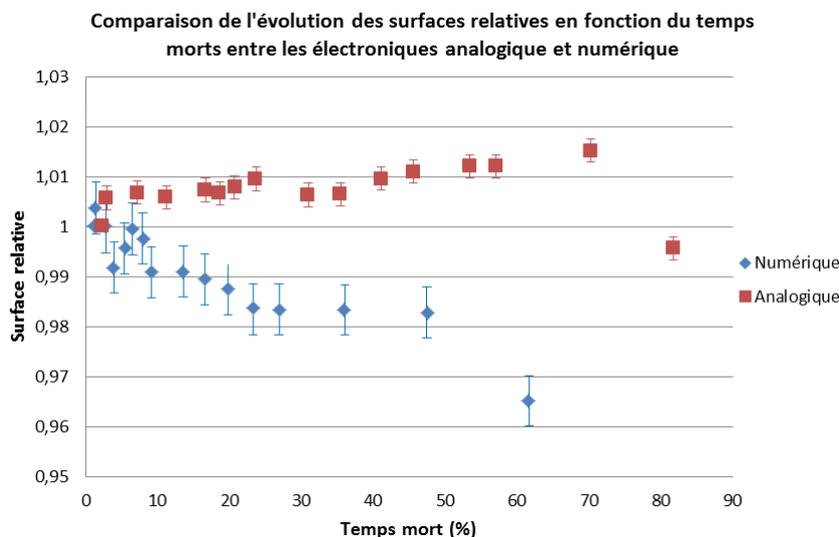


FIGURE 4.19 – Variation de la surface relative en fonction du taux de comptage

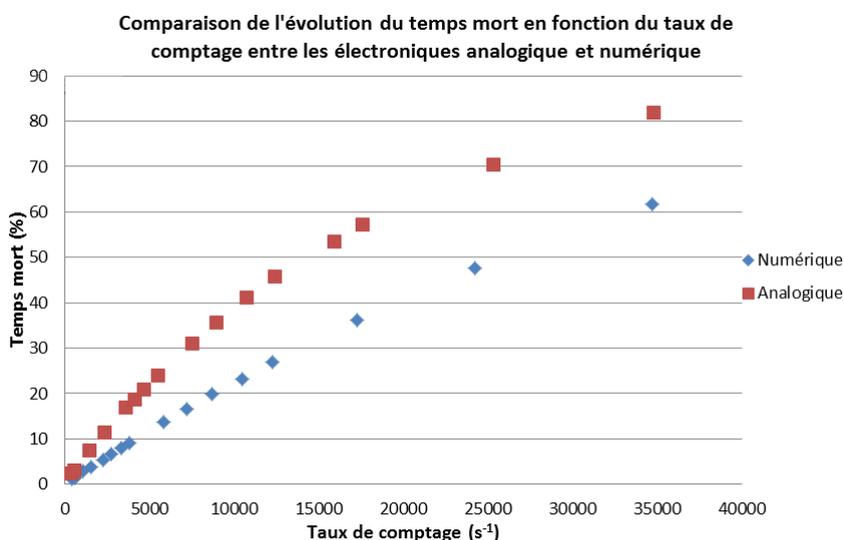


FIGURE 4.20 – Variation du temps mort en fonction du taux de comptage

a une forte influence sur la résolution à mi-hauteur des pics du spectre obtenu. La largeur de plateau influence peu la résolution, mais sa contribution est malgré tout remarquable. Un temps de montée de  $12 \mu\text{s}$  et une largeur de plateau de  $0,125 \mu\text{s}$  permettent d'obtenir une meilleure résolution en énergie qu'avec l'électronique analogique. Les surfaces des pics relatives à l'électronique analogique sont peu influencées par les paramètres de mise en forme. En effet, quels que soient le temps de montée et la largeur du plateau de la trapézoïde, pas de perte ou d'augmentation de comptage n'est observée, seulement une variation des valeurs autour de celle de l'analogique due à une fluctuation statistique du comptage. Toutefois, les paramètres ont une influence appréciable sur les écarts relatifs de ces fluctuations. Le traitement numérique du module nanoMCA permet d'effectuer des acquisitions avec des taux de comptage plus élevés que ceux réalisés avec l'électronique analogique, toutefois les surfaces des pics évoluent en fonction du taux de comptage, en particulier la gestion des empilements, que ce soit avec l'analogique ou le numérique. Pour conserver un écart relatif inférieur à 2 %, il est préférable de

ne pas dépasser un taux de comptage de  $10\,000\text{ s}^{-1}$ . Les résultats ont été obtenus avec un temps de montée de  $12\ \mu\text{s}$ . En diminuant cette constante, il est possible d'effectuer des acquisitions avec un taux de comptage plus élevé en conservant un temps mort équivalent, cependant la résolution se dégrade. Il revient à l'utilisateur de faire le compromis entre résolution et temps mort. L'utilisation du module nanoMCA développé par labZY en métrologie des rayonnements est possible mais nécessite une bonne maîtrise de l'appareil, et par conséquent une étude préliminaire pour optimiser les différents paramètres de mise en forme du signal. Suite aux mesures effectuées, il est recommandé d'utiliser ce module avec une mise en forme trapézoïdale ayant un temps de montée compris entre 6 et  $12\ \mu\text{s}$  et une largeur de plateau de  $0,125\ \mu\text{s}$ . Ensuite, il est important de vérifier les limites du taux de comptage au-delà desquelles les surfaces sous pics ne sont plus fiables, sans oublier que cela dépend du temps de montée.

## 4.3 Outils Monte Carlo

En spectrométrie de photons de basse énergie, il est nécessaire de déterminer des paramètres, des corrections ou d'étudier des phénomènes trop complexes pour être calculés par méthode analytique ou obtenus expérimentalement, comme le transfert de rendement, la pente de diffusion en basse énergie ou la fluorescence dans les dosimètres (voir chapitre 5). Les codes de calculs de transport de particules dans la matière par méthode Monte Carlo peuvent alors se révéler très utiles pour pallier la méthode analytique, les résultats doivent cependant être validés par une approche expérimentale. Le terme méthode Monte Carlo désigne une classe d'algorithmes visant à calculer une valeur numérique par la génération de nombres aléatoires. Ces méthodes ont été développées dans les années 1940 notamment par les physiciens engagés dans les travaux de recherches sur la fabrication de la bombe atomique au cours du projet Manhattan. Les méthodes Monte Carlo trouvent plusieurs applications, dont le transport des particules dans la matière. Plusieurs de ces méthodes Monte Carlo sont en libre distribution : GEANT4, PENELOPE, MCNP, etc.

### 4.3.1 GEANT4

GEANT4 [54] a été initialement développé au CERN pour les besoins de calculs en physique des particules de haute énergie, il a été par la suite adapté à d'autres domaines tels la physique nucléaire, la physique médicale, et continue encore, à l'heure actuelle, à être étendu à d'autres applications. GEANT4 a été conçu comme une boîte à outils, organisée en différents domaines interdépendants, il est toutefois possible de modifier un de ces domaines sans influencer sur le reste du programme. Cette capacité d'adaptabilité est rendue possible grâce à la programmation orientée-objet, propriété intrinsèque au langage C++. Ainsi, l'utilisateur peut créer et modifier sa propre géométrie de simulation, sélectionner des processus d'interaction et des particules. Il revient également à l'utilisateur de choisir le modèle de la physique décrivant l'intégralité des processus d'interaction des particules. Il en existe de nombreux, ayant différents domaines d'application que ce soit pour les particules ou pour l'énergie, utilisés pour modéliser les interactions hadroniques ou encore les liaisons quarks-gluons pour l'interaction des protons, neutrons et autres particules. Dans cette étude, l'énergie des photons ne descend pas en-dessous de quelques keV et ne dépasse pas 2 MeV. À ces énergies, leurs interactions sont principalement régies par les lois de l'électromagnétisme. Il existe différents modèles décrivant les processus d'interactions électromagnétiques. Un modèle développé récemment est la liste

*standard\_option4* regroupant les modèles des listes de physique standard et de basse énergie, Penelope et Livermore. En ce qui concerne ce dernier modèle, il permet de décrire les interactions électromagnétiques des photons, des électrons et des positrons pour des énergies comprises entre quelques centaines d’eV à 100 GeV. La liste de Penelope a été implémentée à partir du code de calcul PENELOPE (voir paragraphe 4.3.2), considéré comme la référence sur le calcul des interactions électrons, positrons et photons-matière, en se basant sur sa version de 2008. La liste de Penelope décrit les interactions pour des énergies allant de quelques centaines d’eV à 1 GeV. Dans la suite des travaux, c’est le modèle de la physique Penelope qui a été conservé dans les simulations pour décrire l’ensemble des interactions des photons, des électrons et des positrons dans la matière. Le suivi d’une particule dans GEANT4 se fait par step ou pas, il s’agit de la plus petite unité de déplacement. Un pas comporte deux points (pre-step point et post-step point) ainsi que des informations essentielles sur la particule, comme la perte d’énergie, le temps de vol, etc. À une dimension supérieure se trouve l’« event », événement, qui regroupe plusieurs steps, de la génération de la particule primaire à la disparition de celle-ci ainsi que les particules secondaires créées par cette particule primaire. Le run est une somme de tous les événements produits lors de l’exécution de la simulation. Grâce à un ensemble de classes, il est possible pour l’utilisateur d’obtenir des informations sur la simulation ou la particule au début ou à la fin de chaque step, event ou run.

### 4.3.2 PENELOPE

PENELOPE, acronyme pour « PENetration and ENergy LOss of Positrons and Electrons » est développé par l’Université de Barcelone et distribué par l’Agence de l’Énergie Nucléaire (NEA) de l’OCDE et se consacrait initialement au transport des électrons et des positrons dans la matière [18]. Depuis, PENELOPE a été complété par l’ajout du transport des photons, pour une gamme d’énergie allant de 100 eV à 1 GeV. En ce qui concerne les électrons et les positrons, leur transport est simulé au moyen d’une procédure mixte. Une valeur seuil d’énergie ou d’angle de diffusion est prédéfinie, et tous les événements (*hard events*) se produisant à des valeurs supérieures à ce seuil sont simulés en détail. Tandis que, en-dessous de ce seuil, les interactions (*soft events*) sont calculées en utilisant une approche à diffusion multiple (*Multiple Scattering MSC*). Les interactions des photons (diffusion Rayleigh, Compton, effet photoélectrique et création de paires électron-positron) et l’annihilation des positrons sont simulées de façon détaillée. PENELOPE simule également l’émission de photons (fluorescence) et d’électrons suite à une vacance dans une couche électronique profonde d’un atome. La relaxation de ces vacances est poursuivie jusqu’à ce que toutes les enveloppes internes soient remplies, c’est-à-dire jusqu’à ce que les vacances aient migré vers les couches électroniques externes de l’atome. PENELOPE étant programmé en FORTRAN77, son architecture est différente de celle de GEANT4, puisque le code ne permet pas la programmation orientée-objet. Il est séparé en plusieurs sous-programmes affectés à la géométrie, la physique, etc. Il peut être lancé par deux programmes principaux prédéfinis : *pencil* et *penmain*, ou par un programme spécifique préparé par l’utilisateur. D’une manière générale, la géométrie de PENELOPE permet des constructions quadriques assez complexes. La principale différence entre *pencil* et *penmain* est que la géométrie de *pencil* est uniquement cylindrique tandis que *penmain* permet d’utiliser un ensemble plus complet de surfaces en trois dimensions. Pour éviter de perturber l’ensemble du code PENELOPE, la géométrie et les détails de simulation sont décrits dans deux fichiers séparés du programme principal de PENELOPE. Un premier fichier, d’extension *.in*, permet à l’utilisateur

d'indiquer les informations concernant la source radioactive (type de particule, énergie initiales, coordonnées spatiales, volume, etc.), le nom des fichiers des matériaux de la simulation et les informations sur les paramètres les concernant (énergies d'absorption, paramètres de diffusion élastique et seuils de perte d'énergie pour la diffusion inélastique et le Bremsstrahlung), les informations sur le détecteur (n° de volume, nom de fichier de sortie, fenêtre en énergie et nombre de canaux), le nom du fichier de géométrie, la limite de la simulation (en secondes ou nombres d'événements) ou encore la graine du générateur de nombre aléatoire ainsi que d'autres paramètres. Le second fichier, d'extension .geo, où l'utilisateur implémente la géométrie de la simulation. Les fichiers matériaux sont créés à partir d'un autre programme. Ces fichiers contiennent toutes les physiques sur chaque matériau (incluant des tableaux de leurs propriétés physiques, des sections efficaces d'interaction, des données de relaxation atomique, etc.).

### 4.3.3 PENNUC

La simulation de la décroissance radioactive par méthode Monte Carlo peut s'avérer utile dans le cas où la simulation de l'émission de plusieurs particules (photons et électrons) conformément à un spectre devient nécessaire (voir section 5.3). GEANT4 propose un module permettant de simuler la désintégration radioactive, cependant basé sur les données ENSDF. Un ensemble de sous-programmes pour PENELOPE a très récemment été développé [55]. Nommé PENNUC, il simule les chemins de désintégration nucléaire et génère les énergies et les directions des photons, des électrons et des positrons émis. Les particules alpha ne sont pas suivies. Le programme simule la désintégration du noyau radioactif comme une séquence aléatoire de transitions. Chaque transition étant alors suivie soit de l'émission d'électrons ou de photons (transitions bêta et gamma), soit d'une lacune dans une sous-couche (conversion interne et capture électronique). Dans ce dernier cas, la relaxation atomique est simulée en utilisant la même base de données que PENELOPE. Le schéma de désintégration est obtenu à partir de la base de données de nucléides (DDEP). Le site web a été récemment complété avec la possibilité d'exporter les caractéristiques de désintégration nucléaire dans un fichier texte (ASCII) avec un format adapté à PENNUC. Ces fichiers textes sont structurés comme illustré par l'exemple de  $^{60}\text{Co}$  sur la figure 4.21 :

1. Le nom du nucléide père : Co60 dans l'exemple ;
2. Le nombre de masse  $A$  et le numéro atomique  $Z$  du noyau père : 60 , 27 ;
3. Le nombre de nucléides fils : 1 ;
4. Les informations sur les noyaux fils : nom du nucléide fils, probabilités de désintégration, nombre de niveaux excités pour chaque descendant, nombre de voies vers ce descendant, chaleur de réaction et incertitudes. Les informations concernant chaque nucléide fils sont séparées les unes des autres par une ligne de séparation intitulée « *Daughter Separator* ». Chacune de ces séparations contient toutes les informations propres au nucléide fils, concernant les voies de désintégration, les niveaux excités et les types de transitions dépeuplant ces niveaux ;
5. Les informations sur chaque voie de désintégration du noyau fils : mode de désintégration, rapport d'embranchement, niveau **excité** d'arrivée pour chaque voie, énergie de la

```

PAR C060
AZP 60 ; 27
NDA 1
COM ***** Evaluation Date: 13/01/2006 *****
COM ===== Daughter Separator =====
DAU NI60
DDE 1 ; ; 3 ; 3
Q 2823.07 ; 0.21
COM ----- Branch Separator -----
BEM 0.9988 ; 0.0003 ; 3 ; 317.32 ; 0.21 ; 0
COM ----- Branch Separator -----
BEM 0.00002 ; ; 2 ; 664.46 ; 0.21 ; -2
COM ----- Branch Separator -----
BEM 0.0012 ; 0.0003 ; 1 ; 1490.56 ; 0.21 ; -2
COM ----- Branch Separator -----
COM ----- Level Separator - T1/2 in seconds -----
LED 2505.748 ; 0.005 ; 9 ; 3.E-13 ; 9.E-14 ; 3
GA 0.000075 ; 0.000004 ; 347.14 ; 0.07 ; 2
EK 0.000000374 ; 0.00000023 ; 338.81 ; 0.07 ; 2
EL 0.0000000377 ; 0.000000023 ; 346.23 ; 0.07 ; 2
GA 0.9985 ; 0.0003 ; 1173.228 ; 0.003 ; 1
EK 0.000151 ; 0.000007 ; 1164.9072 ; 0.003 ; 1
EL 0.00001478 ; 0.0000004 ; 1172.3284 ; 0.003 ; 1
GA 0.00000002 ; 0.00000004 ; 2505.692 ; 0.005 ; 0
EK 0.0000000000156 ; 0.0000000000031 ; 2497.415 ; 0.005 ; 0
EL 0.00000000000152 ; 0.00000000000031 ; 2504.836 ; 0.005 ; 0
COM ----- Level Separator - T1/2 in seconds -----
LED 2158.61 ; 0.03 ; 6 ; 5.9E-13 ; 1.7E-13 ; 2
GA 0.000076 ; 0.000008 ; 826.1 ; 0.03 ; 1
EK 0.000000228 ; 0.000000039 ; 817.767 ; 0.03 ; 1
EL 0.0000000221 ; 0.0000000027 ; 825.188 ; 0.03 ; 1
GA 0.000012 ; 0.000002 ; 2158.57 ; 0.03 ; 0
EK 0.00000000053 ; 0.0000000009 ; 2150.277 ; 0.03 ; 0
EL 0.000000000052 ; 0.0000000009 ; 2157.698 ; 0.03 ; 0
COM ----- Level Separator - T1/2 in seconds -----
LED 1332.508 ; 0.004 ; 3 ; 7.13E-13 ; 1.1E-14 ; 1
GA 0.999826 ; 0.000006 ; 1332.492 ; 0.004 ; 0
EK 0.000115 ; 0.000005 ; 1324.1752 ; 0.004 ; 0
EL 0.0000113 ; 0.0000003 ; 1331.5964 ; 0.004 ; 0

```

FIGURE 4.21 – Fichier de désintégration ASCII du  $^{60}\text{Co}$  utilisé pour PENNUC

transition, facteur de prohibition pour les transitions  $\beta$  (indique la nature de la transition) et incertitudes. Chaque voie de désintégration est séparée par une ligne intitulée « *Branch Separator* » ;

6. Les informations sur chaque niveau **excité** du noyaux fils : énergie du niveau, nombre de transitions dépeuplant ce niveau (transitions  $\gamma$ , électrons de conversion et création de paires internes), durée de vie du niveau (en seconde), numéro du niveau, sont indiquées dans la première ligne du « *Level Separator* ». Les lignes suivantes contiennent les informations sur les transitions dépeuplant un niveau excité : type de transition ( $\gamma$ , électron de conversion K,  $L_1$ , etc. et création de paires internes), intensité de la transition, énergie de la transition, niveau d'arrivée (0 pour le niveau fondamental) et incertitudes. Les informations sur les transitions pour chaque niveau excité sont regroupées par niveau d'arrivée (voir figure 4.21) ;
7. La première colonne contient le code qui indique à PENNUC le type d'information. PAR : nom du nucléide père ; AZP : A et Z du noyau père ; NDA : nombre de noyaux fils, etc. Dans le cas des voies de désintégration, ce code indique le mode de désintégration : BEM pour  $\beta^-$ , BEP pour  $\beta^+$ , CK, CL1, CL2 pour les captures électroniques dans la couche K, L1, L2, ... Pour les transitions entre niveaux excités, l'émission  $\gamma$  est notée GA et la conversion interne EK, EL1, EL2, ..., suivant la couche électronique où la conversion à lieu.

À partir de ce fichier texte, le fichier CASCADE est généré à l'aide d'un sous-programme de PENNUC. L'utilisateur indique le nombre de désintégrations qu'il souhaite simuler, puis PENNUC calcule toutes les possibilités d'émission de photons, d'électrons et de positrons en accord avec le schéma de désintégration. Le tableau 4.3 présente un exemple de fichier CASCADE généré pour 10 désintégrations de  $^{60}\text{Co}$ . La première colonne correspond au numéro de la désintégration, la seconde est l'énergie de la particule en eV, la troisième colonne indique le

N° de désintégration	Énergie (eV)	Poids de la particule	ID de la particule
1	40534.694513881026	1.00000	1
1	1173228.0000000000	1.00000	2
1	1332492.0000000000	1.00000	2
2	102980.42881820281	1.00000	1
2	1173228.0000000000	1.00000	2
2	1332492.0000000000	1.00000	2
3	97770.044418958307	1.00000	1
3	1173228.0000000000	1.00000	2
3	1332492.0000000000	1.00000	2
4	42874.499838602220	1.00000	1
4	1173228.0000000000	1.00000	2
4	1332492.0000000000	1.00000	2
5	53761.406228708373	1.00000	1
5	1173228.0000000000	1.00000	2
5	1332492.0000000000	1.00000	2
6	73618.979194727552	1.00000	1
6	1173228.0000000000	1.00000	2
6	1332492.0000000000	1.00000	2
7	46085.454877819553	1.00000	1
7	1173228.0000000000	1.00000	2
7	1332492.0000000000	1.00000	2
8	4844.6058690675973	1.00000	1
8	1173228.0000000000	1.00000	2
8	1332492.0000000000	1.00000	2
9	197196.95754643565	1.00000	1
9	1173228.0000000000	1.00000	2
9	1332492.0000000000	1.00000	2
10	121716.43867473394	1.00000	1
10	1173228.0000000000	1.00000	2
10	1332492.0000000000	1.00000	2

Tableau 4.3 – Fichier CASCADE du  $^{60}\text{Co}$ , pour 10 désintégrations

poids de la particule dans la simulation (1 par défaut) et la quatrième correspond au numéro de la particule (1 pour les électrons, 2 pour les photons et 3 pour les positrons). Le fichier est relié à PENELOPE qui va le « lire » ligne par ligne et simuler les particules qui correspondent aux informations sur ces lignes, tous les événements portant le même numéro de désintégration sont regroupés comme étant un seul et même événement.

## 4.4 Étalonnage en rendement des détecteurs

Malgré les avantages notables du module numérique nanoMCA, pour la suite de l'étude l'électronique analogique a été conservée, essentiellement dans un souci de cohérence avec les autres chaînes de spectrométrie du laboratoire. L'essentiel des travaux de la thèse a été effectué au LNHB, c'est pourquoi seul l'étalonnage en rendement du détecteur GENIX sera présenté ici, pour le cas de sources ponctuelles à 8 cm du détecteur. L'étalonnage en rendement conditionne les résultats quantitatifs et a donc fait l'objet d'une étude détaillée. Différentes approches ont été mises en œuvre, en commençant par une détermination expérimentale avec l'utilisation d'étalons, puis en utilisant les codes de simulation de Monte Carlo et en testant différents modèles empiriques et semi-empiriques pour établir une courbe d'étalonnage en rendement sur toute la gamme d'énergie. En basse énergie, il est nécessaire de procéder en plusieurs étapes afin d'obtenir une courbe de rendement précise sur la gamme d'intérêt (entre 11 et 168 keV). Cet étalonnage a été effectué pour obtenir des incertitudes minimales sur les valeurs expérimentales et des études ont été menées pour réduire ces incertitudes.

### 4.4.1 Étalonnage expérimental

La première étape de l'étalonnage est l'obtention de valeurs expérimentales [56], [57] à partir de sources radioactives dont l'activité a été déterminée par une méthode primaire du LNHB. Avant le calcul du rendement d'absorption totale pour chaque point expérimental, deux étapes sont nécessaires : l'étalonnage en énergie et en résolution du détecteur. Mais en premier lieu, il convient de dresser la liste des sources utilisées ainsi que le radionucléide correspondant avec les énergies et les intensités des émissions photoniques.

#### Choix et liste des radionucléides utilisés

Le premier critère du choix des radionucléides, évident, est l'énergie des photons émis. Il faut qu'elle soit adaptée à la gamme de mesure du détecteur. Le second critère important est la connaissance du schéma de désintégration du radionucléide. Il est préférable de privilégier ceux qui ont fait l'objet de nombreuses publications et évaluations et dont les incertitudes sur les données sont peu élevées. L'Agence Internationale de l'Énergie Atomique (AIEA) a dressé une liste de radionucléides recommandés pour l'étalonnage des détecteurs dans une gamme d'énergie de 5 keV à 14 MeV [6]. La liste des radionucléides utilisés pour les étalonnages en énergie, résolution et rendement de GENIX a été établie selon leur disponibilité au LNHB ; elle est présentée dans le tableau 4.4.

Ne sont indiquées dans ce tableau que les énergies des raies comprises dans la gamme d'étalonnage en rendement de GENIX, soit entre 11 keV et 168 keV. Le  $^{55}\text{Fe}$  fait exception car il s'agit d'un radionucléide classiquement utilisé pour l'étalonnage en résolution. En plus des radionucléides cités par l'AIEA, du fait de leurs disponibilités dans le laboratoire, des radionucléides moins communs ont été ajoutés :  $^{129}\text{I}$  et  $^{210}\text{Pb}$ . Ces deux radionucléides ont la particularité d'avoir une émission  $\gamma$  de faible énergie (voir tableau 4.4) et sont susceptibles d'apporter des informations complémentaires dans cette région où les valeurs expérimentales proviennent majoritairement des émissions de rayons X, dont les données sont jugées moins fiables que celles des rayonnements  $\gamma$ .

#### Étalonnage en énergie

La première étape de l'étalonnage du détecteur est son étalonnage en énergie. La figure 4.22 présente la correspondance entre énergie et canal dans le cas du détecteur GENIX. Cet étalonnage a été effectué uniquement à partir des émissions  $\gamma$ . En effet, les émissions des rayons X ne permettent pas d'obtenir une précision satisfaisante sur l'énergie du fait de la proximité des pics les uns par rapport aux autres ( $K\alpha$  et  $K\beta$ ). Une bonne linéarité sur la gamme d'analyse a été constatée. La fonction affine ajustée aux points expérimentaux sera donc utilisée dans la suite de l'étalonnage et des mesures.

#### Étalonnage en résolution

À partir de cet étalonnage en énergie, l'étalonnage en résolution a été réalisé. Le logiciel COLEGRAM est utilisé pour ajuster une fonction gaussienne à chaque pic d'absorption totale. Il n'est pas recommandé d'utiliser les émissions de rayons X dans le cas de cet étalonnage car ceux-ci possèdent une largeur naturelle représentée par une fonction lorentzienne de largeur  $\Gamma$ . Dans le cas de radionucléides de faible numéro atomique, comme le  $^{55}\text{Fe}$ , la contribution lorentzienne est très faible, mais elle devient non-négligeable par rapport à la largeur gaussienne

Radionucléide	Energie (keV)		Intensité d'émission (%)	
<sup>55</sup> Fe	5,8877	5,8951	8,45 (14)	25,02 (31)
	5,8988		16,57 (27)	
	6,4905	6,5128	–	3,40 (7)
	6,5352		–	
<sup>88</sup> Y	14,098	14,142	17,55 (16)	51,26 (31)
	14,165		33,71 (26)	
	15,877	15,902	8,32 (10)	9,40 (11)
	16,094		1,08 (4)	
<sup>109</sup> Cd	21,991	22,103	29,21 (30)	84,31 (58)
	22,163		55,1 (5)	
	25,000	25,072	15,25 (20)	17,9 (22)
	25,484		2,65 (10)	
	–	88,034 (1)	–	3,66 (5)
<sup>129</sup> I	29,459	29,667	20,1 (3)	57,3 (7)
	29,779		37,2 (6)	
	33,689	33,835	10,3 (4)	12,6 (4)
	34,488		2,30 (13)	
	–	39,578 (1)	–	7,42 (8)
<sup>133</sup> Ba	30,625	30,851	33,8 (4)	96,2 (8)
	30,973		62,4 (7)	
	35,053	35,224	18,24 (29)	22,69 (31)
	35,900		4,45 (12)	
	–	53,162 (2)	–	2,14 (6)
	79,614 (2)	80,895	2,63 (19)	35,94 (36)
	80,998 (1)		33,31 (30)	
–	160,612 (1)	–	0,638 (6)	
<sup>137</sup> Cs	31,817	32,061	1,95 (4)	5,54 (8)
	32,194		3,59 (7)	
	36,446	36,624	1,055 (22)	1,321 (23)
	37,332		0,266 (8)	
<sup>152</sup> Eu	39,523	39,907	20,8 (3)	58,5 (6)
	40,119		37,7 (5)	
	42,309	42,751	0,243 (7)	0,68 (1)
	42,997		0,437 (12)	
	45,478	45,728	11,78 (19)	14,8 (2)
	46,698		0,304 (8)	
	48,769	49,045	0,138 (4)	0,174 (4)
	50,093		0,036 (1)	
–	121,7817 (3)	–	28,41 (13)	
<sup>207</sup> Pb	–	72,805	–	21,75 (30)
	–	74,97	–	36,6 (5)
	–	84,953	–	12,49 (25)
	–	87,576	–	3,77 (10)
<sup>210</sup> Pb	–	46,539	–	4,252 (40)
<sup>241</sup> Am	–	11,89	–	0,844 (9)
	–	13,93	–	13,02 (10)
	–	17,533	–	18,96 (13)
	–	21,01	–	4,83 (3)
	–	26,345 (2)	–	13,02 (10)
	–	33,196 (3)	–	0,1215 (28)
	–	59,5409 (1)	–	35,92 (17)
	–	98,97 (2)	–	0,0203 (4)
	–	102,98 (2)	–	0,0195 (4)

Tableau 4.4 – Liste des radionucléides utilisés pour l'étalonnage

(liée au processus de détection) pour des éléments plus lourds. Cette largeur doit alors être prise en compte en ajustant une fonction de Voigt aux pics X, mais ceci ajoute une incertitude supplémentaire sur la valeur ajustée de l'écart-type de la gaussienne. La figure 4.23 montre la variation du carré de l'écart-type  $\sigma$  de la gaussienne en fonction de l'énergie des photons. Dans le chapitre 2, il a été introduit le facteur de Fano  $F$  caractérisant le détecteur. Avec l'étalonnage en résolution et la fonction ajustée, il est possible de déterminer ce facteur de Fano et, dans le cas de GENIX un facteur de 0,098 a été obtenu, ce qui est en bon accord avec les valeurs généralement mesurées pour le germanium [23].

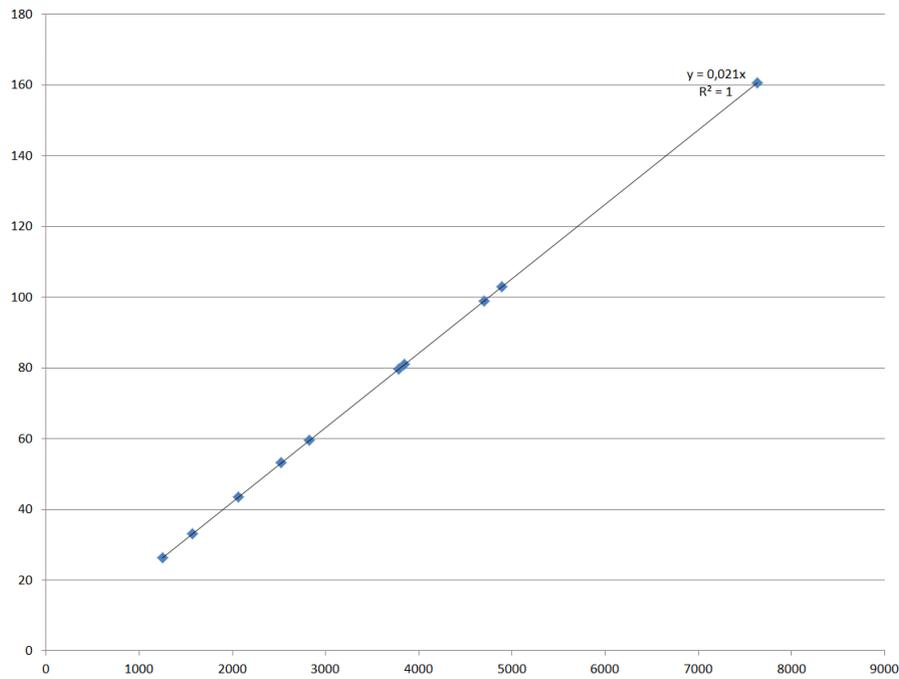


FIGURE 4.22 – Etalonnage en énergie du détecteur GENIX

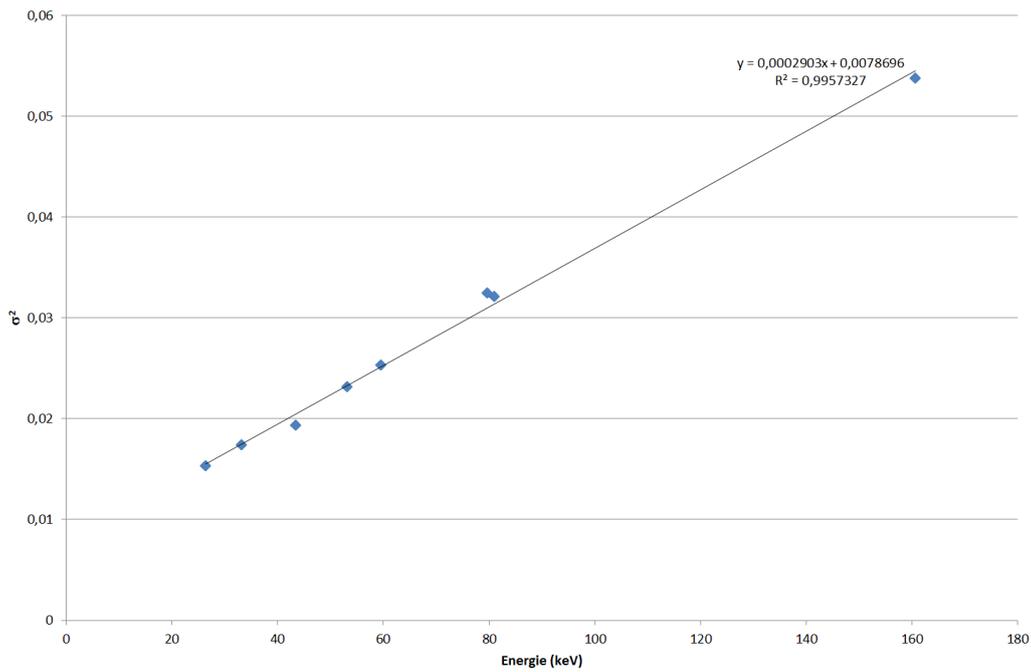


FIGURE 4.23 – Variation de  $\sigma^2$  de GENIX en fonction de l'énergie

### Étalonnage en rendement d'absorption totale

Ces deux étalonnages préalables permettent de réaliser de manière précise l'étalonnage en rendement du détecteur. En effet, d'après l'étalonnage en résolution, l'écart-type de la fonction gaussienne est connue quelle que soit l'énergie comprise dans la gamme de l'étalonnage; cela permet donc de fixer sa valeur parmi les paramètres d'ajustement sur COLEGRAM. De ce fait, les seuls paramètres libres sont le centroïde du pic (énergie) et l'amplitude de la gaussienne, ce qui permet de faciliter l'ajustement des pics. La figure 4.24 montre l'ensemble des points

expérimentaux obtenus à partir de l'acquisition des différents spectres.

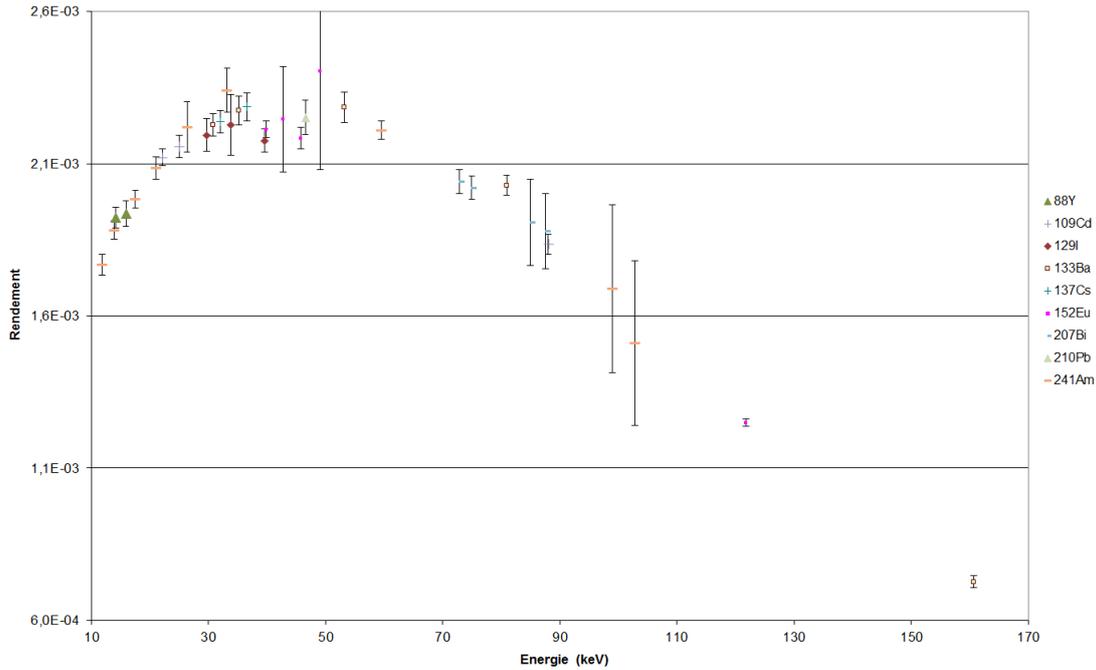


FIGURE 4.24 – Rendement d'absorption totale de GENIX en fonction de l'énergie des photons

À première vue, il est possible de remarquer le décalage des valeurs de  $^{129}\text{I}$  avec le reste des points expérimentaux, en particulier l'émission  $\gamma$  de 40 keV. Cet isotope de l'iode se désintègre vers un isotope stable du xénon et émet par conséquent les rayons X caractéristiques de cet élément. Sur le spectre d'acquisition de  $^{129}\text{I}$  (figure 4.25) aux côtés des pics des photons X du xénon, apparaissent d'autres pics dont les énergies correspondent aux énergies des photons X de l'iode. Comme cela a été précédemment décrit, les sources radioactives sont des gouttes d'une solution déposée sur une feuille de Mylar<sup>®</sup>. Dans le cas de  $^{129}\text{I}$ , l'entraîneur utilisé est de l'iodure de sodium (NaI) et du nitrate d'argent ( $\text{AgNO}_3$ ). Il est ajouté pour fixer l'iode, qui est un élément très volatil. Il est donc très probable que les photons émis par  $^{129}\text{I}$  interagissent par effet photoélectrique dans la couche K de l'iode présent dans l'entraîneur (phénomène d'auto-fluorescence), puisque les émissions  $K\beta$  et  $\gamma$  du xénon ont une énergie supérieure à l'énergie de liaison de cette couche. La valeur du rendement pour le cas des émissions  $K\beta$  et du  $\gamma$  est donc sous estimée et doit être corrigée pour tenir compte de cet effet. Une méthode pour y parvenir, est de déterminer la surface sous les pics de fluorescence de l'iode et d'ajouter une contribution aux valeurs des surfaces des  $K\beta$  et du  $\gamma$ , proportionnellement à la probabilité d'interaction dans le volume de la goutte radioactive (fonction de l'énergie) et au rendement de fluorescence de l'iode. Cependant, après cette correction, les nouvelles valeurs de rendement sont nettement supérieures aux autres valeurs expérimentales. Ce qui signifie qu'il y a un phénomène supplémentaire à la présence de pics de fluorescence de l'iode, et que l'utilisation de ce radionucléide pour l'étalonnage en rendement du détecteur n'est pas fiable ; il ne sera donc pas pris en compte dans la courbe de rendement.

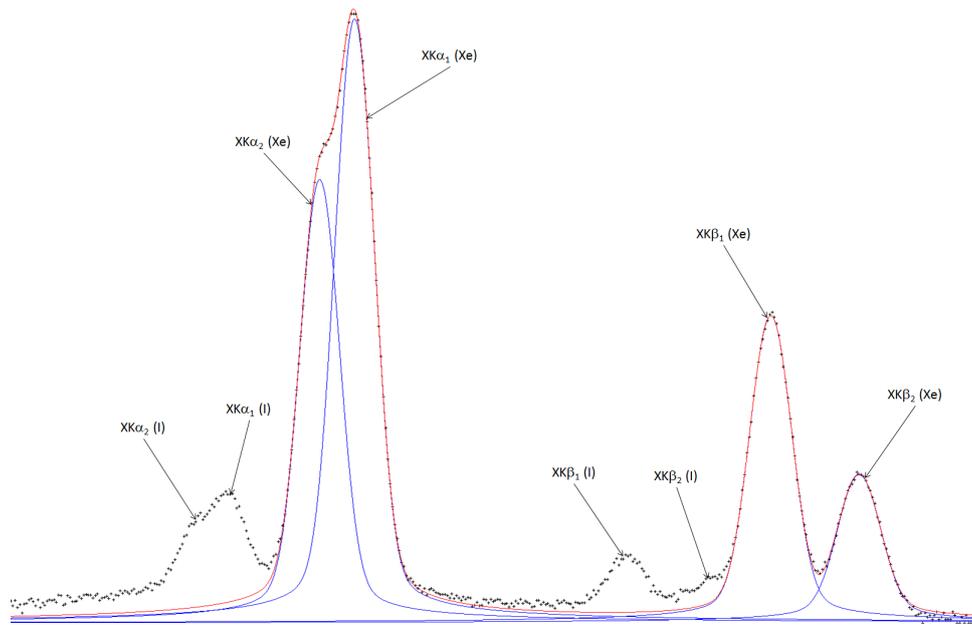


FIGURE 4.25 – Spectre de  $^{129}\text{I}$  dans la région des énergie des rayons XK de l'iode et du xénon

#### 4.4.2 Ajustement des points expérimentaux

Afin d'obtenir une valeur de rendement quelle que soit l'énergie, une fonction mathématique est ajustée aux points expérimentaux à l'aide du logiciel ACORES qui permet d'exprimer le rendement d'absorption totale en fonction de l'énergie. Un premier ajustement des points expérimentaux est effectué et le résultat est présenté sur la figure 4.26.

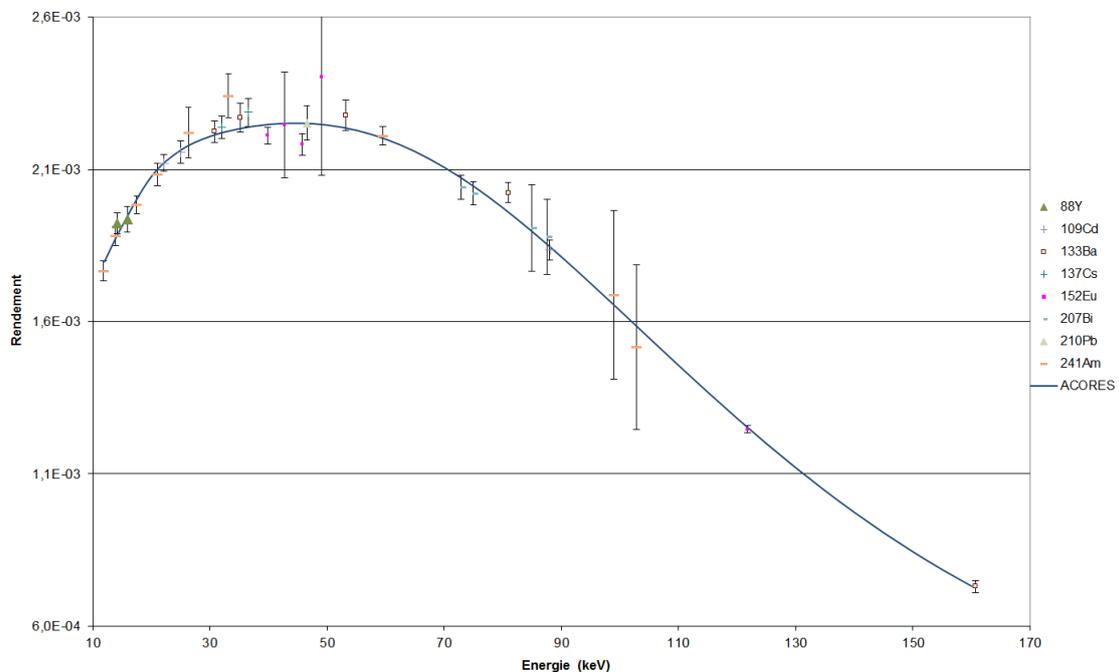


FIGURE 4.26 – Rendement d'absorption totale de GENIX en fonction de l'énergie (distance source-détecteur : 8 cm) et premier ajustement des points expérimentaux par ACORES

Il existe un écart net entre les résultats obtenus avec les rayons XK de  $^{152}\text{Eu}$  et les autres

points, et il y a une incohérence entre ses propres valeurs. Ce radionucléide a deux voies de désintégration, l'une majoritaire vers le samarium et l'autre vers le gadolinium. Ainsi, on observe sur le spectre de  $^{152}\text{Eu}$  les rayons XK caractéristiques des deux éléments fils (voir figure 4.27). Une possibilité pour améliorer l'étalonnage en rendement, est de combiner ensemble, par une moyenne pondérée des incertitudes, les valeurs de rendement des rayons XK $\alpha$  d'un côté et les rayons XK $\beta$  de l'autre. Le résultat est présenté sur la figure 4.28 avec l'ajustement des points expérimentaux réalisé avec ACORES.

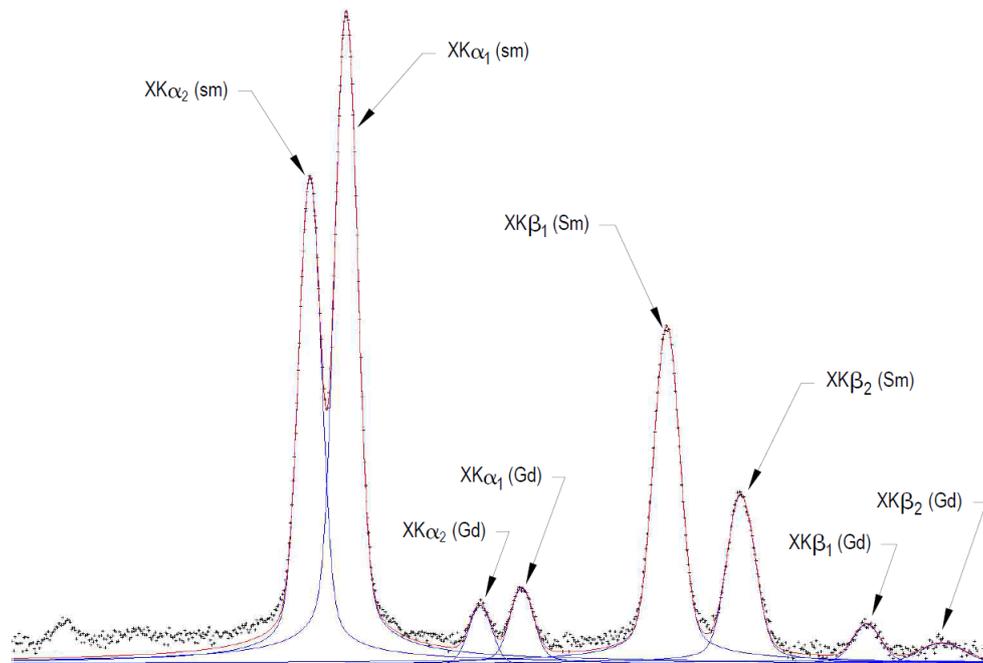


FIGURE 4.27 – Spectre de  $^{152}\text{Eu}$  dans la région des énergie des rayons XK du samarium et du gadolinium

Le tableau 4.5 compare des valeurs de rendement pour certaines énergies entre l'ajustement avec les rayons XK séparés (figure 4.26) et l'ajustement avec les rayons XK combinés (figure 4.28) ainsi que l'écart relatif en pourcentage. Les écarts relatifs entre les deux ajustements sont très faibles, inférieurs à 1 %, les valeurs de rendement pour les émissions XK de  $^{152}\text{Eu}$  ainsi obtenues ne changent guère, elles sont donc conservées pour l'étalonnage en rendement.

Le plomb-210 quant à lui peut apporter une information supplémentaire dans une région où les valeurs expérimentales manquent ou sont peu fiables. La figure 4.29 présente l'ajustement des points expérimentaux sans  $^{210}\text{Pb}$  et le tableau 4.6 les compare aux valeurs obtenues avec le  $^{210}\text{Pb}$  avec leur écart relatif. L'utilisation de  $^{210}\text{Pb}$  modifie très peu les valeurs de rendement obtenues avec l'ajustement mais contribue à réduire légèrement l'incertitude des valeurs de l'ajustement, son emploi n'est donc pas indispensable.

La figure 4.28 présente le rendement d'absorption totale de GENIX ainsi que son ajustement par ACORES et suite aux précédents résultats, il a été choisi de conserver  $^{210}\text{Pb}$  et les rayons XK de  $^{152}\text{Eu}$  combinés. Cependant, une donnée n'a pas pu encore être prise en compte dans le rendement d'absorption totale, elle correspond à la correction des coïncidences pour chacune des émissions des radionucléides. Pour déterminer ces valeurs de corrections, deux problèmes

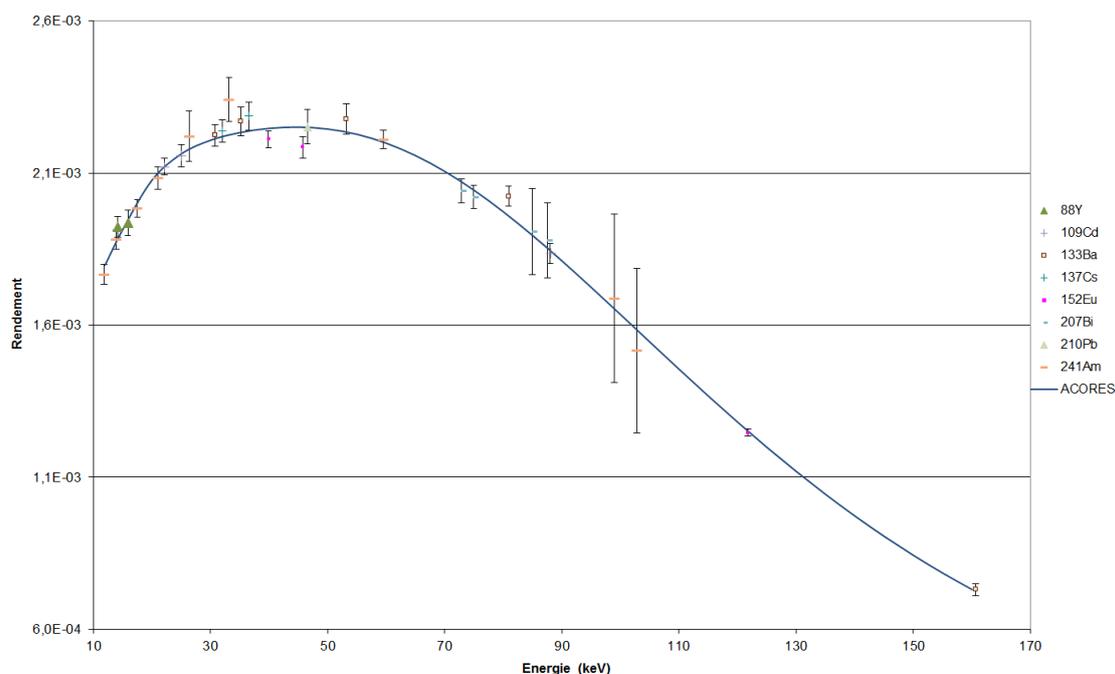


FIGURE 4.28 – Variation du rendement d’absorption totale de GENIX en fonction de l’énergie, second essai d’ajustement

Énergie (keV)	Rdt avec rayons XK séparés ( $10^{-3}$ )	Rdt avec rayons XK combinés ( $10^{-3}$ )	Écart en %	Énergie (keV)	Rdt avec rayons XK séparés ( $10^{-3}$ )	Rdt avec rayons XK combinés ( $10^{-3}$ )	Écart en %
12	1,797	1,797	0,009	90	1,813	1,811	0,069
15	1,914	1,914	0,015	95	1,725	1,724	0,070
20	2,077	2,076	0,018	100	1,636	1,635	0,072
25	2,163	2,163	0,020	105	1,546	1,545	0,073
30	2,208	2,208	0,024	110	1,456	1,455	0,075
35	2,234	2,233	0,028	115	1,368	1,367	0,076
40	2,248	2,247	0,034	120	1,282	1,281	0,078
45	2,252	2,251	0,039	125	1,199	1,198	0,080
50	2,246	2,245	0,044	130	1,120	1,119	0,082
55	2,228	2,227	0,049	135	1,045	1,044	0,084
60	2,199	2,198	0,053	140	0,974	0,973	0,087
65	2,159	2,157	0,057	145	0,907	0,906	0,090
70	2,107	2,105	0,060	150	0,844	0,843	0,093
75	2,045	2,043	0,062	155	0,786	0,785	0,096
80	1,974	1,973	0,065	160	0,732	0,731	0,100
85	1,896	1,895	0,067				

Tableau 4.5 – Comparaison entre les deux ajustements avec et sans les modifications apportées aux résultats de  $^{152}\text{Eu}$

se présentent à ce stade : il est nécessaire de connaître le rendement d’absorption totale de GENIX au delà de 160 keV ainsi que son rendement total sur toute la gamme d’énergie.

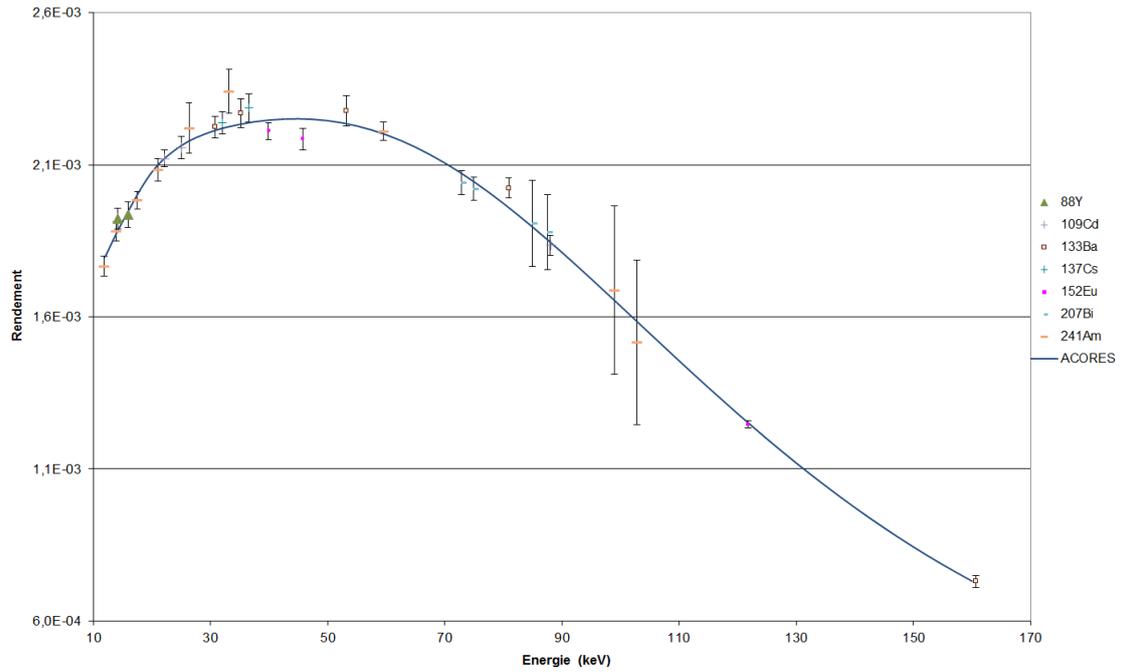


FIGURE 4.29 – Rendement d’absorption totale de GENIX en fonction de l’énergie, et ajustement sans  $^{210}\text{Pb}$

Énergie (keV)	Rdt avec le plomb ( $10^{-3}$ )	Rdt sans le plomb ( $10^{-3}$ )	Écart en %	Énergie (keV)	Rdt avec le plomb ( $10^{-3}$ )	Rdt sans le plomb ( $10^{-3}$ )	Écart en %
12	1,797	1,797	-0,003	90	1,811	1,812	-0,035
15	1,914	1,914	-0,003	95	1,724	1,725	-0,036
20	2,076	2,076	-0,009	100	1,635	1,635	-0,037
25	2,163	2,163	-0,012	105	1,545	1,545	-0,038
30	2,208	2,208	-0,013	110	1,455	1,456	-0,038
35	2,233	2,233	-0,014	115	1,367	1,367	-0,039
40	2,247	2,247	-0,015	120	1,281	1,282	-0,039
45	2,251	2,251	-0,017	125	1,198	1,199	-0,040
50	2,245	2,245	-0,019	130	1,119	1,120	-0,040
55	2,227	2,228	-0,021	135	1,044	1,044	-0,040
60	2,198	2,199	-0,023	140	0,973	0,973	-0,041
65	2,157	2,158	-0,026	145	0,906	0,906	-0,041
70	2,105	2,106	-0,028	150	0,843	0,844	-0,042
75	2,043	2,044	-0,030	155	0,785	0,786	-0,042
80	1,973	1,973	-0,032	160	0,731	0,731	-0,043
85	1,896	1,895	-0,033				

Tableau 4.6 – Comparaison entre les deux ajustements avec et sans  $^{210}\text{Pb}$

#### 4.4.3 Calcul du rendement de détection par méthode Monte Carlo

L’utilisation de codes de Monte Carlo, tels que PENELOPE et GEANT4, permet de déterminer le rendement total du détecteur (voir par exemple [58], [59], [60], [61], [62], [63], [64], [65]), ainsi que le rendement d’absorption totale pour des énergies plus élevées que la gamme de me-

sure, ce qui est impossible à obtenir de manière expérimentale. Ces deux paramètres sont nécessaires pour le calcul de corrections des coïncidences et la simulation peut fortement aider dans ce cas-là. De plus, dans le cas où le calcul du transfert de rendement est nécessaire, lors de la mesure d'une source volumique notamment, la simulation de Monte Carlo est une des méthodes permettant de corriger la mesure à partir de l'étalonnage. Pour cela, il est nécessaire, dans une première étape, d'ajuster les paramètres géométriques utilisés dans la simulation Monte Carlo afin de faire correspondre les résultats du calcul aux valeurs expérimentales.

## Géométrie du détecteur GENIX

En premier lieu, GENIX est protégé des rayonnements extérieurs par une cellule dont les parois sont en plomb, elles-mêmes recouvertes d'une épaisseur de cuivre pour atténuer le rayonnement de fluorescence X provenant du plomb. Les dimensions des parois ont été directement mesurées, de même que l'ensemble du support de source avec un pied à coulisse ayant une résolution de 0,01 mm et une incertitude de 0,02 mm sur la mesure des distances. S'il est possible de mesurer directement la distance séparant la source radioactive de la fenêtre de béryllium ainsi que les dimensions des objets composant le support de source (collimateurs en tantale compris), ce type de mesure est plus difficile à mettre en œuvre pour déterminer la distance entre la fenêtre et l'entrée du cristal de germanium ainsi que les dimensions des éléments à l'intérieur du capot en aluminium. Pour cela, un plan de montage a été fourni par ORTEC (voir section 4.1.1). Cependant, afin d'apporter davantage de précision et de vérifier les données constructeurs, une radiographie a été effectuée au Laboratoire Capteurs et Architectures Électroniques à Saclay. La radiographie (voir figure 4.30) ne permet pas de déterminer les caractéristiques intrinsèques du cristal (zones de dopages en bore et lithium) ou de la fenêtre de béryllium, mais elle permet d'apporter plus de précisions quant aux dimensions totales du cristal et à la distance fenêtre-cristal par rapport à celles fournies par le constructeur, dont la comparaison entre les dimensions est présentée dans le tableau 4.7. Lorsque cela est possible, ce sont les valeurs obtenues par la radiographie qui ont été privilégiées lors de la définition de la géométrie dans la simulation Monte Carlo. Ainsi, la distance totale source-détecteur est estimée à un peu plus de 78 mm. Dans un premier temps, la géométrie de GENIX est simulée avec PENELOPE.

	Données constructeur	Données radiographie
Diamètre du cristal	16 mm	15,44 mm
Épaisseur totale du cristal	10 mm	11,10 mm
Épaisseur de la zone morte de germanium en entrée (dopé au bore)	0,3 $\mu\text{m}$	–
Épaisseur de la zone morte de germanium en sortie (dopé au lithium)	0,6 mm	–
Distance cristal-fenêtre en béryllium	7 mm	8,21 mm
Épaisseur de la fenêtre en béryllium	0,127 mm	–
Épaisseur du collimateur en aluminium	2,30 mm	–
Diamètre interne du collimateur en aluminium	16 mm	15,44 mm

Tableau 4.7 – Comparaison entre les dimensions de GENIX fournies par ORTEC et celles déterminées à partir de la radiographie.

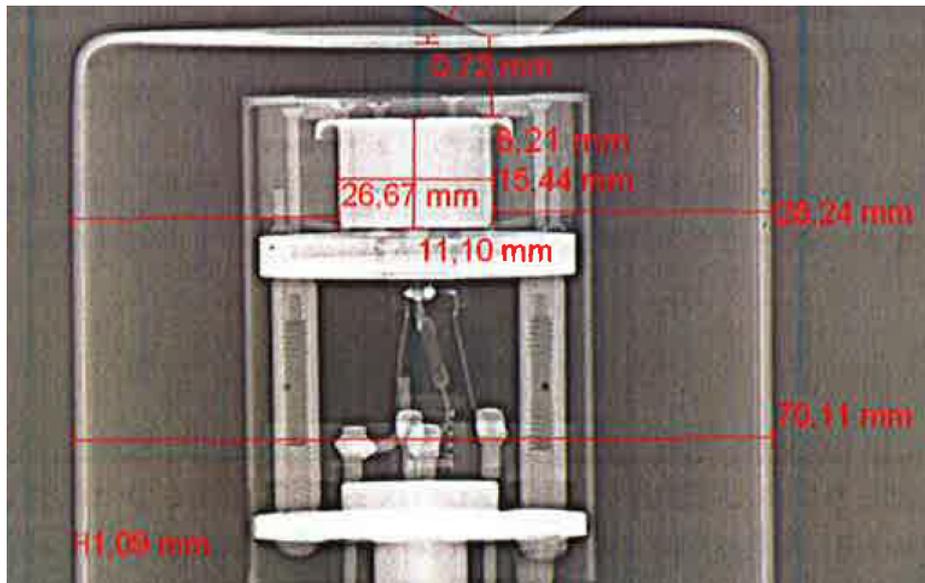


FIGURE 4.30 – Radiographie du détecteur GENIX

### Premier résultat de la simulation

Sont présentés sur la figure 4.31 les résultats de la simulation par PENELOPE, sur une gamme d'énergie allant de 15 keV à 165 keV, comparés aux points expérimentaux et à l'ajustement de ces points effectués à l'aide du logiciel ACORES. Un désaccord notable entre la simulation et les résultats expérimentaux est alors constaté, ce qui signifie que certaines dimensions de la simulation sont inexactes. Les différentes hypothèses sur cet écart sont envisagées ci-dessous.

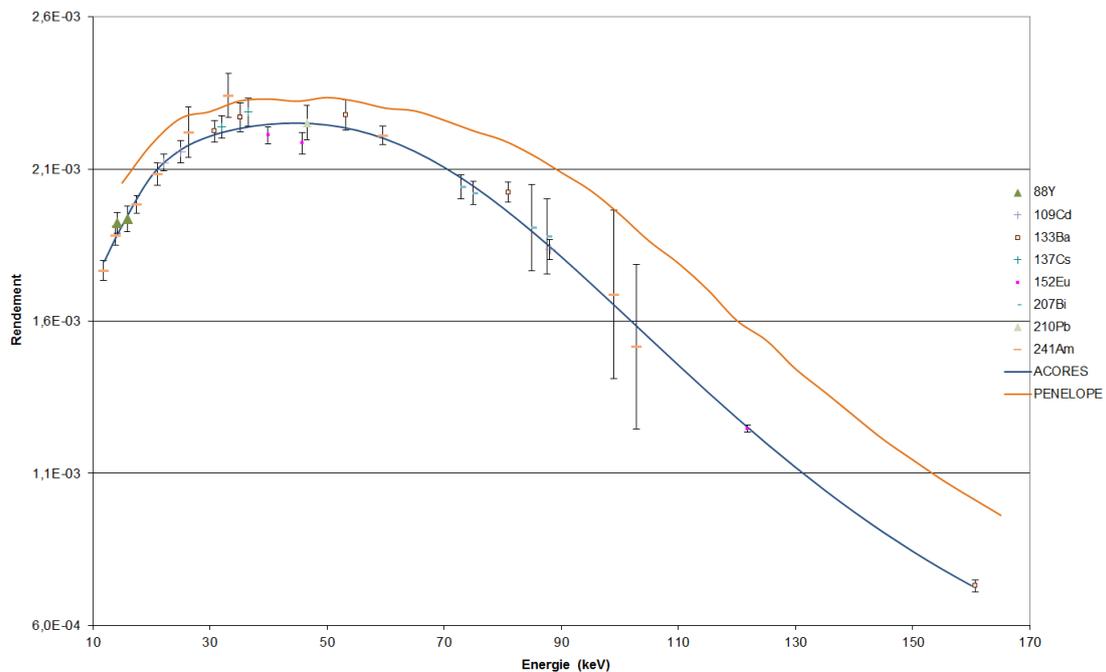


FIGURE 4.31 – Comparaison entre le rendement d'absorption totale calculé avec PENELOPE et les résultats expérimentaux

## Effet de l'épaisseur de la zone morte

Entre le dépôt radioactif et l'entrée du cristal de germanium, se trouvent plusieurs épaisseurs de différents éléments. Pour commencer, il y a la feuille de Mylar<sup>®</sup> de la source, d'épaisseur de 18  $\mu\text{m}$ . Ensuite, il y a l'air entre la source et la face d'entrée du détecteur, puis la fenêtre de béryllium et le vide séparant la fenêtre de l'entrée du cristal. Lorsque les photons incidents arrivent sur le cristal, ils rencontrent en premier la zone dopée avec des ions de bore, or celle-ci ne fait pas partie de la zone de déplétion du semi-conducteur (partie active) qui est alors considérée comme une zone morte, ajoutant un écran supplémentaire avant l'interaction dans la partie active du détecteur. Même si le vide à l'intérieur du capot n'est pas parfait, on peut négliger l'atténuation des photons par celui-ci aux énergies considérées. Les deux premières épaisseurs traversées par les photons sont facilement mesurables et la valeur de l'épaisseur de la fenêtre de béryllium est considérée comme fiable. Reste alors l'épaisseur de la zone morte en entrée du détecteur. Le fournisseur indique une épaisseur de 0,3  $\mu\text{m}$ , or les ions de bore migrent au cours du temps dans le cristal, il n'est donc pas impossible que l'épaisseur de cette zone soit en réalité plus importante que celle indiquée. La figure 4.32 présente les résultats de la simulation pour une épaisseur de zone morte de 10  $\mu\text{m}$ . Les effets de l'atténuation due à cette épaisseur ne sont visibles que pour des énergies inférieures à 30 keV. L'écart pour les énergies supérieures est donc dû à d'autres facteurs.

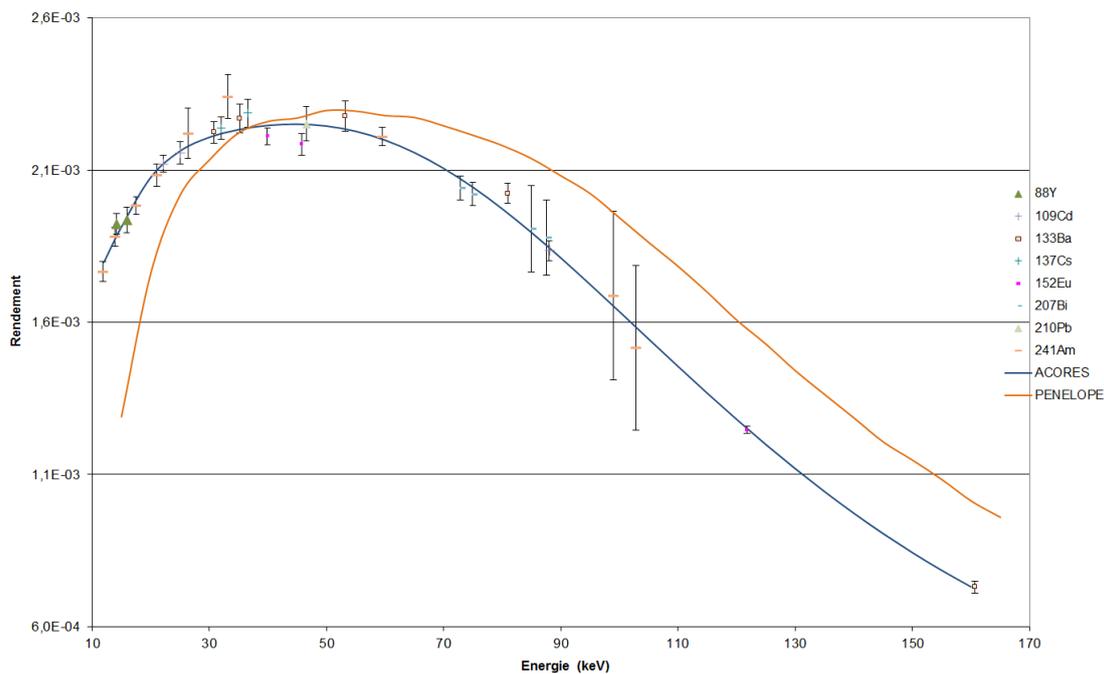


FIGURE 4.32 – Résultats obtenus avec PENELOPE pour une épaisseur de la zone morte en entrée de 10  $\mu\text{m}$ , comparés aux résultats expérimentaux

## Effet de l'épaisseur de la zone inactive

Lorsque les photons traversent la zone active du cristal, s'ils ont une énergie suffisante, ils peuvent en ressortir sans y avoir déposé entièrement leur énergie. Plus l'énergie des photons est élevée et plus l'épaisseur de la zone active est faible, plus la probabilité pour que cela se produise

est élevée. En sortie du cristal, il existe une autre zone morte, celle où des ions de lithium ont été diffusés. Par la suite elle sera dénommée « zone inactive » pour éviter la confusion avec la zone morte dopée au bore. L'épaisseur de cette zone indiquée par le fournisseur est de 0,6 mm. Cependant, comme dans le cas du bore, les ions lithium continuent de diffuser dans le cristal de germanium au cours du temps, et ils migrent plus rapidement que le bore. L'écart entre simulation et expérience peut alors être expliqué par une épaisseur de la zone inactive plus importante.

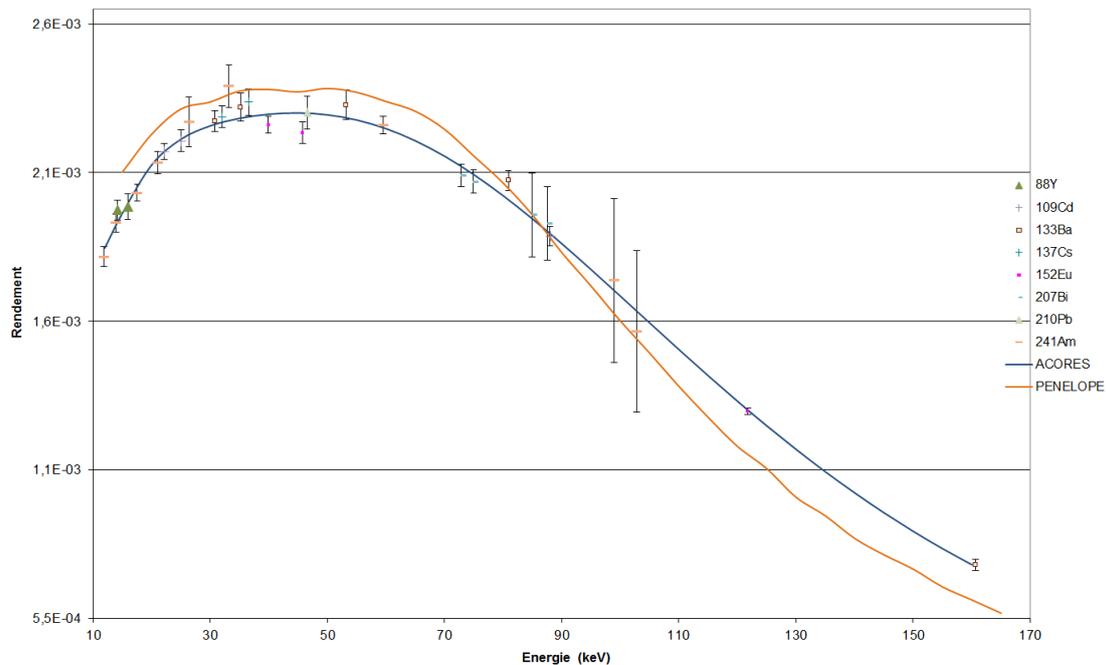


FIGURE 4.33 – Résultats obtenus avec PENELOPE pour une épaisseur de la zone inactive de 6 mm, comparés aux résultats expérimentaux

La figure 4.33 présente les résultats de la simulation pour une épaisseur de zone inactive de 6 mm. Ces résultats sont en meilleure adéquation avec les valeurs expérimentales, toutefois les effets de l'épaisseur de la zone inactive sur la courbe de rendement ne sont perceptibles qu'à partir des énergies situées entre 60 et 70 keV. La variation de l'épaisseur des deux zones dopées ne permet pas d'expliquer l'écart entre les calculs et l'expérience pour les énergies comprises entre 30 et 60 keV.

### Effet de l'épaisseur de la zone inactive cylindrique

Une explication de cet écart aux énergies intermédiaires serait que le diamètre interne du collimateur en aluminium soit plus petit que celui renseigné dans la géométrie, masquant ainsi une partie plus importante que prévu du cristal de germanium. Cependant, il est possible de distinguer sur la radiographie (figure 4.30) une zone en gris très sombre située juste au-dessus du cristal, qui semble correspondre au collimateur et confirme le fait que celui-ci ne recouvre pas une partie du germanium. Le collimateur en aluminium ne semble donc pas être à l'origine de l'écart.

Une autre explication pourrait provenir de la variation du champ électrique dans la zone active.

En effet, il n'est pas uniforme et en se rapprochant des bords du cristal par rapport à l'axe cylindrique, la valeur du champ devient nettement plus faible. La collecte des charges est donc moins efficace dans ces zones et lorsqu'un photon dépose son énergie dans cette zone, il est très probable qu'un nombre moins important de charges atteigne les électrodes plutôt que si ce même photon avait déposé son énergie au centre du cristal. De plus, le lithium ne diffuse pas de manière uniforme dans le cristal (ref), il migre plus vite sur les extrémités ce qui a pour effet de créer une zone inactive supplémentaire sur l'extérieur cylindrique du cristal. Le diamètre de la zone active du cristal est en réalité réduit, diminuant ainsi l'angle solide de la mesure. Cette hypothèse est la plus probable pour expliquer l'écart entre la simulation et les valeurs expérimentales pour des énergies situées entre 30 et 60 keV. Si la zone morte en lithium est possible à implémenter sur la géométrie de la simulation sur PENELOPE, c'est impossible à réaliser dans le cas de la zone de faible champ électrique. En effet, PENELOPE n'a pas la physique nécessaire pour simuler la création de paires électron-trou et leur migration sous l'effet d'un champ électrique dans un semi-conducteur. Seule la réduction de l'angle solide par l'ajout d'une zone morte cylindrique externe permet de prendre en compte les deux effets en même temps. Par la suite cette zone morte sera désignée comme « zone inactive cylindrique ». La figure 4.34 présente les résultats de la simulation pour un diamètre de zone active de 14 mm. Dans ce cas, la réduction des valeurs de rendement obtenues par la simulation est à peu près uniforme sur toute la gamme d'énergie par comparaison avec la première simulation, ce qui est parfaitement logique car l'angle solide de la mesure, et donc le rendement géométrique, est réduit.

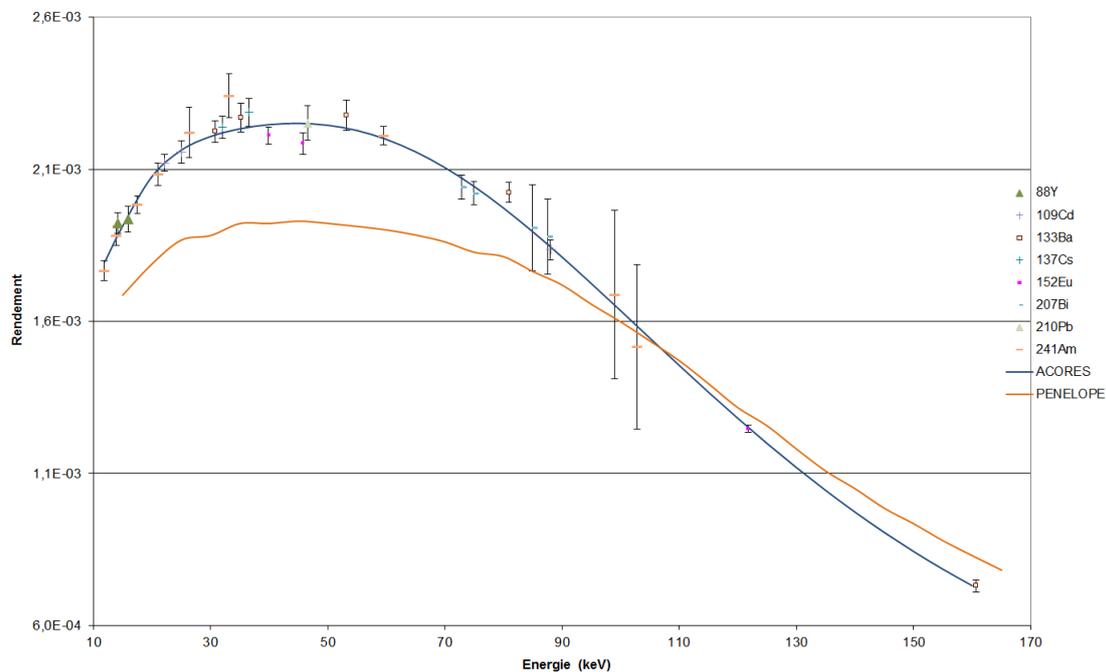


FIGURE 4.34 – Résultats obtenus avec PENELOPE pour un diamètre de la zone active de 14 mm, comparés aux résultats expérimentaux

## Résultats finaux

Afin de faire correspondre au mieux les résultats obtenus par le calcul avec les résultats expérimentaux, les épaisseurs de la zone morte, de la zone inactive et de la zone inactive cylindrique doivent être ajustés le plus finement possible. Pour cela, l'écart en pourcentage entre les valeurs calculées avec PENELOPE et celles obtenues par l'ajustement des points expérimentaux doit être le plus faible possible. La géométrie optimale pour la simulation sur PENELOPE a été définie au bout de treize essais, à la suite de nombreuses approximations successives. Les caractéristiques du détecteur sont résumées dans le tableau 4.8 et comparées aux valeurs initiales. Avec cette première géométrie, permettant de faire concorder le calcul et l'expérimental, des valeurs de rendement d'absorption totale et de rendement total ont été calculées. Ces valeurs initiales ont été entrées sur ETNA pour le calcul des corrections de coïncidences.

	Données initiales	Données finales
Diamètre du cristal	15,44 mm	15,1 mm
Épaisseur totale du cristal	11,10 mm	6,7 mm
Épaisseur de la zone morte de germanium en entrée (dopée au bore)	0,3 $\mu\text{m}$	0,8 $\mu\text{m}$
Épaisseur de la zone morte de germanium en sortie (dopée au lithium)	0,6 mm	4,4 mm
Distance cristal-fenêtre en béryllium	8,21 mm	8,21 mm
Épaisseur de la fenêtre en béryllium	0,127 mm	0,127 mm
Épaisseur du collimateur en aluminium	2,30 mm	2,30 mm
Diamètre interne du collimateur en aluminium	15,44 mm	15,44 mm

Tableau 4.8 – Comparaison entre les dimensions de GENIX utilisées pour le premier essai et celles permettant d'obtenir le meilleur résultat par comparaison avec l'expérimental

Après avoir corrigé les points expérimentaux des coïncidences (corrections de quelques pour mille), un nouvel ajustement par ACORES a été effectué et la géométrie de la simulation a été légèrement ajustée pour que les résultats s'accordent avec les résultats expérimentaux optimisés. La procédure a été itérée et de nouvelles valeurs de correction de coïncidences ont été calculées. La variation de ces valeurs par rapport à celles obtenues précédemment est infime et non perceptible sur la courbe de rendement, il n'est donc pas nécessaire de poursuivre l'optimisation de la géométrie de la simulation. Le tableau 4.9 résume les corrections de coïncidences pour chaque radionucléide. La figure 4.35 présente la variation du rendement de détection en fonction de l'énergie obtenue par simulation avec PENELOPE et comparée avec la courbe obtenue avec ACORES et les points expérimentaux.

Le tableau 4.10 présente les écarts relatifs entre les calculs par PENELOPE et l'ajustement par ACORES. Il est possible de remarquer que cet écart pour des énergies aux alentours de 60-80 keV est assez important, ceci peut s'expliquer par le fait que l'ajustement réalisé par ACORES est purement mathématique et ne tient pas compte des effets dus aux phénomènes physiques se produisant dans le cristal et sa géométrie autour, contrairement à la simulation Monte Carlo. Le même constat peut être réalisé pour expliquer l'écart aux énergies autour de 30 keV.

Radionucléide	Energie (keV)	Corrections de coïncidences	Radionucléide	Energie (keV)	Corrections de coïncidences
$^{88}\text{Y}$	14,142	1,000297	$^{137}\text{Cs}$	32,061	1,0
	16,094	1,000297		36,624	1,0
$^{109}\text{Cd}$	22,103	1,0	$^{207}\text{Bi}$	72,805	1,000095
	25,072	1,0		74,97	1,000095
	88,034 (1)	1,0		84,953	1,000095
		87,576		1,000095	
$^{133}\text{Ba}$	30,851	1,001847	$^{241}\text{Am}$	11,89	1,000645
	35,224	1,001847		13,93	1,000645
	53,162 (2)	1,003432		17,533	1,000645
	80,895	1,002610		21,01	1,000645
	160,612 (1)	0,993869		26,345 (2)	1,000016
$^{152}\text{Eu}$	39,907	1,000822		33,196 (3)	1,000256
	42,751	1,000366		59,5409 (1)	1,000002
	45,728	1,000822		98,97 (2)	1,000876
	49,045	1,000366		102,98 (2)	0,996151
$^{121}\text{Pb}$	121,7817 (3)	1,002163			
	$^{210}\text{Pb}$	46,539	1,0		

Tableau 4.9 – Liste des corrections de coïncidences par radionucléides

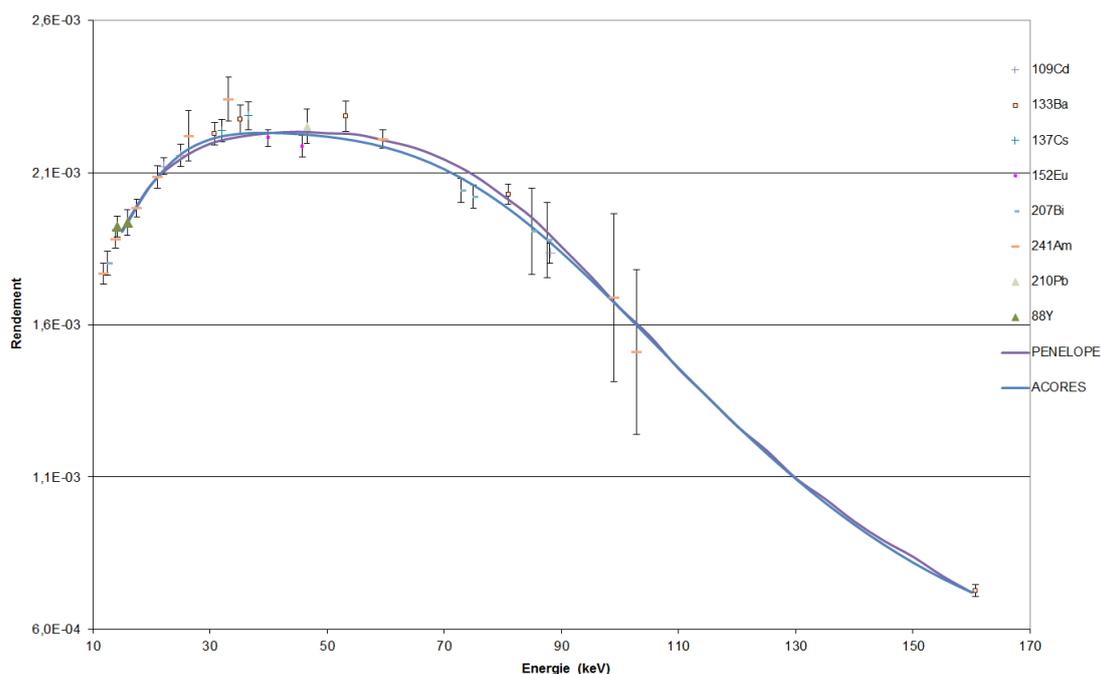


FIGURE 4.35 – Résultat final du rendement d'absorption totale en fonction de l'énergie et comparaison des résultats obtenus avec PENELOPE aux résultats expérimentaux

#### 4.4.4 Modèles semi-empiriques

Il existe une autre possibilité pour l'ajustement des points expérimentaux que le logiciel ACORES, qui utilise une fonction purement mathématique. Dans le paragraphe 2.2.4, il est décrit une façon de calculer théoriquement la valeur du rendement d'absorption totale à l'aide

Énergie (keV)	Rdt ACORES (10 <sup>-3</sup> )	Rdt PENELOPE (10 <sup>-3</sup> )	Écart en %	Énergie (keV)	Rdt ACORES (10 <sup>-3</sup> )	Rdt PENELOPE (10 <sup>-3</sup> )	Écart en %
15	1,906	1,912	-0,33	90	1,838	1,857	-1,02
20	2,060	2,062	-0,08	95	1,748	1,759	-0,66
25	2,160	2,144	0,71	100	1,653	1,655	-0,10
30	2,209	2,195	0,64	105	1,556	1,565	-0,59
35	2,227	2,218	0,44	110	1,458	1,455	0,19
40	2,231	2,230	0,05	115	1,361	1,362	-0,06
45	2,227	2,234	-0,33	120	1,268	1,267	0,07
50	2,218	2,229	-0,51	125	1,178	1,188	-0,81
55	2,204	2,225	-0,97	130	1,094	1,096	-0,22
60	2,183	2,205	-1,01	135	1,016	1,028	-1,25
65	2,152	2,181	-1,34	140	0,944	0,954	-1,10
70	2,111	2,143	-1,52	145	0,878	0,891	-1,50
75	2,059	2,092	-1,63	150	0,819	0,839	-2,34
80	1,995	2,024	-1,48	155	0,767	0,775	-1,09
85	1,921	1,952	-1,60	160	0,721	0,721	-0,03

Tableau 4.10 – Comparaison entre les rendements d’absorption totale obtenus avec l’ajustement d’ACORES et ceux obtenus avec la simulation de PENELOPE

de la formule semi-empirique suivante :

$$\varepsilon_I = e^{-\sum_i \frac{\mu}{\rho}(i) \rho_i e_i} (1 - e^{-\frac{\mu}{\rho}(Ge) \rho_{Ge} e_{Ge}}) C_e C_c \quad (4.1)$$

1. Transmission dans les matériaux entre la source et le détecteur
2. Absorption dans le cristal de germanium
3. Correction d’échappement,  $C_e$
4. Correction pour les événements ne conduisant pas à un dépôt total de l’énergie dans le germanium, ne pouvant être déterminée que de manière expérimentale,  $C_c$

$C_e$  peut être calculée grâce à la formule suivante :

$$C_e = \frac{N}{N + N_e} = \frac{1}{1 + \sum_i \frac{N_e}{N}(i) p_i} \quad (4.2)$$

Où  $p_i$  est la probabilité d’émission relative des rayons XK et :

$$\frac{N_e}{N}(i) = \frac{1}{2} \omega_K \left(1 - \frac{1}{r}\right) \left[1 - \frac{\mu(E_{K_i})}{\mu(E)}\right] \left[\ln\left(1 + \frac{\mu(E)}{\mu(E_{K_i})}\right)\right] \quad (4.3)$$

Où  $\omega_K$  est le rendement de fluorescence K du germanium,  $r$  est le rapport des coefficients d’atténuation juste avant et juste après l’énergie de liaison de la couche K,  $E_{K_i}$  désigne l’énergie moyenne des rayons XK du germanium,  $i = \alpha$  ou  $\beta$ , et  $\mu$  représente le coefficient d’atténuation du germanium. Dans l’équation 4.1, les valeurs des coefficients d’atténuation, concernant la transmission dans l’ensemble des matériaux avant la partie active du cristal de germanium, sont celles incluant la diffusion cohérente. Pour l’absorption dans la partie active du germa-

nium et dans l'équation 4.2, les valeurs  $\mu(E_{K_i})$  et de  $\mu(E)$  utilisées sont celles du germanium mais sans la diffusion cohérente, puisque celle-ci ne donne pas lieu à un transfert d'énergie. Ici, le rendement d'absorption totale a été calculé sans prendre en compte la correction  $C_c$  et en prenant les coefficients d'atténuation sur XCOM [66]. Le rendement géométrique a été calculé à partir de l'angle solide des mesures expérimentales, identiques aux simulations Monte Carlo. La figure 4.36 présente la courbe de rendement calculée à partir de l'équation 4.1, et la figure 4.37 est un zoom sur la gamme d'énergie 10-70 keV. La courbe de rendement ainsi calculée présente un accord satisfaisant avec les points expérimentaux en basse énergie ; en revanche, elle diverge à partir de 40-50 keV.

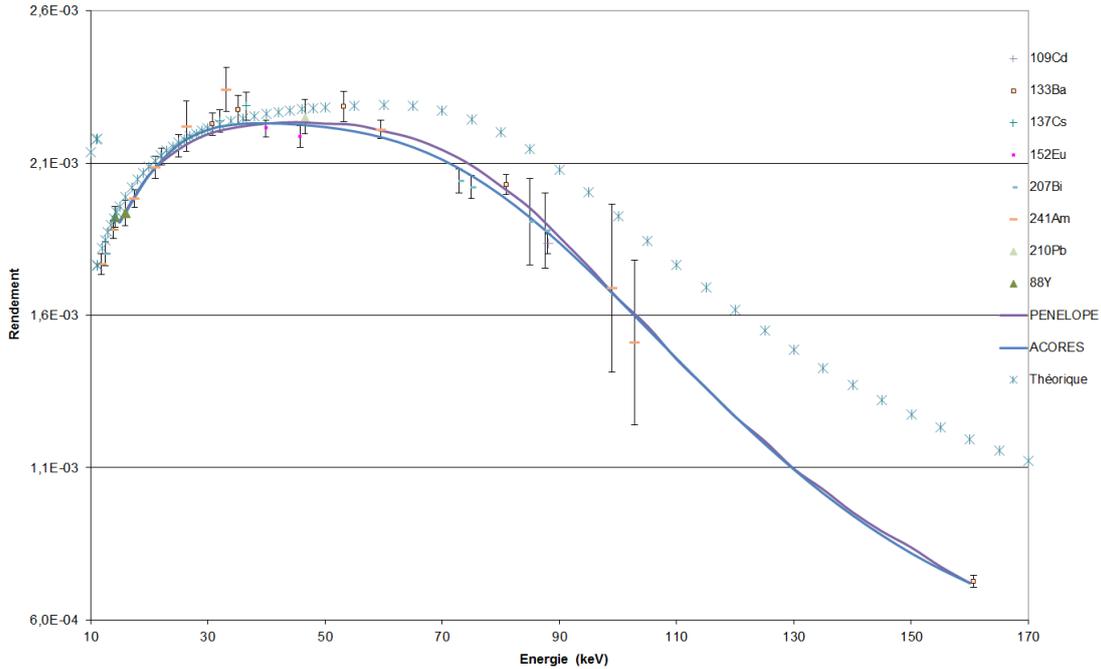


FIGURE 4.36 – Comparaison du calcul du rendement analytique avec l'expérimental et la simulation Monte Carlo

Un modèle analytique plus complet pour calculer le rendement d'absorption totale a été développé par Seltzer [67] et résumé par Maidina *et al.* [68], dont l'équation est rappelée ci-après en conservant une partie des notations :

$$\varepsilon(E; e_{Ge}, r) = \frac{\Omega}{4\pi} T(E) \left[ \left( 1 - e^{-\frac{\mu}{\rho}(Ge) \rho_{Ge} e_{Ge}} \right) - P_{X\alpha}(E) - P_{X\beta}(E) - \int C(E, \epsilon; e_{Ge}, r) d\epsilon \right] \quad (4.4)$$

Où  $E$  est l'énergie du photon incident,  $e_{Ge}$  et  $r$  sont respectivement l'épaisseur et le rayon de la partie active du cristal de germanium,  $\Omega$  est l'angle solide de détection correspondant à la géométrie de la mesure,  $T(E)$  est la transmission des photons dans l'ensemble des matériaux entre la source et la partie active du cristal à l'énergie  $E$ .

$P_{X_i}(E)$  est la probabilité d'échappement du germanium des rayons X  $\alpha$  ou  $\beta$  à l'énergie  $E$  et  $C(E, \epsilon; e_{Ge}, r)$  est la probabilité qu'un photon d'énergie  $E$  dépose une énergie  $\epsilon$  dans le volume actif du détecteur, il s'agit donc d'une correction pour les effets ne conduisant pas à un dépôt

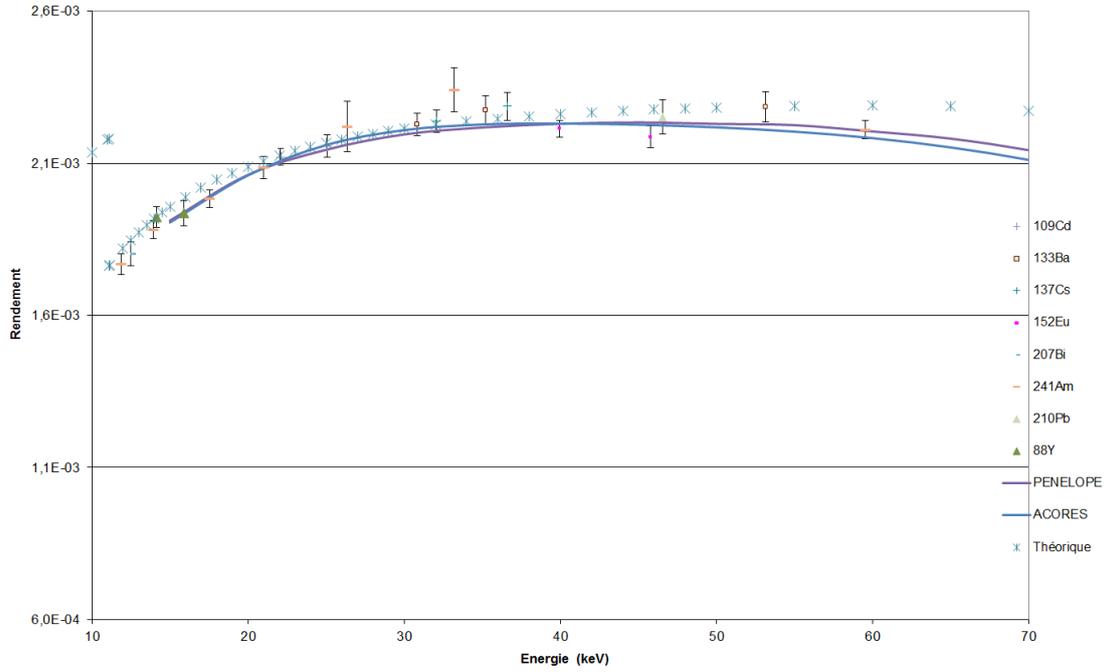


FIGURE 4.37 – Comparaison du calcul du rendement analytique avec l’expérimental et la simulation Monte Carlo, zoom sur les énergies entre 10 et 70 keV

total de l’énergie. La probabilité d’échappement est exprimée ainsi :

$$P_{Xi} = \frac{1}{2} \omega_K p_i q_K(E) \frac{\mu_{PE}(E)}{\mu_{Ge}(E)} \left[ 1 - \frac{\mu_{Ge}(E_i)}{\mu_{Ge}(E)} \right] \ln \left[ 1 + \frac{\mu_{Ge}(E)}{\mu_{Ge}(E_i)} \right] \quad (4.5)$$

Où  $i$  correspond à  $\alpha$  ou à  $\beta$ ;  $\omega_K$  est le rendement de fluorescence K du germanium;  $E_i$  et  $p_i$  sont respectivement les énergies et les probabilités d’émission relatives des rayons XK;  $q_K(E)$  est la fraction des interactions par effet photoélectrique qui ont lieu dans la couche K (désigné  $p_X$  dans le chapitre 1);  $\mu_{PE}(E)$  est le coefficient d’atténuation par effet photoélectrique pour l’énergie  $E$ .

L’expression analytique de  $C(E, \epsilon; e_{Ge}, r)$  tient compte de la diffusion incohérente simple et double des photons dans le cristal de germanium. Une correction a été ensuite introduite par Seltzer, qui est obtenue par simulation Monte Carlo. Maidina *et al.* ont calculé l’intégrale de cette correction entre 0 et le maximum d’énergie déposée. Il apparaît alors que la valeur de cette intégrale est minime aux faibles énergies : ainsi, pour des photons de 60 keV, la correction est inférieure à 1 %; sa dépendance en fonction du rayon du cristal est petite quelle que soit l’énergie du photon alors qu’elle augmente considérablement en fonction de l’épaisseur pour des énergies supérieures à 100 keV. Pour un cristal d’épaisseur de 10 mm, la correction est d’environ 10 % pour des photons d’énergie de 130 keV.

$T(E)$ , la transmission des photons sur le parcours entre la source et la partie active du détecteur, peut s’exprimer simplement ainsi :

$$T(E) = \left( \prod_j e^{-\frac{\mu_j(E)}{\rho_j} \rho_j e_j} \right) e^{-\frac{\mu_{Ge}(E)}{\rho_{Ge}} \rho_{Ge} e_{ZM}} \quad (4.6)$$

Où  $\frac{\mu_j}{\rho_j}(E)$ ,  $\rho_j$  et  $e_j$  sont, respectivement, le coefficient d’atténuation massique à l’énergie  $E$ ,

la masse volumique et l'épaisseur du matériau  $j$  présent entre la source et le germanium, et  $e_{ZM}$  est l'épaisseur de la zone morte du cristal de germanium.

Le rendement de GENIX a de nouveau été calculé en utilisant l'équation 4.4 avec les données XCOM [66] pour les coefficients d'atténuation massique et en négligeant la correction dans le cas où s'agit, dans un premier temps, de comparer le rendement d'absorption totale pour des énergies inférieures à 60 keV et que ce sont les échappements des rayons XK du germanium qui dominant dans ce domaine d'énergie. Pour calculer les probabilités d'échappement (équation 4.7), ce sont également les données XCOM [66] qui ont été utilisées. Les valeurs de  $p_i$  employées sont :  $p_\alpha = 0,87234$  et  $p_\beta = 0,12766$ . Celles de  $q_K(E)$  ont été déterminées à partir de l'expression suivante :

$$q_K(E) = \frac{\tau_K(E)}{\tau_K(E) + \tau_L(E) + \tau_M(E) + \dots} \quad (4.7)$$

Où  $\tau_X$  sont les sections efficaces d'interaction par effet photoélectrique dans la couche  $X$  et les valeurs en fonctions de  $E$  ont été prises à partir des données de [19]. La figure 4.38 présente les valeurs de rendement ainsi calculées, avec les mêmes données géométriques que celles rentrées pour la simulation avec PENELOPE, et la figure 4.39 les mêmes valeurs sur une gamme d'énergie comprise entre 10 et 70 keV.

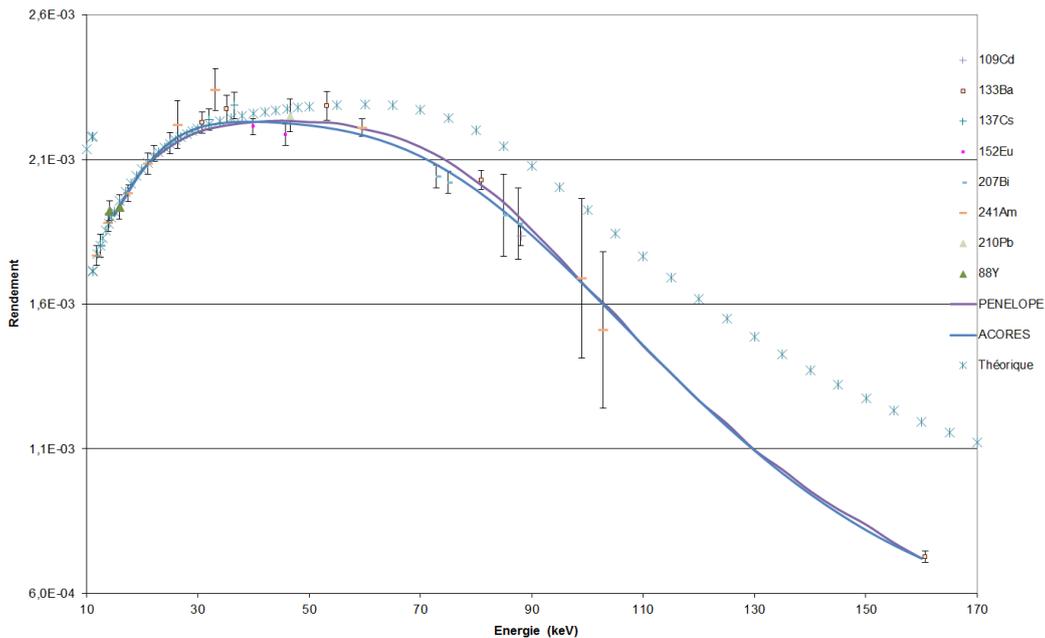


FIGURE 4.38 – Comparaison du calcul du rendement analytique avec l'expérimental et la simulation Monte Carlo

Les résultats obtenus entre l'énergie de liaison de la couche K du germanium (environ 11,1 keV) et 35-40 keV sont très proches des résultats expérimentaux et de la simulation par PENELOPE. En revanche les écarts à 50 keV sont très élevés, comme dans la première approximation. Ceci peut s'expliquer par le fait que l'expression analytique 4.4 du rendement a été développée pour une géométrie fortement collimatée y compris le détecteur, or, dans le cas de GENIX, le cristal de germanium ne l'est pas. La correction  $C(E, \epsilon; e_{Ge}, r)$  est très certainement plus importante, notamment à cause des effets supplémentaires survenant sur les extrémités du cristal.

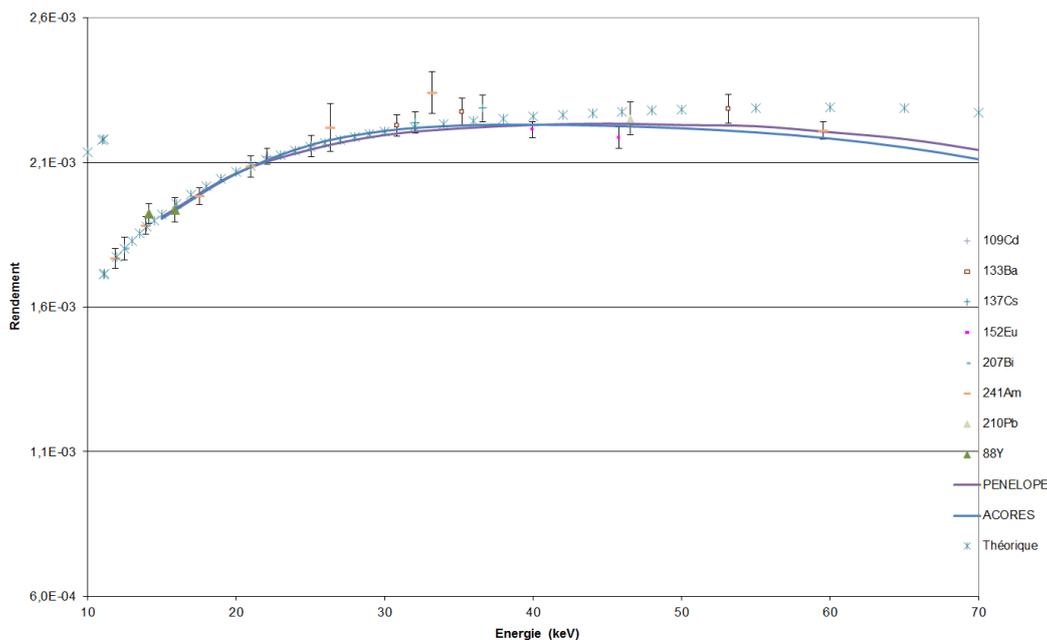


FIGURE 4.39 – Comparaison du calcul du rendement analytique avec l’expérimental et la simulation Monte Carlo, zoom sur les énergies entre 10 et 70 keV

#### 4.4.5 Essais sur la Voie X2 de MADERE

La même méthode a été ensuite appliquée pour la Voie X2 de la plateforme MADERE, afin de déterminer le rendement d’absorption totale et le rendement total du détecteur. Les caractéristiques géométriques du détecteur sont prises à partir des données fournies par CANBERRA. Pour le reste de la géométrie, l’ensemble des dimensions a été directement mesuré comme dans le cas de GENIX. Le diamètre d’ouverture du collimateur en tantale au niveau du détecteur limite l’angle solide de mesure, contrairement au cas de GENIX. En effet, le diamètre du faisceau de photons au niveau du cristal est bien inférieur à son diamètre. Par conséquent, il n’est pas nécessaire de connaître avec précision la distance entre la fenêtre en béryllium et l’entrée du cristal ainsi que son diamètre. D’autre part, si comme dans le cas de GENIX, il y a une zone morte en entrée du détecteur (zone dopée au bore), il ne semble pas y avoir une zone de diffusion d’ions au lithium, l’électrode étant assurée par un dépôt métallique. Sans radiographie du détecteur, sa géométrie dans la simulation PENELOPE de la Voie X2 est écrite à partir des données fournies par le constructeur.

La figure 4.40 présente le résultat de la simulation comparé avec les points expérimentaux et l’ajustement effectué à l’aide du logiciel EFFIGIE, la version précédente de ACORES. Tout d’abord, la simulation confirme l’augmentation du rendement à partir d’une énergie située aux alentours de 150 keV. La figure 4.41 représente l’évolution de la transmission des photons dans une épaisseur de tantale de 2,03 mm, correspondant à l’épaisseur du collimateur au niveau du détecteur. Cette figure montre que la transmission commence à devenir significative à partir d’une énergie autour de 150 keV. Ainsi, le fait que le rendement d’absorption totale de la Voie X2 augmente à partir de 150 keV peut s’expliquer par le fait que les photons traversent le collimateur pour venir interagir dans la partie du détecteur jusque-là masquée par le tantale. D’autre part, il est possible de constater un écart constant compris entre 1 et 2 % entre la simulation et l’expérience. L’angle solide étant limité par le collimateur en tantale, une erreur sur la distance

fenêtre-cristal ou sur le diamètre du cristal ne permet pas d'expliquer cet écart.

Une autre hypothèse serait une erreur dans la distance entre la source radioactive et le bas du collimateur en tantale situé au niveau du détecteur. L'ensemble des cotes dans l'enceinte en plomb de la Voie X2 a été déterminé à l'aide d'un instrument permettant la mesure jusqu'à la dizaine de micromètres. En tenant compte de l'incertitude de l'instrument et du procédé de mesure, l'erreur maximale serait de l'ordre de la centaine de micromètres. Or, pour expliquer l'écart entre le calcul et l'expérimental, il faudrait modifier la distance de plus de 1 mm, ce qui est invraisemblable.

Le plan de montage fourni par CANBERRA étant très sommaire, il est possible qu'une épaisseur supplémentaire d'un certain matériau soit située entre la fenêtre et l'entrée du cristal. En effet, l'électrode en entrée pourrait être également un contact métallique apposé au cristal de germanium. Une autre possibilité serait qu'un matériau entoure le cristal pour le protéger des effets du rayonnement infrarouge. Mais dans ce cas là, le matériau en question aurait un faible numéro atomique qui n'atténuerait que les faibles énergies de photons. Une radiographie du détecteur pourrait révéler la présence de tels matériaux, cependant elle ne fournira pas d'indication quant à l'élément le constituant. De cette manière, ceci révèle que la connaissance précise de la géométrie du détecteur est cruciale pour les mesures dans le domaine des faibles énergies.

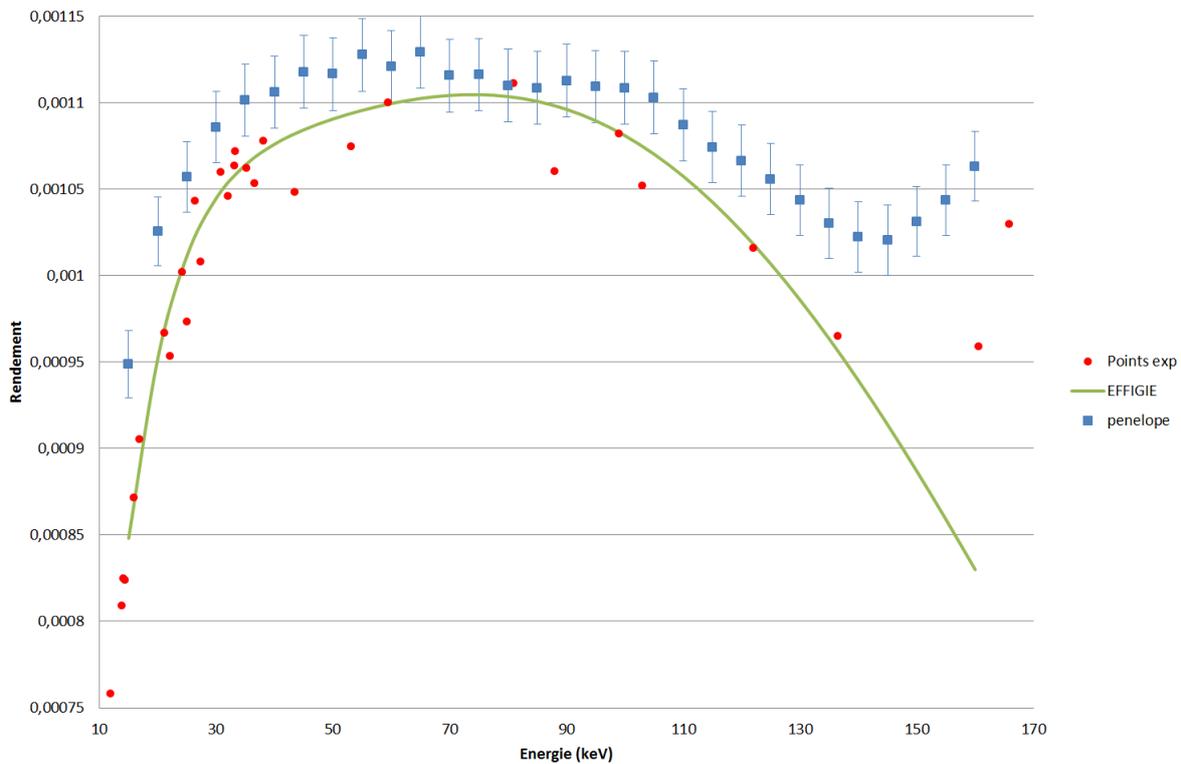


FIGURE 4.40 – Comparaison entre le rendement d'absorption totale déterminé avec PENELOPE et les résultats expérimentaux pour la Voie X2 de MADERE

#### 4.4.6 Comparaison entre PENELOPE et GEANT4

Il est prévu d'utiliser GEANT4 pour de futurs travaux. La physique de PENELOPE est déjà implémentée dans le code de GEANT4, le module Penelope intégrant la physique basse énergie de la version 2008 de PENELOPE (voir partie 4.3). Cependant, il est préférable de vérifier si

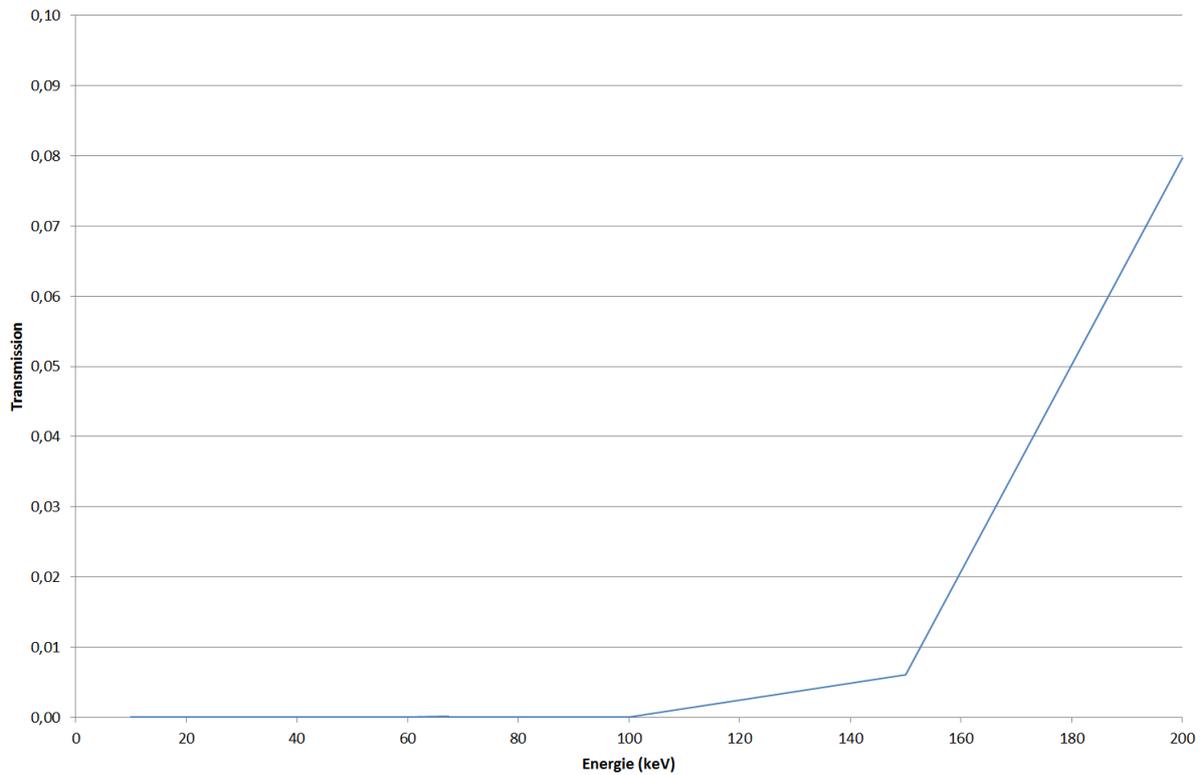


FIGURE 4.41 – Transmission des photons dans une cible en tantale d’épaisseur de 2,03 mm en fonction de l’énergie des photons incidents

les écarts obtenus avec ce module ne sont pas trop importants par rapport à ceux obtenus avec PENELOPE. La même géométrie a ainsi été implémentée sur GEANT4. La figure 4.42 présente la comparaison entre les résultats obtenus par la simulation sur PENELOPE et GEANT4 et ceux obtenus expérimentalement.

Les écarts relatifs sont reportés dans le tableau 4.11. Dans l’ensemble, les écarts relatifs sont inférieurs à 1 %, compatibles avec l’incertitude statistique des calculs. Il est donc possible de considérer que les deux codes permettent d’obtenir des résultats équivalents et que le module PENELOPE sur GEANT4 rend compte de la physique de basse énergie de manière tout à fait satisfaisante, comme le code de PENELOPE.

#### 4.4.7 Scan de GENIX

La propagation des ions lithium et bore n’est pas homogène dans le cristal de germanium [69]. Comme cela a été présenté précédemment, ils migrent très rapidement sur les zones latérales du cylindre. Mais ils se diffusent également en direction du centre du cylindre. Cette migration de la zone morte se fait parfois de manière non uniforme. Généralement, les zones mortes latérales et en entrée du cristal sur les résultats des simulations Monte Carlo correspondent à une moyenne de leurs épaisseurs. Toutefois, si en réalité ces volumes de zones non actives sont inhomogènes, cette divergence avec la simulation Monte Carlo peut conduire à des erreurs de calculs d’activité. Ainsi, pour essayer d’obtenir des informations complémentaires sur d’éventuelles inhomogénéités de la réponse du détecteur sur la surface en entrée, une expérience spécifique a été mise en place.

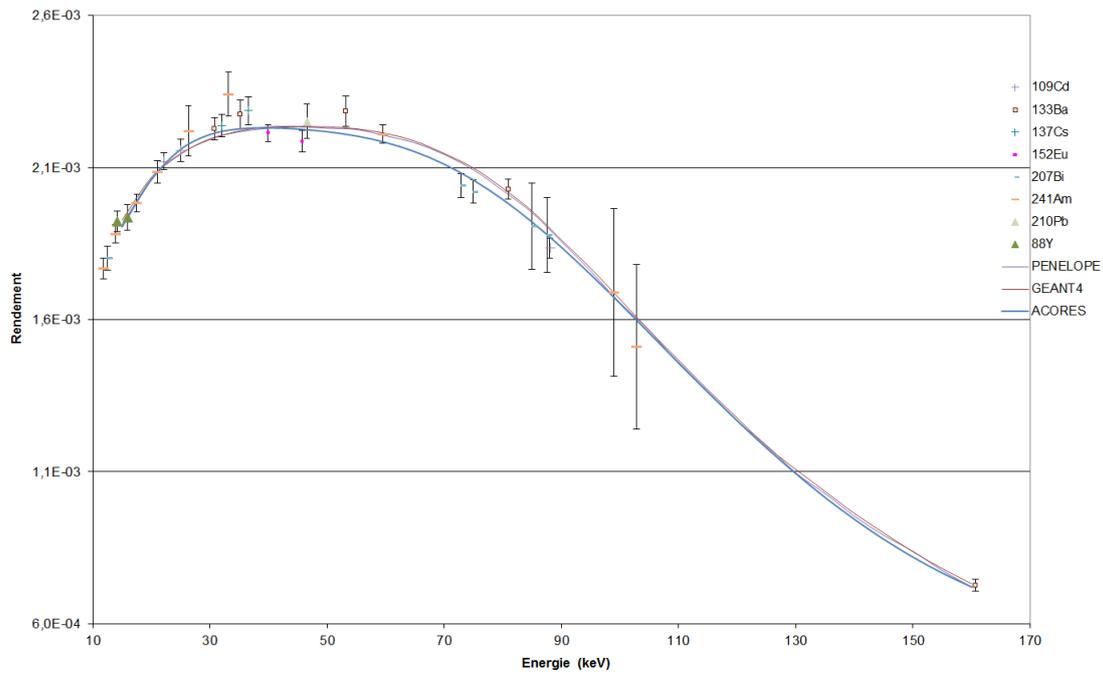


FIGURE 4.42 – Comparaison entre les rendements obtenus sur PENELOPE et GEANT4

Énergie	Rdt PENELOPE ( $10^{-3}$ )	Rdt GEANT4 ( $10^{-3}$ )	Écart en %	Énergie	Rdt PENELOPE ( $10^{-3}$ )	Rdt GEANT4 ( $10^{-3}$ )	Écart en %
15	1,912	1,928	-0,83	90	1,857	1,862	-0,29
20	2,062	2,068	-0,28	95	1,759	1,769	-0,53
25	2,144	2,146	-0,07	100	1,655	1,667	-0,72
30	2,195	2,192	0,11	105	1,565	1,564	0,07
35	2,218	2,220	-0,13	110	1,455	1,467	-0,79
40	2,230	2,234	-0,22	115	1,362	1,369	-0,50
45	2,234	2,235	-0,06	120	1,267	1,277	-0,81
50	2,229	2,234	-0,21	125	1,188	1,184	0,31
55	2,225	2,228	-0,10	130	1,096	1,108	-1,03
60	2,205	2,213	-0,35	135	1,028	1,036	-0,70
65	2,181	2,187	-0,26	140	0,954	0,963	-0,96
70	2,143	2,146	-0,14	145	0,891	0,900	-0,92
75	2,092	2,098	-0,30	150	0,839	0,837	0,18
80	2,024	2,032	-0,40	155	0,775	0,782	-0,85
85	1,952	1,957	-0,26	160	0,721	0,732	-1,43

Tableau 4.11 – Comparaison entre les rendements d'absorption totale obtenus avec PENELOPE et ceux obtenus avec GEANT4

## Protocole

Un montage expérimental avait été déjà développé dans le laboratoire afin de procéder à des balayages en surface de détecteurs GeHP. Il a été adapté au cas présent afin de procéder au balayage en surface de GENIX, en collimatant une source de haute activité dans le but

d'obtenir un faisceau de photons le plus fin possible tout en conservant un taux de comptage élevé. Une seconde expérience a été programmée pour essayer d'évaluer l'épaisseur de la zone morte en entrée en faisant varier l'angle d'incidence de la source de photons tout en conservant la même distance et le même point d'entrée dans le cristal de germanium.

**Choix de l'énergie :** Pour ce montage expérimental, une source de très haute activité est requise puisque une très forte collimation de la source est recherchée. Seule deux sources radioactive présentent les critères requis, une source de  $^{55}\text{Fe}$  de 20 MBq et une source de  $^{241}\text{Am}$  de 1,85 GBq. Les émissions du  $^{55}\text{Fe}$  sont comprises entre 6 et 6,5 keV environ, l'énergie n'est donc pas assez élevée pour obtenir des informations sur la zone inactive en sortie. En revanche, la source est parfaite pour les mesures de l'épaisseur de la zone morte en entrée du détecteur. La source de  $^{241}\text{Am}$  est confinée dans une protection en acier inoxydable de 1 mm d'épaisseur. Seule l'émission  $\gamma$  de 60 keV n'est pas absorbée dedans, les émissions d'énergie inférieure ne sont quasiment pas visibles. Cette énergie convient idéalement pour observer l'homogénéité des zones inactives en entrée et en sortie du cristal.

**Choix du collimateur :** De nombreux collimateurs sont à disposition dans le laboratoire. Il convient donc d'en choisir un de façon à obtenir un faisceau de photons suffisamment fin au niveau du cristal pour effectuer correctement le balayage point par point de sa surface. En utilisant la source de  $^{241}\text{Am}$ , des essais de comptage ont été effectués en fonction de différents diamètres d'ouverture de collimateurs. C'est un collimateur en tungstène d'ouverture de 200  $\mu\text{m}$  et de 2,08 mm d'épaisseur de diamètre qui a été choisi. Ce choix va permettre d'obtenir une statistique de comptage suffisamment élevée sous le pic d'absorption totale en peu de temps afin de limiter le temps nécessaire pour balayer intégralement le détecteur. Concernant les mesures de l'épaisseur de la zone morte en entrée du détecteur, ce collimateur ne convient pas puisque la source de  $^{55}\text{Fe}$  n'est pas suffisamment active. Le collimateur sélectionné présente un diamètre d'ouverture de 1 mm et une épaisseur de 15 mm.

**Géométrie de mesure :** La source est placée dans un support, au-dessus du collimateur, lui-même positionné sur un bras en aluminium relié à des moteurs permettant un déplacement automatique d'une grande précision (voir figure 4.43).

Pour le balayage en surface du détecteur, une zone fine du cristal a été sélectionnée (voir figure 4.44) sur une surface rectangulaire de 4 mm sur l'axe des x 21 mm sur l'axe des y, avec un déplacement par pas de 0,2 mm sur l'axe des x et de 0,1 mm sur l'axe des y. Pour la mesure de la zone morte, l'axe de rotation du bras a été placé à peu près au niveau de l'entrée du cristal de germanium. Ainsi, l'angle d'incidence change tout en conservant le même point d'entrée au niveau du détecteur.

## Résultats

Les résultats du balayage en surface sont présentés sur la figure 4.45. Les zones mortes, sur une distance d'environ 12 mm, semblent relativement homogènes. Afin d'affiner les résultats, le balayage en angle a été tenté mais n'a pas été effectué dans des conditions suffisantes pour en obtenir plus d'information. Toutefois, suite à ces essais, il a été possible de définir un nouveau collimateur permettant d'occulter les zones mortes latérales.



FIGURE 4.43 – Dispositif expérimental du balayage de la surface de GENIX

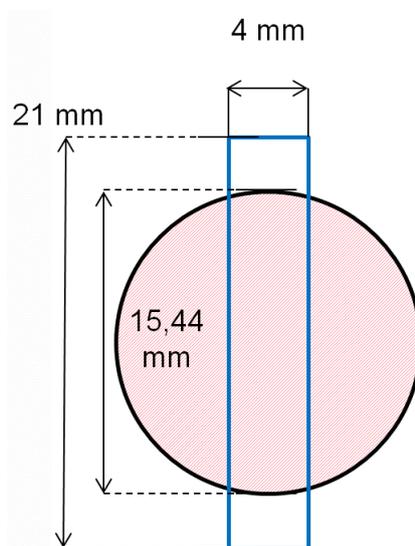


FIGURE 4.44 – Schéma du balayage de GENIX

#### 4.4.8 Second étalonnage de GENIX

Suite à un défaut d'étanchéité, le vide à l'intérieur du capot de GENIX ne pouvait plus être maintenu et le détecteur a dû être envoyé en réparation. En parallèle, une modification sur la géométrie de mesure a été apportée pour tenir compte des résultats obtenus lors du premier étalonnage et le collimateur au niveau du détecteur a été changé. Le diamètre d'ouverture de celui-ci a été diminué pour passer de 14 mm à 12 mm. Ainsi, l'angle solide de mesure a été réduit ce qui permet de diminuer les effets de diffusion dus à l'interaction des photons dans la zone de faible champ électrique du cristal. Un nouvel étalonnage du détecteur a donc été réalisé et d'autres points d'étalonnage ont été ajoutés (tableau 4.12), notamment du fait de nouvelles disponibilités de radionucléides.

La figure 4.46 présente les nouveaux points expérimentaux obtenus par l'acquisition des sources étalons ponctuelles disposées à la même distance du détecteur (8 cm) que lors du précédent étalonnage.

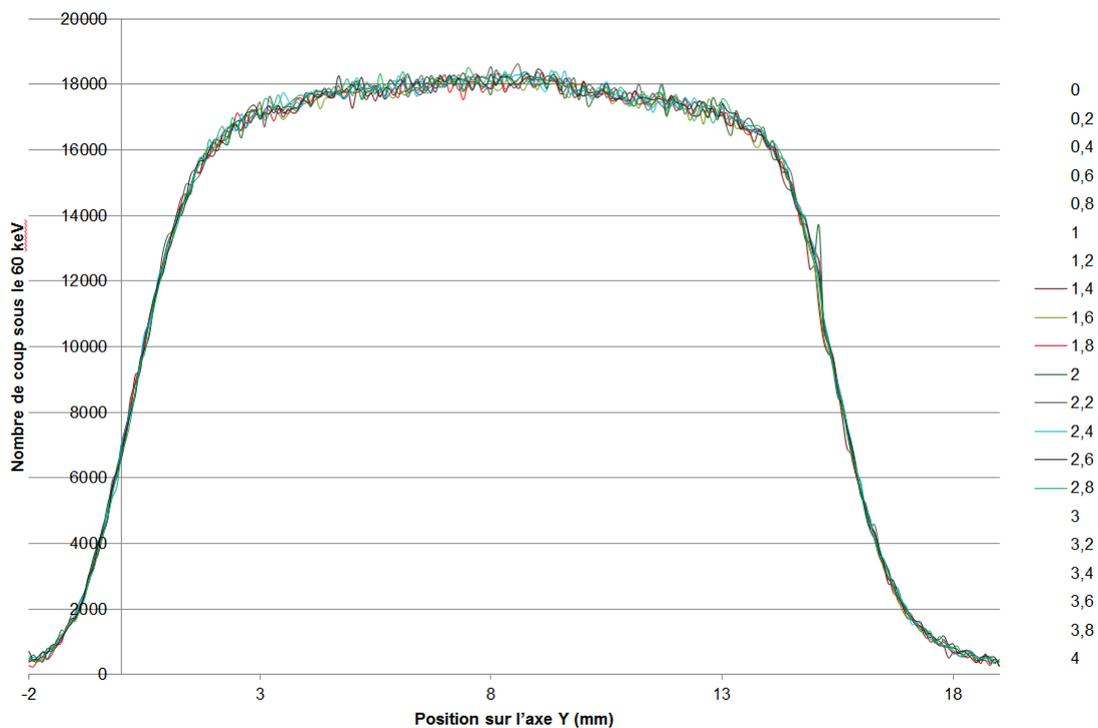


FIGURE 4.45 – Nombre de coup sous le pic de 60 keV de  $^{241}\text{Am}$  en fonction de sa position au-dessus du détecteur.

Radionucléide	Énergie (keV)		Intensité d'émission (%)	
$^{57}\text{Co}$	–	14,4130 (3)	–	9,18 (12)
	–	122,0607 (1)	–	85,49 (14)
	–	136,4736	–	10,71 (15)
$^{85}\text{Sr}$	13,3359	13,3758	17,16 (17)	50,20 (30)
	13,3955		33,04 (29)	
	14,9994	15,0193	8,04 (10)	8,97 (11)
	15,1953		0,93 (4)	
$^{113}\text{Sn}$	24,0023	24,1376	27,69 (21)	79,59 (37)
	24,21		51,9 (3)	
	27,3364	27,4275	14,58 (17)	17,35 (20)
	27,9093		2,77 (10)	
$^{139}\text{Ce}$	33,0344	33,2982	22,80 (24)	64,70 (47)
	33,4421		41,9 (4)	
	37,8687	38,6619	12,47 (18)	15,63 (20)
	38,8228		3,16 (8)	
	–	165,8575 (11)	–	79,90 (4)

Tableau 4.12 – Liste des radionucléides supplémentaires utilisés pour le second étalonnage de GENIX

De même, des étalonnages en énergie et en résolution du détecteur ont été effectués préalablement à l'étalonnage en rendement (figures 4.47 et 4.48).

Un premier ajustement des points expérimentaux a ensuite été effectué avec ACORES (figure 4.49), avant le calcul des corrections de coïncidence. Afin de déterminer les valeurs de rendement d'absorption totale pour les énergies supérieures à 165 keV ainsi que celles du rendement total pour calculer ces corrections, la nouvelle géométrie de GENIX a été implémentée sur PENELOPE et GEANT4.

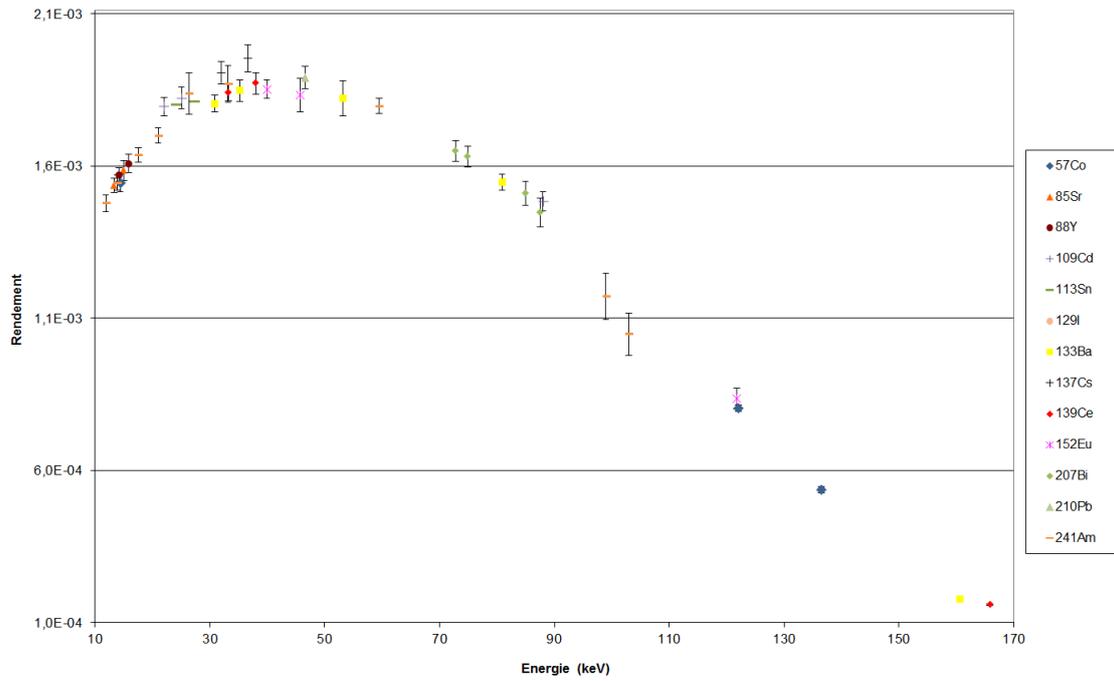


FIGURE 4.46 – Variation du rendement d’absorption totale de GENIX en fonction de l’énergie des photons pour une distance source-détecteur d’environ 8 cm - Second étalonnage

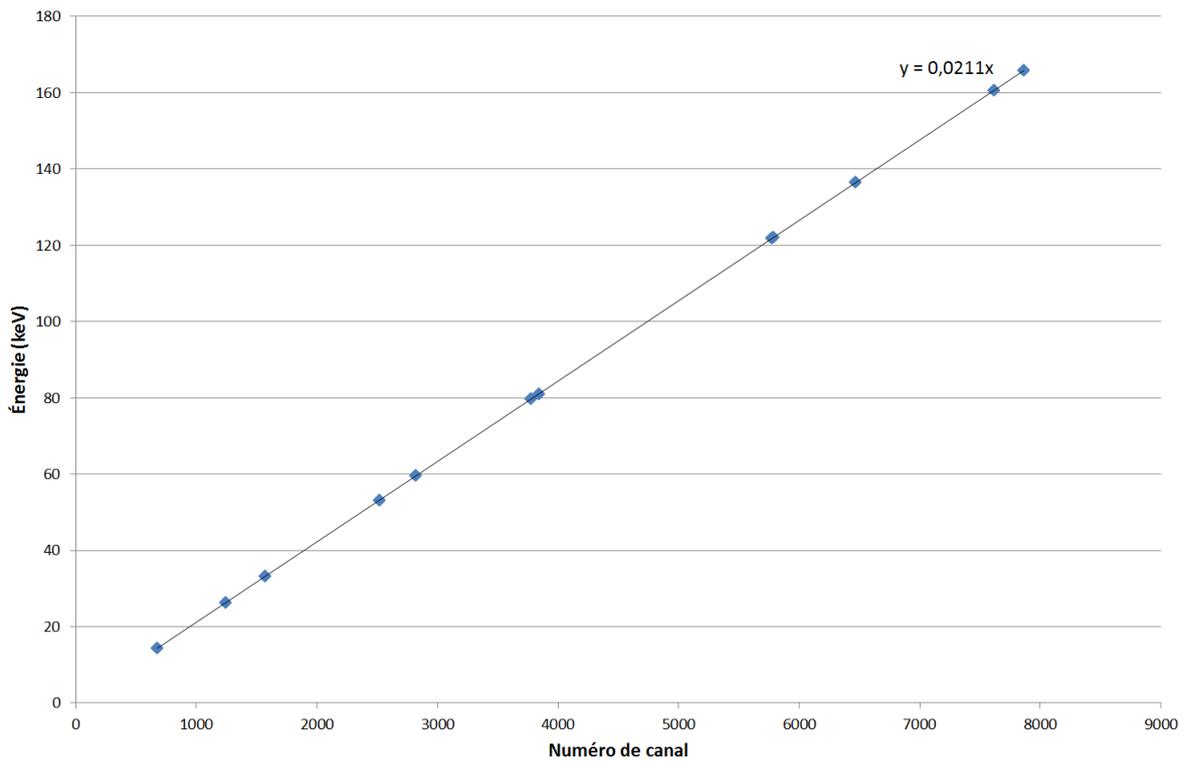


FIGURE 4.47 – Variation de l’énergie en fonction du numéro du canal pour le détecteur GENIX - Second étalonnage

La seule modification porte sur le diamètre d’ouverture du collimateur au niveau du détecteur, puisque aucun autre élément du détecteur n’est censé avoir été modifié. La comparaison entre l’ajustement d’ACORES et GEANT4 est présentée dans la figure 4.50.

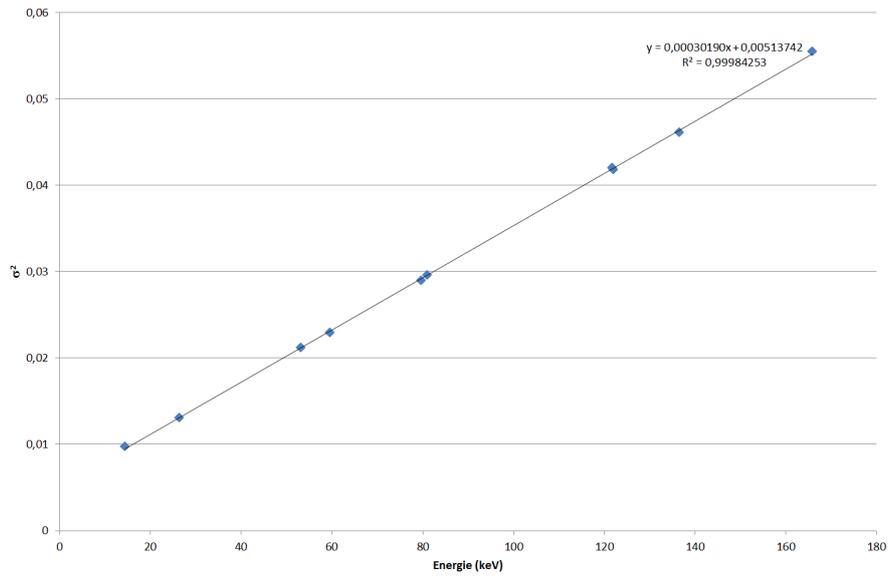


FIGURE 4.48 – Variation de la résolution de GENIX en fonction de l'énergie des photons - Second étalonnage

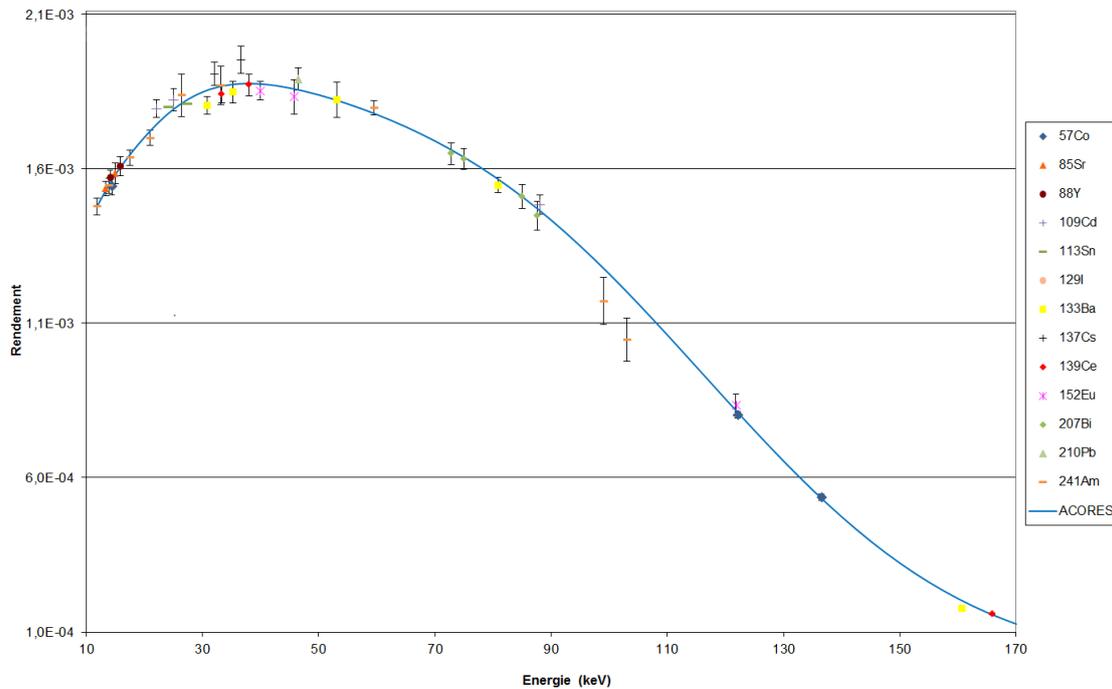


FIGURE 4.49 – Variation du rendement d'absorption totale de GENIX en fonction de l'énergie des photons pour une distance source-détecteur d'environ 8 cm et premier ajustement des points expérimentaux par ACORES - Second étalonnage

Comme dans le cas du détecteur de la plateforme MADERE, Voie X2, il y a un écart systématique entre l'ajustement des résultats expérimentaux et la simulation Monte Carlo, particulièrement en haute énergie. Ce dernier point peut s'expliquer par un changement d'électronique du préamplificateur lors de la réparation du détecteur, la saturation de celle-ci serait plus importante que la précédente. Il ne peut pas provenir d'une augmentation de l'épaisseur de la zone de diffusion des ions lithium dans le cristal de germanium car cela signifierait qu'elle serait

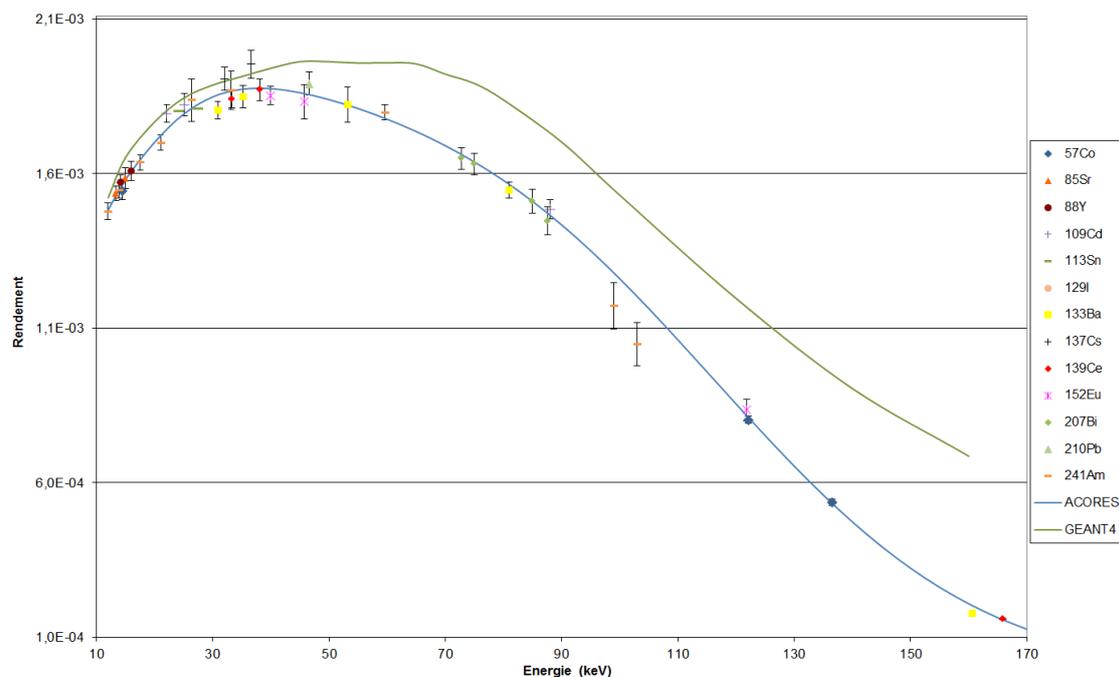


FIGURE 4.50 – Comparaison des résultats obtenus par simulation Monte Carlo aux résultats expérimentaux - Second étalonnage

passée d'une valeur de 4,4 mm à une valeur de 6,6 mm environ, ce qui est peu vraisemblable. L'écart observé sur l'ensemble de la gamme d'énergie de détection pourrait être expliqué par un angle solide de mesure en réalité plus faible que supposé. Cela voudrait dire que le collimateur en tantale au niveau du détecteur ne limite pas sa valeur et que le diamètre actif du détecteur a diminué ou que la distance entre la fenêtre de béryllium a suffisamment augmenté pour que le collimateur ne masque pas en partie le volume actif de germanium. Un moyen simple de vérifier cette hypothèse est de considérer les taux de comptage sous les pics d'un radionucléide, le  $^{133}\text{Ba}$  par exemple, et de constater s'ils augmentent en enlevant le collimateur en tantale situé au niveau du détecteur. Le test a été effectué et une augmentation du taux de comptage d'environ 30 % sur l'ensemble des pics du baryum a été relevé, ce qui signifie que le nouveau collimateur en tantale limite efficacement l'angle solide de mesure de GENIX ; ainsi les écarts entre les résultats expérimentaux et la simulation ont une autre origine. Dans le même temps, le rendement d'absorption totale de GENIX a été déterminé grâce à l'expression analytique 4.4 puis comparé aux autres données (voir figure 4.51 et le zoom sur la partie 10-70 keV figure 4.52). Les résultats obtenus sont en adéquation avec la simulation Monte Carlo, mais ils conservent un écart avec l'ajustement des points expérimentaux. Cela confirme bien qu'un phénomène, probablement lié à la création des charges et à leur collection, n'est pas pris en compte dans les simulations de Monte Carlo.

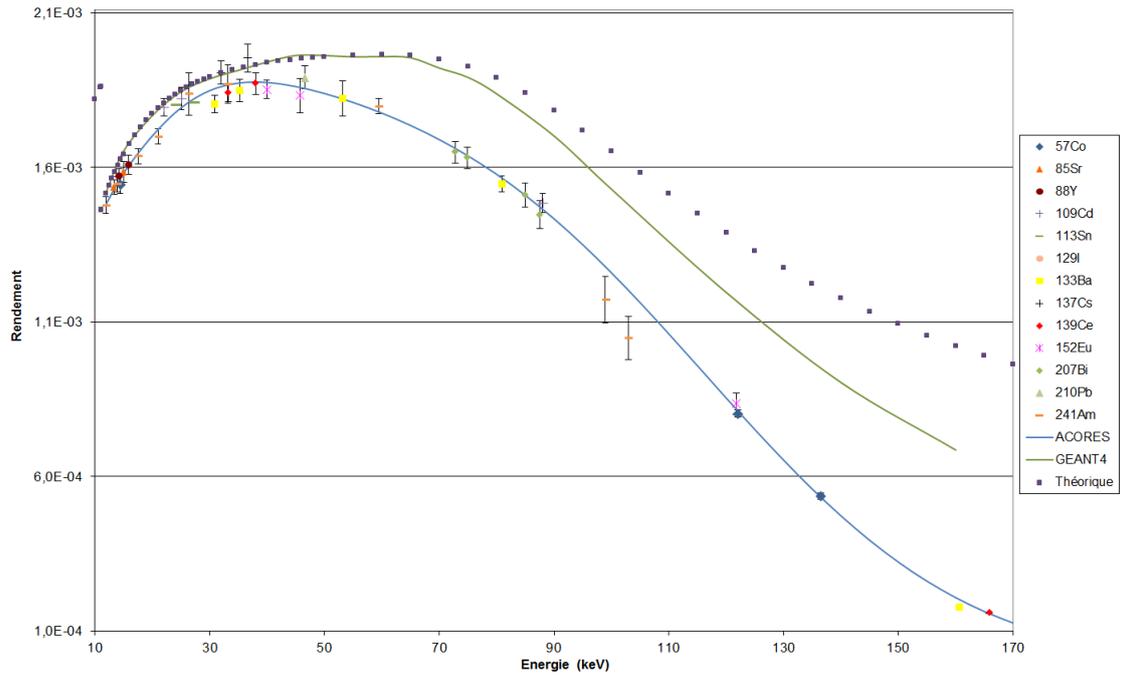


FIGURE 4.51 – Comparaison du calcul du rendement analytique avec l’expérimental et la simulation Monte Carlo

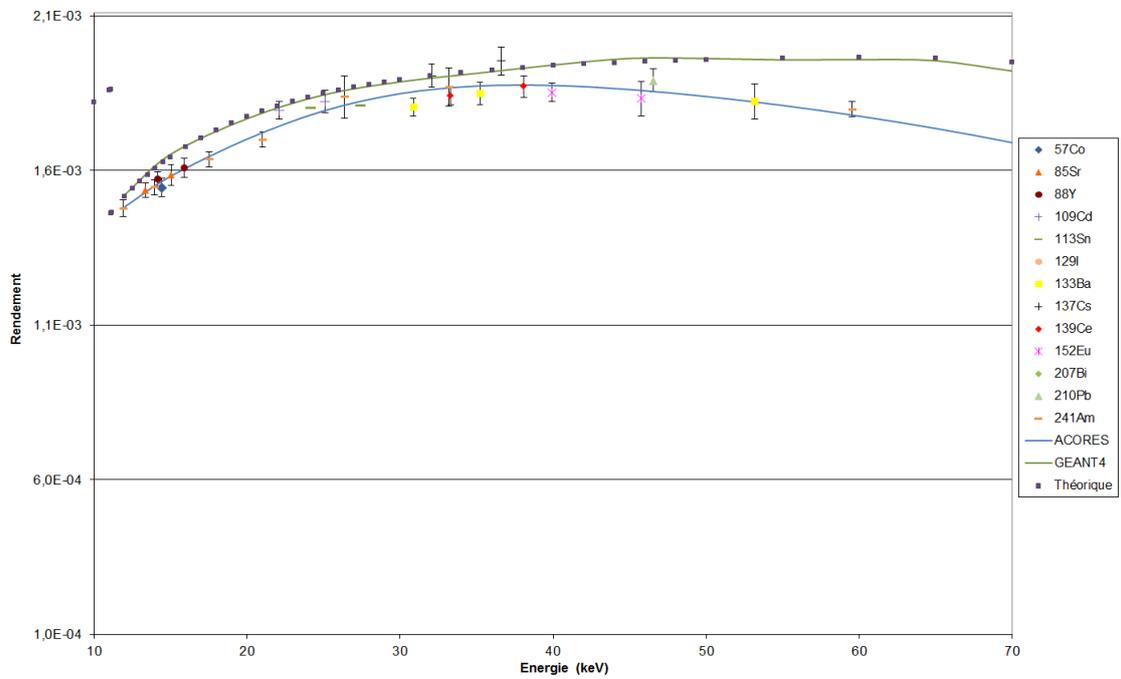


FIGURE 4.52 – Comparaison du calcul du rendement analytique avec l’expérimental et la simulation Monte Carlo, zoom sur les énergies entre 10 et 70 keV

## Conclusion

Dans ce chapitre, une attention particulière a été portée sur la partie instrumentation, détection et l'électronique associée. Une étude préliminaire a été menée sur un module numérique nanoMCA de traitement du signal. Cela permet de donner des recommandations quant au choix des paramètres de mise en forme pour optimiser la résolution du détecteur et sa réponse en fonction du taux de comptage. Bien que l'électronique analogique ait été maintenue sur la chaîne de mesure GENIX afin de conserver la cohérence avec les autres chaînes de mesures en spectrométrie  $\gamma$ , ce module a été utilisé avec d'autres détecteurs (SDD par exemple), pour les mesures des rendements de fluorescence (voir section 6.1) au synchrotron SOLEIL, en utilisant les paramètres ayant été recommandés.

Les étalonnages en rendement présentés en détail montrent les nombreuses difficultés et le peu d'informations expérimentales à disposition dans la gamme d'énergies inférieures à 100 keV. Ainsi, plusieurs problèmes ont été mis en évidence, révélant parfois l'incohérence de certaines données. C'est le cas notamment des intensités d'émissions des photons de  $^{152}\text{Eu}$ . Les études menées sur la mesure de l'homogénéité de l'épaisseur des zones mortes du détecteur sur l'ensemble de son diamètre ont conduit à la définition d'un nouveau collimateur sur la géométrie de mesure, afin de limiter l'interaction des photons dans les zones de faible champ électrique du cristal de germanium. Suite à une panne du détecteur, l'étalonnage initial a dû être refait, en diminuant l'angle solide de mesure par l'utilisation du nouveau collimateur.

Les résultats obtenus par les simulations Monte Carlo, comparés aux valeurs expérimentales, révèlent la forte influence de la zone morte en entrée sur la mesure des photons d'énergie inférieure à 30 keV, puisque la variation de quelques dixièmes de micromètre de son épaisseur entraîne une variation d'au moins 1 % du rendement d'absorption totale. Les simulations attestent également de l'influence de l'épaisseur des zones mortes en sortie et latérale sur le rendement du détecteur. De manière plus générale, les études ont mis en évidence la difficulté de faire correspondre les simulations Monte Carlo avec les fonctions d'ajustement des points expérimentaux par les fonctions mathématiques (polynomiales logarithmiques) couramment utilisées en spectrométrie  $\gamma$ , sur toute la gamme d'énergie. Les calculs par méthodes semi-empiriques, présentent un bon accord avec les valeurs expérimentales en-dessous de 40 keV, qui est la gamme d'énergie d'intérêt pour la suite de l'étude, tant que la géométrie de collimation ne limite pas l'angle solide de détection. En particulier, le second étalonnage a mis en évidence des phénomènes vraisemblablement liés à l'électronique et la collection des charges, qui ne sont pas pris en compte dans les méthodes semi-empiriques et de Monte Carlo utilisées.

Suite à cette étude détaillée, les résultats qui seront utilisés pour les résultats quantitatifs dans la suite des travaux sont présentés sur la figure 4.35, en ce qui concerne le premier étalonnage, et la figure 4.49 après la réparation du détecteur. Les incertitudes-types relatives associées au rendement d'absorption totale sont comprises entre 1 et 1,4 % sur la gamme d'étalonnage de GENIX.



# Chapitre 5

## Facteurs de correction

La mesure des dosimètres nécessite la prise en compte de différents facteurs de correction, particulièrement en basse énergie où l'absorption des photons dans la source (auto-absorption) n'est pas négligeable. Ceux-ci sont examinés au cours de ce chapitre. Le transfert de rendement nécessaire pour la mesure d'échantillons volumiques sur le détecteur dont le rendement est connu pour un échantillon ponctuel est présenté dans la première partie. La diffusion dans les matériaux et son influence sur la forme des pics en basse énergie est l'objet de la deuxième partie. Dans la troisième partie, les phénomènes de fluorescence dans le volume du dosimètre, qui ont un impact significatif sur les comptages enregistrés, sont détaillés pour les deux types de matériau, et les coefficients de correction permettant de prendre en compte ces effets sont présentés.

### 5.1 Transfert de rendement

Comme évoqué dans la section précédente, l'étalonnage est réalisé à l'aide de sources dites ponctuelles. Il s'agit d'un dépôt d'une solution radioactive d'un diamètre de 2 ou 3 mm au maximum, d'épaisseur minimale et de masse volumique très proche de celle de l'eau. De ce fait la source peut être considérée comme ponctuelle par rapport à la distance source-détecteur et aux dimensions de ce dernier. En revanche, lors de la mesure d'échantillons radioactifs de volume un peu plus important, comme les dosimètres niobium et rhodium, ceux-ci ne peuvent plus être considérés comme ponctuels ; ce changement de géométrie entraîne une variation de l'angle solide de mesure, de la distance moyenne source-détecteur et l'absorption des photons émis dans la source elle-même (auto-absorption).

#### 5.1.1 Méthodes de transfert

L'objectif du calcul du transfert de rendement est de pouvoir mesurer des sources radioactives dans des conditions géométriques différentes de celles de l'étalonnage, ici, allant d'une source ponctuelle placée à une distance de référence à un échantillon volumique. Le logiciel ETNA, en plus des corrections de coïncidences, permet de calculer le rendement d'un détecteur pour différentes géométries à partir d'un rendement de référence (établi par l'étalonnage du détecteur). Ce calcul analytique prend en compte l'absorption dans les matériaux de la source et du détecteur, suivant la loi d'absorption de Beer-Lambert, en intégrant le parcours des photons sur le volume de la source par la méthode de Gauss Legendre. ETNA est utilisé au LNHB

dans la plupart des cas où un calcul de transfert de rendement est nécessaire. Dans le cas des spectromètres de rayons X de la plateforme MADERE, le passage d'une géométrie définie par l'étalonnage à une géométrie de mesure différente est pris en compte par le calcul analytique de différents facteurs : corrections de géométrie, d'angle solide et d'auto-absorption (voir chapitre 2). Or, que ce soit dans le cas d'ETNA ou des facteurs de correction utilisés à MADERE, ils sont le résultat de calculs analytiques et les processus d'interactions des photons dans la matière sont simplifiés et limités à des géométries coaxiales cylindriques. Cela peut convenir dans le cas de la spectrométrie  $\gamma$  classique, mais dans le cas des faibles énergies, où les interactions dans la source sont plus fréquentes et déforment les spectres, les outils de simulation de Monte Carlo comme PENELOPE ou GEANT4 permettent d'atteindre une meilleure précision sur les calculs. Ainsi, il est possible de définir de manière détaillée la géométrie de mesure, le contenant ainsi que le matériau de la source radioactive et de mieux prendre en compte les phénomènes aléatoires de l'interaction rayonnement-matière. Toutefois, le temps de calcul de la correction est beaucoup plus long et les calculs présentés pour l'étalonnage en rendement (chapitre 4) ont montré la difficulté d'obtenir des valeurs absolues exactes.

Il est donc proposé ici une méthode pour calculer la correction de transfert de rendement en utilisant les codes de Monte Carlo. L'idée est de partir de la même hypothèse que celle prise en considération dans ETNA, à savoir que le rendement du détecteur d'absorption est une combinaison de son rendement intrinsèque et de son rendement géométrique, qui dépend surtout de l'angle solide de mesure. Mais dans ce cas, le rendement géométrique prend en compte l'absorption dans la source, mais également l'absorption dans les matériaux entre la source et la fenêtre de béryllium. Ainsi, pour la géométrie d'étalonnage, considérée comme la géométrie de référence :

$$\varepsilon_{réf}(E) = \varepsilon_{G,réf}(E) \varepsilon_{I,réf}(E) \quad (5.1)$$

Une autre hypothèse établit dans ce cas que, quelle que soit la distance de la source radioactive au détecteur ainsi que son volume, le rendement intrinsèque du détecteur reste identique. Ainsi, lors de la mesure d'une source dans une géométrie différente :

$$\varepsilon_{mes}(E) = \varepsilon_{réf}(E) \frac{\varepsilon_{G,mes}(E)}{\varepsilon_{G,réf}(E)} \quad (5.2)$$

Par conséquent, la correction de transfert de géométrie est le rapport des deux rendements d'absorption totale calculés à partir de la simulation sur PENELOPE ou GEANT4 : le rendement calculé pour une source ponctuelle à la distance de référence et le rendement calculé pour la géométrie de mesure. Celui de la géométrie de référence reste toujours identique, par contre le rendement de mesure dépend évidemment de la géométrie choisie et les calculs doivent être relancés pour chaque cas. S'agissant d'une méthode relative s'appuyant sur un étalonnage de référence, cette méthode permet de s'affranchir des biais qui pourraient être introduits par l'utilisation de la simulation de Monte Carlo seule.

### 5.1.2 Application aux dosimètres

Le calcul des facteurs de transfert de rendement pour les dosimètres niobium et rhodium a donc été effectué par simulations Monte Carlo à partir de PENELOPE. Les géométries des dosimètres implémentées sur les simulations sont celles présentées dans la section 3.2, avec une géométrie supplémentaire dans le cas du niobium : un disque de 8 mm de diamètre et de

19,89  $\mu\text{m}$  d'épaisseur. Les mêmes calculs ont été effectués avec ETNA pour les comparer aux résultats obtenus avec PENELOPE. ETNA ne permet pas d'utiliser des géométries rectangulaires, il ne fonctionne qu'en géométrie cylindrique. Ainsi, dans le cas de la bande de niobium, c'est un disque de 3,0 mm de diamètre en conservant la même épaisseur, qui a été simulé sur ETNA. De cette façon, un volume identique en niobium est conservé par rapport aux dimensions de la bande. Le tableau 5.1 présente les résultats des facteurs de transfert de rendement, correction à appliquer à la surface des pics  $\text{XK}\alpha$  et  $\text{XK}\beta$  indépendamment. Les corrections sont importantes, environ 12 % et 50 % pour 20  $\mu\text{m}$  de niobium et 50  $\mu\text{m}$  de rhodium, respectivement, et varient notablement entre les deux énergies X. Les résultats obtenus avec les deux méthodes sont très similaires, les écarts relatifs étant tous inférieurs à 1 %, même dans le cas de la bande de niobium. Ainsi, ETNA, même par calcul analytique, permet de calculer sans grande erreur le transfert de rendement dans le cas présent. Dans le cas de PENELOPE, les résultats ont été obtenus à partir de la moyenne des résultats de cinq simulations lancées avec une graine du générateur de nombre aléatoire systématiquement différente. Ces résultats montrent également que dans le cas du transfert de rendement, c'est principalement l'épaisseur de l'échantillon et sa composition qui ont la plus grande influence et non pas sa forme, son diamètre, sa largeur ou sa longueur.

**Remarque** : Il convient de rappeler que ces corrections dépendent de la géométrie de mesure, en particulier de la distance source-détecteur et doivent donc être recalculées lorsque les conditions de mesure changent.

	PENELOPE		ETNA		Écarts relatifs (%)	
	Niobium					
	$\text{K}\alpha$	$\text{K}\beta$	$\text{K}\alpha$	$\text{K}\beta$	$\text{K}\alpha$	$\text{K}\beta$
Correction bandes	1,168 (12)	1,119 (11)	1,164	1,115	0,34	0,31
Correction disques	1,166 (12)	1,119 (11)	1,165	1,117	0,09	0,17
	Rhodium					
	$\text{K}\alpha$	$\text{K}\beta$	$\text{K}\alpha$	$\text{K}\beta$	$\text{K}\alpha$	$\text{K}\beta$
Correction disques	1,512 (18)	1,344 (15)	1,514	1,353	-0,13	-0,70

Tableau 5.1 – Facteurs de transfert de rendement obtenus avec PENELOPE et comparés aux résultats d'ETNA

## 5.2 Diffusion

Lorsque les radionucléides de la source se désintègrent, des photons sont émis aléatoirement dans toutes les directions et vont ainsi interagir par effet Compton avec une certaine probabilité dans les éléments présents autour du détecteur ou directement dans la source (dans le cas d'une source volumique). Il en résulte alors un pic de diffusion, qui correspond à plusieurs angles de diffusion, s'apparentant à une « bosse » ou une « traîne » sur la gauche du pic d'absorption totale (Voir figures du paragraphe 2.4.3). Ce phénomène altère la forme des spectres en basse énergie et peut perturber leur traitement : des événements dus à la diffusion peuvent être comptabilisés dans le pic d'absorption totale et doivent alors être soustraits. Les figures 5.1

et 5.2 illustrent l'augmentation du phénomène entre une source ponctuelle et volumique à des énergies approximativement identiques.

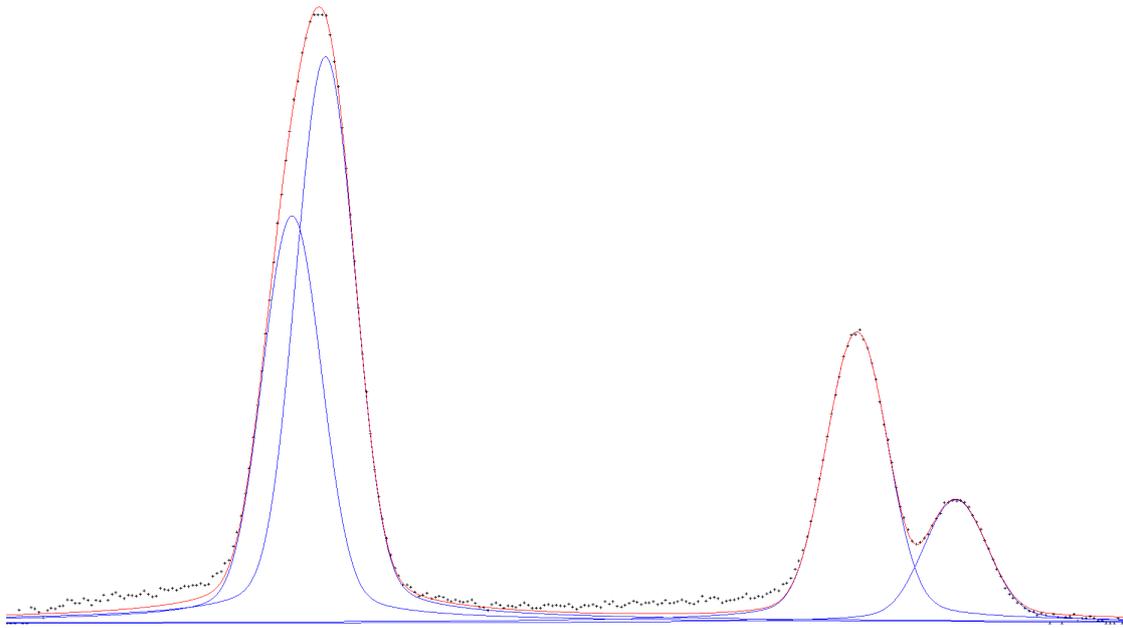


FIGURE 5.1 – Spectre d'une source ponctuelle de  $^{109}\text{Cd}$  aux énergies  $\text{XK}\alpha$  (22,103 keV) et  $\text{XK}\beta$  (25,072 keV)

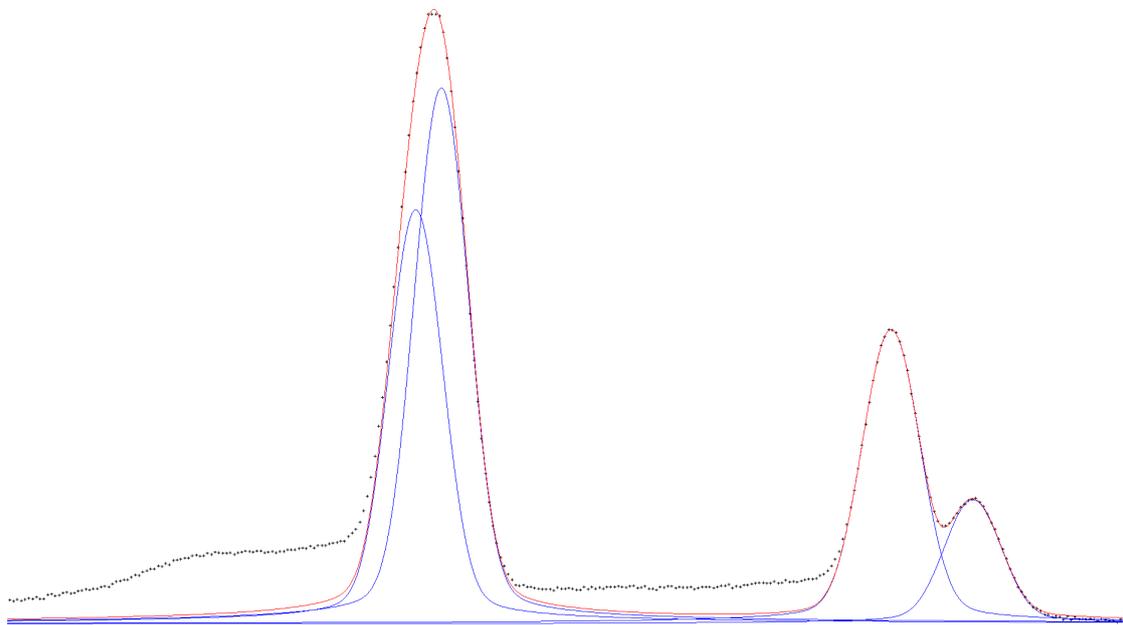


FIGURE 5.2 – Spectre d'une source volumique de  $^{103m}\text{Rh}$  aux énergies  $\text{XK}\alpha$  (20,167 keV) et  $\text{XK}\beta$  (22,781 keV)

### 5.2.1 Origine de la traîne basse énergie

La traîne du côté des basses énergies du pic d'absorption totale n'est pas totalement due à la diffusion des photons dans les différents matériaux présents autour du détecteur et peut

avoir d'autres origines. D'une part, la mise en forme du signal par l'électronique n'est pas une gaussienne parfaite, ce qui induit des événements qui déforment le pic d'absorption totale. D'autre part, l'interaction des photons dans une zone de faible champ électrique du cristal de germanium conduit à une collecte moins importante des porteurs de charges vers les électrodes par rapport à une interaction au centre du cylindre du cristal, ce qui produit des événements d'énergie légèrement plus faible que le pic d'absorption totale. À cela peut s'ajouter l'échappement des électrons Auger lors de l'interaction des photons près des extrémités du cristal, cependant la probabilité que cela survienne est très faible et peut être négligeable surtout dans le cas d'une géométrie de mesure avec la présence de collimateurs.

La pente de diffusion provient donc de deux origines distinctes : une première contribution est liée aux propriétés du champ électrique du cristal et à l'électronique de la chaîne de mesure et une autre provient véritablement de la diffusion des photons dans l'environnement du détecteur et dans la source. Dans le premier cas, la position des événements par rapport au pic d'absorption totale et leur statistique ne change pas ou très peu en fonction de la géométrie de la source et ces événements devraient être pris en compte dans le calcul de la surface du pic d'absorption totale. En ce qui concerne la diffusion des photons, la position des événements par rapport au pic d'absorption totale varie en fonction de l'énergie tandis que le nombre d'événements dans la pente de diffusion dépend du volume et de la nature de la source. Des travaux ont été menés précédemment au LNHB pour étudier précisément, grâce à des mesures expérimentales ainsi qu'à des simulations Monte Carlo, les origines des photons diffusés et leur influence sur les mesures en basse énergie suivant la géométrie de la source [70] et [71]. Ces études mettent en évidence l'importance relative des différents éléments de l'environnement du détecteur (support de source, Mylar<sup>®</sup>, air, ...) dans la pente de diffusion ainsi que celle des matériaux de la source et du conteneur dans le cas d'une source volumique, ce qui peut avoir un impact lors du calcul du transfert de rendement. Mais le point crucial du problème lié à la diffusion en basse énergie survient lors du traitement des spectres et du calcul de la surface du pic d'absorption totale.

### 5.2.2 Traîne de diffusion dans le calcul de la surface

Il existe deux façons de prendre en compte cette pente lors du traitement des spectres en basse énergie selon le LNHB ou le LDCI. La comparaison entre les deux méthodes de traitement des spectres sera effectuée par la suite en utilisant l'exemple d'une acquisition effectuée avec une source ponctuelle de  $^{109}\text{Cd}$  et une autre avec une source volumique de  $^{103m}\text{Rh}$ , provenant de l'expérience du  $^{103}\text{Pd}$  (voir paragraphe 6.3.3).

#### Traitement de la diffusion au LNHB

L'approche privilégiée au LNHB est de choisir les bornes de la région d'intérêt du traitement de spectres proches du pic d'absorption totale (en rouge dans la figure 5.3), de soustraire le fond (par une fonction « esse ») et d'ajuster ainsi le pic net afin d'en calculer la surface. De cette manière, la perturbation due à la diffusion est éliminée par la fonction d'ajustement du fond de COLEGRAM, qui est purement mathématique. Il se peut alors que des événements étrangers aux phénomènes liés à la pente soient soustraits, alors qu'ils devraient être comptabilisés dans le pic d'absorption totale. Un exemple de traitement de spectre de l'émission  $K\alpha$  est présenté sur les figures 5.4 et 5.5. L'ajustement est réalisé à l'aide de fonctions de Voigt, puisqu'il s'agit d'un cas de traitement de rayons X.

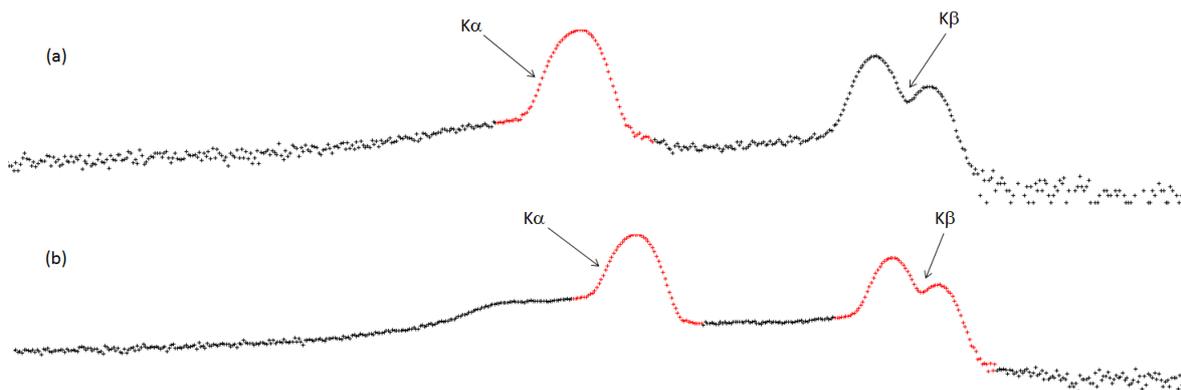


FIGURE 5.3 – Spectre brut de  $^{109}\text{Cd}$  aux énergies  $\text{XK}\alpha$  (22,103 keV) et  $\text{XK}\beta$  (25,072 keV) (a) et du  $^{103m}\text{Rh}$  aux énergies  $\text{XK}\alpha$  (20,167 keV) et  $\text{XK}\beta$  (22,781 keV) (b). Les régions d'intérêt sélectionnées apparaissent en rouge.

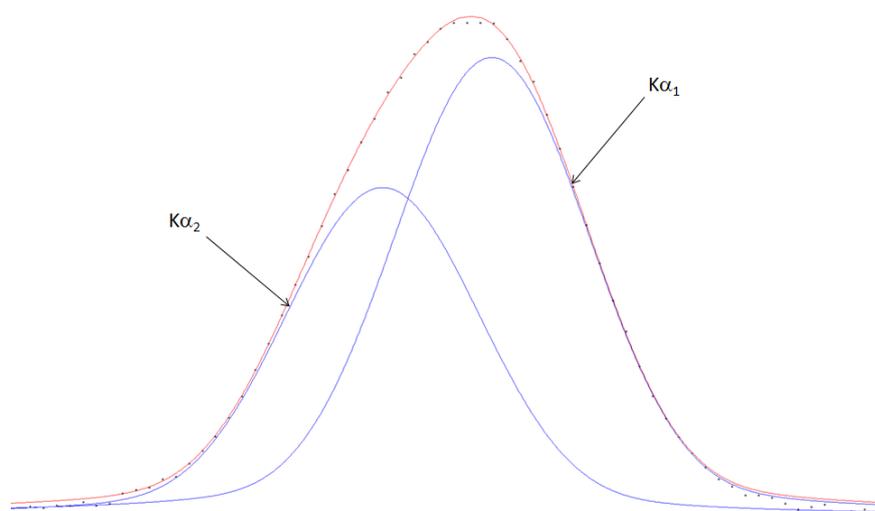


FIGURE 5.4 – Traitement du spectre de  $^{109}\text{Cd}$  à l'énergie  $\text{XK}\alpha$  (22,103 keV)

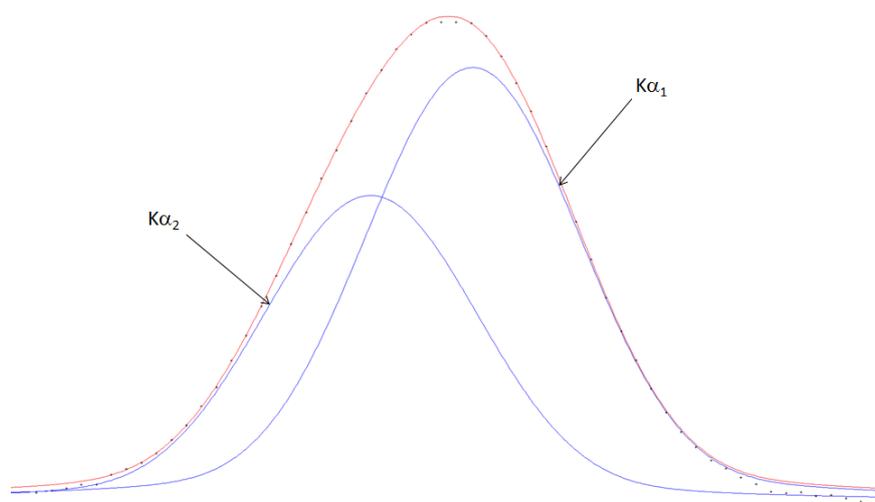


FIGURE 5.5 – Traitement du spectre de  $^{103m}\text{Rh}$  à l'énergie  $\text{XK}\alpha$  (20,167 keV)

## Traitement de la diffusion au LDCI

Au LDCI, la région d'intérêt est nettement plus large, afin de prendre en compte l'ensemble des événements liés à la diffusion (voir figure 5.6).

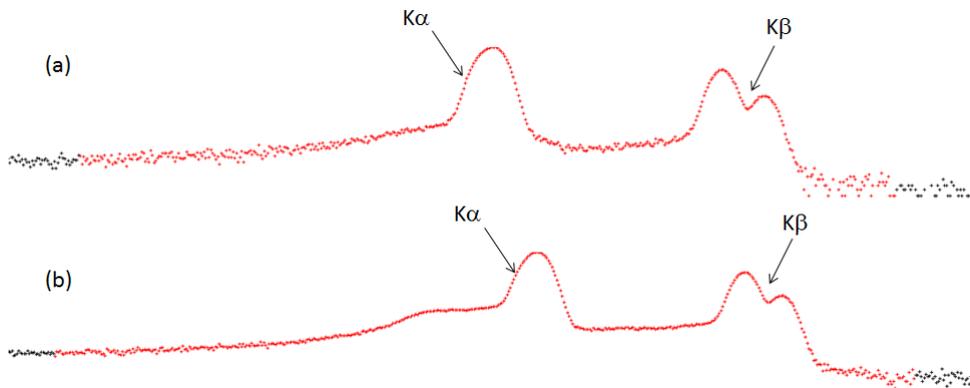


FIGURE 5.6 – Spectre brut de  $^{103m}\text{Rh}$  aux énergies  $\text{XK}\alpha$  (22,103 keV) et  $\text{XK}\beta$  (25,072 keV) (a) et de  $^{103m}\text{Rh}$  aux énergies  $\text{XK}\alpha$  (20,167 keV) et  $\text{XK}\beta$  (22,781 keV) (b). Les régions d'intérêt sélectionnées apparaissent en rouge.

Afin de déterminer au mieux la surface du pic d'absorption totale, il convient d'ajuster le spectre le plus correctement possible. Sur la base de travaux effectués précédemment, il a été choisi de représenter la pente de diffusion à l'aide d'une fonction de Gauss avec une pente sur la gauche dont certaines caractéristiques comme la valeur de l'écart-type, la hauteur de la pente et son inclinaison sont prédéfinies. La figure 5.7 présente un exemple de traitement avec une source de  $^{109}\text{Cd}$ . Ainsi, la fonction de Gauss avec pente convient pour traiter ce cas simple de diffusion (source ponctuelle).

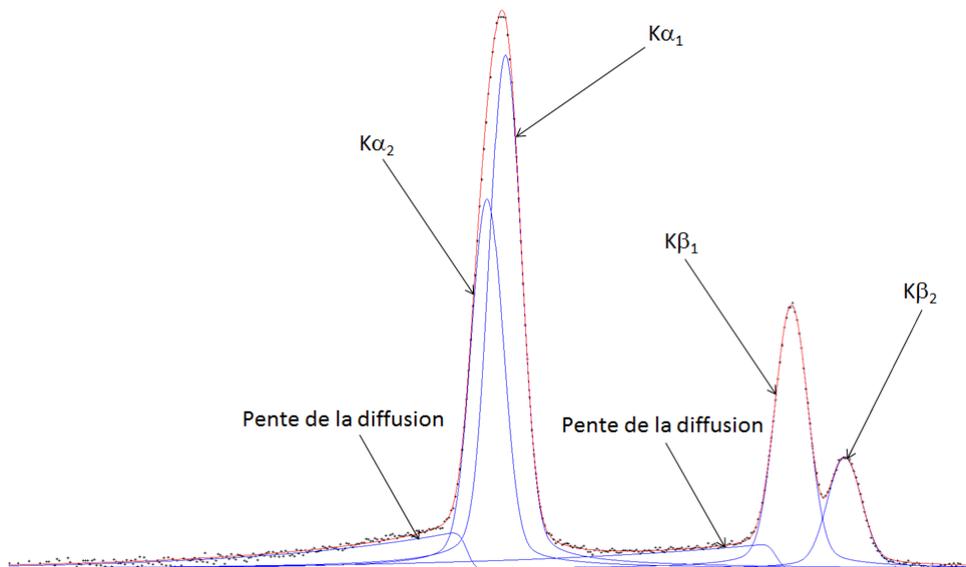


FIGURE 5.7 – Traitement du spectre du  $^{109}\text{Cd}$  aux énergies  $\text{XK}\alpha$  (22,103 keV) et  $\text{XK}\beta$  (25,072 keV)

Cependant, dans le cas d'une source d'un volume assez important, cette fonction n'est plus tout à fait appropriée pour ajuster le spectre, comme on peut le voir pour le cas d'une source

volumique de  $^{103m}\text{Rh}$  sur la figure 5.8 (la caractéristique de la pente est identique pour la raie  $K\alpha$  et la raie  $K\beta$ ).

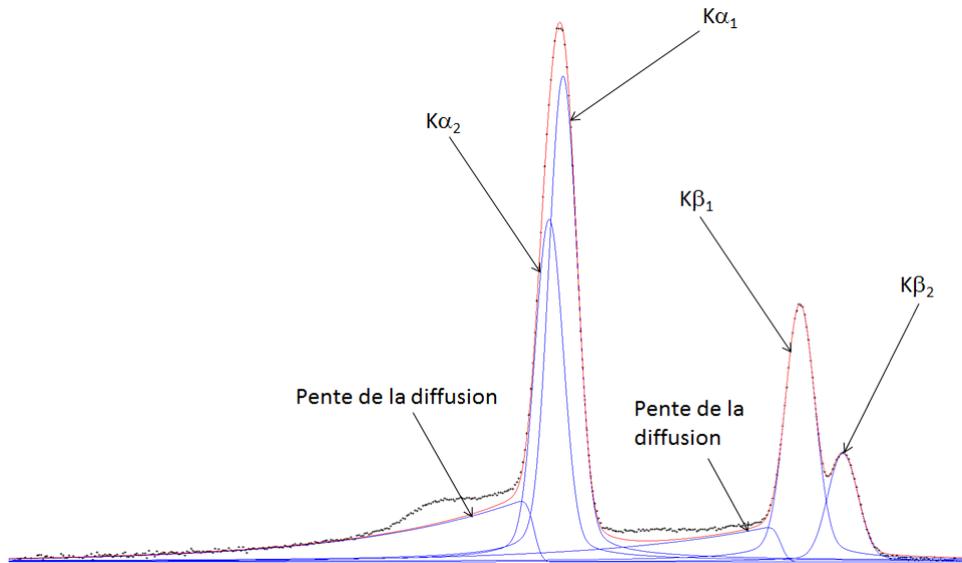


FIGURE 5.8 – Traitement du spectre du  $^{103m}\text{Rh}$  aux énergies  $XK\alpha$  (20,167 keV) et  $XK\beta$  (22,781 keV)

### Comparaison entre les deux méthodes

Au LNHB, la diffusion n'est pas considérée comme faisant partie du pic d'absorption totale, elle n'est donc pas prise en compte dans l'ajustement. Le traitement de la diffusion proposée par le LDCI, est quant à lui semi-empirique et estime qu'elle doit être intégrée dans la région d'intérêt de traitement des pics. Cette divergence de point de vue concernant la diffusion peut induire des différences sur le résultat des mesures. En effet, le tableau 5.2 présente le calcul des surfaces totales du pic  $K\alpha$  des exemples d'ajustements des spectres visibles sur les figures 5.4, 5.5, 5.7 et 5.8. On remarque un écart notable sur les surfaces entre les deux méthodes particulièrement lors du traitement de la source volumique. La mesure de sources volumiques telles que celle montrée en exemple est peu commune, il s'agit en général de sources de volume moins important, mais elle illustre parfaitement le problème de la diffusion en basse énergie. De plus, rien n'indique que l'une ou l'autre méthode soit la plus adaptée. Dans le cas du LNHB, il est possible que des événements soient soustraits de la surface du pic d'absorption totale alors qu'ils ne devraient pas et inversement il est possible que dans le cas du LDCI, des événements soient pris en compte dans la surface du pic d'absorption totale alors qu'ils proviennent de photons diffusés. Néanmoins, en ajustant les pics tout en conservant la même méthode pour l'étalonnage du détecteur et pour la mesure de sources ponctuelles ou de faible volume, l'erreur quant à la prise en compte de la diffusion peut être compensée. Cependant, cette erreur n'est probablement pas négligeable pour des sources de volume plus important, comme en témoigne l'augmentation de l'écart entre les deux méthodes concernant le passage d'une source ponctuelle à la source volumique de  $^{103m}\text{Rh}$  dans le tableau 5.2.

	Méthode de traitement de la diffusion	Surface $K\alpha$ obtenue	Écart entre les deux méthodes
SP ( $^{109}\text{Cd}$ )	LNHB	577782	0,4 %
	LDCI	579997	
SV ( $^{103m}\text{Rh}$ )	LNHB	1955128	1,6 %
	LDCI	1986673	

Tableau 5.2 – Comparaison des surfaces sous le pic d’absorption totale entre les deux méthodes d’ajustement des spectres

### 5.2.3 Proposition d’une méthode de correction de la diffusion

Les travaux précédents menés au LNHB sur la diffusion ont identifié entre autres les origines de cette diffusion et souligné son importance sur la mesure en basse énergie, mais ils ont montré également que les simulations Monte Carlo peuvent être d’une grande aide pour l’étude de ces phénomènes complexes. En effet, dans la simulation, lorsque le photon interagit dans le détecteur, il n’y a pas de largeur dans les pics due à la statistique et à l’électronique, la statistique de comptage simulée correspond donc à une fonction de Dirac. Ainsi, il est possible d’isoler le pic d’absorption totale des autres phénomènes d’interaction puisque dans le canal correspondant au pic d’absorption totale, seuls sont comptabilisés les événements qui correspondent à un dépôt total de l’énergie. La figure 5.9 présente un spectre qui est le résultat de simulations Monte Carlo sur GEANT4 avec la première géométrie du détecteur GENIX et une source ponctuelle dont l’émission photonique est mono-énergétique à 11,5 keV, la résolution en canal étant de 10 eV.

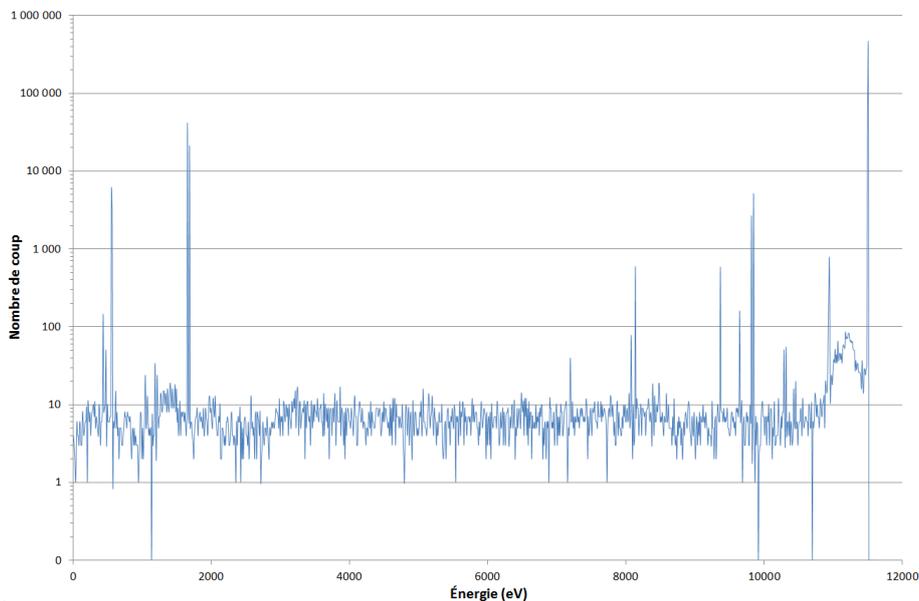


FIGURE 5.9 – Spectre d’une source ponctuelle simulé sur GEANT4 pour une énergie des photons incidents de 11 500 eV, entre 0 et 12 000 eV

De nombreux phénomènes peuvent être distingués comme l’absorption totale de l’énergie des photons, les échappements, etc. On remarque la bosse située à gauche du pic, c’est le résultat de la diffusion des photons dans les éléments présents autour de la source. Cette diffusion prend ici

l'apparence d'une bosse, et non d'une traîne comme sur les spectres expérimentaux, clairement distincte du pic d'absorption totale. Les spectres présentés dans les figures 5.10 et 5.11 sont obtenus par simulation pour source ponctuelle, avec un zoom sur les énergies autour du pic d'absorption totale.

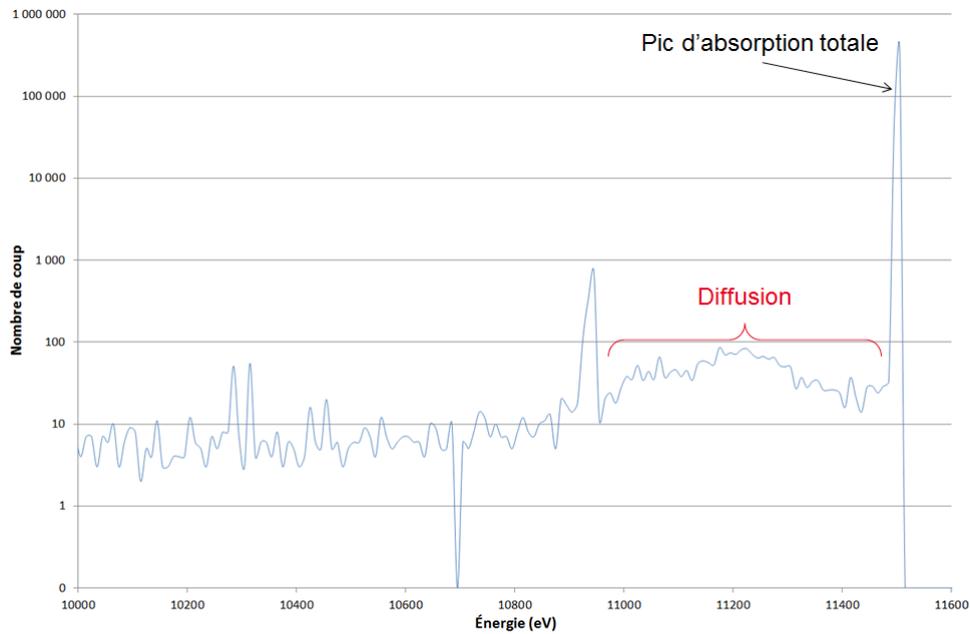


FIGURE 5.10 – Spectre d'une source ponctuelle simulé sur GEANT4 pour une énergie des photons incidents de 11 500 eV - zoom sur la région de 10 000 à 11 500 eV

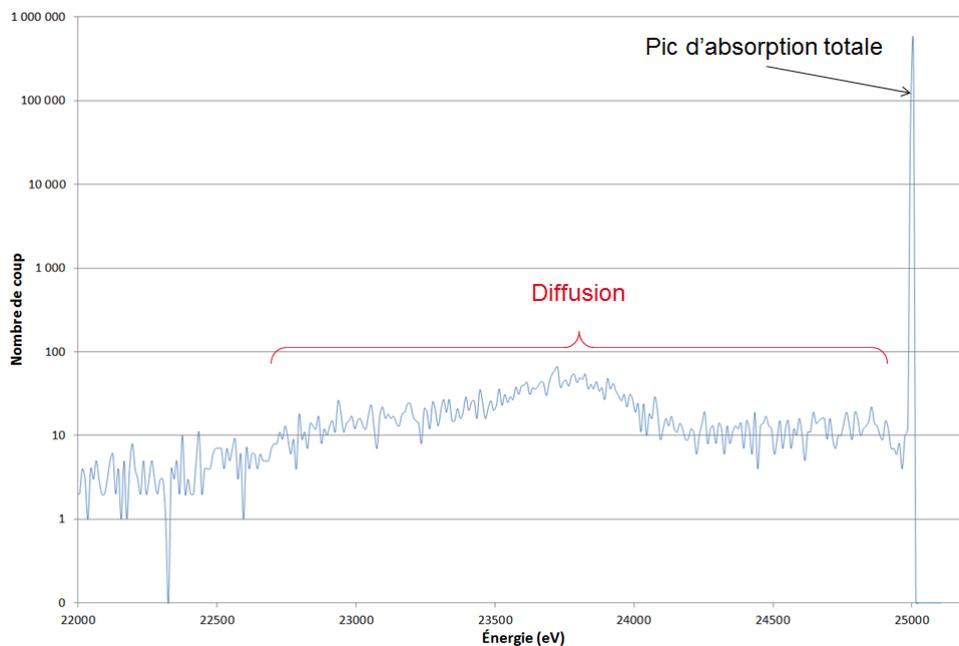


FIGURE 5.11 – Spectre d'une source ponctuelle simulé sur GEANT4 pour une énergie des photons incidents de 25 000 eV - zoom sur la région de 22 000 à 25 200 eV

Il serait envisageable d'utiliser les résultats des simulation Monte Carlo pour apporter une correction afin d'éliminer la contribution de la pente de diffusion à la surface du pic d'ab-

sorption totale. La solution consisterait à prendre le rapport entre la somme des événements correspondant à la diffusion et ceux du pic (voir figures 5.10 et 5.11). Ce rapport servirait de correction à la surface obtenue à partir du traitement d'un pic après la sélection d'une large région d'intérêt suivant la méthode utilisée au LDCI (voir paragraphe 5.2.2). En effet, la surface ainsi déterminée est la somme des événements du pic d'absorption totale et des diffusions, et la correction déterminée par la simulation Monte Carlo permettrait de déduire la contribution de la diffusion de cette surface. Cependant, pour procéder de cette manière, il est nécessaire de connaître le détecteur au mieux et de reproduire le plus fidèlement possible sa géométrie dans la simulation.

## 5.3 Coefficients de fluorescence

Le problème de la fluorescence, dont le phénomène est décrit dans la section 3.3, dans les dosimètres niobium est typiquement lié au fait que la mesure s'effectue sur une source radioactive solide. Il est évident que si le niobium est mesuré sous forme liquide, suite à une dissolution, ce phénomène est négligeable puisque les atomes de niobium sont alors très éparés et la probabilité d'interaction des photons émis par la décroissance des impuretés dans le niobium est extrêmement faible. Contrairement au niobium, le problème lié à la fluorescence dans les dosimètres rhodium n'a fait jusqu'ici l'objet d'aucune étude, notamment à cause de sa faible période.

### 5.3.1 Problématique liée au phénomène de fluorescence

L'importance de cet effet dans les dosimètres niobium a été déjà étudiée et des propositions de corrections émises ; elles reposent toutefois sur des calculs analytiques datant de 1971 mais peu de détails sont fournis sur la méthode et il n'y a pas de calcul d'incertitude. La correction de fluorescence dépend de l'activité de chaque impureté rapportée à celle de  $^{93m}\text{Nb}$  et il arrive que, quelques mois après la fin de l'irradiation des dosimètres, cette correction atteigne plus de 5 % sur la valeur d'activité. Les facteurs de correction de fluorescence apportés sur la mesure d'activité sont mal maîtrisés et si cette correction devient trop importante, la valeur de l'activité du dosimètre ne peut plus être certifiée en raison de l'incertitude sur la correction. La méthode actuelle est de laisser « refroidir » les dosimètres pendant une dizaine de mois, voire plus, avant de fournir une valeur d'activité. La plus grande partie des impuretés présentes ayant une durée beaucoup plus courte que celle de  $^{93m}\text{Nb}$ , il est donc possible d'attendre pour laisser décroître les impuretés. Cependant, dans certaines circonstances (expériences au réacteur OSIRIS à Saclay ou prochainement au Réacteur Jules Horowitz (RJH) à Cadarache par exemple), des résultats sont nécessaires un ou deux mois après la fin de l'irradiation. Par conséquent, il est important de déterminer à nouveau cette correction afin de limiter au maximum le délai d'attente avant les mesures mais aussi de la déterminer dans le cas des dosimètres rhodium, puisque comme on le verra dans le paragraphe 5.3.4, il est impossible d'attendre la décroissance des impuretés.

### 5.3.2 Correction de fluorescence

Chaque radionucléide n'a pas la même influence sur la mesure, cela dépend de l'énergie des émissions et de leur intensité, donc du schéma de décroissance de l'impureté. Chacune de ces impuretés donne lieu à un coefficient de fluorescence, qui selon son activité propre, influe sur

la correction de fluorescence. Actuellement la correction de fluorescence apportée au calcul de l'activité est définie ainsi :

$$C_{fluo} = \frac{F_{éch} - \sum_n C_n A_n}{F_{éch}} \quad (5.3)$$

Où  $F_{éch}$  est le flux sous  $4\pi$  des rayons XK du niobium sortant de l'échantillon mesuré, exprimé en  $s^{-1}$ ,  $C_n$  et  $A_n$  sont respectivement le coefficient de fluorescence et l'activité, en Bq, liés au radionucléide  $n$ , autre que le  $^{93m}\mathbf{Nb}$ .  $C_n$  est exprimé en  $s^{-1} \cdot \text{Bq}^{-1}$ , cela correspond à un nombre de rayons XK du niobium émis sur  $4\pi$  par becquerel d'activité du radionucléide  $n$ . Cette activité est obtenue par spectrométrie  $\gamma$  et à la date de la mesure du  $^{93m}\mathbf{Nb}$ . Pour un même échantillon, il y a ainsi deux mesures à effectuer, une en spectrométrie X et une autre en spectrométrie  $\gamma$ . Comme il a été précisé dans le paragraphe 5.3.1, des coefficients ont déjà été établis pour  $^{92m}\mathbf{Nb}$ ,  $^{94}\mathbf{Nb}$ ,  $^{95}\mathbf{Nb}$  et  $^{182}\mathbf{Ta}$  et ces valeurs sont présentées dans le tableau 5.3. À l'époque, les coefficients ont été calculés analytiquement et également déterminés expérimentalement [72]. Pour le calcul, il faut prendre en compte la probabilité d'émission des photons par l'impureté, ainsi que leurs probabilités d'interaction par effet photoélectrique dans le volume de niobium, d'émission d'un rayon XK de fluorescence et d'échappement de celui-ci dans la direction du détecteur. Tenir compte par un calcul analytique de tous ces phénomènes aléatoires est très complexe. Une formule qui détermine approximativement les coefficients de fluorescence a été développée, mais sa formulation est peu détaillée et elle ne semble pas prendre en compte l'absorption des rayons XK de fluorescence dans le volume du dosimètre. De plus, elle n'intègre pas non plus les interactions des électrons, celles-ci étant très complexes à déterminer. Le développement a été contrôlé ensuite par une méthode expérimentale à l'aide de sources radioactives en mesurant les effets des interactions des photons sur un volume de niobium et la même méthode a été appliquée pour essayer de tenir compte des interactions des électrons. Le but de notre étude est donc de déterminer à nouveau ces coefficients en profitant des nouvelles techniques disponibles, notamment du développement des codes de transport de particules dans la matière par méthode Monte Carlo. Dans le chapitre 4 a été présenté un outil permettant de simuler l'ensemble de la décroissance radioactive, PenNuc. Cet outil a été associé à GEANT4 dans le but de simuler l'effet des impuretés dans un volume de niobium pour vérifier les coefficients de fluorescence mais aussi dans un volume de rhodium pour les déterminer dans le cas des dosimètres rhodium. La méthode appliquée est simple, on obtient le coefficient de fluorescence pour un radionucléide  $n$  à partir de la simulation de la décroissance radioactive ainsi :

$$C_n = \frac{1}{\varepsilon_{simu}} \frac{N_P}{N_{déc}} \quad (5.4)$$

Où  $\varepsilon_{simu}$  est le rendement d'absorption totale simulé du détecteur,  $N_P$  est le nombre d'événements dans les pics XK du niobium ( $K\alpha_1$ ,  $K\alpha_2$ ,  $K\beta_1$ , ...) et  $N_{déc}$  est le nombre total de désintégrations radioactives simulées. Le rapport  $N_P/N_{déc}$  correspond donc aux flux de photons ayant interagi dans le détecteur pour une désintégration, et ainsi en divisant ce rapport par le rendement on obtient le flux sur  $4\pi$  sr de photons sortant du dosimètre pour une désintégration, ce qui correspond à la définition du coefficient de fluorescence. Toutefois, en procédant de cette manière, l'émission X est considérée comme isotrope. Or ce n'est pas le cas, puisque les dosimètres sont des bandes ou des disques métalliques et l'épaisseur de matériau traversé par les rayonnements n'est pas identique dans toutes les directions. Par conséquent, les coefficients de fluorescence qui sont calculés ne sont valides que pour un angle solide de mesure inférieur ou égal à celui de la simulation. Pour la simulation, la géométrie utilisée pour déterminer les coef-

ficients est celle de GENIX avant le second étalonnage, soit  $\Omega = 2,918.10^{-2}$  stéradian comme angle solide.

Impuretés	$^{92m}\text{Nb}$	$^{94}\text{Nb}$	$^{95}\text{Nb}$	$^{182}\text{Ta}$
Coefficients ( $\text{s}^{-1}.\text{Bq}^{-1}$ )	0,021	0,0055	0,0033	0,077

Tableau 5.3 – Coefficients de fluorescence déterminés en 1971

### 5.3.3 Cas des dosimètres niobium

Les dosimètres niobium utilisés par le LDCI pour la dosimétrie en réacteur sont des bandes, dont les dimensions sont  $7 \times 1 \times 0,02$  mm<sup>3</sup> environ. Cette géométrie de source est ainsi reprise dans la simulation sur GEANT4. Dans le cadre d’une comparaison internationale sur la mesure du niobium, des disques de diamètre d’environ 8 mm ont également été irradiés. Il est donc nécessaire de déterminer les coefficients de fluorescence dans le cas d’une telle géométrie. Les parties importantes du code GEANT4 de la simulation sont : la géométrie, la gestion de l’analyse, l’utilisation du fichier CASCADE, etc. En premier lieu, le fichier CASCADE est généré à partir du code PenNuc et d’un fichier (Ta-182.PenNuc.txt par exemple pour  $^{182}\text{Ta}$ ) regroupant les données nucléaires spécifiques au radionucléide. La simulation GEANT4 fait appel ensuite au fichier CASCADE, qui contient les informations sur les particules primaires de la simulation. Les résultats sont ensuite regroupés dans un fichier root et à l’aide d’une routine, un autre fichier plus facilement exploitable est généré.

#### Fichiers PenNuc

Pour pouvoir simuler la décroissance radioactive sur GEANT4 à partir de PenNuc, il est nécessaire d’obtenir les fichiers contenant les données nucléaires de chaque radionucléide considéré comme impureté :  $^{92m}\text{Nb}$ ,  $^{94}\text{Nb}$ ,  $^{95}\text{Nb}$ ,  $^{182}\text{Ta}$  et  $^{60}\text{Co}$ . Ce dernier n’avait pas été pris en compte dans les calculs de 1971 car il n’était jamais observé. Mais lors d’acquisitions de dosimètres niobium à la plateforme MADERE, il arrive parfois que le  $^{60}\text{Co}$  soit observé en spectrométrie  $\gamma$ .

Les fichiers de données pour PenNuc sont généralement disponibles sur le site du LNHB, dans la base des données recommandées. Cependant, pour apparaître dans cette base, un radionucléide doit avoir fait l’objet d’une évaluation par un spécialiste et son schéma de désintégration doit être équilibré (voir paragraphe 1.3.3). Le niobium-95, le tantale-182 et le cobalt-60 y sont présents et un fichier PenNuc est donc disponible, mais ce n’est pas le cas de  $^{92m}\text{Nb}$ , ni de  $^{94}\text{Nb}$ . Pour pouvoir simuler leur désintégration à l’aide de PenNuc, les fichiers pour les deux radionucléides ont dû être écrits à la main. Pour cela, il faut donc récupérer les données nucléaires à partir d’une autre source que le DDEP. Comme il a été précisé dans le chapitre 4, de nombreuses données sont requises pour l’écriture du fichier. Dans le cas de  $^{92m}\text{Nb}$  et de  $^{94}\text{Nb}$ , les données sur les noyaux fils, les voies de désintégrations et les niveaux et transitions  $\gamma$  ont été prises à partir des données ENSDF sur le site de l’AIEA. Les informations sur l’émission des électrons de conversion et de création de paires internes ont été déterminées à partir du code BrIcc (pour Band Raman Internal Conversion Coefficient), du fait du manque de détail dans les données ENSDF. Le code BrIcc permet de calculer les coefficients de conversion interne pour

chaque couche et sous-couche pour une transition  $\gamma$  à partir du numéro atomique du noyau fils, de l'énergie de la transition (et son incertitude) et de la multipolarité (et éventuellement du rapport de mélange  $\delta$  s'il y a un mélange de multipolarités). Le code BrIcc indique également les énergies des émissions des électrons et les informations sur la création de paires internes. Les intensités d'émission des électrons de conversion ont ensuite été déterminées avec la formule suivante (voir chapitre 1) :

$$I_{ceX} = \frac{\alpha_X}{1 + \alpha_t} P_\gamma = \alpha_X I_\gamma \text{ avec } X = K, L_1, L_2, L_3, M, \text{ etc.} \quad (5.5)$$

Où les  $\alpha_i$  sont les coefficients de conversion soit total ( $\alpha_t$ ) soit partiel ( $\alpha_X$ ),  $P_\gamma$  est la probabilité de la transition  $\gamma$  et  $I_\gamma$  est l'intensité d'émission  $\gamma$ . Les deux fichiers de données sur  $^{92m}\text{Nb}$  et  $^{94}\text{Nb}$  ainsi préparés sont présentés sur les figures 5.12 et 5.13. Dans le cas de  $^{92m}\text{Nb}$ , les intensités de création de paires ont été indiquées. Bien que très faibles, elles ne sont pas négligeables par rapport aux intensités d'émission des électrons de conversion.

```

PAR NB92M
AZP 92 ; 41
NDA 1
COM ***** Evaluation Date: 15/09/2012 *****
COM ----- Daughter Separator -----
DAU ZR92
DDE 1 ; 3 ; 10
Q 2141.385 ; 3.038
COM ----- Branch Separator -----
CK 0.000420628 ; 0.0000001196 ; 3 ; 74.7 ; 3.043 ; 0
CL1 0.0000080288 ; 0.0000000936 ; 3 ; 74.7 ; 3.043 ; 0
CM 0.0000019032 ; 0.0000000260 ; 3 ; 74.7 ; 3.043 ; 0
COM ----- Branch Separator -----
CK 0.022732248 ; 0.000947180 ; 2 ; 294.2 ; 3.043 ; 0
CL1 0.002988480 ; 0.000124534 ; 2 ; 294.2 ; 3.043 ; 0
CM 0.000679272 ; 0.000002879 ; 2 ; 294.2 ; 3.043 ; 0
COM ----- Branch Separator -----
BEP 0.00059000 ; 0.0030000 ; 1 ; 184.90 ; 3.040 ; 0
CK 0.84689920 ; 0.0423363 ; 1 ; 1206.9 ; 3.040 ; 0
CL1 0.10245690 ; 0.0051582 ; 1 ; 1206.9 ; 3.040 ; 0
CM 0.02303091 ; 0.0011484 ; 1 ; 1206.9 ; 3.040 ; 0
COM ----- Branch Separator -----
COM ----- Level Separator - T1/2 in seconds -----
LED 2066.66 ; 0.17 ; 9 ; 7.6E-13 ; 0.38E-13 ; 3
GA 0.000052 ; 0.000003 ; 1132.17 ; 0.14 ; 1
EK 0.00000002334800 ; 0.00000000139531 ; 1114.17 ; 0.14 ; 1
EL1 0.00000000247000 ; 0.00000000014708 ; 1129.64 ; 0.14 ; 1
EL2 0.00000000005772 ; 0.00000000000350 ; 1129.86 ; 0.14 ; 1
EL3 0.00000000005096 ; 0.00000000000319 ; 1129.95 ; 0.14 ; 1
EM 0.00000000044668 ; 0.00000000002651 ; 1131.74 ; 0.14 ; 1
EN 0.00000000006339 ; 0.00000000000376 ; 1132.12 ; 0.14 ; 1
EO 0.00000000000446 ; 0.00000000000026 ; 1132.16 ; 0.14 ; 1
EPC 0.00000000008684 ; 0.00000000000525 ; 110.17 ; 0.14 ; 1
COM ----- Level Separator - T1/2 in seconds -----
LED 1847.22 ; 0.18 ; 17 ; 9.6E-14 ; 1.0E-14 ; 2
GA 0.018 ; 0.001 ; 912.6 ; 0.2 ; 1
EK 0.00001303200 ; 0.00000075059 ; 894.60 ; 0.20 ; 1
EL1 0.00000139320 ; 0.00000007989 ; 910.07 ; 0.20 ; 1
EL2 0.00000002432 ; 0.00000000139 ; 910.29 ; 0.20 ; 1
EL3 0.00000001229 ; 0.00000000068 ; 910.38 ; 0.20 ; 1
EM 0.00000024786 ; 0.00000001423 ; 912.17 ; 0.20 ; 1
EN 0.00000003528 ; 0.00000000203 ; 912.55 ; 0.20 ; 1
EO 0.00000000252 ; 0.00000000014 ; 912.59 ; 0.20 ; 1
GA 0.0086 ; 0.0004 ; 1847.5 ; 0.3 ; 0
EK 0.000001431900 ; 0.000000069725 ; 1829.50 ; 0.30 ; 0
EL1 0.000000151446 ; 0.000000007365 ; 1844.97 ; 0.30 ; 0
EL2 0.000000002047 ; 0.000000000101 ; 1845.19 ; 0.30 ; 0
EL3 0.000000002141 ; 0.000000000105 ; 1845.28 ; 0.30 ; 0
EM 0.0000000026918 ; 0.000000001324 ; 1847.07 ; 0.30 ; 0
EN 0.000000003836 ; 0.000000000188 ; 1847.45 ; 0.30 ; 0
EO 0.000000000273 ; 0.000000000013 ; 1847.49 ; 0.30 ; 0
EPC 0.000002012400 ; 0.000000099721 ; 852.22 ; 0.30 ; 0
COM ----- Level Separator - T1/2 in seconds -----
LED 934.48 ; 0.10 ; 8 ; 5.0E-12 ; 4.0E-13 ; 1
GA 0.9915 ; 0.0004 ; 934.44 ; 0.10 ; 0
EK 0.0006871095000 ; 0.0000099188417 ; 916.44 ; 0.10 ; 0
EL1 0.0000724786500 ; 0.0000010910419 ; 931.91 ; 0.10 ; 0
EL2 0.0000022209600 ; 0.0000000396701 ; 932.13 ; 0.10 ; 0
EL3 0.0000019631700 ; 0.0000000297555 ; 932.22 ; 0.10 ; 0
EM 0.0000132960150 ; 0.0000001884614 ; 934.02 ; 0.10 ; 0
EN 0.0000018838500 ; 0.0000000297547 ; 934.39 ; 0.10 ; 0
EO 0.0000001308780 ; 0.0000000018846 ; 934.43 ; 0.10 ; 0

```

FIGURE 5.12 – Fichier de données PenNuc sur le  $^{92m}\text{Nb}$

## Résultats GEANT4

Les coefficients ont été calculés à partir du spectre obtenu par la simulation de la décroissance de chaque impureté. La figure 5.14 est un exemple de spectre obtenu pour  $^{182}\text{Ta}$  par la

```

PAR NB94
AZP 94 ; 41
NDA 1
COM ***** Evaluation Date: 01/01/2006 *****
COM ----- Daughter Separator -----
DAU M094
DDE 1 ; ; 2 ; 1
Q 2043.636 ; 1.809
COM ----- Branch Separator -----
BEM 1.0 ; ; 2 ; 469.916 ; 1.809 ; 1
COM ----- Branch Separator -----
COM ----- Branch Separator -----
COM ----- Level Separator - T1/2 in seconds -----
LED 1573.726 ; 0.03 ; 8 ; 5.0E-12 ; 7.0E-13 ; 2
GA 0.99814 ; ; 702.65 ; 0.06 ; 1
EK 0.001605009 ; 0.000023957 ; 682.65 ; 0.06 ; 1
EL1 0.000171068 ; 0.000002396 ; 699.78 ; 0.06 ; 1
EL2 0.000008534 ; 0.000000120 ; 700.02 ; 0.06 ; 1
EL3 0.000007207 ; 0.000000110 ; 700.13 ; 0.06 ; 1
EM 0.000033338 ; 0.000000499 ; 702.15 ; 0.06 ; 1
EN 0.000005031 ; 0.000000070 ; 702.59 ; 0.06 ; 1
EO 0.000000273 ; 0.000000004 ; 702.64 ; 0.06 ; 1
COM ----- Level Separator - T1/2 in seconds -----
LED 871.095 ; 0.018 ; 8 ; 2.77E-12 ; 6.0E-14 ; 1
GA 0.99892 ; ; 871.091 ; 0.018 ; 0
EK 0.0009379859 ; 0.0000139849 ; 851.090 ; 0.018 ; 0
EL1 0.0001000918 ; 0.0000013985 ; 868.230 ; 0.018 ; 0
EL2 0.0000038458 ; 0.0000000599 ; 868.470 ; 0.018 ; 0
EL3 0.0000032365 ; 0.0000000499 ; 868.570 ; 0.018 ; 0
EM 0.0000191793 ; 0.0000002997 ; 870.590 ; 0.018 ; 0
EN 0.0000028969 ; 0.0000000400 ; 871.030 ; 0.018 ; 0
EO 0.0000001604 ; 0.0000000023 ; 871.080 ; 0.018 ; 0

```

FIGURE 5.13 – Fichier de données PenNuc sur le  $^{94}\text{Nb}$

simulation de  $5 \cdot 10^8$  désintégrations (ce qui équivaut au nombre de désintégrations durant une acquisition de 50 000 s pour activité de 10 kBq).

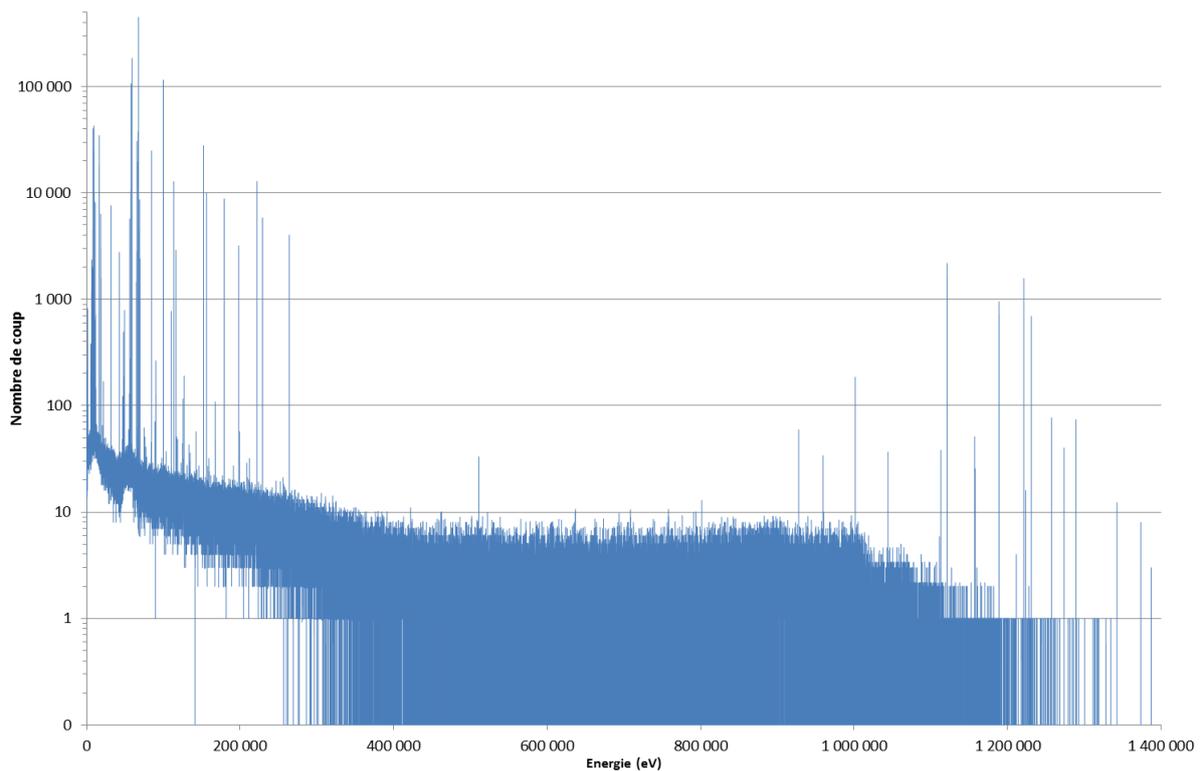


FIGURE 5.14 – Spectre de la décroissance du  $^{182}\text{Ta}$  simulé sur GEANT4 avec PenNuc

La figure 5.15 est un zoom sur une fenêtre d'énergie aux alentours des rayons XK du niobium. Les spectres obtenus pour chacune des impuretés est une somme de plusieurs spectres simulés à partir de graines différentes du générateur de nombres aléatoires. Par exemple, dans le cas de  $^{182}\text{Ta}$ , le spectre présenté sur la figure 5.14 est la somme de 500 simulations d'un million de désintégrations avec une graine différente pour chacune d'entre elles. Le même procédé a été appliqué pour les autres impuretés.



FIGURE 5.15 – Spectre de la décroissance du  $^{182}\text{Ta}$  simulé sur GEANT4 avec PenNuc - zoom sur les énergies du niobium

Le traitement des spectres est assez simple puisque les pics sont des fonctions de Dirac, dont le bruit de fond moyen a été soustrait. Le bruit de fond moyen est calculé comme la moyenne des événements présents autour de chaque pic, résultant de l'énergie déposée indirectement par les électrons (Bremsstrahlung) et de la diffusion Compton. Le tableau 5.4 présente l'ensemble des résultats obtenus ainsi que les incertitudes calculées selon les recommandations du GUM. La principale composante des incertitudes indiquées est donc l'incertitude statistique. Plusieurs épaisseurs de niobium ont été simulées, jusqu'à  $60\ \mu\text{m}$ , mais les résultats sont très proches, aux incertitudes statistiques près. Dans le tableau 5.5 sont indiqués les résultats retenus, comparés aux coefficients de fluorescence déterminés en 1971 ainsi que les écarts relatifs.

Dans le même temps, lorsqu'un photon de fluorescence du niobium interagit, une partie du code écrit dans la simulation de GEANT4 permet de remonter au processus ayant provoqué l'ionisation de l'atome de niobium (*ionisation électronique* par exemple pour un électron), phénomène précédant l'émission du rayon X de fluorescence. Le tableau 5.6 présente la proportion de différents processus d'ionisation dans le résultat des coefficients de fluorescence pour chacun des radionucléides considérés. On remarque que ce sont les électrons qui sont principalement responsables de l'effet de fluorescence dans les dosimètres niobium, mis à part le cas de  $^{182}\text{Ta}$ . Toutefois les rayons X issus du rayonnement de freinage des électrons qui interagissent par effet photoélectrique sont comptabilisés dans le processus « effet photoélectrique ». La contribution des électrons au phénomène de fluorescence des dosimètres est donc sans doute sous estimée.

**Le  $^{182}\text{Ta}$  :** Dans le cas de  $^{182}\text{Ta}$ , les présents résultats sont assez proches des valeurs calculées en 1971. L'écart peut être expliqué par le fait que des approximations ont été faites dans les calculs de 1971. Par exemple, le calcul a été effectué pour les principales émissions  $\gamma$  de

Impuretés		Coefficients partiels (s <sup>-1</sup> .Bq <sup>-1</sup> )	Incertitudes	Coefficients totaux (s <sup>-1</sup> .Bq <sup>-1</sup> )	Incertitudes
<sup>92m</sup> Nb	K <sub>α</sub>	0,00014889	0,00000952	0,00017088	0,00000992
	K <sub>β</sub>	0,00002198	0,00000280		
<sup>94</sup> Nb	K <sub>α</sub>	0,01003171	0,00017554	0,01188383	0,00018626
	K <sub>β</sub>	0,00185212	0,00006229		
<sup>95</sup> Nb	K <sub>α</sub>	0,00254981	0,00005371	0,00310008	0,00005795
	K <sub>β</sub>	0,00055027	0,00002178		
<sup>182</sup> Ta	K <sub>α</sub>	0,05418338	0,00059068	0,06465170	0,00060845
	K <sub>β</sub>	0,01046832	0,00014599		
<sup>60</sup> Co	K <sub>α</sub>	0,00686408	0,00010283	0,00821415	0,00010878
	K <sub>β</sub>	0,00135008	0,00003547		

Tableau 5.4 – Coefficients de fluorescence partiels et totaux déterminés à partir de la simulation GEANT4

Impuretés	Coefficients GEANT4 (s <sup>-1</sup> .Bq <sup>-1</sup> )	Coefficients 1971 (s <sup>-1</sup> .Bq <sup>-1</sup> )	Écart relatifs (%)
<sup>92m</sup> Nb	0,000171 (10)	0,021	> 10000
<sup>94</sup> Nb	0,0119 (2)	0,0055	-54
<sup>95</sup> Nb	0,00310 (6)	0,0033	6,5
<sup>182</sup> Ta	0,0647 (6)	0,077	19
<sup>60</sup> Co	0,00821 (11)	–	–

Tableau 5.5 – Résultats retenus pour les coefficients de fluorescence déterminés avec GEANT4 et comparés avec ceux calculés en 1971

Processus à l'origine de l'ionisation de la couche K de l'atome de niobium	<sup>92m</sup> Nb	<sup>94</sup> Nb	<sup>95</sup> Nb	<sup>182</sup> Ta	<sup>60</sup> Co
Ionisation électronique	95 %	85,5 %	80 %	19,9 %	85,5 %
Effet photoélectrique	1 %	13,2 %	18 %	79,9 %	13 %
Effet Compton	4 %	1,3 %	2 %	0,2 %	1,5 %

Tableau 5.6 – Part de chaque processus d'ionisation dans le résultat du calcul des coefficients de fluorescence pour chacune des impuretés

faible énergie (la raie à 60 keV) ou encore l'atténuation des rayons XK de fluorescence dans le dosimètre n'a pas été prise en compte. D'autre part, la part de fluorescence due aux électrons paraît ne pas avoir été considérée, alors que, comme on peut le constater dans le tableau 5.6, la fluorescence due à l'émission électronique représente environ 20 % du résultat final. La plus grande partie de l'émission de fluorescence provient de l'interaction par effet photoélectrique et une très faible part est due à l'effet Compton.

**Niobium-95 :** Comme pour <sup>182</sup>Ta, les valeurs récentes et anciennes pour <sup>95</sup>Nb sont comparables. En 1971, une approche théorique de la prise en compte de l'émission β avait été tentée à partir du calcul de rendements quantiques afin d'obtenir un rendement de photons Kα émis

par électron. L'énergie moyenne des électrons émis par  $^{95}\text{Nb}$  est d'environ 44 keV avec une énergie maximale de 160 keV. La probabilité qu'à de telles énergies les électrons ionisent la couche K est faible. Cependant, la production de rayons X par rayonnement de freinage est plus importante, et cela pourrait expliquer la part importante de l'effet photoélectrique dans la production de rayons X de fluorescence. En effet, dans le schéma de désintégration du  $^{95}\text{Nb}$ , il n'y a qu'une unique raie  $\gamma$  de 765,8 keV, le reste des émissions (deux raies  $\gamma$  et les rayons X du molybdène) est très faible, 0,15 % au total. À cette énergie, la probabilité d'interaction par effet photoélectrique est très faible. Prendre en compte le rayonnement de freinage dans des calculs analytiques est très complexe, voire impossible. Cette concordance entre les valeurs nouvelles et anciennes est donc surprenante compte tenu de l'importance de la radiation électronique dans l'effet de fluorescence des dosimètres niobium.

**Niobium-94m :** Dans le cas de  $^{94}\text{Nb}$ , la différence entre les deux valeurs est d'un facteur deux. Comme pour  $^{95}\text{Nb}$ , l'émission  $\beta$  avait été étudiée théoriquement et aussi expérimentalement. L'approche théorique ne changeait pas, et la vérification expérimentale avait été réalisée au moyen d'une source de  $^{90}\text{Sr}$ - $^{90}\text{Y}$  comme excitateur. Un facteur 5 entre les résultats expérimentaux et théoriques avait alors été constaté. Les données sur l'émission  $\beta$  en 1971, indiquait une émission d'énergie maximale de 610 keV dans le cas de  $^{94}\text{Nb}$  (aucune information sur l'énergie moyenne), tandis que les  $\beta$  émis par la source de  $^{90}\text{Sr}$ , ont une énergie maximale de 546 keV et moyenne de 196 keV. Les émissions diffèrent donc légèrement, d'autant plus que la forme du spectre d'émission est également différente. En effet, dans le cas de  $^{94}\text{Nb}$ , lors de la désintégration  $\beta$ , le nombre quantique du moment cinétique total du niveau initial est 6 et celui du niveau final est 4, sans changement de parité (6+ et 4+). Si on se réfère au tableau 1.1, cela correspond à une transition interdite non-unique d'ordre 2 ( $\Delta J = -2$  et  $\pi_i \pi_f = +1$ ). Pour le  $^{90}\text{Sr}$ , le nombre quantique du moment cinétique total du niveau initial est 0 et celui du niveau final est 2, avec un changement de parité (0+ et 2-). Dans la classification, cela correspond à une transition interdite unique d'ordre 1. Cette différence dans les données peut expliquer les écarts entre théorie et expérience.

De plus, les données sur  $^{94}\text{Nb}$  ont été actualisées depuis. Par exemple, une période d'environ  $2.10^6$  a était indiquée en 1971, alors qu'actuellement elle est de  $2,0.10^4$  a. Mais le changement le plus important concerne le spectre de l'émission  $\beta$  : à présent (ENSDF) l'énergie maximale de l'émission est de 471,5 keV avec une énergie moyenne de 145,8 keV. Cette différence peut expliquer en partie l'écart entre la valeur déterminée à partir de GEANT4 et l'ancienne valeur, au regard de l'importance des électrons dans le processus d'ionisation. Par comparaison avec  $^{95}\text{Nb}$ , leur part est plus importante du fait d'une énergie moyenne plus grande des électrons émis par  $^{94}\text{Nb}$  que celle des électrons émis par  $^{95}\text{Nb}$ . Dans le cas de ce dernier, la fluorescence due à l'interaction par effet photoélectrique par les rayons X de Bremsstrahlung semble plus importante que dans le cas de  $^{94}\text{Nb}$ . Cependant, une certaine réserve doit être prise à l'égard du résultat obtenu avec GEANT4 et PenNuc vis-à-vis de la façon de calculer la distribution énergétique de l'émission  $\beta$ . La transition est interdite non-unique d'ordre 2, mais sa distribution énergétique est calculée de la même manière qu'une transition interdite unique d'ordre 1. Il s'agit en réalité d'une approximation généralement effectuée, du fait notamment de la difficulté de calcul des spectres d'émissions  $\beta$ , à partir d'observations expérimentales et cette approximation consiste à considérer une transition interdite non-unique d'ordre  $n+1$  comme transition interdite unique d'ordre  $n$ , ce qui n'est pas toujours exact. Pour ces deux radionucléides,  $^{94}\text{Nb}$  et  $^{95}\text{Nb}$ , les électrons apportent une très forte contribution à l'émission de fluorescence, qui

est supérieure à 80 %. La considération de ces interactions est donc essentielle, néanmoins leur calcul théorique et la validation expérimentale sont très complexes.

**Cobalt-60 :** Jusqu'ici, le cobalt-60 ne faisait pas partie de la liste déjà établie des radionucléides induisant le phénomène de fluorescence dans les dosimètres niobium, puisqu'il n'avait jamais été observé. Il a toutefois été remarqué parfois lors de l'acquisition de dosimètres niobium par spectrométrie  $\gamma$ , sans que son origine puisse être bien établie. Le cobalt est présent en impureté dans les dosimètres mais seulement à  $3.10^{-4}$  ppm en masse, la formation de  $^{60}\text{Co}$  à partir de l'activation du cobalt stable présent dans le dosimètre paraît donc peu probable. Une autre explication pourrait être une contamination en cobalt stable par dépôt lors du découpage des dosimètres ou autre et  $^{60}\text{Co}$  se formerait ensuite par activation lors de l'irradiation. Le calcul du coefficient de fluorescence a tout de même été effectué de la même façon que pour les autres radionucléides, en considérant que  $^{60}\text{Co}$  est formé par activation par les neutrons du cobalt stable présent dans le niobium. Pour ce qui est de la contribution de chacun des processus à l'origine de l'ionisation d'un atome de niobium, le même constat peut être appliqué que pour  $^{94}\text{Nb}$  et  $^{95}\text{Nb}$ , ce sont les électrons qui en sont très majoritairement responsables.

**Niobium-92m :** Pour ce radioisotope du niobium, la différence entre l'ancienne valeur et celle obtenue avec GEANT4 est très importante, il y a un facteur 100 entre les deux. Les résultats obtenus par la simulation semblent indiquer que la contribution de  $^{92m}\text{Nb}$  dans la fluorescence des dosimètres niobium est négligeable, sauf si ce radionucléide est fortement activé lors de l'irradiation, ce qui est très peu plausible. Ce résultat très faible sur le coefficient de fluorescence paraît logique compte tenu des émissions de  $^{92m}\text{Nb}$  lors de sa désintégration. En effet, il s'agit d'une capture  $\varepsilon$  vers  $^{92}\text{Zr}$ , stable, et il émet donc principalement des rayons X et des électrons Auger caractéristiques du zirconium ainsi qu'un rayon  $\gamma$  de 934 keV, les autres étant très peu intenses (inférieurs à 1 %). Les rayons XK et les électrons Auger émis ont une énergie maximale de 17,955 keV qui est insuffisante pour ioniser la couche K du niobium (18,99 keV). Le rayon  $\gamma$  de 934 keV va quant à lui interagir principalement par effet Compton, dont la probabilité d'ionisation des couches électroniques proches du noyau est très faible ; la probabilité d'interaction par effet photoélectrique est très faible également. Il y a deux raies d'émission de particules  $\beta^+$ , dont la plus intense est de 0,06 %, et ce ne sont pas les émissions des électrons de conversion, également très faibles, qui apportent une forte contribution à la fluorescence. Le résultat obtenu en 1971 est surprenant car il indique une importante contribution de ce radionucléide, supérieure à celle de  $^{94}\text{Nb}$  et du  $^{95}\text{Nb}$ . Le coefficient avait été déduit à l'époque, à partir de l'observation des évolutions du rapport des pics des rayons XK du zirconium et des pics des rayons XK du niobium. L'influence de  $^{92m}\text{Nb}$  peut avoir été surestimée lors de cette analyse. Effectivement, les énergies des rayons XK des deux éléments sont très proches et si la résolution du détecteur ne permet pas une séparation correcte des pics, leur interférence peut en fausser le traitement.

L'ampleur des corrections sur l'activité en  $^{93m}\text{Nb}$  des dosimètres dépend de l'activité relative des impuretés (voir équation 5.3). Toutefois, on peut noter que  $^{182}\text{Ta}$  et  $^{94}\text{Nb}$  seront les plus gênants en cas d'une forte activation suite à une irradiation, de même que  $^{95}\text{Nb}$  dans une moindre mesure. L'impact de  $^{92m}\text{Nb}$  sur les mesures est négligeable, surtout dans le cas d'une faible activation neutronique.

## Cas d'autres impuretés

La présence d'autres radionucléides en impuretés pouvant gêner la mesure d'activité de  $^{93m}\text{Nb}$  a été identifiée en spectrométrie  $\gamma$ . En effet,  $^{92m}\text{Nb}$ ,  $^{94}\text{Nb}$ ,  $^{95}\text{Nb}$  et  $^{182}\text{Ta}$  sont visibles sur un spectre les jours suivant la fin d'une irradiation. Cependant, il existe des radionucléides n'émettant aucun ou peu de photons suite à une désintégration mais qui émettent des particules  $\beta^-$  et des électrons de conversion. Or, comme cela a été démontré précédemment, les électrons ont une influence notable sur la fluorescence des dosimètres niobium. Il est possible que de tels radionucléides soient activés lors de l'irradiation, puisque leur éventuelle présence n'a jamais été vérifiée.

**Le  $^{185}\text{W}$  :** Les différentes réactions possibles à partir du niobium ou des impuretés initialement présentes avant l'irradiation (tungstène, molybdène, tantale, zirconium, ...) sont présentées dans le paragraphe 3.2.1 et deux radionucléides peuvent être formés lors de l'irradiation et être encore présents pendant les mesures en spectrométrie de photons. Il s'agit de  $^{99}\text{Tc}$  et de  $^{185}\text{W}$  qui sont activés à partir du molybdène et du tungstène respectivement et n'émettent quasiment que des électrons. Une première approche pour déterminer si ces deux radionucléides sont activés, est un calcul grâce au code PEPIN à partir de flux neutroniques types du réacteur OSIRIS en cœur ou en périphérie et dans différentes configurations. Les activités estimées à 30 jours après la fin de l'irradiation sont présentées dans le tableau 5.7 et comparées aux autres impuretés ainsi qu'au  $^{93m}\text{Nb}$ .

Isotopes	En cœur du réacteur	En périphérie du cœur		
		Centre du panier	Face vers cœur	Face opposée cœur
	Activités (Bq)			
$^{92m}\text{Nb}$	$7,39.10^4$	$6,76.10^4$	$1,10.10^5$	$4,67.10^4$
$^{95}\text{Nb}$	$3,072.10^8$	$1,75.10^9$	$2,48.10^9$	$1,04.10^9$
$^{93m}\text{Nb}$	$1,01.10^7$	$8,48.10^6$	$1,48.10^7$	$4,80.10^6$
$^{182}\text{Ta}$	$2,51.10^3$	$6,69.10^2$	$4,81.10^2$	$9,01.10^2$
$^{185}\text{W}$	$8,38.10^3$	$2,32.10^4$	$3,21.10^4$	$1,56.10^4$
$^{94}\text{Nb}$	$1,13.10^5$	$2,42.10^5$	$2,83.10^5$	$1,92.10^5$
$^{99}\text{Mo}$	2,58	3,845	6,60	2,370
$^{99m}\text{Tc}$	2,50	3,725	6,39	2,296
$^{99}\text{Tc}$	$1,34.10^{-2}$	$1,53.10^{-2}$	$2,14.10^{-2}$	$1,09.10^{-2}$

Tableau 5.7 – Estimation des activités de  $^{99}\text{Tc}$  et de  $^{185}\text{W}$  30 jours après la fin d'irradiation en cœur ou en périphérie du réacteur OSIRIS

Le molybdène-99 et le technétium-99m ont été indiqués car la formation de  $^{99}\text{Tc}$  provient de l'activation du molybdène et de la décroissance de  $^{99}\text{Mo}$  et de  $^{99m}\text{Tc}$ . En premier lieu, on constate que  $^{99}\text{Tc}$  n'est que très faiblement activé (de l'ordre du mBq), ce qui est logique puisque sa période est supérieure à 200 000 ans. Il n'est donc pas nécessaire de continuer de s'intéresser à ce radionucléide, il faudrait que le coefficient de fluorescence soit supérieur à  $100 \text{ s}^{-1} \cdot \text{Bq}^{-1}$  pour compenser.

Par contre, le cas de  $^{185}\text{W}$  est plus intéressant puisque le rapport d'activité entre  $^{185}\text{W}$  et  $^{182}\text{Ta}$  est constamment d'un facteur dix au minimum, et ce dernier est l'impureté la plus gênante pour les mesures. Le coefficient de fluorescence a donc été calculé pour vérifier s'il peut apporter une contribution à la fluorescence dans les dosimètres niobium mais il a fallu également écrire un fichier PenNuc (figure 5.16) pour ce radionucléide puisqu'il ne fait pas partie de la table des données recommandées.

```

PAR w185
AZP 185 ; 74
NDA 1
COM ***** Evaluation Date: 01/01/2006 *****
COM ===== Daughter Separator =====
DAU RE185
DDE 1 ; ; 1 ; 2
Q 432.668 ; 0.860
COM ----- Branch Separator -----
BEM 0.00072143329 ; 0.00003000000 ; 1 ; 307.310 ; 0.90 ; -1
COM ----- Branch Separator -----
BEM 0.99928 ; 0.00003 ; 0 ; 432.668 ; 0.860 ; 0
COM ----- Level Separator - T1/2 in seconds -----
LED 125.358 ; 0.003 ; 9 ; 1.02E-11 ; 1.5E-12 ; 1
GA 0.00019617391 ; 0.00000700000 ; 125.358 ; 0.003 ; 0
EK 0.00042962086 ; 0.00001714617 ; 53.680 ; 0.003 ; 0
EL1 0.00006218713 ; 0.00000241776 ; 112.830 ; 0.003 ; 0
EL2 0.00000867089 ; 0.00000043600 ; 113.400 ; 0.003 ; 0
EL3 0.00000292299 ; 0.00000027052 ; 114.820 ; 0.003 ; 0
EM 0.00001700828 ; 0.00000065622 ; 122.480 ; 0.003 ; 0
EN 0.00000411965 ; 0.00000016585 ; 124.750 ; 0.003 ; 0
EO 0.00000068269 ; 0.00000002618 ; 125.280 ; 0.003 ; 0
EP 0.00000004689 ; 0.00000000184 ; 125.350 ; 0.003 ; 0

```

FIGURE 5.16 – Fichier de données PenNuc pour  $^{185}\text{W}$

Le tableau 5.8 présente le résultat obtenu pour  $^{185}\text{W}$  avec les coefficients des autres impuretés. Son coefficient de fluorescence a une valeur comparable à celui des autres radionucléides et peut donc avoir une influence sur la mesure d'activité des dosimètres niobium. Cependant, son activation doit être vérifiée expérimentalement et s'il elle est effective lors de l'irradiation, la valeur de l'activité doit pouvoir être déterminée par une mesure.

Impuretés	Coefficients ( $\text{s}^{-1} \cdot \text{Bq}^{-1}$ )
$^{92m}\text{Nb}$	0,000171 (10)
$^{94}\text{Nb}$	0,0119 (2)
$^{95}\text{Nb}$	0,00310 (6)
$^{182}\text{Ta}$	0,0647 (6)
$^{60}\text{Co}$	0,00821 (11)
$^{185}\text{W}$	0,00956 (13)

Tableau 5.8 – Résultats retenus pour les coefficients de fluorescence

**Niobium-93m :** Bien que l'énergie des rayons X émis par  $^{93m}\text{Nb}$  soit trop faible pour ioniser les atomes de niobium, les électrons de conversion L et des couches électroniques supérieures ont une énergie suffisantes et une forte intensité ( $> 80\%$ ). Ainsi, il est intéressant de vérifier que  $^{93m}\text{Nb}$  n'a pas une influence sur lui-même et de déterminer ce que l'on pourrait appeler alors une correction d'auto-fluorescence. En effet, il ne peut s'agir d'un coefficient de fluorescence comme dans le cas des autres radionucléide mais d'une correction directement applicable au calcul d'activité, une fois la contribution des autres radionucléides déduite. Pour pouvoir déterminer cette correction par GEANT4, il faut séparer les rayons XK du niobium provenant directement de la décroissance de  $^{93m}\text{Nb}$  simulée grâce à PenNuc, des rayons XK du niobium issus de la

fluorescence. Il existe différentes bibliothèques pour les données atomiques et nucléaires, et leur choix d'utilisation se fait au gré des auteurs des codes de transport de particules. Concernant la relaxation atomique, GEANT4 utilise comme librairie *EADL* (*Evaluated Atomic Data Library*), tandis que PenNuc utilise les données du *DDEP*. Or, il se trouve que les énergies des rayons X caractéristiques de chacun des éléments diffèrent légèrement entre les deux banques de données. Ainsi, les énergies des rayons XK émis directement par  $^{93m}\text{Nb}$ , données de PenNuc (DDEP), ont une énergie différente de celle des rayons XK provenant de la fluorescence du niobium, données GEANT4 (EADL). Cette incohérence entre les données fondamentales nous a permis de séparer convenablement la contribution des phénomènes (désintégration radioactive et fluorescence) dans l'émission des rayons XK du niobium. Une première simulation de la décroissance de  $^{93m}\text{Nb}$  a été lancée. Puisque les rayons X n'ont pas l'énergie suffisante, la contribution à la fluorescence par les photons a été coupée pour accélérer le temps de calcul de la simulation. Un premier résultat fournit une correction de l'ordre de  $10^{-4}$ , de fait le phénomène d'auto-fluorescence apparaît comme négligeable. Par soucis de vérification, une seconde simulation d'environ 400 millions de désintégrations a été lancée. Le spectre de cette simulation est présenté sur la figure 5.17.

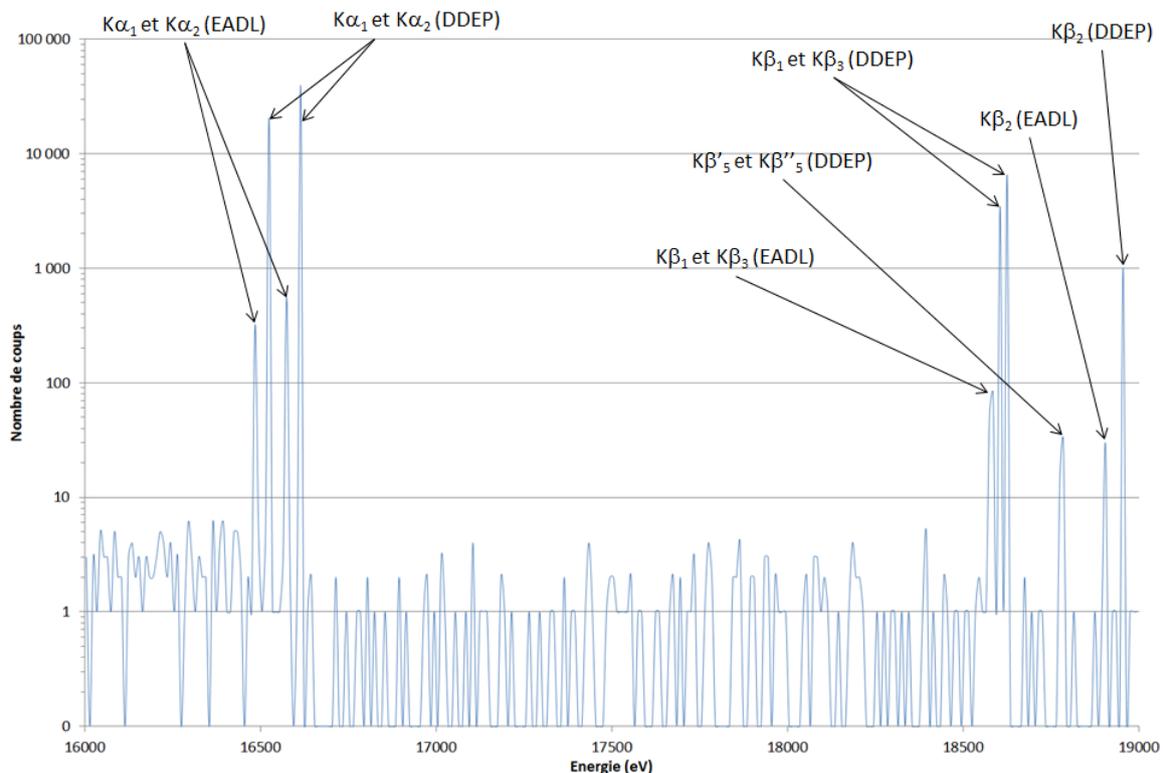


FIGURE 5.17 – Spectre de la décroissance de  $^{93m}\text{Nb}$  simulé sur GEANT4 avec PenNuc

La correction d'auto-fluorescence correspond au rapport de la somme des événements dans les pics du rayonnement de fluorescence du niobium (EADL) et de la somme des événements dans les pics du niobium (EADL et DDEP). Le résultat obtenu est très différent du premier, cette fois-ci la correction trouvée est de  $1,46 \cdot 10^{-2}$ , soit environ un facteur 100 par rapport au premier essai. Les fichiers de la simulation de GEANT4 ont alors été examinés afin de déceler une éventuelle erreur. Il s'avère que la seule différence entre les deux simulations est que la contribution des photons n'a pas été enlevée lors du second essai. Ces deux résultats sont

très intéressants et indiquent que les rayons X issus du rayonnement de freinage apportent une forte contribution dans la fluorescence et l'auto-fluorescence des dosimètres niobium. Par conséquent,  $^{93m}\text{Nb}$  contribue à la fluorescence des dosimètres niobium, ce qui constitue un effet insoupçonné jusqu'à présent, et une correction de 1,46 % doit systématiquement être apportée lors de chaque mesure de leur activité.

## Résultats expérimentaux

Les coefficients de fluorescence reflètent l'influence d'un radionucléide sur la mesure d'activité de  $^{93m}\text{Nb}$ . Ces coefficients ont été déterminés par simulation de Monte Carlo mais il est nécessaire de pouvoir les valider par des mesures expérimentales. Pour cela, il faut avoir à disposition des dosimètres niobium qui présentent encore suffisamment d'activité en  $^{93m}\text{Nb}$  ainsi que pour les autres radionucléides, ce qui n'est pas le cas, le LDCI n'a en stock que d'anciens dosimètres n'ayant plus les activités requises pour des mesures correctes. Toutefois, dans le cadre de l'European Working Group on Reactor Dosimetry (EWGRD), une comparaison internationale sur la mesure d'activité des dosimètres niobium a eu lieu fin 2017 - début 2018, et des dosimètres niobium ont été irradiés en supplément pour le LNHB dans l'optique d'effectuer des mesures expérimentales qui permettraient de valider les coefficients de fluorescence. Cette comparaison survenant trop tardivement, les données acquises seront insuffisantes pour figurer dans ce mémoire de thèse mais la démarche expérimentale est tout de même présentée.

**Mesure par suivi de décroissance :** Les impuretés contribuent à la mesure en provoquant la fluorescence du niobium et donc un flux de rayons XK caractéristiques de cet élément, induisant une activité fictive en  $^{93m}\text{Nb}$ . Cette activité supplémentaire ne décroît pas de la même manière que celle de  $^{93m}\text{Nb}$ , puisqu'elle est provoquée par les impuretés, elle décroît avec leur propre période. Cependant, les impuretés n'ont pas toutes la même influence, ni la même période. Une approche pour détacher expérimentalement la contribution de  $^{92m}\text{Nb}$ ,  $^{94}\text{Nb}$ ,  $^{95}\text{Nb}$  et  $^{182}\text{Ta}$  est de mesurer l'évolution de l'activité de  $^{93m}\text{Nb}$  par rapport à celle de ces différentes impuretés, donc d'effectuer des mesures par spectrométrie X et  $\gamma$  à différentes dates. La période est d'environ 10 jours pour  $^{92m}\text{Nb}$ , 35 jours pour  $^{95}\text{Nb}$  et 115 jours pour  $^{182}\text{Ta}$ . Les valeurs de ces périodes sont assez éloignées les unes des autres,  $^{92m}\text{Nb}$  aura disparu en premier alors que  $^{95}\text{Nb}$  et  $^{182}\text{Ta}$  auront encore une activité suffisante pour être mesurée ; de même pour  $^{95}\text{Nb}$  qui disparaîtra avant  $^{182}\text{Ta}$ . Selon cette démarche, il est possible de déduire la contribution de chacune de ces trois impuretés, à condition de s'assurer avant tout de celles de  $^{94}\text{Nb}$  et de  $^{93m}\text{Nb}$  sur lui-même et de confirmer, ou non, la présence de  $^{185}\text{W}$  suite à une irradiation ainsi que sa contribution sur la mesure d'activité. Contrairement à  $^{92m}\text{Nb}$ ,  $^{95}\text{Nb}$  et  $^{182}\text{Ta}$ , dont on peut suivre l'influence par une série de mesures en spectrométrie X et  $\gamma$ , il n'est pas possible d'appliquer la même démarche dans le cas de  $^{94}\text{Nb}$  et de  $^{93m}\text{Nb}$ .

**Mesure par dissolution :** Après un temps suffisamment long, seuls  $^{94}\text{Nb}$  et  $^{93m}\text{Nb}$  sont encore observés durant une mesure par spectrométrie. Il existe un protocole permettant de dissoudre le niobium à partir d'acide fluorhydrique et nitrique, le transformant à l'état liquide. Ainsi, le phénomène de fluorescence disparaît, puisque les photons et électrons émis ont une probabilité négligeable d'interagir avec un atome de niobium, la solution finale étant constituée principalement de molécules d'eau. En comparant une mesure d'un dosimètre niobium à l'état solide avec, après dissolution, une mesure à l'état liquide, il serait en théorie possible d'en

déduire l'influence de  $^{94}\text{Nb}$  et de  $^{93m}\text{Nb}$  sur la mesure d'activité par observation d'un écart relatif entre les deux valeurs d'activité. Cependant, l'influence de  $^{93m}\text{Nb}$  recherchée est d'environ 1,5 % et tout au plus 1 % dans le cas de  $^{94}\text{Nb}$ . L'écart entre les deux mesures d'activité sera probablement compris dans les incertitudes de mesure, et il risque d'être impossible d'affirmer si cet écart provient effectivement du phénomène de fluorescence des dosimètres. Toutefois, en répétant la même mesure plusieurs fois avec différents dosimètres, si le même écart relatif est constamment observé, cela pourrait confirmer que celui-ci est bien dû à la fluorescence et une contribution expérimentale des deux radionucléides pourrait en être déduite. Pour déterminer uniquement celle de  $^{93m}\text{Nb}$  sur sa propre mesure, il conviendrait d'irradier plusieurs dosimètres niobium sous un filtre à neutron thermique. De ce fait, seuls les radionucléides activés par les neutrons rapides seront présents en fait d'irradiation, c'est-à-dire  $^{93m}\text{Nb}$  et  $^{92m}\text{Nb}$ . Les autres seront tout de même un peu activés, mais en quantité très faible. Le niobium-94 sera tout de même faiblement présent, mais par application de la même démarche décrite précédemment sur  $^{93m}\text{Nb}$ , il serait possible de déterminer une valeur expérimentale de la correction d'auto-fluorescence et ainsi de remonter à une valeur expérimentale du coefficient de fluorescence de  $^{94}\text{Nb}$ . Une fois ces deux contributions isolées, il sera possible de déduire les valeurs expérimentales des coefficients de fluorescence pour les autres radionucléides :  $^{92m}\text{Nb}$ ,  $^{95}\text{Nb}$  et  $^{182}\text{Ta}$ .

**Cas du tungstène-185 :** La contribution de ces trois derniers radionucléides pourra être déterminée expérimentalement seulement si celle de  $^{185}\text{W}$  peut être isolée et vérifiée. En premier lieu, il faudrait confirmer sa présence suite à une irradiation, puisqu'elle n'est que théorique pour le moment. Cependant, la seule raie d'émission  $\gamma$  est très peu intense ( $< 0,02\%$ ) et il n'existe qu'une seule émission électronique ( $\beta^-$ ) dont l'énergie moyenne est proche d'autres émissions des radionucléides présents dans les dosimètres. Il semble donc impossible de le discerner par spectrométrie  $\beta$ . Un dosimètre niobium a toutefois été mesuré en spectrométrie  $\gamma$  pour essayer de mettre en évidence la présence de  $^{185}\text{W}$ , mais sans succès comme on peut le voir sur la figure 5.18.

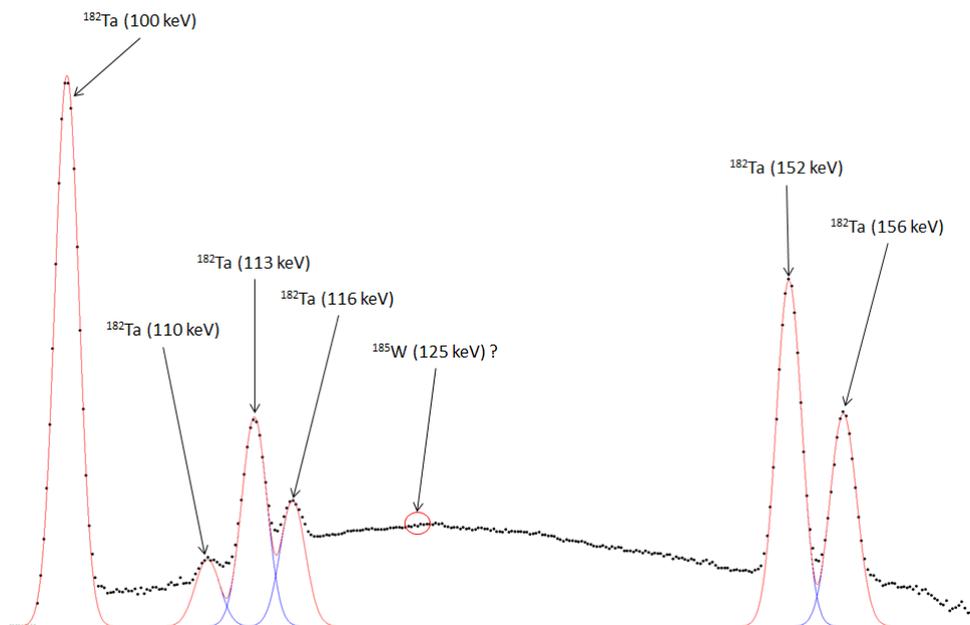


FIGURE 5.18 – Zoom sur un spectre dosimètre niobium entre 100 et 160 keV

La raie d'émission de 116 keV de  $^{182}\text{Ta}$  a une intensité d'un peu moins de 0,5 %, soit un facteur vingt fois supérieur à la raie de  $^{185}\text{W}$  recherchée. De plus, cette dernière se situe sur ce qui semble être une zone d'énergie préférentielle de rétrodiffusion, compliquant sa détection. Et la forte présence de  $^{182}\text{Ta}$  semble également perturber cette mesure, en contribuant à la diffusion. Si le  $^{185}\text{W}$  est effectivement présent, il faut trouver une autre méthode que la spectrométrie  $\gamma$  ou  $\beta$ , qui ne semble pas avoir la sensibilité suffisante.

### 5.3.4 Cas des dosimètres rhodium

Les dosimètres rhodium utilisés par le LDCI pour la dosimétrie en réacteur sont des disques, de 8 mm de diamètre et 50  $\mu\text{m}$  d'épaisseur environ. Cette géométrie de source est ainsi reprise dans la simulation sur GEANT4 et la démarche suivie pour le niobium a été adaptée au cas des dosimètres rhodium. De même, le fichier CASCADE est généré à partir du code PenNuc et d'un fichier regroupant les données nucléaires spécifiques au radionucléide. La simulation GEANT4 fait appel ensuite au fichier CASCADE, qui contient les informations sur les particules primaires de chaque simulation. À notre connaissance, il n'existe aucune étude sur l'influence éventuelle d'impuretés dans les dosimètres rhodium. Une récente mesure en spectrométrie  $\gamma$  a cependant mis en évidence la présence de  $^{192}\text{Ir}$  et de  $^{194}\text{Ir}$  dans les dosimètres rhodium. L'ensemble des radionucléides pouvant être formés lors de l'irradiation et pouvant être encore présents lors des mesures a été étudié comme dans le cas des dosimètres niobium, pour vérifier l'éventuelle activation de radioisotopes tels que  $^{185}\text{W}$ . Les dosimètres rhodium provenant du lot utilisé ont une pureté très élevée (99,997 %) avec seulement deux impuretés, le palladium et l'iridium. Aucun isotope radioactif du palladium potentiellement activé n'a été observé par spectrométrie  $\gamma$ ; il n'en existe pas qui émettent uniquement des électrons et les autres isotopes du rhodium ont une durée de vie très courte devant celle de  $^{103m}\text{Rh}$ . Finalement, seuls  $^{192}\text{Ir}$  et  $^{194}\text{Ir}$  sont donc présents lors des mesures et peuvent perturber celles-ci. L'auto-fluorescence induite par  $^{103m}\text{Rh}$  doit être également examinée.

#### Fichiers PenNuc

Les deux radioisotopes de l'iridium,  $^{192}\text{Ir}$  et  $^{194}\text{Ir}$  font partie de la table des données recommandées, un fichier PenNuc est donc disponible, mais ce n'est pas le cas de  $^{103m}\text{Rh}$ . Le fichier pour ce dernier radionucléide a donc été écrit à la main en prenant comme modèle celui de  $^{93m}\text{Nb}$ , et à partir des données ENSDF et du calcul des coefficients de conversion effectué avec le code BrIcc. Le fichier préparé pour  $^{103m}\text{Rh}$  est présenté dans la figure 5.19.

```

PAR RH103M
AZP 103 ; 45
NDA 1
COM ***** Evaluation Date: 02/10/2013 *****
COM ===== Daughter Separator =====
DAU RH103
DDE 1 ; ; 1 ; 1
Q 39.753 ; 0.006
MS 0 ; 0 ; 1 ; 0 ; 0 ; 0
COM ----- Branch Separator -----
COM ----- Branch Separator -----
COM ----- Level Separator - T1/2 in seconds -----
LED 39.753 ; 0.006 ; 8 ; 3.367E3 ; 3.6E-1 ; 1
GA 0.00070 ; 0.00002 ; 39.753 ; 0.006 ; 0
EK 0.0987 ; 0.0045 ; 16.533 ; 0.006 ; 0
EL1 0.0084 ; 0.0035 ; 36.341 ; 0.006 ; 0
EL2 0.2961 ; 0.0094 ; 36.607 ; 0.006 ; 0
EL3 0.4284 ; 0.0161 ; 36.749 ; 0.006 ; 0
EM 0.1498 ; 0.0055 ; 39.250 ; 0.006 ; 0
EN 0.0219 ; 0.0008 ; 39.706 ; 0.006 ; 0
EO 0.000016 ; 0.000006 ; 39.750 ; 0.006 ; 0

```

FIGURE 5.19 – Fichier de données PenNuc sur le  $^{103m}\text{Rh}$

## Résultats GEANT4

Comme dans le cas des dosimètres niobium, les coefficients ont été calculés à partir du spectre obtenu par la simulation de nombreuses désintégrations radioactives. Le tableau 5.9 présente l'ensemble des coefficients calculés dans le cas des dosimètres rhodium ainsi que leurs incertitudes, les résultats retenus pour les deux radioisotopes de l'iridium sont indiqués dans le tableau 5.10. Les valeurs des coefficients de fluorescence sont assez élevées, comparées à celles qui ont été calculées pour  $^{93m}\text{Nb}$ . Une forte activité par rapport à celle de  $^{103m}\text{Rh}$  n'est donc pas nécessaire pour induire une correction de fluorescence notable. Jusqu'à présent,  $^{192}\text{Ir}$  et  $^{194}\text{Ir}$  n'ont jamais fait l'objet de mesure d'activité ; il n'est donc pas possible d'avoir un aperçu de l'ordre de grandeur des éventuelles corrections à apporter. Enfin, comme dans le cas des dosimètres niobium, une correction d'auto-fluorescence a également été déterminée ; sa valeur est de  $1,1 \cdot 10^{-2}$ , soit une correction systématique de 1,1 % sur la mesure d'activité des dosimètres rhodium.

Impuretés		Coefficients partiels ( $\text{s}^{-1} \cdot \text{Bq}^{-1}$ )	Incertitudes	Coefficients totaux ( $\text{s}^{-1} \cdot \text{Bq}^{-1}$ )	Incertitudes
$^{192}\text{Ir}$	$\text{K}_\alpha$	0,02986327	0,00034427	0,03622973	0,00034427
	$\text{K}_\beta$	0,00636646	0,00010068		
$^{194}\text{Ir}$	$\text{K}_\alpha$	0,01882980	0,00023228	0,02296686	0,00023229
	$\text{K}_\beta$	0,00413707	0,00007526		

Tableau 5.9 – Coefficients de fluorescence partiels et totaux déterminés à partir de la simulation GEANT4

Impuretés	Coefficients ( $\text{s}^{-1} \cdot \text{Bq}^{-1}$ )
$^{192}\text{Ir}$	0,0362 (3)
$^{194}\text{Ir}$	0,0230 (2)

Tableau 5.10 – Résultats retenus pour les coefficients de fluorescence dans le cas des dosimètres rhodium

## Application expérimentale

Le cas du rhodium est différent du niobium, puisque  $^{103m}\text{Rh}$  a une période radioactive bien plus courte. Le cas est plus simple, puisque  $^{103m}\text{Rh}$  aura disparu, tandis que les deux autres radionucléides seront encore présents. Il est donc possible d'observer directement l'émission de photons X de fluorescence provoquée par les deux isotopes de l'iridium et, comme  $^{192}\text{Ir}$  a une période bien plus longue que  $^{194}\text{Ir}$ , respectivement 73,827 jours et 19,3 heures, les contributions individuelles peuvent être quantifiées.

## Conclusion

Les travaux présentés dans ce chapitre ont porté sur trois phénomènes cruciaux concernant la mesure de rayons X émis par une source radioactive sous forme solide : le transfert de rendement, la diffusion et la correction de fluorescence.

Généralement, le transfert de rendement est déterminé par des logiciels, comme ETNA, qui calculent cette correction analytiquement, les méthodes Monte Carlo demandant un temps plus conséquent pour obtenir un résultat qui est, toutefois, plus précis. Des valeurs de transfert de rendement ont été déterminées pour la géométrie des dosimètres niobium et rhodium à partir de simulations sur PENELOPE, puis elles ont été comparées aux valeurs obtenues à partir d'ETNA pour des géométries identiques. Les résultats ainsi calculés sont très similaires, dont l'explication provient du faible volume des dosimètres. Les corrections calculées sont importantes (entre 12 et 50 %), et il est recommandé d'utiliser les valeurs de PENELOPE, plus précises que celles obtenues avec ETNA. Ce dernier peut être utilisé en première approche pour obtenir des résultats sommaires, pour ensuite être confirmé par des calculs par méthode Monte Carlo.

Les études menées sur la diffusion en basse énergie ont mis en évidence les écarts entre les différentes méthodes de traitement des spectres, traitement qui dépend fortement de l'appréciation de l'expérimentateur. Une nouvelle méthode de traitement de ce phénomène a été proposée, faisant apparaître un nouveau facteur de correction à apporter dans la mesure d'activité et nécessitant l'emploi des méthodes Monte Carlo, mais qui permettrait un calcul plus juste de l'activité de l'échantillon mesuré. Cependant, une étude expérimentale comprenant une comparaison avec les méthodes prises en compte, ou non, du phénomène de diffusion dans le traitement des pics n'a pu être menée, par manque de temps.

Le calcul de la correction de fluorescence dans les dosimètres niobium et rhodium était un point critique de cette thèse. Jusqu'à présent, des coefficients de fluorescence, déterminés il y a presque 50 ans et mal maîtrisés, car d'origine incertaine, étaient utilisés. Ceux-ci rendaient compte d'un phénomène complexe à appréhender et à calculer avec les moyens de l'époque. Ils ont donc été recalculés à l'aide d'outils Monte Carlo, mais devront toutefois être confirmés par une approche expérimentale, dont une esquisse a été proposée. La différence d'énergie, et donc d'absorption dans le dosimètre, entre les différentes émissions X impose d'appliquer une correction individuelle pour chacune d'entre elles, approche rendue possible par les simulations Monte Carlo. Toutefois, les besoins de précision ne nécessitent pas un traitement individuel de toutes les raies XK ( $K\alpha_1$ ,  $K\alpha_2$ ,  $K'\beta_1$ , etc.), la différence d'énergie entre les raies subalternes et les raies  $K\alpha$  et  $K\beta$  est très faible. En revanche, comme pour le transfert de rendement, il est recommandé de traiter la correction de fluorescence séparément pour les raies  $K\alpha$  et  $K\beta$ , contrairement à ce qu'il était possible de réaliser jusqu'à maintenant.



# Chapitre 6

## Données fondamentales et schémas de désintégration

Les données du schéma de désintégration, en particulier les intensités d'émission X, de  $^{93m}\text{Nb}$  et  $^{103m}\text{Rh}$  sont les principales composantes de l'incertitude sur les mesures d'activité des dosimètres niobium et rhodium. Comme dans le cas de nombreux radionucléides, les intensités d'émission photonique de  $^{93m}\text{Nb}$  et  $^{103m}\text{Rh}$  n'ont pas fait l'objet de nombreuses mesures expérimentales. En effet, le plus souvent, leurs valeurs dérivent de l'équilibrage du schéma de désintégration et à partir des données fondamentales nucléaires et atomiques de l'élément : coefficients de conversion, rapports d'embranchement, rendement de fluorescence, etc. Plusieurs expériences ont été menées pour fournir de nouvelles données expérimentales : d'une part pour les rendements de fluorescence K des deux éléments et, d'autre part, pour les intensités d'émission X de  $^{103m}\text{Rh}$  avec deux approches différentes, l'une à partir de l'irradiation d'une cible de rhodium, l'autre à partir d'une solution de  $^{103}\text{Pd}$  et d'une séparation chimique. Au cours de ces mesures, quelques informations supplémentaires ont également été recueillies pour  $^{103}\text{Pd}$ . Ces expériences sont décrites dans ce chapitre et l'influence de ces résultats sur les schémas de désintégration de  $^{103m}\text{Rh}$  est discutée.

### 6.1 Mesure des rendements de fluorescence K

Dans les tables de données recommandées, les intensités d'émission X du niobium et du rhodium sont déterminées à partir des probabilités de transition gamma, des coefficients de conversion interne et des rendements de fluorescence. Cependant, les valeurs publiées des rendements de fluorescence sont dispersées et basées sur d'anciennes expériences. En effet, il y a des différences notables entre les données recommandées couramment utilisées et les nouvelles valeurs mesurées tirant profit des approches instrumentales aujourd'hui disponibles. Il a donc été décidé d'effectuer les mesures des rendements de fluorescence K,  $\omega_K$ , du niobium et du rhodium en utilisant un rayonnement monochromatique au synchrotron SOLEIL, afin d'obtenir des valeurs avec la plus faible incertitude possible. L'expérience a été effectuée en deux étapes : premièrement les coefficients d'atténuation des deux matériaux ont été mesurés à l'aide de procédures déjà optimisées pour des mesures similaires. Dans un second temps, les rendements de fluorescence ont été déterminés en utilisant une configuration expérimentale où la cible est installée à 45° du rayonnement incident et du détecteur.

### 6.1.1 Description de SOLEIL et de la ligne de métrologie

Le principe de fonctionnement d'un synchrotron est présenté sur la figure 6.1. Sur SOLEIL, les électrons sont tout d'abord accélérés sur un accélérateur linéaire de 16 mètres de long (le linac) où ils atteignent une énergie de 100 MeV. Ils sont ensuite dirigés vers un premier anneau (le booster), qui porte l'énergie des électrons à la valeur de fonctionnement du synchrotron, soit 2,75 GeV. Ils sont ensuite injectés dans un second anneau (l'anneau de stockage) où, grâce à des dispositifs magnétiques, leur trajectoire est déviée et ils perdent de l'énergie sous forme de rayonnement synchrotron, ce rayonnement est « blanc » car il couvre continûment le spectre électromagnétique de l'infrarouge aux rayons X durs. Le faisceau de photons, émis tangentiellement à la trajectoire des électrons) est ensuite dirigé par des systèmes optiques vers les différentes lignes de lumière où les utilisateurs du synchrotron peuvent réaliser leurs expériences. SOLEIL comporte de nombreuses lignes de lumière destinées à différentes applications. Chaque ligne de lumière du synchrotron est séparée en trois parties :

- une cabane optique : composée de dispositifs optiques pour préparer et mettre en forme le faisceau ;
- une cabane d'expérience : où l'utilisateur de la ligne installe ses échantillons et utilise le faisceau ;
- une station de travail : où l'utilisateur gère la ligne.

Les mesures des rendements de fluorescence ont été effectuées sur la ligne METROLOGIE. Celle-ci est composée de deux branches utilisables simultanément en exploitant la divergence horizontale du faisceau issu d'un aimant de courbure. La branche X-UV est obtenue en déviant horizontalement une partie du faisceau à l'aide d'un miroir sphérique placé en tête de ligne, elle permet de sélectionner des énergies comprises entre 30 eV et 2 keV. La partie du faisceau non déviée alimente la branche X-Durs où les énergies sont comprises entre 100 eV et 35 keV. Pour couvrir leur plage d'énergie spécifique, chaque branche est en outre équipée de plusieurs systèmes de sélection en énergie. Les seuils en énergie de la couche K du niobium et du rhodium étant respectivement à 19,0 et 23,2 keV, c'est sur la branche X-Durs que les mesures ont été effectuées.

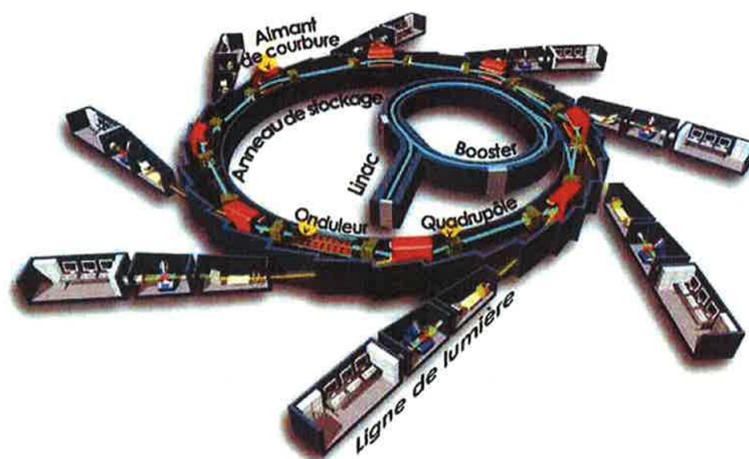


FIGURE 6.1 – Vue d'ensemble d'un synchrotron

La figure 6.2 présente un schéma de l'ensemble des éléments de la cabane optique de la

branche X-Durs, sauf le miroir plan courbable qui est situé dans la cabane d'expérience. Cet ensemble offre trois modes de fonctionnement : le faisceau blanc et le faisceau monochromatique focalisé ou non. Le miroir de focalisation n'étant pas interposé sur le chemin du faisceau de photon, c'est le faisceau monochromatique non focalisé qui a été utilisé pour nos mesures. Le monochromateur X-Durs comporte trois ensembles de sélection de photons mono-énergétiques, dont un double cristal de silicium permettant d'atteindre la gamme d'énergie comprise entre 3 et 35 keV. Dans la cabane d'expérience, le faisceau arrive directement dans un goniomètre. Les expériences peuvent être menées à l'intérieur de celui-ci sous vide ou à l'air libre grâce à une sortie équipée d'une fenêtre en béryllium ; des équipements peuvent être placés directement au niveau de celle-ci, à la place de la fenêtre, ou positionnés sur la table optique située à la suite du goniomètre. Le goniomètre est équipé d'une platine qui peut être déplacée selon les trois axes (x,y,z) sur laquelle peuvent être placés les échantillons à analyser. Le vide dans l'ensemble de la branche est assuré par des pompes ioniques et, dans le goniomètre, par une pompe primaire et une pompe turbo-moléculaire afin de maintenir une pression inférieure à  $10^{-6}$  hPa. Une série de fentes de collimation permet d'ajuster la taille du faisceau au besoin de l'analyse ; il est possible d'atteindre des tailles inférieures au millimètre au niveau de l'échantillon.

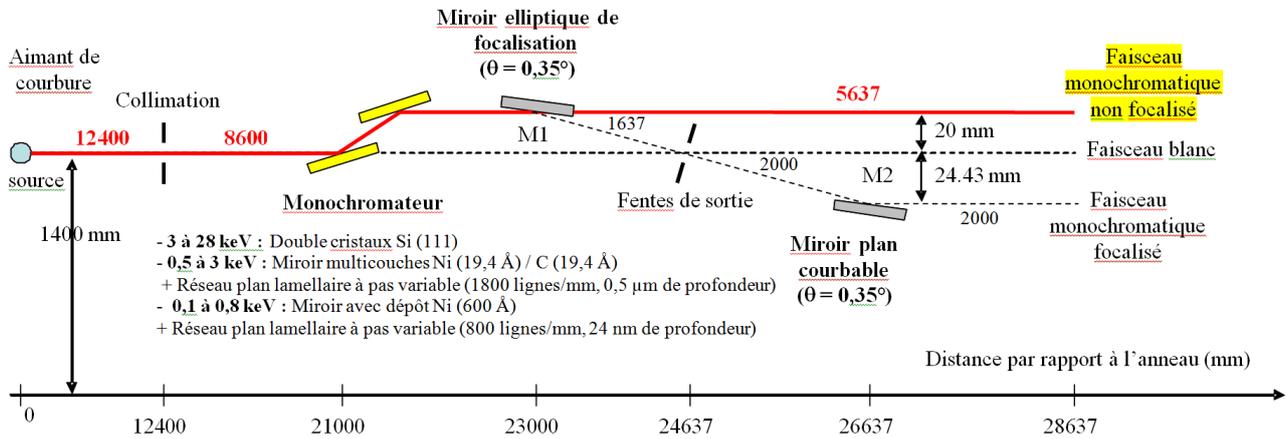


FIGURE 6.2 – Schéma de la branche X-Durs de la ligne METROLOGIE

## 6.1.2 Sélection de l'énergie

La sélection d'une énergie est effectuée à partir de la distribution continue de photons fournie par la source de rayonnement synchrotron, en utilisant un cristal dispersif. Selon la loi de Bragg, pour un angle d'émission  $\theta$  égal à l'angle d'incidence, la dispersion en longueur d'onde  $\lambda$  (ou en énergie,  $E = hc/\lambda$ ) s'effectue sur un système de plans réticulaires  $hkl$  :

$$n\lambda = 2 d_{hkl} \sin \theta \quad (6.1)$$

Où  $d_{hkl}$  est l'espacement des plans réticulaires du cristal et  $n$  est l'ordre de réflexion. L'utilisation d'un second cristal permet d'améliorer la sélection en énergie et de rectifier le parcours du faisceau ce qui permet d'avoir un faisceau de sortie dont la trajectoire est parallèle à celle du faisceau incident. C'est le rôle du monochromateur (figure 6.2), équipé de moteurs pour faire pivoter les cristaux ou miroirs de dispersion, qui sélectionne l'énergie par une variation très fine de la valeur de l'angle  $\theta$ . Lors de la sélection en longueur d'onde (ou énergie) par le monochro-

mateur, il n'y a pas seulement une longueur d'onde ( $n=1$ ) mais plusieurs ordres de réflexion, appelés harmoniques. Or, pour les mesures, il convient d'avoir un faisceau de photons le plus pur possible et donc de limiter la contribution de ces harmoniques. Cette contribution peut être significativement réduite par un petit désaccordage de l'angle du second cristal, problème particulièrement critique pour les énergies inférieures à 7 keV. La résolution en énergie atteinte sur cette ligne est  $10^{-4} \leq \Delta E/E \leq 10^{-3}$ , dépendant de la gamme d'énergie.

Il est important de connaître précisément l'énergie des photons ainsi sélectionnés. Il est donc nécessaire d'étalonner le monochromateur afin de connaître l'énergie correspondant à sa position angulaire (codée en pas moteur). Pour cela, des cibles constituées d'éléments purs sont utilisées : un balayage angulaire, c'est-à-dire en énergie, du monochromateur accompagné de l'enregistrement de l'intensité du faisceau transmis par la cible montre une brusque variation de celle-ci (c'est-à-dire de la transmission de la cible) au niveau d'une énergie de liaison des couches, ou sous-couches, électroniques du matériau de la cible. Cette position du monochromateur est précisément déterminée en calculant la dérivée de la courbe du faisceau transmis en fonction de la position du monochromateur. Dans la pratique, plusieurs balayages sont effectués, avec différents matériaux, afin de couvrir la plage d'énergie d'intérêt. Les valeurs des énergies de liaison compilées par Deslattes sont prises comme référence. Le mode de fonctionnement de SOLEIL, dit "top-up" assure un courant très stable dans l'anneau, puisque des paquets d'électrons sont injectés toutes les 2 à 3 minutes ; dans le cas du fonctionnement à 430 mA, ceci induit des variations de courant de l'ordre de 0,3 %, qui ne nécessitent donc pas de correction, en première approximation, au niveau de la mesure.

### 6.1.3 Choix des cibles et critère sur l'épaisseur

Les échantillons utilisés pour les mesures ont une pureté supérieure à 99,994 % pour le niobium et à 99,997 % pour le rhodium, certifiés par l'IRMM. Une étude visant à minimiser l'incertitude associée sur la mesure des coefficients d'atténuation massique a conduit Nordfors à établir un critère sur le rapport des flux de photons mesurés avec et sans échantillon, tel que :

$$2 \leq \ln \left( \frac{I_0}{I} \right) \leq 4 \quad \text{ou} \quad 0,25 \leq T = \ln \left( \frac{I}{I_0} \right) \leq 0,5 \quad (6.2)$$

Où  $T$  est la transmission dans l'échantillon. Ce critère permet de déterminer une gamme d'épaisseur optimale pour les mesures, qui est fonction du matériau et de l'énergie. En raison de la forte absorption des photons X, ce critère impose des épaisseurs d'échantillon de l'ordre de quelques micromètres et parfois moins d'un micromètre dans le cas des rayons X mous. L'épaisseur nominale de l'échantillon de niobium choisi est de 20  $\mu\text{m}$ , soit une transmission sur la gamme d'énergie de mesure (entre 7 et 35 keV) :  $0,03 \leq T \leq 0,8$ . Toutefois, la transmission est comprise entre 0,25 et 0,5 sur la majeure partie de la gamme de mesure. Un premier essai a été effectué avec un échantillon de rhodium d'épaisseur nominale de 50  $\mu\text{m}$ , seule épaisseur disponible alors. La transmission correspondant à la gamme d'énergie de mesure est :  $0,02 \leq T \leq 0,5$ . Cependant, la transmission dans la partie qui est la plus intéressante, située après l'énergie seuil de la couche K, ne dépasse pas une valeur de 0,2. Dans un second temps, d'autres essais ont été effectués sur un échantillon plus mince, 6  $\mu\text{m}$ , fournit par le LDCI dont la transmission est :  $0,4 \leq T \leq 0,85$ .

### 6.1.4 Mesure des coefficients d'atténuation massique

Avant de mesurer les rendements de fluorescence, il est nécessaire de connaître précisément les coefficients d'atténuation massique du niobium et du rhodium, en particulier pour l'énergie de leurs rayons X caractéristiques. Ces coefficients ont été obtenus selon une procédure expérimentale précédemment établie et validée pour des mesures similaires sur germanium, cuivre et autres cibles métalliques. Ces mesures ont déjà montré des discordances entre les valeurs mesurées expérimentalement et les données de la base XCOM du NIST. Les valeurs des coefficients obtenus par ces mesures dans le cas du niobium et du rhodium seront celles utilisées ensuite pour déterminer les rendements de fluorescence K. Les coefficients d'atténuation massique,  $\mu/\rho(E)$ , ont été mesurés en mode de transmission à l'aide du faisceau de photons monochromatiques parallèles de la ligne de métrologie, sous incidence normale à l'échantillon d'épaisseur  $e$ . Le principe de la mesure (figure 6.3) consiste à enregistrer l'intensité du flux photonique avant l'échantillon,  $I_0(E)$ , et immédiatement après  $I(E)$  avec une photodiode AXUV, désignée par « détecteur » sur la figure 6.3.

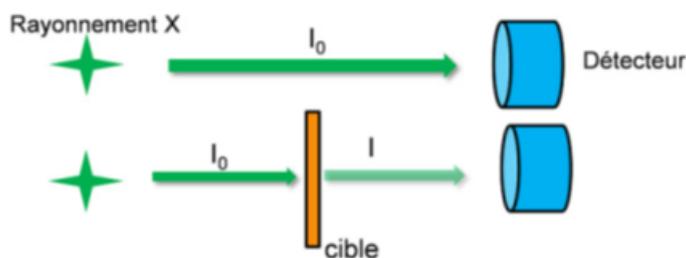


FIGURE 6.3 – Schéma du principe de mesure des coefficients d'atténuation massique

Pour un faisceau de photons monochromatiques, l'atténuation suit la loi Beer-Lambert :

$$I(E) = I_0(E) e^{-\frac{\mu}{\rho}(E) \rho e} = I_0 e^{-\frac{\mu}{\rho}(E) \frac{M}{A}} \quad (6.3)$$

Où  $\mu$  est le coefficient d'atténuation massique du matériau cible (niobium ou rhodium) et  $\rho$  sa masse volumique. Mesurer directement l'épaisseur d'un échantillon de quelques micromètres avec une incertitude inférieure à 1 % est très complexe à mettre en œuvre, voire impossible. Toutefois, il est plus facile d'effectuer une mesure de la masse par unité de surface  $M/A$  de la cible avec une incertitude plus faible, où  $M$  est la masse de l'échantillon et  $A$  sa surface. La masse a été mesurée grâce à une microbalance de précision et la surface à l'aide d'une machine de vision associée à un logiciel de traitement d'images dédié. La masse des échantillons est mesurée avec une incertitude relative de 0,04 % pour le niobium et de 0,02 % pour le rhodium et la surface est déterminée avec une incertitude relative de 0,04 % pour le niobium et de 0,05 % pour le rhodium. Les intensités  $I(E)$  et  $I_0(E)$  sont mesurées en un seul point derrière l'échantillon, avec et sans l'échantillon respectivement. Une attention particulière a été portée sur les énergies de liaison K du niobium et du rhodium et sur l'énergie de leurs rayons X caractéristiques, puisque ces valeurs sont directement utilisées dans l'étape suivante, pour la détermination des rendements de fluorescence. Bien qu'il ne soit pas nécessaire de connaître les coefficients d'atténuation massique en-dessous des énergies XK pour l'expérience de fluorescence, les mesures ont été effectuées sur une large gamme d'énergie, ceci dans le but de comparer les résultats expérimentaux issus des mesures avec les valeurs tabulées. De plus, la différence entre les valeurs des coefficients de part et d'autre du seuil K permet de confirmer l'épaisseur des cibles. Les valeurs mesurées

des coefficients d'atténuation massique pour le niobium et le rhodium sont présentées sur les figures 6.4 et 6.5 respectivement.

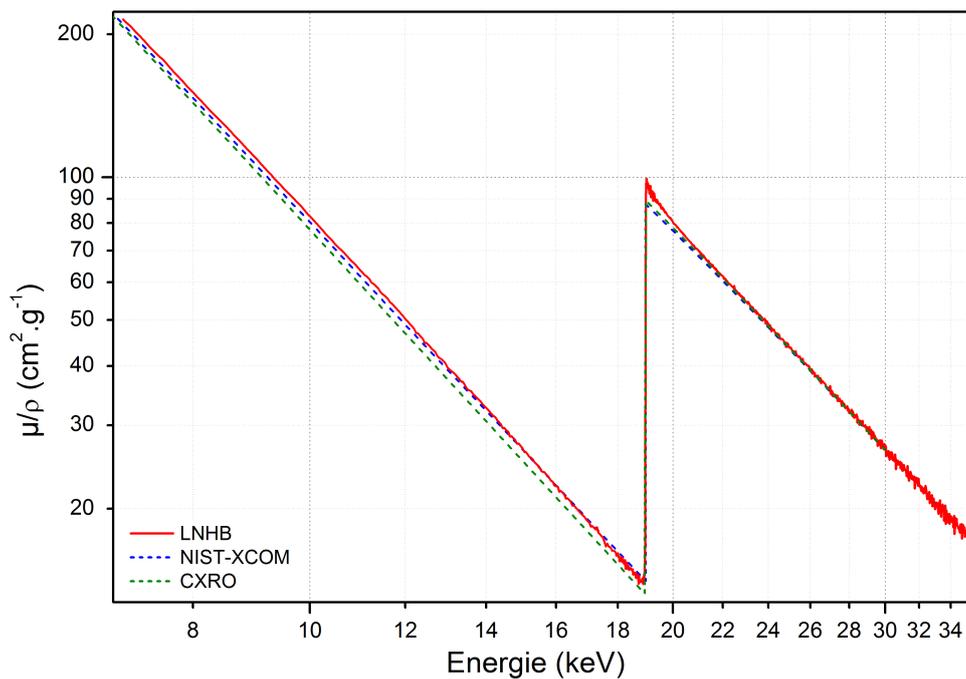


FIGURE 6.4 – Évolution du coefficient d'atténuation massique du niobium en fonction de l'énergie

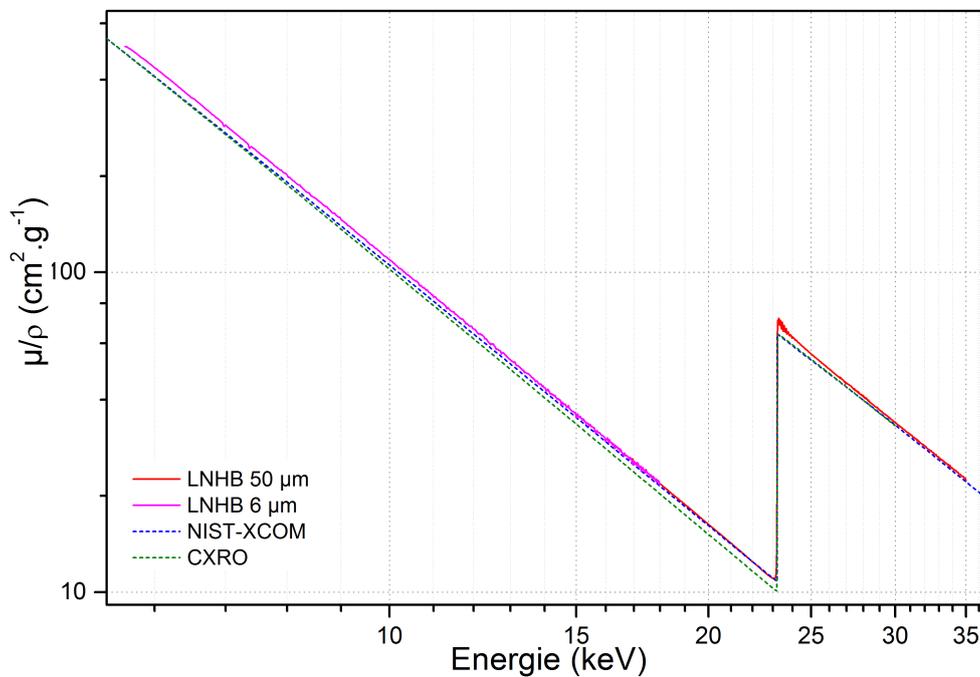


FIGURE 6.5 – Évolution du coefficient d'atténuation massique du rhodium en fonction de l'énergie

Les incertitudes-types composées relatives sur les mesures, déterminées à partir des incertitudes-types sur la mesure des flux  $I$ ,  $I_0$  et de  $M/A$ , sont aux alentours de 2 %. Les résultats de ces

mesures sont comparés aux valeurs disponibles sur XCOM et le CXRO, qui sont consultables en ligne. La première base de données est une compilation de travaux expérimentaux et théoriques, établis à partir des calculs de Scofield qui utilise le modèle atomique de Hartree-Slater. La seconde est axée sur les énergies inférieures à 30 keV et sur une approche semi-empirique, incluant la théorie s'appuyant sur les facteurs de diffusion atomique. Les graphiques montrent une nette différence entre les bases de données et les mesures pour les énergies supérieures à l'énergie de liaison de la couche K, pouvant être supérieures de quelques pourcents. Les résultats du rhodium présentés sur la figure 6.5 correspondent à la synthèse de 2 mesures, l'une avec l'échantillon de 50  $\mu\text{m}$ , et l'autre avec un échantillon de 6  $\mu\text{m}$ .

## 6.1.5 Rendements de fluorescence

### Principe de la mesure

La mesure traditionnelle s'effectue dans une géométrie en réflexion, dont le schéma simplifié est présenté sur la figure 6.6.

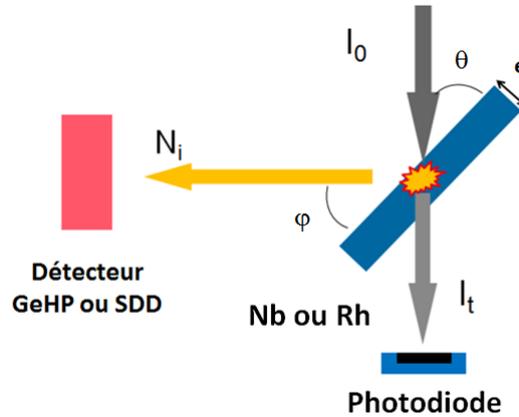


FIGURE 6.6 – Schéma de la géométrie de mesure des rendements de fluorescence

La cible est placée sur le trajet du faisceau monochromatique avec une énergie  $E_0$  et une intensité  $I_0$ , sous un angle d'incidence  $\theta$  et le détecteur analyse le rayonnement de fluorescence émis selon l'angle  $\phi$  (les angles  $\theta$  et  $\phi$  sont définis par rapport à la surface de la cible). Le faisceau incident est atténué suivant le coefficient d'atténuation linéique  $\mu_0 = \mu(E_0)$  et interagit avec le matériau de la cible à une profondeur  $x$  par effet photoélectrique dans la couche K, avec la probabilité  $\tau_K$ , la section efficace d'interaction par effet photoélectrique. Suite au réarrangement électronique, les rayons X sont émis avec une énergie  $E_i$  dans toutes les directions selon le rendement de fluorescence partiel  $\omega_{K_i}$ , où  $i$  correspond à l'émission  $\alpha$  ou  $\beta$ . L'atténuation du rayonnement de fluorescence dans le matériau de la cible dépend du coefficient d'atténuation linéique à l'énergie du rayonnement émis  $\mu_i = \mu(E_i)$ . Ces photons sont mesurés sous un angle d'émission  $\phi$ , dans un angle solide élémentaire  $d\Omega$ , par un détecteur au silicium (SDD) ou au germanium (GeHP) [73], [74] et [75]. Le rendement d'absorption totale  $\varepsilon_i$  du détecteur ayant été préalablement déterminé avec une incertitude relative d'environ 1 %, le nombre élémentaire d'événements,  $dN_i$ , consécutifs à une interaction dans une épaisseur élémentaire  $dx$  et enregistrés dans le pic d'absorption totale, résulte de :

- 1 L'absorption du faisceau de photons incident dans le matériau de la cible d'épaisseur élémentaire  $dx$  à la profondeur  $x$  :  $I_0 e^{-\frac{\mu_0 x}{\sin \theta}} \frac{dx}{\sin \theta}$  ;
- 2 L'interaction par effet photoélectrique dans la couche K :  $\tau_K$  ;
- 3 La relaxation atomique, suivant cette interaction, par émission d'un rayon X :  $\omega_{K_i}$  ;
- 4 L'absorption du rayonnement de fluorescence émis dans le matériau de la cible :  $e^{-\frac{\mu_i x}{\sin \phi}}$  ;
- 5 L'émission du rayonnement de fluorescence dans un angle solide de mesure élémentaire :  $\frac{d\Omega}{4\pi}$  ;
- 6 L'interaction et le dépôt de toute l'énergie du rayonnement de fluorescence dans le détecteur :  $\varepsilon_i$ .

Donc :

$$dN_i = I_0 e^{-\frac{\mu_0 x}{\sin \theta}} \frac{dx}{\sin \theta} \tau_K \omega_{K_i} e^{-\frac{\mu_i x}{\sin \phi}} \frac{d\Omega}{4\pi} \varepsilon_i \quad (6.4)$$

Si la cible est installée à  $45^\circ$  par rapport au faisceau de photons incidents et du détecteur, ce qui donne  $\theta = \phi$ , l'équation 6.4 devient :

$$dN_i = I_0 \tau_K \omega_{K_i} e^{-\left(\frac{\mu_0 + \mu_i}{\sin \frac{\pi}{4}}\right)x} \frac{dx}{\sin \frac{\pi}{4}} \frac{d\Omega}{4\pi} \varepsilon_i \quad (6.5)$$

Par intégration de cette équation sur l'épaisseur de la cible  $e$  et l'angle solide, le nombre d'événements enregistrés dans le pic d'absorption totale correspondant à l'énergie caractéristique  $E_i$ ,  $N_i$  est :

$$N_i = I_0 \tau_K \omega_{K_i} \frac{1 - e^{-\left(\frac{\mu_0 + \mu_i}{\sin \frac{\pi}{4}}\right)e}}{\mu_0 + \mu_i} \frac{\Omega}{4\pi} \varepsilon_i \quad (6.6)$$

Il est possible d'en déduire ainsi le rendement de fluorescence partiel :

$$\omega_{K_i} = \frac{4\pi}{\Omega} \frac{N_i}{\varepsilon_i} \frac{1}{I_0 \tau_K} \frac{\mu_0 + \mu_i}{1 - e^{-\left(\frac{\mu_0 + \mu_i}{\sin \frac{\pi}{4}}\right)e}} \quad (6.7)$$

La photodiode placée en aval de la cible mesure le courant induit par le faisceau en transmission,  $C_t$ . Le rendement de la photodiode en  $A/keV$ ,  $\varepsilon_{P_i}$ , a été étalonné par une méthode absolue en utilisant un radiomètre cryogénique à substitution électrique. La transmission dans la cible à  $45^\circ$  peut être obtenue à partir de la masse surfacique de la cible, dont la mesure est expliquée dans le paragraphe 6.1.4, et des coefficients d'atténuation massiques précédemment établis :

$$T_i = e^{-\frac{\mu_i(E) \frac{M}{A}}{\sin \frac{\pi}{4}}} \quad (6.8)$$

Ainsi, quelle que soit l'énergie  $E_i$ , l'intensité  $I_0$  du faisceau de photon incident est :

$$I_0 = C_t \varepsilon_{P_i} E_i T_i \quad (6.9)$$

## Résultats pour le niobium

Les mesures ont été effectuées avec une cible de niobium d'épaisseur nominale de  $20 \mu\text{m}$ , soit une masse surfacique mesurée de  $0,017\ 042\ (10) \text{ g.cm}^{-2}$ . Les acquisitions ont été enregistrées sur une gamme d'énergie des photons incidents comprise entre  $19,5$  et  $25 \text{ keV}$ , gamme dans

laquelle les coefficients d'atténuation massique ont été préalablement mesurés. Ceci dans le but d'obtenir de nombreux résultats et donc de garantir les valeurs obtenues et les incertitudes qui y sont associées. En effet, dans le cas d'expériences différentes, certains paramètres (coefficients d'atténuation, rendement des photodiodes et des détecteurs, etc.) changent. Ainsi, un résultat final constant signifie que les conditions expérimentales sont bien contrôlées. Ici, les résultats ont été obtenus sur la moyenne de 10 mesures effectuées pour différentes énergies (entre 20 et 25 keV) des photons incidents. Les spectres obtenus après l'acquisition ont été traités avec COLEGRAM, en utilisant des fonctions de Voigt pour traiter les pics de fluorescence. Un exemple de traitement du spectre est illustré sur la figure 6.7.

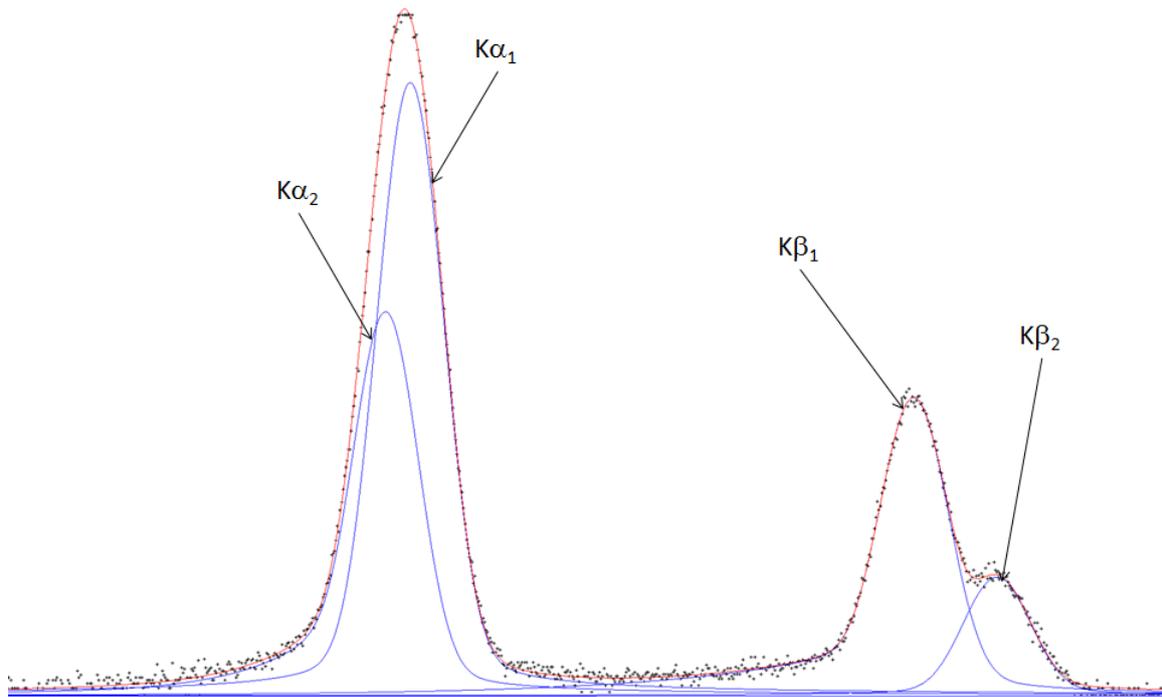


FIGURE 6.7 – Exemple de traitement du spectre de fluorescence du niobium entre 15 et 20 keV

La figure 6.8 présente l'ensemble des résultats des mesures effectuées incluant les rendements de fluorescence partiels  $K\alpha$  et  $K\beta$  et total  $\omega_K$ , dont la valeur moyenne est 0,724 (14). La mesure à 19,5 keV n'a pas été conservée, puisque le pic de la diffusion cohérente (Rayleigh) du faisceau incident, étant très proche des énergies des rayons X du niobium, perturbe le traitement du spectre. Le tableau 6.1 présente le rendement de fluorescence ainsi obtenu pour le niobium et sa comparaison avec d'autres valeurs expérimentales, théoriques et semi-empiriques. Un nombre limité de valeurs expérimentales récentes a été recensé, avec des écarts relatifs allant jusqu'à 4 %. La méthode semi-empirique consiste à ajuster par une fonction un ensemble de points expérimentaux et théoriques pour tous les éléments avec la méthode des moindres carrés.

La principale observation, qui peut être effectuée sur cet ensemble de données, est la différence significative entre les résultats expérimentaux et les valeurs théoriques. La valeur du rendement de fluorescence K du niobium ainsi déterminée au synchrotron présente un bon accord avec les autres résultats expérimentaux, mis à part la valeur obtenue par Han, et elle coïncide avec la valeur de Hubbell *et al.* obtenue par un ajustement des valeurs expérimentales. Cependant, cette valeur présente un écart de 3,6 % avec la valeur recommandée par le DDEP [76] .

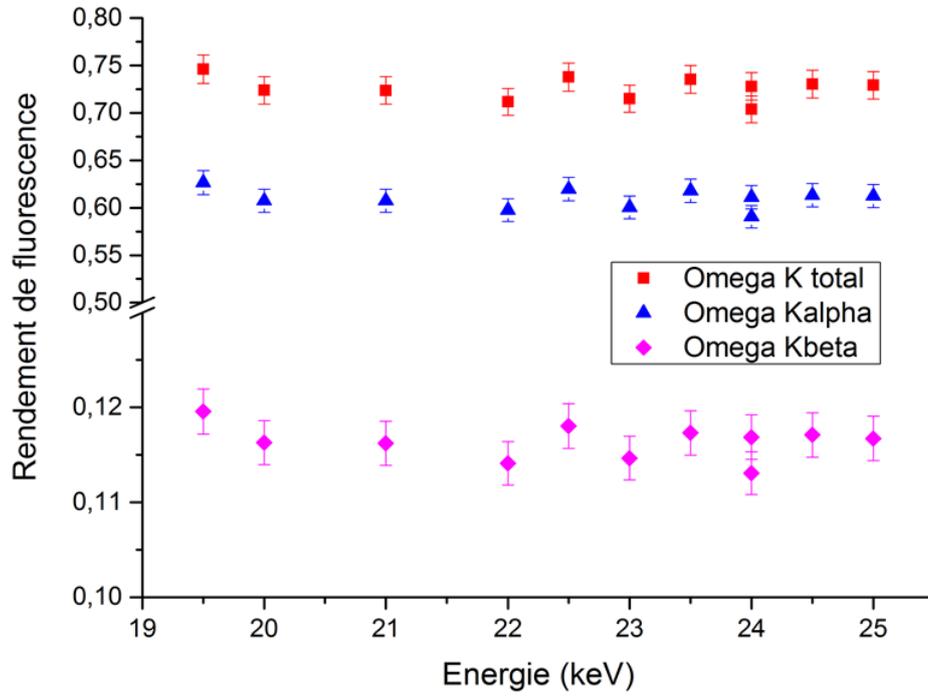


FIGURE 6.8 – Rendements de fluorescence partiels et total K du niobium mesurés avec différentes énergies incidentes

–	Expérimentales	Théoriques	Semi-empiriques
Mesures SOLEIL	0,724 (14)	–	–
Roos [77] et [78]	0,713	–	–
	0,730 (20)	–	–
Callan [79]	–	0,754	–
Kostrun [80]	–	0,759	–
Walters <i>et al.</i> [81]	–	0,7788	–
Bambynek <i>et al.</i> [82]	–	–	0,748 (32)
Krause [83]	–	–	0,747
Arora <i>et al.</i> [84]	0,738 (30)	–	–
Hubbell [85]	–	–	0,7512
Singh <i>et al.</i> [86]	0,722 (44)	–	–
Hubbell <i>et al.</i> [87]	–	–	0,724
Schönfeld <i>et al.</i> [76]	–	–	0,751 (4)
Durak <i>et al.</i> [88]	0,734 (28)	–	–
Han <i>et al.</i> [89]	0,747 (60)	–	–
Kahoul <i>et al.</i> [90]	–	–	0,73993

Tableau 6.1 – Comparaison des rendements de fluorescence K du niobium

## Résultats pour le rhodium

Un premier essai a été réalisé avec une cible de rhodium d'épaisseur nominale de  $50 \mu\text{m}$ , soit une masse surfacique mesurée de  $0,058\,962\,(32) \text{ g}\cdot\text{cm}^{-2}$ . Dans le cas du rhodium, la gamme d'énergie des photons incidents est comprise entre 24 et 30 keV. Comme pour le niobium, les résultats ont été obtenus sur la moyenne de 10 mesures et un exemple de traitement du spectre est montré sur la figure 6.9.

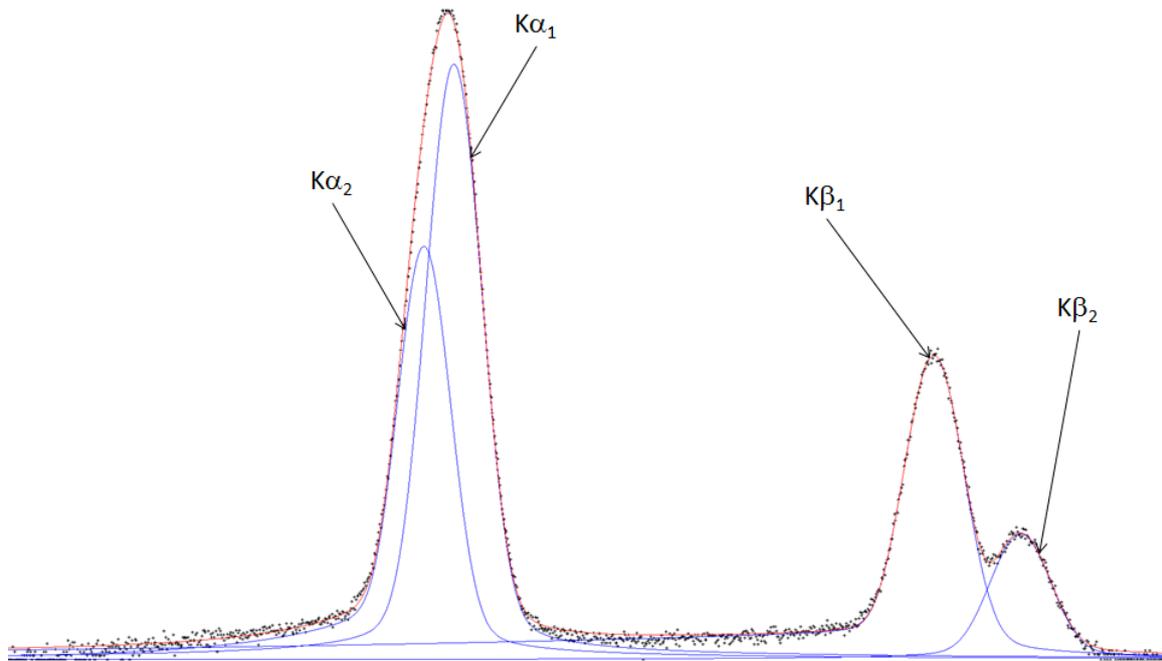


FIGURE 6.9 – Exemple de traitement du spectre de fluorescence du rhodium entre 19 et 24 keV

Les résultats sont présentés sur la figure 6.10 dans la gamme d'énergie comprise entre 26 et 30 keV, celles de 24 et 25 keV n'ont pas été retenues du fait de la perturbation apportée par le pic de la diffusion cohérente du faisceau incident, dont l'énergie est proche des énergies des rayons X du rhodium. La valeur moyenne du rendement de fluorescence K total du rhodium obtenu est  $\omega_K = 0,814\,(41)$ .

L'incertitude-type relative est d'environ 5 % pour cette mesure alors qu'elle n'est que d'environ 2 % pour le niobium. La différence entre ces facteurs s'explique par des incertitudes plus grandes sur les mesures d'intensité du flux photonique pour le rhodium. En effet, la cible de rhodium était plus épaisse et atténuait considérablement l'intensité du faisceau initial. Ainsi, les valeurs d'intensité transmises mesurées par la photodiode étaient proches de la valeur du bruit de fond ce qui a augmenté notablement l'incertitude finale. Il a donc été décidé de répéter ces mesures avec une cible plus mince afin de bien répondre au critère de Nordfors [91]. La cible de  $6 \mu\text{m}$  a été utilisée pour une seconde série de mesures qui a aussi été réalisée avec un plus grand nombre d'énergies incidentes (de 24 à 30 keV par pas de 200 eV). L'écart-type relatif entre les différents résultats est 1,7 %, et inférieur à l'incertitude-type combinée relative associée à chaque valeur qui est 2,5 %. Ces résultats sont présentés sur la figure 6.11. Les rendements de fluorescence partiels sont respectivement 0,654 (16) et 0,1328 (33) pour les émissions  $K\alpha$  et  $K\beta$ . La nouvelle valeur du rendement de fluorescence total pour le rhodium est 0,786 (20) ; elle est compatible avec la valeur précédemment déterminée, et l'incertitude-type associée a

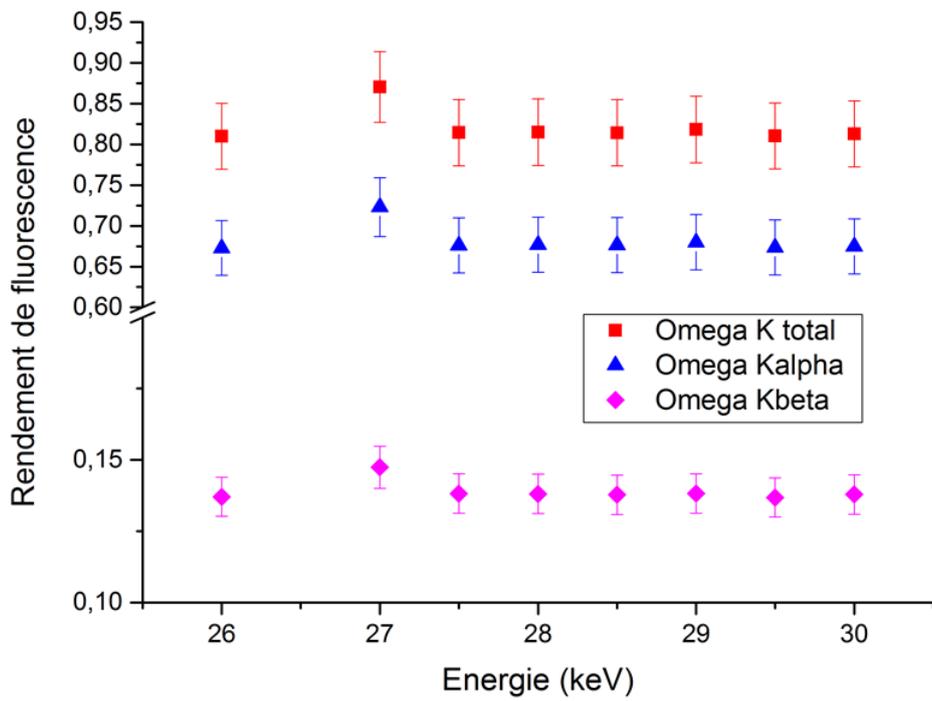


FIGURE 6.10 – Rendements de fluorescence partiels et total K du rhodium mesurés avec différentes énergies incidentes

été améliorée d'un facteur 2. Comme pour le niobium, elle est plus faible 2,8 % que la valeur recommandée [76].

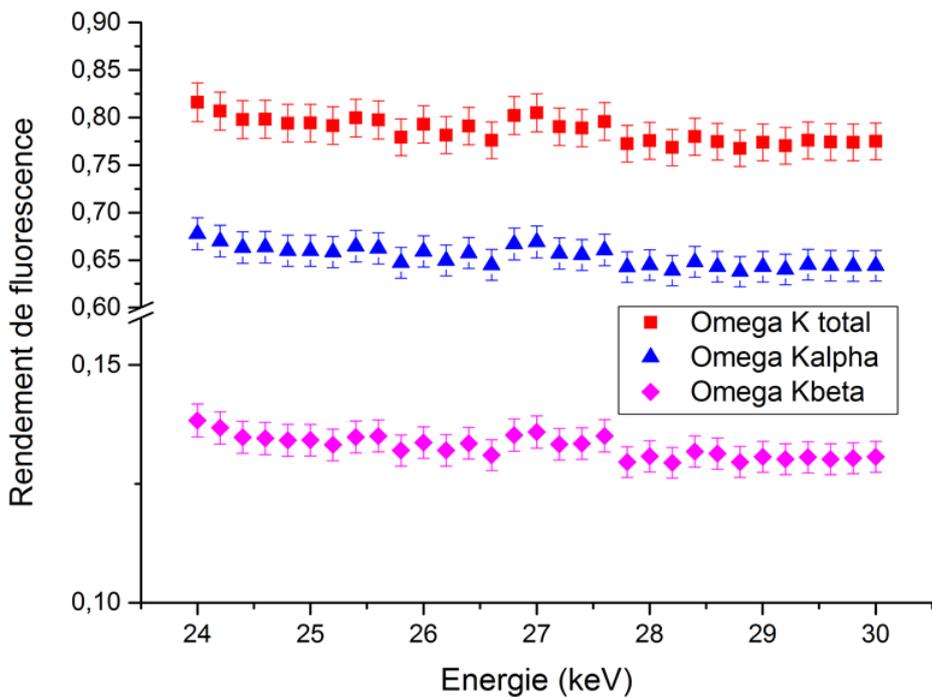


FIGURE 6.11 – Rendements de fluorescence partiels et total K du rhodium mesurés avec différentes énergies incidentes

## Discussion

Le tableau 6.2 présente les résultats expérimentaux du rendement de fluorescence total du rhodium et leur comparaison avec d'autres valeurs expérimentales, théoriques et semi-empiriques. Il n'existe que cinq valeurs expérimentales, dont une seule mesure sur ces soixante dernières années, qui présentent des écarts relatifs allant jusqu'à 8 % entre les différentes valeurs ; de plus, trois de ces valeurs ne font pas mention d'incertitudes. Seule la seconde valeur obtenue par Roos a été déterminée avec une incertitude d'environ 2 %.

Les deux résultats obtenus dans cette étude sont compatibles avec les autres données expérimentales. La seconde valeur, plus précise, sera retenue dans la suite. Elle est en bon accord avec celle de Roos, en revanche, elle est inférieure (mais compatible) aux différentes valeurs théoriques. Comme dans le cas du niobium, cette nouvelle valeur expérimentale est très proche de la valeur semi-empirique calculée par Hubbell.

–	Expérimentales	Théoriques	Semi-empiriques
Mesures			
SOLEIL (2016)	0,814 (41)	–	–
Mesures			
SOLEIL (2017)	0,786 (20)	–	–
Backhurst [92]	0,801	–	–
Stephenson [93]	0,77	–	–
Roos [77] et [78]	0,779	–	–
	0,786 (15)	–	–
Callan [79]	–	0,812	–
Kostrun [80]	–	0,820	–
Walters <i>et al.</i> [81]	–	0,8367	–
Bambynek <i>et al.</i> [82]	–	–	0,807 (31)
Krause [83]	–	–	0,808
Chen <i>et al.</i> [94]	–	0,808	–
Hubbell [85]	–	–	0,8086
Singh <i>et al.</i> [86]	0,829 (58)	–	–
Hubbell <i>et al.</i> [87]	–	–	0,792
Schönfeld <i>et al.</i> [76]	–	–	0,809 (4)
Kahoul <i>et al.</i> [90]	–	–	0,80205

Tableau 6.2 – Valeurs de rendements de fluorescence K du rhodium

## Influence du rendement de fluorescence sur les intensités d'émission de rayons X

Les intensités d'émission des rayons X sont proportionnelles au rendement de fluorescence ; dans le cas de la couche K, les deux paramètres sont reliés par :

$$I_{X_K} = \omega_K n_K \quad (6.10)$$

Où  $n_K$  est le nombre de vacances dans la couche K qui est défini par la formule suivante (voir chapitre 1) :

$$n_K = \sum P_\varepsilon P_K + \sum P_\gamma \frac{\alpha_K}{1 + \alpha_t} \quad (6.11)$$

Le niobium-93m et le rhodium-130m se désintègrent uniquement par une seule transition gamma; l'équation 6.11 devient ainsi :

$$n_K = P_\gamma \frac{\alpha_K}{1 + \alpha_t} \quad (6.12)$$

Par conséquent, en partant de la formule 6.10, les intensités d'émission X de  $^{93m}\mathbf{Nb}$  et de  $^{103m}\mathbf{Rh}$  sont :

$$I_{X_K} = P_\gamma \omega_K \frac{\alpha_K}{1 + \alpha_t} \quad (6.13)$$

Dans les deux cas, la transition gamma est la seule voie de désintégration et une seule existe, donc  $P_\gamma = 1$  (ou 100 si  $I_{X_K}$  est exprimé en pourcentage). Par exemple, les données du DDEP pour  $^{93m}\mathbf{Nb}$  sont les suivantes :

- $I_{X_K} = 0,11546$  (175) ;
- $\omega_K = 0,751$  (4) (valeurs de Schönfeld prises comme référence pour les  $\omega_K$ ) ;
- $\alpha_K = 26\,029$  (400) et  $\alpha_t = 169\,300$  (2 500).

En conservant les valeurs des coefficients de conversion mais en prenant la valeur de rendement de fluorescence déterminée expérimentalement à SOLEIL, soit 0,724 (14), la valeur de  $I_{X_K}$  est de 0,11131 (280), soit un écart relatif de 3,6 % par rapport à celle du DDEP.

Dans le cas du  $^{103m}\mathbf{Rh}$ , il n'existe pas de valeurs recommandées dans la base DDEP (voir paragraphe 3.2.2 et le paragraphe concernant la discussion sur la multipolarité de la transition  $\gamma$  du  $^{103m}\mathbf{Rh}$  dans la partie 6.3.2). Toutefois, des données de désintégration ont été déterminées pour une multipolarité E3 de la transition dans le cadre des mesures des intensités d'émission des rayons XK du  $^{103m}\mathbf{Rh}$  et sont les suivantes :

- $I_{X_K} = 0,07786$  (106) ;
- $\omega_K = 0,809$  (4) (valeur de Schönfeld) ;
- $\alpha_K = 135,2$  (19) et  $\alpha_t = 1403$  (20).

En prenant comme valeur de rendement de fluorescence la seconde valeur obtenue à SOLEIL, soit 0,786 (20), la valeur de  $I_{X_K}$  devient 0,07565 (221), soit un écart relatif de 2,8 % par rapport à celle du DDEP.

L'utilisation des techniques actuelles à disposition, comme les sources de rayonnement monochromatique et accordable, alliées à des détecteurs possédant une bonne résolution, permet d'obtenir des résultats de grande qualité, avec des incertitudes bien maîtrisées. Les valeurs expérimentales ou théoriques récentes de rendement de fluorescence K sont assez rares et parfois en total désaccord, et cela ne concerne pas uniquement le niobium et le rhodium. Or ce paramètre fondamental, comme le coefficient d'atténuation massique, est nécessaire pour de nombreux domaines d'applications. Par exemple, dans le cas des générateurs à rayons X avec une anode en rhodium, la connaissance du rendement de fluorescence K de l'élément est très important ainsi

que pour la méthode de quantification par fluorescence X dite des « paramètres fondamentaux ». Réitérer ces mesures pour différents éléments présente dès lors un intérêt général.

## 6.2 Mesure de radioactivité par scintillation liquide

La mesure des intensités absolues d'émission photonique nécessite deux techniques : la spectrométrie  $\gamma$  et/ou X, sur une source préparée avec une solution radioactive, et une technique de mesure primaire permettant de déterminer de manière absolue (sans étalon) l'activité massique de la solution,  $A_m$ . Ainsi, il est possible de déduire l'intensité d'émission correspondant à l'énergie E à partir de la surface du pic d'absorption totale, du rendement de détection et de l'activité de la source de masse  $m$ ,  $A = A_m m$ . Dans le cas de  $^{103m}\text{Rh}$ , la méthode primaire retenue est la scintillation liquide par méthode RCTD [95] et [96].

### 6.2.1 Scintillation liquide

La mesure de la radioactivité par scintillation liquide consiste à détecter et quantifier la lumière produite par les rayonnements ionisants lors du mélange d'une solution radioactive avec un scintillateur liquide. Le rôle du scintillateur liquide est de transformer les rayonnements ionisants émis lors de la désintégration d'un radionucléide en impulsions de lumière quantifiables. Il s'agit d'un liquide principalement composé de molécules organiques fluorescentes dissoutes dans un solvant. Le rôle de ce dernier est d'absorber l'énergie du rayonnement ionisant et de la propager vers les molécules fluorescentes dont la fonction est de capter l'énergie d'excitation du solvant pour la transformer en lumière possédant une longueur d'onde compatible avec les détecteurs, avec la meilleure efficacité possible. La concentration d'un scintillateur est généralement comprise entre 5 et 10 g par litre de solvant. Sa faible concentration rend peu probable son excitation directe par les rayonnements ionisants, ils interagissent principalement avec le solvant. Les molécules sont excitées ou ionisées par les électrons émis par le radionucléide ou par les électrons secondaires créés par différents processus d'interaction rayonnement-matière. Le dixième environ de cette énergie excite les molécules de solvant et le reste est converti en chaleur. L'énergie d'excitation migre ensuite d'une molécule à l'autre par un processus non radiatif, jusqu'à ce qu'elle soit transférée à une molécule scintillante ou dissipée sous forme de chaleur. Les molécules fluorescentes se dés excitent par transition radiative, conduisant de ce fait à une émission de lumière. Certains phénomènes physiques ou chimiques peuvent être à l'origine de la réduction de l'émission lumineuse du scintillateur, pour les décrire c'est le terme de « quenching » qui est utilisé. Il y a trois principaux modes de quenching : chimique, de couleur ou d'ionisation :

- Le quenching chimique est dû à la présence d'espèces chimiques susceptibles de dés exciter les molécules de solvant avant que son énergie ne soit transférée à une molécule scintillante ;
- Le quenching de couleur est dû à la présence d'espèces colorées dans la solution mesurée qui absorbent la lumière des photons émise par scintillation. Cela peut conduire à une anisotropie de l'émission lumineuse ;
- Dans le cas où la concentration locale d'espèces excitées de solvant est très importante, due à un fort transfert d'énergie linéique de la particule incidente, la probabilité de re-

combinaison non radiative augmente. On parle alors de quenching d'ionisation.

Le nombre de photons de scintillation est généralement très faible, du fait du faible rendement du processus de scintillation liquide. Cela implique l'utilisation de photodétecteurs ainsi que la conception de chambres de mesure spécifiques afin de collecter le plus de photons émis possible. Les photodétecteurs les plus communément utilisés sont des tubes photomultiplicateurs. Quant à la chambre de mesure, elle doit être conçue de manière à être totalement étanche à la lumière tout en permettant l'introduction des flacons de scintillation liquide. Les résultats obtenus avec un seul photomultiplicateur sont difficilement exploitables, principalement à cause du bruit de fond thermique fluctuant. Pour éviter la suppression d'informations importantes il n'est pas possible de régler les seuils de discrimination sur des canaux trop élevés. Une alternative généralement utilisée, est la mise en coïncidence de plusieurs photomultiplicateurs afin de réduire le bruit thermique, cependant le rendement de détection est également plus faible.

### 6.2.2 Méthode RCTD

La méthode du rapport des coïncidences triples aux coïncidences doubles (RCTD) permet la mesure de l'activité massique d'une solution radioactive sans utilisation d'étalons radioactifs. Il s'agit d'une méthode de mesure dite primaire, qui ne requiert donc pas d'étalonnage préalablement aux mesures. Le compteur à scintillation liquide, pour la mise en œuvre de cette méthode, comporte trois photomultiplicateurs. Pour déterminer le rendement de détection avec cette méthode, le modèle statistique est décrit à l'aide de la loi de Poisson. Soit  $E$  le dépôt d'énergie dans le scintillateur conduisant à une émission de  $m(E)$  photons en moyenne. La probabilité d'émission de  $x$  photons pour un nombre moyen est :

$$P\left(\frac{x}{m}\right) = \frac{m(E)^x e^{-m(E)}}{x!} \quad (6.14)$$

Où  $m(E)$  suit la loi de Birks :

$$m(E) = \int_0^{E_{max}} \frac{A dE}{1 + kB \frac{dE}{dx}} \quad (6.15)$$

Où  $A$  est un paramètre décrivant le rendement du scintillateur en photons par énergie absorbée,  $kB$  est le paramètre de quenching d'ionisation et  $dE/dx$  est le transfert d'énergie linéique des électrons dans le scintillateur.

En supposant que les photomultiplicateurs ont une probabilité de détection non nulle, le rendement de non détection peut être assimilé à la probabilité d'émission de zéro photon pour une moyenne de  $m$  photons. En admettant que la probabilité de non détection est le complément de la probabilité de détection, le rendement de détection (équivalent à la probabilité de détection) devient :

$$R = 1 - P\left(\frac{0}{m}\right) = 1 - e^{-m(E)} \quad (6.16)$$

Pour un système composé de trois photomultiplicateurs, de rendement quantique  $\nu$ , les rendements de détection pour un photomultiplicateur puis deux et trois photomultiplicateurs

en coïncidences sont respectivement :

$$R_1 = 1 - e^{-\frac{\nu m(E)}{3}} \quad (6.17)$$

$$R_2 = \left(1 - e^{-\frac{\nu m(E)}{3}}\right)^2 \quad (6.18)$$

$$R_T = \left(1 - e^{-\frac{\nu m(E)}{3}}\right)^3 \quad (6.19)$$

Le rendement de détection pour la somme des coïncidences doubles est :

$$R_D = 3 \left(1 - e^{-\frac{\nu m(E)}{3}}\right)^2 - 2 \left(1 - e^{-\frac{\nu m(E)}{3}}\right)^3 \quad (6.20)$$

Le rapport des probabilités de coïncidences triples sur les probabilités de coïncidences doubles s'écrit :

$$RCTD = \frac{P_T}{P_D} = \frac{\int_0^{E_{max}} S(E) \left(1 - e^{-\frac{\nu m(E)}{3}}\right)^3 dE}{\int_0^{E_{max}} \left[3 \left(1 - e^{-\frac{\nu m(E)}{3}}\right)^2 - 2 \left(1 - e^{-\frac{\nu m(E)}{3}}\right)^3\right] dE} \quad (6.21)$$

Où  $S(E)$  est la densité décrivant le spectre normalisé de l'énergie absorbée par le scintillateur. Pour un grand nombre de désintégrations, le rapport des comptages en coïncidences triples à doubles converge vers le rapport des probabilités de détection en coïncidences triples à doubles. Ainsi, le rapport des probabilités est mesurable et il est alors possible de résoudre l'équation précédente, s'il est possible de déterminer  $S(E)$  et  $m$ , grâce à un algorithme utilisant la méthode de dichotomie. Ainsi, le rendement de détection devient une fonction du  $RCTD$  à partir duquel on obtient la valeur de l'activité massique de la solution radioactive. Lors d'une capture électronique ou d'une transition isomérique, une lacune est produite dans le cortège électronique, ce qui donne lieu à de nombreuses possibilités de processus de réarrangement comme l'émission d'électrons Auger ou de rayons X. Dans le cas d'une transition isomérique, l'émission  $\gamma$  peut être plus ou moins convertie, donnant lieu à l'éjection d'un électron du cortège électronique et donc aux réarrangements consécutifs. Pour déterminer la forme du spectre d'émission électronique et donc le rendement de détection, il convient de calculer au mieux les énergies d'émission des électrons et des photons issus de chacun des chemins de réarrangement. Il existe différents modèles de calcul, le modèle KLM, le modèle LLMN ou encore le modèle  $KL_1L_2L_3M$  qui prend également en compte la correction d'effet photoélectrique. Le modèle KLM est le plus simple, il ne distingue pas les sous-couches de la couche électronique L et les couches supérieures (N, O et P) sont regroupées avec la couche M. Ce modèle est illustré par la figure D.1 et les différentes probabilités par le tableau D.2 présentés en Annexe D. Dans certains cas, les rendements de détection calculés à partir de ce modèle s'écartent significativement des valeurs expérimentales, ce qui montre que ce modèle n'est pas suffisamment détaillé. Le modèle LLMN propose une description plus précise et tenant compte de la couche électronique N. Il est ainsi plus adapté aux radionucléides ayant un numéro atomique plus élevé. Le modèle  $KL_1L_2L_3M$  distingue quant à lui les trois sous-couches de la couche L et prend donc en compte les transitions Coster-Krönig, alors que les autres modèles moyennent simplement les énergies des électrons et rayons X émis. Ce modèle tient compte également de l'effet photoélectrique avec les couches K et L, améliorant ainsi la précision du calcul du rendement de détection. De

nombreux programmes sont à disposition pour permettre le calcul, par méthode Monte Carlo, du rendement de détection suivant l'un des modèles.

## 6.3 Mesure des intensités d'émission des rayons XK du $^{103m}\text{Rh}$

Le niobium-93m et le rhodium-103m se désintègrent uniquement par transition  $\gamma$ , qui sont fortement converties, vers l'état fondamental, ce qui conduit à une émission d'électrons de conversion et Auger et de rayons X. Les intensités d'émission  $\gamma$  sont très faibles. Dans le cas de  $^{93m}\text{Nb}$ , les intensités totales des émissions XK sont connues avec une incertitude d'environ 1,5 % (1,8 % pour les émissions  $K\alpha$  et 2,2 % pour les émissions  $K\beta$ ). Contrairement à  $^{93m}\text{Nb}$ ,  $^{103m}\text{Rh}$  a été très peu étudié, probablement en raison de sa très courte période. Si celle-ci est bien connue, ce n'est pas le cas des intensités d'émission X. En effet, les intensités totales sont connues avec une incertitude d'environ 4,7 % (5,4 % pour les émissions  $K\alpha$  et 7,1 % pour les émissions  $K\beta$ ). Ces incertitudes ont un impact très important sur la mesure d'activité de ce radionucléide. Si l'amélioration des incertitudes des intensités d'émission XK de  $^{93m}\text{Nb}$  semble très difficile à obtenir par des mesures expérimentales, ceci est tout à fait envisageable pour  $^{103m}\text{Rh}$ . C'est le but des deux expériences décrites ci-dessous, visant l'obtention de valeurs d'intensités d'émission XK avec des incertitudes relatives proches de 2 %.

### 6.3.1 Choix de la source radioactive

Il existe trois possibilités pour obtenir une source radioactive de  $^{103m}\text{Rh}$  : par décroissance de  $^{103}\text{Ru}$  (figure 6.12) ou de  $^{103}\text{Pd}$  (figure 6.13) ou par réaction de diffusion inélastique ( $^{103}\text{Rh}(n,n')^{103m}\text{Rh}$ ) en irradiant un échantillon de rhodium, dont le seul isotope stable est le  $^{103}\text{Rh}$ , dans un réacteur nucléaire pour obtenir  $^{103m}\text{Rh}$ .

#### Le rhodium

Le rhodium-103 est le seul isotope stable du rhodium. La réaction de diffusion inélastique permet d'obtenir  $^{103m}\text{Rh}$  et a lieu avec des neutrons d'énergie aux alentours de 1 MeV. Cependant,  $^{103}\text{Rh}$  s'active également avec les neutrons thermiques et forme  $^{104m}\text{Rh}$  et  $^{104}\text{Rh}$ , qui ont respectivement 4,34 min et 42,3 s de période. À l'énergie des neutrons thermiques (25 meV) et des énergies inférieures, la section efficace de capture radiative ( $^{103}\text{Rh}(n,\gamma)^{104}\text{Rh}$ ) peut être très élevée (150-7000 b). Un nombre important d'atomes de  $^{104m}\text{Rh}$  et  $^{104}\text{Rh}$  se formera lors de l'irradiation, toutefois la période de ces deux radionucléides étant très courte, ils ne seront plus présents lors des mesures. Le choix se porte donc sur cette solution qui paraît être la plus simple. Elle permet, en plus, d'obtenir  $^{103m}\text{Rh}$  dans les mêmes conditions qu'en dosimétrie en réacteur. Toutefois, il faut dissoudre le rhodium pour pouvoir effectuer des mesures en scintillation liquide. La préparation d'un échantillon pour l'irradiation doit prendre en compte deux conditions contradictoires :

- Pour irradier le rhodium dans le cœur du réacteur, celui-ci doit être sous forme solide ;
- Pour les mesures en scintillation liquide, l'échantillon de rhodium doit être dissous dans une solution liquide.

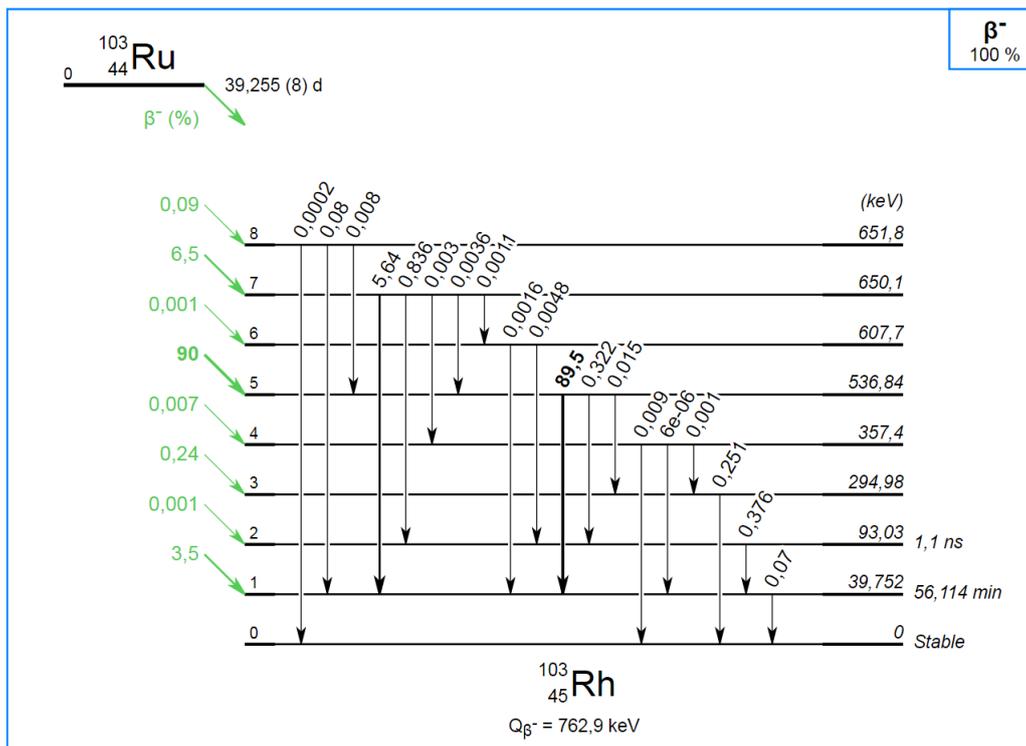


FIGURE 6.12 – Schéma de désintégration de  $^{103}\text{Ru}$

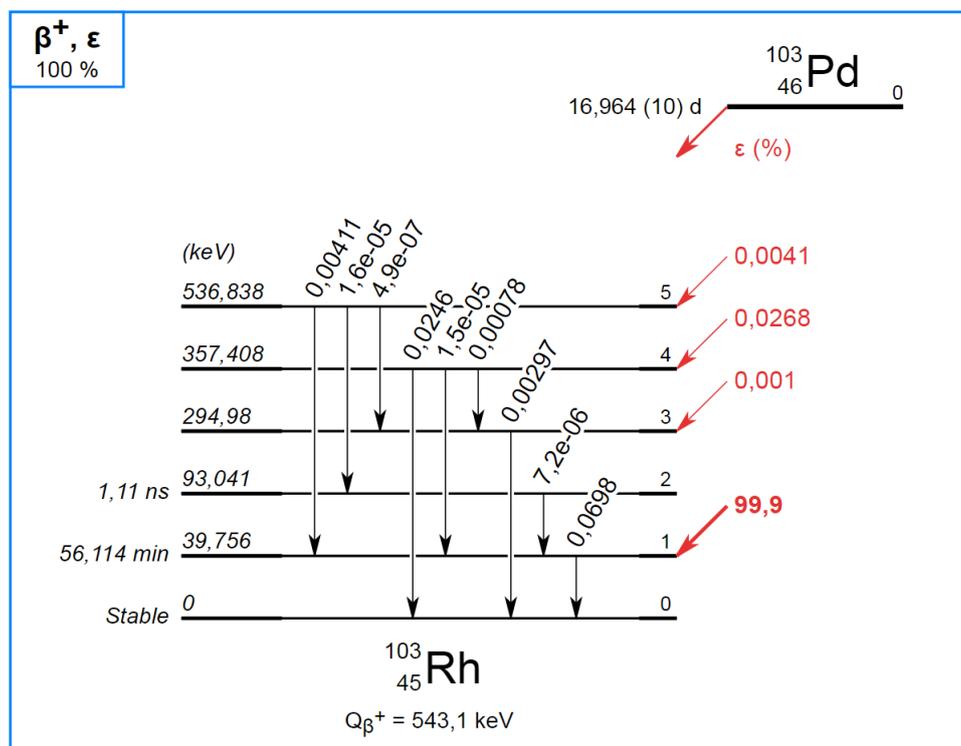


FIGURE 6.13 – Schéma de désintégration de  $^{103}\text{Pd}$

### Le palladium-103

Le palladium-103 a une période radioactive de 17 jours environ et décroît par capture électronique vers  $^{103m}\text{Rh}$  qui, à son tour, décroît par transition isomérique vers l'état fondamental.

Lorsque  $^{103}\text{Pd}$  décroît vers  $^{103m}\text{Rh}$ , il émet des rayons X de la même énergie que lorsque  $^{103m}\text{Rh}$  décroît vers  $^{103}\text{Rh}$  mais avec des intensités d'émissions environ dix fois plus importantes. Par conséquent, il est nécessaire de séparer chimiquement le palladium du rhodium, afin de ne pas mesurer les rayons X de  $^{103}\text{Pd}$  qui seraient alors en équilibre avec le  $^{103m}\text{Rh}$  (voir paragraphe 1.1.4). Pour mesurer du  $^{103m}\text{Rh}$  à partir d'une source de  $^{103}\text{Pd}$ , il convient de séparer chimiquement le palladium du rhodium. Malgré tout, l'utilisation d'une source de  $^{103}\text{Pd}$  pour les mesures d'intensité est possible et envisageable.

## Le ruthénium-103

Le seul moyen d'obtenir une source radioactive de  $^{103}\text{Ru}$  est d'irradier  $^{102}\text{Ru}$  (isotope stable) qui, par capture radiative, va former  $^{103}\text{Ru}$  :  $^{102}\text{Ru}(n,\gamma)^{103}\text{Ru}$ . Le ruthénium-103 décroît ensuite par transition  $\beta^-$  vers  $^{103m}\text{Rh}$  puis vers l'état fondamental. Cependant,  $^{102}\text{Ru}$  n'est pas le seul isotope stable,  $^{96}\text{Ru}$ ,  $^{98}\text{Ru}$ ,  $^{99}\text{Ru}$ ,  $^{100}\text{Ru}$ ,  $^{101}\text{Ru}$  et  $^{104}\text{Ru}$  sont également stables avec des abondances isotopiques non négligeables, il est donc possible que des impuretés soient créées :  $^{97}\text{Ru}$ ,  $^{105}\text{Ru}$  et  $^{106}\text{Ru}$ . Le ruthénium-97 décroît par capture électronique vers  $^{97}\text{Tc}$  puis vers  $^{97}\text{Mo}$ . Le ruthénium-105 et le ruthénium-106 décroissent respectivement vers  $^{105}\text{Rh}$  et  $^{106}\text{Rh}$  par émission  $\beta^-$  puis vers  $^{105}\text{Pd}$  et  $^{106}\text{Pd}$ . Comme pour  $^{103}\text{Pd}$ , il doit être dissous et, pour éviter d'avoir d'autres isotopes que  $^{103m}\text{Rh}$ , il est nécessaire d'effectuer une séparation chimique. Seulement, il y a davantage d'éléments différents que dans le cas précédent (Ru, Tc, Mo, Rh, Pd), ce qui rend la séparation très complexe. Il serait par ailleurs impossible de séparer  $^{103m}\text{Rh}$  de  $^{105}\text{Rh}$  et  $^{106}\text{Rh}$ , et ces impuretés pourraient gêner les mesures en scintillation liquide et en spectrométrie. L'utilisation d'une source de  $^{103}\text{Ru}$  n'est pas le meilleur choix et n'est donc pas envisagée pour cette expérience.

### 6.3.2 Mesures par activation du rhodium

Les intensités d'émissions de  $^{103m}\text{Rh}$  ont été mesurées une première fois à partir de l'activation neutronique d'un échantillon de rhodium dans un réacteur nucléaire. Pour obtenir les intensités absolues, l'activité de la source radioactive doit être déterminée par une méthode primaire. Afin d'y parvenir, nous avons choisi de la mesurer en scintillation liquide, en utilisant la méthode du rapport des coïncidences triples à doubles (RCTD) (voir 6.2.2). Cependant, pour employer cette technique, il est indispensable que la source radioactive soit liquide. Dans le même temps, la même solution radioactive est mesurée en spectrométrie de photons, sur le détecteur GENIX.

#### Dissolution du rhodium

Le rhodium est un métal de transition qui appartient à la famille des platinoïdes. Il est dur, inaltérable et sa configuration électronique fait de lui un métal inerte chimiquement et peu attaqué par la plupart des acides. Des essais ont tout de même été menés au laboratoire pour essayer de dissoudre de la poudre de rhodium pur à 99,95 % puis du chlorure de rhodium,  $\text{RhCl}_3$ .

**Dissolution du rhodium pur :** Les tests ont été effectués avec différents acides : eau régale, acide sulfurique, acide chlorhydrique avec peroxyde d'hydrogène et acide fluorhydrique. Le protocole prévu est d'utiliser un échantillon solide de rhodium pour l'irradiation, cependant il

est plus facile de dissoudre de la poudre. Les essais ont donc été effectués sur de la poudre de rhodium pur. Si le protocole de dissolution fonctionne, il sera ensuite testé sur un échantillon solide de masse équivalente.

**Eau régale :** L'eau régale est un mélange d'acide chlorhydrique (HCl) et d'acide nitrique (HNO<sub>3</sub>). Deux solutions d'eau régale, avec une solution d'acide chlorhydrique pure à 37 % et une solution d'acide nitrique pure à 67 %, ont été préparées dans deux béchers pour cet essai :

- Une solution avec 4 volumes de HCl pour 1 volume de HNO<sub>3</sub>, 20 % de solution de HNO<sub>3</sub> ;
- Une solution avec 2 volumes de HCl pour 1 volume de HNO<sub>3</sub>, 33 % de solution de HNO<sub>3</sub>.

50 mg de poudre de rhodium ont été versés dans deux ballons auxquels les solutions d'eau régale ont été ajoutées. Les deux solutions ont été placées, l'une après l'autre, sur un chauffe-ballon pour pouvoir augmenter la température de la solution dans le ballon et ainsi le potentiel de réaction. Pour éviter l'évaporation des acides, une colonne à reflux est installée en sortie du ballon. Les acides en ébullition se condensent dans la colonne et retombent dans le ballon. Les solutions ont été chauffées pendant 2h30 chacune mais l'eau régale ne semble pas avoir attaqué le rhodium. En effet, après récupération des solutions, le dépôt de poudre de rhodium au fond du ballon est encore bien visible et les masses avant et après essai sont quasiment équivalentes, l'eau régale n'a apparemment dissous que très légèrement le rhodium.

**Acide sulfurique :** Le même matériel et le même procédé que pour l'essai précédent ont été conservés pour cet essai sauf qu'au lieu d'utiliser de l'eau régale, c'est de l'acide sulfurique (H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>) à 98 % qui a été versé dans le ballon, en conservant la même masse de poudre de rhodium, soit 50 mg. Après environ 1h20 de chauffage, la solution est devenue opaque et de couleur rouge brique foncée, ayant l'aspect d'une bouillie très pâteuse (Figure 6.14). La réaction du Rh avec le H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> a formé du sulfate de rhodium : Rh<sub>2</sub>(SO<sub>4</sub>)<sub>3</sub>. Cependant, le sulfate de rhodium est très peu soluble dans l'eau et ne l'est dans aucun autre solvant. Ne pouvant rien faire du mélange obtenu, il n'est pas possible d'utiliser ce procédé pour les mesures d'intensités.



FIGURE 6.14 – Formation du sulfate de rhodium après 80 minutes

**Acide chlorhydrique et peroxyde d'hydrogène :** Comme pour les essais précédents, la même quantité de poudre de rhodium a été versée dans un ballon, puis de l'acide chlorhydrique à 32 % et du peroxyde d'hydrogène ( $H_2O_2$ ) à 30 % préparé à partir d'une solution à 50 % ont été ajoutés. Le ballon a ensuite été placé dans le même montage à reflux. La solution a été chauffée pendant 1h30 et laissée à refroidir pendant la nuit, puis a de nouveau été chauffée pendant 1h30. La solution a pris une couleur pourpre très légère mais il reste un gros dépôt de poudre au fond du ballon : une faible quantité seulement de rhodium a été dissoute.

**Acide fluorhydrique :** Les 50 mg de poudre ont été versés dans un ballon puis une solution d'acide fluorhydrique (HF) a été ajoutée. Cette fois-ci, le ballon n'est pas chauffé car la température d'ébullition de l'acide fluorhydrique est d'environ 19 °C. Après une 1 heure d'agitation de la solution et plusieurs ajouts d'acide, il ne se passe rien, il reste toujours la même quantité de poudre qu'au début de l'essai.

**Autre protocole :** Le Laboratoire d'Analyses Radiochimiques et Chimiques (LARC) situé sur le centre de Cadarache a mis au point un protocole permettant de dissoudre de la poudre de rhodium. Pour 30 mg de poudre, le rendement de dissolution est total. Ce protocole a été testé sur un disque de rhodium tel que ceux utilisés pour la dosimétrie en réacteur : 8 mm de diamètre et 50  $\mu m$  d'épaisseur. Le rendement de dissolution est seulement de 20 % environ, et il est à peine plus élevé pour une pastille de 6  $\mu m$  d'épaisseur. D'autres essais ont été menés pour déterminer si le rendement de dissolution de la poudre de rhodium pur est total pour des masses supérieures à 30 mg, ce qui permettrait d'irradier une masse plus importante. Un premier test a été effectué avec 70 mg de poudre mais le rendement de dissolution n'est pas total, un dépôt important de poudre était encore visible après la récupération de la solution. Un second essai a été effectué avec 50 mg de poudre. Cette fois-ci aucun dépôt de poudre n'a été observé après la récupération, le rendement de dissolution est donc total. En conclusion, pour l'irradiation, le rhodium pulvérulent sera utilisé plutôt que sous forme d'un disque, puisqu'il s'est avéré impossible de le dissoudre sous cette forme.

**Le chlorure de rhodium :** L'ensemble des tests effectués avec les différents acides n'ont pas été concluants pour dissoudre un disque de rhodium pur. Toutefois, il est possible de se procurer du rhodium sous une autre forme : le chlorure de rhodium, de formule  $RhCl_3$ . Le chlorure de rhodium est un solide cristallin qui se présente sous forme de sel. De fait, il a l'aspect d'une poudre de couleur rouge très sombre (voir figure 6.15). Il est beaucoup plus facile à dissoudre que le rhodium, puisque le mélanger à de l'eau est suffisant pour obtenir une solution liquide de chlorure de rhodium.

### **Choix de l'échantillon de rhodium pour l'irradiation**

Que le rhodium soit sous forme de sel à base de chlore ou sous forme de poudre pure, il y a des avantages et des inconvénients quant à son utilisation pour les mesures. Ceux-ci sont présentés dans le tableau 6.3 et discutés ci-dessous :

Le rhodium sous forme pulvérulente est inflammable, et de fait il est interdit en cœur de réacteur nucléaire. Cependant, il est possible de compacter la poudre pour obtenir un disque grâce à une presse hydraulique de 10 tonnes. Ainsi il est autorisé, après cette transformation, de faire irradier la poudre de rhodium en cœur du réacteur. Toutefois, la pastille doit être broyée



FIGURE 6.15 – Chlorure de rhodium sous forme cristalline

	Avantages	Inconvénients
Rhodium pur	<ul style="list-style-type: none"> <li>- Conditions d'irradiations proches de la dosimétrie en réacteur</li> <li>- Mesures en spectrométrie sous forme de pastille (correction de géométrie moins importante)</li> <li>- Pas d'impureté de chlore</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>- Utilisation de la forme pulvérulente (inflammable)</li> <li>- Compactage obligatoire</li> <li>- Broyage avant dissolution (perte de matière non quantifiable)</li> <li>- Temps de dissolution et récupération de la solution très long devant la période de <math>^{103m}\text{Rh}</math></li> <li>- Présence de <math>^{40}\text{K}</math> gênant pour la scintillation liquide</li> <li>- Couleur rouge clair de la solution</li> </ul>
Chlorure de rhodium	<ul style="list-style-type: none"> <li>- Dissolution simple et rapide</li> <li>- Possibilité d'irradier une masse plus importante de rhodium</li> <li>- Moins d'étapes entre la fin d'irradiation et les mesures</li> <li>- Pas de <math>^{40}\text{K}</math> dans la solution</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>- Présence d'impuretés dues au chlore</li> <li>- Couleur rouge opaque de la solution</li> <li>- Corrosion du conteneur</li> </ul>

Tableau 6.3 – Comparaison des avantages et des inconvénients entre le rhodium pur et le chlorure de rhodium

avant la dissolution pour faire revenir le rhodium à l'état pulvérulent. Cette étape prend un peu de temps et il y a surtout un risque de perte de masse de rhodium qui est impossible à quantifier. Il y a d'autres facteurs à prendre en compte : d'une part, la solution finale après dissolution a une couleur rouge grenadine qui provoque du « quenching » en scintillation liquide, certaines longueurs d'onde sont alors absorbées et la source de scintillation est ainsi anisotrope. Ce même inconvénient est rencontré avec le chlorure de rhodium. D'autre part, la solution contient du potassium et donc  $^{40}\text{K}$  dans une certaine proportion qui va générer de l'activité supplémentaire lors de la mesure de la source. Un autre inconvénient est l'importance du temps de dissolution du rhodium pur et de récupération de la solution (entre 2h30 et 2h45) en regard de la période de  $^{103m}\text{Rh}$ . De ce fait, ce sont quasiment trois périodes radioactives du  $^{103m}\text{Rh}$  qui se seront

écoulées, et l'activité risque d'être très faible au moment des mesures. Cependant, il est possible d'effectuer les mesures en spectrométrie alors que le rhodium se trouve sous forme de pastille. Elle serait ensuite broyée et dissoute pour obtenir la solution, la mesure en scintillation liquide ne nécessitant pas des activités importantes (entre 5 et 10 kBq).

Le chlorure de rhodium présente également des inconvénients. Le chlore risque d'être activé par les neutrons thermiques et on obtiendrait alors  $^{36}\text{Cl}$  et  $^{38}\text{Cl}$  avec  $^{103m}\text{Rh}$ , qui gêneraient la mesure en scintillation liquide. Un autre inconvénient est la couleur de la solution liquide de chlorure de rhodium. Sa couleur rouge et opaque provoque également du « quenching » lors des mesures en scintillation liquide. En outre, le chlore n'est autorisé qu'en quantité limitée en cœur de réacteur, du fait de son potentiel corrosif, et doit être isolé physiquement de tout liquide. La poudre de chlorure de rhodium doit donc être placée dans un conteneur étanche, afin d'éviter tout contact avec l'eau de la piscine. Cependant, il y a un risque que le chlore attaque le conteneur, ce qui entraîne l'incrustation de cristaux de chlorure de rhodium dans le matériau du conteneur et ainsi une perte de masse en rhodium. Le risque que le matériau du conteneur se retrouve dans la poudre est également envisageable. Des impuretés additionnelles, pouvant être activées par les neutrons lors de l'irradiation, pourraient se retrouver dans la source radioactive et gêner les mesures, notamment en scintillation liquide.

Aucune forme n'étant totalement satisfaisante à la fois pour la préparation et les mesures, il a finalement été décidé d'irradier de la poudre de chlorure de rhodium en même temps que la poudre de rhodium pur, les deux échantillons ayant été achetés à Sigma-Aldrich Co. LLC. Leur taux de pureté respectif en masse est de 99,95 % et 99,98 %. Ainsi, la mesure des intensités d'émissions à partir du chlorure de rhodium et de la poudre de rhodium pur peut permettre d'obtenir deux résultats, qui devraient être logiquement proches. Étant donné que dans le cas du rhodium pur, il y a davantage d'étapes entre la fin de l'irradiation et les mesures que pour le chlorure de rhodium, et que chacune d'elles ajoute des incertitudes sur le résultat, c'est la mesure des intensités d'émission à partir du chlorure de rhodium qui reste la mesure privilégiée (voir tableau 6.3).

**Conditions et contraintes d'irradiation :** Trois réacteurs nucléaires se situaient sur le centre de Saclay au moment du lancement de l'expérience : OSIRIS, ISIS et ORPHEE. Mais OSIRIS était en cours de fermeture et ORPHEE n'est pas dédié à ce type d'irradiation ; le choix s'est donc porté sur le réacteur ISIS. Il s'agissait de la maquette du réacteur OSIRIS, aujourd'hui tous deux arrêtés, qui fonctionnait à une puissance maximale de 700 kW avec un combustible à base de siliciure d'uranium :  $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$  enrichi à 20 % de  $^{235}\text{U}$ . À l'issue de discussions avec le Service d'Irradiation en Réacteur et d'Études Nucléaires (SIREN), il est apparu que la programmation d'une telle irradiation dans ISIS était réalisable, et les conditions d'irradiation optimales pour les mesures ont été ainsi définies :

- Masse et dimensions de l'échantillon à irradier ;
- Activité de l'échantillon en fin d'irradiation ;
- Durée de l'irradiation ;
- Puissance du réacteur pendant l'irradiation.

Afin d'obtenir une incertitude relative sur la surface des pics inférieure à 1 %, l'activité en fin d'irradiation doit être supérieure à 5 MBq. La période de  $^{103m}\text{Rh}$  étant très courte, l'irradiation et les mesures doivent impérativement avoir lieu dans la même journée. La durée

de l'irradiation ne doit donc pas être trop importante. L'échantillon à irradier sera placé entre les barres de combustibles, le volume occupé par celui-ci ne devra pas être trop élevé. La masse optimale permettant le meilleur compromis entre ces différents paramètres est environ 100 mg de rhodium pur. En irradiant cette masse dans le cœur du réacteur pendant 30 min avec une puissance de 10 kW, l'activité de  $^{103m}\text{Rh}$  atteinte en fin d'irradiation serait celle attendue (5 MBq). À noter qu'il s'agit d'un réacteur « piscine » à eau légère, de fait, la poudre de chlorure de rhodium ne doit en aucun cas être au contact de l'eau.

**Description des échantillons :** La poudre de chlorure de rhodium provient de Sigma-Aldrich, et selon le certificat d'analyse du lot, la poudre est composée de rhodium à 41,1 %. Pour obtenir l'équivalent de 100 mg de rhodium, c'est environ une masse de 216 mg de  $\text{RhCl}_3$  qui doit être irradiée. Le protocole de dissolution ne permettant pas de dissoudre une masse de poudre de rhodium pur supérieure à 50 mg, cette valeur est conservée. Les échantillons à irradier, poudre de  $\text{RhCl}_3$  et pastille de poudre de rhodium pur compactée, doivent être isolés de l'eau de la piscine du réacteur. Ils ont donc été disposés selon la figure 6.16.

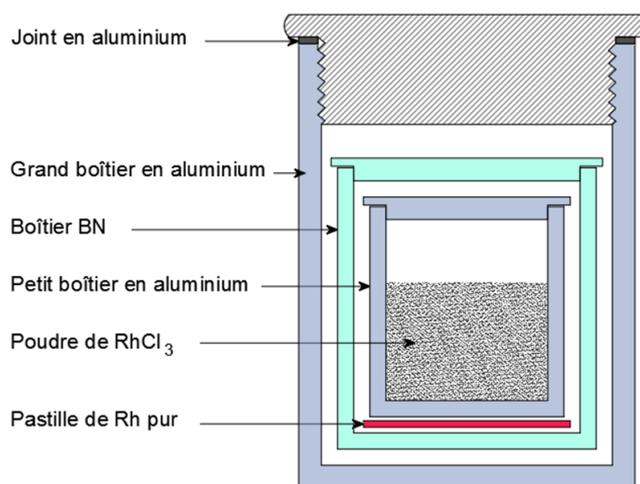


FIGURE 6.16 – Schéma de la disposition des échantillons et des différents boîtiers

La poudre de chlorure de rhodium a été versée dans un premier boîtier en aluminium dont les dimensions sont données dans le tableau 6.4. Quelques essais préalables ont permis de déterminer que le volume interne du boîtier est suffisant pour contenir les 216 mg de  $\text{RhCl}_3$ . Ce premier boîtier aluminium est ensuite placé dans un boîtier en nitrure de bore (« boîtier BN » sur la figure 6.16 et dimensions dans le tableau 6.4).

	Diamètre externe (mm)	Diamètre interne (mm)	Hauteur totale (mm)	Hauteur interne avec couvercle (mm)
Premier boîtier en aluminium	8,5	6,5	7,5	5,5
Boîtier en nitrure de bore	15,5	9,5	14,5	8,5
Second boîtier en aluminium	20,5	18,5	25	15,5

Tableau 6.4 – Dimension des boîtiers contenant les échantillons à irradier

Ce boîtier a un rôle de filtre à neutrons thermiques afin d'empêcher du mieux possible la formation d'isotopes indésirables, comme  $^{36}\text{Cl}$  ou  $^{38}\text{Cl}$ . Un boîtier en cadmium serait plus efficace pour filtrer les neutrons thermiques, cependant contrairement au nitrure de bore, le cadmium s'active avec les neutrons et il faudrait laisser le cadmium « refroidir » quelques heures avant de pouvoir les récupérer. Donc au vu de la période de  $^{103m}\text{Rh}$ , l'utilisation du boîtier en nitrure de bore est plus avantageuse. La pastille de poudre de rhodium pur compactée est placée sous le boîtier en aluminium contenant le chlorure de rhodium, à l'intérieur du boîtier en nitrure de bore. Les deux boîtiers, aluminium et nitrure de bore, sont fermés avec des couvercles clipsés, assurant ainsi une certaine étanchéité. Le boîtier en nitrure de bore est ensuite inséré à son tour dans un second boîtier aluminium dont le couvercle se visse avec un joint aluminium (voir figure 6.16), certifiant l'étanchéité requise pour l'irradiation. La figure 6.17 présente l'ensemble des boîtiers utilisés. Ce second boîtier en aluminium est placé dans un rondin en aluminium spécialement usiné et l'ensemble est introduit dans un faux-four, qui est à son tour inséré dans un emplacement dans le cœur du réacteur ISIS.



FIGURE 6.17 – Photographie des trois boîtiers. De droite à gauche : le premier boîtier en aluminium, le boîtier en nitrure de bore et le second boîtier en aluminium

### Journée-type de mesure

La période radioactive de  $^{103m}\text{Rh}$  est très courte ( $\approx 56$  min) et l'irradiation des échantillons ainsi que la préparation des sources et l'ensemble des mesures doivent donc se dérouler dans la même journée. Pour gagner du temps, le matériel nécessaire à la préparation des sources ainsi que les instruments pour les mesures sont préparés la veille de la journée de l'irradiation. Au LNHB, la poudre de  $\text{RhCl}_3$  est pesée et versée dans le petit boîtier en aluminium (voir (a) sur la figure 6.18) le matin de l'irradiation, afin d'éviter la corrosion de l'aluminium, puis celui-ci est placé avec la pastille de poudre de rhodium pur compactée dans le boîtier en nitrure de bore ((b) sur la figure 6.18). Ce dernier est ensuite inséré dans le grand boîtier en aluminium ((c) sur la figure 6.18).

Le tout est acheminé jusqu'aux personnes en charge des programmes d'irradiation dans le réacteur ISIS, le Service d'Exploitation du Réacteur OSIRIS (SEROS) et le Service d'Irradiation en Réacteur Nucléaire (SIREN). Tel qu'indiqué dans le paragraphe précédent, les échantillons sont placés dans le cœur du réacteur nucléaire ((d) et (e) sur les figures 6.18 et 6.18). Un temps d'attente d'un quart d'heure est nécessaire pour que le réacteur atteigne une puissance

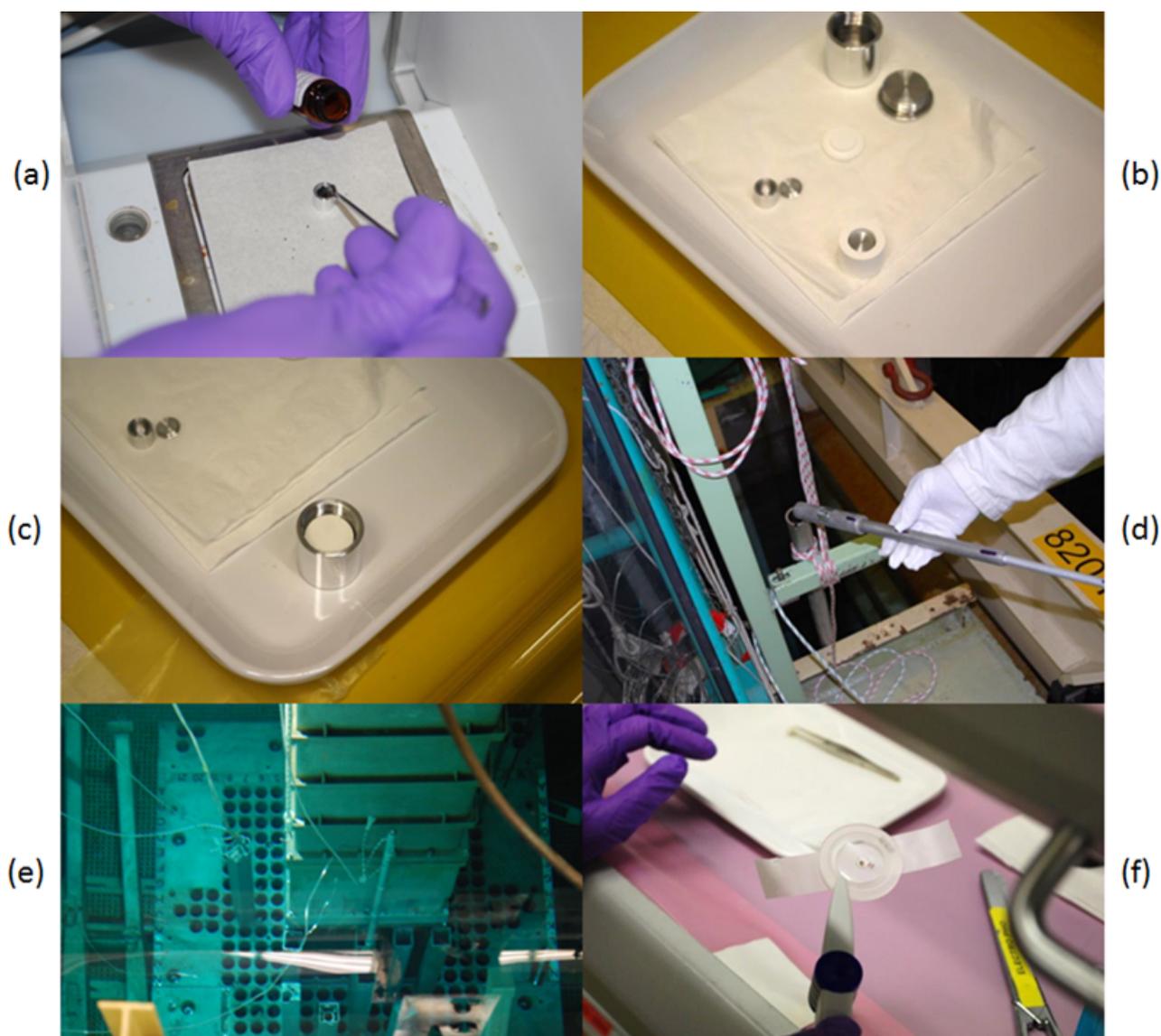


FIGURE 6.18 – (a) Pesée et versement de la poudre  $\text{RhCl}_3$  dans le premier boîtier en aluminium ; (b) Premier boîtier en aluminium dans le boîtier en nitrure de bore ; (c) Boîtier en nitrure de bore dans le second boîtier en aluminium ; (d) Second boîtier en aluminium placée dans le rondin puis à son tour dans le faux-four ; (e) Faux-four rentrant dans l'emplacement prévue pour l'irradiation dans le cœur du réacteur ISIS ; (f) Pastille de rhodium préparée pour la mesure sur GENIX

de 10 kW. Ensuite les échantillons sont irradiés pendant une demi-heure à 10 kW, puis le réacteur est arrêté et un temps d'attente d'environ une heure est nécessaire avant la récupération des échantillons. Seul le boîtier en nitrure de bore contenant les échantillons est rapporté au LNHB.

À réception et après le contrôle dosimétrique et de non-contamination par le Service de Protection Radiologique, les échantillons sont préparés par le pôle source du LNHB. La pastille de poudre compactée de rhodium pur ((f) sur la figure 6.18) est mesurée en spectrométrie, tandis que le chlorure de rhodium est dissous (figure 6.19). Afin de minimiser les corrections d'auto-absorption dans la source liquide de chlorure de rhodium, le plus petit volume d'eau nécessaire ( $600 \mu\text{L}$ ) pour dissoudre les 216 mg de poudre de chlorure de rhodium est versé dessus.

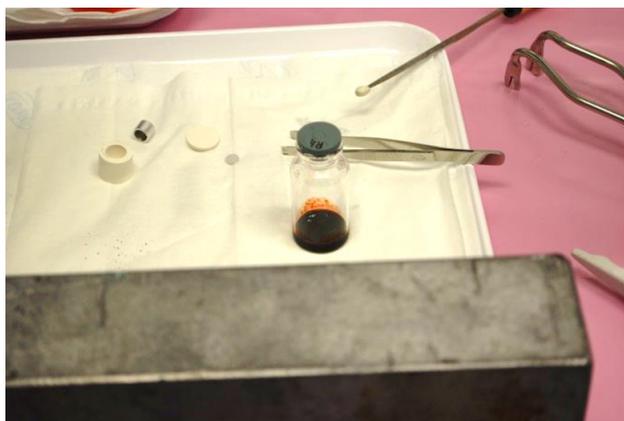


FIGURE 6.19 –  $\text{RhCl}_3$  après le mélange avec l'eau

À partir de la source liquide de  $\text{RhCl}_3$ , cinq sources sont préparées pour les mesures en scintillation liquide (figure 6.20). En prélevant une dizaine de microgrammes de la solution mère de chlorure de rhodium pour chaque source de scintillation liquide, l'activité atteinte est suffisante pour les mesures (entre 5 et 10  $\text{kBq.g}^{-1}$ ). Une centaine de microlitres d'eau est ensuite ajoutée dans le but de diminuer la concentration de  $\text{RhCl}_3$  dans les produits de scintillation liquide. Ainsi cette faible concentration n'induit qu'une très légère coloration des sources de scintillation, ce qui limite la correction due au quenching de couleur. Une fois les mélanges avec les produits scintillants réalisés, l'activité des sources est mesurée par la méthode RCTD.

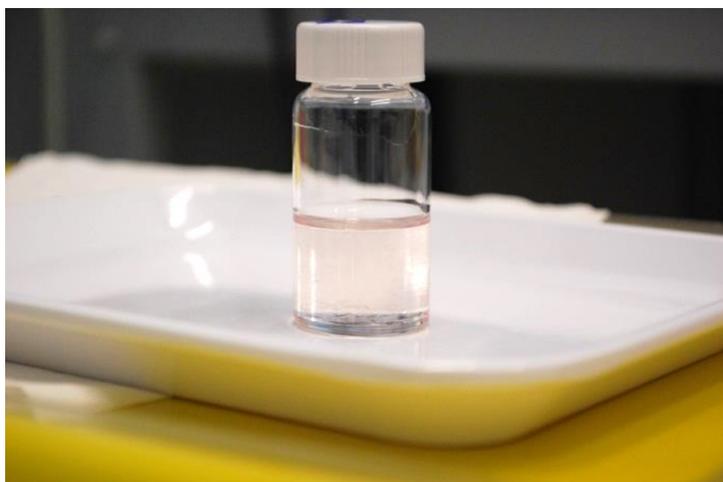


FIGURE 6.20 – Source de scintillation liquide préparée à partir du chlorure de rhodium

Le reste de la solution de  $\text{RhCl}_3$  est versé dans un conteneur en plexiglas spécialement conçu pour l'expérience (figure 6.21) et la mesure en spectrométrie. En parallèle, dès que la mesure de la pastille est terminée, celle-ci est confiée au pôle source pour la dissolution tandis que la solution de chlorure de rhodium est mesurée en spectrométrie (figure 6.22). Après la fin de la dissolution de la pastille, la solution est récupérée, et comme dans le cas du chlorure de rhodium, cinq sources sont préparées pour les mesures en scintillation liquide.

Les sources de  $\text{RhCl}_3$  et de rhodium pur dissoutes sont également mesurées en spectrométrie  $\gamma$  afin de déterminer les impuretés présentes dans les sources et d'estimer leur activité. Un schéma récapitulatif d'une journée de mesure est illustré sur la figure 6.23.



FIGURE 6.21 – Conteneur en plexiglas contenant la solution de chlorure de rhodium liquide

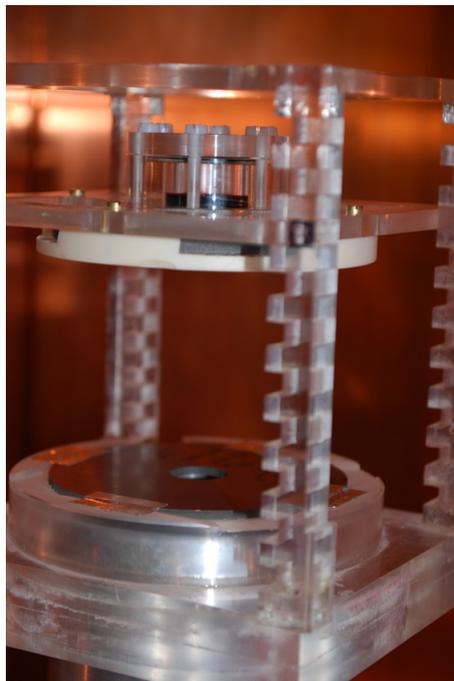


FIGURE 6.22 – Source de chlorure de rhodium en acquisition avec GENIX

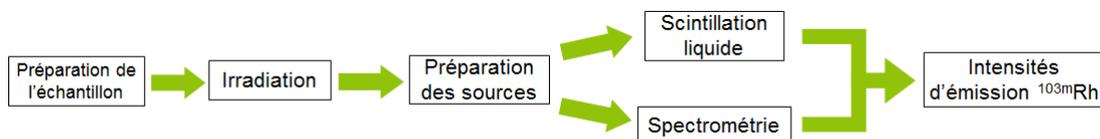


FIGURE 6.23 – Schéma récapitulatif du déroulement d'une journée de mesure

Deux expériences ont été programmées pour la mesure du  $^{103m}\text{Rh}$ . *A priori*, la première était une étape de test, pour vérifier et optimiser les différentes phases de la chronologie ainsi que l'estimation du temps nécessaire à la réalisation de chacune des étapes, avant d'effectuer la deuxième expérience. La première expérience s'étant déroulée correctement, les résultats obtenus serviront également pour la détermination des valeurs des intensités d'émission de  $^{103m}\text{Rh}$ . N'ayant pas le matériel nécessaire pour la dissolution de la poudre de rhodium pur,

seul le chlorure de rhodium a été irradié et mesuré lors de cette journée. Finalement, lors de ces deux journées le  $\text{RhCl}_3$  a été mesuré deux fois, et il n'y a eu qu'une seule mesure pour le rhodium pur. L'ensemble des opérations lors de ces deux journées s'est parfaitement déroulé, mais, lors de la seconde journée, une coupure de courant électrique est survenue durant l'acquisition des mesures de  $\text{RhCl}_3$  en spectrométrie et en scintillation liquide, et pendant que la bombe de minéralisation du rhodium pur était en chauffe dans le four. Cette coupure a duré une dizaine de minutes et les mesures en scintillation liquide ont dû être relancées. L'acquisition du chlorure de rhodium en spectrométrie a dû également être relancée, cependant le premier spectre a pu être conservé, ainsi nous avons obtenu deux spectres.

### Scintillation liquide

Après la dissolution, une goutte de la source radioactive a été mélangée avec un liquide scintillant commercial (Ultima Gold AB) et un peu d'eau, ainsi le problème de quenching de couleur est négligeable pour les mesures des sources scintillantes. La méthode utilisée pour les mesures est celle du rapport des coïncidence triple à double (RCTD) avec le système développé au LNHB. Différents modèles de calcul des probabilités des chemins de réarrangement électronique existent (voir paragraphe 6.2.2) et dans le cas de  $^{103m}\text{Rh}$ , le modèle simplifié KLM suffit car la différence d'énergie entre chaque sous-couche électronique est faible (environ 400 eV entre les énergies de liaison des couches L1 et L3) et aussi parce que les réarrangements atomiques coïncident avec l'absorption des électrons de conversion dans le scintillateur. L'énergie des rayonnements ionisants transférée au cocktail de scintillation liquide est obtenue en utilisant les hypothèses suivantes :

- 1 Les électrons de conversion et Auger sont totalement absorbés par le cocktail ;
- 2 Les rayons XL sont totalement absorbés par le cocktail par interaction photoélectrique ;
- 3 Les rayons XK interagissent avec le cocktail par effet Compton et photoélectrique. L'énergie transférée au cocktail est calculée en utilisant le code de simulation Monte Carlo PENELOPE.

### Spectrométrie de photons

Les mesures du conteneur en plexiglas et de la pastille compactée ont été effectuées sur le détecteur GENIX, avec le support de source positionné au cran n°7, la position d'étalonnage. Les intensités d'émissions XK sont déterminées à partir de la formule suivante :

$$I(E) = \frac{N_P}{A \varepsilon(E) t} \prod_i C_i \quad (6.22)$$

Où  $A$  est l'activité de la source déterminée à partir des mesures en scintillation liquide. La surface sous le pic d'absorption totale a été obtenue grâce au logiciel COLEGRAM, par un ajustement des pics avec des fonctions de Voigt. Les coefficients de correction prennent plusieurs paramètres en compte :

- 1 La correction de période ;
- 2 La correction de décroissance ;
- 3 Le transfert de géométrie.

Le temps d'acquisition a été fixé à 7200 s, ainsi l'incertitude due à la statistique de comptage est inférieure à 1 %, sans pour autant entraîner une correction de décroissance trop importante. Le facteur de transfert de géométrie a été déterminé à partir de simulations effectuées sur PENELOPE, pour un volume de source radioactive identique à celui de la source de  $\text{RhCl}_3$  et de la pastille.

## Résultats

La valeur des intensités d'émission des photons est directement liée à l'activité de l'échantillon mesuré en scintillation liquide. Cependant, une nouvelle difficulté apparaît lors des calculs du rendement de détection en scintillation liquide. En effet, pour calculer ce rendement, il est nécessaire de calculer les énergies moyennes des émissions électroniques et photoniques des chemins de réarrangement (voir la partie concernant la scintillation liquide). Or, le schéma de  $^{103m}\text{Rh}$  est incertain. Les raies d'émissions des électrons Auger sont peu détaillées et les intensités mal connues (fortes incertitudes) et il en va de même pour les émissions des électrons de conversion. La raison de cette méconnaissance est l'incertitude quant à la nature de la multipolarité de la transition  $\gamma$  ce qui entraîne des incertitudes importantes sur les valeurs des coefficients de conversion interne du radionucléide.

**Multipolarité de  $^{103m}\text{Rh}$  :** Comme cela a été présenté dans le paragraphe 1.1.2, les transitions  $\gamma$  sont rangées selon plusieurs ordres, qui sont fonctions du moment cinétique orbital, de nombre quantique L. Dans le cas de  $^{103m}\text{Rh}$ , L = 3 avec un changement de parité et la multipolarité associée à la transition est donc E3. Mais elle est probablement en compétition avec la transition L = 4, dont la nature est de type M4. Actuellement la multipolarité de la transition  $\gamma$  de  $^{103m}\text{Rh}$  est considérée comme étant E3 (+ 0,08%M4) ; la transition M4 est notée entre parenthèses car, le mélange des deux transitions E3 et M4 n'est pas sûr. De même, le rapport entre les deux types de transition est mal connu. Cette incertitude sur la multipolarité entraîne ainsi une incertitude sur les valeurs des coefficients de conversion interne total et pour chacune des couches ( $\alpha_T$ ,  $\alpha_K$ ,  $\alpha_L$ , etc.).

**Conversion interne du  $^{103m}\text{Rh}$  :** Dans le cas du  $^{103m}\text{Rh}$ , il n'y a qu'une seule transition  $\gamma$  dont la probabilité est de 100 % et elle est fortement convertie. Pour une transition purement E3,  $\alpha_T = 1403$  (20) et dans le cas d'une transition E3 + 0,08%M4,  $\alpha_T = 1448$  (22) (BrIcc). Actuellement, la multipolarité et les coefficients de conversion interne ont été déterminés à partir d'anciennes mesures des intensités d'émission des rayons X. Ainsi, la multipolarité est considérée comme le mélange d'une E3 et une M4. Son influence sur les coefficients de conversion interne, calculés en utilisant le code BrIcc, est présentée dans le tableau 6.5 où :

$$Peci = \frac{\alpha_i}{1 + \alpha_T} \quad (6.23)$$

On peut observer que la différence entre les coefficients de conversion obtenus avec les deux hypothèses sur la multipolarité de la transition sont compatibles aux incertitudes près, donc la multipolarité de la transition n'aura que peu d'influence sur le rendement de détection en scintillation liquide. Ainsi les valeurs utilisées pour le déterminer sont les valeurs moyennes de chaque donnée avec les écarts-types associés et sont présentées sur le tableau 6.6.

$^{103m}\text{Rh}$	Données					
	E3	Incertitudes	E3 + 0,05%M4	Incertitudes	Écart	Incertitudes
PecK	0,0963	0,0014	0,0983	0,0035	-0,0020	0,0037
PecL	0,732	0,011	0,730	0,015	0,0023	0,019
PecM	0,1489	0,0021	0,1492	0,0035	-0,0023	0,019
PecN+	0,02180	0,00036	0,02184	0,00049	0,0000	0,0006
$\alpha_K$	135,2	1,9	141	5		
$\alpha_L$	1028	15	1047	22		
$\alpha_M$	209	3	214	5		
$\alpha_{N+}$	30,61	0,5	31,3	0,7		
$\alpha_T$	1403	15	1433	23		

Tableau 6.5 – Comparaison des données obtenues avec les deux multipolarités (E3 et E3 + 0,05%M4) pour la transition gamma à 39,76 keV du  $^{103m}\text{Rh}$ .  $Peci$  correspond à la probabilité de conversion interne d'un électron de la couche  $i$  et  $\alpha_i$  correspond au coefficient de conversion interne de la couche  $i$

	Énergie (keV)	Électrons (pour 100 désint.)		Énergie (keV)	Photons (pour 100 désint.)
$e_{AL}$	1,7 - 3,0	78,6 (5)	XL	2,3702 - 3,3663	4,08 (9)
$e_{AK}$					
KLL	16,286 - 17,097		XK $\alpha_2$	20,074	2,25 (6)
KLX	19,138 - 20,214	1,86 (8)	XK $\alpha_1$	20,216	4,27 (9)
KXY	21,966 - 23,215				
$eC_T$	16,536 - 39,754	99,912 (1358)	XK' $\beta_1$	22,699 - 22,914	1,161 (35)
$eC_K$	16,536 (6)	9,73 (26)	XK' $\beta_2$	23,173 - 23,217	0,190 (9)
$eC_L$	36,344 - 36,752	73,1 (13)			
$eC_M$	39,129 - 39,449	14,90 (29)			
$eC_{N+}$	39,675 - 39,754	2,182 (43)			

Tableau 6.6 – Énergies et intensités des émissions électroniques et X pour la décroissance de  $^{103m}\text{Rh}$

**Résultats des mesures :** Les premiers résultats de la mesure d'activité en scintillation liquide et leurs incertitudes sont présentés dans le tableau 6.7. L'activité et l'incertitude utilisées pour la mesure d'intensité est la valeur moyenne de l'activité de quatre des cinq sources, celle de la cinquième n'étant plus suffisante. On obtient ainsi l'activité massique moyenne à 12h00 UTC :  $A_{Rh} = 678,2 (29) \text{ kBq.g}^{-1}$ . L'incertitude-type composée sur le rendement de détection est calculée en utilisant une méthode Monte Carlo selon le Guide pour l'expression de l'Incertitude de Mesure (GUM), supplément 1. En considérant les fluctuations gaussiennes des paramètres du schéma de décroissance et le paramètre de Birks,  $kB$ , les fluctuations expérimentales de la valeur du RCTD ainsi que la statistique de comptage, l'incertitude relative sur le rendement de détection est 0,37 % (tableau 6.7). L'incertitude-type composée relative sur la valeur de l'activité spécifique de la solution est de 0,43 %, en considérant les incertitudes-types relatives sur la pesée des sources (0,10 %), les paramètres de la méthode Monte Carlo (0,16 %) et le

temps actif (0,10 %).

Source	1	2	3	4	Moyenne
Taux de comptage ( $s^{-1}.g^{-1}$ )	757 734	761 352	758 555	764 102	
Rendement de détection	0,9431	0,9432	0,9431	0,9432	
Écart-type	0,0015	0,0015	0,0015	0,0015	
A ( $Bq.g^{-1}$ )	803 450,323	807 201,018	804 837,897	810 116,624	806 272,206
Écart-type	1 285,521	1 291,522	1 287,741	1 296,187	3 022,859
Écart relatif uA	0,16 %	0,16 %	0,16 %	0,16 %	0,37 %

Tableau 6.7 – Résultats de la mesure d’activité de la poudre de chlorure de rhodium en scintillation liquide, mesures effectuées à 11h46 UTC

L’activité mesurée au cours de la seconde journée a pu être utilisée, cependant seules les mesures du  $RhCl_3$  ont pu être exploitées. En effet, à cause de l’incident de coupure électrique, l’activité des sources fabriquées à partir de la dissolution du rhodium pur n’était plus suffisante pour obtenir une incertitude correcte sur la mesure d’activité en scintillation liquide. Pour le  $RhCl_3$ , les mesures donnent une activité spécifique moyenne à 12h00 UTC :  $A_{Rh} = 21,19$  (12)  $kBq.g^{-1}$ . L’incertitude-type relative sur le rendement de détection est 0,55 %. En considérant les autres composantes de l’incertitude, la pesée des sources (0,10 %), les paramètres de la méthode Monte Carlo (0,15 %) et le temps actif (0,10 %), l’incertitude-type composée relative sur la valeur de l’activité spécifique de la solution est de 0,59 %.

Pour les mesures en spectrométrie, les résultats pour les coefficients de transfert de rendement pour les raies  $K\alpha$ ,  $K\beta$  et  $\gamma$  sont présentés dans le tableau 6.8, pour la première journée de mesures, et dans le tableau 6.9, pour la seconde journée, avec les incertitudes-types associées. Les conteneurs utilisés pour les deux journées sont différents, ce qui explique la différence entre les valeurs des coefficients de transfert. Ceux-ci ont des valeurs élevées et ont donc une influence significative sur les intensités d’émission. Leur incertitude est la source principale de l’incertitude finale sur les intensités d’émission.

Énergie (keV)	Coefficient de transfert de rendement	Incertitude absolue (k=1)	Incertitude relative
$K\alpha$ : 20,167	3,35	0,07	1,94 %
$K\beta$ : 22,781	2,85	0,05	1,81 %
$\gamma$ : 39,756	2,77	0,05	1,74 %

Tableau 6.8 – Coefficients de transfert de rendement d’une source ponctuelle à une source volumique obtenus par simulation Monte Carlo - première journée

Les premiers résultats sur les mesures des intensités d’émission et leurs incertitudes sont présentés dans le tableau 6.10, pour la première journée de mesures, et dans le tableau 6.11, pour la seconde. Les résultats obtenus lors de ces deux journées sont compatibles entre eux aux incertitudes près, il est ainsi possible d’effectuer la moyenne pondérée des incertitudes entre les deux séries de résultats, présentée dans le tableau 6.12.

Premièrement, on peut remarquer que les incertitudes sur les intensités d’émission ont été réduites, notamment dans le cas des rayons X. Les incertitudes-types composées relatives sur

Énergie (keV)	Coefficient de transfert de rendement	Incertitude absolue (k=1)	Incertitude relative
K $\alpha$ : 20,167	3,34	0,06	1,80 %
K $\beta$ : 22,781	2,57	0,04	1,56 %
$\gamma$ : 39,756	2,47	0,04	1,62 %

Tableau 6.9 – Coefficients de transfert de rendement d’une source ponctuelle à une source volumique obtenus par simulation Monte Carlo - seconde journée

Raies d’émission	Intensités d’émission	Incertitude absolue (k=1)	Incertitude relative
X K $\alpha$	0,07111	0,00177	2,5 %
X K $\beta$	0,01407	0,00036	2,6 %
X K $_{tot}$	0,08518	0,00181	2,1 %
$\gamma$	0,0008122	0,0000388	4,8 %

Tableau 6.10 – Intensités d’émission des photons lors de la décroissance du  $^{103m}\mathbf{Rh}$  - première journée

Raies d’émission	Intensités d’émission	Incertitude absolue (k=1)	Incertitude relative
X K $\alpha$	0,07064	0,00177	2,5 %
X K $\beta$	0,01384	0,00034	2,5 %
X K $_{tot}$	0,08448	0,00181	2,1 %
$\gamma$	0,0008317	0,0000363	4,4 %

Tableau 6.11 – Intensités d’émission des photons lors de la décroissance du  $^{103m}\mathbf{Rh}$  - seconde journée

Raies d’émission	Intensités d’émission	Incertitude absolue (k=1)	Incertitude relative
X K $\alpha$	0,0709	0,0017	2,5 %
X K $\beta$	0,0139	0,0003	2,5 %
X K $_{tot}$	0,0848	0,0018	2,1 %
$\gamma$	0,00082	0,00004	4,8 %

Tableau 6.12 – Résultats sur les intensités d’émission des photons lors de la décroissance du  $^{103m}\mathbf{Rh}$

les présentes mesures étant de 2,5 % et sont à comparer à celles des valeurs recommandées (entre 5,5 % et 7 %). Deuxièmement, il apparaît une incohérence dans l’intensité d’émission du rayon  $\gamma$  obtenue à la suite de nos mesures,  $I_\gamma = 0,082$  (4) %. En effet, pour une transition isomérique unique ( $P_\gamma = 100$  %), les intensités d’émission des photons sont directement liées

aux coefficients de conversions totaux,  $\alpha_T$ , et partiels,  $\alpha_K$  (voir chapitre 1) :

$$I_{XK} = \frac{\alpha_K}{1 + \alpha_T} \omega_K P_\gamma \quad (6.24)$$

$$I_\gamma = \frac{1}{1 + \alpha_T} P_\gamma \quad (6.25)$$

Par conséquent, pour une pure transition E3,  $I_\gamma = 0,071$  (1) %, et l'intensité d'émission diminue avec mélange de la transition M4, puisque le coefficient de conversion total augmente (tableau 6.5). Ce résultat incohérent peut être expliqué par la faible statistique de comptage sous le pic d'absorption totale du rayonnement  $\gamma$  et la forte incertitude relative associée (environ 5 %). Ensuite, un rapport de mélange de la transition correspondant à la mesure de l'intensité d'émission des rayons X a été calculé : E3 + %M4. Un nouveau jeu de données de coefficients de conversion est ainsi obtenu pour recalculer le rendement de détection des mesures RCTD. Toutefois, il apparaît que la mesure de l'activité est quasiment indépendante du rapport de mélange. Effectivement, la différence entre les deux jeux de données est très faible et peut être négligée. Ainsi, l'itération s'arrête dès le premier essai et les intensités d'émission XK présentées dans le tableau 6.12 sont donc les résultats définitifs de cette étude. Le tableau 6.13 et la figure 6.24 résument les valeurs expérimentales obtenues lors de ces travaux et les comparent avec d'autres valeurs expérimentales trouvées dans la littérature. En premier, on peut observer que les mesures d'intensités les plus récentes ont été effectuées il y a plus de vingt ans et la majorité d'entre elles datent des années 1960-70. Les mesures sont également dispersées et la plupart ne sont pas compatibles compte-tenu de leurs incertitudes. Les valeurs obtenues dans ce travail sont en bon accord avec celles de Vaninbroux et Zehner (1981) ainsi qu'avec celles de Grunditz (1969) mais pas avec celles de Perolat (1976) et Schötzig (1994). Il est à noter que Vaninbroux et Zehner (1981) et Perolat (1976) ont tous les deux mesuré les intensités d'émission XK avec des conditions très similaires, c'est-à-dire que le  $^{103m}\text{Rh}$  a été séparé d'une source de  $^{103}\text{Pd}$ , que l'activité a été mesurée par scintillation liquide et que la mesure des rayons X a été effectuée avec soit un compteur proportionnel sous pression (Perolat) soit un détecteur Si(Li) (Vaninbroux), mais les résultats obtenus sont très différents et incompatibles entre eux. Schötzig (1994) a calculé les intensités d'émission X à partir de la désintégration de  $^{103}\text{Ru}$ , dont le schéma est très complexe, donc beaucoup de corrections ont été prises en compte.

Selon cette première expérience, il apparaît que l'intensité d'émission  $\gamma$  est incompatible avec celles des rayons X et la multipolarité de la transition  $\gamma$ . Par conséquent, une nouvelle série de mesures à partir d'une source de  $^{103}\text{Pd}$  de très haute activité a été planifiée dans le but de mesurer avec plus de précision l'intensité d'émission du rayon  $\gamma$  et de fournir des mesures additionnelles de celles des rayons X, mais avec une approche expérimentale complémentaire à cette étude.

### 6.3.3 Mesures à partir d'une source de $^{103}\text{Pd}$

Comme cela a été dit précédemment,  $^{103}\text{Pd}$  se désintègre très majoritairement vers  $^{103m}\text{Rh}$  par capture électronique. Des mesures complémentaires à celles effectuées par irradiation d'un échantillon de rhodium sont indispensables pour apporter une réponse quant au schéma de désintégration de  $^{103m}\text{Rh}$ . Le palladium-103 est très utilisé dans le domaine médical, notamment pour le traitement du cancer de la prostate, mais peu en France. Cependant, il est possible de

Auteurs	Intensités d'émission (%)	Incertitude absolue
Bresemi (1967) [97]	7,00	0,35
Vuorinen (1967) [98]	7,70	0,65
Grunditz <i>et al.</i> [99] (1969)	8,4	0,7
Ing and Cross (1973) [100]	7,03	0,44
Santry and Butler (1974) [101]	6,97	0,28
Czock <i>et al.</i> (1975) [102]	6,76	0,15
Perolat <i>et al.</i> (1976) [103]	7,53	0,22
Vaninbroukx and Zehner (1981) [104]	8,43	0,13
Schötzig (1994) [105]	7,66	0,14
Mesures LNHB (2017)	8,48	0,18

Tableau 6.13 – Résultats des mesures des intensités d'émission XK de  $^{103m}\text{Rh}$  comparés avec les résultats publiés

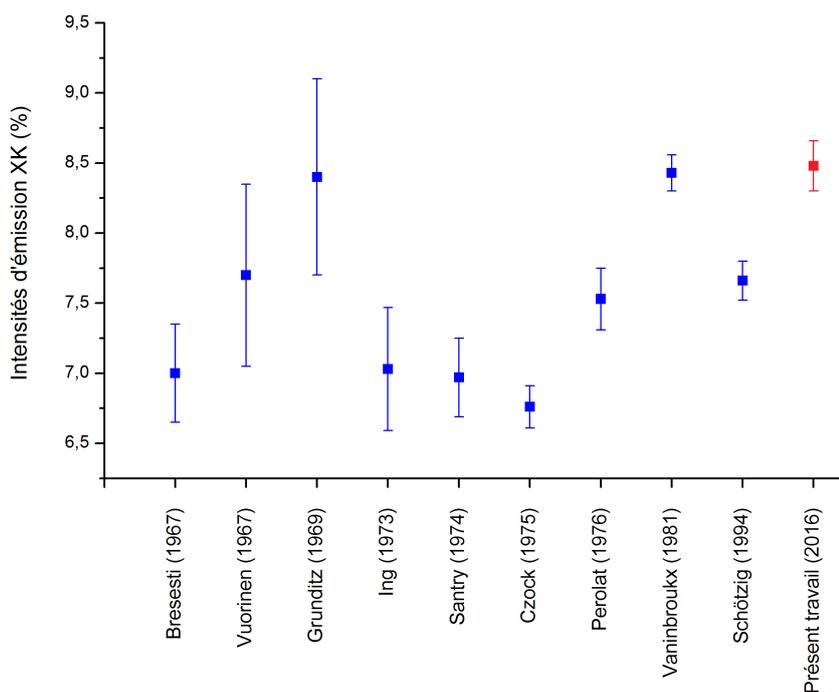


FIGURE 6.24 – Comparaison des valeurs expérimentales des intensités d'émission XK du  $^{103m}\text{Rh}$

s'en procurer aux Etats-Unis ou au Canada. Une première demande a été effectuée auprès de Eckert & Ziegler, qui avait fourni une source de  $^{103}\text{Pd}$  au LNHB pour de précédentes mesures. Cet approvisionnement n'étant plus possible, une demande a été effectuée auprès de Nordion, entreprise canadienne dans le domaine de la médecine nucléaire. Cependant, étant fournisseur d'hôpitaux, Nordion ne livre des sources qu'avec des activités minimum de 37 GBq. Disposant d'une activité très importante, pour les mesures de  $^{103m}\text{Rh}$  l'activité nécessaire étant de quelques dizaines de MBq, des mesures sur les intensité des émissions  $\gamma$  de  $^{103}\text{Pd}$  ont également

été programmées, ainsi que la mesure de la période des deux éléments.

## Données

Une description détaillée des données caractérisant  $^{103m}\text{Rh}$  a été fournie dans le paragraphe 6.3.2. Sa période a été peu mesurée et les mesures sont anciennes (voir tableau 6.14); la valeur actuelle résulte de la moyenne pondérée de seulement quatre des derniers résultats.

Auteurs	Période du $^{103m}\text{Rh}$ (minutes)	Incertitude absolue
Jones (1957) [106]	57,5	0,5
Day (1963) [107]	57,0	0,7
Brisbois (1964)	57,0	0,5
Vuorinen (1967) [98]	56,6	0,4
Abrams (1967) [108]	56	1
Ishimori (1969)	56,6	0,6
Günther (1973) [109]	56,116	0,009
Santry (1974) [101]	56,3	0,6
Lagoutine (1978) [110]	56,112	0,028
Vaninbroukx (1981) [111]	56,114	0,010
Walz (1983) [112]	56,115	

Tableau 6.14 – Mesures de la période radioactive de  $^{103m}\text{Rh}$  précédemment publiées

Le cas de  $^{103}\text{Pd}$  est un peu plus complexe. Les valeurs d'intensités des émission X résultent de la tentative de l'équilibrage du schéma de désintégration à partir des mesures des émissions  $\gamma$  et plus particulièrement de l'émission principale dont l'énergie est 357 keV environ. Cette émission étant théoriquement très faible (aux alentours de 0,025 %), les autres résultats reposent sur la mesure de son intensité relativement à celles des rayons XK émis par  $^{103}\text{Pd}$  (voir tableau 6.15).

Auteurs	Intensité relative $I_\gamma/I_{XK}$ ( $10^{-2}$ )	Incertitude absolue
Rietjens (1954) [113]	7,2	0,8
Saraf (1955) [114]	8,3	1,3
Avignon (1955) [115]	21	4
Grunditz (1969) [99]	8,5	0,7
Macias (1976) [116]	2,99	0,09
Newton - Harwell (1978) [117]	3,24	0,07
Newton - Livermore (1978) [117]	3,01	0,1
Bazhenov (1985) [118]	3,27	0,03

Tableau 6.15 – Intensité relative de  $\gamma$  à 357 keV par rapport aux rayons XK de  $^{103}\text{Pd}$

Ces valeurs sont très éparses et seulement quatre ont été retenues, ce qui donne une intensité relative moyenne de  $3,192(78) \cdot 10^{-2}$ . En multipliant par l'intensité absolue d'émission

XK, le résultat est l'intensité absolue du  $\gamma$ . Les intensités d'émission des rayons XK de  $^{103}\text{Pd}$  ont également fait l'objet de mesures, mais elles sont peu nombreuses et peu précises (voir tableau 6.16).

Auteurs	Intensités $I_{XK}$ mesurées (%)	Incertitude absolue
Rietjens (1954) [113]	83	4
Grunditz (1969) [99]	72	5
Macias (1976) [116]	79,85	5,4
Bazhenov (1985) [118]	74	1

Tableau 6.16 – Intensité des rayons XK de  $^{103}\text{Pd}$

Ainsi, les intensités d'émission XK actuelles ne résultent pas de mesures mais du calcul à partir des probabilités de capture et de conversion interne, soit  $I_{XK} = 0,7702$  (28). L'intensité absolue de l'émission  $\gamma$  de 357 keV du  $^{103}\text{Pd}$  a ainsi été obtenue à partir du produit de l'intensité relative moyenne par celle des rayons XK, ce qui donne une valeur de  $I_\gamma = 0,0246$ . Les intensités des autres émissions  $\gamma$  ont fait l'objet d'une seule mesure expérimentale. La période de  $^{103}\text{Pd}$  a fait l'objet de mesures fournissant des résultats très précis, voir tableau 6.17. L'activité de la solution reçue étant très intense, il y a l'opportunité de fabriquer de nombreuses sources radioactives pour pouvoir effectuer des mesures sur  $^{103m}\text{Rh}$  mais aussi sur  $^{103}\text{Pd}$ . Les mesures effectuées sur ce dernier pourraient être profitables à une nouvelle évaluation, celui-ci ne figurant pas dans la table des données recommandées du fait notamment de son schéma qui n'est pas équilibré.

Auteurs	Période du $^{103}\text{Pd}$ (jours)	Incertitude absolue
Meinke (1953) [119]	17	0,4
Rietjens (1954) [113]	17,5	0,5
Panontin (1968) [120]	16,9	0,1
Grunditz (1969) [99]	18,4	0,5
Czock (1975) [121]	16,961	0,007
Czock (1975) [121]	16,940	0,016
Czock (1975) [121]	16,936	0,012
Vaninbroukx (1981) [111]	16,991	0,009
Popov (2003) [122]	16,8	0,6

Tableau 6.17 – Période radioactive de  $^{103}\text{Pd}$

### Source de $^{103}\text{Pd}$

La source de  $^{103}\text{Pd}$  commandée auprès de Nordion se présente sous forme liquide. Il s'agit de chlorure de palladium dilué dans une solution d'hydroxyde d'ammonium, dont le pH est compris entre 7 et 11. La source a été livrée avec une activité volumique d'environ  $48 \text{ GBq.mL}^{-1}$  et un taux de radio-impuretés inférieur à 0,02 %. Après réception de la source au LNHB, une première dilution a été effectuée pour diminuer son activité massique. Puis un petit prélèvement a été

opéré sur la solution et versé dans un tube « RIA » dans le but d'effectuer une spectrométrie  $\gamma$ . En effet, une demande auprès de Nordion a été envoyée pour connaître les éventuelles impuretés radioactives dans la solution, mais la réponse est restée négative. Une mesure pour s'assurer de la présence ou non d'impuretés radioactives ainsi que leur activité est donc nécessaire. Une fraction de la source de  $^{103}\text{Pd}$ , dont l'activité a été estimée à 450 kBq a été placée sur un spectromètre  $\gamma$ . Le taux d'impuretés est indiqué comme inférieur à 0,02 %, ce qui fait une activité maximale de 90 Bq, soit une activité très faible mais toujours supérieure à la limite de détection. La source a donc été placée au plus près du détecteur. Aucune présence de radionucléides autres que  $^{103}\text{Pd}$  et  $^{103m}\text{Rh}$  n'a été observée.

### Séparation palladium/rhodium

Le palladium-103 se désintègre vers les niveaux excités du rhodium-103 par capture électronique (voir figure 6.13, paragraphe 6.3.1), très majoritairement vers  $^{103m}\text{Rh}$ . Ainsi, lors de la relaxation atomique suivant la capture électronique, les rayons X émis sont ceux du rhodium, d'énergies identiques à ceux de  $^{103m}\text{Rh}$ . Compte tenu des périodes relatives, la période de  $^{103}\text{Pd}$  ( $\approx 17$  j) étant bien supérieure à celle du  $^{103m}\text{Rh}$  ( $\approx 56$  min), les deux radionucléides sont ainsi à l'équilibre au bout de 10 périodes du  $^{103m}\text{Rh}$ , soit un peu plus de 9 h. La source de palladium est à l'équilibre séculaire dès la réception au laboratoire. Pour pouvoir mesurer les rayons X lors de la désintégration du  $^{103m}\text{Rh}$ , il est nécessaire de le séparer de  $^{103}\text{Pd}$  pour réduire autant que possible la contribution de ce dernier dans les émissions XK caractéristiques du rhodium, d'autant que la valeur des intensités concernant celui-ci ne sont pas sûres. De plus, pour les mesures en scintillation liquide, il est également nécessaire de limiter au maximum la contribution de  $^{103}\text{Pd}$ , du fait de ses interférences.

Afin de permettre de reproduire les mesures sur  $^{103m}\text{Rh}$ , la solution envisagée a été de réaliser un générateur de  $^{103m}\text{Rh}$  en fixant  $^{103}\text{Pd}$  sur une colonne de résine échangeuse d'ions. En effet, la chromatographie gravitationnelle sur colonne ouverte est une méthode simple, peu coûteuse à mettre en œuvre et transposable en boîte à gants si nécessaire. Il convient de choisir la résine qui permet, dans des conditions chimiques à définir, de retenir  $^{103}\text{Pd}$  sans que, idéalement,  $^{103m}\text{Rh}$  soit retenu.

Le choix de la résine adéquate s'est fait en fonction de la réactivité chimique des deux éléments à séparer, qui font tous les deux partie de la famille des platinoïdes. Ils ont la propriété de former des complexes anioniques stables en milieu chlorhydrique concentré. Par conséquent, ils peuvent potentiellement être séparés par résine anionique. La résine utilisée est l'AG1-X8 qui est une résine échangeuse d'anions : les ions chlorure maintenus dans la résine par action électrostatique peuvent être échangés dans la solution au contact de la résine.

L'établissement du protocole de séparation a consisté à trouver le meilleur compromis entre une bonne fixation de  $^{103}\text{Pd}$  et une rétention faible de  $^{103m}\text{Rh}$  en ajustant la taille des grains de la résine et le milieu chimique de rétention/élution. En parallèle, une fois les conditions de séparation établies, la fraction d'intérêt a été identifiée, c'est-à-dire celle qui contient l'activité massique maximale en  $^{103m}\text{Rh}$ . Parmi les deux granulométries de la résine qui ont été testées, c'est la plus fine qui est la plus performante pour la séparation.

Les courbes de la figure 6.25 représentent l'évolution des coefficients de partage de divers éléments chimiques en fonction de la concentration en acide chlorhydrique (à gauche) et nitrique (à droite) exprimés en  $\text{mole.L}^{-1}$ .

Le coefficient de partage ( $k'$ ) d'un élément est le rapport de sa concentration fixée sur la

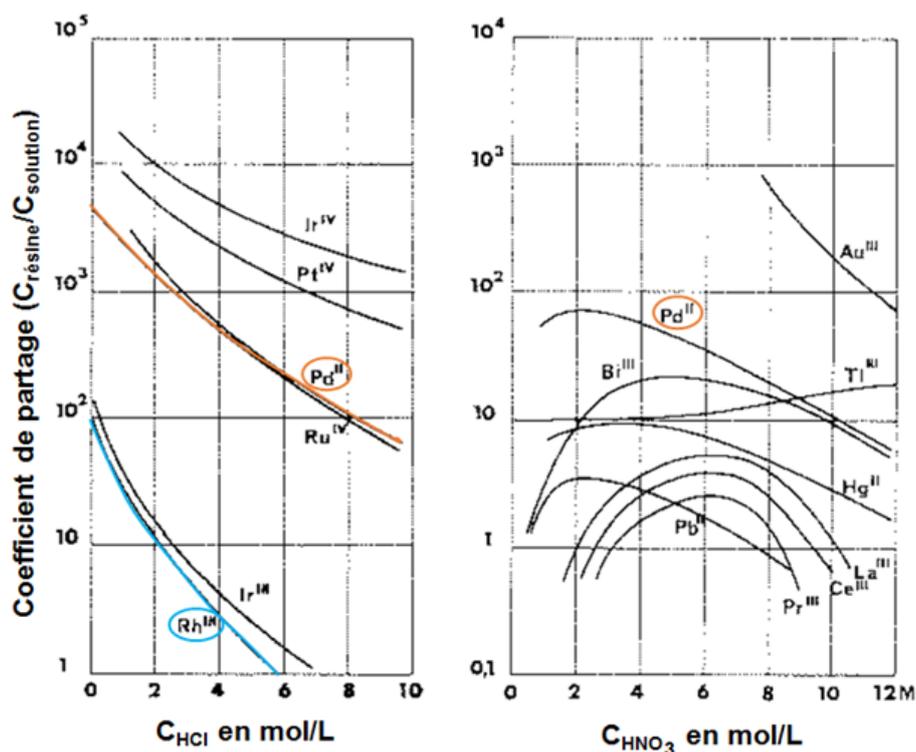


FIGURE 6.25 – Évolution des coefficients de partage des platinoïdes en fonction de la concentration en acide chlorhydrique (à gauche) et nitrique (à droite) en mole/L

résine par sa concentration en solution dans l'éluant. Plus il est élevé, plus l'élément est retenu. Le coefficient de partage du palladium doit de fait être le plus élevé possible par rapport à celui du rhodium pour un milieu chimique donné. L'étude des courbes de rétention de la résine en milieu chlorhydrique et nitrique a permis de sélectionner trois milieux de fixation/élution pour la séparation. Parmi les deux acides présentés, l'acide nitrique n'a pas été retenu car, quelle que soit sa concentration, il fixe moins bien le palladium que le milieu chlorhydrique et il est plus dense et coloré. Les trois concentrations en HCl testées sont :

- HCl 7 mol.L<sup>-1</sup> pour se placer dans des conditions où le rhodium est supposé ne pas être retenu par la résine. Cependant, la masse volumique de l'acide à cette concentration là dépasse 1,1 g.mL<sup>-1</sup>. Dans ces conditions,  $k'_{Pd}(\text{HCl } 7\text{M}) < 200$ , la quantité de palladium éluee dans la solution pourrait être de l'ordre de quelques pour mille.
- HCl 1 mol.L<sup>-1</sup> pour avoir une fixation maximale du palladium mais ce sont aussi les conditions de rétention maximale du rhodium (pour la stabilité des espèces complexées en solution, on choisit de ne pas se placer à des concentrations diluées en acide chlorhydrique). Dans ces conditions,  $k'_{Pd}(\text{HCl } 1\text{M}) \approx 2500$  contre environ 25 pour le rhodium. La quantité de rhodium élué attendue en solution serait toutefois inférieure à 5 % de l'activité fixée sur la colonne.
- HCl 3 mol.L<sup>-1</sup> qui est un compromis entre les deux situations précédentes permettant de perdre moins de rhodium qu'à plus basse acidité. La quantité de palladium co-éluee ne devrait cependant pas dépasser le pour mille.

Ces tendances doivent être vérifiées expérimentalement car elles ne sont que relatives aux

conditions expérimentales, les proportions évoquées varient notamment en fonction de la granulométrie de la résine. Une fois la séparation mise au point et la solution de  $^{103}\text{Pd}/^{103m}\text{Rh}$  fixée sur la colonne, il est possible de procéder à une élution au cours de laquelle seul  $^{103m}\text{Rh}$  est recueilli. Deux semaines ont été dédiées aux essais de séparation en utilisant les trois différents milieux de concentration HCl sur différentes fractions d'élution pour chaque milieu, afin d'identifier la fraction d'élution d'intérêt. Le processus d'élution a une certaine dynamique et la fixation varie au cours de celui-ci, l'élution est donc séparée en plusieurs fractions qui décrochent plus ou moins de  $^{103m}\text{Rh}$  tandis que le  $^{103}\text{Pd}$  reste fixé sur la résine. Les mesures des différentes fractions ont été effectuées en spectrométrie ainsi qu'en scintillation liquide afin d'identifier celle qui présente l'activité massique la plus élevée en  $^{103m}\text{Rh}$  et un pourcentage de  $^{103}\text{Pd}$  le plus bas possible (voir figure 6.26).

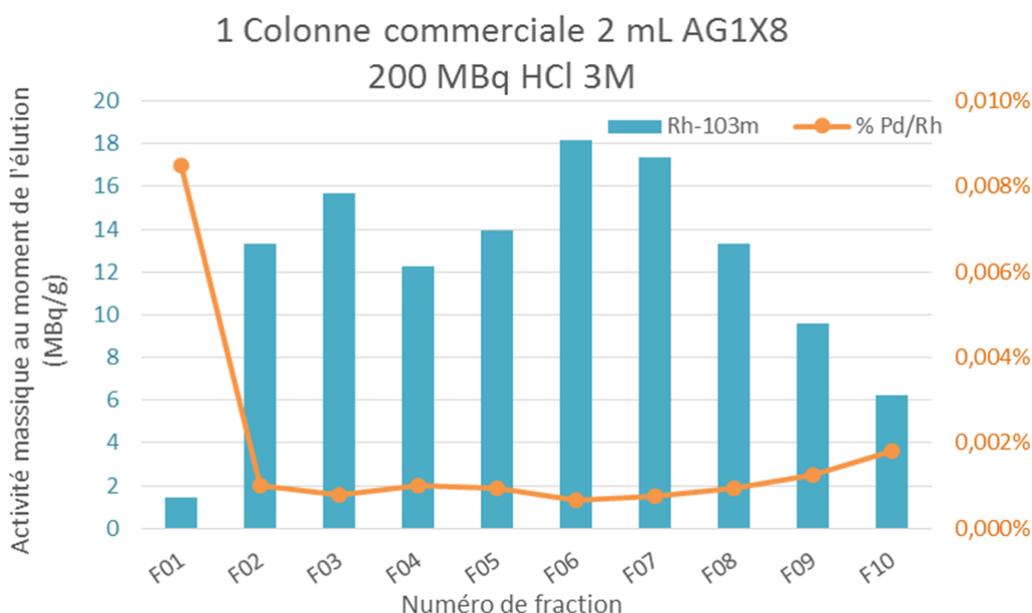


FIGURE 6.26 – Activité massique du  $^{103m}\text{Rh}$  et concentration en activité du  $^{103}\text{Pd}$  en fonction de la fraction de l'élution

Pour une élution, entre 5 et 10 mL de l'éluant (HCl 1, 3 ou 7 mol.L<sup>-1</sup> et 10 μg.g<sup>-1</sup> de rhodium stable) sont versés dans le réservoir de la résine échangeuse, et des fractions sont recueillies tous les 1-1,5 mL pour les mesures. Le milieu finalement retenu pour effectuer les mesures de  $^{103m}\text{Rh}$  est HCl 3M. L'acide chlorhydrique 7M à l'avantage de retenir très peu de  $^{103m}\text{Rh}$ , mais de grandes quantités de  $^{103}\text{Pd}$  ont été observées sur toutes les fractions durant les mesures. Quant au milieu HCl 1M, il retient très bien  $^{103}\text{Pd}$ , en revanche,  $^{103m}\text{Rh}$  reste accroché dans la résine en trop grande proportion, les sources ainsi fabriquées présentent de trop faibles activités du radionucléide. L'acide chlorhydrique 3M est un excellent compromis entre les deux autres milieux, il permet d'obtenir l'activité massique en  $^{103m}\text{Rh}$  suffisante recherchée pour les mesures (environ 20 MBq.g<sup>-1</sup>) et  $^{103}\text{Pd}$  est très peu présent : environ 0,001 % de concentration en activité par rapport à  $^{103m}\text{Rh}$ .

D'après les essais de mise au point et les différentes manipulations quantitatives réalisées, la fraction la plus active passée sur la colonne, se situe entre 6 et 7,5 mL. À partir de cette fraction (15-20 MBq.g<sup>-1</sup>), un petit volume (10 μL) est recueilli pour analyser les impuretés (essentiellement la proportion de  $^{103}\text{Pd}$  co-éluee) et la solution est utilisée d'une part pour

préparer deux sources « ponctuelles » sur du Mylar<sup>®</sup> ainsi que pour remplir (environ 0,5 mL) un conteneur muni d'une fenêtre fine et, d'autre part, pour réaliser une dilution quantitative afin de fabriquer une solution fille diluée (vers 0,5-1 MBq.g<sup>-1</sup>) pour les mesures primaires en scintillation liquide. Une première série de mesures a été réalisée fin 2017, cependant, suite à une erreur informatique durant les mesures, les acquisitions en spectrométrie n'ont pas pu être exploitées et une nouvelle série de mesures a été programmée en janvier 2018.

Or, entre le moment où la source de <sup>103</sup>Pd a été fabriquée au Canada et le moment où les nouvelles sources ont pu être préparées, entre 5 et 6 périodes de <sup>103</sup>Pd se sont écoulées. Après ce délai, la solution mère de <sup>103</sup>Pd n'était plus limpide et un dépôt très actif se trouvait au fond du flacon. Il a été nécessaire de remettre en solution ce dépôt car, sans celui-ci, la solution était environ 50 fois moins active qu'initialement. Plusieurs méthodes ont été testées, avec la contrainte du travail en boîtes à gants. Une dissolution à l'eau régale a été tentée, mais sans succès. Ensuite, il a été procédé à un ajout de peroxyde d'hydrogène (eau oxygénée) tout en chauffant le mélange, et cette fois-ci le dépôt observé redevint en solution. Une nouvelle dilution a été nécessaire afin de se replacer dans un milieu chimique proche du milieu de fixation de <sup>103</sup>Pd sur la résine. La solution homogène obtenue présentait toutefois une couleur orange intense, attribuée aux complexes de palladium avec les ions chlorure. Ce paramètre peut donc permettre de visualiser la fixation du palladium sur la résine. La figure 6.27 montre la coloration de la résine en fonction de la quantité de palladium fixée. Des conditions d'élution de la nouvelle source de <sup>103</sup>Pd ont été optimisées pour permettre de réaliser des mesures en scintillation liquide sur une solution incolore, non quenchée. Pour cette seconde série de mesures, un conteneur en plexiglas a été préparé pour les mesures sur le spectromètre X, six sources ponctuelles pour des mesures complémentaires sur des spectromètres  $\gamma$  et sur un détecteur en silicium (SDD) ont été réalisées afin de mesurer les intensités des raies XL du <sup>103m</sup>Rh ainsi que cinq sources de scintillation liquide pour la mesure primaire d'activité de la source.

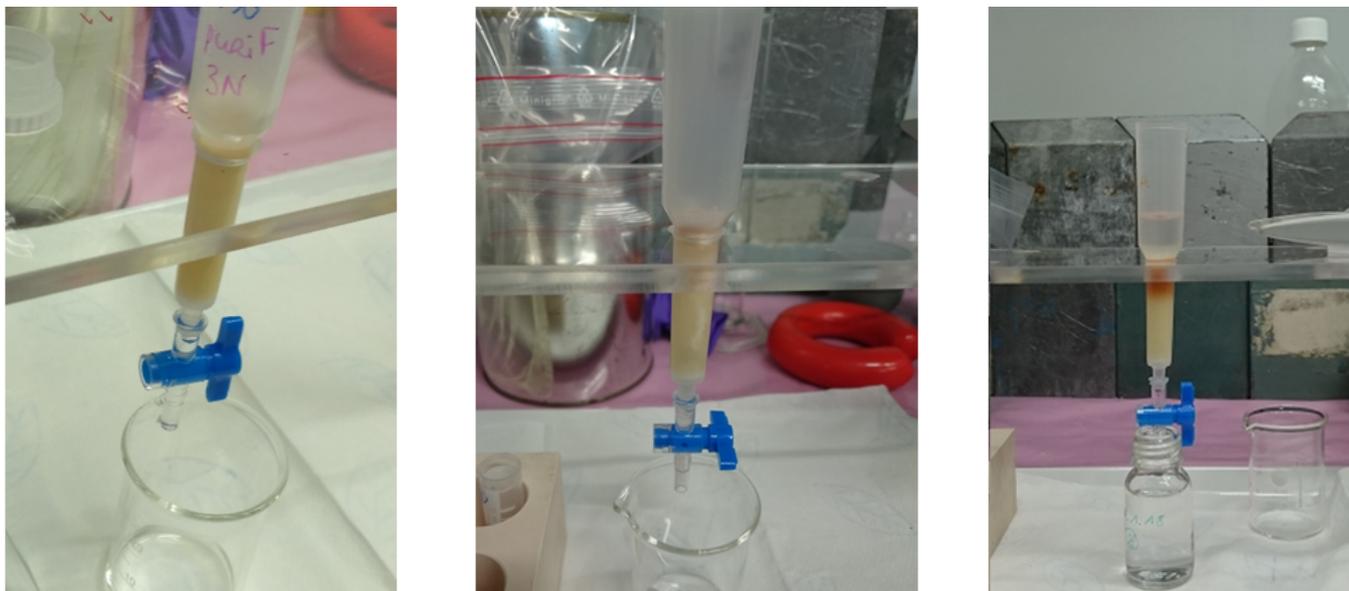


FIGURE 6.27 – Colonne de séparation palladium/rhodium

## Mesures en scintillation liquide

Après la dissolution, une goutte de la source radioactive a été mélangée avec un liquide scintillant commercial (Ultima Gold AB); l'éventuel problème de quenching dû à la couleur de la source n'est pas rencontré dans ce cas puisque la source de  $^{103}\text{Pd}$  mélangée à l'acide chlorhydrique est incolore. Cinq sources contenant environ 10 mg de solution diluée dans 10 mL de scintillateur ont été préparées dans un flacon en verre. Comme pour les mesures à partir de l'activation du rhodium, c'est la méthode RCTD qui a été utilisée pour les mesures d'activité. S'agissant également de la décroissance de  $^{103m}\text{Rh}$ , c'est le modèle simplifié KLM pour le calcul des probabilités des chemins de réarrangement électronique qui a été employé, modèle suffisant dans le cas présent. L'énergie des rayonnements ionisants transférée au cocktail de scintillation liquide est obtenue en utilisant les mêmes hypothèses :

- 1 Les électrons de conversion et Auger sont totalement absorbés par le cocktail ;
- 2 Les rayons XL sont totalement absorbés par le cocktail par interaction photoélectrique ;
- 3 Les rayons XK interagissent avec le cocktail par effet Compton et photoélectrique. L'énergie transférée au cocktail est calculée en utilisant le code de simulation Monte Carlo PENELOPE.

## Mesures par spectrométrie de photons

Les mesures du conteneur en plexiglas, contenant la solution liquide de  $^{103m}\text{Rh}$  séparée, ont été effectuées sur le détecteur GENIX, avec le support de source positionné au cran n°7, la position d'étalonnage. Les intensités d'émissions XK sont déterminées à partir de la formule 6.23. Pour des raisons identiques, le temps d'acquisition a été fixé à 7200 s, afin d'obtenir une incertitude sur la statistique de comptage inférieure à 1 %, tout en évitant une correction de décroissance trop importante. Le facteur de transfert de géométrie a été déterminé à partir de simulations effectuées sur PENELOPE, pour un volume de source radioactive identique à celui de la source liquide de  $^{103m}\text{Rh}$ . La source radioactive ayant été diluée pour les mesures en scintillation liquide, un coefficient de dilution est appliqué pour corriger la valeur d'activité. Dans le même temps, une mesure quantitative de  $^{103}\text{Pd}$  a été effectuée, une activité de 5 Bq a été déterminée dans la source, soit moins de 0,1 % de l'activité en  $^{103m}\text{Rh}$ . Cela ne nécessite pas de correction sur la mesure d'activité ou en spectrométrie X.

## Résultats sur les intensités d'émission photonique

Le schéma du  $^{103m}\text{Rh}$  est très mal connu et le radionucléide ne fait pas partie de la table des données recommandées, et ce principalement à cause de la méconnaissance de la multipolarité de la transition. Il n'y a donc pas de données d'intensités d'émission électronique et photonique disponibles pour le calcul du rendement de détection en scintillation liquide. Toutefois, comme expliqué dans la partie 6.3.2 pour les mesures par activation, différents jeux de données ont été calculés pour différentes multipolarités. Le rendement avait été calculé par une moyenne entre ces jeux puisque la multipolarité de la transition n'a que peu d'influence. N'ayant pas levé le doute sur cette multipolarité lors de la première mesure, ce sont les mêmes valeurs qui ont été utilisées dans le cas présent, qui sont rappelées dans le tableau 6.18.

	Énergie (keV)	Électrons (pour 100 désint.)		Énergie (keV)	Photons (pour 100 désint.)
$e_{AL}$	1,7 - 3,0	78,6 (5)	XL	2,3702 - 3,3663	4,08 (9)
$e_{AK}$					
KLL	16,286 - 17,097		$XK\alpha_2$	20,074	2,25 (6)
KLX	19,138 - 20,214	1,86 (8)	$XK\alpha_1$	20,216	4,27 (9)
KXY	21,966 - 23,215				
$eC_T$	16,536 - 39,754	99,912 (1358)	$XK'\beta_1$	22,699 - 22,914	1,161 (35)
$eC_K$	16,536 (6)	9,73 (26)	$XK'\beta_2$	23,173 - 23,217	0,190 (9)
$eC_L$	36,344 - 36,752	73,1 (13)			
$eC_M$	39,129 - 39,449	14,90 (29)			
$eC_{N+}$	39,675 - 39,754	2,182 (43)			

Tableau 6.18 – Énergies et intensités des émissions électroniques et X pour la désintégration de  $^{103m}\text{Rh}$

Les résultats de la mesure d'activité en scintillation liquide et leurs incertitudes sont présentés dans le tableau 6.19. L'activité utilisée pour la mesure d'intensité est la valeur moyenne de l'activité des cinq sources. On obtient ainsi l'activité spécifique moyenne :  $A_{Rh} = 263,9 (9) \text{ kBq}\cdot\text{g}^{-1}$ . L'incertitude relative sur le rendement de détection est 0,26 % (tableau 6.19). En considérant les autres composantes de l'incertitude, la pesée des sources (0,10 %), les paramètres de la méthode Monte Carlo (0,15 %) et le temps actif (0,10 %), l'incertitude-type composée relative sur l'activité spécifique de la solution est de 0,33 %.

Source	1	2	3	4	5	Moyenne
Taux de comptage( $\text{s}^{-1}\cdot\text{g}^{-1}$ )	760 403	760 313	755 658	757 949	758885	
Rendement de détection	0,9462	0,9462	0,9462	0,9462	0,9462	
Écart-type	0,0014	0,0014	0,0014	0,0014	0,0014	
A ( $\text{Bq}\cdot\text{g}^{-1}$ )	803 638,766	803 543,648	798 623,970	801 045,234	802 034,454	801 777,214
Écart-type						2 069,455
Écart relatif uA						0,26 %

Tableau 6.19 – Résultats des mesures d'activité de  $^{103m}\text{Rh}$  en scintillation liquide, rapportées à 10h30 UTC

Pour les mesures en spectrométrie, les facteurs de transfert de rendement pour les raies  $K\alpha$ ,  $K\beta$  et  $\gamma$  sont présentés dans le tableau 6.20 avec les incertitudes associées. Ces facteurs ont des valeurs élevées et ont donc une influence significative sur les intensités d'émission. Leur incertitude est la source principale d'incertitude sur les résultats finaux des intensités d'émission.

Les résultats sur la mesure des intensités d'émission et leurs incertitudes sont présentés dans le tableau 6.21. Les nouveaux résultats présentent un écart relatif de 11,7 % avec les mesures par activation d'un échantillon de rhodium. Suite à de nombreuses vérifications concernant l'ensemble des paramètres des mesures en scintillation liquide et en spectrométrie de photons,

Énergie (keV)	Facteurs de transfert de rendement	Incertitude absolue (k=1)	Incertitude relative
$K\alpha$ : 20,167	1,643	0,025	1,51 %
$K\beta$ : 22,781	1,466	0,021	1,45 %
$\gamma$ : 39,756	1,185	0,016	1,33 %

Tableau 6.20 – Facteurs de transfert de rendement d’une géométrie en source ponctuelle à la géométrie de la source de  $^{103m}\mathbf{Rh}$ , obtenus par simulation Monte Carlo

aucun élément ne permet d’expliquer cet écart dans les résultats. Seul un biais dans le facteur de dilution pourrait en être l’origine, mais il n’a pu être établi.

Émission	Intensités d’émission (%)	Incertitude absolue (k=1) (%)	Incertitude relative
X $K\alpha$	6,227	0,121	1,94 %
X $K\beta$	1,261	0,024	1,89 %
X $K_{tot}$	7,488	0,123	1,64 %
$\gamma$	0,0659	0,0012	1,88 %

Tableau 6.21 – Intensités d’émission des photons lors de la décroissance du  $^{103m}\mathbf{Rh}$

Toutefois, les conditions de mesures de meilleure qualité, notamment des facteurs de transfert de rendement bien plus faibles, et la meilleure connaissance de la nature de la source, conduisent à estimer que les résultats obtenus avec cette deuxième approche sont plus fiables. Il existe un autre élément permettant de conforter cette hypothèse : les intensités d’émission des rayons XK et  $\gamma$  ont été mesurées sur un spectromètre  $\gamma$  à partir de l’une des sources ponctuelles fabriquée consécutivement à la séparation Pd/Rh, en même temps que le conteneur plexiglas. Dans ce cas, aucun calcul de transfert de rendement n’est nécessaire puisque les mesures sont effectuées dans les conditions de l’étalonnage du détecteur. Les résultats donnent une intensité de 7,27 (26) % pour les rayons XK et 0,067 (2) % pour le  $\gamma$ , compatibles avec les résultats obtenus avec GENIX. La figure 6.28 présente les nouveaux résultats comparé aux précédentes mesures.

## 6.4 Mesures supplémentaires

Bénéficiant d’une source de très haute activité, il est possible de faire des mesures supplémentaires sur des données de  $^{103m}\mathbf{Rh}$  mais également de  $^{103}\mathbf{Pd}$ . Dans le cas de  $^{103m}\mathbf{Rh}$ , en plus des intensités des rayons XK, une mesure de celles des rayons XL a été effectuée sur un détecteur SDD ainsi qu’une mesure de sa période radioactive. Pour le  $^{103}\mathbf{Pd}$ , les intensités des rayons XK ont été mesurées, de même que celles de certaines des émissions  $\gamma$ , ainsi que sa période radioactive.

### 6.4.1 Périodes radioactives

Les données sur les périodes de  $^{103m}\mathbf{Rh}$  et  $^{103}\mathbf{Pd}$  ont été présentées précédemment. Leur valeur respective disponible sur Laraweb [51], provient d’un nombre restreint de mesures dont

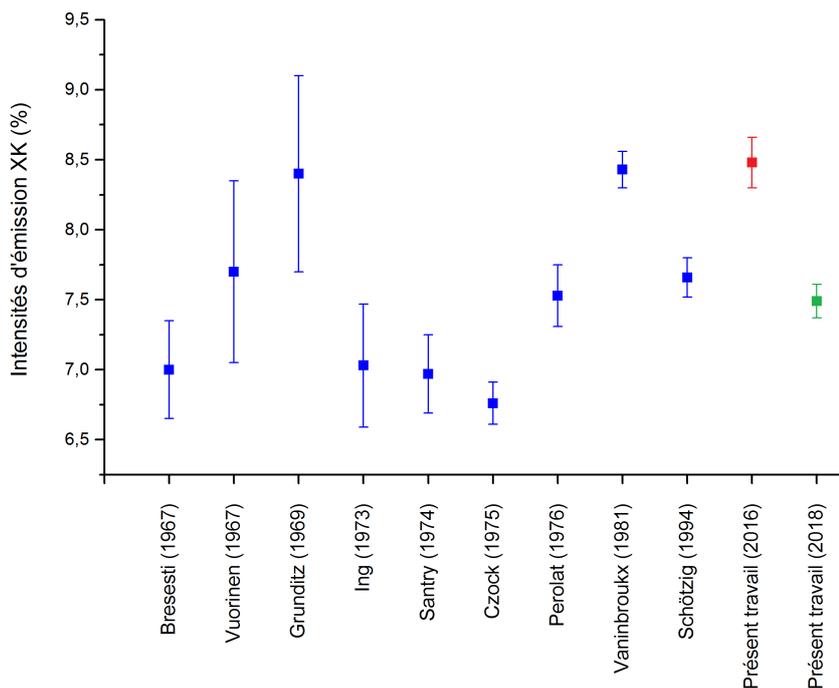


FIGURE 6.28 – Comparaison des valeurs expérimentales des intensités d'émission XK du  $^{103m}\text{Rh}$

seulement quatre (dans les deux cas) ont été retenues pour l'évaluation de la période. Des valeurs supplémentaires de périodes permettraient d'asseoir celles retenues pour les évaluations. Une série d'une centaine de mesures a été effectuée pour chaque radionucléide, sur un temps total d'acquisition équivalent à quatre périodes de  $^{103m}\text{Rh}$  et à approximativement trois périodes de  $^{103}\text{Pd}$ , soit 4 heures pour le premier et 49 jours pour le second. Ces mesures de période ont également été effectuées en scintillation liquide, et l'ensemble des résultats ont ensuite été comparés.

### Période de $^{103m}\text{Rh}$

La mesure a été effectuée sur un prélèvement de la solution purifiée, conditionnée dans un tube RIA qui a été installé à 20 cm de la fenêtre d'un détecteur au germanium hyper pur, utilisé pour la spectrométrie gamma. La source de  $^{103m}\text{Rh}$  fabriquée pour la mesure de période étant très active, elle a été éloignée du détecteur afin de limiter au mieux le temps mort lors des acquisitions. Une série de 120 acquisitions de 120 secondes (en temps actif) a été enregistrée. L'activité de la source diminuant au cours de la série de mesures, le temps mort maximum était de 12,1 % pour la première mesure et 0,6 % pour la dernière, correspondant à un temps réel variant de 136,5 s à 120,7 s.

S'agissant d'une mesure relative, la surface nette du doublet XK a été simplement déterminée à partir des contenus bruts de la région d'intérêt, avec une soustraction d'une fonction linéaire s'appuyant sur les canaux externes. Cette valeur est corrigée de la décroissance pendant la mesure, en tenant compte du temps réel d'acquisition qui diminue au fur et à mesure, soit une correction allant de 1,41 % à 1,25 %. Les comptages ainsi corrigés représentent de  $3,3 \cdot 10^5$  à  $1,5 \cdot 10^4$  événements, et sont donc affectés d'une incertitude relative maximum de 0,82 %.

Ces valeurs ont été ajustées avec une fonction exponentielle décroissante, utilisant le critère d'ajustement de Marquardt-Levenberg, disponible sous Origin. Le résultat est présenté sur la figure 6.29 et sur le tableau 6.22. Le résultat final obtenu, avec une incertitude-type relative de 0,093 %, est 56,133 (52) minutes, soit un écart relatif de 0,03 % avec la valeur indiquée sur Laraweb [51].

Des mesures ont également été effectuées en scintillation liquide, le résultat obtenu avec une incertitude-type relative de 0,021 % est 56,124 (12) minutes. Soit un écart relatif de 0,02 % avec la valeur obtenue en spectrométrie X et avec celle indiquée sur Laraweb [51]. Ces mesures sont parfaitement compatibles compte-tenu des incertitudes.

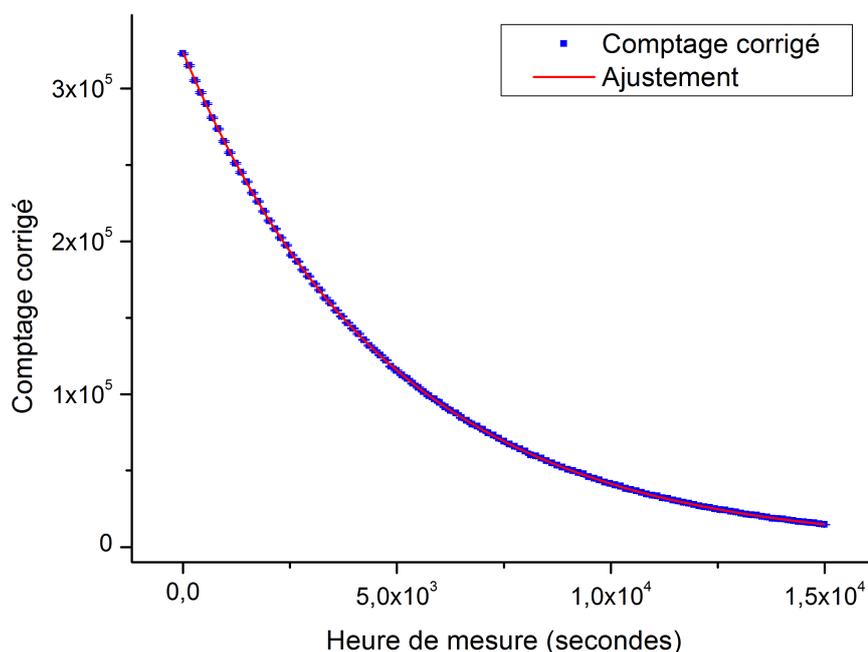


FIGURE 6.29 – Suivi de la période de  $^{103m}\text{Rh}$  : comptage net sous les pics d'absorption totale des XK en fonction du temps (points) et fonction d'ajustement selon l'algorithme de Marquardt-Levenberg (courbe rouge)

Résultats période (s)	période (min)	Nombre de points de la courbe ajustés	Type d'ajustement (Algorithme)
3367,95867	56,133	120	Marquardt-Levenberg
3367,95867	56,133	120	Orthogonal distance
3378,10975	56,302	50	Marquardt-Levenberg

Tableau 6.22 – Intensités d'émission des photons lors de la décroissance de  $^{103m}\text{Rh}$

### Période du $^{103}\text{Pd}$

Pour le palladium-103, la mesure a été effectuée sur un prélèvement de la solution initiale, conditionné dans un tube RIA qui a été installé à 5 cm environ de la fenêtre d'un détecteur

GeHP. La distance a été choisie dans le but d’obtenir un bon compromis entre la conservation de la statistique de comptage au cours des 50 jours de mesure et la limitation de la correction des coïncidences. Une série de mesures de 121 acquisitions de 35 000 secondes (en temps actif) a été enregistrée. L’activité de la source diminuant au cours de la série de mesures, le temps mort maximum était de 1,21 % pour la première mesure et 0,27 % pour la dernière, correspondant à un temps réel variant de 35 457 s à 35 095 s.

La mesure est effectuée sur la surface nette du pic principal, à 357 keV, déterminée à partir des contenus bruts de la région d’intérêt, avec une soustraction d’une fonction linéaire s’appuyant sur les canaux externes. Cette valeur est corrigée de la décroissance pendant la mesure, en tenant compte du temps réel d’acquisition, soit une correction de 0,84 % à 0,83 %. Les comptages ainsi corrigés représentent de  $1,6 \cdot 10^6$  à  $2,2 \cdot 10^5$  événements, et sont donc affectés d’une incertitude relative maximum de 0,2 %. Comme dans le cas précédent, les valeurs ont été ajustées avec une fonction exponentielle décroissante. Le résultat est présenté sur la figure 6.30 et conduit à une valeur de période, avec une incertitude-type relative de 0,34 %, de 17,106 (58) jours, soit un écart relatif de 0,84 % avec la valeur indiquée sur Laraweb [51].

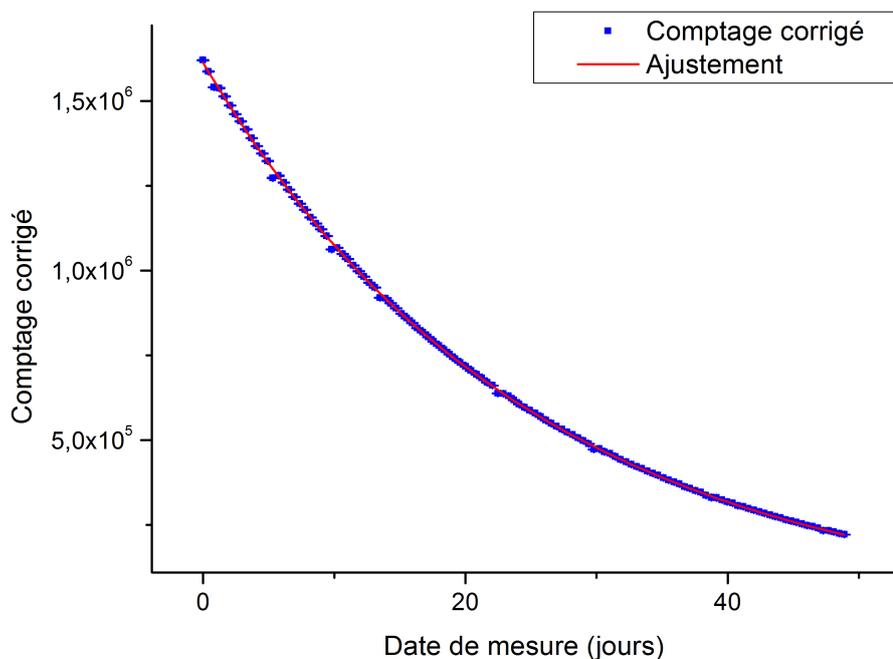


FIGURE 6.30 – Suivi de la période de  $^{103}\text{Pd}$  : Comptage net sous le pic d’absorption totale à 357 keV en fonction du temps (points) et fonction d’ajustement selon l’algorithme de Marquardt-Levenberg (courbe rouge)

## 6.4.2 Résultats supplémentaires sur les intensités d’émission

La problématique concernant les intensités d’émissions XK et  $\gamma$  de  $^{103}\text{Pd}$  a été présentée dans le paragraphe « données » dans la partie 6.3.3. Seule l’émission  $\gamma$  à 357 keV a fait l’objet de mesures par le passé, les intensités des autres émissions ont été déterminées à partir des travaux théoriques sur les différentes multipolarités des transitions et les coefficients de conversion

interne. Dans le cas des rayons X, les intensités d'émission proviennent du calcul théorique à partir des schémas de désintégration de  $^{103}\mathbf{Pd}$  et de  $^{103m}\mathbf{Rh}$ , puisqu'une partie de l'émission des rayons X du premier provient de la désintégration du second. Ainsi, afin d'améliorer la connaissance des émissions de photons de  $^{103}\mathbf{Pd}$  et de son schéma de désintégration, des mesures sur un spectromètre  $\gamma$  ont été effectuées pour déterminer les intensités des émissions X et  $\gamma$  les plus intenses. Des mesures sur des intensités d'émissions XL de  $^{103m}\mathbf{Rh}$  ont également été effectuées, permettant également d'apporter plus de précisions sur le schéma de désintégration.

### Intensités des émissions XK de $^{103}\mathbf{Pd}$

L'intensité d'émission XK mentionnée dans l'évaluation actuelle (voir le paragraphe concernant les données) est :  $I_{XK} = 77,02$  (28) %. Ce résultat provient d'un calcul à partir des probabilités de capture électronique et de transition ainsi que des coefficients de conversion interne des différentes transitions  $\gamma$ . Comme cela a été présenté dans la partie 6.1.5 :

$$I_{XK} = \omega_K n_K \quad (6.26)$$

Où  $n_K$  est le nombre de vacances dans la couche K, qui est défini par la formule suivante (voir chapitre 1) :

$$n_K = \sum P_\varepsilon P_K + \sum P_\gamma \frac{\alpha_K}{1 + \alpha_t} \quad (6.27)$$

Dans le cas de  $^{103}\mathbf{Pd}$ , il y a trois voies de désintégration par capture électronique dans la couche K, et les données sont les suivantes :

$$1^{\text{ère}} : P_\varepsilon = 0,000\ 248\ (8) \text{ et } P_K = 0,8388\ (16);$$

$$2^{\text{nde}} : P_\varepsilon = 0,000\ 004\ 4\ (11) \text{ et } P_K = 0,8471\ (15);$$

$$3^{\text{ème}} : P_\varepsilon = 0,999\ (1) \text{ et } P_K = 0,8584\ (14).$$

En ce qui concerne la conversion interne des transitions  $\gamma$ , il y a de nombreuses possibilités. Mais pour l'exemple du calcul, seules trois sont retenues : la principale à 40 keV ( $^{103m}\mathbf{Rh}$ ), l'émission à 62 keV et celle à 357 keV, les autres sont tout à fait négligeables. Les données sur ces transitions sont :

$$1^{\text{ère}}\ 39,753\ \text{keV} : P_\gamma = 0,999\ 536\ (70484), \alpha_K = 135\ (6) \text{ et } \alpha_t = 1431\ (71);$$

$$2^{\text{nde}}\ 62,756\ \text{keV} : P_\gamma = 0,000\ 018\ (5), \alpha_K = 1,140\ (34) \text{ et } \alpha_t = 1,311\ (99);$$

$$3^{\text{ème}}\ 357,45\ \text{keV} : P_\gamma = 0,000\ 250\ (6), \alpha_K = 0,01362\ (41) \text{ et } \alpha_t = 0,0158\ (5).$$

L'utilisation de ces données pour calculer le nombre de vacances dans la couche K, donne  $n_K = 0,95202$ . Comme  $^{103}\mathbf{Pd}$  descend sur le rhodium, le rendement de fluorescence est celui de l'élément, soit  $\omega_K = 0,809$ , ce qui conduit bien aux intensités XK citées :  $I_{XK} = 0,7702$ . Ce calcul pose un premier problème : dans le cas de l'émission  $\gamma$  à 40 keV, les données utilisées sont celles de la multipolarité E3+0,08%M4 et comme cela a été expliqué précédemment, cette hypothèse n'est pas exacte. De plus, les coefficients de conversion interne présentés ci-dessus ont été calculés il y a une quinzaine d'années. En utilisant les informations sur les transitions, à partir du code BrIcc on trouve des coefficients différents. Par exemple, pour la transition à 40 keV :  $\alpha_K = 144,3$  (21) et  $\alpha_t = 1453$  (21). Ainsi, pour le nombre de vacances et les intensités d'émission respectivement, les valeurs sont :  $n_K = 0,95698$  et  $I_{XK} = 0,7742$ .

Une source ponctuelle, fabriquée au cours de la préparation de source de palladium, a été placée

sur GENIX en position d'étalonnage, il n'y a ainsi pas de transfert de rendement à déterminer puisque les mesures ont été effectuées dans les mêmes conditions que celle de référence. Les intensités d'émissions déterminées lors de ces mesures, à partir d'une valeur d'activité mesurée par méthode RCTD, sont présentées dans le tableau 6.23. L'intensité d'émission XK totale ainsi mesurée est 69,8 (10) %; elle est inférieure d'environ 10 % aux valeurs calculées avec les deux jeux de données mentionnés ci-dessus et n'est pas compatible compte tenu des incertitudes associées.

Raies d'émission	Intensités absolues d'émission	Incertitude absolue (k=1)	Incertitude relative
X $K\alpha$	0,5799	0,0061	1,05 %
X $K\beta$	0,1179	0,0012	1,05 %
X $K_{tot}$	0,6978	0,0104	1,49 %

Tableau 6.23 – Intensités d'émission XK mesurées pour la désintégration de  $^{103}\text{Pd}$

### Intensité des émissions $\gamma$ du $^{103}\text{Pd}$

Les émissions  $\gamma$  de  $^{103}\text{Pd}$ , hormis celle de 40 keV correspondant à  $^{103m}\text{Rh}$ , sont nombreuses (voir tableau 6.24), mais seule l'intensité d'émission de la raie à 357 keV a fait l'objet de mesures expérimentales. Les autres valeurs proviennent de calculs à partir des coefficients de conversion interne et de l'équilibrage du schéma de désintégration. Et comme cela a été expliqué, les mesures du 357 keV sont relatives à celle des rayons X ( $I_\gamma/I_{KX}$ ). La valeur absolue est obtenue en multipliant la valeur moyenne de  $I_\gamma/I_{KX}$ ,  $3,192 \cdot 10^{-2}$ , par la valeur de  $I_{KX}$ , qui a été calculée. Ce qui donne :  $I_\gamma = 0,024\ 584\ 8$  %. La valeur qui a été retenue est  $I_\gamma = 0,0246$  (6) %.

Raies $\gamma$	Énergie (keV)	Photons (pour 100 désint.)
$\gamma_{1,0}$	39,753 (6)	0,0698 (35)
$\gamma_{2,1}$	53,285 (15)	0,000 007 2 (20)
$\gamma_{4,3}$	62,41 (3)	0,00078 (23)
$\gamma_{5,3}$	241,88 (5)	0,000 000 49 (5)
$\gamma_{3,0}$	294,98 (2)	0,00297 (24)
$\gamma_{4,1}$	317,72 (5)	0,000 015 0 (19)
$\gamma_{4,0}$	357,45 (8)	0,0246 (6)
$\gamma_{5,2}$	443,80 (2)	0,000 016 0 (12)
$\gamma_{5,1}$	497,080 (13)	0,00411 (11)

Tableau 6.24 – Données sur les émissions  $\gamma$  de  $^{103}\text{Pd}$  provenant de la dernière évaluation

Une source ponctuelle, provenant de la même solution que celle mesurée sur le détecteur GENIX pour la mesure des émissions XK, a été installée sur un spectromètre  $\gamma$  dans sa géométrie de référence. Ainsi, il n'est pas nécessaire de déterminer une correction de transfert de rendement. Les intensités d'émissions  $\gamma$  déterminées lors de ces mesures sont présentées dans le tableau 6.25.

Raies $\gamma$	Énergies (keV)	Intensités (pour 100 désint.)	Incertitudes-types relatives	Rapports $I_{mes}/I_{th}$
$\gamma_{2,1}$	53,285 (15)	0,000 042 1 (19)	4,6 %	5,85
$\gamma_{4,3}$	62,41 (3)	0,001 044 (14)	1,4 %	1,34
$\gamma_{5,3}$	241,88 (5)	0,000 040 0 (24)	6,0 %	82
$\gamma_{3,0}$	294,98 (2)	0,003 45 (3)	0,9 %	1,16
$\gamma_{4,1}$	317,72 (5)	—	—	—
$\gamma_{4,0}$	357,45 (8)	0,024 64 (16)	0,67 %	1,0018
$\gamma_{5,2}$	443,80 (2)	—	—	—
$\gamma_{5,1}$	497,080 (13)	0,004 45 (4)	1,0 %	1,08

Tableau 6.25 – Mesure des intensités d’émission  $\gamma$  de  $^{103}\mathbf{Pd}$  effectuées sur un spectromètre  $\gamma$

En dehors de la raie  $\gamma_{4,0}$ , les différences relatives entre les intensités d’émission mesurées et celles provenant de la dernière évaluation sont supérieures à 10 %. Lors de la mesure des rayons XK du  $^{103}\mathbf{Pd}$  sur GENIX, les intensités des raies  $\gamma$  de 40 et 62 keV ont également été déterminées, les résultats sont présentés dans le tableau 6.26.

Raies $\gamma$	Énergie (keV)	Intensité (pour 100 désint.)	Incertitude relative
$\gamma_{1,0}$	39,753 (6)	0,0629 (7)	1,09 %
$\gamma_{4,3}$	62,41 (3)	0,00112 (3)	2,50 %

Tableau 6.26 – Mesures de deux intensités d’émission  $\gamma$  de  $^{103}\mathbf{Pd}$  sur GENIX

En premier lieu, il convient de remarquer que l’intensité du  $\gamma$  de 40 keV mesurée à partir de  $^{103}\mathbf{Pd}$  est nettement plus faible que celle mesurée directement à partir de la désintégration de  $^{103m}\mathbf{Rh}$ . Deuxièmement, la mesure de l’intensité du 62 keV est tout à fait compatible avec celle effectuée à partir du spectromètre  $\gamma$ , ce qui semble conforter les deux séries de résultats d’autant plus que la mesure du  $\gamma$  de 357 keV est très proche de l’intensité d’émission provenant de l’évaluation. En portant un regard plus précis sur les émissions des raies d’énergie de 62, 242 et 295 keV, il apparaît qu’elles n’alimentent pas le premier état excité du rhodium ( $^{103m}\mathbf{Rh}$ ), comme il est possible de le voir sur la figure 6.31.

Or des intensités d’émission plus intenses ont été déterminées contre une intensité moins importante dans le cas du 40 keV, 0,0629 (7) %. Ce dernier résultat est à comparer avec l’intensité d’émission mesurée à partir de la source de  $^{103m}\mathbf{Rh}$ , 0,0659 (12) %. Ces résultats sembleraient indiquer que la probabilité de capture électronique vers le premier état excité du rhodium est plus faible que prévue tandis que les probabilités vers les niveaux 3, 4 et 5 seraient plus importantes. Cette tendance s’avère être corroborée par le résultat de la mesure de l’intensité d’émission du 497 keV, qui est supérieure de 10 % à l’intensité de l’évaluation. Enfin, les résultats obtenus sur l’émission du  $\gamma$  de 40 keV confortent également la mesure des intensités XK et  $\gamma$  lors de la désintégration de  $^{103m}\mathbf{Rh}$  à partir de la mesure de palladium, puisque la même tendance est observée dans les deux séries de résultats.

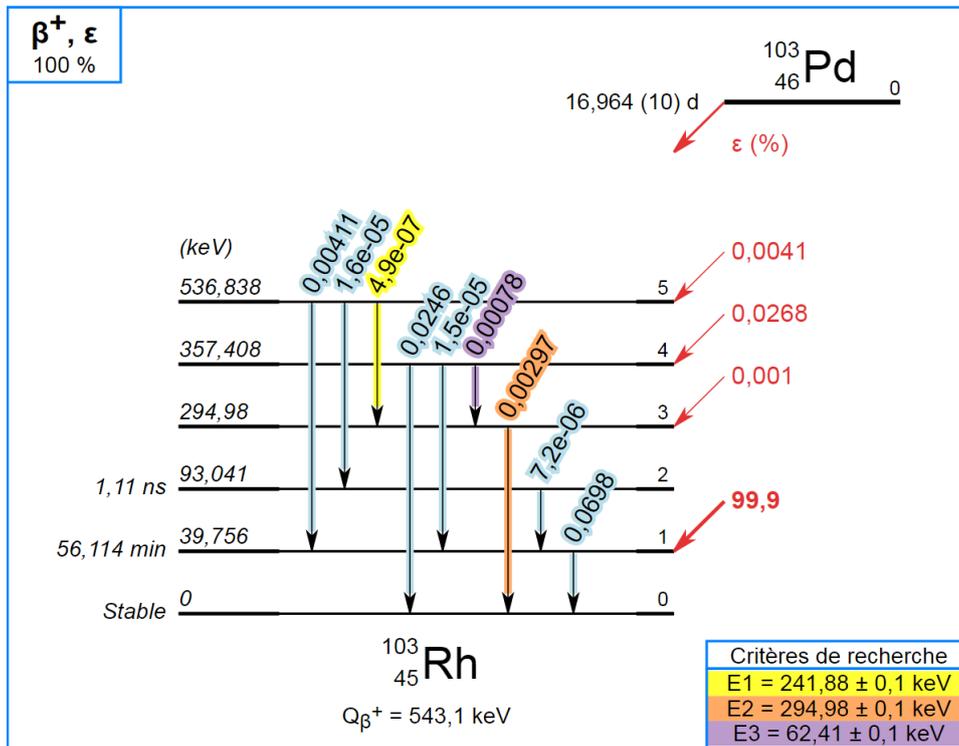


FIGURE 6.31 – Schéma de désintégration du  $^{103}\text{Pd}$

### Influence de l'intensités des émissions XL de $^{103m}\text{Rh}$

Les intensités des rayons XL des éléments de numéro atomique faible et intermédiaires font rarement l'objet de mesures et il n'en existe aucune pour celles de  $^{103m}\text{Rh}$ . Théoriquement, les intensités des rayons XL se calculent selon :

$$I_{X_L} = \bar{\omega}_L n_L \quad (6.28)$$

Où  $\bar{\omega}_L$  est le rendement de fluorescence moyen de la couche L et  $n_L$ , le nombre de vacances dans la couche L, est déterminé ainsi :

$$n_L = \sum P_\epsilon P_L + \sum P_\gamma \frac{\alpha_L}{1 + \alpha_t} + n_K n_{KL} \quad (6.29)$$

Où  $P_L$  est la probabilité de capture dans la couche L, ici nulle car le  $^{103m}\text{Rh}$  est une transition  $\gamma$ ,  $\alpha_L$  est le coefficient interne de la couche L et  $n_{KL}$  est le nombre total de vacances dans la couche L créées par le transfert de vacances de la couche K vers la couche L lors du remplissage d'une vacance dans la couche K. Dans le cas du  $^{103m}\text{Rh}$ , l'équation 6.29 devient :

$$n_L = P_\gamma \frac{\alpha_L}{1 + \alpha_t} + n_K n_{KL} \quad (6.30)$$

Soit :

$$I_{X_L} = \bar{\omega}_L \left( P_\gamma \frac{\alpha_L}{1 + \alpha_T} + n_K n_{KL} \right) \quad (6.31)$$

Les valeurs de  $n_{KL}$  et de  $\bar{\omega}_L$  sont respectivement 0,987 et 0,0494; elles ne varient pas en fonction de la multipolarité, de même que la valeur de  $P_\gamma$ . Les autres paramètres fluctuent selon

la proportion de M4 dans la multipolarité. Le tableau 6.27 présente les différents paramètres de l'équation 6.31 ainsi que les intensités d'émission XL en fonction de la proportion de M4 dans le mélange. Par comparaison avec les émissions XK, le rapport de mélange de M4 dans la multipolarité de la transition  $\gamma$  de  $^{103m}\mathbf{Rh}$  a très peu d'influence sur les intensités d'émission XL. Une mesure expérimentale de ce paramètre, qui a été effectuée mais non exploitée à ce jour, ne permettrait donc pas d'apporter une information complémentaire quant à la multipolarité de la transition  $\gamma$ .

Multipolarité	E3	E3+0,05%M4	E3+0,2%M4
$\alpha_L$	1028	1046	1101
$\alpha_T$	1403	1431	1516
$n_K$	0,096	0,098	0,103
$I_{XL}$ (en %)	4,085	4,086	4,088

Tableau 6.27 – Paramètres influant sur les intensités d'émission XL en fonction de la multipolarité

## Conclusion

Ce dernier chapitre a rassemblé les études concernant les paramètres ayant la plus grande influence sur les mesures d'activité des dosimètres niobium et rhodium et les incertitudes associées, à savoir les intensités d'émissions des rayons X issus de la transition  $\gamma$  de  $^{93m}\mathbf{Nb}$  et de  $^{103m}\mathbf{Rh}$ .

Dans le cadre des évaluations des radionucléides pour le DDEP, les données concernant les intensités d'émission des rayons X issus de la désintégration d'un radionucléide proviennent rarement de leur mesure mais du calcul à partir des probabilités de capture électronique et de transition  $\gamma$  et du rendement de fluorescence, dont les valeurs sont issues de l'équilibrage des schémas, de mesures expérimentales ou de calculs analytiques. Le rendement de fluorescence est donc un paramètre critique, les valeurs expérimentales et théoriques le concernant sont rarement en accord et ce problème n'a jamais été résolu jusqu'à présent. Les travaux menés sur le niobium et le rhodium illustrent bien cette problématique : la bibliographie fait état de valeurs expérimentales et théoriques datant de plusieurs dizaines d'années et de désaccords entre celles-ci. De nouvelles valeurs de rendement de fluorescence ont été déterminées expérimentalement, à l'aide de procédés plus modernes (accès à une source de photons monochromatique d'une grande qualité), et obtenues avec de faibles incertitudes de mesure. Ces valeurs tendent à souligner le désaccord entre l'expérimental et la théorie. Le rendement de fluorescence, bien qu'étant un paramètre essentiel pour la spectrométrie de rayons X, reste à ce jour encore mal connu, avec des incertitudes mal maîtrisées, pour nombre d'éléments.

Une autre approche pour tenter de réduire les incertitudes sur les intensités d'émission des rayons X, est leur mesure directe lors de la désintégration d'une source radioactive. Il est apparu qu'il serait très complexe de réduire celles de  $^{93m}\mathbf{Nb}$  qui sont de l'ordre de 2 %. En revanche, dans le cas de  $^{103m}\mathbf{Rh}$ , les incertitudes sont plus élevées (entre 5 et 7 %) et leur amélioration est tout à fait envisageable. Par ailleurs, l'évaluation de son schéma de désintégration réalisée il y a quelques années est incomplète et incohérente, notamment à cause du manque de données

expérimentales récentes, lié à la difficulté de mesurer ce radionucléide. Deux démarches expérimentales ont été essayées afin de mesurer les émissions XK de  $^{103m}\mathbf{Rh}$  : par activation d'un échantillon de rhodium dans un réacteur nucléaire et par la séparation à partir d'une source de  $^{103}\mathbf{Pd}$ . Les résultats issus des deux approches expérimentales sont différents et non compatibles au regard de leurs incertitudes. Cependant, plusieurs arguments ont amené à disqualifier la mesure à partir de l'activation au profit de la mesure à partir d'une source de palladium. Celle-ci a conduit aux valeurs d'intensité suivantes :  $I_{XK} = 7,49 (12) \%$  et  $I_{\gamma} = 0,0659 (12) \%$ , c'est-à-dire, avec des incertitudes-types composées relatives inférieures à 2 %, ce qui correspond à l'objectif défini.

En outre, il a été possible d'apporter plus de précisions sur les émissions  $\gamma$  de  $^{103}\mathbf{Pd}$  et de mettre en évidence une incohérence au niveau de son schéma de désintégration.

L'ensemble de ces études sur les données nucléaires et atomiques dans ces cas spécifiques, démontre les manques et incohérences sur les données des radionucléides dans le domaine étudié. Il est vraisemblable que les cas rencontrés ici ne se limitent pas aux  $^{93m}\mathbf{Nb}$ ,  $^{103m}\mathbf{Rh}$  et  $^{103}\mathbf{Pd}$  et que c'est le cas de nombreux autres radionucléides qui sont insuffisamment documentés.

# Conclusion et perspectives

Les travaux de la présente thèse avaient pour objectif de proposer une amélioration de la méthode actuelle, relative, de la mesure d'activité des dosimètres niobium vers une méthode comparable à la spectrométrie  $\gamma$  classique, avec une incertitude-type équivalente (entre 1,5 et 2 % maximum). L'utilisation de la spectrométrie X, avec un détecteur GeHP, a été proposée et l'analyse s'est portée sur les trois principaux paramètres affectant directement la mesure d'activité : l'étalonnage en rendement des détecteurs, les termes correctifs inhérents à la mesure des échantillons solides et les données fondamentales des radionucléides mesurés. Cette méthode sera ensuite appliquée au cas d'autres échantillons solides émetteurs de rayons X, comme les dosimètres rhodium.

L'étalonnage en rendement est l'étape la plus cruciale en spectrométrie de photons et particulièrement en basse énergie, autour de 20 keV, correspondant à la gamme d'émission des rayons X des dosimètres niobium et rhodium (entre 16 et 23 keV). Dans ce domaine d'énergie, les informations expérimentales sont issues, en majorité, des émissions de rayonnement X des radionucléides. Ces émissions sont multiples et parfois difficilement distinguables sur les spectres (comme le cas des raies XL de  $^{241}\text{Am}$  [123]), ce qui rend leur ajustement complexe et nécessite des détecteurs disposant d'une excellente résolution et des logiciels de traitement de spectres précis. De plus, le manque de connaissances sur les intensités des émissions X contribue à la difficulté de l'étalonnage dans la gamme d'énergie autour de 20 keV. Malgré tout, grâce à l'utilisation de nombreuses sources étalons, les valeurs de rendement d'absorption totale ont été obtenues avec une incertitude-type relative inférieure à 1 %. Cette étape a comporté une analyse critique des radionucléides disponibles et de la fiabilité de leurs données pour les étalonnages.

Les résultats obtenus par les simulations Monte Carlo, comparés aux valeurs expérimentales, révèlent la forte influence des dimensions des zones mortes du cristal de germanium dans la gamme d'énergie inférieure à 100 keV. Il est apparu difficile de les faire correspondre avec les fonctions mathématiques d'ajustement des points expérimentaux, notamment en présence d'un collimateur limitant l'angle solide de mesure. Les écarts observés entre l'expérience et les simulations sont vraisemblablement liés à l'électronique et la collection des charges, qui ne sont pas pris en compte dans les méthodes de Monte Carlo utilisées.

Pourtant, ces méthodes ont révélé un grand intérêt pour l'étude des facteurs de correction liée à la détection des photons en basse énergie et en géométrie de sources solides. Les travaux de cette thèse se sont concentrés sur trois d'entre eux, particulièrement importants : le transfert de rendement, la diffusion et la correction de fluorescence.

Les valeurs de transfert de rendement ainsi déterminées pour la géométrie des dosimètres niobium et rhodium à partir de simulations sur PENELOPE sont résumées dans le tableau 6.28.

Dans ce cas particulier de dosimètres de faible volume, les résultats sont similaires aux résultats obtenus avec le logiciel ETNA. Cependant, les corrections calculées sont importantes

Niobium		
	K $\alpha$	K $\beta$
Correction bandes	1,168 (12)	1,119 (11)
Correction disques	1,166 (12)	1,119 (11)
Rhodium		
	K $\alpha$	K $\beta$
Correction disques	1,512 (18)	1,344 (15)

Tableau 6.28 – Facteurs de transfert de rendement recommandés pour les dosimètres niobium et rhodium selon la géométrie de la source

(jusqu'à 50 % pour le rhodium), et il est recommandé d'utiliser les valeurs de PENELOPE (tableau 6.28), plus précises que celles obtenues avec ETNA. Ce dernier peut-être utilisé en première approche pour obtenir des ordres de grandeur, pour ensuite être affinés par des calculs par méthode Monte Carlo, ou bien si l'expérimentateur n'a pas la possibilité d'utiliser celle-ci. Le calcul des corrections de fluorescence dans les dosimètres niobium et rhodium était un point critique de cette thèse. Jusqu'à présent, des coefficients de fluorescence déterminés il y a presque 50 ans et mal maîtrisés, car d'origine incertaine, étaient utilisés. Ici, ils ont été recalculés dans des conditions bien maîtrisées à l'aide d'outils Monte Carlo. De plus, ils ont été calculés pour d'autres radionucléides qui ont été observés depuis en spectrométrie  $\gamma$  ( $^{60}\text{Co}$ ,  $^{192}\text{Ir}$  et  $^{194}\text{Ir}$ ) ou dont la présence n'était pas soupçonnée ( $^{185}\text{W}$ ). De même, un phénomène d'auto-fluorescence, jusqu'à présent ignoré, a été mis en évidence et quantifié pour le  $^{93m}\text{Nb}$  et le  $^{103m}\text{Rh}$ . Comme pour le transfert de rendement, la différence d'énergie, et donc d'absorption dans le dosimètre, impose d'appliquer la correction de fluorescence séparément pour les raies K $\alpha$  et K $\beta$ , contrairement à ce qui était possible jusqu'à maintenant. Le tableau 6.29 résume les coefficients de fluorescence recommandés dans le cas des dosimètres niobium (bande) et rhodium (disque). En ce qui concerne l'auto-fluorescence, les coefficients de correction sont résumés dans le tableau 6.30.

Ces coefficients sont fortement liés à la géométrie de la simulation, à savoir celle de GENIX, et il est recommandé de les utiliser pour des mesures effectuées dans les mêmes conditions avec un angle solide identique ou inférieur. Dans le cas de l'auto-fluorescence, il ne s'agit pas de coefficients mais bien d'une correction à appliquer après avoir corrigé la mesure de l'effet de fluorescence des impuretés.

Les études menées sur la pente de diffusion en basse énergie ont conduit à la conclusion que celle-ci pouvait induire également un facteur de correction. Jusqu'ici, elle est prise en compte ou non dans le traitement des spectres, mais les différences d'ajustement peuvent conduire à des écarts importants sur la mesure d'activité selon les méthodes de traitement. Une méthode de correction a été proposée, elle nécessite toutefois l'utilisation des simulations Monte Carlo. Le calcul de cette correction à l'aide de cette méthode exige une implémentation très fidèle de la géométrie du détecteur (environnement et cristal de germanium), et cette correction est propre et unique à un détecteur et à son environnement. Or, les études menées sur le calcul du rendement d'absorption totale par méthode Monte Carlo ont démontrées que cela est très complexe.

Les travaux de cette thèse se sont également portés sur le paramètre ayant le plus d'influence

Impuretés		Coefficients de fluorescence ( $10^{-3} \text{ s}^{-1} \cdot \text{Bq}^{-1}$ )	Incertitudes ( $10^{-3}$ )
Niobium			
$^{92m}\text{Nb}$	$\text{K}_\alpha$	0,149	0,010
	$\text{K}_\beta$	0,022	0,003
$^{94}\text{Nb}$	$\text{K}_\alpha$	10,03	0,18
	$\text{K}_\beta$	1,85	0,06
$^{95}\text{Nb}$	$\text{K}_\alpha$	2,55	0,05
	$\text{K}_\beta$	0,55	0,02
$^{182}\text{Ta}$	$\text{K}_\alpha$	54,18	0,59
	$\text{K}_\beta$	10,47	0,15
$^{60}\text{Co}$	$\text{K}_\alpha$	6,86	0,10
	$\text{K}_\beta$	1,35	0,04
$^{185}\text{W}$	$\text{K}_\alpha$	8,03	0,13
	$\text{K}_\beta$	1,53	0,04
Rhodium			
$^{192}\text{Ir}$	$\text{K}_\alpha$	29,86	0,34
	$\text{K}_\beta$	6,37	0,10
$^{194}\text{Ir}$	$\text{K}_\alpha$	18,83	0,23
	$\text{K}_\beta$	4,14	0,08

Tableau 6.29 – Coefficients de fluorescence  $\text{K}_\alpha$  et  $\text{K}_\beta$  pour chacune des impuretés pour les dosimètres niobium et rhodium

		Correction en %
$^{93m}\text{Nb}$	$\text{K}_\alpha$	1,46 (5)
	$\text{K}_\beta$	1,46 (11)
$^{103m}\text{Rh}$	$\text{K}_\alpha$	1,08 (5)
	$\text{K}_\beta$	1,24 (12)

Tableau 6.30 – Coefficients de fluorescence  $\text{K}_\alpha$  et  $\text{K}_\beta$  pour chacune des impuretés pour les dosimètres niobium et rhodium

$I_{XK_{tot}}$	7,49 (12) %
$I_{\gamma}$	0,066 (1) %
$\omega$	0,786 (20)

Tableau 6.31 – Intensités d’émission des photons du  $^{103m}\text{Rh}$  et rendement de fluorescence déterminé pour le rhodium

sur la mesure d’activité, les intensités d’émission des rayons X. Les valeurs indiquées dans la table des données recommandées issue des évaluations du DDEP proviennent rarement de mesures directes, notamment parce qu’elles sont très difficiles. Elles résultent donc de calculs à partir de l’équilibrage des schémas de désintégration et du rendement de fluorescence, dont les valeurs sont issues de mesures expérimentales ou de calculs théoriques. Les intensités d’émission des rayons XK sont directement proportionnelles au rendement de fluorescence K, il s’agit donc d’un paramètre crucial. Or, les recherches menées ont montrées qu’à l’heure actuelle des incohérences subsistent entre les calculs théoriques et les mesures expérimentales, c’est le cas du niobium et du rhodium mais également d’autres éléments du tableau périodique. De nouvelles valeurs de rendement de fluorescence K ont été déterminées expérimentalement et obtenues avec de faibles incertitudes de mesure, soulignant le désaccord entre l’expérimental et la théorie. Les travaux de la thèse ont aussi mis en évidence le manque de cohérence dans les données concernant  $^{103m}\text{Rh}$  utilisées actuellement pour les mesures d’activité pour la dosimétrie en réacteur. De nouvelles mesures sur les intensités XK et gamma ont donc été effectuées. Ces résultats pourront être pris en compte dans une nouvelle évaluation du radionucléide pour définir un schéma de désintégration plus cohérent.

De manière générale, la mesure de radioactivité par spectrométrie sur des photons de faibles énergies, notamment des rayons X, est fortement liée aux données sur leurs émissions, à l’étalonnage du détecteur à l’aide de radionucléides étalons, et aux conditions géométriques de la mesure de l’échantillon. Si la méthode d’étalonnage détaillée au cours de cette thèse peut être utilisée pour tout radionucléide émettant des photons dont l’énergie est située dans la gamme d’étalonnage, les facteurs de correction et les données fondamentales sont propres à une géométrie de mesure et aux radionucléides et doivent être vérifiés pour chacun des cas.

Plusieurs problèmes ont été soulevés au cours de ce travail et pourront faire l’objet de futures études, en particulier sur la fiabilité de certains schémas de désintégration. Par l’utilisation de nombreux radionucléides pour l’étalonnage en rendement, il est possible d’obtenir un ajustement fiable, à condition de les avoir à disposition. L’euporium-152 est couramment utilisé en spectrométrie  $\gamma$ , du fait de ses multiples émissions et de sa longue période. Cependant nous avons observé une incohérence sur le rendement d’absorption totale obtenue avec ses émissions rayons XK, qui se répartissent en deux groupes, puisque  $^{152}\text{Eu}$  se désintègre selon deux voies. En effet, ceux-ci présentent un écart relatif systématique d’environ -4 %, dans le cas des X issus du samarium, et d’environ 10 %, dans le cas des X issus du gadolinium, par rapport aux autres points. Une conclusion possible de cette constatation est une erreur dans l’équilibrage du schéma de désintégration. Il serait donc intéressant d’étudier en détail ce radionucléide en tenant compte de ces nouvelles données.

Le même constat a été établi dans le cas de l'émission  $\gamma$  de 26 keV de  $^{241}\text{Am}$ , où un écart relatif systématique d'environ 1,5 % de la valeur expérimentale du rendement par rapport à la courbe ajustée a été noté. Par ailleurs, les données supplémentaires obtenues sur les émissions de  $^{103}\text{Pd}$  ont mis en évidence une incohérence sur son schéma de désintégration, et devrait conduire à sa réévaluation.

Ces observations soulignent l'importance d'utiliser, pour l'étalonnage des détecteurs, des radionucléides ayant fait l'objet d'une évaluation rigoureuse. D'où l'intérêt pour les évaluateurs de disposer de publications détaillées sur leurs mesures avec des incertitudes bien commentées, ce qui est rarement le cas.

La validation des facteurs de correction de fluorescence pourra être prochainement établie : en effet, dans le cadre de l'EWGRD, des dosimètres niobium, avec des concentrations en impuretés de tantale de 0,3, 4 et 19,6 ppm ont été irradiés dans le réacteur MARIA, en Pologne. L'ensemble des 60 dosimètres a été mesuré au LNHB puis ils ont été distribués à une dizaine de laboratoires en Europe et Russie. Des acquisitions sont encore en cours, afin de suivre la décroissance des impuretés et ainsi valider les facteurs correctifs. Selon les laboratoires, les mesures seront effectuées, soit directement sur les échantillons solides, soit après dilution, ce qui permettra de vérifier les corrections d'auto-absorption. Les facteurs de correction ont été déterminés par méthode Monte Carlo et dépendent fortement de la géométrie de mesure et des caractéristiques intrinsèques du cristal de germanium. Sur les simulations Monte Carlo, les zones mortes et la zone active ont été représentées de manière simplifiée, or les résultats observés suite au balayage en surface du détecteur ont montré que cette représentation n'est pas tout à fait exacte. De plus, l'étalonnage en rendement de GENIX suite à sa réparation et au changement de collimateur a mis en évidence des phénomènes physiques non pris en compte par les outils de simulation utilisés. Afin d'améliorer les connaissances du détecteur et donc la précision sur les mesures ainsi que les calculs des facteurs de correction, il serait intéressant de comparer les résultats expérimentaux du balayage avec une simulation Monte Carlo couplée avec une simulation sur COMSOL Multiphysics, qui permettrait de modéliser le champ électrique dans le cristal de germanium.

Les mesures avec  $^{129}\text{I}$  ont montrés qu'aux énergies du domaine d'étude, la géométrie de la goutte radioactive ne peut plus être considérée comme une source ponctuelle. Ce phénomène a été mis en évidence notamment par la présence des rayons XK de l'iode anormalement intense. Des simulations de la désintégration de chacun des radionucléides utilisés pour l'étalonnage avec une géométrie en goutte et comparées avec les résultats expérimentaux, permettraient de savoir à partir de quelle énergie les sources peuvent effectivement être considérées comme ponctuelles et/ou si une correction doit être également apportée.

Au vu des difficultés d'étalonnage des détecteurs de la gamme d'énergie inférieure à 100 keV, il serait envisageable de revoir entièrement la méthode. La principale motivation de cette remise en cause est de s'affranchir de l'utilisation de radionucléides et donc des données sur les émissions des rayons XK, mal maîtrisées. Par l'utilisation d'un radiomètre cryogénique à substitution électrique, qui permet de mesurer de manière absolue l'intensité d'un flux de photons, et du rayonnement synchrotron monochromatique, il serait possible d'obtenir le rendement intrinsèque d'un détecteur à semi-conducteur par une méthode alternative à l'utilisation de sources étalons [124] et [125]. Toutefois, la principale difficulté est d'installer un détecteur à

semi-conducteur sur les installations d'un synchrotron et, sur SOLEIL, le détecteur ne serait étalonné que jusqu'à une énergie de 30 keV.

# Bibliographie

- [1] JCGM. Vocabulaire International de Métrologie - Concepts fondamentaux et généraux et termes associés (VIM). Technical report, BIPM, 2012.
- [2] BIPM. Bureau International des Poids et Mesures, 2018.
- [3] EURAMET. The EUROpean Association of national METrology institutes, 2018.
- [4] LNHB. Laboratoire National Henri Becquerel, 2018.
- [5] LNE. Laboratoire National de Métrologie et d'Essais, 2018.
- [6] IAEA. Update of X Ray and Gamma Ray Decay Data Standards for Detector Calibration and Other Applications. Technical report, IAEA, 2007.
- [7] Wim Voorbraak, Luigi Debarberis, Pierre Dhondt, and Jan Wagemans, editors. *Reactor Dosimetry State of the Art 2008 - Proceedings of the 13th International Symposium*. World Scientific, 2008.
- [8] A Ballesteros, L Debarberis, W Voorbraak, Jan Wagemans, and P Dhondt. Open issues in reactor dosimetry. *Progress in Nuclear Energy*, 52 :615–619, 09 2010.
- [9] V. Sergeyeva. *Développement d'une technique innovante de dosimétrie en réacteur pour la caractérisation du spectre neutronique dans le domaine d'énergie 1 keV - 1 MeV*. PhD thesis, Université D'Aix-Marseille - Ecole Doctorale 352, 2016.
- [10] Kiyoshi Sakurai. Measurement of neutron fluence above 0.1 MeV with the dosimeter  $^{93}\text{Nb}(n,n')^{93m}\text{Nb}$ . *Nuclear Technology*, 57(3) :436–441, 1982.
- [11] W. P. Voorbraak and NRG Petten. Retrospective dosimetry of fast neutrons focussed on the reaction  $^{93}\text{Nb}(n,n')^{93m}\text{Nb}$ . Technical report, EURATOM, 2003.
- [12] N. Thiollay, J. Di-Salvo, C. Sandrin, M. Soldevila, S. Bourganel, C. Fausser, C. Destouches, P. Blaise, C. Domergue, H. Philibert, J. Bonora, A. Gruel, B. Geslot, V. Lamirand, A. Pepino, A. Roche, O. Méplan, and M. Ramdhane. FLUOLE-2 : An Experiment for PWR Pressure Vessel Surveillance. *EPJ Web of Conferences*, 106 :02015, 2016.
- [13] S. Bourganel, M. Soldevila, J. Di-Salvo, A. Gruel, B. Geslot, and N. Thiollay. Preliminary analysis of the fluole-2 experiment. In *Proceedings of the 24th International Conference Nuclear Energy for New Europe*, number 404, 2015.
- [14] C. Destouches, C. Domergue, D. Beretz, G. Gregoire, and B. Habert. Use of the nuclear data in the reactor dosimetry : limitations, improvements and perspectives. *International Conference on Nuclear Data for Science and Technology*, ND 2007 :933–936, 2007.
- [15] M.-M. Bé. Table of radionuclides - introduction. Technical report, CEA, LIST, LNE-LNHB, 2011.
- [16] M.-M. Bé, V. Chisté, C. Dulieu, M.A. Kellett, X. Mougeot, A. Arinc, V.P. Chechev, N.K. Kuzmenko, T. Kibédi, A. Luca, and A.L. Nichols. *Table of Radionuclides*, volume 8 of

- Monographie BIPM-5*. Bureau International des Poids et Mesures, Pavillon de Breteuil, F-92310 Sèvres, France, 2016.
- [17] Gordon R. Gilmore. *Practical Gamma-ray Spectrometry*. John Wiley & Sons, second edition edition, 2008.
- [18] F. Salvat, J.M. Fernandez-Varea, and J. Sempau. *PENELOPE-2014 : A Code System for Monte Carlo Simulation of Electron and Photon Transport*. OECD/NEA Data Bank, Issy-les-Moulineaux, France, 2015.
- [19] T. Schoonjans, A. Brunetti, B. Golosio, M. Sanchez del Rio, V.A. Solé, C. Ferrero, and L. Vincze. The xraylib library for X-ray - matter interactions. Recent developments. *Spectrochimica Acta Part B : Atomic Spectroscopy*, 66(11) :776 – 784, 2011.
- [20] R. Jenkins, R. Manne, R. Robin, and C. Senemaud. Nomenclature system for x-ray spectroscopy. *Pure and Applied Chemistry*, 63(5) :735–746, 1991.
- [21] F. Lagoutine. *Problème de décroissance radioactive*. Laboratoire de Métrologie des Rayonnements Ionisants, 1978.
- [22] Glenn F. Knoll. *Radiation Detection and Measurement*. John Wiley & Sons, fourth edition edition, 2010.
- [23] Klaus Debertin and Richard G. Helmer. *Gamma- and X-ray Spectrometry with Semiconductor Detectors*. North Holland, 1988.
- [24] J. H. Hubbell, Wm. J. Veigele, E. A. Briggs, R. T. Brown, D. T. Cromer, and R. J. Howerton. Atomic form factor, incoherent scattering functions, and photon scattering cross sections. *Journal of Physical and Chemical Reference Data*, 4(3) :471–537, 1975.
- [25] JCGM. Evaluation of measurement data - Guide to the expression of Uncertainty in Measurement. Technical report, BIPM, 2008.
- [26] IAEA. Nuclear Data Service, 2018.
- [27] BNL. ENSDF : Evaluated Nuclear Structure Data File Search and Retrieval, 2017.
- [28] IAEA. Live Chart of Nuclides, 2017.
- [29] BNL. Chart of Nuclides, 2018.
- [30] S. M. Sze. *Physics of Semiconductor Devices*. John Wiley & Sons, second edition edition, 1981.
- [31] E. Gatti and P. Rehak. Semiconductor drift chamber - an application of a novel charge transport scheme. *Nuclear Instruments & Methods in Physics Research, Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors, and Associated Equipment*, 225 :608–614, 1984.
- [32] L. Strüder, N. Meidinger, D. Stoter, J. Kemmer, P. Lechner, P. Leutenegger, H. Soltau, F. Eggert, M. Rohde, and T. Schülein. High-resolution x-ray spectroscopy close to room temperature. *Microscopy and Microanalysis*, 4 :622–631, 1999.
- [33] D. V. Perepelitsa. Johnson noise and shot noise. Technical report, MIT Department of Physics, 2006.
- [34] U. Fano. On the theory of ionization yield of radiations in different substances. *Physical Review*, 70 :44–52, 1946.
- [35] U. Fano. Ionization yield of radiations : II.The fluctuations of the number of ions. *Physical Review*, 72 :26–29, 1947.

- [36] Ram Devanathan, Louis Corrales, F Gao, and William Weber. Signal variance in gamma-ray detectors - a review. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 565 :637–649, 09 2006.
- [37] M.C. Lépy, L. Ferreux, C. Hamon, and J. Plagnard. Logiciel d’ajustement des courbes de rendement ACORES. Technical Report 2008-45, LNHB, 2008.
- [38] M.-C. Lépy, A. Pearce, and O. Sima. Uncertainties in gamma-ray spectrometry. *Metrologia*, 52 :S123–S145, 2015.
- [39] O. Sima, D. Arnold, and C. Dovlete. Gespecor : A versatile tool in gamma-ray spectrometry. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 248(2) :359–364, 2001. cited By (since 1996)73.
- [40] Dirk Arnold and Octavian Sima. Application of gespecor software for the calculation of coincidence summing effects in special cases. *Applied Radiation and Isotopes*, 60 :167–172, 2004.
- [41] Dirk Arnold and Octavian Sima. Calculation of coincidence summing corrections for x-ray peaks and for sum peaks with x-ray contributions. *Applied Radiation and Isotopes*, 64 :1297–1302, 2006.
- [42] S. Jovanovic, A. Dlabac, and N. Mihaljevic. Angle v2.1 new version of the computer code for semiconductor detector gamma-efficiency calculations. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 622(2) :385 – 391, 2010. Proceedings of the 5th International k0 Users Workshop.
- [43] H. Ruellan, M.-C. Lépy, M. Etcheverry, J. Plagnard, and J. Morel. A new spectra processing code applied to the analysis of  $^{235}\text{U}$  and  $^{238}\text{U}$  in the 60 to 200 keV energy range. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, A369 :651–656, 1996.
- [44] M.-C. Lépy, T. Altzitzoglou, D. Arnold, F. Bronson, R. Capote Noy, M. Decombaz, F. De Corte, R. Edelmaier, E. Herrera Peraza, S. Klemola, M. Korun, M. Kralik, H. Neder, J. Plagnard, S. Pommé, J. de Sanoit, O. Sima, F. Ugletveit, L. Van Velzen, and T. Vidmar. Intercomparison of efficiency transfer software for gamma-ray spectrometry. *Applied Radiation and Isotopes*, 55 :493–503, 2001.
- [45] JCGM. Evaluation of measurement data - Supplement 1 to the "Guide to the expression of Uncertainty in Measurement" - Propagation of distributions using a Monte Carlo method. Technical Report 101 :2008, BIPM, 2008.
- [46] IAEA. Neutron fluence measurements. Technical Report 107, AIEA, 1970.
- [47] IAEA. ENDF : Evaluated Nuclear Data File, 2018.
- [48] HPC. Handbook of Chemistry and Physics, 2018.
- [49] R. D. Deslattes, Jr E. G. Kessler, P. Indelicato, L. de Billy, E. Lindroth, and J. Anton. X-ray transition energies : New approach to a comprehensive evaluation. *Reviews of Modern Physics*, 75 :35 – 99, 2003.
- [50] K. Debertin and W. Pessara. Natural line-width effects in gamma- and X-ray emission rate measurements with semiconductor detectors. *Nuclear Instruments and Methods*, 184 :497–503, 1981.

- [51] LNHB. Nucléide - LARA, Bibliothèque d'émissions gamma et alpha, 2018.
- [52] H. Philibert and C. Domergue. Raccordement et étalonnage des étalons de niobium. Mode opératoire, CEA-DEN, 2015.
- [53] H. Philibert and C. Domergue. Mesure de radioactivité des dosimètres de niobium. Mode opératoire, CEA-DEN, 2015.
- [54] S. Agostinelli, J. Allison, K. Amako, J. Apostolakis, H. Araujo, P. Arce, M. Asai, D. Axen, S. Banerjee, G. Barrand, F. Behnerl, L. Bellagamba, J. Boudreau, L. Broglia, A. Brunengo, H. Burkhardt, S. Chauvie, J. Chuma, R. Chytracsek, G. Cooperman, G. Cosmo, P. Degtyarenko, A. Dell'Acqua, G. Depaola, D. Dietrich, R. Enami, A. Feliciello, C. Ferguson, H. Fesefeldt, G. Folger, F. Foppiano, A. Forti, S. Garelli, S. Giani, R. Giannitrapani, D. Gibin, J.J.G. Cadenas, I. Gonzalez, G.G. Abril, G. Greeniaus, W. Greiner, V. Grichine, A. Grossheim, S. Guatelli, P. Gumplinger, R. Hamatsu, K. Hashimoto, H. Hasui, A. Heikinen, A. Howard, V. Ivanchenko, A. Johnson, F.W. Jones, J. Kallenbach, N. Kanaya, M. Kawabata, Y. Kawabata, M. Kawaguti, S. Kelner, P. Kent, A. Kimura, T. Kodama, R. Kokoulin, M. Kossov, H. Kurashige, E. Lamanna, T. Lampen, V. Lara, V. Lefebure, F. Lei, M. Liendl, W. Lockman, F. Longo, S. Magni, M. Maire, E. Medernach, K. Minamimoto, P.Md. Freitas, Y. Morita, K. Murakami, M. Nagamatu, R. Nartallo, P. Nieminen, T. Nishimura, K. Ohtsubo, M. Okamura, S. O'Neale, Y. Oohata, K. Paech, J. Perl, A. Pfeiffer, M.G. Pia, F. Ranjard, A. Rybin, S. Sadilova, E.D. Salvo, G. Santin, T. Sasaki, N. Savvas, Y. Sawada, S. Scherer, S. Sei, V. Sirotenko, D. Smith, N. Starkov, H. Stoecker, J. Sulkimo, M. Takahata, S. Tanaka, E. Tcherniaev, E.S. Tehrani, M. Tropeano, P. Truscott, H. Uno, L. Urban, P. Urban, M. Verderi, A. Walkden, W. Wander, H. Weber, J.P. Wellisch, T. Wenaus, D.C. Williams, D. Wright, T. Yamada, H. Yoshida, and D. Zschiesche. Geant4 - a simulation toolkit. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A, Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 506 :250–303, 2003.
- [55] E. García-Torano, V. Peyres, M.-M. Bé, C. Dulieu, M.-C. Lépy, and F. Salvat. Simulation of decay processes and radiation transport times in radioactivity measurements. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B : Beam Interactions with Materials and Atoms*, 396 :43 – 49, 2017.
- [56] K. Debertin and W. Pessara. Calibration of high-purity germanium detectors in the energy range from 25 to 122 keV. *International Journal of Applied Radiation and Isotopes*, 34 :515–517, 1983.
- [57] Peter N. Johnston and Peter A. Burns. Efficiency determination of a GeHP detector from 6 to 25 keV. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 353(1) :101 – 105, 1994.
- [58] J.C. Hardy, V.E. Jacob, M. Sanchez-Vega, R.T. Effinger, P. Lipnik, V.E. Mayes, D.K. Willis, and R.G. Helmer. Precise efficiency calibration of an hpge detector : source measurement and monte carlo calculations with sub-percent precision. *Applied Radiation and Isotopes*, 65-69, 2002.
- [59] J.-M. Laborie, G. Le Petit, D. Abt, and M. Girard. Monte Carlo calculation of the efficiency response of a low-background well-type HPGe detector. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors, and Associated Equipment*, 479 :618–630, 2002.

- [60] R.G. Helmer, J.C. Hardy, V.E. Jacob, M. Sanchez-Vega, R.G. Neilson, and J. Nelson. The use of monte carlo calculations in the determination of a ge detector efficiency curve. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors, and Associated Equipment*, 511 :360–381, 2003.
- [61] S. Hurtado, M. García-León, and R. García-Tenorio. Monte Carlo simulation of the response of a germanium detector for low-level spectrometry measurements using GEANT4. *Applied Radiation and Isotopes*, 61(2) :139 – 143, 2004. Low Level Radionuclide Measurement Techniques - ICRM.
- [62] Pavel Dryak and Petr Kovar. Experimental and mc determination of hpge detector efficiency in the 40- 2754kev energy range for measuring point source geometry with the source-to-detector distance of 25cm. *Applied Radiation and Isotopes*, 64(10) :1346 – 1349, 2006. Proceedings of the 15th International Conference on Radionuclide Metrology and its Applications.
- [63] César Marques Salgado, Claudio C. Conti, and Paulo H.B. Becker. Determination of HPGe detector response using MCNP5 for 20-150 keV X-rays. *Applied Radiation and Isotopes*, 64(6) :700 – 705, 2006.
- [64] N. Cornejo Diaz and M.J. Vargas. DETEFF : An improved Monte Carlo computer program for evaluating the efficiency in coaxial gamma-ray detectors. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 586(2) :204–210, 2008. cited By (since 1996)16.
- [65] T. Vidmar, I. Aubineau-Laniece, M.J. Anagnostakis, D. Arnold, R. Brettner-Messler, D. Budjas, M. Capogni, M.S. Dias, L-E. De Geer, A. Fazio, J. Gasparro, M. Hult, S. Hurtado, M. Jurado Vargas, M. Laubenstein, K.B. Lee, Y-K. Lee, M-C. Lépy, F-J. Maringer, V. Medina Peyres, M. Mille, M. Morales, S. Nour, R. Plenteda, M.P. Rubio Montero, O. Sima, C. Tomei, and G. Vidmar. An intercomparison of monte carlo codes used in gamma-ray spectrometry. *Applied Radiation and Isotopes*, 66 :764 ?768, 2008.
- [66] M.J. Berger, J.H. Hubbell, S.M. Seltzer, J. Chang, Coursey, R. J.S., Sukumar, D.S. Zucker, and K. Olsen. XCOM : Photon Cross Sections Database, 2010.
- [67] S. M. Seltzer. Calculated Response of Intrinsic Germanium Detectors to Narrow Beams of Photon with Energie up to  $\approx 300$  kev. *Nuclear Instruments and Methods*, 188 :133–151, 1981.
- [68] N. L. Maidana, V. R. Vanin, V. Jahnke, J. M.Fernández-Varea, and M. N. Martins ans L. Brualla. Efficiency calibration of X-ray HPGe detectors for photon with energies above the Ge K binding energy. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 729 :371–380, 2013.
- [69] E. Andreotti, M. Hult, G. Marissens, G. Lutter, A. Garfagnini, S. Hemmer, and K. von Sturm. Determination of dead-layer variation in HPGe detectors. *Applied Radiation and Isotopes*, 87 :331 – 335, 2014. Proceedings of the 19th International Conference on Radionuclide Metrology and its Applications 17-21 June 2013, Antwerp, Belgium.
- [70] J. Plagnard, C. Hamon, and M.C. Lépy. Study of scattering effects in low-energy gamma-ray spectrometry. *Applied Radiation and Isotopes*, 66(6) :769 – 773, 2008. Proceedings of the 16th International Conference on Radionuclide Metrology and its Applications.

- [71] M.-C. Lépy, L. Brondeau, L. Ferreux, and S. Pierre. On scattering effects for volume sources in low-energy photon spectrometry. *Applied Radiation and Isotopes*, 81 :71–75, 2013.
- [72] R. Lloret. Utilisation du niobium comme intégrateur de fluence élevées de neutrons rapides. Technical report, CEA-CEN/Service des Piles, 1973.
- [73] M.C. Lépy, J.L. Campbell, J.M. Laborie, J. Plagnard, P. Stemmler, and W. J. Teesdale. Experimental characterization of low-energy x-ray semi-conductor detectors. *Nuclear Instruments & Methods in Physics Research, Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors, and Associated Equipment*, 422 :428–432, 1999.
- [74] Marie-Christine Lépy, Johann Plagnard, and Laurent Ferreux. Study of the response function of a hpge detector for low-energy x-rays. *Nuclear Instruments & Methods in Physics Research, Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors, and Associated Equipment*, 505 :290–293, 06 2003.
- [75] J. Plagnard, C. Bobin, and M.-C. Lépy. Accurate efficiency calibration of a low-energy hpge detector using a monochromatic x-ray source. *X-Ray Spectrometry*, 36 :191–198, 2007.
- [76] E. Schönfeld and H. Janßen. Evaluation of atomic shell data. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 369(2) :527 – 533, 1996.
- [77] Charles E. Roos. A new method for measuring auger transitions. *Physical Review*, 93 :401–405, Feb 1954.
- [78] Charles E. Roos. K fluorescence yield of several metals. *Physical Review*, 105 :931–935, Feb 1957.
- [79] E. J. Callan. Role of atomic electrons in nuclear transformations. volume 3, 1963.
- [80] Vaclav O. Kostroun, Mau Hsiung Chen, and Bernd Crasemann. Atomic radiation transition probabilities to the 1s state and theoretical k-shell fluorescence yields. *Physical Review A*, 3 :533–545, Feb 1971.
- [81] D. L. Walters and C. P. Bhalla. Nonrelativistic Auger rates, X-ray rates, and fluorescence yields for the K shell. *Physical Review A*, 3 :1919–1927, Jun 1971.
- [82] Walter Bambynek, Bernd Crasemann, R. W. Fink, H. U. Freund, Hans Mark, C. D. Swift, R. E. Price, and P. Venugopala Rao. X-Ray Fluorescence yields, Auger, and Coster-Kronig transition probabilities. *Reviews of Modern Physics*, 44 :716–813, 1972. [Erratum : Rev. Mod. Phys.46,853(1974)].
- [83] M. O. Krause. Atomic radiative and radiationless yields for k and l shells. *Journal of Physical and Chemical Reference Data*, 8(2) :307–327, 1979.
- [84] S.K. Arora, K.L. Allawadhi, and B.S. Sood. Measurement of K-shell fluorescence yields in elements  $28 \leq Z \leq 53$ . *Physica B+C*, 111(1) :71 – 75, 1981.
- [85] J.H. Hubbell. *Bibliography and current status of K, L, and higher shell fluorescence yields for computations of photon energy-absorption coefficients*, volume NISTIR 89-4144. National Bureau of Standards, 1989.
- [86] Surinder Singh, Rakesh Rani, Devinder Mehta, Nirmal Singh, P. C. Mangal, and P. N. Trehan. K x-ray fluorescence cross-section measurements of some elements in the energy range 8-47 kev. *X-Ray Spectrometry*, 19(3) :155–158, 1990.

- [87] J. H. Hubbell, P. N. Trehan, Nirmal Singh, B. Chand, D. Mehta, M. L. Garg, R. R. Garg, Surinder Singh, and S. Puri. A review, bibliography, and tabulation of K, L, and higher atomic shell X-ray fluorescence yields. *Journal of Physical and Chemical Reference Data*, 23(2) :339–364, 1994.
- [88] Ridvan Durak and Yüksel Özdemir. Measurement of K-shell fluorescence cross-sections and yields of 14 elements in the atomic number range  $25 \leq Z \leq 47$  using photoionization. *Radiation Physics and Chemistry*, 61(1) :19 – 25, 2001.
- [89] I. Han, M. Sahin, L. Demir, and Y. Sahin. Measurement of K X-ray fluorescence cross-sections, fluorescence yields and intensity ratios for some elements in the atomic range  $22 \leq Z \leq 68$ . *Applied Radiation and Isotopes*, 65(6) :669 – 675, 2007.
- [90] A. Kahoul, A. Abassi, B. Deghfel, and M. Nekkab. K-shell fluorescence yields for elements with  $6 \leq Z \leq 99$ . *Radiation Physics and Chemistry*, 80(3) :369 – 377, 2011.
- [91] B. Nordfors. The statistical errors in X-ray absorption measurements. *Arkiv Fysik*, 18 :37–47, 1960.
- [92] Ivor Backhurst. LVIII. the X-ray K-fluorescence yield. *The London, Edinburgh, and Dublin Philosophical Magazine and Journal of Science*, 22(149) :737–752, 1936.
- [93] R. J. Stephenson. X-ray fluorescence yields. *Physical Review*, 51 :637–642, Apr 1937.
- [94] Mau Hsuing Chen, Bernd Crasemann, and Hans Mark. Relativistic k-shell auger rates, level widths, and fluorescence yields. *Physical Review A*, 21 :436–441, Feb 1980.
- [95] P. Cassette. Mesures de radioactivité par scintillation liquide. *Techniques de l'ingénieur Méthodes nucléaires d'analyse*, base documentaire : TIB389DUO.(ref. article : p2552), 2004. fre.
- [96] P. Cassette. Métrologie de la radioactivité par scintillation liquide. Technical report, LNE-LNHB, 2008.
- [97] A. M. Bresesti, M. Bresesti, and H. Neumann. Measurement of K X-ray emission in the decay of  $^{103m}\text{Rh}$ . *Journal of Inorganic and Nuclear Chemistry*, 29 :15–20, 1967.
- [98] A. Vuorinen. Calibration of  $\text{Rh-}^{103m}$  by the coincidence method. In *Proceedings of a Symposium on Standardization of Radionuclides (10-14 October 1966)*, pages 257–262. IAEA, 1966.
- [99] Y. Grunditz, S. Antman, H. Pettersson, and M. Saraceno. Studies in the decay of  $^{103}\text{Pd}$ . *Nuclear Physics*, A133 :369–384, 1969.
- [100] H. Ing and W. G. Cross. Absolute counting of K X-rays from  $^{103m}\text{Rh}$  in thick foils. *International Journal of Applied Radiation and Isotopes*, 24 :437–450, 1973.
- [101] D. C. Santry and J. P. Butler. Cross section measurements for the  $^{103}\text{Rh}(n,n')^{103m}\text{Rh}$  reaction from 0.122 to 14.74 mev. *Canadian Journal of Physics*, 52(15) :1421–1428, 1974.
- [102] K.H. Czock, N. Haselberger, and F. Reichel. The disintegration of  $^{103m}\text{Rh}$ . *The International Journal of Applied Radiation and Isotopes*, 26(6) :417 – 421, 1975.
- [103] J.P. Perolat, F. Lagoutine, R. Vatin, and P. Magnier. Étude du schéma de désintégration du  $^{103m}\text{Rh}$ . Technical Report 76-13, LMRI, 1976.
- [104] R. Vaninbroukx and W. Zehner. Determination of the K X-ray emission probability in the decay of  $^{103m}\text{Rh}$ . *International Journal of Applied Radiation and Isotopes*, 32 :850, 1981.

- [105] U. Schötzgig. Photon emission probabilities in the decay of  $^{103}\text{Ru}/^{103m}\text{Rh}$ . *International Journal of Applied Radiation and Isotopes*, 45 :641–644, 1994.
- [106] G.A. Jones and W.R. Phillips. Electrical octupole coulomb excitation in rhodium. *Proceedings of the Royal Society A : Mathematical, Physical and Engineering Sciences*, 239 A :487, 1957.
- [107] D.H. Day, W.N. Fox, and H.R. Hyder. Measurement and calculation of fast neutron flux in a zero-energy reactor. *AEEW-R*, 85, 1963. Atomic Energy Establishment Winfrith (England).
- [108] I. Abrams and L. Pelekis. Excitation of metastable levels in nuclei by the gamma-rays of  $^{116m}\text{In}$ . *Proc. 17th All-Union Conf. Nucl. Spectroscopy and Struct. At. Nuclei*, page 30, 1967.
- [109] E. Günther, K. Knauf, and K.F. Walz. The half-life of  $^{103m}\text{Rh}$ . *The International Journal of Applied Radiation and Isotopes*, 24(2) :87 – 89, 1973.
- [110] F. Lagoutine, J. Legrand, and C. Bac. Périodes de quelques radionucléides. *The International Journal of Applied Radiation and Isotopes*, 29(4) :269 – 272, 1978.
- [111] R. Vaninbroukx, G. Grosse, and W. Zehner. New Determination of the Half-lives of  $^{57}\text{Co}$ ,  $^{103}\text{Ru}$ ,  $^{103m}\text{Rh}$ ,  $^{103}\text{Pd}$ , and  $^{109}\text{Cd}$ . *International Journal of Applied Radiation and Isotopes*, 32 :589–591, 1981.
- [112] K.F. Walz, K. Debertain, and H. Schrader. Half-life measurements at the ptb. *The International Journal of Applied Radiation and Isotopes*, 34(8) :1191 – 1199, 1983.
- [113] L.H.Th. Rietjens, H.J. Van Den Bold, and P.M. Endt. Continuous and discrete gamma-radiation in the decay of  $^{103}\text{Pd}$ . *Physica*, 20(1) :107 – 114, 1954.
- [114] B. Saraf. Energy levels of  $\text{rh}^{103}$  from the decay of  $\text{pd}^{103}$  and  $\text{ru}^{103}$ . *Physical Review*, 97 :715–720, Feb 1955.
- [115] P. Avignon, A. Michalowicz, and R. Bouchez. Étude de la désintégration du  $^{103}\text{Pd}$ . *Le Journal de Physique du Radium*, 16(5) :404–410, 1955.
- [116] E.S. Macias, M.E. Phelps, D.G. Sarantites, and R.A. Meyer. Decay of 39-day  $^{103}\text{Ru}$  and 17-day  $^{103}\text{Pd}$  to the levels of  $^{103}\text{Rh}$ . *Physical Review C*, 14 :639–644, Aug 1976.
- [117] D. Newton, A.E.R. Toureau, A.L. Anderson, and R.A. Meyer. Relative high-energy gamma- and X-ray emissions following the decay of  $^{103}\text{Pd}$ . *The International Journal of Applied Radiation and Isotopes*, 29(3) :188 – 189, 1978.
- [118] V.A. Bazhenov, V.A. Bakhshi-Zade, E.A. Aristov, T.N. Sokolova, and A.I. Lumpov. Determination of Absolute Photon Intensities in palladium-103 Decay. *Measurement Techniques*, 28(12) :50–51, 1985.
- [119] W.W. Meinke. Half-life of  $^{109}\text{Pd}$  and neutron activation cross section of  $^{102}\text{Pd}$ . *Phys. Rev.*, 90 :410–412, May 1953.
- [120] J.A. Panontin, N.T. Porile, and A.A. Caretto Jr. Nuclear reactions of silver and indium with 200- and 400-MeV protons. *Physical Review*, 165(4) :1273–1281, 1968.
- [121] K.H. Czock, N. Haselberger, F. Reichel, and S. Popa. Determination of the half-life of  $^{103}\text{Pd}$ . *The International Journal of Applied Radiation and Isotopes*, 26(12) :782 – 784, 1975.

- [122] Yu.S. Popov, L.V. Zakharova, V.N. Kupriyanov, O.I. Andreev, A.N. Pakhomov, and F.Z. Vakheto. Half-life and photon intensities of  $^{103}\text{Pd}$ . *Radiochemistry*, 46(3) :209–210, May 2004.
- [123] M.-C. Lépy, B. Duchemin, and J. Morel. Comparison of experimental and theoretical L X-ray emission probabilities of  $^{241}\text{Am}$ ,  $^{239}\text{Pu}$  and  $^{240}\text{Pu}$ . *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, A353 :10–15, 1994.
- [124] M.-C. Lépy, J. Plagnard, P. Stemmler, G. Ban, L. Beck, and P. Dhez. Si(Li) detector efficiency and peak shape calibration in the low energy range using synchrotron radiation. *X-Ray Spectrometry*, 26 :195–202, 1997.
- [125] Ph. Troussel and N. Coron. BOLUX : A cryogenic electrical-substitution radiometer as high accuracy primary detector in the 150-11,000 eV range. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 614(2) :260 – 270, 2010.

## Annexe A

### Données de décroissance du $^{133}\text{Ba}$



## 1 Decay Scheme

<sup>133</sup>Ba disintegrates by electron capture mainly to two <sup>133</sup>Cs excited levels of 437 keV (85.4%) and of 383 keV (14.5%) with three very minor branches to the 160 keV, 81 keV excited levels and the ground state.

*Le baryum 133 se désintègre par capture électronique principalement vers deux niveaux excités de 437 keV et 383 keV du césium 133.*

## 2 Nuclear Data

$$T_{1/2}({}^{133}\text{Ba}) : 10,539 \quad (6) \quad \text{a}$$

$$Q^+({}^{133}\text{Ba}) : 517,3 \quad (10) \quad \text{keV}$$

### 2.1 Electron Capture Transitions

	Energy (keV)	Probability (%)	Nature	lg <i>ft</i>	<i>P<sub>K</sub></i>	<i>P<sub>L</sub></i>	<i>P<sub>M</sub></i>
ε <sub>0,4</sub>	80,3 (10)	85,41 (53)	Allowed	6,63	0,671 (5)	0,251 (4)	0,0777 (11)
ε <sub>0,3</sub>	133,5 (10)	14,46 (51)	Allowed	8,03	0,7727 (9)	0,1755 (7)	0,05174 (23)
ε <sub>0,2</sub>	356,7 (10)	<0,3	2nd Forbidden	>10,6	0,83	0,13	0,037
ε <sub>0,1</sub>	436,3 (10)	<0,7	2nd Forbidden	>10,9	0,84	0,13	0,037
ε <sub>0,0</sub>	517,3 (10)	<0,0005	Unique 2nd Forbidden	>13,9	0,77	0,18	0,05

## 2.2 Gamma Transitions and Internal Conversion Coefficients

	Energy (keV)	P <sub>γ+ce</sub> (%)	Multipolarity	α <sub>K</sub>	α <sub>L</sub>	α <sub>M</sub>	α <sub>T</sub>
γ <sub>4,3</sub> (Cs)	53,1622 (18)	14,25 (46)	M1+E2	4,78 (7)	0,70 (5)	0,144 (12)	5,66 (11)
γ <sub>2,1</sub> (Cs)	79,6142 (19)	7,3 (5)	M1+E2	1,495 (22)	0,217 (6)	0,0447 (13)	1,77 (3)
γ <sub>1,0</sub> (Cs)	80,9979 (11)	90,05 (6)	M1+E2	1,431 (20)	0,216 (4)	0,0447 (8)	1,703 (24)
γ <sub>2,0</sub> (Cs)	160,6121 (16)	0,826 (9)	M1+E2	0,234 (4)	0,0471 (13)	0,0099 (3)	0,294 (6)
γ <sub>3,2</sub> (Cs)	223,237 (2)	0,494 (6)	M1+E2	0,0836 (12)	0,01103 (16)	0,00226 (4)	0,0975 (14)
γ <sub>4,2</sub> (Cs)	276,3992 (21)	7,53 (6)	E2	0,0460 (7)	0,00842 (12)	0,001763 (25)	0,0566 (8)
γ <sub>3,1</sub> (Cs)	302,8512 (16)	19,10 (12)	M1+E2	0,0373 (6)	0,00484 (7)	0,000988 (14)	0,0434 (6)
γ <sub>4,1</sub> (Cs)	356,0134 (17)	63,63 (20)	E2	0,0211 (3)	0,00346 (5)	0,000721 (10)	0,0254 (4)
γ <sub>3,0</sub> (Cs)	383,8491 (12)	9,12 (6)	E2	0,01684 (24)	0,00270 (4)	0,000560 (8)	0,0202 (3)

## 3 Atomic Data

### 3.1 Cs

ω <sub>K</sub>	:	0,894	(4)
ω̄ <sub>L</sub>	:	0,104	(5)
n <sub>KL</sub>	:	0,895	(4)

#### 3.1.1 X Radiations

	Energy (keV)	Relative probability
X <sub>K</sub>		
Kα <sub>2</sub>	30,6254	54,13
Kα <sub>1</sub>	30,9731	100
Kβ <sub>3</sub>	34,9197	} 29,21532
Kβ <sub>1</sub>	34,9873	
Kβ'' <sub>5</sub>	35,252	
Kβ <sub>2</sub>	35,822	} 7,12854
Kβ <sub>4</sub>	35,907	
KO <sub>2,3</sub>	35,972	
X <sub>L</sub>		
Lℓ	3,7946	
Lα	4,2729 - 4,2866	
Lη	4,1418	
Lβ	4,62 - 4,9333	
Lγ	5,1308 - 5,5525	

**3.1.2 Auger Electrons**

	Energy (keV)	Relative probability
Auger K		
KLL	24,411 - 25,804	100
KLX	28,991 - 30,961	47,2
KXY	33,55 - 35,96	5,56
Auger L		
	2,5777 - 5,5590	

**4 Electron Emissions**

		Energy (keV)	Electrons (per 100 disint.)
e <sub>AL</sub>	(Cs)	2,5777 - 5,5590	136,8 (8)
e <sub>AK</sub>	(Cs)		
	KLL	24,411 - 25,804	} 14,1 (6)
	KLX	28,991 - 30,961	
	KXY	33,55 - 35,96	
ec <sub>4,3</sub> T	(Cs)	17,1776 - 53,1508	12,11 (41)
ec <sub>4,3</sub> K	(Cs)	17,1776 (18)	10,23 (32)
ec <sub>2,1</sub> T	(Cs)	43,6296 - 79,6028	4,66 (35)
ec <sub>2,1</sub> K	(Cs)	43,6296 (19)	3,93 (29)
ec <sub>1,0</sub> K	(Cs)	45,0133 (11)	47,7 (8)
ec <sub>1,0</sub> T	(Cs)	45,0133 - 80,9865	56,7 (9)
ec <sub>4,3</sub> L	(Cs)	47,4479 - 48,1503	1,50 (11)
ec <sub>4,3</sub> M	(Cs)	51,9451 - 52,4367	0,308 (27)
ec <sub>4,3</sub> N	(Cs)	52,9314 - 53,0857	0,065 (5)
ec <sub>2,1</sub> L	(Cs)	73,8999 - 74,6023	0,571 (44)
ec <sub>1,0</sub> L	(Cs)	75,2836 - 75,9860	7,19 (15)
ec <sub>2,1</sub> M	(Cs)	78,3971 - 78,8887	0,118 (9)
ec <sub>2,1</sub> N	(Cs)	79,3834 - 79,5377	0,0247 (19)
ec <sub>1,0</sub> M	(Cs)	79,7808 - 80,2724	1,489 (30)
ec <sub>1,0</sub> N	(Cs)	80,7671 - 80,9214	0,313 (6)
ec <sub>2,0</sub> K	(Cs)	124,6275 (16)	0,1493 (29)
ec <sub>2,0</sub> L	(Cs)	154,8978 - 155,6002	0,0300 (9)
ec <sub>3,2</sub> K	(Cs)	187,252 (2)	0,0376 (7)
ec <sub>4,2</sub> K	(Cs)	240,4146 (21)	0,328 (6)
ec <sub>3,1</sub> T	(Cs)	266,8666 - 302,8398	0,795 (12)
ec <sub>3,1</sub> K	(Cs)	266,8666 (16)	0,683 (12)
ec <sub>4,2</sub> L	(Cs)	270,6849 - 271,3873	0,060 (1)
ec <sub>4,2</sub> M	(Cs)	275,1821 - 275,6737	0,01257 (21)
ec <sub>3,1</sub> L	(Cs)	297,1369 - 297,8393	0,0886 (14)
ec <sub>3,1</sub> M	(Cs)	301,6341 - 302,1257	0,01809 (28)
ec <sub>4,1</sub> T	(Cs)	320,0288 - 356,0020	1,576 (25)

		Energy (keV)	Electrons (per 100 disint.)
ec <sub>4,1</sub> K	(Cs)	320,0288 (17)	1,309 (19)
ec <sub>3,0</sub> K	(Cs)	347,8645 (12)	0,1505 (24)
ec <sub>4,1</sub> L	(Cs)	350,2991 - 351,0015	0,2147 (32)
ec <sub>4,1</sub> M	(Cs)	354,7963 - 355,2879	0,0447 (6)
ec <sub>3,0</sub> L	(Cs)	378,1348 - 378,8372	0,02414 (39)

## 5 Photon Emissions

### 5.1 X-Ray Emissions

		Energy (keV)	Photons (per 100 disint.)	
XL	(Cs)	3,7946 - 5,5525	15,87 (26)	
XK $\alpha_2$	(Cs)	30,6254	33,8 (4)	} K $\alpha$
XK $\alpha_1$	(Cs)	30,9731	62,4 (7)	
XK $\beta_3$	(Cs)	34,9197	} 18,24 (29)	} K' $\beta_1$
XK $\beta_1$	(Cs)	34,9873		
XK $\beta_5''$	(Cs)	35,252		
XK $\beta_2$	(Cs)	35,822	} 4,45 (12)	} K' $\beta_2$
XK $\beta_4$	(Cs)	35,907		
XKO <sub>2,3</sub>	(Cs)	35,972		

### 5.2 Gamma Emissions

	Energy (keV)	Photons (per 100 disint.)
$\gamma_{4,3}$ (Cs)	53,1622 (18)	2,14 (6)
$\gamma_{2,1}$ (Cs)	79,6142 (19)	2,63 (19)
$\gamma_{1,0}$ (Cs)	80,9979 (11)	33,31 (30)
$\gamma_{2,0}$ (Cs)	160,6121 (16)	0,638 (6)
$\gamma_{3,2}$ (Cs)	223,2368 (13)	0,450 (5)
$\gamma_{4,2}$ (Cs)	276,3989 (12)	7,13 (6)
$\gamma_{3,1}$ (Cs)	302,8508 (5)	18,31 (11)
$\gamma_{4,1}$ (Cs)	356,0129 (7)	62,05 (19)
$\gamma_{3,0}$ (Cs)	383,8485 (12)	8,94 (6)

## 6 Main Production Modes

$$\left\{ \begin{array}{l} \text{Ba} - 132(n,\gamma)\text{Ba} - 133 \quad \sigma : 6,5 \text{ (8) barns} \\ \text{Possible impurities: Ba} - 131, \text{Ba} - 140 \\ \text{Ba} - 132(n,\gamma)\text{Ba} - 133\text{m} \quad \sigma : 0,5 \text{ barns} \end{array} \right.$$

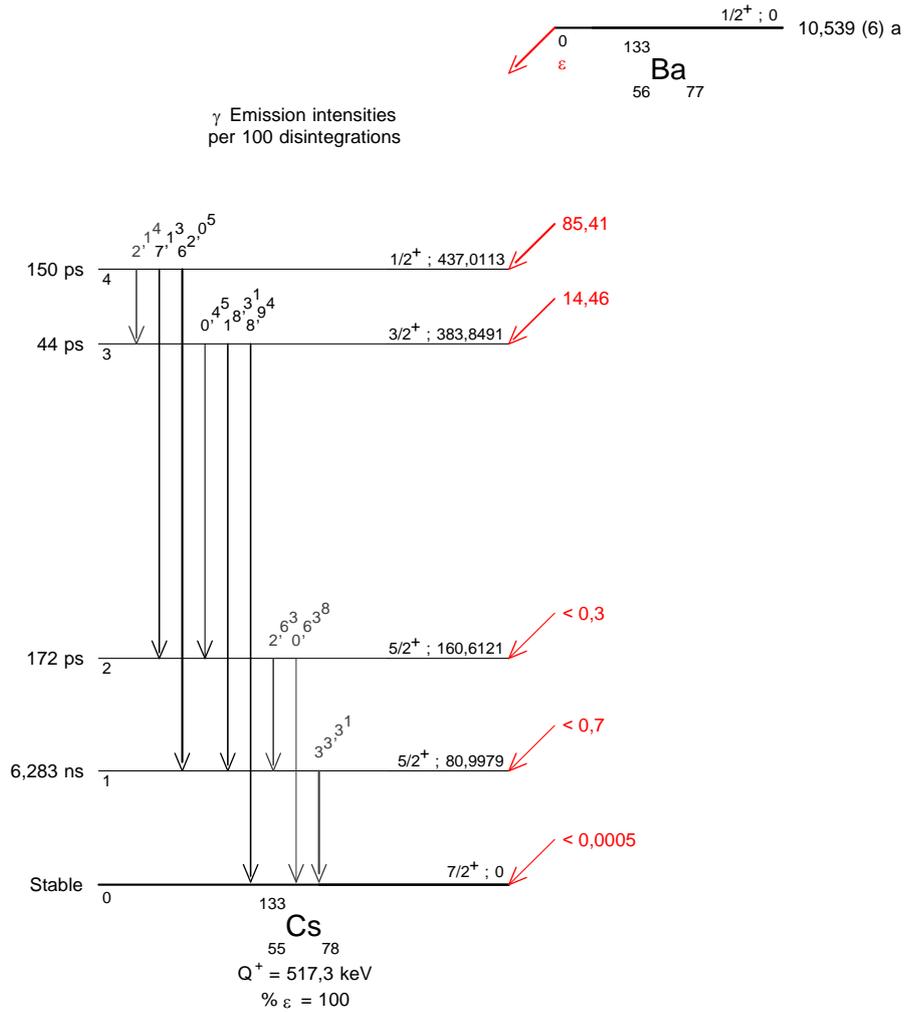
$$\left\{ \begin{array}{l} \text{Ca} - 133(p,n)\text{Ba} - 133 \\ \text{Possible impurities: Cs} - 132 \end{array} \right.$$

## 7 References

- E.I. WYATT, S.A. REYNOLDS, T.H. HANDLEY, W.S. LYON, H.A. PARKER. Nucl. Sci. Eng. 11 (1961) 74 (Half-life)
- P. BLASI, M. BOCCIOLINI, P.R. MAURENZIG, P. SONA, N. TACCETTI. Nuovo Cim. 50B (1967) 298 (Gamma-ray emission probabilities)
- J.A. BEARDEN. Rev. Mod. Phys. 39 (1967) 78 (X-ray energies)
- D.P. DONNELLY, J.J. REIDY, M.L. WIEDENBECK. Phys. Rev. 173 (1968) 1192 (Gamma-ray emission probabilities)
- S.A. REYNOLDS, J.F. EMERY, E.I. WYATT. Nucl. Sci. Eng. 32 (1968) 46 (Half-life)
- P. ALEXANDER, J. P. LAU. Nucl. Phys. A121 (1968) 612 (Gamma-ray emission probabilities, ICC)
- V. NARANG, H. HOUTERMANS. In: Proc. Conf. Electron Capture and Higher Order Processes in Nucl. Decays, Debrecen, Hungary, D. Berenyi, Ed. Eotvos Lorand Phys Soc, Budapest, (1968) 97 (L/K-capture ratio)
- A. NOTEA, Y. GURFINKEL. Nucl. Phys. A107 (1968) 193 (Gamma-ray emission probabilities)
- F. LAGOUTINE, Y. LE GALLIC, J. LEGRAND. Int. J. Appl. Radiat. Isotop. 19 (1968) 475 (Half-life)
- H.E. BOSCH, A.J. HAVERFIELD, E. SZICHMAN, S.M. ABECASIS. Nucl. Phys. A108 (1968) 209 (ICC 81 keV)
- R. GUNNINK, J.B. NIDAY, R.P. ANDERSON, R.A. MEYER. In: UCID-15439 (1969); Gunnink, R.; Nethaway, D. - Priv. Comm. (1969) (Gamma-ray emission probabilities)
- K.F. WALZ, H.M. WEISS. Z. Naturforsch. 25a (1970) 921 (Half-life)
- J.F. EMERY, S.A. REYNOLDS, E.I. WYATT, G.I. GLEASON. Nucl. Sci. Eng. 48 (1972) 319 (Half-life)
- W.D. SCHMIDT-OTT, R.M. FINK. Z. Physik 249 (1972) 286 (K-capture probability, absolute XK emission probability, gamma-ray emission probabilities, ICC)
- H. INOUE, Y. YOSHIKAWA, T. MORII. J. Phys. Soc. Jpn 34 (1973) 1437 (Gamma-ray emission probabilities)
- J. LEGRAND. Nucl. Instrum. Methods 112 (1973) 229 (Gamma-ray emission probabilities)
- R.D. LLOYD, C.W. MAYS. Int. J. Appl. Radiat. Isotop. 24 (1973) 189 (Half-life)
- L.A. MCNELLES, J.L. CAMPBELL. Nucl. Instrum. Methods 109 (1973) 241 (Gamma-ray emission probabilities)
- B.K. DAS MAHAPATRA, P. MUKHERJEE. J. Phys. (London) A7 (1974) 388 (K-capture probability)
- W.F. NICAISE, A.W. WALTNER. Nucl. Instrum. Methods 131 (1975) 477 (K-capture probability)
- R.J. GEHRKE, R.G. HELMER, R.C. GREENWOOD. Nucl. Instrum. Methods 147 (1977) 405 (Gamma-ray emission probabilities)
- U. SCHÖTZIG, K. DEBERTIN, K.F. WALZ. Int. J. Appl. Radiat. Isotop. 28 (1977) 503 (X-ray emission probabilities, Gamma-ray emission probabilities)

- C. VYLOV, B.P. OSIPENKO, V.G. CHUMIN. In: Elementarnie chastitsi and atomnie yadra (Particles and Nuclei) 9 (1978) 1350  
(Gamma-ray emission probabilities)
- R.G. HELMER, R.C. GREENWOOD, R.J. GEHRKE. Nucl. Instrum. Methods 155 (1978) 189  
(Gamma-ray emission probabilities)
- H.H. HANSEN, D. MOUCHEL. In: NEANDC(E) 202U; Vol III (1979) 28  
(Half-life)
- B. CHAUVENET, J. MOREL, J. LEGRAND. Report ICRM-S-6(December 1980) (1980)  
(Absolute gamma-ray emission probabilities)
- H. HOUTERMANS, O. MILOSEVIC, F. REICHEL. Int. J. Appl. Radiat. Isotop. 31 (1980) 153  
(Half-life)
- W.M. RONEY JR., W.A. SEALE. Nucl. Instrum. Methods 171 (1980) 389  
(Gamma-ray emission probabilities)
- A.R. RUTLEDGE, L.V. SMITH, J.S. MERRITT. In: AECL 6692 (1980)  
(Half-life)
- D.D. HOPPE, J.M.R. HUTCHINSON, F.J. SCHIMA, M.P. UNTERWEGER. In: NBS-SP-626 (1982) 85  
(Half-life)
- K. SINGH, H.S. SAHOTA. J. Phys. (London) G9 (1983) 1565  
(K-capture probability)
- K. SINGH, H.S. SAHOTA. J. Phys. Soc. Jpn 52 (1983) 2336  
(K-capture probability)
- B. CHAUVENET, J. MOREL, J. LEGRAND. Int. J. Appl. Radiat. Isotop. 34 (1983) 479  
(Absolute gamma-ray emission probabilities)
- J. KITS, F. LATAL, M. CHOC. Int. J. Appl. Radiat. Isotop. 34 (1983) 935  
(Half-life)
- K.F. WALZ, K. DEBERTIN, H. SCHRADER. Int. J. Appl. Radiat. Isotop. 34 (1983) 1191  
(Half-life)
- Y. YOSHIZAWA, Y. IWATA, T. KATOH, J.Z. RUAN, Y. KAWADA. Nucl. Instrum. Methods 212 (1983) 249  
(Gamma-ray emission probabilities)
- A.S.V. SUBBA LAKSHMI, S. VENKATARATNAM, S.B. REDDY, K.V. REDDY. Curr. Sci. 56 (1987) 407  
(Gamma-ray relative emission probabilities)
- R.B. BEGZHANOV, SH.K. AZIMOV, R.D. MAGRUPOV, SH.A. MIRAKHMEDOV, A. MUKHAMMADIEV, M. NARZIKULOV, S.KH. SALIMOV. In: Program and Theses, Proc. 38th Ann. Conf. Nucl. Spectrosc. Struct. At Nuclei, Baku (1988) 93  
(K-capture probabilities)
- M.C. MARTINS, M.I. MARQUES, F. PARENTE, J.G. FERREIRA. J. Phys. (London) B22 (1989) 3167  
(X-ray emission probabilities)
- A.G. EGOROV, YU.S. EGOROV, V.G. NEDOVESOV, G.E. SHCHUKIN, K.P. YAKOVLEV. In: Program and Thesis, Proc. 39th Ann. Conf. Nucl. Spectrosc. Struct. At Nuclei, Leningrad (1989) 505  
(X-ray emission probabilities)
- V.N. DANILENKO, A.A. KONSTANTINOV, N.V. KURENKOV, L.N. KURCHATOVA, A.B. MALININ, A.V. MAMELIN, S.V. MATVEEV, T.E. SAZONOVA, E.K. STEPANOV, S.V. SERMAN, YU.G. TOPOROV. Appl. Radiat. Isot. 40 (1989) 707  
(Gamma-ray emission probabilities)
- B. DASMAHAPATRA, S. BHATTACHARYA, S. SEN, M. SAHA, A. GOSWAMI. J. Phys. (London) G16 (1990) 1227  
(K-capture probability)
- R.B. FIRESTONE. Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A286 (1990) 584  
(Gamma-ray emission probabilities)
- K. BHASKARA RAO, S.S. RAO, V.S. RAO, H.C. PADHI. Nuovo Cim. 103A (1990) 683  
(K-capture probability)
- R.A. MEYER. Fizika (Zagreb) 22 (1990) 153  
(Gamma-ray emission probabilities)
- C. WESSELBORG, D.E. ALBURGER. Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A302 (1991) 89  
(Gamma ray energies)
- G.P.S. SAHOTA, H. SINGH, H.S. BINARH, B.S. PALLAN, H.S. SAHOTA. J. Phys. Soc. Jpn 61 (1992) 3518  
(K-capture probability)
- M.P. UNTERWERGER, D.D. HOPPE, F.J. SCHIMA. Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A312 (1992) 349  
(Half-life)
- F.E. CHUKREEV. In: Voprosi Atomnoi Nauki i Tekhniki, Ser.: Yadernie konstanti, 1992 2 (1992) 92  
(Decay scheme)

- A.L. NICHOLS. AEA Technology Report AEA- RS-5449 (1993)  
(Decay scheme)
- S. RAB. Nucl. Data Sheets 75 (1995) 491  
(Decay scheme)
- H. MIYAHARA, K. USAMI, C. MORI. Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A374 (1996) 193  
(Gamma-ray emission probabilities)
- E. SCHÖNFELD, H. JANSSEN. Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A369 (1996) 527  
(Atomic Data)
- R.H. MARTIN, K.I.W. BURNS, J.G.V. TAYLOR. Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A390 (1997) 267  
(Half-life)
- H.Y. HWANG, C.B. LEE, T.S. PARK. Appl. Radiat. Isot. 49 (1998) 1201  
(Gamma-ray emission probabilities)
- R.G. HELMER, C. VAN DER LEUN. Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A450 (2000) 35  
(Gamma ray energies)
- M.P. UNTERWEGER. Appl. Radiat. Isot. 56 (2002) 125  
(Half-life)
- H. SCHRADER. Appl. Radiat. Isot. 60 (2004) 17  
(Half-life)
- M.M. BÉ, V. CHISTÉ, C. DULIEU, E. BROWNE, V. CHECHEV, N. KUZMENKO, R. HELMER, A. NICHOLS, E. SCHÖNFELD, R. DERSCH. Monographie BIPM-5 1 (2004) 263  
(Decay data evaluation)
- T. KIBÉDI, T.W. BURROWS, M.B. TRZHASKOVSKAYA, P.M. DAVIDSON, C.W. NESTOR JR. Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A589 (2008) 202  
(BrIcc computer program)
- H. SCHRADER. Appl. Radiat. Isot. 68 (2010) 1583  
(Half-life)
- YU. KHAZOV, A. RODIONOV, F.G. KONDEV. Nucl. Data Sheets 112 (2011) 855  
(Decay scheme)
- M. WANG, G. AUDI, A.H. WAPSTRA, F.G. KONDEV, M. MACCORMICK, X. XU, B. PFEIFFER. Chin. Phys. C36 (2012) 1603  
(Q)
- R. FITZGERALD. J. Res. Natl. Inst. Stand. Technol. 117 (2012) 80  
(Half-life)
- G.V. SAI MANOHAR, K.S. YADAV, K.V. SAI, R. GOWRISHANKAR, K. VENKATARAMANIAN, S. DEEPA, D. RAO. Proceedings of the DAE Symp. on Nucl. Phys. 59 (2014) 286  
(Gamma-ray and electron relative emission probabilities)
- M.P. UNTERWEGER, R. FITZGERALD. Appl. Radiat. Isot. 87 (2014) 92  
(Half-life)



## Annexe B

### Certificat d'étalonnage de l'<sup>241</sup>Am

CEA-SACLAY, LIST/DM2I/LNHB, Bât. 602 - BC 111  
91191 Gif-sur-Yvette Cedex  
Tél : 01 69 08 41 04 - FAX : 01 69 08 26 19  
R.C.S. PARIS B 775 685 019

## CERTIFICAT D'ETALONNAGE

N° 12747

**DÉLIVRÉ À :** Mme Marie-Christine Lépy  
CEA/LIST/LNHB/LMA  
CE-Saclay  
91191 Gif sur Yvette cedex

**OBJET ETALONNÉ :**

Désignation : solution de  $^{241}\text{Am}$

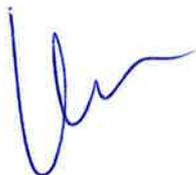
Constructeur : LNHB

Type : Solution LNHB Am241-01-08-11-B LMRI n°2

Ce certificat comprend 2 pages

Date d'émission : *1<sup>er</sup> février 2017*

LE RESPONSABLE TECHNIQUE



**Philippe CASSETTE**

LE CHEF DU LNHB



**Loïc de CARLAN**

**1 Identification** : Solution LNHB Am241-01-08-11-B LMRI n°2**2 Méthodes et moyens**

Grandeur mesurée	Activité massique en $^{241}\text{Am}$	Débit d'émission photonique
Unité	Bq/g	$\text{s}^{-1}$
Type de détecteur	Compteur à scintillation liquide	Spectromètre gamma
Référence de la chaîne de mesurage	RCTD 1	G5
Méthode de mesurage	Scintillation liquide, méthode RCTD	Spectrométrie gamma
Opérateurs	I. Tartès, P. Cassette	S. Pierre

Les conditions d'environnement n'influent pas sur le résultat de la mesure.

**3 Résultats****3.1 Activité massique**

Date de mesure	24 aout 2016
Date et heure de référence	24 aout 2016 à 12h UTC
Activité massique en $^{241}\text{Am}$	56,45 kBq/g
Incertitude-type composée	0,09 kBq/g
<i>Incertitude relative élargie (k=2)</i>	<i>0,3 %</i>

**3.2 Impuretés**

Aucune impureté radioactive émettant du rayonnement photonique entre 40 keV et 2 MeV n'a été détectée à la date de référence. La limite de détection correspond à un débit d'émission sous  $4\pi$  sr inférieur à  $1,4 \cdot 10^{-4}$  photon par seconde et par Bq de solution, sur la gamme d'énergie considérée.

***Les incertitudes élargies mentionnées sont celles correspondant à deux fois l'incertitude-type composée.***

La délivrance d'un certificat d'étalonnage portant le logotype Cofrac-Etalonnage garantit le raccordement des résultats d'étalonnage au système international d'unités SI.

## Annexe C

Certificats de pureté des lots de niobium et rhodium utilisés pour la dosimétrie en réacteur

---

ced

---

**Niobium**  
**Nb-002**

OBJET : MATERIAUX DOSIMETRES NEUTRONIQUES.

## CERTIFICAT D'ANALYSE.

Matériau : NIOBIUM

Lot : Interne CEA CEN GRENOBLE  
Elaboration : M. VANONI (DRF.SPh.MP)  
Mise en forme : MM. VANONI, BIOLLAY.

Description : Feuille, épaisseur nominale 20 microns.

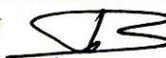
Technique d'analyse : Spectrométries de masse.  
Activation neutronique pour le Ta

Éléments détectés : Après les 5 passages de fusion de zone.

(la concentration est donnée en parts par million, en masse)

Mo : 14  
W : 12  
Ta : 4,6 (4 : analyse par activation)  
Zr :  $\leq 2$   
Fe :  $\leq 0,06$   
Ni :  $\leq 0,02$

Rédacteur : J-J.BONNIN



Vérificateur : R. LLORET.



1613/72

Fourniture Cristal-Tech (Girard - D.5)

**N I O B I U M**  
=====

• Pureté du métal de départ (en ppm)

lot	Ni	Fe	Ta	W	Mo	Zr	Cr	Co
1	≤ 0,7	≤ 1,1	51	21	31	≤ 1,8	0,07	≤ 0,01
②	3	≤ 3,7	4,8	11	25	≤ 3	0,17	≤ 0,016
3	2,25	≤ 4	15	8,9	5,7	≤ 7	0,14	≤ 0,013

• Pureté du métal après fusion sous vide, 5 passages de fusion de zone (en ppm)

lot	Ni	Fe	Ta	W	Mo	Zr	Cr	Co
1	≤ 0,01	≤ 0,05	65	36	15	≤ 2	≤ 0,001	≤ 2 10 <sup>-4</sup>
②	≤ 0,02	≤ 0,06	4,6	12	14	≤ 2	≤ 0,004	≤ 3 10 <sup>-4</sup>
3	≤ 0,015	≤ 0,05	15	11	7,2	≤ 1	≤ 0,002	≤ 2 10 <sup>-4</sup>

Teneurs en  $1 < O_2 < 0,6$   
 $0,4 < C < 0,6$

• Forme du barreau

section d'environ 1,5 cm<sup>2</sup>  
longueur 20 cm

• Possibilité de laminage

épaisseur 0,15 mm  
largeur 30 mm  
longueur 300 mm

• Fil de 1 mm

• Fusion sous ultra-vide 10<sup>-8</sup> torr

./..



Institute for Reference  
Materials and Measurements

# Rhodium

## Rh-004



## CERTIFICATE

NUCLEAR REFERENCE MATERIAL IRMM-529 N° 10  
RHODIUM METAL FOR REACTOR NEUTRON DOSIMETRY

**IRIDIUM MASS FRACTION:  $< 26.0 \pm 0.6 \text{ g.kg}^{-1}$**   
**PLATINUM MASS FRACTION:  $< 5 \text{ g.kg}^{-1}$**

This Nuclear Reference Material (NRM) is intended to be used in neutron metrology. It has been prepared from rhodium metal of nominal purity of  $>99.97\%$  determined by spark source mass spectrometry (SSMS) and neutron activation analysis (NAA) and has been transformed into 0.5mm thick foil (20cm<sup>2</sup> units).

The certified value of the iridium mass fraction is based on 59 results from six laboratories using two different methods: instrumental neutron activation analysis (INAA) and inductively coupled plasma mass spectrometry (ICP-MS), and that of the platinum mass fraction is based on 41 results from three laboratories using four different methods: INAA, ICP-MS, Neutron activation analysis with radiochemical separation (RNAA) and charged particle activation analysis (CPAA).

The indicated uncertainty on the iridium mass fraction corresponds to a confidence level of 95%.

IRMM-529 was prepared in cooperation with the Monitor Materials Subgroup of the Euratom Working Group for Reactor Dosimetry (EWGRD).

C. INGELBRECHT  
Reference Materials Unit

Geel, October 1999

European Commission - Joint Research Centre  
Institute for Reference Materials and Measurements (IRMM)  
Retieseweg, B-2440 Geel, Belgium  
Tel: +32 (0)14 571600 Fax: +32 (0)14 590406  
Email: [chris.ingelbrecht@irmm.jrc.be](mailto:chris.ingelbrecht@irmm.jrc.be) <http://irmmplus.jrc.be>

The logo for the Institute for Reference Materials and Measurements (IRMM) consists of the lowercase letters 'irm' stacked above 'm' in a stylized, handwritten font.

## CHARACTERISATION (uncertainties $\pm$ s)

### Iridium mass fraction

Lab 1	INAA	25.6	$\pm 0.3$	n=7
Lab 2	INAA	26.6	$\pm 0.4$	n=8
Lab 3	ICP-MS	26.1	$\pm 0.5$	n=8
Lab 4	INAA	25.6	$\pm 0.6$	n=14
Lab 5	INAA	25.4	$\pm 0.6$	n=14
Lab 6	INAA	26.7	$\pm 0.6$	n=8

### Platinum mass fraction

Lab 3	ICP-MS	2.5	$\pm 0.2$	n=8
Lab 4	INAA	2.8	$\pm 0.6$	n=14
Lab 5	RNAA	2.5	$\pm 0.3$	n=11
	CPAA	1.6	$\pm 0.2$	n=8

## PARTICIPATING LABORATORIES

### Institute for Reference Materials and Measurements, Geel (B)

F. Peetermans, E. Freistedt, C. Ingelbrecht, W. Lycke

### Centre National de la Recherche Scientifique, Centre d'Etudes et de Recherches par Irradiation, Orléans, et Laboratoire Pierre Süe (CEA-CNRS), Saclay (F)

P. Albert, J.C. Bajard, M. Federoff

### AEA Technology, Harwell (UK)

T. Collier, C. Pickford, J. Hislop

### Studiecentrum voor Kernenergie/Centre d'Etude de l'Energie Nucléaire (SCK/CEN), Mol (B)

P. D'Hondt

### Max-Planck-Institut für Werkstoffwissenschaften, Dortmund (D)

R. Garten

### Risø National Laboratory, Roskilde (DK)

K. Heydorn, E. Damsgaard

## **METHODS USED**

Charged particle activation analysis (CPAA)

Inductively coupled plasma mass spectrometry (ICP-MS)

Instrumental neutron activation analysis (INAA)

Neutron activation analysis with radiochemical separation (RNAA)

## **LEGAL NOTICE**

This document was prepared under the sponsorship of the European Commission. Neither the European Commission nor any person acting on their behalf make any warranty of representation, expressed or implied, that the use of any information, material, apparatus, method or process disclosed in this document may not infringe privately owned rights, or assume any liability with respect to the use of, or for damages resulting from the use of any information, material, apparatus, methods or process disclosed in this document.

# Annexe D

## Diagrammes et probabilités de réarrangements

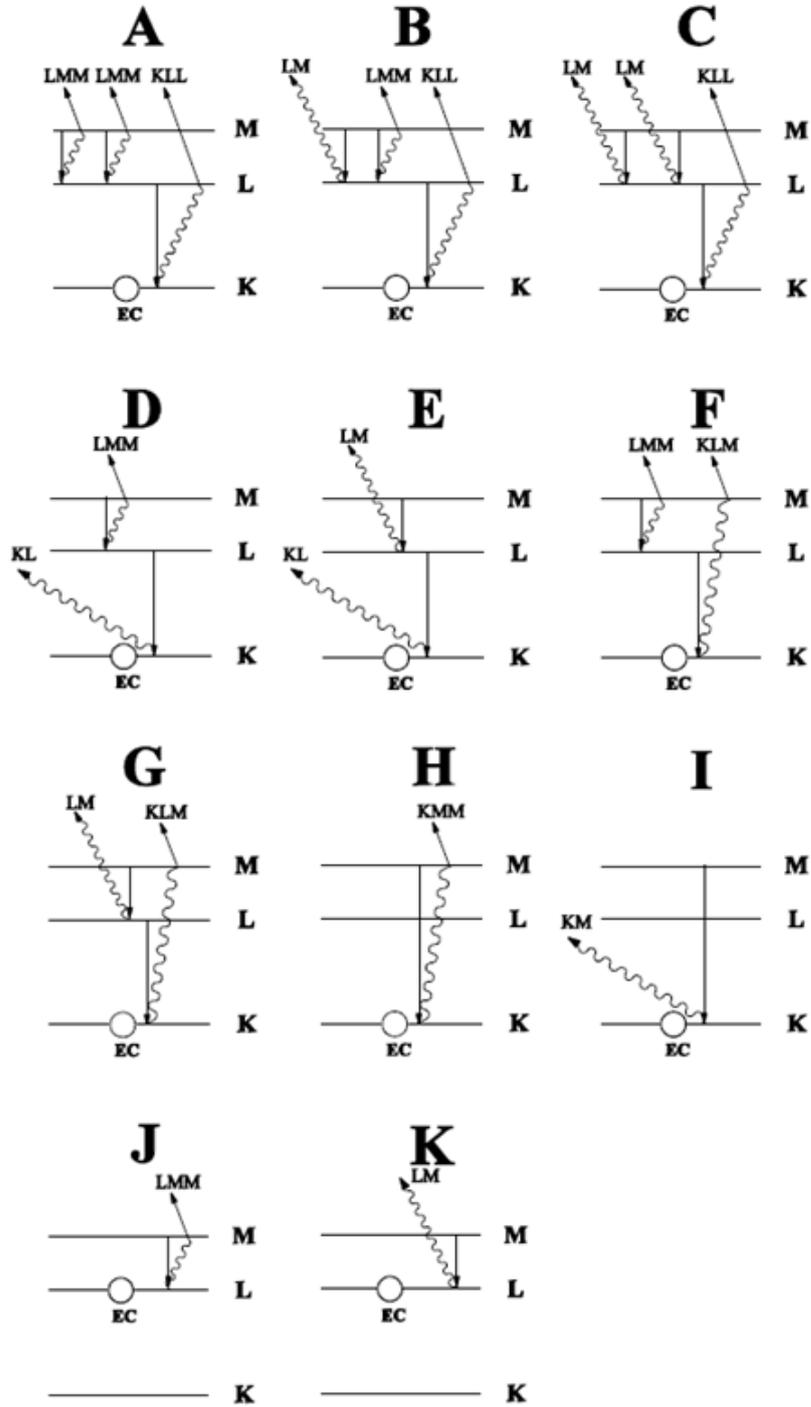


FIGURE D.1 – Diagrammes illustrant les réarrangements dans le cadre du modèle KLM. Les cercles représentent la lacune initiale. Les électrons Auger et les rayons X sont représentés respectivement par des flèches droites et ondulés.

Chemin	Diagramme	Probabilité
1	A	$P_K(1 - \omega_K)P_{KLL}(1 - \varpi_L)^2 P_{LMM}^2$
2	B	$2P_K(1 - \omega_K)P_{KLL}(1 - \varpi_L)P_{LMM}\varpi_L P_{LM}P_{int}$
3	B	$2P_K(1 - \omega_K)P_{KLL}(1 - \varpi_L)P_{LMM}\varpi_L P_{LM}(1 - P_{int})$
4	C	$P_K(1 - \omega_K)P_{KLL}\varpi_L^2 P_{LM}^2 P_{int}^2$
5	C	$2P_K(1 - \omega_K)P_{KLL}\varpi_L^2 P_{LM}^2(1 - P_{int})P_{int}$
6	C	$P_K(1 - \omega_K)P_{KLL}\varpi_L^2 P_{LM}^2(1 - P_{int})^2$
7	D	$P_K\omega_K P_{KL}(1 - \varpi_L)P_{LMM}P_{int}$
8	D	$P_K\omega_K P_{KL}(1 - \varpi_L)P_{LMM}(1 - P_{int})$
9	E	$P_K\omega_K P_{KL}\varpi_L P_{LM}P_{int,K}P_{int,L}$
10	E	$P_K\omega_K P_{KL}\varpi_L P_{LM}(1 - P_{int,K})P_{int,L}$
11	E	$P_K\omega_K P_{KL}\varpi_L P_{LM}P_{int,K}(1 - P_{int,L})$
12	E	$P_K\omega_K P_{KL}\varpi_L P_{LM}(1 - P_{int,K})(1 - P_{int,L})$
13	F	$P_K(1 - \omega_K)P_{KLM}(1 - \varpi_L)P_{LMM}$
14	G	$P_K(1 - \omega_K)P_{KLM}\varpi_L P_{LM}P_{int}$
15	G	$P_K(1 - \omega_K)P_{KLM}\varpi_L P_{LM}(1 - P_{int})$
16	H	$P_K(1 - \omega_K)P_{KMM}$
17	I	$P_K\omega_K P_{KM}P_{int}$
18	I	$P_K\omega_K P_{KM}(1 - P_{int})$
19	J	$P_L(1 - \varpi_L)P_{LMM}$
20	K	$P_L\varpi_L P_{LM}P_{int}$
21	K	$P_L\varpi_L P_{LM}(1 - P_{int})$

FIGURE D.2 – Probabilités des 21 chemins de réarrangement pour le modèle KLM, correspondant à la figure D.1

# Liste des tableaux

1	Liste de dosimètres couramment utilisés ainsi que leur sensibilité énergétique aux neutrons [14] . . . . .	12
1.1	Classification des transitions $\beta$ [15] . . . . .	15
1.2	Classification des transitions $\gamma$ [15] . . . . .	18
1.3	Configuration électronique en couches selon les nombres quantiques n, l et j . . .	19
1.4	Classification des transitions radiatives à partir d'une lacune dans les couches K, L <sub>1</sub> , L <sub>2</sub> ou L <sub>3</sub> pour le neptunium. Energies et probabilités [19] . . . . .	23
3.1	Données de la transition $\gamma$ et coefficients de conversion interne . . . . .	63
3.2	Rendement de fluorescence et énergie de liaison des couches électroniques du niobium . . . . .	64
3.3	Énergies et intensités des émissions électroniques et des rayons X du <sup>93m</sup> Nb . . .	64
3.4	Impuretés présentes dans le niobium (données en masse, exprimées en ppm) . .	65
3.5	Données de la transition $\gamma$ et coefficients de conversion interne . . . . .	66
3.6	Rendement de fluorescence et énergie de liaison des couches électroniques du rhodium . . . . .	67
3.7	Énergies et intensités des émissions électroniques et des rayons X du <sup>103m</sup> Rh . .	68
3.8	Quantité de chaque impureté présente dans le rhodium donnée en ppm, en masse	68
4.1	Dimensions du détecteurs et caractéristiques du cristal de germanium . . . . .	77
4.2	Dimensions du cristal et du détecteur de la Voie X1 et de la Voie X2 . . . . .	79
4.3	Fichier CASCADE du <sup>60</sup> Co, pour 10 désintégrations . . . . .	94
4.4	Liste des radionucléides utilisés pour l'étalonnage . . . . .	96
4.5	Comparaison entre les deux ajustements avec et sans les modifications apportées aux résultats de <sup>152</sup> Eu . . . . .	101
4.6	Comparaison entre les deux ajustements avec et sans <sup>210</sup> Pb . . . . .	102
4.7	Comparaison entre les dimensions de GENIX fournies par ORTEC et celles déterminées à partir de la radiographie. . . . .	103
4.8	Comparaison entre les dimensions de GENIX utilisées pour le premier essai et celles permettant d'obtenir le meilleur résultat par comparaison avec l'expérimental	108
4.9	Liste des corrections de coïncidences par radionucléides . . . . .	109
4.10	Comparaison entre les rendements d'absorption totale obtenus avec l'ajustement d'ACORES et ceux obtenus avec la simulation de PENELOPE . . . . .	110
4.11	Comparaison entre les rendements d'absorption totale obtenus avec PENELOPE et ceux obtenus avec GEANT4 . . . . .	117
4.12	Liste des radionucléides supplémentaires utilisés pour le second étalonnage de GENIX . . . . .	120

5.1	Facteurs de transfert de rendement obtenus avec PENELOPE et comparés aux résultats d'ETNA . . . . .	129
5.2	Comparaison des surfaces sous le pic d'absorption totale entre les deux méthodes d'ajustement des spectres . . . . .	135
5.3	Coefficients de fluorescence déterminés en 1971 . . . . .	139
5.4	Coefficients de fluorescence partiels et totaux déterminés à partir de la simulation GEANT4 . . . . .	143
5.5	Résultats retenus pour les coefficients de fluorescence déterminés avec GEANT4 et comparés avec ceux calculés en 1971 . . . . .	143
5.6	Part de chaque processus d'ionisation dans le résultat du calcul des coefficients de fluorescence pour chacune des impuretés . . . . .	143
5.7	Estimation des activités de $^{99}\text{Tc}$ et de $^{185}\text{W}$ 30 jours après la fin d'irradiation en cœur ou en périphérie du réacteur OSIRIS . . . . .	146
5.8	Résultats retenus pour les coefficients de fluorescence . . . . .	147
5.9	Coefficients de fluorescence partiels et totaux déterminés à partir de la simulation GEANT4 . . . . .	152
5.10	Résultats retenus pour les coefficients de fluorescence dans le cas des dosimètres rhodium . . . . .	152
6.1	Comparaison des rendements de fluorescence K du niobium . . . . .	164
6.2	Valeurs de rendements de fluorescence K du rhodium . . . . .	167
6.3	Comparaison des avantages et des inconvénients entre le rhodium pur et le chlorure de rhodium . . . . .	177
6.4	Dimension des boîtiers contenant les échantillons à irradier . . . . .	179
6.5	Comparaison des données obtenues avec les deux multipolarités (E3 et E3 + 0,05%M4) pour la transition gamma à 39,76 keV du $^{103m}\text{Rh}$ . <i>Peci</i> correspond à la probabilité de conversion interne d'un électron de la couche <i>i</i> et $\alpha_i$ correspond au coefficient de conversion interne de la couche <i>i</i> . . . . .	186
6.6	Énergies et intensités des émissions électroniques et X pour la décroissance de $^{103m}\text{Rh}$ . . . . .	186
6.7	Résultats de la mesure d'activité de la poudre de chlorure de rhodium en scintillation liquide, mesures effectuées à 11h46 UTC . . . . .	187
6.8	Coefficients de transfert de rendement d'une source ponctuelle à une source volumique obtenus par simulation Monte Carlo - première journée . . . . .	187
6.9	Coefficients de transfert de rendement d'une source ponctuelle à une source volumique obtenus par simulation Monte Carlo - seconde journée . . . . .	188
6.10	Intensités d'émission des photons lors de la décroissance du $^{103m}\text{Rh}$ - première journée . . . . .	188
6.11	Intensités d'émission des photons lors de la décroissance du $^{103m}\text{Rh}$ - seconde journée . . . . .	188
6.12	Résultats sur les intensités d'émission des photons lors de la décroissance du $^{103m}\text{Rh}$ . . . . .	188
6.13	Résultats des mesures des intensités d'émission XK de $^{103m}\text{Rh}$ comparés avec les résultats publiés . . . . .	190
6.14	Mesures de la période radioactive de $^{103m}\text{Rh}$ précédemment publiées . . . . .	191
6.15	Intensité relative de $\gamma$ à 357 keV par rapport aux rayons XK de $^{103}\text{Pd}$ . . . . .	191

6.16	Intensité des rayons XK de $^{103}\mathbf{Pd}$ . . . . .	192
6.17	Période radioactive de $^{103}\mathbf{Pd}$ . . . . .	192
6.18	Énergies et intensités des émissions électroniques et X pour la désintégration de $^{103m}\mathbf{Rh}$ . . . . .	198
6.19	Résultats des mesures d'activité de $^{103m}\mathbf{Rh}$ en scintillation liquide, rapportées à 10h30 UTC . . . . .	198
6.20	Facteurs de transfert de rendement d'une géométrie en source ponctuelle à la géométrie de la source de $^{103m}\mathbf{Rh}$ , obtenus par simulation Monte Carlo . . . . .	199
6.21	Intensités d'émission des photons lors de la décroissance du $^{103m}\mathbf{Rh}$ . . . . .	199
6.22	Intensités d'émission des photons lors de la décroissance de $^{103m}\mathbf{Rh}$ . . . . .	201
6.23	Intensités d'émission XK mesurées pour la désintégration de $^{103}\mathbf{Pd}$ . . . . .	204
6.24	Données sur les émissions $\gamma$ de $^{103}\mathbf{Pd}$ provenant de la dernière évaluation . . . . .	204
6.25	Mesure des intensités d'émission $\gamma$ de $^{103}\mathbf{Pd}$ effectuées sur un spectromètre $\gamma$ . . . . .	205
6.26	Mesures de deux intensités d'émission $\gamma$ de $^{103}\mathbf{Pd}$ sur GENIX . . . . .	205
6.27	Paramètres influant sur les intensités d'émission XL en fonction de la multipolarité	207
6.28	Facteurs de transfert de rendement recommandés pour les dosimètres niobium et rhodium selon la géométrie de la source . . . . .	210
6.29	Coefficients de fluorescence $K\alpha$ et $K\beta$ pour chacune des impuretés pour les dosimètres niobium et rhodium . . . . .	211
6.30	Coefficients de fluorescence $K\alpha$ et $K\beta$ pour chacune des impuretés pour les dosimètres niobium et rhodium . . . . .	211
6.31	Intensités d'émission des photons du $^{103m}\mathbf{Rh}$ et rendement de fluorescence déterminé pour le rhodium . . . . .	212

# Table des figures

1.1	Réarrangement électronique par effet Auger $KL_1L_2$ . . . . .	20
1.2	Réarrangement électronique par transition Coster-Kronig $L_1L_3M_4$ . . . . .	21
1.3	Réarrangement électronique avec émission d'un rayon XK . . . . .	21
1.4	Exemple d'une courbe de décroissance radioactive . . . . .	25
1.5	Exemple d'équilibre séculaire . . . . .	26
1.6	Prédominance de chaque type d'interaction dans la matière en fonction de l'énergie du photon incident et du numéro atomique du matériau cible . . . . .	27
1.7	Effet photoélectrique . . . . .	28
1.8	Diffusion Rayleigh . . . . .	29
1.9	Diffusion Compton . . . . .	30
1.10	Création de paires et annihilation . . . . .	30
2.1	Exemple de schéma d'un système électronique pour un détecteur semi-conducteur	38
2.2	Configuration d'un détecteur GeHP plan . . . . .	39
2.3	Configuration d'un détecteur GeHP coaxial . . . . .	39
2.4	Signal en sortie du préamplificateur à retour résistif ou à « reset » . . . . .	40
2.5	Schéma du signal en sortie de l'amplificateur avec une mise en forme gaussienne (haut) ou triangulaire (bas) . . . . .	41
2.6	Carré de l'écart-type de la gaussienne en fonction de l'énergie . . . . .	45
2.7	Exemple d'un ajustement d'une fonction Apolog à des points expérimentaux du rendement . . . . .	46
2.8	Illustration de différentes interactions des photons dans un détecteur. PE = Effet PhotoÉlectrique; PP = Production de Paires; DC = Diffusion Compton; RXK = photons de fluorescence K du germanium . . . . .	51
2.9	Illustration des différents effets dans un spectre, exemple de $^{28}\text{Al}$ . . . . .	51
2.10	Différence entre l'énergie des photons incidents et celle des photons diffusés en fonction de l'angle de diffusion pour différentes énergies de photons incidents . . . . .	53
2.11	Spectre de $^{88}\text{Y}$ avec des XK dans la région 14-16 keV . . . . .	53
2.12	Spectre de $^{133}\text{Ba}$ avec des XK dans la région 30-36 keV . . . . .	54
2.13	Spectre de $^{241}\text{Am}$ dans la région d'énergies comprises entre 40 et 60 keV . . . . .	54
3.1	Sections efficaces du $^{93}\text{Nb}$ en fonction de l'énergie. La courbe en bleu représente la section efficace totale, en rouge la section efficace de capture radiative et en vert la section efficace de diffusion inélastique [47] . . . . .	62
3.2	Schéma de désintégration du $^{93m}\text{Nb}$ - I.T. = « Transition Isomérique » . . . . .	64
3.3	Réactions possibles dans un dosimètre niobium à partir du $^{93}\text{Nb}$ . En bleu est indiquée la réaction d'intérêt du dosimètre . . . . .	65
3.4	Schéma de désintégration du $^{103m}\text{Rh}$ - I.T. = « Transition Isomérique » . . . . .	67

3.5	Schéma des réaction possible dans un dosimètre rhodium à partir du $^{103}\text{Rh}$ . En bleu est indiquée la réaction d'intérêt du dosimètre . . . . .	68
3.6	Schéma simplifié du phénomène de fluorescence dans les dosimètres - exemple avec le dosimètre niobium . . . . .	69
4.1	Plan du détecteur GENIX . . . . .	76
4.2	Configuration géométrique de référence du détecteur GENIX . . . . .	77
4.3	Spectre du $^{109}\text{Cd}$ dans le domaine d'énergie des rayons X sans et avec collimateurs . . . . .	78
4.4	Module nanoMCA de labZY . . . . .	80
4.5	Face avant du module nanoMCA . . . . .	80
4.6	Face arrière du module nanoMCA . . . . .	80
4.7	Résolution en fonction de l'énergie pour une largeur de plateau fixée à $2 \mu\text{s}$ . . . . .	82
4.8	Résolution en fonction de l'énergie pour une largeur de plateau fixée à $0,5 \mu\text{s}$ . . . . .	83
4.9	Résolution en fonction de l'énergie pour une largeur de plateau fixée à $0,25 \mu\text{s}$ . . . . .	83
4.10	Résolution en fonction de l'énergie pour une largeur de plateau fixée à $0,125 \mu\text{s}$ . . . . .	84
4.11	Résolution en fonction du temps de montée . . . . .	84
4.12	Résolution en fonction de l'énergie des pics du $^{133}\text{Ba}$ pour un temps de montée de $12 \mu\text{s}$ . . . . .	85
4.13	Surface relative en fonction de l'énergie pour une largeur de plateau fixée à $2 \mu\text{s}$ . . . . .	85
4.14	Surface relative en fonction de l'énergie pour une largeur de plateau fixée à $0,5 \mu\text{s}$ . . . . .	86
4.15	Surface relative en fonction de l'énergie pour une largeur de plateau fixée à $0,250 \mu\text{s}$ . . . . .	86
4.16	Surface relative en fonction de l'énergie pour une largeur de plateau fixée à $0,125 \mu\text{s}$ . . . . .	87
4.17	Détecteur GENIX avec les sources de baryum et de fer . . . . .	87
4.18	Variation de la surface relative en fonction du taux de comptage . . . . .	88
4.19	Variation de la surface relative en fonction du taux de comptage . . . . .	89
4.20	Variation du temps mort en fonction du taux de comptage . . . . .	89
4.21	Fichier de désintégration ASCII du $^{60}\text{Co}$ utilisé pour PENNUC . . . . .	93
4.22	Etalonnage en énergie du détecteur GENIX . . . . .	97
4.23	Variation de $\sigma^2$ de GENIX en fonction de l'énergie . . . . .	97
4.24	Rendement d'absorption totale de GENIX en fonction de l'énergie des photons . . . . .	98
4.25	Spectre de $^{129}\text{I}$ dans la région des énergie des rayons XK de l'iode et du xénon . . . . .	99
4.26	Rendement d'absorption totale de GENIX en fonction de l'énergie (distance source-détecteur : 8 cm) et premier ajustement des points expérimentaux par ACORES . . . . .	99
4.27	Spectre de $^{152}\text{Eu}$ dans la région des énergie des rayons XK du samarium et du gadolinium . . . . .	100
4.28	Variation du rendement d'absorption totale de GENIX en fonction de l'énergie, second essai d'ajustement . . . . .	101
4.29	Rendement d'absorption totale de GENIX en fonction de l'énergie, et ajustement sans $^{210}\text{Pb}$ . . . . .	102
4.30	Radiographie du détecteur GENIX . . . . .	104
4.31	Comparaison entre le rendement d'absorption totale calculé avec PENELOPE et les résultats expérimentaux . . . . .	104
4.32	Résultats obtenus avec PENELOPE pour une épaisseur de la zone morte en entrée de $10 \mu\text{m}$ , comparés aux résultats expérimentaux . . . . .	105

4.33	Résultats obtenus avec PENELOPE pour une épaisseur de la zone inactive de 6 mm, comparés aux résultats expérimentaux . . . . .	106
4.34	Résultats obtenus avec PENELOPE pour un diamètre de la zone active de 14 mm, comparés aux résultats expérimentaux . . . . .	107
4.35	Résultat final du rendement d'absorption totale en fonction de l'énergie et comparaison des résultats obtenus avec PENELOPE aux résultats expérimentaux . .	109
4.36	Comparaison du calcul du rendement analytique avec l'expérimental et la simulation Monte Carlo . . . . .	111
4.37	Comparaison du calcul du rendement analytique avec l'expérimental et la simulation Monte Carlo, zoom sur les énergies entre 10 et 70 keV . . . . .	112
4.38	Comparaison du calcul du rendement analytique avec l'expérimental et la simulation Monte Carlo . . . . .	113
4.39	Comparaison du calcul du rendement analytique avec l'expérimental et la simulation Monte Carlo, zoom sur les énergies entre 10 et 70 keV . . . . .	114
4.40	Comparaison entre le rendement d'absorption totale déterminé avec PENELOPE et les résultats expérimentaux pour la Voie X2 de MADERE . . . . .	115
4.41	Transmission des photons dans une cible en tantale d'épaisseur de 2,03 mm en fonction de l'énergie des photons incidents . . . . .	116
4.42	Comparaison entre les rendements obtenus sur PENELOPE et GEANT4 . . . .	117
4.43	Dispositif expérimental du balayage de la surface de GENIX . . . . .	119
4.44	Schéma du balayage de GENIX . . . . .	119
4.45	Nombre de coup sous le pic de 60 keV de $^{241}\text{Am}$ en fonction de sa position au-dessus du détecteur. . . . .	120
4.46	Variation du rendement d'absorption totale de GENIX en fonction de l'énergie des photons pour une distance source-détecteur d'environ 8 cm - Second étalonnage	121
4.47	Variation de l'énergie en fonction du numéro du canal pour le détecteur GENIX - Second étalonnage . . . . .	121
4.48	Variation de la résolution de GENIX en fonction de l'énergie des photons - Second étalonnage . . . . .	122
4.49	Variation du rendement d'absorption totale de GENIX en fonction de l'énergie des photons pour une distance source-détecteur d'environ 8 cm et premier ajustement des points expérimentaux par ACORES - Second étalonnage . . . .	122
4.50	Comparaison des résultats obtenus par simulation Monte Carlo aux résultats expérimentaux - Second étalonnage . . . . .	123
4.51	Comparaison du calcul du rendement analytique avec l'expérimental et la simulation Monte Carlo . . . . .	124
4.52	Comparaison du calcul du rendement analytique avec l'expérimental et la simulation Monte Carlo, zoom sur les énergies entre 10 et 70 keV . . . . .	124
5.1	Spectre d'une source ponctuelle de $^{109}\text{Cd}$ aux énergies $\text{XK}\alpha$ (22,103 keV) et $\text{XK}\beta$ (25,072 keV) . . . . .	130
5.2	Spectre d'une source volumique de $^{103m}\text{Rh}$ aux énergies $\text{XK}\alpha$ (20,167 keV) et $\text{XK}\beta$ (22,781 keV) . . . . .	130
5.3	Spectre brut de $^{109}\text{Cd}$ aux énergies $\text{XK}\alpha$ (22,103 keV) et $\text{XK}\beta$ (25,072 keV) (a) et du $^{103m}\text{Rh}$ aux énergies $\text{XK}\alpha$ (20,167 keV) et $\text{XK}\beta$ (22,781 keV) (b). Les régions d'intérêt sélectionnées apparaissent en rouge. . . . .	132

5.4	Traitement du spectre de $^{109}\text{Cd}$ à l'énergie $\text{XK}\alpha$ (22,103 keV) . . . . .	132
5.5	Traitement du spectre de $^{103m}\text{Rh}$ à l'énergie $\text{XK}\alpha$ (20,167 keV) . . . . .	132
5.6	Spectre brut de $^{103m}\text{Rh}$ aux énergies $\text{XK}\alpha$ (22,103 keV) et $\text{XK}\beta$ (25,072 keV) (a) et de $^{103m}\text{Rh}$ aux énergies $\text{XK}\alpha$ (20,167 keV) et $\text{XK}\beta$ (22,781 keV) (b). Les régions d'intérêt sélectionnées apparaissent en rouge. . . . .	133
5.7	Traitement du spectre du $^{109}\text{Cd}$ aux énergies $\text{XK}\alpha$ (22,103 keV) et $\text{XK}\beta$ (25,072 keV)	133
5.8	Traitement du spectre du $^{103m}\text{Rh}$ aux énergies $\text{XK}\alpha$ (20,167 keV) et $\text{XK}\beta$ (22,781 keV)	134
5.9	Spectre d'une source ponctuelle simulé sur GEANT4 pour une énergie des photons incidents de 11 500 eV, entre 0 et 12 000 eV . . . . .	135
5.10	Spectre d'une source ponctuelle simulé sur GEANT4 pour une énergie des photons incidents de 11 500 eV - zoom sur la région de 10 000 à 11 500 eV . . . . .	136
5.11	Spectre d'une source ponctuelle simulé sur GEANT4 pour une énergie des photons incidents de 25 000 eV - zoom sur la région de 22 000 à 25 200 eV . . . . .	136
5.12	Fichier de données PenNuc sur le $^{92m}\text{Nb}$ . . . . .	140
5.13	Fichier de données PenNuc sur le $^{94}\text{Nb}$ . . . . .	141
5.14	Spectre de la décroissance du $^{182}\text{Ta}$ simulé sur GEANT4 avec PenNuc . . . . .	141
5.15	Spectre de la décroissance du $^{182}\text{Ta}$ simulé sur GEANT4 avec PenNuc - zoom sur les énergies du niobium . . . . .	142
5.16	Fichier de données PenNuc pour $^{185}\text{W}$ . . . . .	147
5.17	Spectre de la décroissance de $^{93m}\text{Nb}$ simulé sur GEANT4 avec PenNuc . . . . .	148
5.18	Zoom sur un spectre dosimètre niobium entre 100 et 160 keV . . . . .	150
5.19	Fichier de données PenNuc sur le $^{103m}\text{Rh}$ . . . . .	151
6.1	Vue d'ensemble d'un synchrotron . . . . .	156
6.2	Schéma de la branche X-Durs de la ligne METROLOGIE . . . . .	157
6.3	Schéma du principe de mesure des coefficients d'atténuation massique . . . . .	159
6.4	Évolution du coefficient d'atténuation massique du niobium en fonction de l'énergie	160
6.5	Évolution du coefficient d'atténuation massique du rhodium en fonction de l'énergie	160
6.6	Schéma de la géométrie de mesure des rendements de fluorescence . . . . .	161
6.7	Exemple de traitement du spectre de fluorescence du niobium entre 15 et 20 keV	163
6.8	Rendements de fluorescence partiels et total K du niobium mesurés avec différentes énergies incidentes . . . . .	164
6.9	Exemple de traitement du spectre de fluorescence du rhodium entre 19 et 24 keV	165
6.10	Rendements de fluorescence partiels et total K du rhodium mesurés avec différentes énergies incidentes . . . . .	166
6.11	Rendements de fluorescence partiels et total K du rhodium mesurés avec différentes énergies incidentes . . . . .	166
6.12	Schéma de désintégration de $^{103}\text{Ru}$ . . . . .	173
6.13	Schéma de désintégration de $^{103}\text{Pd}$ . . . . .	173
6.14	Formation du sulfate de rhodium après 80 minutes . . . . .	175
6.15	Chlorure de rhodium sous forme cristalline . . . . .	177
6.16	Schéma de la disposition des échantillons et des différents boîtiers . . . . .	179
6.17	Photographie des trois boîtiers. De droite à gauche : le premier boîtier en aluminium, le boîtier en nitrure de bore et le second boîtier en aluminium . . . . .	180

6.18	(a) Pesée et versement de la poudre $\text{RhCl}_3$ dans le premier boîtier en aluminium ; (b) Premier boîtier en aluminium dans le boîtier en nitrure de bore ; (c) Boîtier en nitrure de bore dans le second boîtier en aluminium ; (d) Second boîtier en aluminium placée dans le rondin puis à son tour dans le faux-four ; (e) Faux-four rentrant dans l'emplacement prévue pour l'irradiation dans le cœur du réacteur ISIS ; (f) Pastille de rhodium préparée pour la mesure sur GENIX . . . . .	181
6.19	$\text{RhCl}_3$ après le mélange avec l'eau . . . . .	182
6.20	Source de scintillation liquide préparée à partir du chlorure de rhodium . . . . .	182
6.21	Conteneur en plexiglas contenant la solution de chlorure de rhodium liquide . . .	183
6.22	Source de chlorure de rhodium en acquisition avec GENIX . . . . .	183
6.23	Schéma récapitulatif du déroulement d'une journée de mesure . . . . .	183
6.24	Comparaison des valeurs expérimentales des intensités d'émission XK du $^{103m}\text{Rh}$	190
6.25	Évolution des coefficients de partage des platinoïdes en fonction de la concentra- tion en acide chlorhydrique (à gauche) et nitrique (à droite) en mole/L . . . . .	194
6.26	Activité massique du $^{103m}\text{Rh}$ et concentration en activité du $^{103}\text{Pd}$ en fonction de la fraction de l'élution . . . . .	195
6.27	Colonne de séparation palladium/rhodium . . . . .	196
6.28	Comparaison des valeurs expérimentales des intensités d'émission XK du $^{103m}\text{Rh}$	200
6.29	Suivi de la période de $^{103m}\text{Rh}$ : comptage net sous les pics d'absorption totale des XK en fonction du temps (points) et fonction d'ajustement selon l'algorithme de Marquardt-Levenberg (courbe rouge) . . . . .	201
6.30	Suivi de la période de $^{103}\text{Pd}$ : Comptage net sous le pic d'absorption totale à 357 keV en fonction du temps (points) et fonction d'ajustement selon l'algorithme de Marquardt-Levenberg (courbe rouge) . . . . .	202
6.31	Schéma de désintégration du $^{103}\text{Pd}$ . . . . .	206
D.1	Diagrammes illustrant les réarrangements dans le cadre du modèle KLM. Les cercles représentent la lacune initiale. Les électrons Auger et les rayons X sont représentés respectivement par des flèches droites et ondulés. . . . .	245
D.2	Probabilités des 21 chemins de réarrangement pour le modèle KLM, correspon- dant à la figure D.1 . . . . .	246



**Titre :** Contribution à l'amélioration de la mesure absolue de l'activité de dosimètres émetteurs de rayons X irradiés en réacteur nucléaire

**Mots clés :** Mesure de radioactivité, Spectrométrie X et gamma, Dosimétrie en réacteur, Nb-93m, Rh-103m, Simulation Monte Carlo

**Résumé :** La dosimétrie en réacteur permet de déterminer la fluence neutronique reçue pendant une irradiation et d'en caractériser le spectre (distribution énergétique des neutrons). Cette technique s'appuie sur la mesure de l'activité de dosimètres irradiés, constitués de métaux purs ou d'alliages. La mesure d'activité de ces échantillons est réalisée par spectrométrie gamma et X sur des rayonnements de faibles énergies (< 100 keV) et s'appuie actuellement sur un dosimètre étalon adapté et validé spécifiquement pour les conditions de mesure. Le but de la thèse est de s'affranchir de cette étape et de pouvoir mesurer directement l'activité des dosimètres. L'étude a concerné spécifiquement les dosimètres en niobium et en rhodium qui sont utilisés pour caractériser la signature des neutrons d'énergie autour de 1 MeV. Ils sont respectivement activés en  $^{93m}\text{Nb}$  et  $^{103m}\text{Rh}$ . Ces deux radionucléides se désintègrent par une transition gamma en émettant principalement des photons XK d'énergie autour de 20 keV, sur lesquels s'appuie la mesure d'activité en spectrométrie. Or, du fait de leur faible énergie, ces rayonnements présentent de nombreuses difficultés pour être analysés avec précision. Les différents paramètres nécessaires à la quantification de l'activité des dosimètres, avec une incertitude relative de l'ordre de 2 %, ont été étudiés en détails. Les travaux ont d'abord porté sur l'étalonnage en rendement des détecteurs au germanium hyper-pur (GeHP) dans la gamme d'énergie comprise entre 11 keV et 150 keV. Ceci constitue une étape cruciale dans la détermination de l'activité et s'avère délicate dans la gamme d'énergie considérée. L'approche expérimentale, utilisant des sources ponctuelles étalons, a été couplée à des modélisations semi-empiriques et à des simulations des interactions rayonnements-matière par des méthodes Monte Carlo (PENELOPE et GEANT4). Ces dernières ont permis d'approfondir l'étude du phénomène de diffusion des photons en basse énergie, aux alentours de 20 keV, qui interfère avec les pics d'absorption totale dans les spectres et perturbe leur analyse. Dans un second temps, les simulations de Monte Carlo ont également été utilisées pour établir les facteurs de corrections nécessaires à la mesure des dosimètres : auto-absorption du rayonnement dans le matériau et changement de géométrie entre les conditions d'étalonnage (source ponctuelle) et les conditions de mesure (échantillon métallique massif). Le phénomène de fluorescence lié à la présence d'impuretés (dans le matériau du dosimètre ou créées lors de l'irradiation en réacteur) a été étudié et les facteurs de corrections à appliquer pour en tenir compte ont été établis. Les données du schéma de désintégration, en particulier les intensités d'émission des rayons X, sont les principales composantes de l'incertitude sur la valeur d'activité des dosimètres. Les intensités d'émission X font rarement l'objet de mesures expérimentales, le plus souvent, leurs valeurs découlent du schéma de désintégration et des données fondamentales nucléaires et atomiques de l'élément tels les coefficients de conversion interne et le rendement de fluorescence. Plusieurs expériences ont été menées pour fournir de nouvelles données expérimentales. Les coefficients d'atténuation massique et les rendements de fluorescence K du niobium et du rhodium ont été déterminés en utilisant un rayonnement photonique monochromatique sur le synchrotron SOLEIL. Les intensités d'émission du  $^{103m}\text{Rh}$  ont été mesurées suivant deux approches, l'une à partir de rhodium activé au réacteur ISIS et l'autre à partir d'une solution de palladium-103. Toutes ces nouvelles valeurs sont comparées aux données publiées et le schéma de désintégration du  $^{103m}\text{Rh}$  est discuté.

**Title :** Contribution to improving the absolute activity measurement of X-ray emitting dosimeters irradiated in nuclear reactor

**Keywords :** Radioactivity measurement, X- and gamma-ray spectrometry, Reactor dosimetry, Nb-93m, Rh-103m, Monte Carlo simulation

**Abstract :** Reactor dosimetry is used to determine the neutron fluence during an irradiation and to characterize its spectrum (neutron energy distribution). This technique is based on the analysis of the activity of irradiated dosimeters, made of pure metals or alloys. The activity measurement of these samples is performed by gamma and/or X-ray spectrometry and is currently based on specific standard dosimeters, validated for the measurement conditions. The goal of the thesis is to avoid this calibration step and to be able to directly measure the activity of the sample. The study focused specifically on niobium and rhodium dosimeters which are used to characterize neutrons in the energy range around 1 MeV. Their activation produces  $^{93m}\text{Nb}$  and  $^{103m}\text{Rh}$ , respectively. These two radionuclides decay through an isomeric gamma transition, emitting mainly K X-rays with energies around 20 keV, on which the spectrometric activity measurement is based. However, owing to their low energy, these X-rays are particularly difficult to measure accurately. The various parameters required to determine the activity of the dosimeters, with a relative standard uncertainty of around 2%, were studied in detail. The work initially focused on the calibration of hyper-pure germanium (HPGe) detectors in the energy range between 11 keV and 150 keV. This is a crucial step in determining the activity of a radionuclide sample and is difficult to achieve in the energy range of interest. The experimental approach, using standard point sources, was coupled with semi-empirical modelling and simulations of radiation-matter interactions by Monte Carlo methods (PENELOPE and GEANT4). These methods have made it possible to study in detail the photons scattering at low energy, around 20 keV, which interferes with the full-energy peaks in the spectra and disturbs their analysis. In a second step, Monte Carlo simulations were used to calculate the correction factors needed to derive the dosimeter activity: self-absorption of photons in the dosimeter material and the geometry change between the calibration conditions (point source) and the measurement conditions (solid metal sample). The fluorescence induced by impurities (in the dosimeter material or created during irradiation in the reactor) was studied and the correction factors to be applied were established. Radioactive decay data, particularly photon emission intensities, are the main components of the uncertainty in dosimeter activity results. X-ray emission intensities are rarely measured experimentally and most often their values are calculated from fundamental parameters i.e. internal conversion coefficients and fluorescence yields, and a balanced decay scheme, of the nuclide. Several experiments were designed to provide new experimental data. The mass attenuation coefficients and K fluorescence yields of niobium and rhodium were determined using a monochromatic photon beam at the SOLEIL synchrotron facility. The photon emission intensities of  $^{103m}\text{Rh}$  were measured using two approaches, one from rhodium activated at the ISIS reactor and the other from a solution of palladium 103. All these new values are compared with previously published data and the decay scheme of  $^{103m}\text{Rh}$  is discussed.