



N° d'ordre : 4464

# THESE

Présentée pour obtenir le grade de  
**Docteur de l'Université Louis Pasteur - Strasbourg I, France**  
**et de l'Université Chouaïb Doukkali El Jadida, Maroc**

**Discipline** : Physique Subatomique

Par

**Abdellatif NACHAB**

***Etudes expérimentales et modélisations Monte Carlo de l'auto-absorption gamma et de la dosimétrie active par capteurs CMOS***

Soutenue publiquement le 13 décembre 2003 devant le Jury composé de :

|                    |                          |
|--------------------|--------------------------|
| Pr. A. NOURREDDINE | Directeur de Thèse       |
| Pr. M. BENJELLOUN  | Directeur de Thèse       |
| Pr. D. HUSS        | Rapporteur interne (ULP) |
| Pr. Z. AZRAK       | Rapporteur interne (UCD) |
| Pr. A. SABIR       | Rapporteur externe       |
| Dr. A. VILLARI     | Rapporteur externe       |



## *Remerciements*

Les travaux de recherche de cette thèse entrent dans le cadre d'une thèse de co-tutelle entre l'Université Louis Pasteur de Strasbourg (ULP) et l'Université Chouaïb Doukkali (UCD) d'El Jadida au Maroc.

Je tiens à exprimer mes vifs remerciements à Monsieur D. HUSS Directeur de l'Institut de Recherches Subatomiques (IReS) pour m'avoir accueilli dans son laboratoire et pour avoir accepté d'être rapporteur et président du jury de thèse.

J'exprime mes remerciements les plus respectueux à mes co-directeurs de thèse Monsieur A. NOURREDDINE Professeur à l'ULP ainsi qu'à Monsieur M. BENJELLOUN Professeur à l'UCD pour leurs précieux conseils et leurs compétences scientifiques dont j'ai bénéficiés tout au long de la préparation de cette thèse.

Je remercie Mme Z. AZRAK Professeur à l'UCD, Mr A. VILLARI Directeur de Recherches CNRS à GANIL et Mr A. SABIR Professeur à la Faculté des Sciences de l'Université Ibno Tofail de Kenitra (Maroc), qui ont accepté de rapporter et de juger ce mémoire.

Ma reconnaissance va tout particulièrement à Monsieur D. HUSSON du LEPSI, pour avoir partagé ses connaissances sur le développement des capteurs CMOS, pour disponibilité à répondre à mes interrogations et pour le suivi de l'avancement de ce projet. Je remercie également S. HIGUERET de l'IReS, qui par son investissement personnel et sa compétence en électronique, a contribué de manière significative à cette partie de la thèse.

Mes sincères remerciements à Monsieur A. PAPE, qui n'a jamais rechigné à passer du temps avec moi, à répondre à mes nombreuses questions. Sa rigueur dans le travail, ses critiques fructueuses, ses conseils avisés m'ont permis d'avancer la thèse. Sans oublier Monsieur J.P ENGEL pour ses précieux conseils en informatique.

Je tiens également à remercier tous les membres du groupe RaMsEs qui ont contribué de près ou de loin à l'élaboration de ce mémoire, tout particulièrement L. CAILLAT, O. COURSON, T. FOEHRENBACHER, S. KIHHEL, L. MOUGIN, M.A. PLAGE, D. OSTER, et A. SELLAM, pour leur aide précieuse.

J'exprime ma sincère et profonde gratitude à Mlle D. MOUHSSINE avec qui j'ai partagé le bureau, merci pour sa présence et pour sa bonne humeur, sans le soutien de qui ce travail aurait été des plus fastidieux.



*Cette thèse est dédiée à mes parents,  
à mes sœurs nezha et kenza,  
à mes frères Az-eddine et Abderrazzak  
et à mon meilleur ami Soussi Kamal.*



## *Table des matières*

|                             |   |
|-----------------------------|---|
| Introduction générale ..... | 5 |
|-----------------------------|---|

### **Chapitre I : Interaction Rayonnement-Matière & Moyens de Mesures**

|   |    |
|---|----|
| I. Interaction des photons avec la matière .....                | 13 |
| I.1. Effet photoélectrique .....                                | 13 |
| I.2. Effet Compton .....  | 15 |
| I.3. Effet de création de paires .....                          | 16 |
| I.4. Atténuation et absorption des photons.....                 | 17 |
| I.5. Coefficient d'auto-absorption dans l'échantillon .....     | 18 |
| II. Interaction des particules chargées avec la matière .....   | 20 |
| II.1. Transfert d'énergie linéique .....                        | 21 |
| II.2. Parcours .....  | 22 |
| III. Détection des rayonnements .....                           | 24 |
| III.1. Détecteurs semi-conducteurs .....                        | 24 |
| III.2. Détecteur Solide de Traces Nucléaires .....              | 27 |
| III.2.1. DSTN massifs .....                                     | 28 |
| III.2.2. DSTN en couches minces .....                           | 29 |
| III.2.3. Critères d'enregistrement des traces .....             | 30 |
| III.2.4. Formation des traces latentes .....                    | 30 |
| III.2.5. Géométries des traces enregistrées dans les DSTN ..... | 32 |
| III.2.6. Angle critique d'enregistrement .....                  | 33 |
| III.2.7. Efficacité de détection.....                           | 34 |

### **Chapitre II : Simulations par Calcul Monte Carlo**

|  |    |
|--|----|
| I. Modélisation par la méthode Monte Carlo ..... | 39 |
| I.1. Variables aléatoires.....                   | 41 |
| I.2. Transport de particules .....               | 42 |
| II. Code MCNP.....                               | 42 |
| II.1. Définition des surfaces .....              | 43 |
| II.2. Définition des cellules .....              | 45 |
| II.3. Définition des données .....               | 45 |
| II.3.1. Définition des sources .....             | 45 |
| II.3.2. Définition des tallies.....              | 48 |
| II.4. Définition des matières.....               | 49 |
| II.4. Définition des énergies.....               | 50 |
| III. Code GEANT.....                             | 50 |

### **Chapitre III : Etude Expérimentale & Simulation de la Self-absorption en Spectrométrie $\gamma$**

|  |    |
|--|----|
| I. Expérience.....   | 57 |
| II. Etalonnage en efficacité : ISOCS .....                                 | 60 |
| III. Résultats.....  | 61 |
| III.1. Comparaison des spectres .....                                      | 61 |
| III.2. Efficacité de détection.....  | 65 |
| III.3. Influence de la densité et de la composition sur l'efficacité ..... | 67 |
| III.4. Evaluation du coefficient d'auto-absorption.....                    | 68 |
| IV. Dosage de l'uranium dans les phosphates .....                          | 74 |
| IV.1. Généralités sur les phosphates Marocains .....                       | 74 |
| IV.2. Dosimétrie alpha par contact autoradiographique .....                | 74 |
| IV.3. Analyse par spectrométrie gamma.....                                 | 76 |
| V. Conclusion .....  | 77 |

### **Chapitre IV : Méthodes de Mesures du Radon & Applications des Capteurs à Pixels**

|  |     |
|--|-----|
| I. Formation et propriétés du radon.....                         | 81  |
| II. Diffusion et transport du Radon.....                         | 83  |
| III. Risque sanitaire du radon.....                              | 85  |
| IV. Energie Alpha Potentielle .....                              | 87  |
| V. Principes de réduction du radon.....                          | 88  |
| VI. Techniques de mesure du radon.....                           | 89  |
| VI.1. Chambre à ionisation impulsionnelle .....                  | 90  |
| VI.2. Chambre d'ionisation à Téflon .....                        | 91  |
| VI.3. Capteurs à pixels actifs .....                             | 93  |
| VI.3.1. Principe de fonctionnement du capteur CMOS à pixels..... | 93  |
| VI.3.2. Système d'acquisition.....                               | 96  |
| VI.3.3. Traitement des données .....                             | 98  |
| VI.3.4. Tests préliminaires.....                                 | 100 |
| VII. Mesure de l'activité volumique du radon .....               | 103 |
| VIII. Résultats.....   | 105 |
| VIII.1. Simulation .....   | 105 |
| VIII.2. Lecture des différents détecteurs.....                   | 106 |
| VIII.2.1 Chambres à électret .....                               | 106 |
| VIII.2.2 LR115 et CR39 .....                                     | 107 |
| VIII.3. Comparaison des résultats.....                           | 107 |
| IX. Conception d'un nouveau détecteur radon .....                | 109 |
| IX.1. Filtres en énergie.....                                    | 109 |
| IX.2. Analyse par Microscope Electronique à Balayage .....       | 110 |
| X. Conclusion .....  | 112 |
| XI. Perspectives du développement .....                          | 113 |
| XI.1. Principes de discrimination des neutrons .....             | 113 |
| XI.2. Optimisation de l'épaisseur du convertisseur .....         | 114 |



|                          |     |
|--------------------------|-----|
| Conclusion générale..... | 117 |
| Références.....          | 123 |
| Annexes.....             | 129 |



## **Table des figures**

|  |    |
|--|----|
| Figure I-1: Schéma du phénomène effet photoélectrique.....   | 14 |
| Figure I-2: Energie d'ionisation en fonction du numéro atomique Z pour les différentes couches atomiques K, L et M [Led78] .....   | 14 |
| Figure I-3: Section efficace atomique de l'effet photoélectrique .....   | 15 |
| Figure I-4: Coefficients d'atténuation massiques partiels et totaux pour H <sub>2</sub> O et pour Pb.....  | 18 |
| Figure I-5: Pouvoir d'arrêt des particules alpha dans l'air .....  | 20 |
| Figure I-6 : Parcours des particules $\alpha$ dans l'air .....   | 23 |
| Figure I-7 : Parcours des particules $\alpha$ dans le silicium.....  | 23 |
| Figure I-8 : Schéma d'un détecteur GeHP de rayonnement $\gamma$ .....  | 27 |
| Figure I-9 : Système d'exploitation des DSTN utilisé pour la numérisation .....  | 29 |
| Figure I-10 : Traces de particules $\alpha$ révélées dans les DSTN CR39 et LR115 .....   | 30 |
| Figure I-11 : Structure d'une trace latente dans l'acétate de cellulose .....  | 31 |
| Figure I-12 : Forme d'une trace révélée à incidence normale .....  | 32 |
| Figure I-13 : Forme d'une trace révélée à incidence oblique .....  | 32 |
| Figure I-14 : Conditions d'observation d'une trace après développement chimique.....   | 33 |
| Figure II-1 : Un exemple d'application de la méthode Monte Carlo .....   | 40 |
| Figure II-2 : Historique et traçabilité d'une particule dans un milieu ralentisseur .....  | 40 |
| Figure II-3 : Schéma d'un fichier input du code MCNP .....   | 50 |
| Figure III-1 : Schéma du dispositif de spectrométrie $\gamma$ .....  | 58 |
| Figure III-2 : Modèles de géométries ISOCS .....   | 60 |
| Figure III-3: Géométrie réelle et simulée par MCNP pour les flacons de 50 ml.....  | 62 |
| Figure III-4 : Géométrie réelle et simulée par MCNP pour les flacons de 500 ml.....  | 62 |
| Figure III-5 : Comparaison des spectres obtenus avec MCNP et l'expérience .....  | 63 |
| Figure III-6 : Comparaison des spectres obtenus avec MCNP et l'expérience .....  | 63 |
| Figure III-7 : Comparaison des spectres obtenus avec MCNP et l'expérience .....  | 64 |
| Figure III-8 : Comparaison des spectres obtenus avec MCNP et l'expérience .....  | 64 |
| Figure III-9 : Efficacité du détecteur INTER en fonction en géométrie de 50 ml .....   | 65 |
| Figure III-10 : Efficacité de détection simulée et mesurée pour un échantillon d'eau dopé à <sup>152</sup> Eu déterminée à partir des spectres de figure III-3 (géométrie 50 ml)(INTER)..... | 66 |
| Figure III-11 : Efficacité de détection simulée et mesurée pour un échantillon HNO <sub>3</sub> .....  | 66 |
| Figure III-12 : Variation de l'efficacité de détection en fonction .....   | 67 |
| Figure III-13 : Variation de l'efficacité de détection en fonction .....   | 68 |
| Figure III-14 : Variation du coefficient d'auto-absorption simulé par MCNP en fonction.....  | 69 |
| Figure III-15 : Ajustage des valeurs de A en fonction de E $\gamma$ .....  | 71 |
| Figure III-16 : Ajustage de fit des valeurs de B en fonction de E $\gamma$ .....   | 71 |
| Figure III-17 : Représentation à 3D de la variation du coefficient .....   | 72 |
| Figure III-18: Coefficients d'auto-absorption obtenus avec les codes MCNP, ISOCS, GEANT et mesurés pour un échantillon de H <sub>2</sub> SO <sub>4</sub> de densité 1,15.....                | 73 |
| Figure III-19 : Coefficients d'auto-absorption obtenus avec les codes MCNP, ISOCS, GEANT et mesurés pour un échantillon de H <sub>2</sub> SO <sub>4</sub> de densité 1,4.....                | 73 |
| Figure III-20 : Dispositif expérimental de dosage de l'uranium dans .....  | 75 |

|  |     |
|--|-----|
| Figure IV-1: Mécanisme de décroissance du radon et descendants.....  | 82  |
| Figure IV-2 : Mécanisme de formation du radon dans un réseau cristallin : en A, l'atome de $^{226}\text{Ra}$ se trouve à une distance très grande pour que l'atome de $^{222}\text{Rn}$ reste dans grain ; en B et D, l'atome de $^{222}\text{Rn}$ s'échappe du premier grain pour être piégé dans le grain voisin ; en C l'atome du $^{222}\text{Rn}$ parvient à atteindre l'espace des pores ..... | 83  |
| Figure IV-3 : Schéma de pénétration du radon dans l'habitat .....  | 86  |
| Figure IV-4 : Les processus de base influençant l'équilibre d'activité d'intérieur de $^{222}\text{Rn}$ et $^{220}\text{Rn}$ progéniture [Knu88] .....   | 87  |
| Figure IV-5 : Principe de fonctionnement de la chambre d'ionisation AlphaGUARD .....   | 90  |
| Figure IV-6 : Principe de la chambre d'ionisation à Electret .....   | 92  |
| Figure IV-7: Principe de détection d'un capteur CMOS à pixels .....  | 94  |
| Figure IV-8 : Image d'un capteur MIMOSA.....   | 95  |
| Figure IV-9 : Synoptique du capteur utilisé (MIMOSA).....  | 96  |
| Figure IV-10 : Chaîne d'acquisition.....   | 97  |
| Figure IV-11 : Interface d'acquisition réalisée par le logiciel Labview .....  | 98  |
| Figure IV-12 : Superposition des signaux enregistrés par le capteur CMOS.Comptage simple (à gauche).....   | 99  |
| Figure IV-13 : Visualisation matrice par matrice utilisant le code single_mat.kumac.....   | 100 |
| Figure IV-14 : Efficacité de détection des particules alpha en fonction de leur énergie .....  | 100 |
| Figure IV-15 : Détection d'une particule alpha émise par une source ponctuelle d' $^{241}\text{Am}$ .....  | 101 |
| Figure IV-16 : Dispositif de fabrication de la source d' $^{241}\text{Am}$ par électrodéposition .....   | 102 |
| Figure IV-17 : Réponse du détecteur CMOS pour une exposition à une source ponctuelle d' $^{241}\text{Am}$ .....  | 103 |
| Figure IV-18 : Dispositif expérimental .....   | 104 |
| Figure IV-19 : Simulation Monte Carlo pour $1000 \text{ Bq.m}^{-3}$ de radon .....   | 105 |
| Figure IV-20 : Schéma simulé par GEANT du capteur CMOS, .....  | 110 |
| Figure IV-21 : Images MEB de la plaque Si.....   | 111 |
| Figure IV-22 : Spectre obtenu après l'analyse multi-élémentaire.....   | 111 |
| Figure IV-23 : Optimisation de l'épaisseur du convertisseur en polyéthylène .....  | 115 |
| Figure IV-24 : Spectre simulé obtenu par thermalisation des neutrons d'énergie.....  | 116 |

## **Liste des tableaux**

|   |     |
|---|-----|
| Tableau I-1 : <i>Caractéristiques des principaux semi-conducteurs</i> .....   | 25  |
| Tableau II-1 : <i>Bibliothèque des cartes des surfaces reconnues par MCNP</i> .....   | 44  |
| Tableau III-1 : <i>Coefficients d'auto-absorption en fonction de la densité de l'échantillon et de l'énergie des rayonnements gamma de <math>^{152}\text{Eu}</math></i> .....   | 69  |
| Tableau III-2 : <i>Coefficients A et B en fonction de <math>E_\gamma</math></i> .....   | 70  |
| Tableau III-3 : <i>Paramètres a et b associés à chaque coefficient A et B « A(ou B) = a.lnE + b »</i> 70  |     |
| Tableau III-4 : <i>Coefficients <math>a_0</math> et <math>a_1</math> déterminés à partir des parcours des particules <math>\alpha</math> dans le phosphate fournis par le logiciel SRIM</i> .....   | 75  |
| Tableau III-5 : <i>Activités spécifiques de <math>^{238}\text{U}</math> en Bq/kg obtenues par dosimétrie alpha par DSTN (LR115, CR39) et par spectrométrie <math>\gamma</math> pour deux échantillons de phosphate : .....</i>              | 76  |
| Tableau III-6: <i>Activités spécifiques <math>A_V</math> de <math>^{238}\text{U}</math> en Bq/kg obtenues par DSTN (LR115, CR39) et par analyse spectrométrie gamma des échantillons de phosphate de différentes tailles de grain</i> ..... | 77  |
| Tableau IV-1: <i>Longueur de diffusion des isotopes du radon dans l'eau et dans l'air</i> .....   | 84  |
| Tableau IV-2 : <i>Energie Alpha Potentielle des descendants à vie courte du <math>^{222}\text{Rn}</math></i> .....  | 88  |
| Tableau IV-3 : <i>Activités volumiques mesurées par trois chambres d'ionisation à électret</i> .....  | 106 |
| Tableau IV-4 : <i>Bilan des résultats obtenus</i> .....   | 108 |
| Tableau IV-5 : <i>Comparaison des résultats expérimentaux et simulation</i> .....   | 108 |
| Tableau IV-6 : <i>Parcours des descendants du radon dans du Mylar obtenus par SRIM et GEANT</i> .....   | 109 |
| Tableau IV-7 : <i>Classification des neutrons selon leurs énergies</i> .....  | 113 |



# **Introduction générale**





Les travaux de recherches de cette thèse préparée en co-tutelle entre l'Université Louis Pasteur de Strasbourg et l'Université Chouaïb Doukkali d'El Jadida (Maroc), concernent le développement des méthodes d'analyse fine de la radioactivité et la mise au point de nouvelles techniques de dosimétrie passive et opérationnelle. Ils portent sur deux parties : l'évaluation de l'auto-absorption des rayonnements gamma et applications aux mesures environnementales d'une part et l'étude de la fonction de réponse des capteurs à pixels actifs pour la dosimétrie en temps réel et leurs applications aux mesures des concentrations du radon et descendants dans l'environnement atmosphérique d'autre part.

La spectrométrie gamma offre un outil d'analyse performant pour effectuer des mesurages environnementaux. Cette méthode non destructive permet de doser en une seule mesure l'ensemble des radioéléments émetteurs  $\gamma$  d'énergies comprises entre 20 et 2000 keV, présents dans un échantillon. En pratique, la calibration de la chaîne de mesure nécessite un standard le plus similaire possible à l'échantillon (géométrie, matrice ...).

Dans le processus d'analyse de la radioactivité par spectrométrie  $\gamma$ , l'étalonnage en rendement de détection de la chaîne est une étape essentielle. Outre le problème des interférence, l'atténuation des photons dans l'échantillon et l'effet de sommation en cas de cascade de transitions gamma, sont les deux principaux facteurs déterminants dans ce type d'analyse quantitative muti-élémentaire. Dans ce contexte des mesures expérimentales et des calculs de simulation Monte Carlo ont été réalisés pour étudier le phénomène de la self-absorption et d'évaluer les effets de matrice dans le cas des échantillons volumineux.

Alors que la demande de la société pour le contrôle de la radioactivité ne faiblit pas, il apparaît, paradoxalement, que la mesure fiable des doses se heurte à des difficultés techniques toujours non résolues, et qui posent problème quant à l'application des règlements de plus en plus stricts décidés à l'échelle européenne et internationale. L'évolution de la dosimétrie passe par la mise en œuvre de technologies les plus modernes développées dans des domaines de recherche plus fondamentale.

Les dosimètres en usage actuellement se répartissent en deux grandes catégories : ceux qui produisent une mesure de dose intégrée (émulsions photographiques, détecteurs solides de traces nucléaires, détecteurs thermoluminescents, films photostimulables, ...), et ceux à mesure impulsionnelle (chambres à ionisation, diodes silicium, fioles scintillantes, ...). Une mesure intégrée faite en différé est toujours un inconvénient, mais ces techniques présentent aussi des limitations particulièrement pénalisantes en termes d'encombrement, de rapidité, de

sensibilité et de coût. En outre, un problème récurrent est posé par la difficulté de mesurer séparément le flux de neutrons et le fond de rayonnement gamma, que les capteurs d'imagerie intégrés à pixels actifs sont susceptibles de repousser considérablement.

Les capteurs CMOS (Complementary Metal Oxyde Semi-conductor) sont apparus dans les années 1990 comme remplaçants possibles des dispositifs CCD (caméras numériques). Deux équipes de l'institut de Recherches Subatomique (IREs) et du Laboratoire d'Electronique et de Physique des Systèmes Instrumentaux (LEPSI) de Strasbourg ont entamé, à partir de 1999, un développement de capteurs CMOS pour la Physique des Particules (détection de particules chargées) le but étant de profiter de la structure en micropixels pour reconstruire la position de traces chargées avec une précision de l'ordre du micromètre. Les années 2000-2001 ont été consacrées à la démonstration des propriétés des ces capteurs pour le tracking de particules relativistes (minimum ionisantes). Ce développement, financé par les programmes de recherche en Physique des Particules, se poursuit en direction d'un futur accélérateur (TESLA/Hambourg, 2008). Les avantages du dispositif (efficacité, insensibilité aux gamma, puissance d'un ensemble capteur+électronique intégrée) ont conduits à envisager d'autres applications, plus tournées vers le grand public. Dans ce cadre, une première détection de particules alpha a été réalisée au printemps 2001. Ceci a suscité l'intérêt immédiat du groupe de Radioprotection et Mesures Environnementales (RaMsEs) de l'IREs, qui effectue des prestations de service en matière de radioprotection et mesures environnementales au laboratoire et sur site, il développe par ailleurs des méthodes nouvelles pour des applications en dosimétrie passive et notamment les mesures du radon.

Le présent manuscrit est scindé en quatre chapitres. Dans le premier, nous allons présenter brièvement les bases théoriques nécessaires à la compréhension des mécanismes d'interaction des rayonnements électromagnétiques ainsi que les particules chargées avec la matière. Nous décrivons également les diverses méthodes de détection des rayonnements à base des détecteurs semi-conducteurs et des détecteurs solides de traces nucléaires.

Le second chapitre relate une description générale des méthodes de simulation Monte Carlo. L'accent sera mis sur les codes mis en œuvre dans ce travail à savoir le code MCNP (Monte Carlo N-Particles) développé par le Laboratoire National de Los Alamos qui vient d'être installé au groupe RaMsEs et le code GEANT produit du CERN.

Le troisième chapitre est consacré à l'étude et à l'évaluation de la self-absorption gamma dans les échantillons, pour diverses géométries auprès des chaînes de détection

utilisées pour cette fin. Les mesures expérimentales seront confrontées aux calculs de modélisation des géométries de détection par Monte Carlo. Comme illustration, les facteurs d'auto-absorption évalués ont été appliqués pour corriger les analyses quantitatives de la spectrométrie gamma des échantillons de phosphates sédimentaires du Maroc. L'ensemble des résultats est comparé aux mesures par la méthode de contact autoradiographique par détecteurs solides de traces nucléaires de types LR115 et CR39.

Dans le quatrième chapitre, on passe en revue les généralités du radon (propriétés, origine et risques sanitaires) et les différentes méthodes actives et passives de mesure des concentrations du radon et descendants. Dans la deuxième partie, après présentation du principe de fonctionnement d'un nouveau système à base des capteurs CMOS baptisé ALPHARAD, nous exposerons les premiers tests de l'étude de faisabilité de ce système pour les mesures du radon au laboratoire. Enfin nous concluons par les perspectives du développement de ces capteurs en terme d'application en dosimétrie neutron opérationnelle.



## **Chapitre I**

# **Interaction Rayonnement-Matière & Moyens de Mesures**



D'une manière générale, on peut définir un rayonnement ou radiation comme un mode de propagation de l'énergie dans l'espace, sous forme d'ondes électromagnétiques ou de particules. Les rayonnements ne peuvent être détectés et caractérisés que grâce à leur interaction avec la matière dans laquelle ils se propagent. Ils peuvent céder au milieu qu'ils traversent, la totalité ou une partie de leur énergie au cours de ces interactions. On peut classer les rayonnements selon leur mode d'interaction avec la matière en deux catégories :

- Rayonnements indirectement ionisants : ils sont électriquement neutres et sont susceptibles de transférer une importante fraction ou la totalité de leur énergie en une seule interaction à des particules chargées. Ce sont ensuite ces particules secondaires qui ionisent le milieu. L'ionisation, dans ce cas, se fait donc en deux étapes. Les rayonnements électromagnétiques ( $X$  et  $\gamma$ ) et les neutrons entrent dans cette catégorie, mais leur mode d'interaction sont différents.
- Rayonnement directement ionisants : ils sont constitués de particules chargées qui délivrent directement à la matière leur énergie, par le jeu des forces coulombiennes s'exerçant entre elles et les atomes du milieu. Les transferts d'énergie dépendent des masses des particules en mouvement et il y a lieu de distinguer entre particules chargées lourdes (proton, deuton, alpha, ions lourds) et électrons.

Ce chapitre passe en revue les diverses façons dont s'effectuent ces transferts d'énergie.

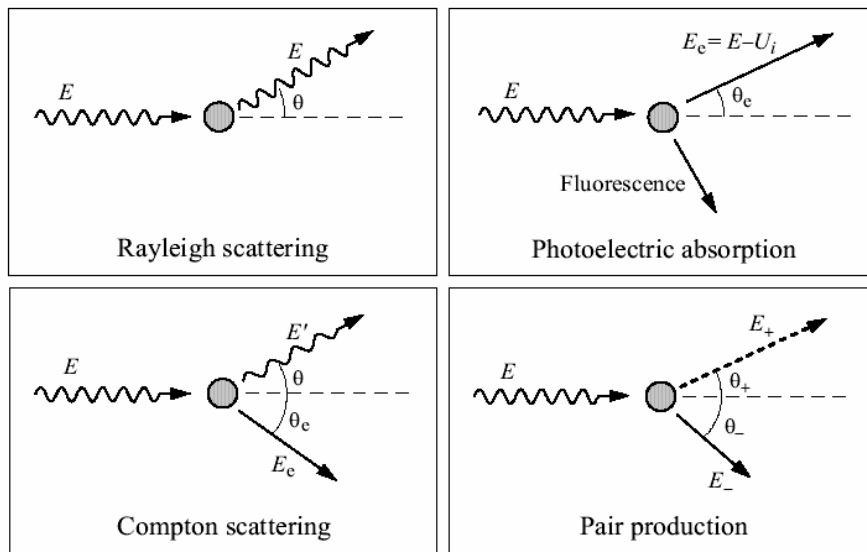
## I. Interaction des photons avec la matière

Les photons peuvent interagir de différentes façons avec les électrons ou les noyaux de la matière. Les interactions avec les électrons sont : la diffusion de Rayleigh, l'effet Compton et l'effet photoélectrique. Les interactions avec les noyaux sont : l'effet de matérialisation et les réactions photo-nucléaire (figure I-1).

### I.1. Effet photoélectrique

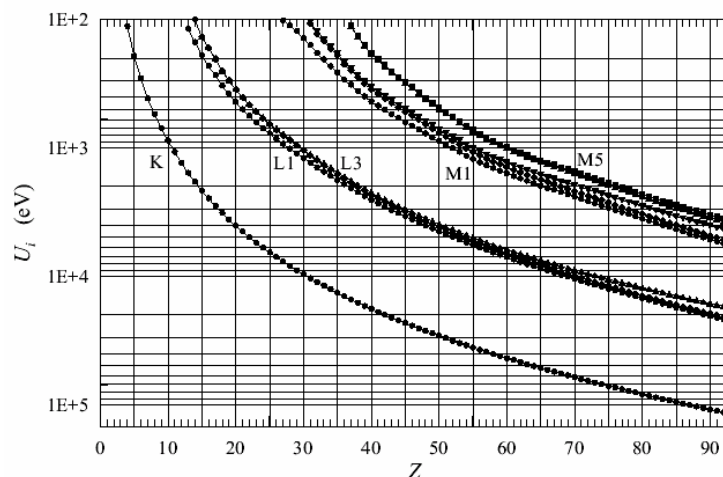
Lors de cette interaction, le photon incident est complètement absorbé en cédant toute son énergie à un électron de l'atome cible (figure I-1) ; c'est tout l'atome qui participe à l'interaction. Un électron isolé ne peut pas interagir de cette façon. L'énergie du photon incident  $E$  est converti en énergie de liaison  $U_i$ , en énergie cinétique du photo-électron  $E_e$  et

en énergie de recul de l'atome  $E_r$  :  $E = U_i + E_e + E_r$ . Pour qu'il y ait ionisation, il faut que l'énergie du photon incident soit supérieure à l'énergie de liaison de l'électron  $U_i$ .



**Figure I-1:** Schéma du phénomène effet photoélectrique

La figure I-2 représente la variation de  $U_i$  en fonction du numéro atomique  $Z$  pour les différentes couches atomiques. La masse du noyau étant de plusieurs milliers de fois supérieure à celle de l'électron, l'énergie de recul de l'atome  $E_r$  est donc négligeable par rapport à celle emportée par le photo-électron. La direction du photo-électron est liée à la direction et à l'énergie du photon incident. Plus les électrons sont liés à l'atome, plus ils ont une section efficace grande d'être éjectés lors de l'interaction. L'atome ionisé a une énergie d'excitation égale à  $U_i$  qui va être dispersée sous forme de fluorescence ou par éjection d'un électron Auger. Le processus photoélectrique est d'autant plus important que le numéro atomique ( $Z$ ) du milieu est élevé et l'énergie du photon est faible.



**Figure I-2:** Energie d'ionisation en fonction du numéro atomique  $Z$  pour les différentes couches atomiques K, L et M [Led78]



La probabilité d'interaction d'un photon avec un atome est donnée par la relation suivante [Sie65]:

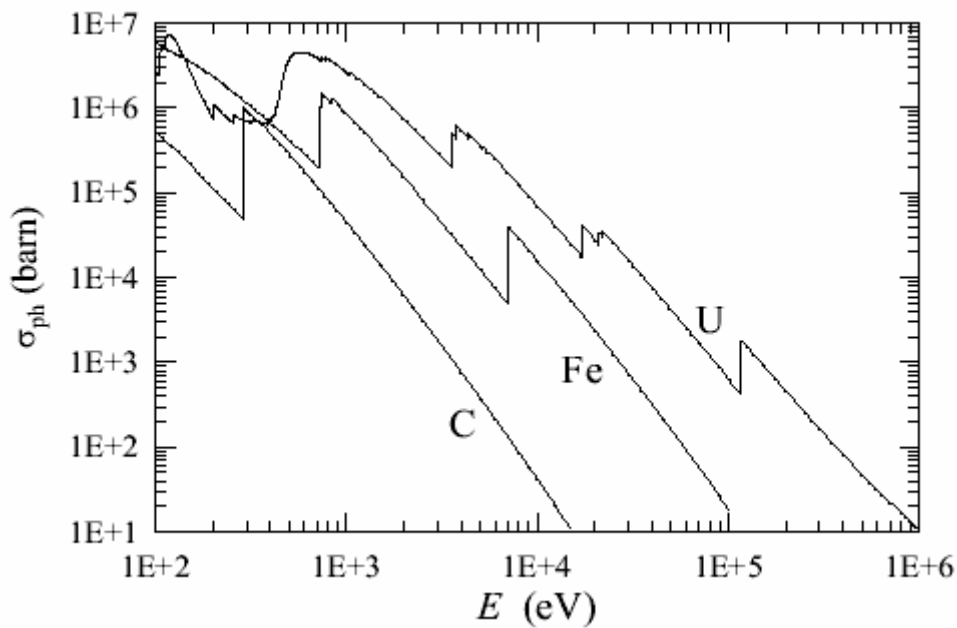
$$\sigma_{\text{ph}} = \frac{8\pi r_0^2}{3} \frac{Z^2}{(137)^4} 4\sqrt{2}(\alpha)^{-7/2} \quad \text{avec} \quad \alpha = \frac{E_\gamma}{E_0} \quad (\text{I-1})$$

Où

- $E_\gamma$  : énergie du photon incident,
- $E_0$  : énergie d'électron au repos,
- $r_0$  : rayon classique d'électron (2,818 fm),
- $Z$  : numéro atomique de la cible.

D'une façon générale, et quelle que soit la couche :

$$\sigma_{\text{ph}} \propto \frac{Z^{4,35}}{E_\gamma^3} \quad (\text{I-2})$$



**Figure I-3:** Section efficace atomique de l'effet photoélectrique pour trois matériaux (C, Fe et U) [Fer03]

## I.2. Effet Compton

Ce processus consiste en une diffusion élastique d'un photon incident sur un électron faiblement lié. En effet, un photon incident éjecte un électron du cortège électronique de l'atome en lui cédant une partie de son énergie.

Pour la suite de cette étude on considère que l'électron est libre. Cette approximation se justifie par le fait que l'énergie de liaison des électrons est faible devant l'énergie des photons incidents. L'étude cinématique de cette diffusion, nous donne la relation qui lie l'angle  $\theta$  de diffusion de l'électron à l'énergie du photon incident  $E_\gamma$  et du photon Compton  $E'_\gamma$  :

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

Klein et Nishina (1928) [kob75] ont donné une formulation de la section efficace adaptée à la plupart des applications courantes. Cette formulation permet de déterminer la section efficace différentielle par angle solide en fonction de l'énergie  $E_\gamma$  du photon incident et de l'angle de diffusion  $\theta$ .

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \frac{1}{2} r_0^2 \left\{ \frac{1}{[1 + \alpha(1 - \cos\theta)]^2} \left[ 1 + \cos^2\theta + \frac{\alpha^2(1 - \cos\theta)^2}{1 + \alpha(1 + \cos\theta)} \right] \right\} \quad (\text{I-4})$$

L'énergie de l'électron de recul est rapidement perdue dans la matière tandis que le photon Compton a une probabilité importante de s'échapper. Ainsi, dans la gamme d'énergie où l'effet Compton est prédominant, la distribution d'énergie (I-3) va être une composante importante du spectre d'énergie déposée dans le milieu absorbant.

La probabilité pour qu'un photon  $\gamma$  interagisse avec un atome est donc proportionnelle au nombre de charge  $Z$  du milieu. Pour un matériau donné, la probabilité qu'un photon interagisse est proportionnelle à la densité d'électrons. Or le nombre de masse atomique  $A$  est approximativement proportionnel au nombre atomique  $Z$ . L'effet Compton, pour une énergie donnée, est donc approximativement proportionnel à la densité du matériau.

$$\sigma_c = 2\pi r_0^2 Z^2 \frac{\alpha^2 + 2\alpha}{2\alpha^3} \ln(1 + 2\alpha) + \frac{\alpha^3 + 9\alpha^2 + 8\alpha + 3}{\alpha^2(1 + 2\alpha)} \quad (\text{I-5})$$

### I.3. Effet de création de paires

L'effet de production de paire ou matérialisation consiste à la création d'une paire électron-positron ( $\gamma \rightarrow e^+, e^-$ ) lorsqu'un photon  $\gamma$  pénètre dans le champ coulombien d'un noyau.

Le photon disparaît et son énergie est utilisée pour créer la paire et communiquer de l'énergie cinétique à l'électron et au positron, d'après la conservation de l'énergie :

$$E = E_e + E_+ + 2E_0 \quad (\text{I-6})$$

$E_e$  et  $E_+$  sont respectivement les énergies cinétiques de l'électron et du positron.

L'équation (I-6) montre que la création de paire n'est possible que si l'énergie du photon et au moins égale à l'énergie nécessaire pour créer la paire. Le phénomène de matérialisation ne peut se produire dans le vide parce que les principes de conservation de l'énergie et de l'impulsion ne seraient pas alors simultanément satisfaits. Elle devient possible au voisinage d'un noyau qui, lors du processus, récupère de l'impulsion et, une quantité faible de l'énergie. L'effet de production de paire donne lieu à l'émission de rayonnements secondaires. En effet, en fin de ralentissement, le positron s'annihile avec un électron au repos du milieu, en émettant deux photons d'annihilation d'énergie 511 keV. La section efficace pour la création de paire est :

$$\sigma_{\text{pair}} = \begin{cases} \alpha r_0^2 Z^2 \left[ \frac{28}{9} \text{Log}\left(\frac{2E_\gamma}{E_0}\right) - \frac{218}{27} \right] & \text{si } 2E_0 < E_\gamma < \frac{E_0}{\alpha} Z^{-1/3} \\ \alpha r_0^2 Z^2 \left[ \frac{28}{9} \text{Log}(183Z^{-1/3}) - \frac{2}{27} \right] & \text{si } E_\gamma > \frac{E_0}{\alpha} Z^{-1/3} \end{cases} \quad (\text{I-7})$$

Ainsi, l'interaction des photons  $\gamma$  avec la matière a comme section efficace la somme des trois sections efficaces des différents processus. Elle est donnée par :

$$\sigma_{\text{totale}} = \sigma_{\text{ph}} + \sigma_{\text{c}} + \sigma_{\text{pair}} \quad (\text{I-8})$$

#### I.4. Atténuation et absorption des photons

L'atténuation des photons s'exprime par le coefficient d'atténuation qui présente la fraction des photons incidents interagissant par unité de longueur. Ce coefficient tient compte des sections efficaces des trois processus de pertes d'énergie. Ainsi, pour  $N_0$  photons incidents, le nombre  $N$  de photons qui traversent une épaisseur  $x$  de matériau sans interagir est donné par la relation suivante :

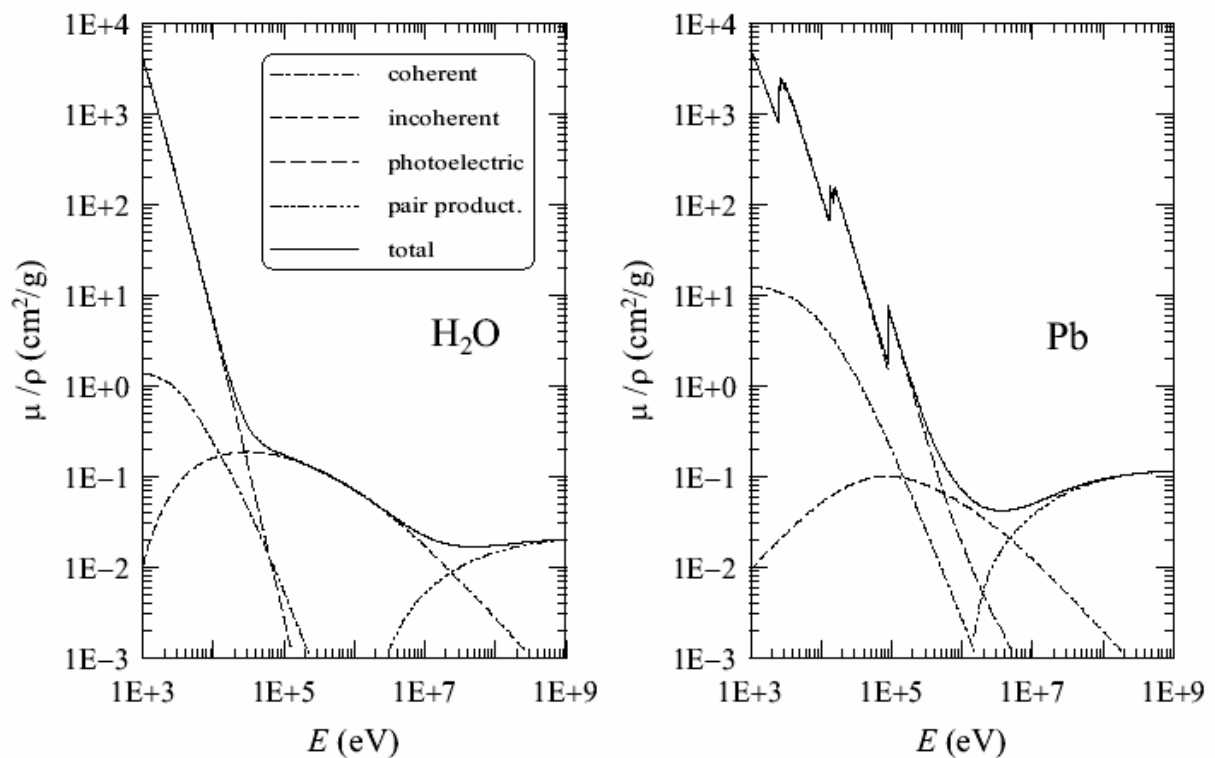
$$N(x) = N_0 e^{-\mu x} \quad (\text{I-9})$$

avec  $\mu$  coefficient d'atténuation total défini par :

$$\mu = n\sigma_{\text{totale}}$$

où  $n = N_A \rho / M$ ,  $N_A$  nombre d'Avogadro,  $\rho$  la densité et  $M$  la masse molaire.

La figure I-4 montre une présentation des coefficients d'atténuation massiques partiels et totaux pour deux matériaux : l'eau et le Plomb [Ber78].



**Figure I-4:** Coefficients d'atténuation massiques partiels et totaux pour  $H_2O$  et pour  $Pb$

## I.5. Coefficient d'auto-absorption dans l'échantillon

Si on désigne par  $I_0$  l'intensité des photons  $\gamma$  mono-énergétiques qui tombent sur une cible de densité  $\rho$ , d'épaisseur  $x$  d'un matériau de numéro atomique  $Z$  contenant  $n$  atomes par unité de volume, alors l'intensité transmise  $I$  de photons  $\gamma$  non absorbés est :

$$I = I_0 e^{-n x \sigma_{\text{tot}}} \quad (\text{I-10})$$

Le coefficient d'auto-absorption  $f$  est défini par [Cut83]:

$$f = \frac{T(E) - 1}{\ln(T(E))} \quad (\text{I-11})$$

Où  $T(E)=I/I_0$  est le coefficient de transmission.

Dans la pratique, pour calculer le coefficient d'auto-absorption d'un échantillon, on normalise l'équation précédente par celle correspondant à l'eau :

$$f = \frac{f_s}{f_w} = \frac{\frac{T_s(E) - 1}{\ln(T_s(E))}}{\frac{T_w(E) - 1}{\ln(T_w(E))}} \quad (\text{I-12})$$

Où  $T_s$  et  $T_w$  sont respectivement les coefficients de transmission de l'échantillon et de l'eau.

A partir des équations (10-11-12) on peut remonter au facteur  $f_n$ :

$$f_n = \frac{1 - e^{-\mu_s \rho_s x}}{-\mu_s \rho_s x} \cdot \frac{-\mu_w \rho_w x}{1 - e^{-\mu_w \rho_w x}} \quad (\text{I-13})$$

Où :

$\mu_s$  et  $\mu_w$  sont respectivement les coefficients d'atténuation de l'échantillon et de l'eau

$\rho_s$  et  $\rho_w$  sont respectivement les densités de l'échantillon et de l'eau

$x$  est le parcours le long duquel le photon est atténué

Or pour les faibles épaisseurs, l'équation (I-13) devient :

$$f_n = \frac{e^{\mu_s \rho_s x/2}}{e^{\mu_w \rho_w x/2}} \quad (\text{I-14})$$

Enfin la variation du coefficient d'auto-absorption en fonction de la densité  $\rho$ , suit une loi exponentielle de la forme :

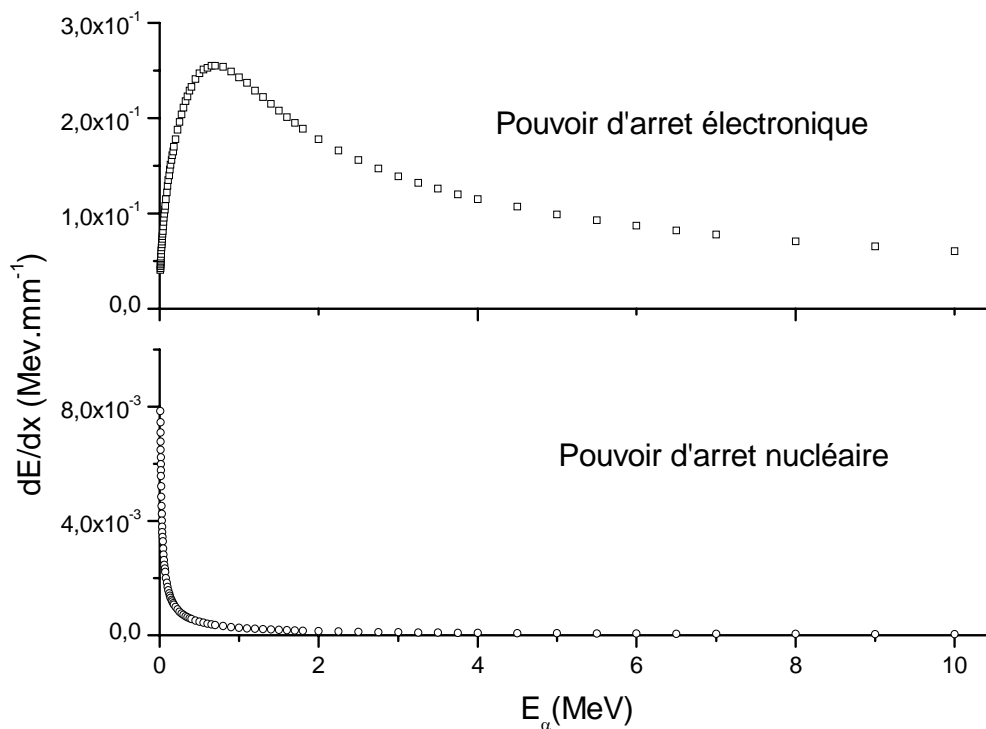
$$f_n = A e^{-B\rho} \quad (\text{I-15})$$

A et B sont des paramètres qui dépendent de l'énergie du photon.

## II. Interaction des particules chargées avec la matière

Lors de leur passage dans la matière, les particules chargées perdent leur énergie par collisions inélastiques et élastiques avec les électrons et les noyaux atomiques du milieu ralentisseur. La perte d'énergie totale est la somme de ces deux contributions : pouvoir d'arrêt électronique et nucléaire [Bal97].

Le premier processus est l'effet principal responsable de la perte d'énergie des particules chargées lourdes. Dans ce type de collisions, l'énergie est transférée de la particule à l'atome en produisant une ionisation ou une excitation de l'atome. La quantité d'énergie transférée lors de chaque collision est une très faible portion de l'énergie cinétique de la particule incidente. Cependant le nombre de collisions par unité de parcours est tellement grand que l'on peut observer une perte d'énergie substantielle même dans des matériaux de faibles épaisseurs. La figure I-5 représente les pouvoirs d'arrêt électronique et nucléaire pour des particules alpha, calculés à partir du code SRIM03 [Bie03].



**Figure I-5:** Pouvoir d'arrêt des particules alpha dans l'air

## II.1. Transfert d'énergie linéique

Pour étudier le ralentissement des particules chargées, on introduit la notion de Transfert Linéique d'Énergie (TLE) qui représente la perte d'énergie par unité de longueur de trajectoire des particules incidentes consécutivement à leurs chocs avec les électrons. Son expression en mécanique relativiste, est donnée par la formule de Bethe-Bloch [Bet33] :

$$\text{TLE} = \left| \frac{dE}{dx} \right| = nZ \frac{z^2 e^4}{8\pi\epsilon_0^2 m_e c^2 \beta^2} \left[ \frac{1}{2} \ln \frac{2m_0 c^2 \beta^2 \gamma^2 T_{\max}}{I^2} - \beta^2 - \frac{\delta}{2} \right] \quad (\text{I-16})$$

$n$  : nombre des noyaux cibles par unité de volume de numéro atomique  $Z$ ,

$z$  et  $\beta$  sont respectivement la charge et la vitesse réduite du projectile,

$m_0$  et  $e$  : masse au repos et charge de l'électron,

$\epsilon_0$  : permittivité du vide :  $8,854.10^{-10} \text{ F.cm}^{-1}$ ,

$\gamma$  : correction relativiste :  $1/(1 - \beta^2)^{1/2}$ ,

$T_{\max}$  : énergie cinétique maximale transférée à un électron libre,

$\delta$  : correction due à l'effet de densité,

$I$  : la valeur moyenne du potentiel tenant compte de l'ionisation et de l'excitation des atomes ralentisseurs. Il est donné par la formule semi empirique (en eV) :

$$I = 9,1Z(1 + 1,9Z^{2/3}) \quad (\text{I-17})$$

Notons que la particule chargée peut s'approprier un ou deux électrons au cours de son ralentissement. Dans la formule (I-16) la charge est alors remplacée par la charge effective  $Z^*$ . Cette charge effective est calculée par la relation empirique [Hec60]:

$$Z^* = Z \left[ 1 - \exp \left( - \frac{125 \beta}{Z^{2/3}} \right) \right] \quad (\text{I-18})$$

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

$$\left( \frac{dE}{dx} \right)_{\text{composé}} = \sum_{i=1}^n m_i \left( \frac{dE}{dx} \right)_i \quad (\text{I-19})$$

Avec  $\left(\frac{dE}{dx}\right)_i$  le pouvoir d'arrêt de l'élément  $i$  de fraction massique  $m_i$ .

A partir de cette étude, on peut aussi montrer que la perte d'énergie est fonction de la distance de pénétration d'une particule dans la matière. Ce type de courbe est connu sous le nom de courbe de Bragg. Étant donné que la perte d'énergie est fonction de l'énergie cinétique, la particule ne perdra pas la même quantité d'énergie à chaque étape de son parcours. Elle est beaucoup plus ionisante vers la fin de sa trajectoire. Ce comportement est particulièrement utilisé dans les applications médicales où l'on désire donner une grande dose de radiation à une certaine distance de la surface.

## II.2. Parcours

Le fait que les particules chargées perdent leur énergie dans la matière amène à se poser la question de distance parcourue dans cette matière. La portée (range) est la distance maximale parcourue par une certaine particule d'une énergie donnée dans un matériau donné. La relation entre le parcours et le pouvoir d'arrêt est donnée par :

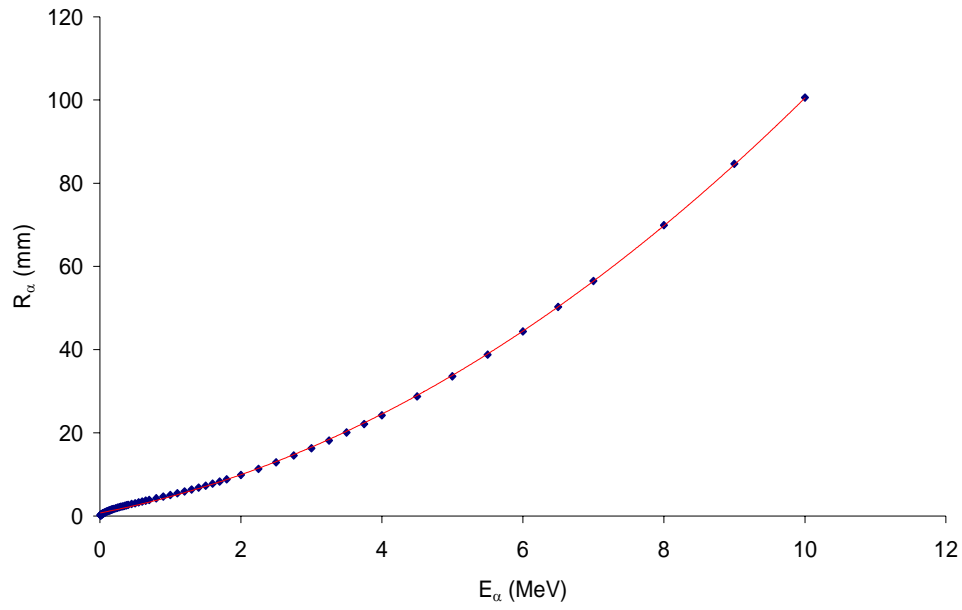
$$R = \int_E^0 \left(\frac{dE}{dx}\right)^{-1} dE \quad (\text{I-20})$$

Où  $\frac{dE}{dx}$  est donnée par la formule I-16.

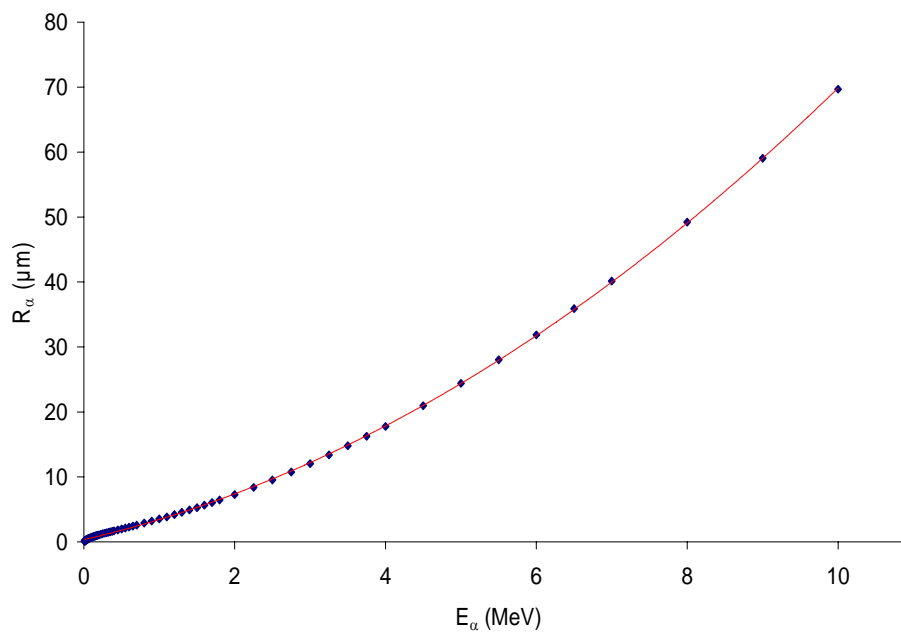
Dans les figures I-6 et I-7 sont donnés les parcours  $R$  des particules  $\alpha$  en fonction de l'énergie dans l'air et dans le silicium [Bie03].

La perte d'énergie dans la traversée d'une épaisseur  $\Delta x$  calculée à partir de l'expression (I-16), simplifiée dans le cas non relativiste, est une valeur moyenne. Pour chaque particule prise individuellement, on observe des fluctuations autour de cette valeur moyenne, car statistiquement ces particules n'auront pas subi le même nombre de collisions durant leur parcours. Il en résulte que pour une perte d'énergie donnée, le parcours fluctue lui aussi autour d'une valeur moyenne. Ces fluctuations sont habituellement appelées « straggling » énergétique [Chu78].





**Figure I-6 :** *Parcours des particules  $\alpha$  dans l'air*



**Figure I-7 :** *Parcours des particules  $\alpha$  dans le silicium*

### III. Détection des rayonnements

Le principe physique de la détection des rayonnements est basé sur leur interaction avec la matière constituant le détecteur. On classe ces détecteurs en deux grandes catégories :

- Les détecteurs visuels pour lesquels une interaction conduit directement à la création de traces individuelles observables par perte d'énergie et par changement local de l'organisation structurale du matériau.
- Les détecteurs électroniques qui exploitent l'ionisation ou l'excitation atomique lors de l'interaction avec la matière permettant l'analyse électronique de l'énergie des rayonnements.

Dans ce travail nos détecteurs sont à la base des semi-conducteurs au silicium ou au germanium et des polycarbonates (Détecteurs solides de traces nucléaires (DSTN)).

#### III.1. Détecteurs semi-conducteurs

Dans les années 50, on a observé la détection de particules  $\alpha$  au moyen d'une jonction dans un cristal de germanium. Dès lors, de nombreux laboratoires ont consacré leurs recherches au développement de détecteurs semi-conducteurs. Ceux-ci sont environ mille fois plus denses que les détecteurs à gaz. Ils ont un excellent avantage pour la détection des particules de haute énergie. S'il faut 20 eV au minimum d'énergie déposée pour créer un photon dans un scintillateur et environ 30 eV dans un gaz pour créer une paire électron-ion, environ 3 eV sont suffisants pour créer une paire électron-trou dans un semi-conducteur. Les semi-conducteurs sont donc des détecteurs sensibles pour la spectrométrie. Ainsi, si avec un scintillateur en NaI(Tl) on obtient une résolution de 6 % à 660 keV, la résolution avec du germanium (refroidi) atteint le keV, soit moins de 0,2 %. Cette différence est due à l'erreur statistique relativement plus faible sur le plus grand nombre d'ionisations produites.

Il existe plus d'une vingtaine de semi-conducteurs susceptibles d'être utilisés pour la détection des particules ionisantes. Les plus couramment utilisés sont le silicium (Si), le germanium (Ge), la famille du tellure de cadmium de (CdTe et  $\text{Cd}_x\text{Zn}_{1-x}\text{Te}$  alias CZT) et l'arsénure de gallium (GaAs). On trouve aussi quelques détecteurs à base d'iodure de mercure ( $\text{HgI}_2$ ). Les potentialités de ces matériaux pour la détection des photons  $\gamma$  dépendent des

paramètres suivants (Tableau I-1): le numéro atomique, l'énergie d'activation intrinsèque (la largeur de la bande interdite, ou gap), l'énergie de création de paires électron-trou, la mobilité et le temps de vie des porteurs, la résistivité. Ces paramètres vont influencer sur les propriétés du substrat: la résistivité (R), l'efficacité et le temps de collecte, et enfin l'efficacité de détection [Sze94].

| Semi-conducteur  | Z        | $\rho$<br>(g/cm <sup>3</sup> ) | gap<br>(eV) | E <sub>paire</sub><br>(eV) | $\mu_{e^-}$<br>(cm <sup>2</sup> /V.s) | $\mu_{h^+}$<br>(cm <sup>2</sup> /V.s) | R à 25°C<br>( $\Omega$ .cm) |
|------------------|----------|--------------------------------|-------------|----------------------------|---------------------------------------|---------------------------------------|-----------------------------|
| Ge               | 32       | 5,33                           | 0,67        | 2,96                       | 3900                                  | 1900                                  | 50                          |
| Si               | 14       | 2,33                           | 1,12        | 3,62                       | 1400                                  | 480                                   | 106                         |
| CdTe             | 48/52    | 6,2                            | 1,44        | 4,43                       | 1100                                  | 100                                   | 109                         |
| CdZnTe           | 48/30/52 | 6                              | 1,5         | 5                          | 1350                                  | 120                                   | 1011                        |
| HgI <sub>2</sub> | 80/53    | 6,4                            | 2,13        | 4,2                        | 100                                   | 4                                     | 1013                        |
| GaAs             | 31/33    | 5,32                           | 1,43        | 4,2                        | 8000                                  | 400                                   | 107                         |

**Tableau I-1 :** Caractéristiques des principaux semi-conducteurs

Afin de mettre en évidence les effets qui influent sur la résistivité, nous allons survoler rapidement la physique des semi-conducteurs. Dans la structure cristalline d'un semi-conducteur, les niveaux d'énergie se composent d'une succession de bandes d'énergies interdites et de bandes d'énergies permises totalement peuplées à l'exception de la dernière, la bande de conduction, dont le remplissage partiel varie en fonction de la nature du semi-conducteur et de la température. La bande de valence (l'avant-dernière bande permise) et la bande de conduction sont séparées par une bande interdite dont la hauteur correspond au gap. Au zéro absolue (0 ° K), la bande de valence est complètement peuplée, le semi-conducteur est isolant. Lorsque la température croît, les électrons sont excités par agitation thermique et peuvent ainsi acquérir une énergie suffisante pour sauter la bande interdite. Ils passent alors de la bande de valence à la bande de conduction, il y a génération d'électrons libres et de trous libres qui sont les porteurs de charge responsables de la conduction. La probabilité par unité de temps de la génération d'une paire électron-trou dépend de l'agitation thermique, donc de la température. Elle est donnée par :

$$p(T) \propto T^{3/2} \exp\left(-\frac{E_{\text{gap}}}{2kT}\right) \quad (\text{I-21})$$

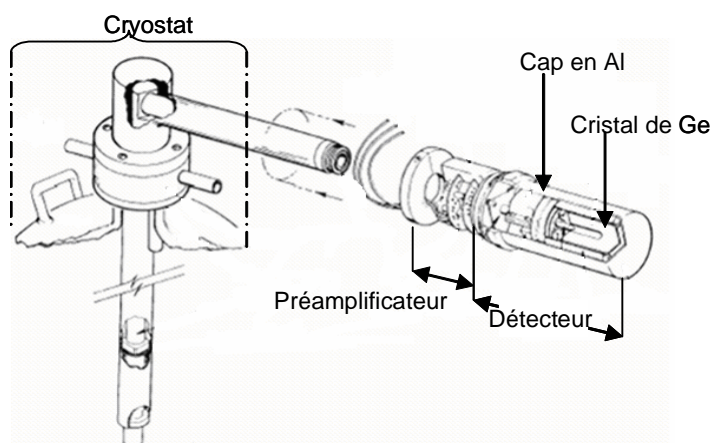
Avec  $T$  ( $^{\circ}\text{K}$ ),  $E_{\text{gap}}$  le gap de la bande interdite et  $k$  la constante de Boltzmann. Un matériau de faible gap, comme le germanium, a une faible résistivité à température ambiante. Les fluctuations du courant d'obscurité sont alors trop importantes pour qu'il soit utilisé comme détecteur sans être refroidi.

Le modèle des bandes décrit précédemment correspond au cas idéal d'un matériau intrinsèque et pur. Théoriquement on peut décrire les propriétés d'un tel matériau, mais en pratique, elles dépendent fortement des défauts présents dans le matériau. Ces défauts, de structures ou d'impuretés, engendrent la création d'états d'énergie discrets localisés dans la bande interdite. Ces niveaux forment des pièges qui agissent sur le processus de transport des charges. Ces défauts peuvent être introduits volontairement dans le cas d'un dopage [kno00]. Si on introduit des niveaux accepteurs proches de la bande de valence (semi-conducteur dopé P) à l'aide d'atomes trivalents en position interstitielle dans le réseau, les porteurs majoritaires sont alors les trous. On peut aussi introduire des niveaux donneurs près de la bande de conduction à l'aide d'atomes pentavalents (semi-conducteur dopé N) : les porteurs majoritaires sont alors les électrons. Un dopage revient en fait à créer un semi-conducteur avec un gap réduit. Le dopage permet de créer des structures à jonction couramment utilisées pour les détecteurs de rayonnements. Ces structures P-N polarisées en inverse présentent une haute résistivité apparente, supérieure à celle du matériau de base. D'autres structures permettent d'obtenir des effets similaires : détecteur semi-conducteur à barrière de surface, à jonction diffusée. La résistivité d'un semi-conducteur va donc être liée à son gap, à la structure employée et à la température. Une forte résistivité est recherchée pour les détecteurs de rayonnements afin de minimiser le bruit lié aux fluctuations du courant d'obscurité.

C'est pour cette raison que le germanium de faible gap est refroidi (figure I-8). Le CdTe, le GaAs, le Si et le  $\text{HgI}_2$  ont un gap suffisant pour être utilisés à température ambiante. Le Si de plus faible gap est alors généralement utilisé dans une structure à jonction (P-N, P-I-N,...).

Pour les particules chargées,  $\alpha$ , p, deutons et ion-lourds, on utilise des détecteurs au silicium, de volume assez faible, ils ne dépassent pas  $5 \text{ cm}^3$  (quelques mm d'épaisseur suffisant pour arrêter des particules de plusieurs dizaines de MeV). On peut également les utiliser pour les rayons X dans le domaine de 1 à 50 keV ou les rayons  $\gamma$  de basse énergie jusqu'à 100 keV.

Nous avons vu au premier chapitre que la section efficace de l'effet photoélectrique dépendait de  $Z^2$ , alors la détection des rayonnements  $\gamma$  s'effectue avec une meilleure efficacité si l'on utilise l'homologue supérieur du Si qui est le Germanium ( $Z = 34$ , au lieu de  $Z = 14$  pour Si).



**Figure I-8 :** Schéma d'un détecteur GeHP de rayonnement  $\gamma$

Ces détecteurs sont très efficaces pour la détection des rayonnements électromagnétiques de faible énergie, ils sont maintenus dans une enceinte sous vide de  $10^{-3}$  Pa et refroidis à la température de d'azote liquide (77 K) pour diminuer le bruit thermique (passage des électrons à travers du gap). Leur volume peut aller jusqu'à  $200 \text{ cm}^3$ , la haute tension de polarisation de ces détecteurs va de 1500 à 4000 V

### III.2. Détecteur Solide de Traces Nucléaires

Les particules chargées peuvent être également détectées par l'observation de traces nucléaires, zone de dommage créée le long des trajectoires de ces particules dans le matériau détecteur. Toutefois, l'enregistrement du passage d'une particule chargée dans un solide n'est pas réalisé d'une façon systématique pour toute particule et pour tous les matériaux. Seuls certains Détecteurs Solides de Traces Nucléaires (DSTN) mémorisent le passage de particules chargées, lorsque ses propriétés sont en corrélation avec les seuils de détection.

Historiquement, Price et Walker en 1962 [Fle63-64-65] ont mis au point la technique d'observation en microscopie optique de traces individuelles des fragments de fission créés en profondeur dans les milieux condensés. Ils ont montré qu'une attaque chimique différentielle par un acide ou par une base s'effectue préférentiellement le long de la trajectoire des particules dans le détecteur. Ces traitements élargissent les traces jusqu'à atteindre 0,5 micron

et les rendent ainsi observables au microscope. Les premiers travaux de Fleischer, Price et Walker en 1975 [Dur87] ont donné une description des mécanismes du développement chimique et de la formation des traces. Ils ont ainsi étendu le champ d'application de l'étude des traces nucléaires à des domaines aussi variés que la géologie, la biologie, l'archéologie, la physique nucléaire, l'étude des météorites ou des échantillons lunaires [Fle98].

On distingue deux grandes différences entre les traces latentes présentes dans deux classes majeures de solides qui sont, soit des minéraux (verre, mica, apatite, quartz, feldspath, ...) soit des matériaux organiques polymériques tels que les dérivés cellulosiques (nitrate de cellulose, di-acétate et tri-acétate de cellulose) et les polycarbonates (CR39, Lexan, ...).

Tous les résultats (nombre de traces, diamètres, bruit de fond, ...) d'un DSTN dépendent principalement des conditions de traitement et de comptage. Dans tous les cas, une densité de traces bien homogène est le signe d'une bonne maîtrise de la mesure et il s'en suit une moindre fluctuation des résultats. Dans la pratique, on distingue deux sortes de DSTN.

### III.2.1. DSTN massifs

Historiquement de très nombreux DSTN massifs ont été utilisés. Les plus répandus aujourd'hui sont des polycarbonates (CR39, Makrofol, ...). Il s'agit de feuilles en Plexiglas, plus ou moins souples, de l'ordre du millimètre d'épaisseur. Les traces ressemblent à des cônes de différentes tailles dont les vertex se situent dans la masse du détecteur. Le DSTN massif utilisé au cours de notre étude est le CR39. C'est un polymère de carbonate d'allyldiglycol ( $C_{12}H_{18}O_7$ ) [Cas78] transparent, amorphe et sensible aux particules ionisantes. Il se présente souvent sous forme de feuilles de 0,5 mm d'épaisseur pour les applications nucléaires. Ce polymère est également utilisé pour la fabrication des verres de lunettes. Un développement chimique ou électrochimique est nécessaire à la révélation des traces produites par le passage des particules  $\alpha$ .

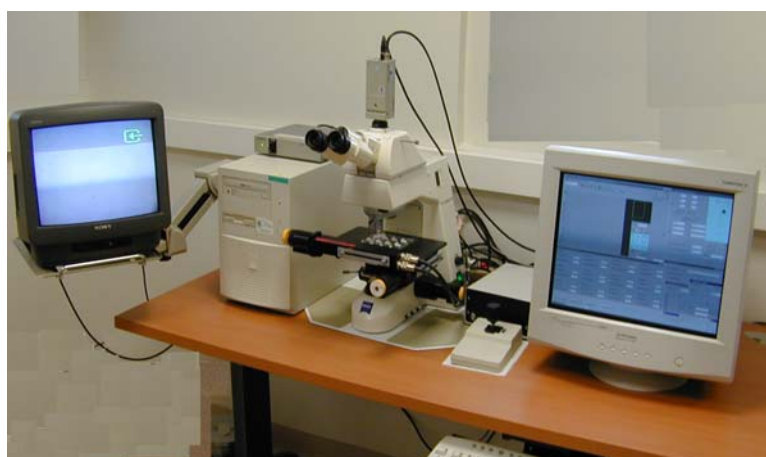
Ce détecteur a l'avantage d'enregistrer des particules  $\alpha$  ayant un angle d'incidence allant jusqu'à  $75^\circ$  et une énergie comprise entre 0 et 20 MeV. La figure I-10 (à gauche) montre des traces alpha révélées dans le CR39 ; les formes plus ou moins elliptiques de ces traces sont représentatives des différents angles et énergies des particules incidentes. Ces conditions d'attaque chimique se résument à une durée de 6 heures dans une solution de NaOH de molarité 7 M à une température de  $70^\circ\text{C}$ .

### III.2.2. DSTN en couches minces

Il s'agit du film Kodak type LR115. Il est constitué d'une couche de nitrocellulose ( $C_6H_8N_2O_9$ ), fortement teintée en rouge, de 12  $\mu m$  d'épaisseur moyenne, sur un support inerte de 100  $\mu m$  en polyester.

Le nitrate de cellulose est parmi les DSTN les plus sensibles aux particules alpha. Il peut enregistrer des particules  $\alpha$  d'énergie comprise entre 1,4 et 4,7 MeV avec un angle d'incidence allant jusqu'à 50°. L'insensibilité du LR115 aux rayonnements électromagnétiques et aux électrons présente un grand intérêt pour son utilisation en champs mixte de rayonnements. Sa révélation chimique se fait pendant 2 heures dans une solution de NaOH de molarité 2,5 M à une température de 60 °C.

Après traitement chimique, chaque impact de particule  $\alpha$  laisse un micro-trou dans la couche rouge, de 1 à 15  $\mu m$  de diamètre. La lecture des films ainsi développés, a été réalisée à l'aide d'un système automatique (voir figure I-9), récemment acquis par le groupe RaMsEs, composé d'une caméra CCD reliée à un microscope optique et d'une table traçante (X,Y,Z) pilotée par le logiciel Visilog. Au microscope, le film LR115 ressemble alors à une cible de tir ! (Figure I-10 à droite).



**Figure I-9 :** *Système d'exploitation des DSTN utilisé pour la numérisation et le comptage des traces alpha*

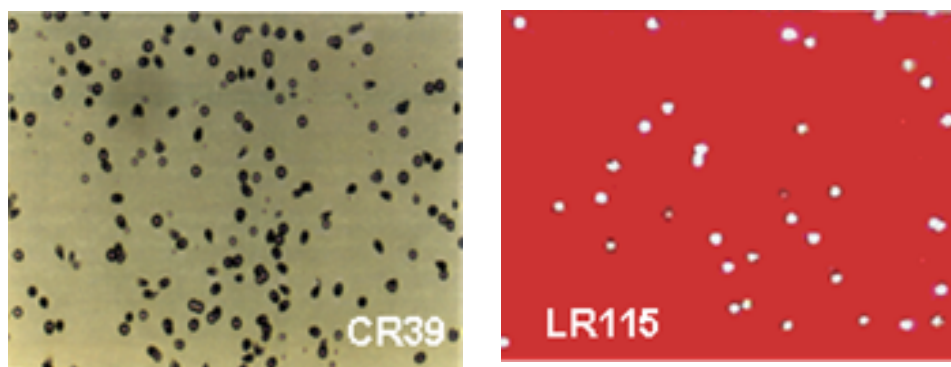


Figure I-10 : Traces de particules  $\alpha$  révélées dans les DSTN CR39 et LR115

### III.2.3. Critères d'enregistrement des traces

La visualisation d'une trace latente ne se réalise qu'à travers des conditions de plusieurs paramètres. Chaque type de détecteur est caractérisé par une perte d'énergie critique à la surface du détecteur en dessous de laquelle la détection des traces n'est pas observable [Dur87]. Ce critère a été rejeté car on a remarqué que les ions de fer relativistes n'étaient pas détectés dans le nitrate de cellulose tandis que le TEL est supérieur à  $(dE/dx)_c$  qui est la perte d'énergie critique. Cela a prouvé que l'enregistrement des traces dépend non seulement de la nature du matériau mais aussi de la nature des particules incidentes. L'apparition d'une trace dépend des trois paramètres complémentaires suivants :

- l'angle d'incidence,
- l'énergie de la particule incidente,
- les conditions de développement, comme nous l'avons signalé auparavant.

### III.2.4. Formation des traces latentes

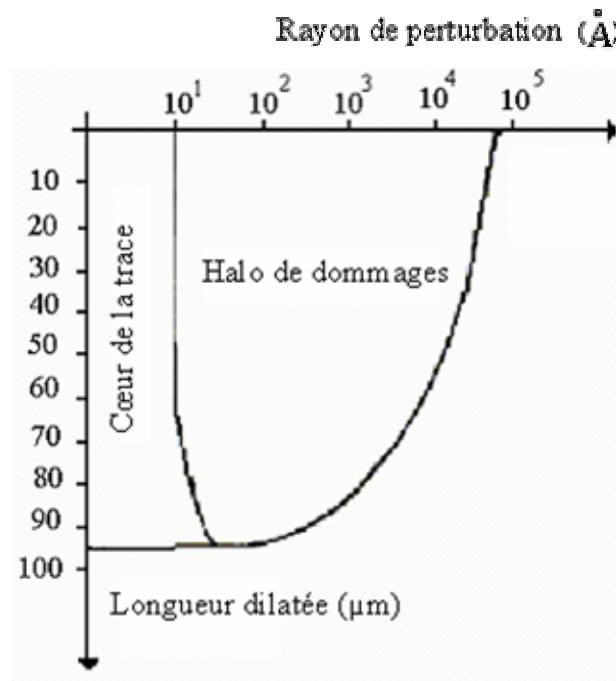
Durant les cinq dernières décennies, plusieurs travaux [Vag01] ont été effectués afin d'expliquer et de comprendre la distribution spatiale du dépôt d'énergie et les modèles de formation d'une trace dans un DSTN.

Parmi ces modèles nous citons plus particulièrement le modèle de la pointe thermique et le modèle d'explosion ionique. Ces modèles indiquent que la zone entourant l'axe de la trajectoire de la particule subit un maximum de dégâts créés par l'ionisation primaire. Les électrons issus de cette ionisation créent à leur tour des dommages le long de leur parcours. La trace est constituée de deux zones de perturbations:



- une zone cylindrique de rayon  $r_0$  dite cœur de la trace, dans laquelle les perturbations sont créées par le passage de la particule chargée (ionisation primaire),
- une zone appelée halo de dommages, où les perturbations créées au cœur de la trace se propagent par les électrons issus de l'ionisation primaire.

La figure I-11 propose la structure d'une trace latente dans le cas d'un ion d'Ar de 7 MeV/uma dans l'acétate de cellulose. La trace latente n'est donc que la mémorisation d'une perturbation créée par la particule chargée dans le matériau.



**Figure I-11 :** Structure d'une trace latente dans l'acétate de cellulose

L'ensemble des dégâts, dans un polymère peut provoquer une réduction de la masse molaire, une augmentation du nombre de chaînes par cassure induite, une modification de la masse volumique et la formation de nouvelles espèces chimiques. Ces modifications structurales rendent possible la mise en évidence des traces par développement chimique.

En fait, la structure d'une trace révélée est complexe et difficile à quantifier même au microscope électronique. Elle peut être assimilée à un volume de révolution autour d'un axe de rayon  $r$  compris entre 1 à 150 angströms et de  $10^5$  angströms de longueur pour les fragments de fissions dans les polymères. Pour les particules  $\alpha$ , les dimensions radiales sont de l'ordre de l'angström, nous pouvons donc assimiler la trace latente à un segment puisque le diamètre de la trace est petit par rapport à sa longueur.

### III.2.5. Géométries des traces enregistrées dans les DSTN

La forme des traces révélées est régie par l'effet de la dissolution chimique du matériau le long du canal selon les deux paramètres suivants:

- la vitesse d'attaque surfacique chimique  $V_B$  du détecteur vierge, qui correspond à la vitesse avec laquelle l'épaisseur du détecteur a été décapé lorsqu'il est soumis à un traitement chimique,
- la vitesse d'attaque chimique  $V_T$  propre aux traces latentes, qui traduit l'érosion interne de la trace.

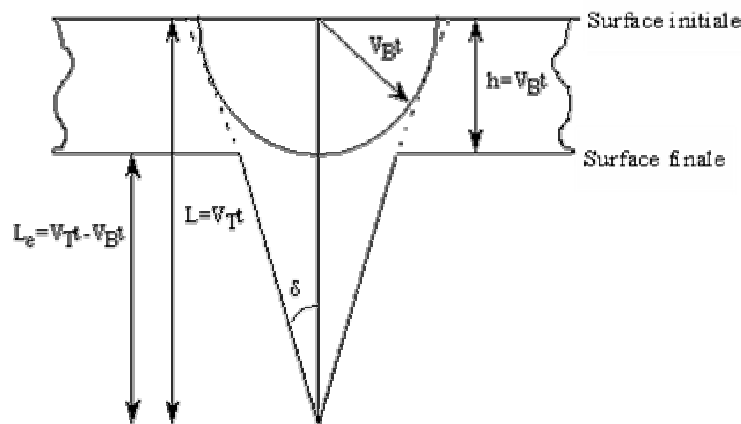


Figure I-12 : Forme d'une trace révélée à incidence normale

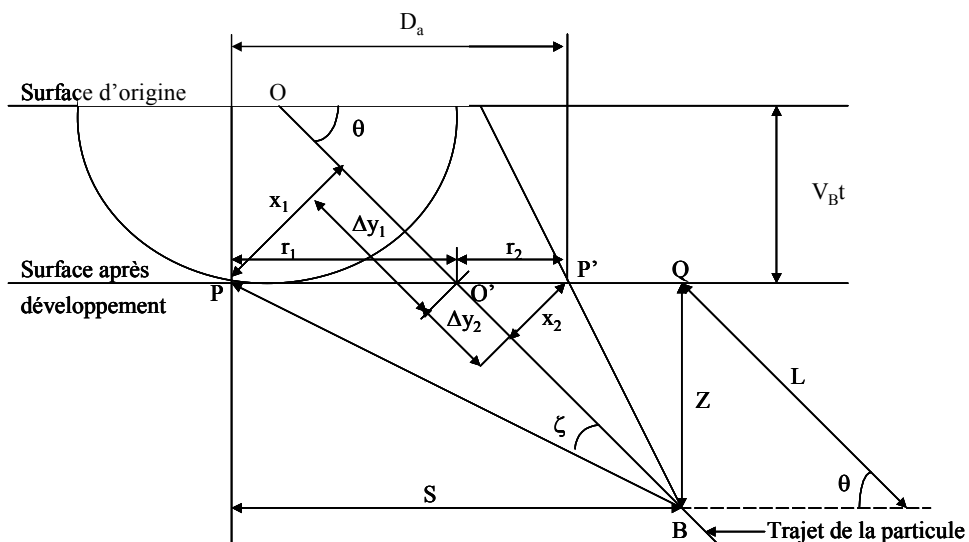
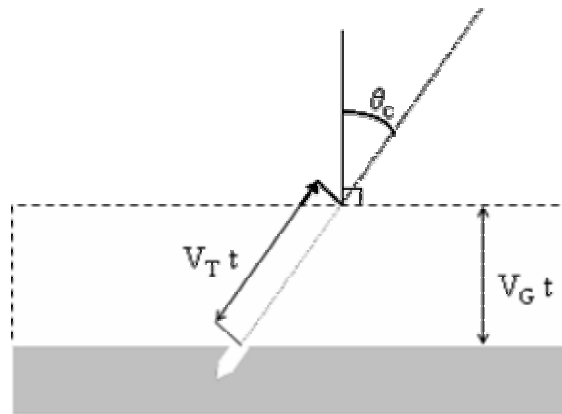


Figure I-13 : Forme d'une trace révélée à incidence oblique

Plusieurs études ont été effectuées sur ces deux paramètres qui permettent d'interpréter l'évolution de la forme des traces dans le DSTN [Hen71-Som80-Mey97]. Les figures I-12 et I-13 donnent respectivement les deux types d'incidence normale et inclinée des particules alpha incidentes.

### III.2.6. Angle critique d'enregistrement

Quand un DSTN est irradié par des particules chargées, les traces dues aux particules d'incidence inclinées ne sont pas toutes observables après révélation chimique (une partie du film est décapée) même si les dégâts créés sont importants. Ceci est lié à la contrainte de l'angle critique d'enregistrement  $\theta_c$  [Mem90-Fro91-Bar97] engendré par la trajectoire de la particule incidente et la normale à la surface du détecteur (figure I-14).



**Figure I-14 :** Conditions d'observation d'une trace après développement chimique

Comme il a été cité précédemment, l'apparition d'une trace révélée résulte des effets simultanés de la dissolution du détecteur non irradié caractérisée par la vitesse  $V_G$  et de celle des dégâts le long de la trace caractérisée par  $V_T$ . Ce qui se traduit par la condition suivante :

$$\cos \theta \int_0^t V_T dt > V_G t \quad (\text{I-22})$$

d'où :

$$\theta_c = \arccos \frac{V_G t}{\int_0^t V_T dt} \quad (\text{I-23})$$

D'après cette expression, l'angle critique dépend de plusieurs paramètres tels que la nature du DSTN, l'énergie de la particule chargée incidente et le temps de développement  $t$ .

### III.2.7. Efficacité de détection

Pour chaque type de détecteur pour des conditions de développement données, l'efficacité de détection dépend de la variation de l'angle critique d'enregistrement  $\theta_c$  en fonction de l'énergie [Jon92]. La densité de traces  $D$  observée dans le DSTN par unité de temps et l'activité volumique  $A$  du radionucléide considéré sont liées par :

$$D = \varepsilon(\theta_c, E_\alpha) \cdot A \quad (\text{I-24})$$

$\varepsilon(\theta_c, E_\alpha)$  est l'efficacité de détection en fonction de l'angle critique d'enregistrement  $\theta_c$  et de l'énergie de la particule alpha  $E_\alpha$  [Pap98] :

$$\varepsilon(\theta_c, E_\alpha) = \frac{1}{2} \int_{R_\alpha(E_{\min})}^{R_\alpha(E_{\max})} \int_0^{\theta_c} \sin \theta \cos \theta dR_\alpha d\theta \quad (\text{I-25})$$

$E_{\min}$  et  $E_{\max}$  sont les limites des énergies détectées,  $R_\alpha(E_{\min})$  et  $R_\alpha(E_{\max})$  sont les parcours des particules  $\alpha$  correspondant à ces énergies.

Les densités de traces  $D$  sont obtenues à l'aide du système automatique de comptage de traces présenté dans la figure I-9. Pour remonter à l'activité, il est nécessaire de connaître l'efficacité de détection  $\varepsilon(\theta_c, E_\alpha)$ . Pour calculer cette efficacité, nous avons utilisé une méthode de calcul numérique basé sur l'intégration de l'équation I-25 en fonction de l'angle  $\theta_c$  et du parcours  $R_\alpha$ .

Les études de la variation de  $\theta_c$  en fonction de l'énergie de la particule  $\alpha$  dans le CR39 et le LR115 nous ont permis de déduire des relations empiriques pour l'angle critique en fonction de l'énergie pour chaque détecteur. Les formes sont les suivantes :

$$\theta_C^{LR} = \sum_{n=0}^6 k_{Ln} E_\alpha^n \quad \text{et} \quad \theta_C^{CR} = \sum_{n=0}^5 k_{Cn} E_\alpha^n \quad (\text{I-26})$$

Pour LR115 :  $k_{L0} = -183,13$  ;  $k_{L1} = -95,92$  ;  $k_{L2} = 479,02$  ;  $k_{L3} = -358,37$  ;  $k_{L4} = 117,85$  ;

$$k_{L5} = -18,32 \quad ; \quad k_{L6} = 1,09$$

Pour CR39 :  $k_{C0} = 9,43$  ;  $k_{C1} = 45,43$  ;  $k_{C2} = -10,74$  ;  $k_{C3} = 0,25$  ;  $k_{C4} = 0,04$  ;

$$k_{C5} = 0,005$$

La relation entre le parcours  $R_\alpha$  des particules  $\alpha$  dans l'échantillon et leurs énergies  $E_\alpha$  peut être décrite par l'équation :

$$R = \sum_{n=0}^2 a_n E_\alpha^n \quad (\text{I-27})$$

Les coefficients  $a_0$ ,  $a_1$  et  $a_2$  sont déterminés à partir de l'ajustement de l'équation aux points énergie-parcours ( $E_\alpha$ ,  $R_\alpha$ ) fournis par le code SRIM [Bie03] dans l'échantillon à analyser.



## **Chapitre II**

# **Simulations par Calcul Monte Carlo**





La méthode de simulation Monte Carlo doit son nom à Metropolis et Ulam dans les années 1940 [Met49], ces auteurs sont les premiers à avoir décrit cette méthode pour des applications militaires concernant les premières bombes atomiques.

Ces techniques sont aujourd'hui introduites dans de nombreux champs d'applications, qui peuvent avoir peu en commun. Elles impliquent la génération de nombres pseudo-aléatoires qui sont mis en forme selon certaines fonctions de densité de probabilité que l'on associe à un modèle. Ce dernier est souvent un système physique réel, mais peut être par exemple un système mathématique, ou un monde imaginaire quelconque gouverné par des lois qu'il est possible d'exprimer en des termes discrets utilisables sur une machine de calcul. Il faut différencier ces méthodes de simulation statistiques des méthodes conventionnelles de discrétisation numérique qui sont dans la plupart des cas appliquées aux équations différentielles partielles décrivant le système.

Dans beaucoup d'applications Monte Carlo, le système est simulé directement et donc n'a pas besoin de telles équations. La seule véritable contrainte est que ce système puisse être décrit en terme de fonctions de densité de probabilité.

Le grand avantage de la méthode est sa simplicité. Elle permet entre autres de visualiser l'effet de différents paramètres et de donner ainsi des orientations qui auraient été a priori écartées et de trouver facilement des structures que l'on n'aurait pas pu aussi bien optimiser par les méthodes analytiques.

## I. Modélisation par la méthode Monte Carlo

Cette approche relativement récente, permet de simuler " l'histoire " d'une particule individuelle dans un milieu atténuateur, en tenant compte du caractère probabiliste des différents processus physiques pouvant être rencontrés lors de sa traversée. Cet historique prend en compte les éventuelles particules secondaires et s'arrête dès lors que l'énergie de la particule est en dessous d'un niveau seuil ou atteint une zone de réjection. La méthode de Monte Carlo peut se décomposer en différentes étapes :

- construire un processus statistique que l'on appelle jeu,
- attribuer un score numérique à une certaine réalisation du jeu,
- calculer une moyenne de ces scores et une dispersion statistique (écart-type) permettant d'estimer la précision des résultats.

Sur la figure II-1, le jeu consiste en la réalisation de la trajectoire de la particule et le score est de 1 chaque fois qu'une particule traverse la surface. On peut alors calculer la moyenne du nombre de particules ayant traversées la surface d'un détecteur.

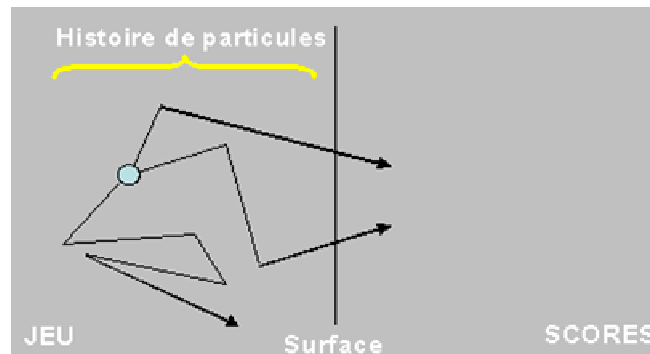


Figure II-1 : Un exemple d'application de la méthode Monte Carlo

Dans le cadre du transport des particules ou de photons, l'utilisation d'une méthode de Monte Carlo pour estimer des quantités physiques telles que le flux, le taux de réaction ou le facteur de multiplication repose sur la simulation de la traçabilité de ces particules dans la matière.

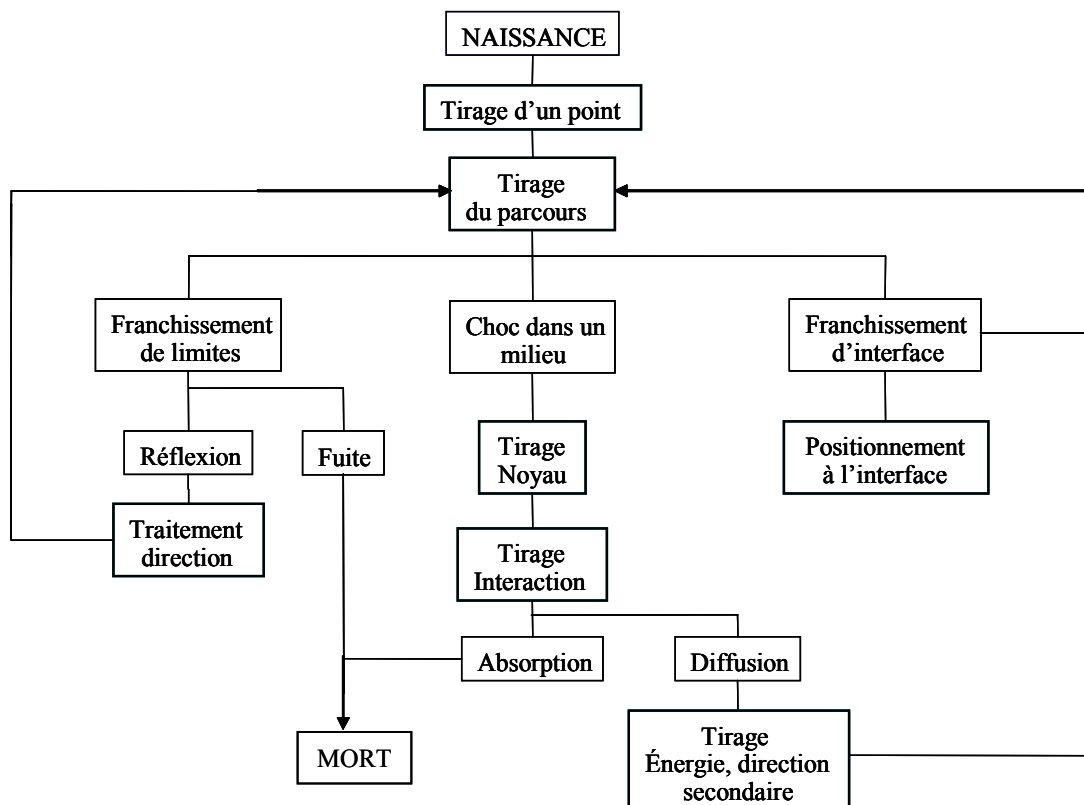


Figure II-2 : Historique et traçabilité d'une particule dans un milieu ralentisseur

Une histoire commence par la naissance de la particule (émission à partir d'une source) et se termine par sa mort (absorption ou fuite). La figure II-2 représente un organigramme simplifié de la construction d'une histoire.

## I.1. Variables aléatoires

Pour appliquer la méthode de Monte Carlo, on génère des nombres aléatoires de différentes manières :

- tables de nombres aléatoires établies à partir de certains phénomènes physiques (roulette),
- générateurs de nombres aléatoires : cette méthode fait appel aux ordinateurs. Les nombres obtenus doivent constituer une série non reproductible, mais le test de non reproductibilité est difficile à réaliser. De plus, le stockage des résultats au cours du calcul, encombre la mémoire de l'ordinateur. Pour contourner ces difficultés, on utilise actuellement des nombres pseudo-aléatoires.

Les nombres pseudo-aléatoires diffèrent des nombres aléatoires par le fait que lorsque le premier est arbitrairement choisi, toute la suite est complètement déterminée et reproductible. Par cet effet, on peut appliquer des tests de qualité et vérifier les programmes dans lesquels ils sont utilisés. Une des formules les plus utilisées pour engendrer des nombres pseudo-aléatoires à distribution uniforme, est :

$$X_i = a X_{i-1} + c \quad (\text{modulo } m) \quad (\text{II-1})$$

Cependant, la périodicité de la séquence limite la validité du générateur de variables aléatoires. On a donc intérêt à ce que cette période soit très grande. Pour cela, on prend  $c = 0$  et  $m = 2^N$  où  $N$  est généralement de l'ordre de 30 ou 40.

Les nombres obtenus ont une distribution uniforme. Pour obtenir ces nombres dans l'intervalle  $[0, 1]$ , on divise les  $X_i$  par  $(m-1)$  et on obtient la relation d'échantillonnage suivante :

$$\varepsilon_i = \frac{X_i}{m-1} = \frac{a}{m-1} X_{i-1} \quad \varepsilon_i \in [0, 1] \quad (\text{II-2})$$

## I.2. Transport de particules

L'utilisation de la méthode de Monte Carlo dans les phénomènes de transport a pour but l'évaluation aussi précise que possible d'une quantité intégrale, que l'on peut écrire sous la forme :

$$I = \int_D f(x) \varphi(x) dx \quad (\text{II-3})$$

Avec :

- $x$  : un point dans l'espace de phase ( $D$ ) à 6 dimensions (nous ne considérons ici que des problèmes stationnaires), 3 dimensions d'espace  $R$ , une variable énergie ( $E$ ) et deux variables directeurs ( $w$ ). Les trois dernières dimensions pourront être représentées par un seul vecteur, le vecteur vitesse  $V$ .
- $\varphi$  désigne le flux.
- $f$  : représente une fonction réponse qui selon le contexte, pourra prendre plusieurs formes : section efficace pour le calcul d'un taux de réaction ou indicatrice de domaine d'espace (cas d'un calcul de protection où la zone en question se trouve relativement éloignée du cœur).

Les codes de simulation Monte Carlo utilisés au cours de ce travail sont : Monte Carlo N-Particles (MCNP) et GEANT. Dans nos applications les plus courantes, les particules étudiées sont les photons, les alpha et les neutrons.

Le principal intérêt de cette approche est de pouvoir calculer des quantités physiques difficilement accessibles par d'autres techniques (mesure ou calcul analytique). Par exemple, elle permet l'estimation, de la dose délivrée en absence de détecteur ou de la contribution des particules secondaires.

## II. Code MCNP

Pour effectuer des calculs de modélisation de la fonction de réponse des détecteurs nous avons utilisé le code MCNP version 4C. Ce code a été développé initialement par le Laboratoire de Los Alamos aux Etats Unis [Bri97] et qui est distribué par l'Agence de l'Energie Nucléaire aux Etats membres. Il est couramment utilisé pour la simulation du transport des neutrons thermiques et rapides, des photons et des électrons dans des géométries ou des configurations tridimensionnelles complexes constituées de divers matériaux. En ce qui concerne les photons, la gamme d'énergie se situe entre 1 keV et 1 GeV. Il est

actuellement utilisé dans différents domaines tels que : la radioprotection pour la dosimétrie, le domaine médical, le domaine militaire, .... Le transport des particules peut être de forme individuelle (neutrons, photons ou électrons) ou combinée, l'embaras est de définir dans le fichier d'entrée la modalité choisie.

Le code MCNP consiste en une méthode probabiliste qui permet la résolution de l'équation de transport par une méthode de tirage aléatoire. Chaque particule émise aura une histoire propre à elle. Il suit chacune des particules émises depuis leur naissance jusqu'à leur disparition en tenant compte des probabilités d'interactions avec les différents matériaux rencontrés, représentées par les sections efficaces dans les bibliothèques annexes au code.

Pour générer un fichier d'entrées, il est nécessaire de définir les cellules, les surfaces, les matériaux, les paramètres de la simulation et le type de réponses souhaitées.

## II.1. Définition des surfaces

Même si la définition des surfaces intervient après la définition des cellules dans le programme, il nous semble plus logique d'en parler avant, puisque la définition des cellules fait intervenir les surfaces que nous avons définies. Le programme possède dans son code les équations d'un grand nombre de surfaces. Pour en définir une, on entre la formulation suivante :

*j n a liste*

*j* : est un nombre compris entre 1 et 99999 désignant le numéro de la surface ; il est précédé d'un astérisque \* si la surface est réfléchissante ou par un plus + si la surface est une surface blanche.

*n* : concerne des transformations de coordonnées. Il peut être absent ou nul, si il n'y a pas de transformation ; positif, il désigne alors le numéro de la carte définissant la transformation de coordonnées, soit la carte TR*n* (nous parlerons de cette carte dans la partie ci-dessous consacrée aux définitions des données) ; négatif, il indique alors que la surface *j* est périodique avec la surface *n*. De manière générale, une carte désigne une ligne de huit caractères au maximum.

*a* et *liste* : représentent respectivement l'abréviation d'une surface reconnue par le programme et les paramètres qui s'y réfèrent. Par exemple P correspond à un plan, C correspond à un cylindre. Dans le tableau II-1 sont données les cartes des surfaces reconnues par le code MCNP.

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

Tableau II-1 : Bibliothèque des cartes des surfaces reconnues par MCNP

## II.2. Définition des cellules

L'intersection, l'union ou le complémentaire de plusieurs surfaces peuvent former des régions de l'espace appelées cellules. Dans la définition d'une cellule, on définit également plusieurs paramètres, dont nous parlerons ci-dessous, comme le type de matériau qui constitue la cellule, la densité de la matière en question et d'autres paramètres importants qui seront mentionnés plus loin. La formulation pour définir correctement une cellule est la suivante :

*nc m d geom params*

*nc* : est un nombre compris entre 1 et 99999 et définit le numéro de la cellule.

*m* : désigne la matière constituant la cellule *nc*. Si on choisit  $m = 0$ , la cellule est déclarée vide ; si *m* est différent de 0, il indique le numéro de la matière dont les caractéristiques sont décrites par la carte (*Mm*) qui se trouve dans la partie des définitions des données et sera par conséquent expliquée dans cette section.

*d* : désigne la densité de la matière *m*. Ce nombre est absent si la cellule *j* est vide, ou si *m* est 0. Sinon, si ce nombre est positif, il représente la densité atomique dans les unités de  $10^{24}$  atomes par  $\text{cm}^3$ . Si ce nombre est négatif, il est interprété comme la densité de la matière *m* en exprimé en g par  $\text{cm}^3$ .

*geom* : spécifie la géométrie de la cellule définie par des surfaces définies. Il s'agit des numéros des surfaces séparés par des opérateurs booléens qui spécifient comment les régions séparées par les surfaces doivent être combinées. Les opérateurs booléens sont les suivants :

Un espace signifie l'intersection, le sigle (:) représente l'union et le sigle (#) signifie le complément. Pour définir facilement des cellules intersectées, il est utile de se rappeler des formules de base des théories ensemblistes :

*params* : sont des spécifications optionnelles de paramètres des cellules.

## II.3. Définition des données

### II.3.1. Définition des sources

Une carte essentielle est celle qui définit la source : il s'agit de la carte (*SDEF*). Elle a la formulation suivante : *SDEF* source variable = spécification ... Si la spécification est précédée d'un D, le programme comprend qu'il s'agit d'une distribution; sinon, il s'agit d'une valeur explicite. Il existe de nombreux paramètres pour définir la source ; nous n'en citerons que quelques-uns en guise d'exemples :

- *CEL* : précise quelle cellule sert de source, si cette dernière remplit entièrement la cellule,
- *SUR* : définit quelle surface est la source,
- *ERG* : définit l'énergie de la source, en MeV. Dans notre cas nous avons utilisé deux sources une mono-énergétique  $^{137}\text{Cs}$  et l'autre de l' $^{152}\text{Eu}$  sous forme d'un spectre d'énergie [Mor75] (voir tableau II-2).
- *POS* : donne le point de référence du centre de la source,
- *RAD* : définit le rayon de la source.

Lorsqu'une source n'est déposée que sur la surface d'une cellule, il est possible de définir des rayons interne et externe, comme nous le verrons pour la carte *SIn*.

- *EXT* : signifie l'extension de la source depuis *POS*, le long de *AXS*,
- *AXS* définit l'axe de la source. X, Y et Z donnent les coordonnées x y et z de la source,
- *PAR* donne le type de particule ; il sera 1 dans le MODE N, NP et NPE, 2 dans le MODE P et PE et 3 dans le MODE E. Dans notre cas nous avons utilisé le mode P et le mode N.

### Exemples de géométrie source :

Pour définir une distribution sphérique, on utilise la variable *POS* pour le centre de la sphère et *RAD* pour son rayon. Si la source est à la surface de la sphère, on utilise deux rayons définis dans la carte *SIn*. Si la variable *RAD* est omise, le programme considère cette sphère comme une source ponctuelle.

Pour définir une distribution cylindrique, on utilise la variable *POS*, *AXS* pour définir l'axe du cylindre, *RAD* son rayon et *EXT* son extension le long de *AXS* depuis *POS*. Pour définir une distribution de la source à la surface du cylindre, on définit un rayon interne et externe dans la carte *SIn* pour la variable *RAD* et l'extension depuis *POS* pour *EXT* dans une autre carte *SIn*.

La carte *SIn* a la morphologie suivante : *SIn* option  $I_1, I_2 \dots I_k$ . n est le numéro de la distribution. Option précise de quelle façon les  $I_k$  doivent être interprétés. La valeur par défaut est *H* ou rien et signifie que c'est une distribution en histogramme. Les autres valeurs sont *L* pour des variables discrètes de la source, *A* pour des points où une densité de probabilité est définie et *S* pour des nombres d'une distribution. Les  $I_k$  sont les variables de la source. Dans le tableau (II-2) sont données les raies  $\gamma$  de  $^{152}\text{Eu}$  ainsi que les rapports d'embranchement [Mor75] qui ont été utilisés pour la simulation des spectres de désexcitation.



| <i>Energie (keV)</i> | <i>P (%)</i> | <i>ΔP(%)</i> |
|----------------------|--------------|--------------|
| <b>121,78</b>        | <b>28,20</b> | <b>0,500</b> |
| <b>244,69</b>        | <b>7,380</b> | <b>0,130</b> |
| 295,94               | 0,423        | 0,013        |
| 329,44               | 0,104        | 0,012        |
| <b>344,28</b>        | <b>26,40</b> | <b>0,400</b> |
| 367,76               | 0,840        | 0,030        |
| <b>411,12</b>        | <b>2,210</b> | <b>0,040</b> |
| <b>444,00</b>        | <b>3,070</b> | <b>0,050</b> |
| 488,68               | 0,400        | 0,023        |
| 503,47               | 0,150        | 0,013        |
| 564,02               | 0,486        | 0,021        |
| 586,26               | 0,454        | 0,023        |
| 678,60               | 0,459        | 0,020        |
| 688,68               | 0,849        | 0,025        |
| 719,30               | 0,322        | 0,018        |
| <b>779,00</b>        | <b>13,00</b> | <b>0,220</b> |
| 810,47               | 0,321        | 0,024        |
| <b>867,38</b>        | <b>4,160</b> | <b>0,060</b> |
| 919,34               | 0,410        | 0,022        |
| 926,29               | 0,253        | 0,021        |
| <b>964,05</b>        | <b>14,48</b> | <b>0,230</b> |
| 1005,15              | 0,590        | 0,030        |
| <b>1085,83</b>       | <b>10,14</b> | <b>0,160</b> |
| <b>1112,00</b>       | <b>13,55</b> | <b>0,200</b> |
| 1212,94              | 1,390        | 0,030        |
| 1249,88              | 0,179        | 0,015        |
| 1299,13              | 1,630        | 0,030        |
| <b>1408,03</b>       | <b>20,70</b> | <b>0,290</b> |
| 1457,62              | 0,488        | 0,015        |
| 1528,10              | 0,266        | 0,015        |

**Tableau II-2 :** Principales raies  $\gamma$  de  $^{152}\text{Eu}$  et leurs probabilités d'émission

Par exemple, la source gamma multiénergétique d' $^{152}\text{Eu}$  a été définie de la façon suivante :

```

SDEF erg=d1 pos= 0 -2.78 0 cel=2 rad=d2 ext=d3 axs= 0 0 1
SII L 0 0.1220 0.2450 0.29594 0.3440 0.36776 0.4110 0.4440 &
      0.56402 0.56642 0.68869 0.7790 0.86738 &
      0.964131 1.08591 1.08972 1.109180 1.1120 1.21294 1.274 1.29913&
      1.408
SP1 D 0 0.28540 0.0754 0.00443 0.2652 0.00842 0.02246 0.0310 &
      0.004910 0.00129 0.00846 0.1294 &
      0.04230 0.146 0.1009 0.01737 0.00195 &
      0.13560 0.01423 0.00119 0.01630 0.208
SI2 0 4.65
SI3 3.75

```

Cette procédure signifie qu'on a affaire à une distribution cylindrique, dont le centre est à l'origine, d'axe parallèle à Z et d'une distribution d'énergie *SI* d'intensité *SP*.

### II.3.2. Définition des tallies

Il est possible de définir différents tallies (résultats) dans le code MCNP en fonction du résultat qu'on souhaite obtenir, c'est-à-dire le courant à travers une surface, le flux en un point, ...

Habituellement, seule la carte *Fn* est utile pour définir les tallies recherchés ; les autres paramètres sont optionnels. Dans ce qui suit, nous ne parlerons que des cartes *Fn*, *En* et *FMn*. La carte *Fn* est de loin la plus importante ; il en existe 7 différentes pour les neutrons, 6 pour les photons et 4 pour les électrons. Ils sont différenciés par leur *n* qui va de 1 à 8, sauf le 3. Lorsque l'on souhaite définir plusieurs tallies du même type, il est possible de placer des autres nombres avant le numéro du tally.

Voici maintenant les différents types de tallies (les deuxièmes unités données correspondent à celles obtenues par adjonction d'un astérisque):

- F1, pour N, P et E est le courant intégré sur une surface. Son unité est un nombre de particules ou des MeV,
- F2, pour N, P ou E est le flux moyenné sur une surface, en particules par  $\text{cm}^2$  ou en MeV/ $\text{cm}^2$ ,
- F4, pour N, P ou E est le flux moyenné sur une cellule, en particules par  $\text{cm}^2$  ou en MeV par  $\text{cm}^2$ ,

- F5, pour N et P est le flux en un point, en particules par  $\text{cm}^2$  ou en  $\text{MeV}/\text{cm}^2$ ,
- F6, pour N, P ou E est l'énergie déposée moyennée sur une cellule, en  $\text{MeV}/\text{g}$  ou en jerks/g,
- F7, pour N est l'énergie de fission moyennée sur une cellule, en  $\text{MeV}/\text{g}$  ou en jerks/g.
- F8, pour N, P, E ou PE est la distribution d'énergie des pulses déposée dans un détecteur, en pulses ou en MeV.

Si le tally concerne une surface ou une cellule, on note le numéro de la surface ou de la cellule directement après le nom du tally.

La carte  $En e_1 \dots e_k$  sert à définir l'énergie maximale dans le tally n. Cette valeur maximale en MeV est donnée dans les groupes  $e_k$ .

Par exemple, une donnée E11 .1 1 20 sépare le tally 11 en quatre régions d'énergie :

- de l'énergie minimale à 0.1 MeV,
- de 0,1 à 1 MeV,
- de 1 à 20 MeV,
- et le total sur toutes les énergies.

Une valeur E0 peut être utilisée pour donner une structure par défaut pour l'énergie dans tous les tallies, en n'oubliant pas qu'une donnée spécifique pour un tally primera sur cette valeur par défaut. Si des résultats d'un tally doivent tous être multipliés par une constante, par exemple pour convertir des unités, il est possible d'utiliser la carte  $FMn k$ , où n est le numéro du tally et k le facteur multiplicatif. Dans cette étude nous avons travaillé avec des photons et avec le mode de réponse F8 qui détermine le dépôt en énergie dans le détecteur, en introduisant la résolution associée au détecteur en fonction de l'énergie à l'aide de la commande  $FGB$ .

## II.4. Définition des matières

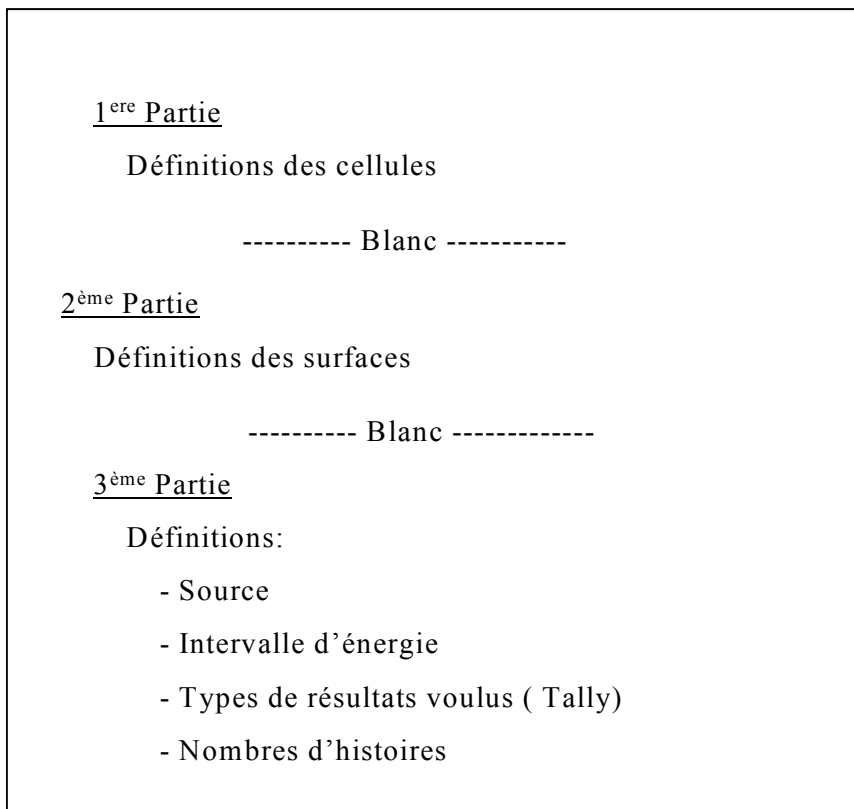
Comme il a été cité avant, dans la définition des cellules, on donne un numéro m à la matière qui constitue la cellule. Ce numéro m est repris dans la carte  $Mm$ , dont la formulation simplifiée est  $Mm zaid_1 fraction_1 zaid_2 fraction_2 \dots$  où  $zaid_i$  indique de quel élément il s'agit, ainsi que la librairie des sections efficaces à utiliser.

Cette entrée se décompose en  $ZZZAAA.nnx$ , où Z est le numéro atomique de l'élément considéré, A sa masse atomique, n la librairie des sections efficaces et x la classe de la donnée. Dans les calculs impliquant des photons et des électrons, les isotopes des éléments jouent le même rôle que les éléments naturels ; par conséquent, les A peuvent être mis à 0 et

les nombres  $n_{xi}$  oubliés. Les nombres  $fraction_i$  sont les fractions atomiques du constituant  $i$  ou la densité atomique si elle est introduite avec un signe moins.

## II.4. Définition des énergies

La figure II-3 donne un schéma récapitulatif d'un fichier de données d'entrée spécifique pour le code MCNP (voir annexe II).



**Figure II-3 :** Schéma d'un fichier input du code MCNP

Le code MCNP permet de préciser le traitement physique à utiliser pour les particules qui sont générées, ainsi que les particules qu'elles peuvent produire lorsqu'elles interagissent avec le milieu. Ces précisions sont fournies à l'aide de la carte *PHYS*. Elle peut être utilisée avec des neutrons, des photons ou des électrons.

## III. Code GEANT

Le code GEANT est un produit du CERN, il a pour but la description des détecteurs et la simulation du passage des particules élémentaires à travers de la matière [Gea94]. Le

code que nous avons élaboré [Nac02a] pour fournir les données d'entrée est constitué de cinq parties :

**Partie 1 :** initialisation de la mémoire, de la structure des données, et de la phase graphique.

**Partie 2 :** définition des matériaux qui constituent le système de détection (Source-Détecteur) tout en introduisant la composition, la forme, et les dimensions de chaque élément du système. Dans notre cas le système est composé d'un détecteur GeHP type coaxial de diamètre  $\varnothing = 5,1$  cm et de longueur 4,2 cm, et d'une source de  $^{152}\text{Eu}$  dispersée dans une solution de  $\text{H}_2\text{SO}_4$  dans un cylindre en polymère ( $\varnothing_{\text{cyl}} = 3,74$  cm,  $H_{\text{cyl}} = 4,7$  cm et d'épaisseur  $e = 1$  mm).

**Partie 3 :** cinématique de la particule reposant sur le générateur Monte Carlo. Cette étude se réalise à partir d'un point d'émission S, généré aléatoirement, et d'une direction tenant compte de l'angle solide de détection (figure II-4). Pour ce dernier, nous avons utilisé le calcul proposé par L.Wielopolski (1977) [Wie77] : Soit un point d'émission S à une distance P de l'axe de symétrie d'un détecteur GeHP de type coaxial, comme nous le montre la figure ci-dessous :

A partir du point d'émission S et d'une direction tenant compte de l'angle solide qui s'écrit sous la forme suivante :

$$d\Omega = \sin \theta d\theta d\phi \quad (\text{II-6})$$

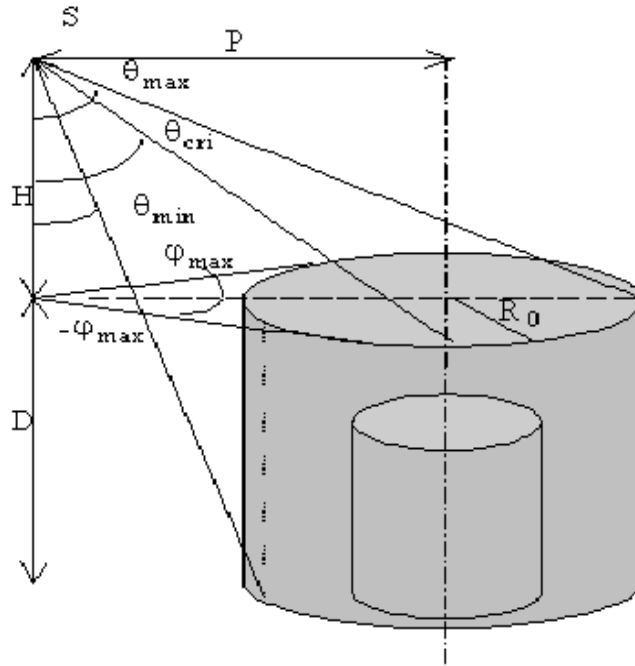
La génération des angles  $\theta$  et  $\phi$ , respectivement l'angle longitudinal et l'angle transversal, se fait d'une manière aléatoire dans tout le volume de la source suivant la position du point d'émission par rapport à l'axe de symétrie du détecteur.

La distribution de la probabilité pour une émission isotrope est :

$$p(\phi, \theta)d\phi d\theta = \frac{d\Omega}{4\pi} \quad (\text{II-7})$$

avec

$$\begin{cases} p(\theta)d\theta = \frac{1}{2} \sin \theta d\theta & 0 \leq \theta \leq \pi \\ p(\phi)d\phi = \frac{1}{2} \pi d\phi & 0 \leq \phi \leq \pi \end{cases} \quad (\text{II-8})$$



**Figure II-4 :** Schéma de production d'un point d'émission et d'une direction d'incidence

Le tirage aléatoire des angles  $\theta$  et  $\phi$  est obtenu après l'application de la relation d'échantillonnage aux résultats précédents :

$$x = \frac{\int_{-\phi_{\max}}^{\phi} \frac{d\phi}{2\pi}}{\int_{-\phi_{\max}}^{\phi_{\max}} \frac{d\phi}{2\pi}} \quad \text{avec } \phi = \phi_{\max}(2x - 1) \quad (\text{II-9})$$

$$x' = \frac{\int_0^{\theta} \frac{1}{2} \sin\theta \, d\theta}{\int_0^{\theta_{\max}} \frac{1}{2} \sin\theta \, d\theta} \quad \text{avec } \theta = \arccos(1 - x'(1 - \cos\theta_{\max})) \quad (\text{II-10})$$

$x$  et  $x'$  sont des nombres aléatoires compris entre 0 et 1. Les facteurs de pondérations  $W_1$  et  $W_2$  des angles sont respectivement :

$$W_1 = \frac{\int_{-\phi_{\max}}^{\phi} \frac{d\phi}{2\pi}}{\int_{-\phi_{\max}}^{\phi_{\max}} \frac{d\phi}{2\pi}} \quad \text{et} \quad W_2 = \frac{\int_0^{\theta_{\max}} \frac{1}{2} \sin\theta \, d\theta}{\int_0^{\pi} \frac{1}{2} \sin\theta \, d\theta} \quad (\text{II-11})$$

et donc l'angle solide  $\Omega$  sera:

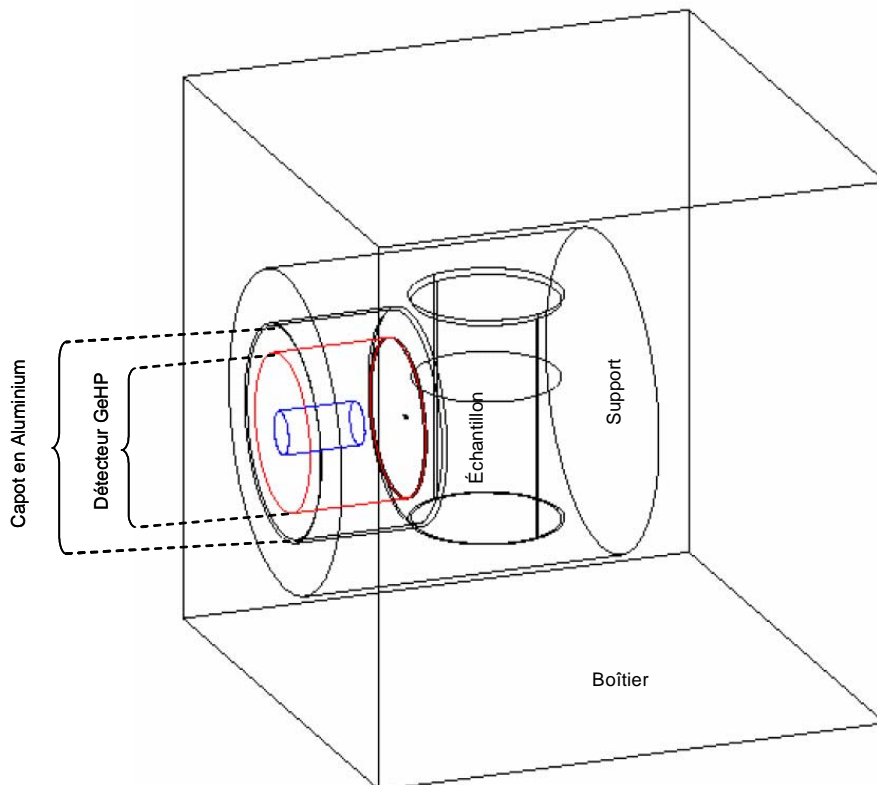
$$\Omega = W_1 \cdot W_2 \quad \text{avec} \quad \begin{cases} W_1 = \frac{\phi_{\max}}{\pi} \\ W_2 = \frac{1}{2}(\cos \theta_{\min} - \cos \theta_{\max}) \end{cases} \quad (\text{II-12})$$

Ainsi, la direction de la particule incidente sera à l'intérieur de l'angle solide  $\Omega$ .

**Partie 4 :** suivi du transport de la particule à travers les différentes régions du détecteur, en tenant compte des différents effets physiques intervenants.

**Partie 5 :** stockage des informations obtenues par le suivi pour faire le comptage. Seule la particule stoppée dans le germanium sera comptée comme particule détectée.

La figure II-5 montre un schéma simulé par GEANT, contenant le boîtier où se déroule le comptage, le détecteur horizontal GeHP coaxial, l'échantillon placé dans une capsule verticale en polyéthylène et un support en Plexiglas.



**Figure II-5 :** Schéma d'ensemble (détecteur, support et échantillon) simulé par GEANT





## **Chapitre III**

# **Etude Expérimentale & Simulation de la Self-absorption en Spectrométrie $\gamma$**



La spectrométrie  $\gamma$  est basée sur l'utilisation des détecteurs au germanium hyper pur (GeHP), elle est certainement la méthode la plus répandue pour mesurer la radioactivité des échantillons prélevés dans l'environnement. L'expérimentateur tire profit des informations issues de l'analyse du pic de pleine énergie (photoélectrique) et de l'étalonnage du détecteur en efficacité. L'estimation du facteur d'auto-absorption  $\gamma$  est également importante pour la quantification des radioéléments présents dans les échantillons volumineux. Durant les dernières années, plusieurs travaux [Kit90-Ram98-Puz98-Tia01] ont été consacrés à la détermination de ce facteur qui devient important pour les échantillons denses et pour les raies gamma de faible énergie ( $E_\gamma < 300$  keV). Sa détermination est primordiale pour les mesures environnementales (sédiments, déchets radioactifs, expertises radiologiques, ...).

Dans ce chapitre, nous décrivons une étude théorique basée sur la modélisation Monte Carlo, que nous confrontons avec nos résultats expérimentaux. Le principe est basé sur la dilution d'une activité connue de  $^{152}\text{Eu}$  dans des solutions d'acides de différentes densités. Pour une géométrie donnée, nous avons pu déterminer ce coefficient d'auto-absorption en fonction de l'énergie du rayonnement  $\gamma$  et de la densité de la matrice.

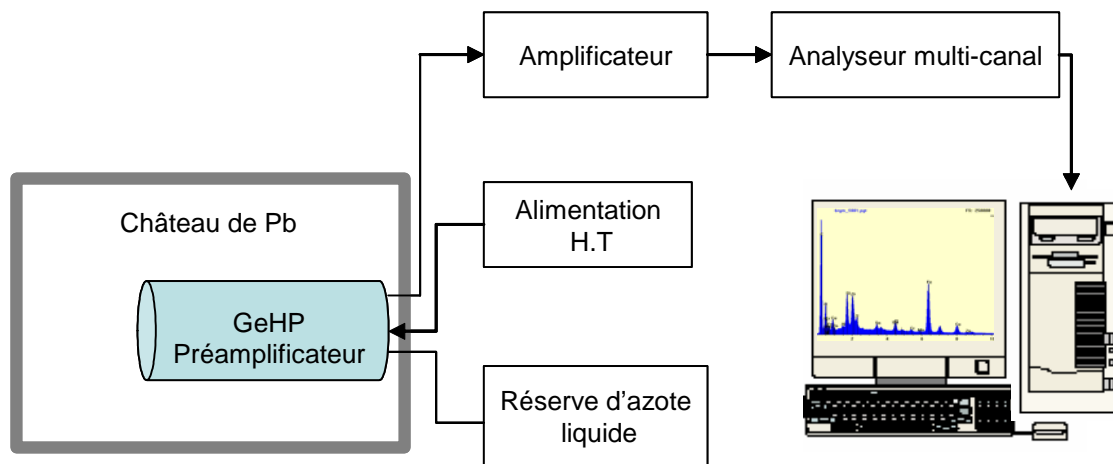
Dans une première application, cette étude a permis d'améliorer les analyses quantitatives faites par spectrométrie  $\gamma$  des échantillons de phosphate sédimentaires du Maroc et de leurs dérivés, et plus particulièrement lors du dosage de l'uranium dans les phosphogypses.

## I. Expérience

Les systèmes d'analyse mis en œuvre pour la réalisation de cette partie expérimentale sont constitués de deux chaînes analogiques fixes au laboratoire et d'une troisième chaîne numérique mobile ISOCS (In situ Object Counting System) dédiée à la modélisation des géométries de détection sur site. La première chaîne est composée d'un détecteur (INTER) tandis que la deuxième est à base d'un détecteur BeGe. La figure III-1 représente la chaîne de mesure. Le signal de sortie du détecteur est traité par un analyseur multi-canal après amplification et mise en forme. Les spectres sont ensuite analysés à l'aide du logiciel «Genie 2000».

Le détecteur INTER est une galette de Germanium de 42 mm d'épaisseur de très haute pureté se comportant comme une photodiode dans les conditions d'utilisation. Son avantage est qu'il fonctionne sur une large gamme d'énergie : de 50 keV à 3 MeV. Sa résolution est de 1,75 keV

et son efficacité relative au  $^{60}\text{Co}$  est de 17,5%. Il doit être refroidi en permanence et maintenu à une température très basse (environ  $-196^\circ\text{C}$ ) au moyen d'azote liquide. Effectuer la mesure à basse température permet de diminuer le courant de fuite de la diode et le niveau de bruit électronique du détecteur et du préamplificateur. Le signal électrique fourni par le détecteur a une amplitude proportionnelle à l'énergie du photon laissée dans le détecteur.



**Figure III-1 :** Schéma du dispositif de spectrométrie  $\gamma$

La chaîne électronique associée permet de réaliser le traitement du signal. Elle se compose du préamplificateur, de l'amplificateur, du convertisseur analogique-numérique et de l'analyseur multi-canal. La fonction de ce dernier est d'additionner les impulsions (précédemment codées) de même amplitude dans un canal. On obtient ainsi un spectre qui représente le nombre de coups reçus en fonction de l'énergie. Enfin, un ordinateur et un logiciel, le « Genie 2000 », permettent de recueillir le spectre en temps réel.

Pour tous les pics, l'activité volumique de chaque radionucléide  $i$  présent dans l'échantillon est calculée à partir de la relation définie dans la norme suivante :

$$A_i = \frac{R_{n,i} \cdot f_{d,i}}{\varepsilon_i \cdot V} \quad (\text{III-1})$$

Où :

$R_{n,i}$  : est le taux de comptage net du pic du radioélément  $i$  (coups/s),

$\varepsilon_i$  : est l'efficacité du comptage pour le radioélément  $i$  à l'énergie  $E$ ,

$V$  : est le volume de l'échantillon,

$f_{d,i}$  : est le facteur de correction permettant de corriger la décroissance radioactive du radionucléide  $i$  entre le moment de l'échantillonnage et celui du mesurage. Il est défini comme suit :

$$f_{d,i} = e^{\lambda t} \left[ \frac{\lambda \cdot t_m}{1 - e^{-\lambda t_m}} \right] \quad \text{avec} \quad \lambda = \frac{\ln 2}{T_{1/2}} \quad (\text{III-2})$$

$T_{1/2}$  : est la période radioactive du radionucléide  $i$ ,

$t_m$  : est le temps réel de comptage,

$t$  : est le temps écoulé entre l'échantillonnage et la mesure.

Dans le logiciel d'exploitation Genie 2000, l'activité volumique est :

$$A_i = \frac{S}{\varepsilon_i \cdot I \cdot T_1 \cdot K_c \cdot K_w \cdot V} \quad (\text{III-3})$$

$S$  : est l'aire nette du pic,

$V$  : est le volume,

$\varepsilon_i$  : est l'efficacité de détection pour le radionucléide  $i$  à l'énergie  $E$ ,

$I$  : est le pourcentage d'embranchement,

$T_1$  : est temps actif de l'acquisition du pic,

$K_c$  : est le coefficient de correction de la décroissance de l'échantillon durant l'acquisition :

$$K_c = \frac{1 - e^{-\lambda t_m}}{\lambda \cdot t_m} \quad (\text{III-4})$$

$t_m$  : est le temps réel de comptage,

$K_w$  : est le facteur de correction de la décroissance du radionucléide entre l'échantillonnage et l'acquisition ( $K_w = e^{-\lambda t_w}$  avec  $t_w$ , temps écoulé entre l'échantillonnage et l'acquisition).

Après avoir préparé les solutions, nous avons compté leur activité à l'aide de la chaîne de spectrométrie  $\gamma$  décrite précédemment.

La préparation des échantillons consiste à diluer une sources de  $^{152}\text{Eu}$  dans un mélange d'acide  $\text{H}_2\text{SO}_4$  concentré et d'eau afin d'obtenir des solutions de densité variant de 1,15 à 1,84  $\text{g}/\text{cm}^3$ . Chaque échantillon est préparé dans des flacon de 50 ml dont les caractéristiques sont les suivants :  $R_{\text{cyl}} = 1,87$  cm, de hauteur  $H_{\text{cyl}} = 4,7$  cm et d'épaisseur  $e = 1$  mm. Les teneurs en  $\text{H}_2\text{SO}_4$  et en eau pour le mélange sont déterminées à partir de la relation empirique déduite [Nac02b] après l'ajustage des valeurs de pourcentage  $\text{H}_2\text{SO}_4$  ( $\eta\%$ ) et densité ( $\rho$ ) figurant dans le tableau [Lid01] pour  $\text{H}_2\text{SO}_4$ .

$$\eta (\%) = -102,35062 + 107,30534 \cdot \rho \quad (\text{III-5})$$

## II. Etalonnage en efficacité : ISOCS

Le groupe RaMsEs (Radioprotection et Mesures Environnementales) de l'Institut de Recherches Subatomiques de Strasbourg s'est équipé récemment d'une nouvelle chaîne numérique de spectrométrie  $\gamma$  : ISOCS (In Situ Object Counting System) produit de Canberra Eurisys. Il s'agit d'une chaîne de spectrométrie  $\gamma$  portable conçue pour identifier et quantifier sur site les radioéléments dans des objets de différentes tailles et formes par modélisation Monte Carlo. Elle comprend : un détecteur GeHP caractérisé, un cryostat et un ordinateur portables. Ce dernier est piloté également par le logiciel Genie-2000 pour l'acquisition et l'analyse des données et un code de simulation intégré spécifique pour l'étalonnage en efficacité des différentes formes géométriques d'échantillons. En principe cette méthode peut être appliquée à tous les semi détecteurs caractérisés par le constructeur (Coaxial, REGe, LEGe, XtRa ou BEGe). Elle peut simuler toutes les énergies entre 50 et 7000 keV à n'importe quel angle dans l'espace entourant le détecteur. Pour modéliser une situation donnée on choisit un modèle parmi ceux de la bibliothèque [Dav99]. On distingue neuf modèles standard pré-établis dans ISOCS (voir figure III-2).

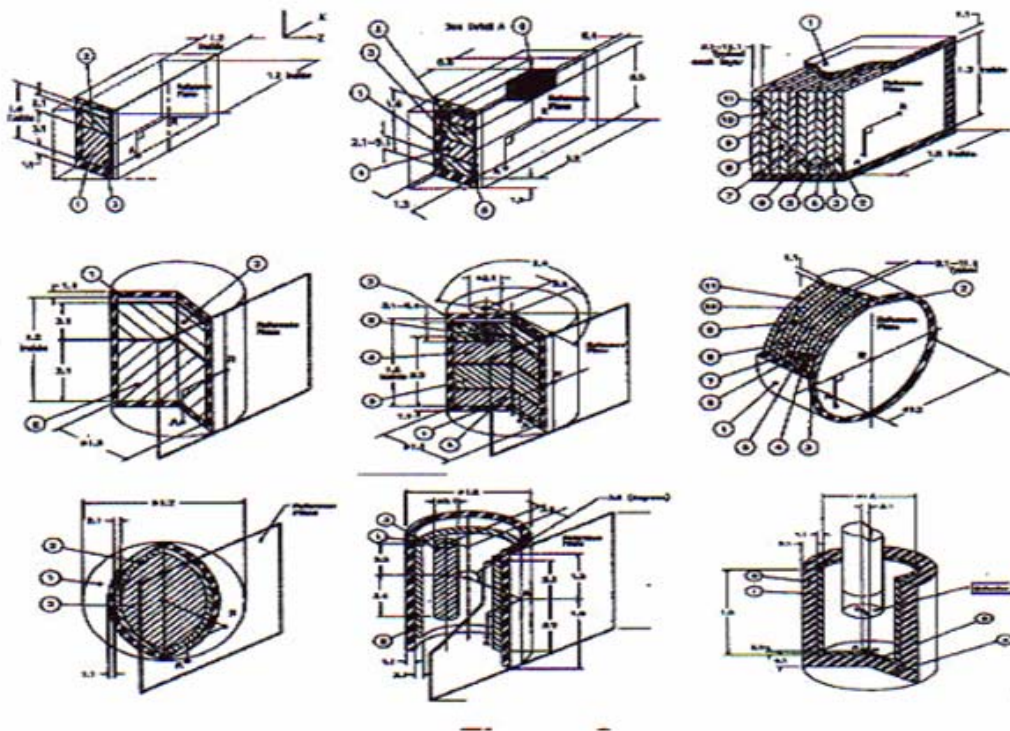


Figure III-2 : Modèles de géométries ISOCS

Chacun de ces modèles de base peut être utilisé pour créer plusieurs configurations réelles sur le terrain ou au laboratoire afin de quantifier l'activité d'un échantillon sans l'utilisation de standards. Après avoir choisi le modèle, on entre les paramètres physiques qui vont définir la géométrie de la source par rapport au détecteur. Ces paramètres comprennent les dimensions, la composition des matériaux et la densité. Enfin on définit la distance entre le détecteur et l'échantillon. Quelques autres dimensions doivent être définies lorsque l'échantillon ne se trouve pas dans l'axe en face du détecteur et lorsque le détecteur ne pointe pas directement au centre de l'objet. Lorsque toutes ces informations sont saisies, le logiciel génère la courbe d'efficacité qui peut être sauvegardée et utilisée pour les mesures environnementales.

### III. Résultats

La confrontation des résultats obtenus par simulation Monté carlo par MCNP, GEANT et ISOCS et par expérience s'est réalisée en deux étapes [Nac02c-Nac03b]: Comparaison des spectres et détermination des coefficients d'auto-absorption.

#### III.1. Comparaison des spectres

Nous avons comparé les résultats expérimentaux et ceux obtenus par la simulation, pour deux sources radioactives : une source mono énergétique  $^{137}\text{Cs}$  et une source multi- $\gamma$   $^{152}\text{Eu}$  (voir tableau II-2), chacune dans deux géométries différentes (50 ml et 500 ml). Les figures III-3 à III-4 montrent les schémas des nos dispositifs expérimentaux d'analyse. Ils consistent :

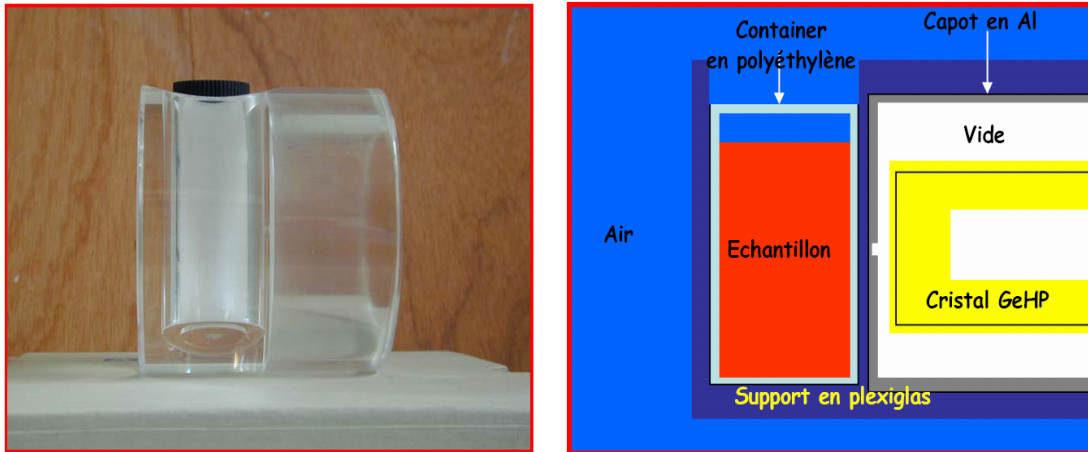
- d'un support en Plexiglas adapté pour la mise en place de l'échantillon,
- d'un échantillon soit de 50 soit de 500 ml,
- d'un détecteur GeHP coaxial entouré par un capot d'aluminium.

En tenant compte des rapports d'embranchement, le logiciel Genie 2000 permet la visualisation et l'analyse des raies de désexcitation gamma. Afin de confronter les résultats expérimentaux aux résultats simulés (figures III-5 à III-8), ces derniers ont été normalisés par rapport à l'activité moyenne de l'échantillon :

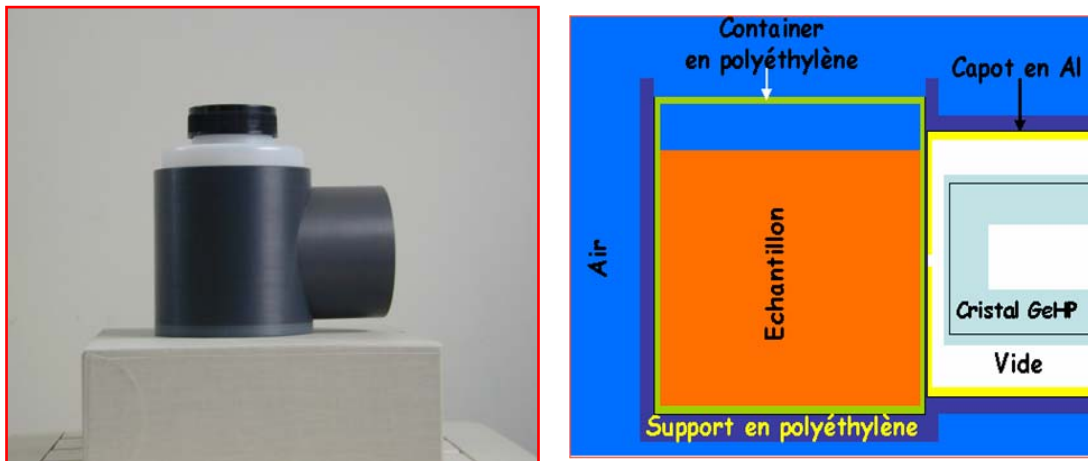
$$A = \varepsilon.t.A_V.V \quad (\text{III-5})$$

A : aire du pic ;  $\varepsilon$  : efficacité ; t : temps de comptage ;  $A_V$  : activité volumique ; V : volume.

Afin de mieux visualiser la comparaison, les spectres expérimentaux ont été décalé de 10 keV à droite. Comme on peut le constater sur les quatre spectres (figures III-5 à 8), la simulation à l'aide du code MCNP et l'expérience présente une très bonne concordance. On peut donc conclure que la simulation tient compte correctement de chaque paramètre entrant dans le calcul, notamment la densité et la composition.



**Figure III-3:** Géométrie réelle et simulée par MCNP pour les flacons de 50 ml



**Figure III-4 :** Géométrie réelle et simulée par MCNP pour les flacons de 500 ml



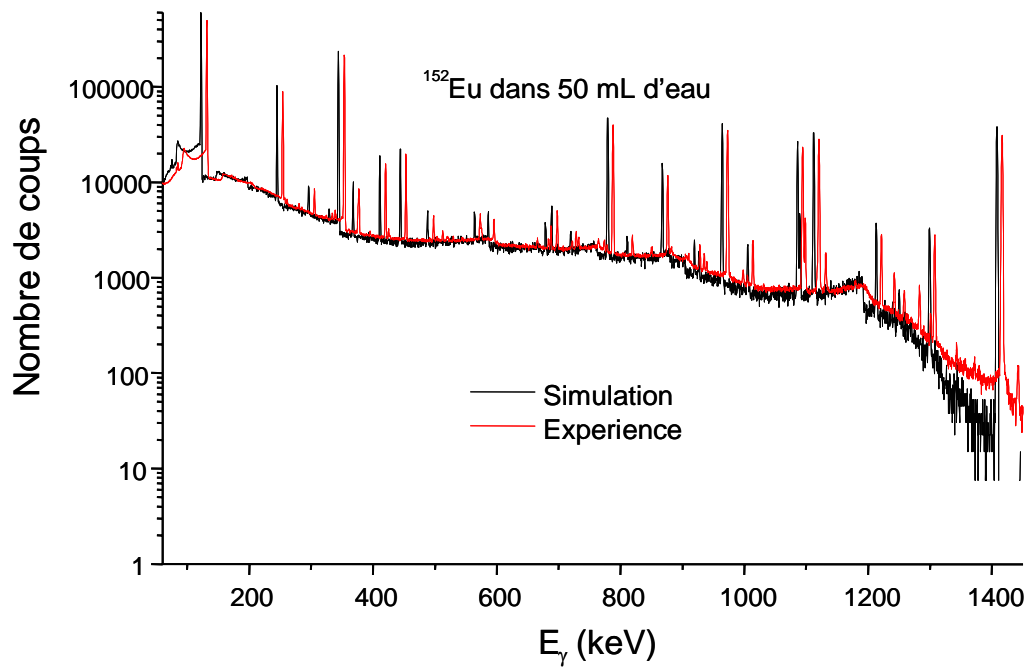


Figure III-5 : Comparaison des spectres obtenus avec MCNP et l'expérience

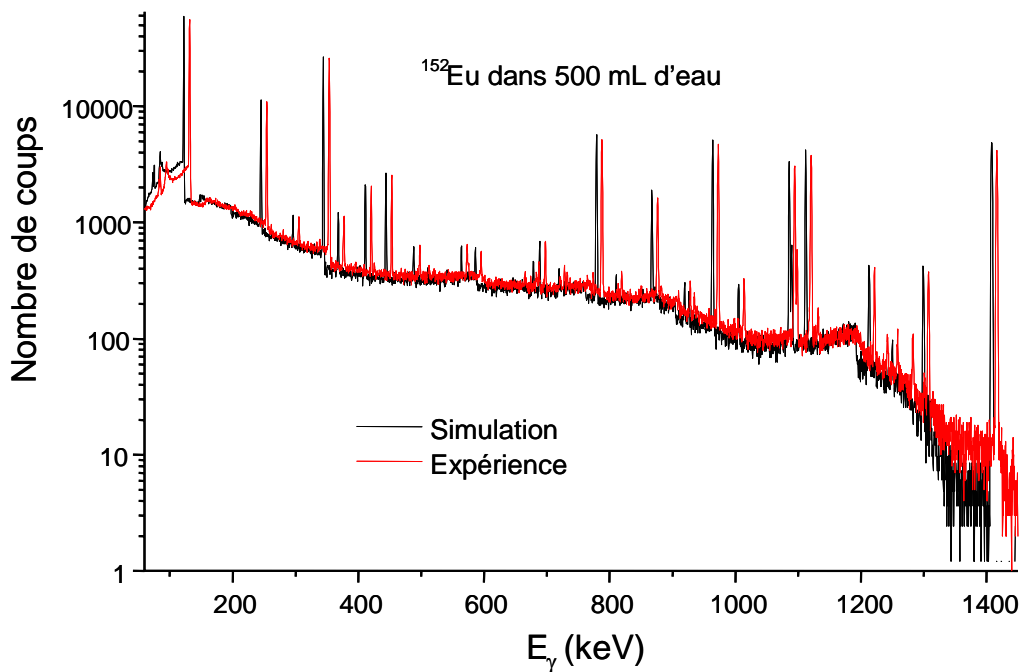


Figure III-6 : Comparaison des spectres obtenus avec MCNP et l'expérience

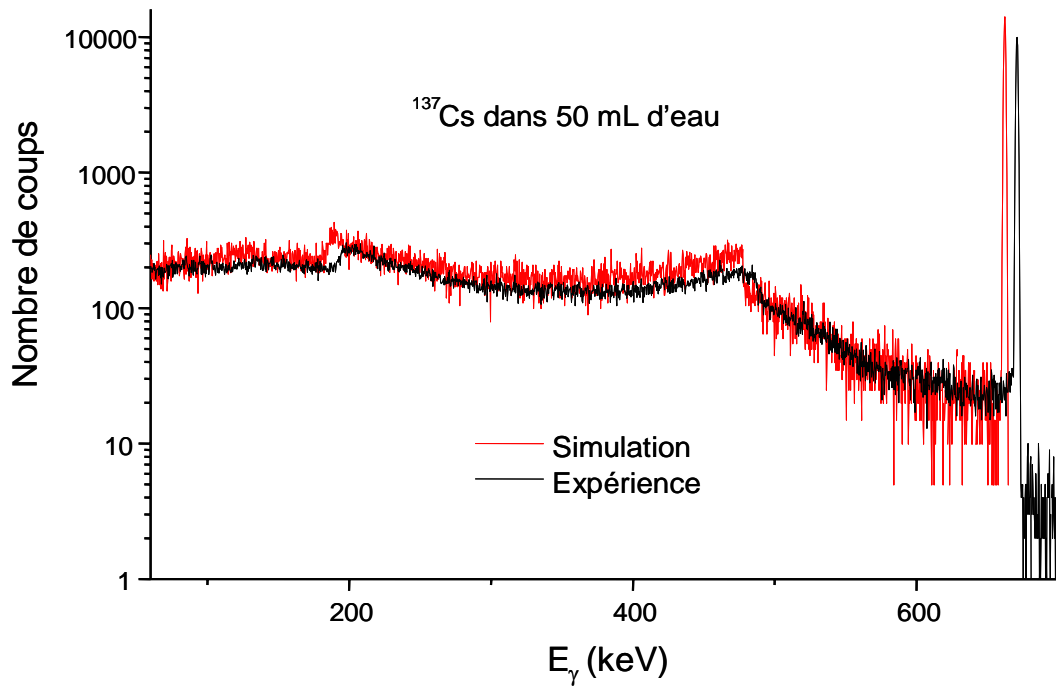


Figure III-7 : Comparaison des spectres obtenus avec MCNP et l'expérience

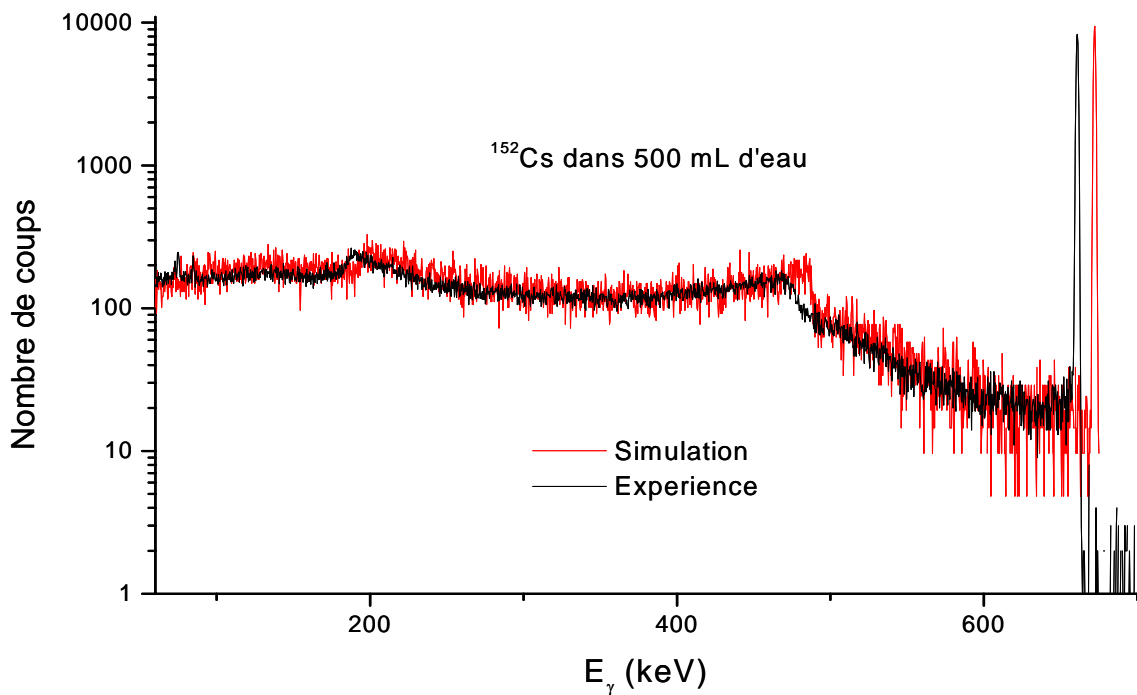


Figure III-8 : Comparaison des spectres obtenus avec MCNP et l'expérience

### III.2. Efficacité de détection

Dans un spectre  $\gamma$ , les photons de même énergie donnent lieu à un pic d'absorption totale. Celui-ci s'avère être la donnée la plus nécessaire pour caractériser une émission radiative ; son abscisse représente l'énergie des photons, sa surface, proportionnelle au taux d'émission photonique, permet de connaître l'intensité relative ou absolue de la raie  $\gamma$ , ou bien l'activité du radionucléide émetteur. Aussi, pour l'analyse quantitative de l'émission du rayonnement  $\gamma$ , le paramètre principal à prendre compte est l'efficacité absolue d'absorption totale, définie par le rapport :

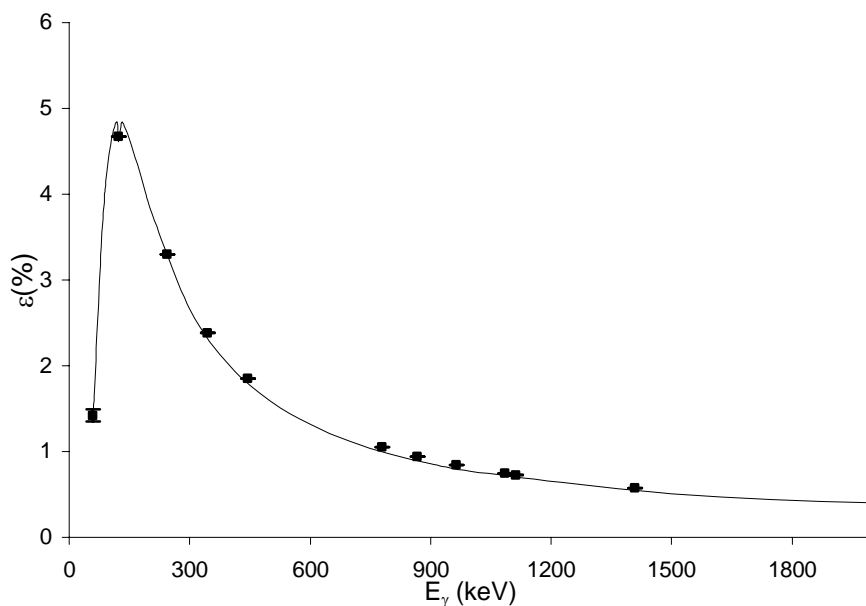
$$\varepsilon(E) = \frac{N_{\text{détectés}}(E)}{N_{\text{émis}}(E)} \quad (\text{III-6})$$

Avec :

$N_{\text{détectés}}(E)$  : nombre de photons détectés,

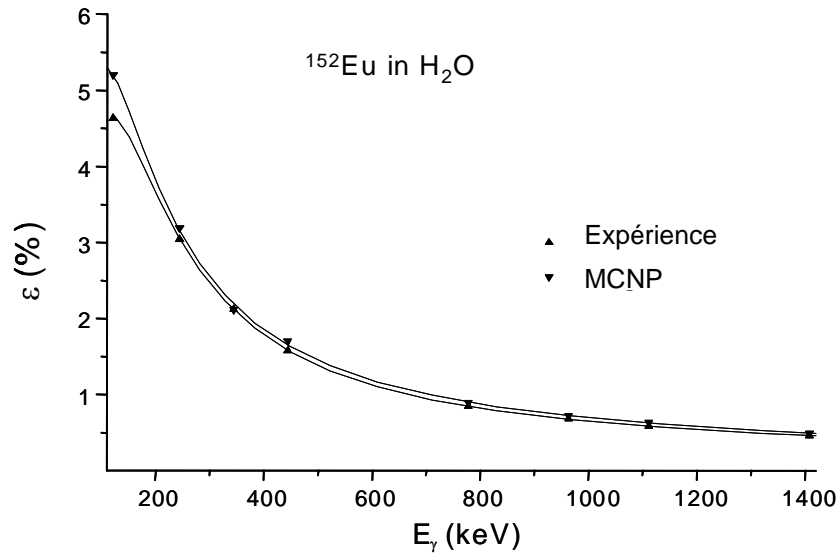
$N_{\text{émis}}(E)$  : nombre de photons émis par la source.

Pour la calibration en efficacité de notre détecteur, un standard multi-énergétique a été analysé dans les mêmes conditions expérimentales que les échantillons. Ce standard est un mélange de différentes sources radioactives formant une gamme d'énergie de 59,54 à 1836 keV des différents radioéléments suivant : ( $^{60}\text{Co}$ ,  $^{88}\text{Y}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{152}\text{Eu}$  et  $^{241}\text{Am}$ ). La courbe d'efficacité expérimentale caractérisant notre détecteur en fonction de l'énergie  $E_\gamma$  est représentée sur la figure III-9 pour une géométrie de 50 ml.

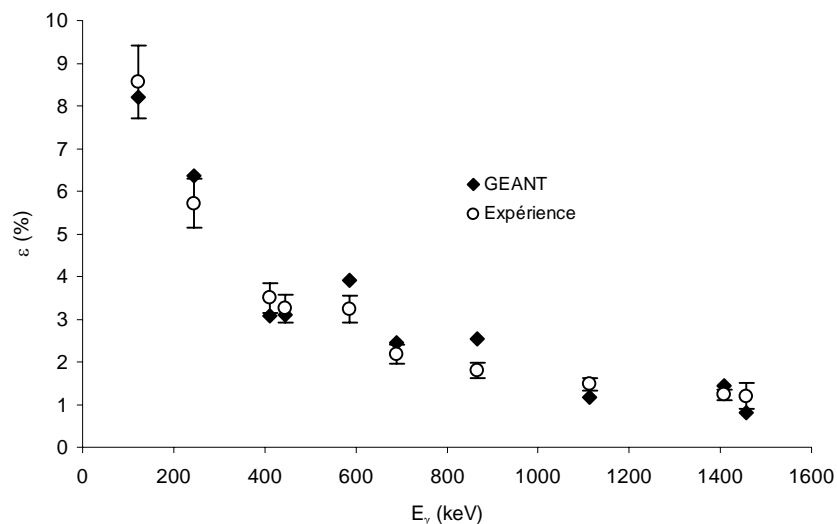


**Figure III-9 :** Efficacité du détecteur INTER en fonction en géométrie de 50 ml

Après avoir constaté une bonne concordance entre les spectres simulés et les spectres expérimentaux, on a procédé à la modélisation de l'efficacité de détection de notre système d'analyse pour des solutions d'acide sulfurique de différentes densités. La figure III-10 montre un exemple de comparaison pour un échantillon d'eau (standard) qui contient une activité connue de  $^{152}\text{Eu}$  à l'aide du détecteur (INTER).



**Figure III-10 :** Efficacité de détection simulée et mesurée pour un échantillon d'eau dopé à  $^{152}\text{Eu}$  déterminée à partir des spectres de figure III-3 (géométrie 50 ml)(INTER)

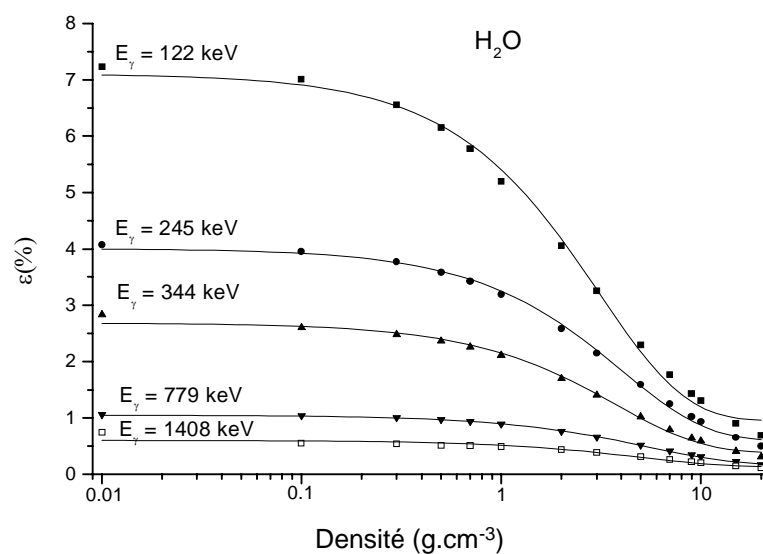


**Figure III-11 :** Efficacité de détection simulée et mesurée pour un échantillon  $\text{HNO}_3$  (géométrie 50 ml) à l'aide du code GEANT (BeGe)

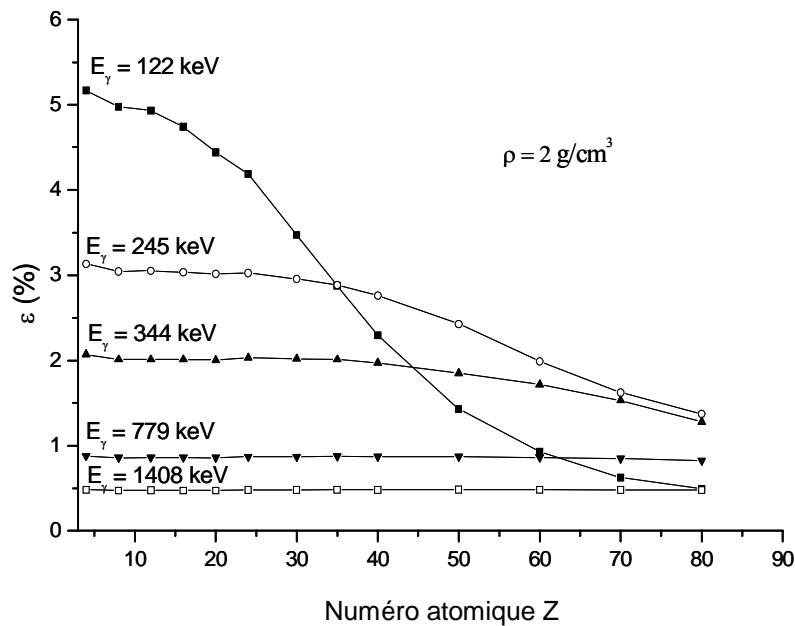
La figure III-10 montre un bon accord entre l'efficacité simulée et celle mesurée, mis à part un petit écart à l'énergie 122 keV. Cela peut être expliqué par le fait que le code de simulation MCNP utilisé ne tient pas compte du phénomène de pic somme qui peut devenir discernable pour des rayonnements  $\gamma$  dans une cascade. La figure III-11 présente aussi un accord moyennement bon entre l'efficacité simulée par le code GEANT et celle mesurée pour un échantillon de  $\text{HNO}_3$  contenant de  $^{152}\text{Eu}$  à l'aide du détecteur (BeGe). Par la suite nous utiliserons le code MCNP au lieu du code GEANT car ce dernier est mieux adapté pour les photons de haute énergie que de basse énergie ce qui est notre cas.

### III.3. Influence de la densité et de la composition sur l'efficacité

Pour évaluer l'effet de la densité d'un échantillon sur l'efficacité de détection, une étude de simulation a été réalisée en prenant l'eau comme milieu de composition constante et de densités fictives allant de 0,01 jusqu'à 20  $\text{g}/\text{cm}^3$  (figure III-12). On constate que l'influence de la densité est plus importante pour les faibles énergies. De la même façon l'effet de la composition de l'échantillon sur l'efficacité a été mis en évidence. La figure III-13 montre la variation de l'efficacité en fonction du nombre atomique  $Z$  de l'échantillon pour une densité constante de 2  $\text{g}/\text{cm}^3$ . En comparant les variations présentées sur les figures III-12 et III-13, nous pouvons conclure que les deux paramètres influents sur l'efficacité de détection, mais que l'effet de la densité est plus important pour les rayons- $\gamma$  que la composition habituellement rencontrée dans les échantillons environnementaux.



**Figure III-12 :** Variation de l'efficacité de détection en fonction de la densité pour un échantillon de composition constante



**Figure III-13 :** Variation de l'efficacité de détection en fonction du nombre atomique Z pour une densité constante de 2 g/cm<sup>3</sup>

### III.4. Evaluation du coefficient d'auto-absorption

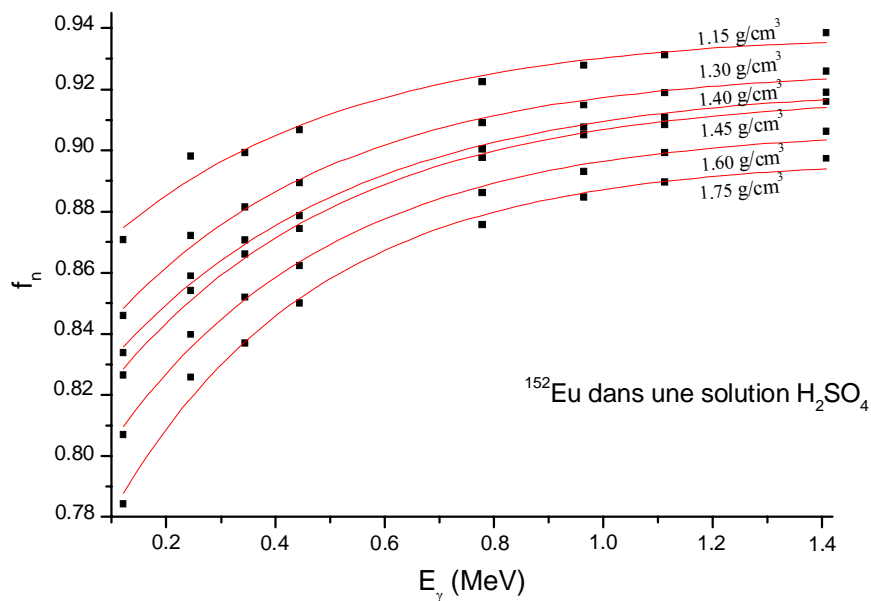
A présent nous allons déterminer ce coefficient d'auto-absorption à l'aide de la simulation par le code MCNP. Il a été calculé à partir du rapport de l'efficacité simulée de l'échantillon  $\epsilon_{\text{éch}}$  sur celle du standard (l'eau) simulée  $\epsilon_{\text{std}}$  (Eq. III-7). Cette normalisation  $f_{\text{norm}}$  élimine tout problème de géométrie intervenant.

$$f_{\text{norm}} = \frac{\epsilon_{\text{éch}}}{\epsilon_{\text{std}}} \quad (\text{III-7})$$

$\epsilon_{\text{éch}}$  : l'efficacité mesurée ou simulée d'un échantillon donné en fonction de l'énergie gamma,  
 $\epsilon_{\text{std}}$  : l'efficacité mesurée ou simulée de l'étalon, dans notre cas nous avons pris l'eau comme étalon. Ces  $f_{\text{norm}}$ , qui deviennent des facteurs de correction améliorant la justesse des résultats sont donnés dans le tableau ci-après :

| Densité \ $E_\gamma$ (keV) | 1,15  | 1,30  | 1,40  | 1,45  | 1,60  | 1,75  |
|----------------------------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|
| 122                        | 0,871 | 0,846 | 0,834 | 0,826 | 0,807 | 0,784 |
| 245                        | 0,898 | 0,872 | 0,859 | 0,854 | 0,840 | 0,826 |
| 344                        | 0,899 | 0,881 | 0,871 | 0,866 | 0,852 | 0,837 |
| 444                        | 0,907 | 0,889 | 0,879 | 0,874 | 0,862 | 0,850 |
| 779                        | 0,922 | 0,909 | 0,900 | 0,897 | 0,886 | 0,876 |
| 964                        | 0,928 | 0,915 | 0,907 | 0,905 | 0,893 | 0,885 |
| 1112                       | 0,931 | 0,919 | 0,911 | 0,908 | 0,899 | 0,889 |
| 1408                       | 0,939 | 0,926 | 0,919 | 0,916 | 0,906 | 0,897 |

**Tableau III-1 :** Coefficients d'auto-absorption en fonction de la densité de l'échantillon et de l'énergie des rayonnements gamma de  $^{152}\text{Eu}$



**Figure III-14 :** Variation du coefficient d'auto-absorption simulé par MCNP en fonction de  $E_\gamma$  et de la densité  $\rho$  (résultats du tableau III-1)

Après un lissage, la variation du coefficient d'auto-absorption peut être décrite par une fonction de la forme:

$$f_{\text{norm}} = Ae^{-B\rho} \quad (\text{III-8})$$

On peut paramétrer ce facteur on fonction de  $E_\gamma$  et de la densité de l'échantillon  $\rho$ . Les coefficients A et B sont rapportés dans tableau III-2 en fonction de  $E_\gamma$ .

| Energie (keV) | A             | B             |
|---------------|---------------|---------------|
| 122           | 1,197 ± 0,030 | 0,202 ± 0,017 |
| 245           | 1,151 ± 0,018 | 0,155 ± 0,010 |
| 344           | 1,130 ± 0,013 | 0,137 ± 0,007 |
| 444           | 1,116 ± 0,016 | 0,120 ± 0,010 |
| 779           | 1,093 ± 0,017 | 0,097 ± 0,010 |
| 964           | 1,084 ± 0,014 | 0,087 ± 0,010 |
| 1112          | 1,078 ± 0,004 | 0,080 ± 0,003 |
| 1408          | 1,075 ± 0,011 | 0,073 ± 0,007 |

**Tableau III-2 :** Coefficients A et B en fonction de  $E_\gamma$

L'ajustage des coefficients du tableau III-2 par une fonction de la forme:

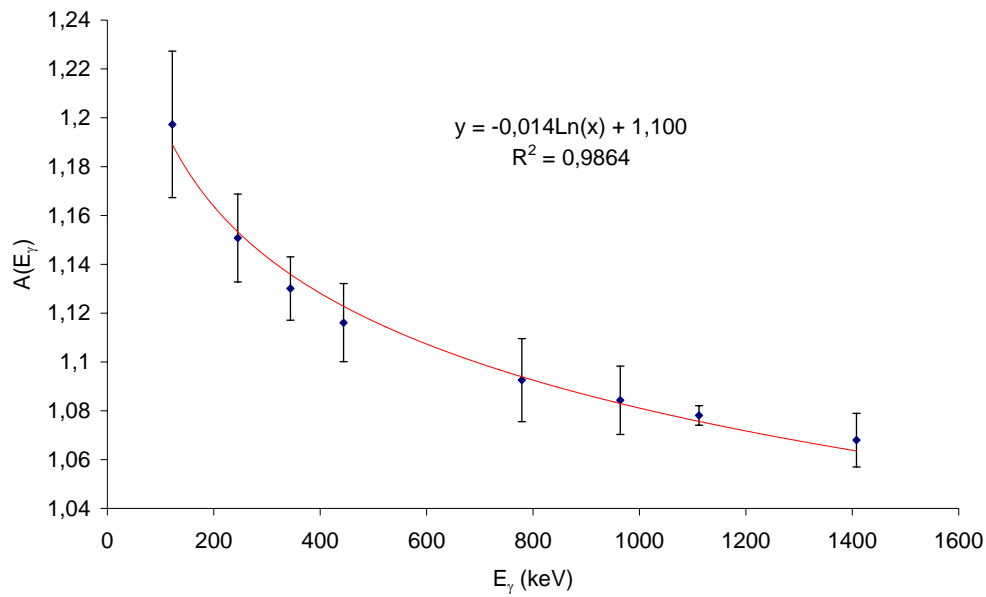
$$A(\text{ou } B) = a.\ln E + b$$

permet d'évaluer les paramètres a et b pour chaque coefficient d'auto-absorption. Les valeurs de a et b sont présentées dans le tableau III-3.

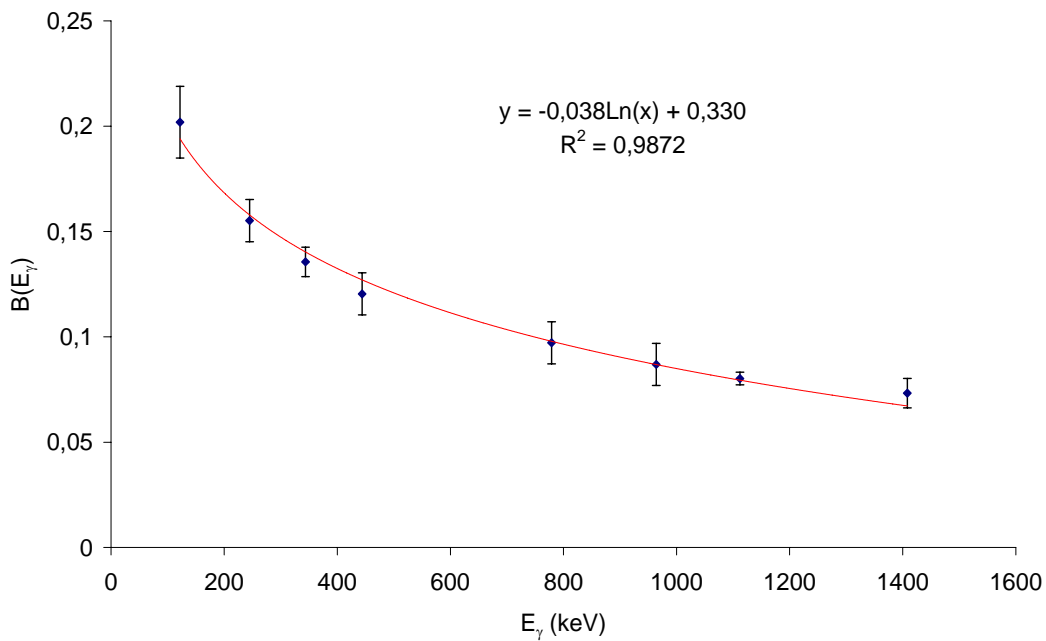
|   | A      | B      |
|---|--------|--------|
| a | -0,014 | -0,038 |
| b | 1,100  | 0,330  |

**Tableau III-3 :** Paramètres a et b associés à chaque coefficient A et B «  $A(\text{ou } B) = a.\ln E + b$  »





**Figure III-15 :** Ajustage des valeurs de  $A$  en fonction de  $E_\gamma$

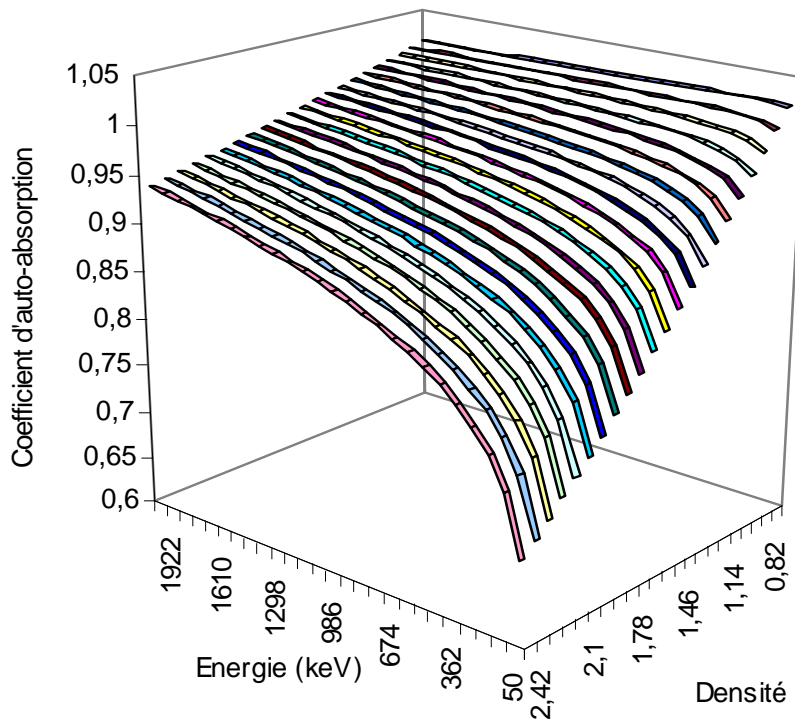


**Figure III-16 :** Ajustage de fit des valeurs de  $B$  en fonction de  $E_\gamma$

Dans ces conditions  $f_{\text{norm}}$  s'écrit sous la forme suivante :

$$f_{\text{norm}} = (1,100 - 0,014 \times \ln E_\gamma) e^{-(0,330 - 0,038 \times \ln E_\gamma) \rho} \quad (\text{III-9})$$

Dans la figure III-17 est représentée en 3D la variation du coefficient d'auto-absorption en fonction de l'énergie  $E_g$  et en fonction de la densité de l'échantillon.

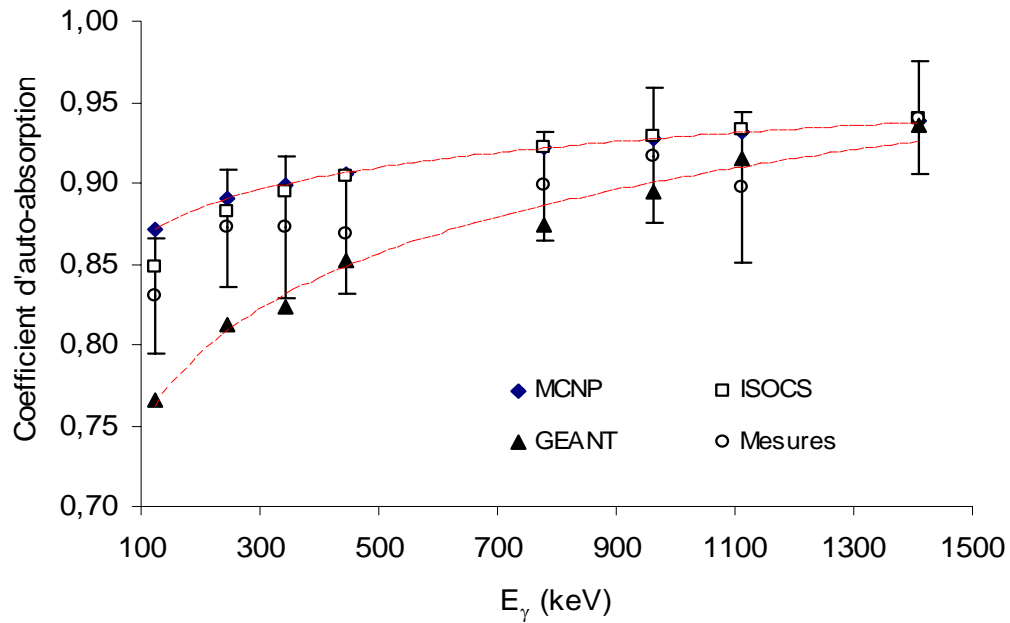


**Figure III-17 :** Représentation à 3D de la variation du coefficient d'auto-absorption en fonction de l'énergie  $\gamma$  et de la densité de l'échantillon

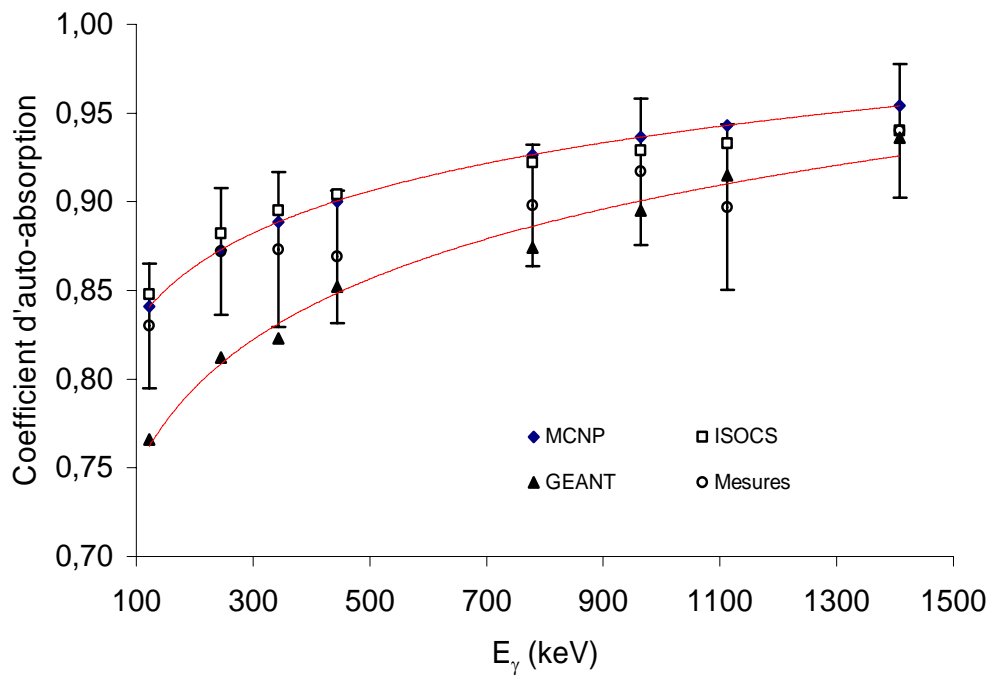
Les résultats de la simulation MCNP ont été comparés avec ceux obtenus par les codes ISOCS, GEANT et les résultats expérimentaux. Les figures (III-18 et III-19) montrent cette comparaison.

Les trois modes de simulation (GEANT, ISOCS et MCNP) présentent une bonne concordance avec les mesures surtout pour les codes MCNP et ISOCS. L'écart obtenu dans les figures III-18 et III-19 entre les résultats du code GEANT et les autres codes peut être expliqué par le fait que ce code GEANT a été développé pour les rayonnements  $\gamma$  de haute énergie. On constate que lorsque l'énergie augmente cet écart diminue.

Dans cette étude, il a été montré que les trois codes de modélisation par la méthode Monte Carlo sont bien fiables pour la simulation du transport des photons. La caractérisation précise du système de détection, la nature de la source, et les interactions  $\gamma$ -matière, nous ont permis d'évaluer le coefficient d'auto-absorption pour corriger et améliorer les analyses quantitatives des échantillons denses par spectrométrie  $\gamma$ . Pour une première application, nous avons dosé la concentration  $^{238}\text{U}$  dans les phosphates marocains en tenant compte de l'auto-absorption  $\gamma$ .



**Figure III-18:** Coefficients d'auto-absorption obtenus avec les codes MCNP, ISOCS, GEANT et mesurés pour un échantillon de  $H_2SO_4$  de densité 1,15



**Figure III-19 :** Coefficients d'auto-absorption obtenus avec les codes MCNP, ISOCS, GEANT et mesurés pour un échantillon de  $H_2SO_4$  de densité 1,4

## IV. Dosage de l'uranium dans les phosphates

### IV.1. Généralités sur les phosphates Marocains

Les phosphates naturels comprennent plus de 200 espèces minéralogiques, mais les plus répandus appartiennent à la famille de l'apatite. Les minéraux phosphatés des dépôts sédimentaires sont voisins de la fluorapatite  $\text{Ca}_{10}(\text{PO}_4)_6\text{F}_2$  [Bil02], de densité est  $3,27 \text{ g/cm}^{-3}$ , qui peut subir différentes substitutions isomorphismes partielles.

Le Maroc, troisième producteur mondial après les USA et l'ex-URSS mais premier exportateur de phosphates, détient 70% des réserves mondiales. Ces phosphates présentent en général des teneurs en Uranium variant entre 100 et 200 ppm selon les gisements.

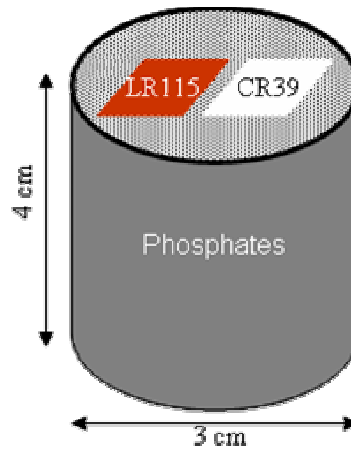
Afin de valider nos calculs de simulation, dans cette partie de thèse, une étude comparative de deux méthodes de dosimétrie, a été réalisée utilisant notamment la spectrométrie  $\gamma$  et les DSTN (LR115 et CR39), appliquée sur des échantillons prélevés des régions Sidi Chennane et Sidi Daoui près de Khouribga à 120 km de Casablanca [Azk99a].

### IV.2. Dosimétrie alpha par contact autoradiographique

Pour le dosage de l'uranium (émetteur alpha) dans des échantillons de phosphates, nous avons eu recours à la technique de contact autoradiographique basée sur l'utilisation des Détecteurs Solides de Traces Nucléaires (DSTN). Cette technique consiste à placer les détecteurs (LR115 et CR39) en contact direct avec l'échantillon. Elle repose sur la connaissance du pouvoir d'arrêt des particules alpha dans l'échantillon étudié et de l'efficacité de détection du détecteur [Azk99b].

En effet pour mesurer les concentrations de  $^{238}\text{U}$  dans les échantillons de phosphates, des films ( $1,5 \times 1,5 \text{ cm}^2$ ) ont été irradiés fermés dans des flacons en polyéthylène (figure III-20).

Après un mois d'irradiation, un développement chimique a été fait adapté à chacun des détecteurs comme il est signalé au premier chapitre. La lecture a été réalisée à l'aide d'un système automatique constitué d'une caméra CCD liée à un microscope, d'une table (X,Y,Z) pilotée par un logiciel (voir figure I-9).



**Figure III-20 :** Dispositif expérimental de dosage de l'uranium dans les phosphates par contact autoradiographique

Après l'intégration numérique de  $\varepsilon(\theta_c, E_\alpha)$ , l'équation I-25 devient respectivement pour le LR115 [Pap98] et pour le CR39 [Bou00] :

$$D_{LR} = A_U (0,350 a_1 + 1,961 a_2) \quad (\text{III-10})$$

$$D_{CR} = A_U (0,904 a_1 + 5,578 a_2) \quad (\text{III-11})$$

Où:

$D_{LR}$  et  $D_{CR}$  : Densités de traces enregistrées respectivement dans LR115 et CR39 exprimées en nombre de traces par  $m^2.s$ ,

$A_U$  : Activité de l'échantillon exprimée en  $Bq/m^3$ .

Les coefficients  $a_0$  et  $a_1$  sont déterminés à partir de la relation énergie-parcours ( $E_\alpha, R_\alpha$ ) pour les échantillons de phosphates analysés (voir tableau ci-dessous).

|           | $a_1$                 | $a_2$                 |
|-----------|-----------------------|-----------------------|
| Phosphate | $1,364 \cdot 10^{-7}$ | $1,269 \cdot 10^{-7}$ |

**Tableau III-4 :** Coefficients  $a_0$  et  $a_1$  déterminés à partir des parcours des particules  $\alpha$  dans le phosphate fournis par le logiciel SRIM

### IV.3. Analyse par spectrométrie gamma

Différents échantillons de phosphate ont été analysés en utilisant les flacons de polyéthylène de 50 cm<sup>3</sup> et la chaîne de spectrométrie  $\gamma$  au GeHP (INTER) décrite au paragraphe (III-1), ainsi nous avons déterminé l'activité en Bq/kg à partir de chaque raie gamma d'intérêt par le logiciel Génie 2000. Afin d'affranchir des problèmes liés au déséquilibre radioactif, les teneurs en uranium <sup>238</sup>U sont calculées à partir de la raie 63 keV du <sup>234</sup>Th. Les résultats ont été corrigés en tenant compte du phénomène d'auto-absorption pour cette raie, en prenant la densité apparente du phosphate égale à 1,40 g/cm<sup>3</sup>. Le coefficient d'auto-absorption correspondant à cette raie est de l'ordre de 0,818 ce qui amène à corriger les résultats ultérieurs d'analyses par spectrométrie gamma des phosphates d'environ 20 %.

Le tableau III-5 regroupe les valeurs des activités spécifiques de l'uranium de deux échantillons de phosphates obtenues par les deux méthodes d'analyse par contact radiographique (DSTN) et par spectrométrie gamma corrigées par les effets de matrices dûs à la self absorption [Nac03a]. On constate que les activités trouvées par les diverses techniques de quantification sont en bon accord entre elles.

Afin d'avoir une idée sur l'effet de la granulométrie, le tableau III-6 représente les résultats obtenus pour différentes granulométries (80 et 400  $\mu$ m) d'un type d'échantillon de phosphate. Etant donné que les phosphates marocains sont de nature sédimentaire, l'analyse de l'ensemble de ces résultats ne permet pas d'affirmer ou d'infirmer l'effet de la granulométrie sur l'activité brute de l'échantillon. Ceci nécessite une étude statistique plus complète sur l'échantillonnage, le site géographique et la couche stratigraphique de prélèvement.

|               | DSTN           | Spectrométrie gamma |                               |
|---------------|----------------|---------------------|-------------------------------|
|               |                | Brut                | corrigé par $f_{\text{norm}}$ |
| Phosphate 1*  | 3388 $\pm$ 197 | 2815 $\pm$ 182      | 3378 $\pm$ 218                |
| Phosphate 2** | 4860 $\pm$ 456 | 3811 $\pm$ 323      | 4573 $\pm$ 388                |

**Tableau III-5 :** Activités spécifiques de <sup>238</sup>U en Bq/kg obtenues par dosimétrie alpha par DSTN (LR115, CR39) et par spectrométrie  $\gamma$  pour deux échantillons de phosphate :

\* Sidi Chennane, \*\*Sidi Daoui de la région de Khouribga (Maroc)

| Granulométrie ( $\mu\text{m}$ ) | DSTN           | Spectrométrie gamma |                               |
|---------------------------------|----------------|---------------------|-------------------------------|
|                                 |                | Brut                | Corrigé par $f_{\text{norm}}$ |
| 80-100                          | 4534 $\pm$ 338 | 3611 $\pm$ 303      | 4333 $\pm$ 364                |
| 100-125                         | 4899 $\pm$ 381 | 3754 $\pm$ 346      | 4505 $\pm$ 415                |
| 125-160                         | 5106 $\pm$ 468 | 3911 $\pm$ 338      | 4687 $\pm$ 406                |
| 160-200                         | 5250 $\pm$ 530 | 3753 $\pm$ 356      | 4503 $\pm$ 427                |
| 200-250                         | 5186 $\pm$ 471 | 3862 $\pm$ 372      | 4634 $\pm$ 446                |
| 250-315                         | 5075 $\pm$ 551 | 3732 $\pm$ 329      | 4478 $\pm$ 395                |
| 315-400                         | 4973 $\pm$ 485 | 3949 $\pm$ 340      | 4739 $\pm$ 408                |
| (Brute, Tableau III-5)          | 4860 $\pm$ 456 | 3811 $\pm$ 323      | 4573 $\pm$ 388                |

**Tableau III-6:** Activités spécifiques  $A_U$  de  $^{238}\text{U}$  en Bq/kg obtenues par DSTN (LR115, CR39) et par analyse spectrométrie gamma des échantillons de phosphate de différentes tailles de grain

## V. Conclusion

Il est aujourd'hui souhaitable de simplifier la procédure d'étalonnage qui s'avère fastidieuse dès lors qu'on a plusieurs géométries de mesure et plusieurs détecteurs. De plus cette procédure doit être reproduite tous les 2 ans, ce qui, en plus du coût en temps et financier, crée une accumulation de déchets radioactifs, d'où l'intérêt de la simulation Monte Carlo.

Dans cette partie de thèse, il a été démontré que les codes de modélisation Monte Carlo sont bien fiables pour la simulation du transport des rayonnements électromagnétiques. Cependant avec le code MCNP on a réussi à reproduire d'une manière plus réaliste les spectres mesurés de deux différentes sources  $^{137}\text{Cs}$  et  $^{152}\text{Eu}$ . La caractérisation précise du système de détection, la nature de la source, et les types d'interactions  $\gamma$ -matière, nous ont

permis d'évaluer le coefficient d'auto-absorption pour corriger les analyses quantitatives des échantillons denses analysés par spectrométrie gamma.

Il ressort de cette étude que la correction de self-absorption peut atteindre la valeur de 30 % si on utilise des raies d'énergie inférieure ou égale à 100 keV pour des échantillons de densité voisine de 2 à titre d'exemple.



## **Chapitre IV**

# **Méthodes de Mesure du Radon & Applications des Capteurs à Pixels**



La mesure du radon et de ses descendants dans l'environnement est devenue depuis quelques années une mission importante pour les laboratoires d'analyses et de mesures de la radioactivité environnementale. On estime que ce gaz est la source principale d'exposition radiologique naturelle pour l'homme. La connaissance de la concentration de ce gaz rare est essentielle pour l'évaluation du risque encouru par la population et pour la mise en œuvre des protections nécessaires afin de limiter la dose reçue.

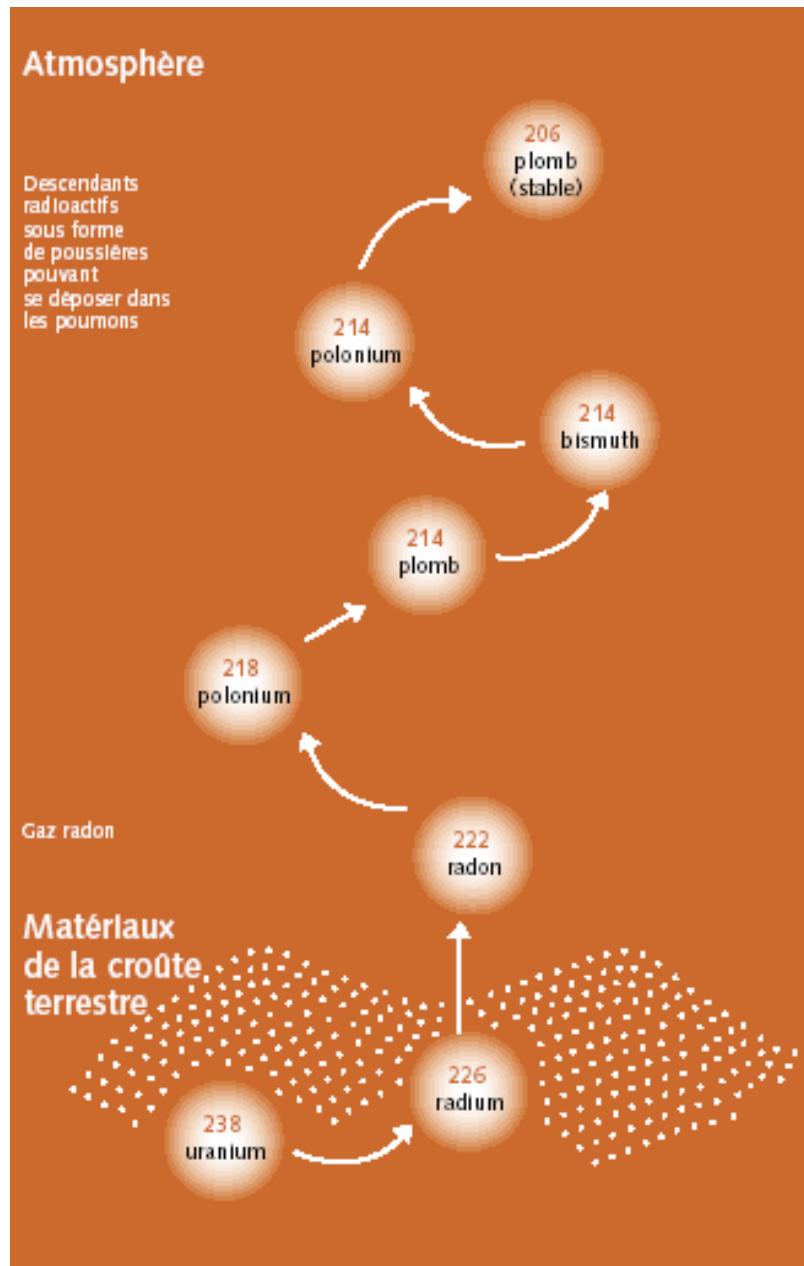
Les radioéléments lourds terrestres naturels appartiennent à l'une des trois familles radioactives naturelles : famille de l'uranium-radon, famille du thorium-thoron et la famille d'uranium-actinon (voir annexes II). Dans chacune de ces familles existe un radioélément gazeux, isotope du radon, dont la mesure est un indice du niveau de la radioactivité naturelle. Dans les trois grandes familles radioactives naturelles précitées, les trois éléments pères  $^{238}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$  et  $^{234}\text{Th}$  possèdent la période la plus longue de la chaîne engendrent différentes désintégrations radioactives, des descendants jusqu'à l'apparition d'un élément stable. Les différents radioéléments formés sont des solides à l'exception des isotopes gazeux du radon.

## I. Formation et propriétés du radon

Le radon a été découvert par Friedrich Ernst Dorn (Allemagne) en 1900. Étymologie du nom: vient de radium. Le radon a également été appelé nitens, ce qui signifie brillant. Inodore, incolore, insipide et radioactif, le radon est un gaz rare inerte, qui provient de la désintégration du radium. Il existe sous forme de trois isotopes  $^{222}\text{Rn}$  (radon,  $T = 3,8 \text{ j}$ ),  $^{220}\text{Rn}$  (thoron,  $T = 55 \text{ s}$ ),  $^{219}\text{Rn}$  (actinon,  $T = 3,9 \text{ s}$ ). Les éléments radioactifs du sol, présents en proportions variables dans la plupart des roches sont notamment  $^{238}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$  et  $^{232}\text{Th}$ . Ces éléments sont instables et se désintègrent progressivement jusqu'à l'élément stable Pb. En se désintégrant, ces éléments donnent naissance à des descendants eux-mêmes radioactifs comme le radium et le gaz radon (figure IV-1).

La formation du  $^{222}\text{Rn}$  dans un endroit donné se déroule en deux étapes. Dans un premier temps, le radon, formé par désintégration alpha du radium présent dans les particules du sol, est libéré par ces particules, gagne l'espace des pores du réseau cristallin, en effet, lors de cette désintégration sur l'action de l'énergie libérée, l'atome du radon subit un recul de longueur  $d$  dans le réseau. Plusieurs cas, schématisés dans la figure IV-2, peuvent alors se présenter [Tan80].

Dans un deuxième temps, les atomes du radon migrent à travers l'espace des pores jusqu'à ce qu'ils atteignent l'atmosphère ou jusqu'à ce qu'ils se désintègrent.



**Figure IV-1:** Mécanisme de décroissance du radon et descendants

La proportion d'atomes de radon qui parviennent jusqu'à l'air extérieur est finalement plus faible que celle des atomes de  $^{222}\text{Rn}$  se désintègrent avant d'avoir atteint les interfaces sol-air. Cela se traduit par un coefficient d'émanation qui peut varier d'un matériau à l'autre. Cette proportion du radon atteignant l'atmosphère libre dépend de la distance entre le lieu de formation et l'interface sol-air. Seul le radon produit à une certaine profondeur du sol arrivera

effectivement jusqu'à l'air libre. Cette distance est appelée longueur de diffusion. Le taux d'émanation d'un sol donné s'écrit [Fil87].

$$E = \lambda_{Rn} RC_s \rho L_{Rn} \quad (IV-1)$$

$E$  ( $Bq\ cm^{-2}\cdot s^{-1}$ ) : taux d'émanation surfacique,

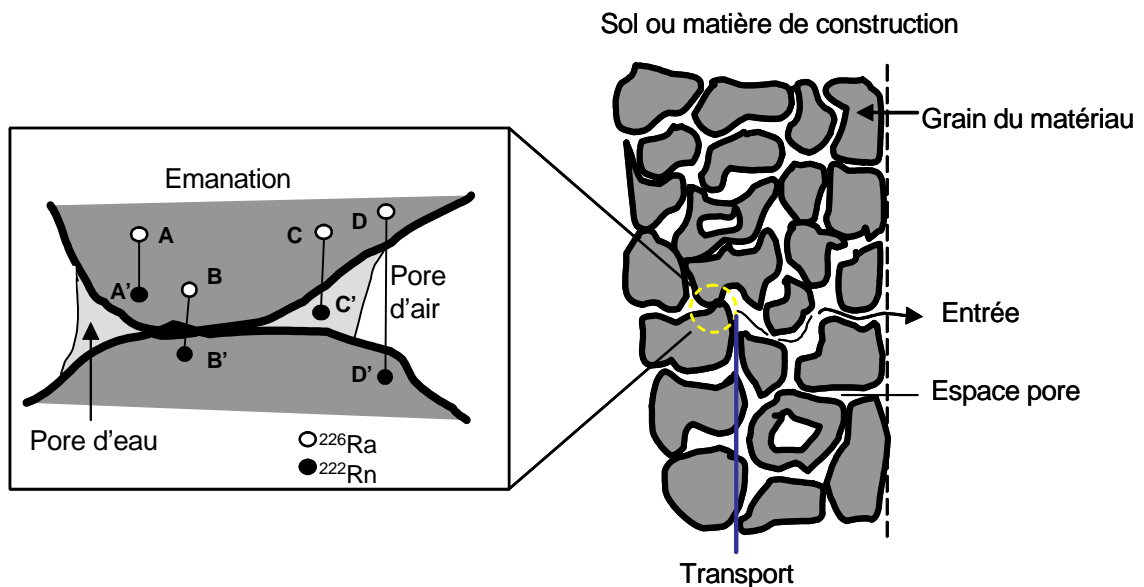
$\lambda_{Rn}$  : constante de décroissance du  $^{222}Rn$ ,

$R$  : coefficient d'émanation,

$\rho$  : densité du milieu,

$C_s$  : l'activité spécifique du milieu en  $^{226}Ra$ ,

$L_{Rn}$  : la longueur de diffusion du  $^{222}Rn$ .



**Figure IV-2 :** Mécanisme de formation du radon dans un réseau cristallin : en A, l'atome de  $^{226}Ra$  se trouve à une distance très grande pour que l'atome de  $^{222}Rn$  reste dans grain ; en B et D, l'atome de  $^{222}Rn$  s'échappe du premier grain pour être piégé dans le grain voisin ; en C l'atome du  $^{222}Rn$  parvient à atteindre l'espace des pores

## II. Diffusion et transport du Radon

Les principaux mécanismes de migration du radon dans un milieu poreux et perméable sont la diffusion et le transport. Généralement, la diffusion est le mécanisme dominant dans les canaux intergranulaire, les capillaires et les petits pores; par contre, dans les larges pores, le transport devient dominant. L'équation générale de transport du radon à une dimension à travers un milieu est donnée par Fick [Bar94] :

$$D \frac{\partial^2 C}{\partial x^2} - \frac{\partial C}{\partial t} - \lambda C + \frac{G\rho}{\varepsilon} = 0 \quad (\text{IV-2})$$

C : concentration interstitielle du radon en  $\text{Bq.cm}^{-3}$ ,

D : coefficient de diffusion en  $\text{m}^2.\text{s}^{-1}$ ,

$\varepsilon$  : porosité du milieu,

$\rho$  : densité du milieu,

G : le taux d'émanation pour une activité donnée du Ra,

$\lambda$  : constante de désintégration,

x : profondeur par rapport à la surface du sol en m.

Dans le cas de la diffusion, le gaz radon se meut à l'intérieur du fluide (liquide ou gaz) qui occupe les pores et les fractures des roches sous l'effet d'un gradient de concentration. Ce mécanisme de transport du radon par un fluide est donné par la loi de Fick [Amg02].

$$J = -D\varepsilon \frac{\partial C}{\partial x} \quad (\text{IV-3})$$

J : flux du radon en  $\text{n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$ .

Seule la proportion des atomes de radon produits à une certaine profondeur est appelée longueur de diffusion définie par :

$$L = \sqrt{\frac{D}{\lambda}} \quad (\text{IV-4})$$

Le tableau ci-dessous regroupe les valeurs de L [Zet84] pour les isotopes du radon dans l'eau et dans l'air pour différents coefficients de diffusions D :

| D ( $\text{m}^2.\text{s}^{-1}$ ) | $^{222}\text{Rn}$ | $^{220}\text{Rn}$ | $^{219}\text{Rn}$     |
|----------------------------------|-------------------|-------------------|-----------------------|
| $10^{-9}$                        | 2,2 cm            | 2,82 mm           | $7,5 \cdot 10^{-2}$ m |
| $1.02 \cdot 10^{-5}$             | 2,2 m             | 2,85 cm           | 7,5 mm                |

**Tableau IV-1:** Longueur de diffusion des isotopes du radon dans l'eau et dans l'air

L'ensemble de ces résultats montre que l'émanation des atomes de radon dans l'atmosphère par diffusion n'est possible que pour des sources affleurantes (profondeurs inférieure à 2 m). D'autre part, si l'humidité dans l'espace poreux augmente le pouvoir d'émanation radon, la diffusion vers l'atmosphère s'en trouve réduite.

Il ressort que l'émanation dans l'atmosphère des atomes de radon émis d'une source profonde doit suivre d'autres mécanismes que celui de la seule diffusion.

Lors du phénomène de transport, le fluide traverse lui-même les pores en transportant le radon, ce mécanisme est régi par la loi de Darcy.

$$V = -K \frac{\partial P}{\partial x} \quad (\text{IV-5})$$

V : vitesse de la circulation des fluides,

K : perméabilité du milieu,

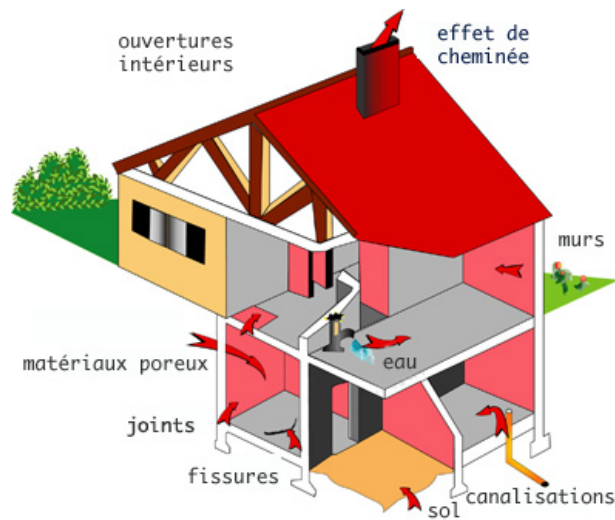
P : pression des gaz interstitiels.

Grâce à la combinaison de ces propriétés physiques et chimiques, le radon constitue un traceur efficace qui peut être utilisé dans différents domaines de la science de la terre, nous citons par exemple :

- localisation des accidents structuraux masqués par des déformations superficielles,
- localisation des gisements d'uranium,
- prévision des événements géologiques dans les domaines de la volcanologie et de la sismologie.

### III. Risque sanitaire du radon

Généralement, le gaz radon diffuse dans l'air à partir du sol ou de l'eau où il peut être dissous. A l'air libre, sa concentration est faible : il est dilué par les vents. Mais dans l'atmosphère plus confinée d'un bâtiment (figure IV-3), il peut s'accumuler et atteindre des concentrations élevées. Les pouvoirs publics ont entériné le seuil d'alerte de 1000 Bq/m<sup>3</sup>, recommandé par la Communauté européenne et pris en compte dans l'avis du Conseil supérieur d'hygiène publique de France. Ils ont retenu en outre comme objectif de précaution le seuil de 400 Bq/m<sup>3</sup>, valeur incitative pour les bâtiments existants. Les matériaux de construction constituent la deuxième source de radon. Mais elle ne dépasse généralement pas quelques dizaines de Bq/m<sup>3</sup> alors que le sol de l'habitation peut être la source de concentrations de radon de quelques centaines de Bq/m<sup>3</sup>. La concentration de radon que nous respirons est généralement très faible : moins de 10 Bq/m<sup>3</sup> en moyenne.



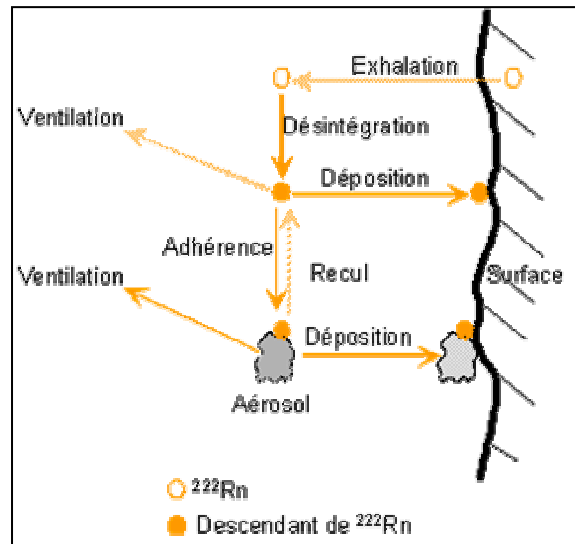
**Figure IV-3 :** Schéma de pénétration du radon dans l'habitat

La concentration en radon varie fortement d'une région à l'autre, d'une maison à l'autre en fonction de la nature géologique du sous-sol. Elle varie aussi en fonction du moment de la journée, des saisons, des conditions météorologiques. Dans l'habitation, plus on s'éloigne de la cave, plus la concentration diminue.

Les produits de filiation du radon sont des particules solides. La plupart des produits de filiation du radon se fixent sur des particules de poussière infimes (aérosols) contenues dans l'air intérieur figure IV-4. Une fraction variable reste libre. Lorsque les produits de filiation du radon sont inhalés, une fraction des particules fixées et des particules libres se dépose dans les poumons. À l'intérieur des poumons, les produits de filiation du radon émettent des particules alpha qui sont absorbées dans les tissus pulmonaires avoisinants. Comme les particules alpha ne peuvent pas pénétrer à plus d'une fraction de millimètre dans le tissu, le dommage est confiné au tissu pulmonaire de la zone située à proximité immédiate.

Les produits de filiation du radon émettent aussi des particules bêta et des rayons gamma de faible intensité qui pénètrent plus profondément dans les tissus pulmonaires. Comme les particules bêta et les rayons gamma sont absorbés dans un grand volume du poumon (c.-à-d. non concentrés dans une petite zone), leur effet nocif est présumé minime.





**Figure IV-4 :** Les processus de base influençant l'équilibre d'activité d'intérieur de  $^{222}\text{Rn}$  et  $^{220}\text{Rn}$  progéniture [Knu88]

Les personnes exposées à des concentrations élevées de radon présentent un risque accru d'être atteintes de cancer du poumon. Le degré de risque dépend de la teneur en radon de l'air et de la durée de l'exposition. En 1987, l'Organisation Mondiale de la Santé a reconnu le radon comme cancérigène pulmonaire. Trois seuils de toxicité ont été retenus après avis du Conseil Supérieur d'Hygiène Publique :

- **au dessous de 400 Bq/m<sup>3</sup>**, la situation ne justifie pas d'actions particulières
- **entre 400 et 1000 Bq/m<sup>3</sup>**, il est souhaitable d'entreprendre des actions correctrices simples.
- **au delà de 1000 Bq/m<sup>3</sup>**, des actions correctrices doivent être impérativement conduites.

## IV. Energie Alpha Potentielle

Nous avons vu (figure IV-1) que, lorsqu'il est dégagé dans l'atmosphère, le radon se désintègre dans l'air en donnant successivement des atomes de  $^{218}\text{Po}$ ,  $^{214}\text{Pb}$ ,  $^{214}\text{Bi}$  et  $^{214}\text{Po}$  sous forme de particules microscopiques. Le descendant suivant, le  $^{210}\text{Pb}$  de période beaucoup plus longue (22 ans) ne s'y trouve qu'en concentration d'activité négligeable. Ces quatre descendants peuvent être inhalés. Du fait de sa très courte période (16 ms), le  $^{214}\text{Po}$  ne parvient pas directement dans les poumons alors que les trois autres vont s'y fixer et s'y désintégrer jusqu'au  $^{210}\text{Pb}$ .

Un atome de  $^{218}\text{Po}$  émet une particule alpha de 6 MeV, le  $^{214}\text{Pb}$  formé conduit au  $^{214}\text{Bi}$ , puis au  $^{214}\text{Po}$  pour aboutir au  $^{210}\text{Pb}$  par désintégration alpha d'énergie 7,69 MeV. La somme de ces deux énergies, 13,69 MeV est l'Energie Alpha Potentielle (EAP) de l'atome de  $^{218}\text{Po}$ . L'EAP de chaque atome de  $^{214}\text{Pb}$  est de  $^{214}\text{Bi}$  inhalé n'est que de 7,69 MeV (voir tableau IV-2).

| Descendant du $^{222}\text{Rn}$     | Période (min)         | $E_{\alpha}$ (MeV) | EAP (MeV.Bq $^{-1}$ ) |
|-------------------------------------|-----------------------|--------------------|-----------------------|
| $^{218}\text{Po}$                   | 3,05                  | 13,69              | 3 620                 |
| $^{214}\text{Pb}$                   | 26,8                  | 7,69               | 17 800                |
| $^{214}\text{Bi}$                   | 19,9                  | 7,69               | 13 100                |
| $^{218}\text{Po}$                   | $2,75 \times 10^{-6}$ | 7,69               | $2 \times 10^{-3}$    |
| Total à l'équilibre par Bq de radon |                       |                    | 34 520                |

**Tableau IV-2 :** Energie Alpha Potentielle des descendants à vie courte du  $^{222}\text{Rn}$

L'Energie Alpha Potentiel volumique pondérée par le nombre de chaque descendant est donnée par l'expression suivante :

$$EAP_v = 13,69N(^{218}\text{Po}) + 7,69N(^{214}\text{Pb}) + N(^{214}\text{Bi}) \quad (\text{IV-6})$$

$N(^{218}\text{Po})$ ,  $N(^{214}\text{Pb})$  et  $N(^{214}\text{Bi})$  désignent respectivement les nombres d'atomes par mètre cube de isotopes  $^{218}\text{Po}$ ,  $^{214}\text{Pb}$  et  $^{214}\text{Bi}$ .

## V. Principes de réduction du radon

Pour diminuer les teneurs en radon dans un bâtiment, une première solution consiste à empêcher celui-ci d'entrer en étanchéifiant le sol du bâtiment. Ceci implique d'obturer et de colmater toutes les voies de passage : les fissures, les espaces autour des tuyaux, mais aussi les matériaux poreux et les sols de terre battue. Il est possible de placer sous ou sur la dalle en béton, des membranes étanches en polyéthylène ou en vinyle dont l'étanchéité doit être

assurée sur l'ensemble de l'assise de la maison. Ce petit dispositif permettra de faire obstacle au radon en provenance du sous-sol.

Comme si les matériaux de construction constituent une source notable de radon, il est recommandé d'appliquer des peintures étanches permettant de réduire les émissions. L'étanchéité n'est souvent pas suffisante, surtout pour des niveaux de radon élevés, mais elle est généralement nécessaire pour conférer aux autres techniques toute leur efficacité.

On peut également "diluer" les concentrations de radon par des apports d'air extérieur, nettement moins chargé en radon que l'air confiné d'un bâtiment, où le radon issu du sol se concentre. Par exemple, l'aération naturelle peut être très efficace, mais difficile à maintenir pour des raisons de température ou de sécurité. Une première étape peut consister à créer des ouvertures sur au moins deux côtés au niveau du sous-sol ou le vide sanitaire du bâtiment. Dans les pièces d'habitation il importe de vérifier la présence et l'ouverture correcte des grilles d'aération.

Dans les cas plus graves, la mise en place d'un système de ventilation performant, associé à une isolation du bâtiment, permet de réduire à un niveau acceptable le taux de radon. La ventilation mécanique permet de mieux maîtriser le taux de renouvellement d'air et les déperditions thermiques. Il faut veiller à ne pas utiliser d'extracteur d'air qui pourraient accroître le problème en accentuant la dépression de l'habitat : il faut souffler l'air extérieur vers l'intérieur. La ventilation peut être réglée afin de mettre l'habitat en légère surpression. Des systèmes double flux, avec récupération de chaleur sont légèrement plus onéreux à l'achat mais limitent ensuite l'incidence sur les dépenses de chauffage.

Une autre solution consiste à drainer le radon présent dans le sol vers l'extérieur de l'habitation : il s'agit de creuser un puisard sous les fondations et de le relier à un tuyau équipé d'un ventilateur qui va permettre d'extraire l'air chargé de radon et de le rejeter à l'extérieur, au niveau du toit. Ce dispositif est souvent présenté comme le plus efficace pour les niveaux de radon les plus élevés. Il agit doublement en retirant le radon avant qu'il ne s'infilte et en créant une zone de dépression, ce qui stoppe la remontée du gaz vers les pièces intérieures.

## **VI. Techniques de mesure du radon**

Dans la littérature, plusieurs méthodes actives et passives ont été développées pour mesurer les concentrations volumiques du radon et de ses descendants : détecteurs à semi-conducteur (GeLi, Si), détecteurs solides de traces nucléaires (DSTN), photostimulables,

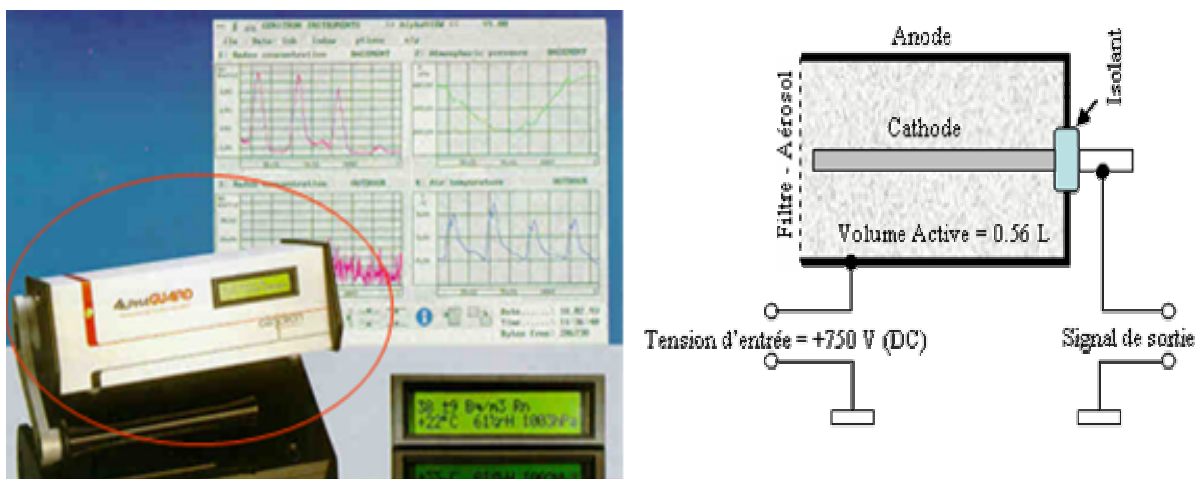
chambres d'ionisation, fioles scintillantes,... Dans cette étude nous avons utilisé deux techniques :

- Méthode passive : DSTN (LR115 et CR39) et chambre d'ionisation à téflon (Electret)
- Méthode active : chambre d'ionisation impulsionnelle (AlphaGUARD), et capteurs à pixels actifs (CMOS).

Le principe physique de fonctionnement des DSTN est déjà donné au chapitre I, dans la suite nous présenterons sommairement le principe de fonctionnement des différentes chambres d'ionisation mises en œuvre et des capteurs CMOS.

### VI.1. Chambre à ionisation impulsionnelle

Les détecteurs actifs sont des dispositifs capables de mesurer en temps réel l'activité volumique du radon dans l'environnement. Ces détecteurs fonctionnent le plus souvent avec une circulation forcée de l'air. Pour cette étude, nous avons utilisé, le système AlphaGUARD [Alp98]. Il s'agit d'une chambre d'ionisation impulsionnelle portable permettant de mesurer en continu l'activité volumique du radon dans l'air tout en enregistrant simultanément les différents paramètres métrologiques tels que la pression, l'humidité et la température du lieu de mesure en fonction du temps de comptage (voir figure IV-5) .



**Figure IV-5 :** Principe de fonctionnement de la chambre d'ionisation AlphaGUARD

La capacité de la chambre est de 0,56 L et elle fonctionne sous une alimentation de 750 V. En mode de fonctionnement classique, le gaz étudié pénètre à l'intérieur de la chambre d'ionisation via un large filtre en fibre de verre.

Chaque désintégration est alors convertie en une impulsion de courant analysée par trois types de filtres :

- passe-bas : permet de mesurer le courant de référence,
- passe-bande : permet de mesurer la racine carrée de bruit de fond,
- passe-haut : permet de faire une analyse de la forme de l'impulsion et de son maximum, et de l'éliminer si elle ne correspond pas à une forme d'impulsion due au radon, mémorisée dans l'appareil.

Les caractéristiques techniques de cet appareil sont :

- protection en cas d'exposition à des activités trop importantes (jusqu'à 2 MBq.m<sup>-3</sup>),
- capacité de stockage de 4 mois de mesures continues,
- erreur de linéarité inférieure à 3 %.

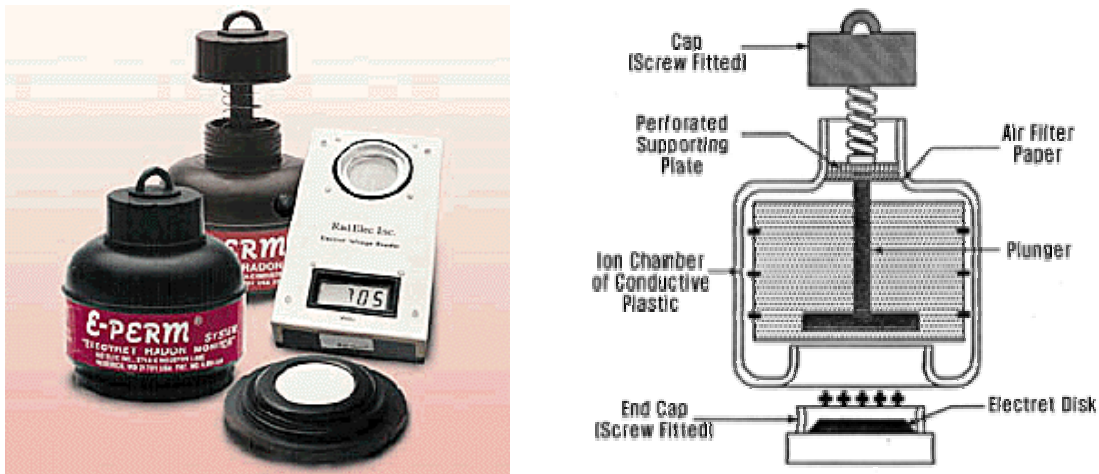
Le dispositif est doté, en outre, d'un système de contrôle interne du bon fonctionnement et de la qualité des mesures.

## VI.2. Chambre d'ionisation à Téflon

La chambre d'ionisation à Téflon ou électret est un système de détection passif pour la mesure intégrée de la concentration de radon dans l'air. Ce système se compose (figure IV-6) d'un disque en Téflon chargé positivement (l'électret), d'une chambre en plastique sur laquelle se visse l'électret et qui joue ainsi le rôle de chambre d'ionisation, d'un lecteur permettant de déterminer la charge de l'électret utilisé et d'un logiciel d'exploitation qui permet de déterminer l'activité volumique du radon dans l'air en se basant sur la différence de tension avant et après exposition.

La chambre est équipée d'un filtre ne laissant passer que le gaz radon et non les descendants solides présents dans l'air ambiant. Tant que la chambre reste fermée, l'électret conserve sa charge initiale mais lorsque qu'elle est ouverte, le radon diffuse à l'intérieur en passant par le filtre et les particules alpha émises lors de sa désintégration ionisent les molécules d'air. Les ions positifs se fixent alors sur les parois de la chambre tandis que les charges négatives sont attirées vers le disque en Téflon où elles se recombinent avec les charges positives initialement présentes diminuant ainsi la charge de l'électret. Cette dernière

est alors mesurée après l'exposition à l'aide d'un lecteur spécifique. La « décharge » de l'électret est proportionnelle au temps d'exposition du détecteur et à la concentration en radon dans la zone analysée, ce qui permet de déterminer l'activité volumique en radon gaz de cet endroit.



**Figure IV-6 :** Principe de la chambre d'ionisation à Electret

Il est à noter que le rayonnement gamma ambiant peut aussi entraîner l'ionisation de l'air à l'intérieur de la chambre et par conséquent décharger l'électret. Il faut donc retrancher la contribution de ce rayonnement en le mesurant directement sur place ou en utilisant une valeur moyenne.

Deux étapes sont nécessaires pour convertir la décharge de l'électret et le temps d'exposition en concentration volumique en radon [Ele95]. Tout d'abord, le coefficient de calibration (CF) doit être déterminé à l'aide de l'équation (IV-6).

$$CF = \frac{V}{\left(\frac{\text{pCi}}{L} \times \text{jour}\right)} = A + B \times \frac{(V_I - V_F)}{2} \quad (\text{IV-7})$$

Où le facteur  $\frac{(V_I - V_F)}{2}$  est la moyenne des tensions initiales et finales, aussi appelé « point de tension moyenne ».

A et B sont des constantes inhérentes à l'électret utilisé.

La deuxième étape consiste à utiliser le résultat obtenu en (IV-7) pour déterminer l'activité volumique en radon.

$$A_{Rn} = \frac{(V_I - V_F)}{CF \times t} - B_\gamma \quad (IV-8)$$

$A_{Rn}$  : activité volumique en radon exprimée en pCi.L<sup>-1</sup>,

$t$  : durée d'exposition exprimée en jours,

$B_\gamma$  : bruit de fond dû au rayonnement gamma.

### VI.3. Capteurs à pixels actifs

Les développements réalisés à l'IREs (Institut de Recherches Subatomiques) et au LEPSI (Laboratoire de Physique d'Electronique et des Systèmes Instrumentaux) de Strasbourg ces dernières années offrent une ouverture prometteuse en matière de dosimétrie des rayonnements alpha basée sur la technologie CMOS (Complementary Metal Oxyde Semi-conductor). Utilisés jusqu'à aujourd'hui pour la fabrication de caméras miniaturisées, ces capteurs CMOS sont depuis quelques années utilisés en physique des hautes énergies pour la détection de particules proches du minimum d'ionisation.

C'est au cours de l'année 2001 qu'est apparue une perspective de diversification pour appliquer les propriétés de ces capteurs CMOS à la détection quantitative de particules alpha, problématique en plein essor (radon dans les habitations) ainsi qu'au comptage des neutrons auprès de sources variées (cœur de centrales, laboratoires de stockage, sites cyclotrons en milieu hospitalier, ...).

L'objectif principal de ce programme de recherche développé conjointement par le groupe de Radioprotection et Mesures Environnementales (RaMsEs) de l'IREs et le LEPSI est de concevoir et de réaliser un premier prototype de dosimètre électronique portatif à base de capteur CMOS pour les mesures en continue de l'activité volumique du radon dans l'environnement atmosphérique

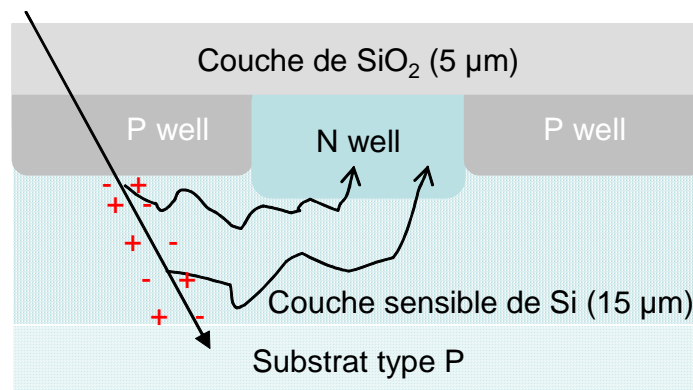
#### VI.3.1. Principe de fonctionnement du capteur CMOS à pixels

Le détecteur utilisé dans notre étude, est un capteur CMOS de type MIMOSA (Minimum Ionizing MOS Active pixel) initialement dédié à la détection de vertex dans les expériences de physique des particules auprès des grands collisionneurs comme la future machine TESLA. Développé à l'origine comme un détecteur de position pour des particules chargées relativistes au minimum d'ionisation, la caractéristique la plus originale du capteur MIMOSA est sa technologie de fabrication. En effet, celui-ci se compose d'une couche protectrice à base de SiO<sub>2</sub> et d'une couche épitaxiale de silicium pur de 15 μm d'épaisseur, le

tout déposé sur un substrat de type P habituellement fortement dopé (voir figure IV-7). La faible épaisseur de la partie sensible du capteur lui confère une transparence aux rayonnements gamma.

La détection du signal des capteurs CMOS repose sur le principe suivant : on crée sous la surface du silicium de grande pureté une région appauvrie en porteurs libres. Le rayonnement incident apporte dans cette zone l'énergie suffisante pour permettre le passage d'un électron dans sa bande de conduction  $E_G = 1,12$  eV pour le silicium (voir tableau I-1). La paire électron-trou ainsi créée est alors séparée et collectée par diffusion pure sur plusieurs micros de distance (contrairement aux anciens systèmes à micro pistes, il n'y a pas de champs électrique fort).

La collection efficace de la charge libérée par une particule traversant le détecteur peut être atteinte en utilisant, comme volume actif, la couche épitaxiale disponible dans de nombreux processus de fabrication des circuits intégrés CMOS.



**Figure IV-7:** Principe de détection d'un capteur CMOS à pixels

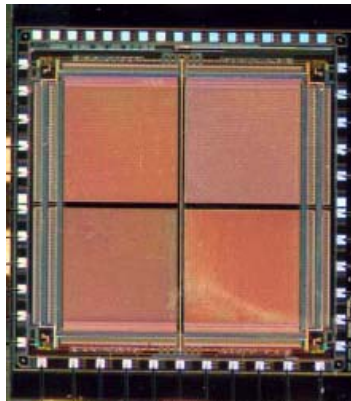
La structure de détection se compose de deux éléments [Dep02] : un puits profond de type N qui joue le rôle d'élément collecteur de la charge (c'est une diode n-well/p-epi) et un puits de type P utilisé comme substrat pour l'électronique de lecture de chaque pixel. Les deux puits sont implantés dans la couche épitaxiale qui est de type P, comme le substrat. Des barrières de potentiel réfléchives pour les électrons existent entre le puits P et le substrat profond, fortement dopé. Les électrons libérés lors de l'ionisation sont confinés dans la couche épitaxiale et diffusent vers les diodes n-well/p-epi où ils sont collectés. Ils génèrent un signal électrique sur le pixel proche du point de passage de la particule. La charge libérée dans le substrat est, en majeure partie, perdue suite aux recombinaisons rapides dues au dopage



élevé. La quantité totale des charges contribuant au signal est proportionnelle à l'épaisseur de la couche épitaxiale.

Le capteur MIMOSA (figure IV-8) est composé de quatre plages contenant chacune 4096 pixels arrangés en matrices de 64 lignes par 64 colonnes. Chaque pixel possède une surface de  $20 \times 20 \mu\text{m}^2$ , soit une surface sensible de  $1,2 \times 1,2 \text{ mm}^2$  pour chaque plage. Le détecteur est alimenté par une tension de 5 V.

Le pixel individuel comprend la diode n-well/p-epi décrite précédemment et trois transistors de type N. En revanche, à la périphérie du capteur les deux types complémentaires de transistors sont utilisés. Le capteur fonctionne en mode de lecture analogique en série. Sur la figure IV-9, le transistor M1 (transistor de mise à zéro) est utilisé pour rétablir la polarisation en inverse de la diode, le transistor M2 est chargé pour la collection du signal (montage suiveur). Le transistor M3 et les transistors Mcols sont utilisés pour l'adressage des pixels. Les données analogiques sont lues en série et envoyées directement en mémoire.



**Figure IV-8 :** Image d'un capteur MIMOSA

Le double échantillonnage corrélé (Correlated Double Sampling - CDS), effectué en différé sur les données acquises après numérisation, est utilisé pour éliminer le bruit kTC – la source dominante dans le bruit du système. Ces transistors présents dans chaque pixel commandent l'intégration de la charge, sélectionnent le pixel, et amplifient le signal avant de le transmettre dans les colonnes. C'est pourquoi ces circuits sont appelés 'capteurs à pixels actifs ou APS (Active Pixel Sensor)'. La plupart des circuits APS fabriqués de nos jours intègrent des fonctions élaborées telles que le contrôle de la lecture d'une trame, le fenêtrage, l'anti-éblouissement dans les applications optiques, ou la conversion analogique-numérique.

La méthode de lecture des capteurs CMOS repose sur la transmission du signal par des lignes de métal parcourant la matrice. L'information est directement recueillie par l'électronique sans transiter par d'autres pixels (contrairement aux CCD).

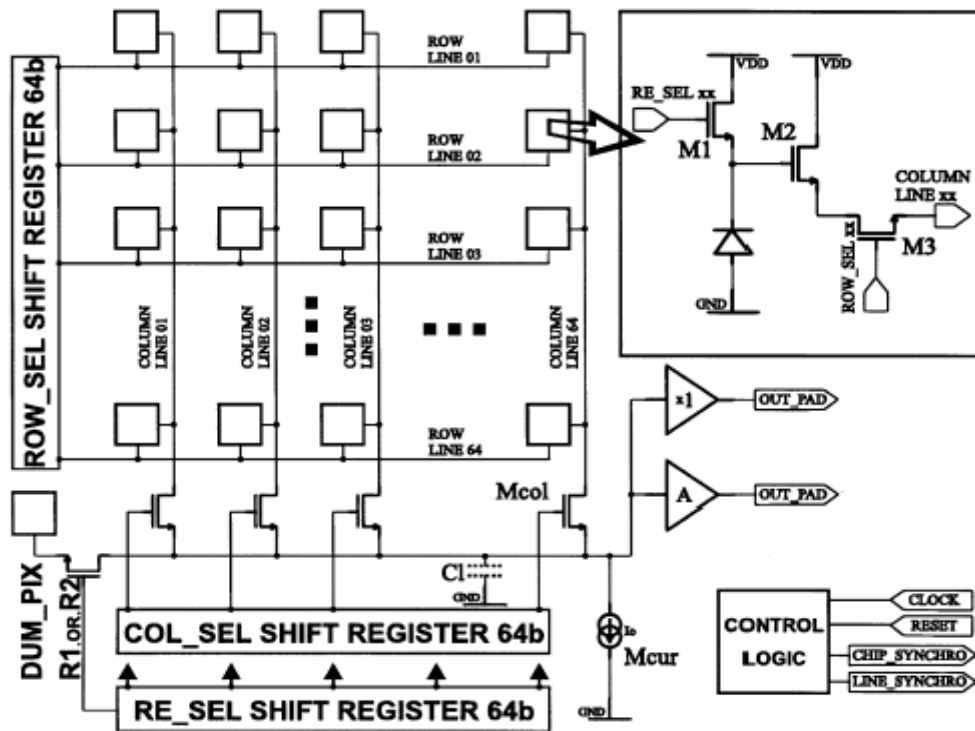


Figure IV-9 : Synoptique du capteur utilisé (MIMOSA)

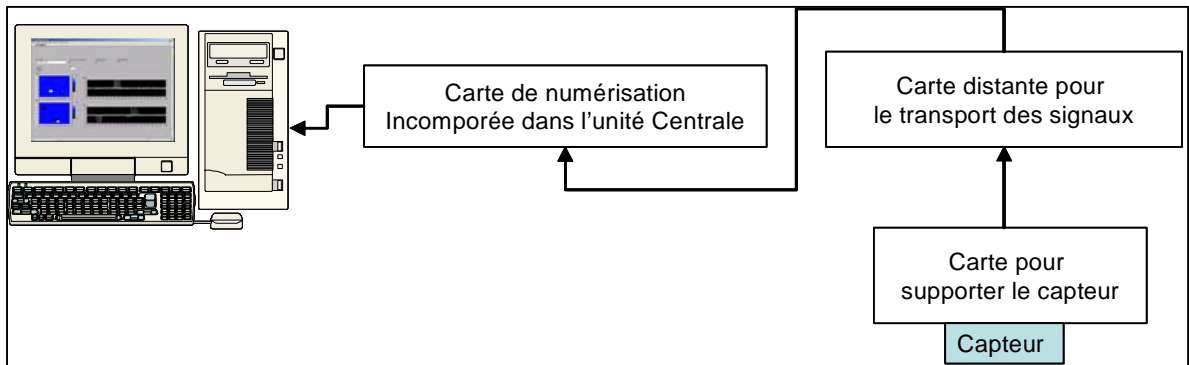
### IV.3.2. Système d'acquisition

Une chaîne d'acquisition spécialement dédiée à cette application a été développée (figure IV-10) : elle composant le système est formée des éléments suivants : Un ordinateur fonctionnant sous Labview équipé d'une carte d'acquisition numérique DIO 32HS (National Instrument PCI-6534). Cette carte reçoit les signaux issus du capteur CMOS, après avoir été transformés de l'analogique en numérique à l'aide de deux cartes intermédiaires. Les cartes permettent également le fonctionnement du capteur en milieu hostile, elles assurent un bon transport des signaux sur quelques dizaines de mètres si besoin.

Les caractéristiques électroniques des cartes sont les suivantes :

- Carte d'acquisition 6534 (N. I.)
  - ✓ 32 lignes digitales en entrée,

- ✓ 80 Mbytes/s vitesse de transfert
- Carte intermédiaire
  - ✓ 4 entrées analogiques,
  - ✓ Convertisseur analogique numérique de 8 bits de résolution,
  - ✓ Bus de 32 bits en sortie (40 MHz),
  - ✓ FPGA reconfigurable.



**Figure IV-10 :** Chaîne d'acquisition

Le capteur entier (les 4 plages) est lu avec une fréquence de 615 KHz. L'enregistrement des données s'effectue en temps réel. Lorsque l'intensité du signal reçu par le capteur est supérieure au seuil préalablement fixé, celui-ci est enregistré et les pixels sont automatiquement remis à 0 à chaque cycle de lecture. Le système d'acquisition utilisé dans notre étude ne permet d'enregistrer que les données de deux plages du capteur.

La figure IV-11 présente la fenêtre principale de l'interface d'acquisition développée à l'aide du logiciel Labview. Elle permet à travers les cinq fenêtres 1, 2, 3, 4 et 6 et la commande 5 de réaliser différentes tâches à savoir :

- à partir de la fenêtre 1 on spécifie le nom du fichier ainsi que le chemin où on peut récupérer les fichiers,
- les fenêtres 2, 3, 4 et 6 sont réservées respectivement au choix de la durée d'acquisition, au nombre de fichiers que l'on veut sauvegarder, à l'affichage de la durée d'acquisition écoulée et à la détermination du seuil d'affichage,
- la commande 5 sert au démarrage et l'arrêt de l'acquisition.

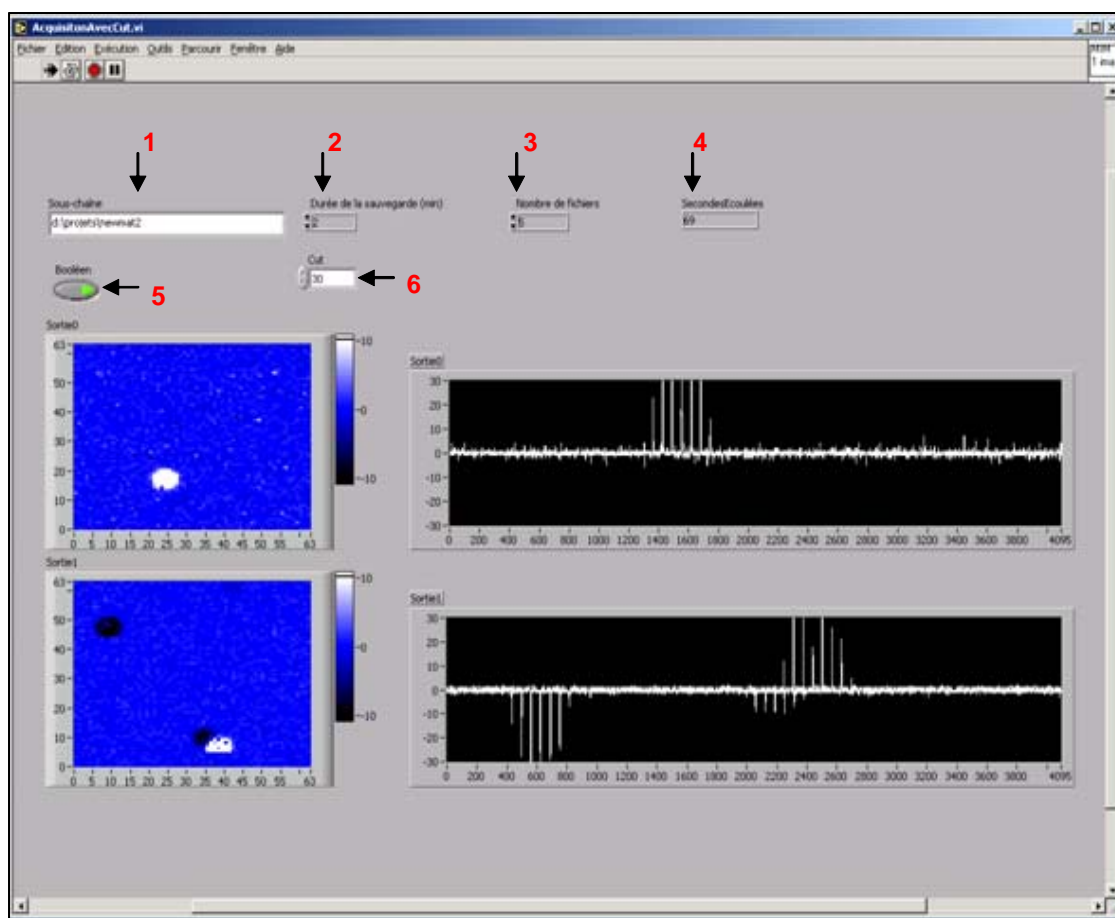


Figure IV-11 : Interface d'acquisition réalisée par le logiciel Labview

### VI.3.3. Traitement des données

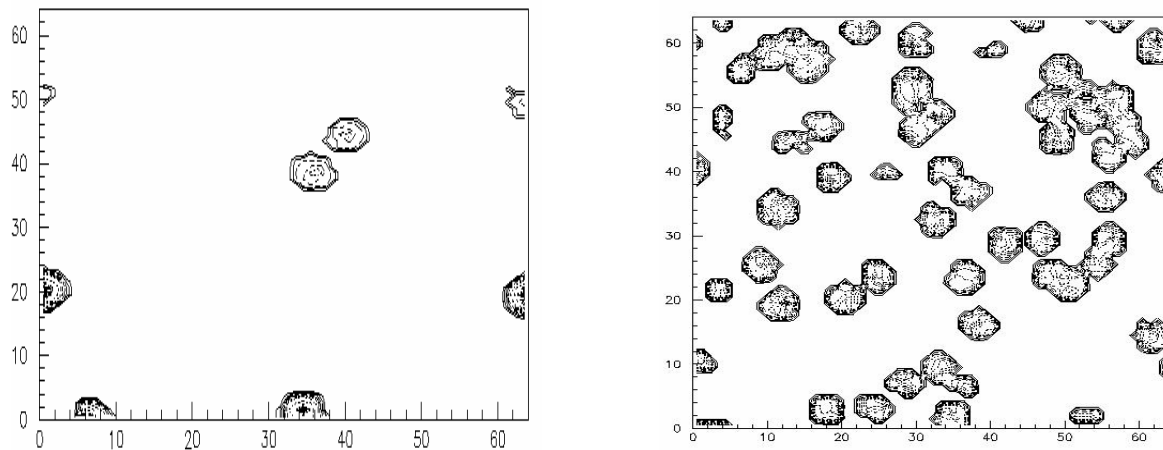
Pour l'exploitation des données, nous avons élaboré un code permettant, le traitement des données enregistrées par le système d'acquisition décrit précédemment et la visualisation des traces laissées par le passage des particules alpha à travers le détecteur. Dans un premier temps, nous avons développé un programme en langage Fortran permettant d'accéder au contenu de chaque fichier de données enregistré. Ce programme appelé *read\_file.f* (voir annexe III-1) est utilisé pour exécuter les cinq différentes actions suivantes:

- rendre les fichiers de données lisibles et utilisables,
- séparer les matrices correspondant à chaque plage du capteur,
- retrancher les matrices de piédestaux des deux premières de chaque autre matrice,
- compter le nombre de traces au passage des particules alpha enregistrées par le capteur,

- enregistrer toutes ces données dans un fichier pouvant être exploité par la suite.

Une fois ce programme de comptage terminé, nous en avons développé deux autres (*track\_sup.kumac* et *single\_mat.kumac*) permettant, à l'aide du logiciel PAW [Paw95], d'obtenir une visualisation des traces laissées lors du passage des particules alpha à travers le capteur.

Ces traces correspondent à des « clusters » d'environ une centaine de pixels « allumés » (figure IV-12). L'exécutable *track\_sup.kumac* (voir annexe III-2) permet de représenter graphiquement la superposition de ces traces pour chaque plage. Le code *single\_mat.kumac* (voir annexe III-3) permet, quant à lui, de visualiser un par un le contenu de chaque matrice lue (figure IV-13). Ce dernier programme s'avère utile lorsque l'on a un doute sur la validité d'un comptage effectué par *read\_file.f*: ceci peut être le cas pour un nombre de particules alpha élevé (exposition à une source ponctuelle de forte activité).



**Figure IV-12 :** Superposition des signaux enregistrés par le capteur CMOS. Comptage simple (à gauche) exposition au radon; Comptage plus difficile (à droite) exposition à une source d' $^{241}\text{Am}$

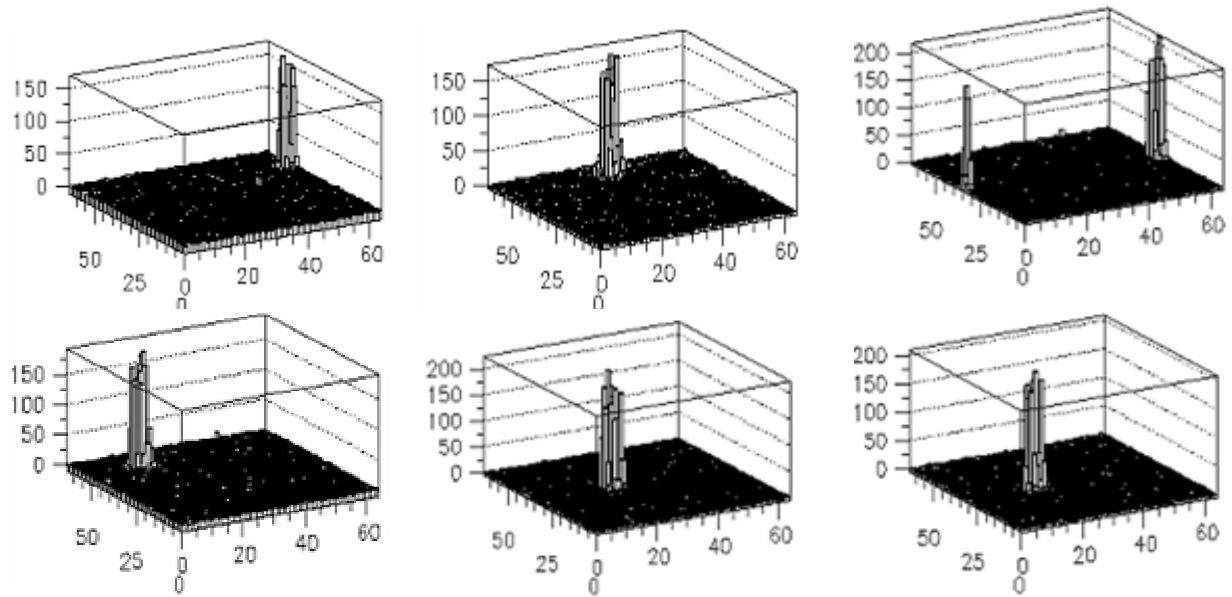


Figure IV-13 : Visualisation matrice par matrice utilisant le code `single_mat.kumac`

### VI.3.4. Tests préliminaires

#### VI.3.4.1. Simulation de l'efficacité de détection

Des calculs de simulation Monte Carlo utilisant les tables parcours-énergie du code SRIM03 [Bie03], nous ont permis de déterminer le profil de l'efficacité de notre système pour la détection des particules alpha en fonction de l'énergie.

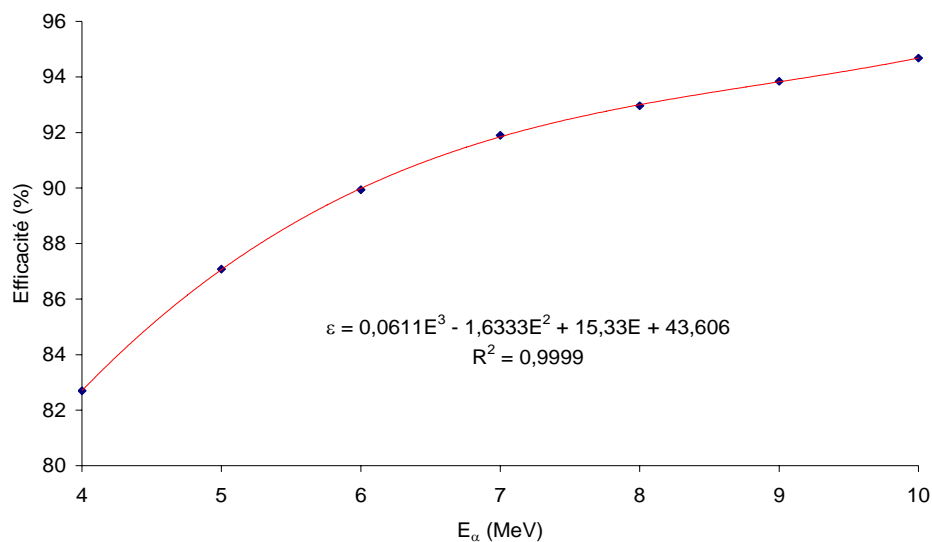


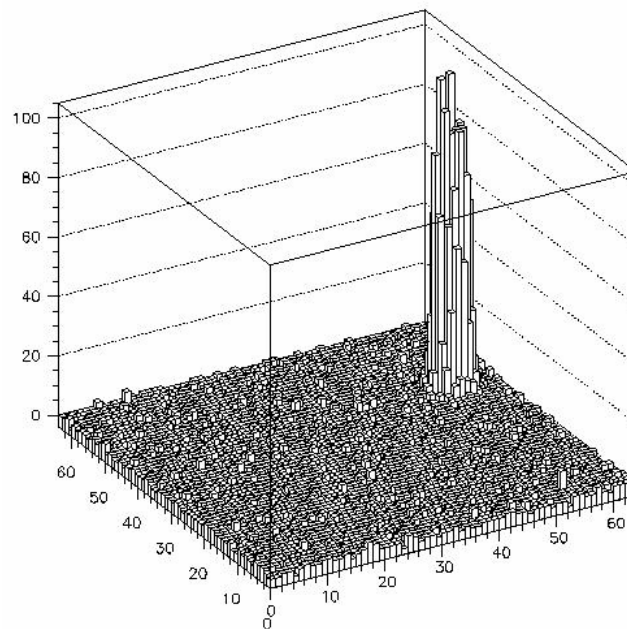
Figure IV-14 : Efficacité de détection des particules alpha en fonction de leur énergie

Le détecteur mis en œuvre est constitué d'une couche protectrice de  $\text{SiO}_2$  ( $5 \mu\text{m}$  d'épaisseur) ; son efficacité de détection n'atteint pas les 100%. La variation de l'efficacité pour différentes sources mono-énergétique allant de 4 à 10 MeV, est représentée sur la figure IV-14. Cette gamme correspond aux énergies alpha émises par le radon et ses descendants.

L'efficacité de détection des particules alpha émises par le radon et par ses descendants solides oscille entre 82 et 95 %. Il est à noter que plus la particule alpha en question possède une énergie élevée, plus cette efficacité de détection tend vers la valeur maximale de 100 % (la particule se rapproche du minimum d'ionisation).

#### VI.3.4.2. Rapport signal sur bruit

Les particules alpha étant fortement ionisantes, le nombre de paires électron-trou créées lors de leur passage à travers la zone sensible du détecteur est beaucoup plus important que pour des particules au minimum d'ionisation et ce, pour un bruit électronique quasi-identique, car intrinsèque au détecteur lui-même. Cette propriété confère au détecteur un rapport signal/bruit très important nous permettant d'identifier sans aucune ambiguïté les signaux dus aux particules alpha. La figure IV-15 montre la différence d'amplitude entre un signal dû à la détection d'une particule et le bruit intrinsèque du détecteur.



**Figure IV-15 :** Détection d'une particule alpha émise par une source ponctuelle d'  $^{241}\text{Am}$

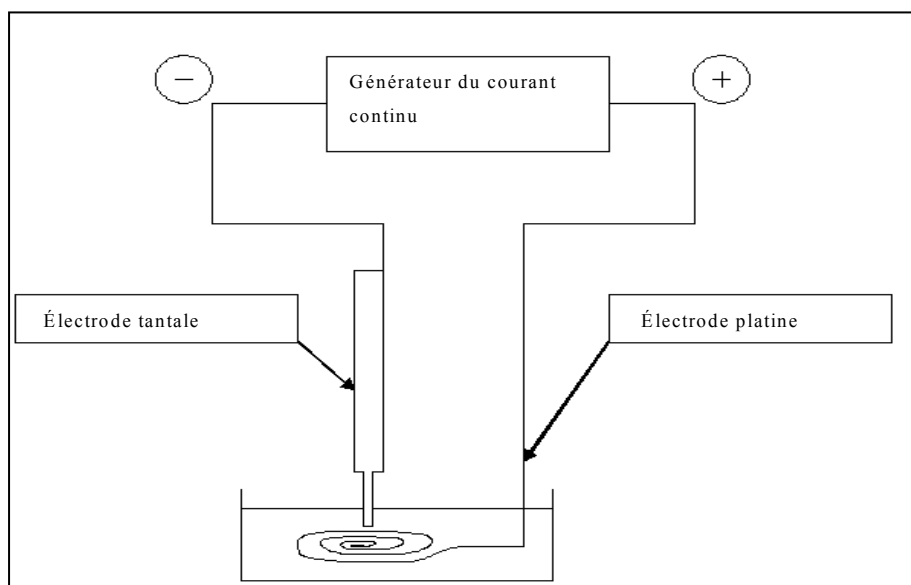
Ces caractéristiques techniques font de notre capteur CMOS un instrument particulièrement performant pour la mesure de la radioactivité alpha en temps réel et notamment pour la dosimétrie du radon dans l'environnement.

Les tests préliminaires ayant mis en évidence un fort potentiel de détection des particules alpha par le capteur CMOS, nous avons d'abord testé son comportement face à une source ponctuelle de  $^{241}\text{Am}$  avant de le mettre à contribution pour la mesure de l'activité volumique du radon dans une enceinte fermée.

### VI.3.4.3. Linéarité et reproductibilité

Afin d'étudier la linéarité et la reproductibilité de notre détecteur, nous l'avons exposé à une source ponctuelle d' $^{241}\text{Am}$ . Cette source a été électrodéposée sur l'extrémité arasée d'un clou cylindrique de Tantale de 1 mm de diamètre. La préparation de la source a été effectuée au laboratoire selon le mode opératoire suivant (figure IV-16):

- Déposer l'activité au fond de la cuve et laisser évaporer,
- Reprendre avec 1 ml de  $\text{HClO}_4$  0,01M + une goutte  $\text{HCl}$  1M,
- Compléter avec 4 ml  $\text{NH}_4\text{Cl}$  1M,
- Ajuster à  $\text{pH}=1$  avec  $\text{HCl}$  1M,
- Lancer l'électrodéposition : 25V et 100mA pendant 1h,
- Ajouter 1 ml  $\text{NH}_4\text{OH}$  concentré 1 min avant de couper le courant.



**Figure IV-16 :** Dispositif de fabrication de la source d' $^{241}\text{Am}$  par électrodéposition



Pour mesurer l'activité de la pointe, nous avons utilisé une chaîne de spectrométrie alpha constitué d'un détecteur à barrière de surface (Si implanté au bore) de 100 mm<sup>2</sup> de surface active, de résolution en énergie de 13 keV pour la raie de 5,48 MeV. L'activité mesurée est  $147 \pm 5$  Bq.

Pour des durées d'exposition allant de 30 secondes à 7 minutes, nous avons réalisé un comptage des particules alpha détectées par le capteur CMOS en prenant pour chaque durée le nombre d'événements obtenus en effectuant une moyenne sur cinq fichiers de données. La figure IV-17 représente la variation du nombre des traces relevées en fonction de l'exposition à la source alpha. Nous avons ainsi pu vérifier que la réponse du détecteur est linéaire.

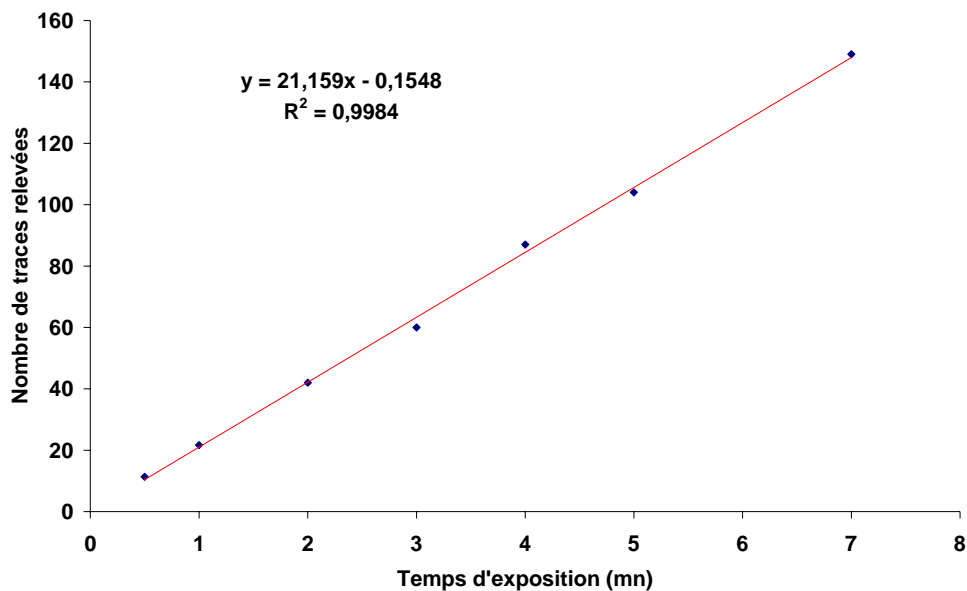


Figure IV-17 : Réponse du détecteur CMOS pour une exposition à une source ponctuelle d' <sup>241</sup>Am

## VII. Mesure de l'activité volumique du radon

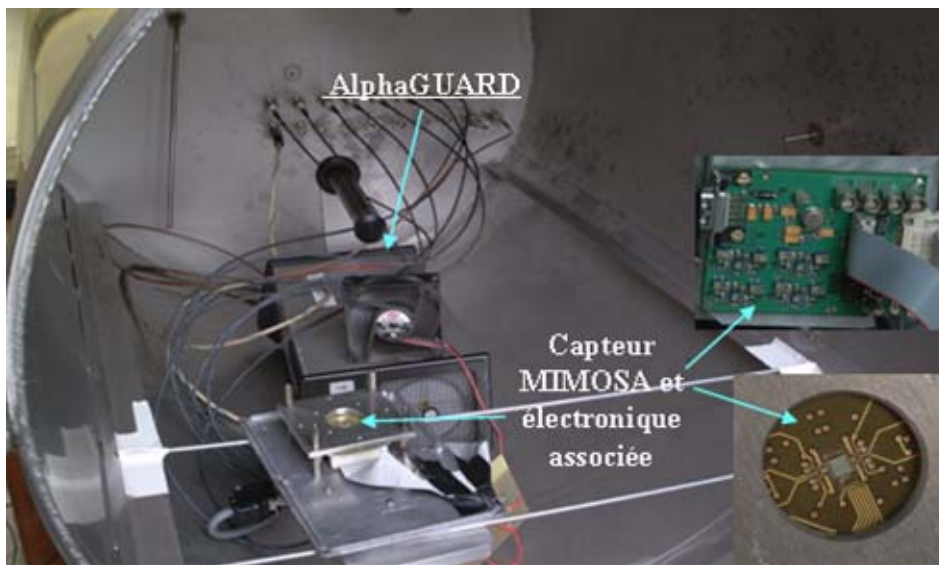
Le but de l'expérience proposée est de déterminer la réponse (en terme de particules alpha détectées) correspondant à notre capteur pour une activité volumique en radon mesurée avec la chambre d'ionisation AlphaGUARD.

Dans une première expérience, le gaz radon est injecté dans une cuve en acier de 224 L dans laquelle ont été préalablement placés le détecteur AlphaGUARD et notre capteur CMOS, tous deux reliés à leur moniteur de contrôle respectif (figure IV-18).

Le gaz radon injecté est obtenu par désintégration d'une source de  $^{226}\text{Ra}$  isotopiquement pur placée dans une fiole en verre. Une fois le radon à l'intérieur de la cuve, il faut attendre quelques heures pour que le gaz atteigne l'équilibre séculaire avec ses descendant solides (c'est-à-dire pour que l'activité en  $^{222}\text{Rn}$  soit égale à l'activité en  $^{218}\text{Po}$  et en  $^{214}\text{Po}$ ).

$$A(^{222}\text{Rn}) = A(^{218}\text{Po}) = A(^{214}\text{Po})$$

Il est possible de vérifier que cet équilibre est atteint grâce au moniteur de contrôle de l'AlphaGUARD.



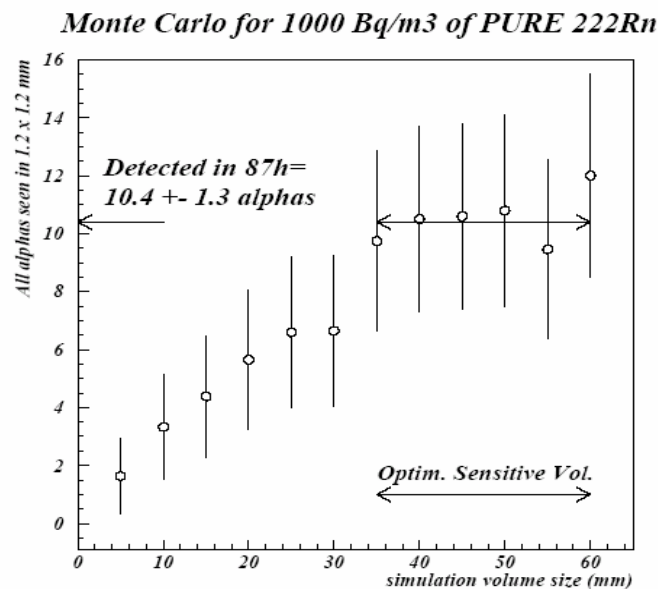
**Figure IV-18 : Dispositif expérimental**

Ces conditions remplies, nous pouvons alors lancer des mesures à l'aide de notre capteur CMOS. Au cours de cette expérience, le détecteur se comporte comme un détecteur passif dans la mesure où il n'enregistre que les signaux des particules alpha émises dans son voisinage, bien que cet enregistrement s'effectue en temps réel. De plus, compte tenu de la taille de notre capteur, la probabilité d'enregistrement d'une particule alpha est très faible ; il est donc nécessaire d'effectuer ces mesures pendant une durée relativement longue afin d'avoir une statistique appréciable. Nous optons alors pour une durée d'acquisition des données d'environ 3,5 jours (87 heures exactement) au cours desquels nous choisissons d'enregistrer les données toutes les 5 minutes, ce qui, l'exposition terminée, représente 1044 fichiers de données à traiter à l'aide de notre programme de visualisation et de comptage de traces.

## VIII. Résultats

### VIII.1. Simulation

Après traitement des fichiers et comptage des traces obtenues, les premiers résultats font état de  $(27 \pm 5,2)$  traces dans une matrice et de  $(8 \pm 2,8)$  dans l'autre, pour une activité volumique moyenne au cours de l'exposition mesurée à  $1300 \text{ Bq.m}^{-3}$  par l'AlphaGUARD. Pour comprendre les résultats du CMOS, nous avons eu recours à un calcul de simulation Monte carlo. Ce calcul, tenant compte des acceptabilités géométriques du détecteur, permet de déterminer que pour une activité volumique de  $1000 \text{ Bq.m}^{-3}$ , le nombre de particules alpha enregistré devrait être de  $10,4 \pm 1,3$  traces en 87 heures d'acquisition (voir figure IV-19).



**Figure IV-19 :** Simulation Monte Carlo pour  $1000 \text{ Bq.m}^{-3}$  de radon

Or, comme nous l'avons vu précédemment, la chambre d'ionisation AlphaGUARD et son logiciel de traitement des données sont conçus pour n'afficher que l'activité volumique du radon et non de ses descendants, ce qui signifie que l'activité réelle en terme de nombre de particules alpha émises doit être proche de  $3900 \text{ Bq.m}^{-3}$ , soit le triple de l'activité donnée par ce dispositif. En tenant compte du calcul de simulation précédent, les  $(27 \pm 5,2)$  traces enregistrées correspondraient à une activité volumique de l'ordre de  $3723 \text{ Bq.m}^{-3}$  supposant que le facteur d'équilibre est proche de 1.

Afin de vérifier cette hypothèse, nous avons effectué d'autres mesures dans les mêmes conditions mais cette fois ci en utilisant tous les systèmes de détection mis à notre disposition.

C'est ainsi que nous avons disposé en plus, à l'intérieur de la cuve des détecteurs solides de traces nucléaire de type LR115 et CR39 (qui se comportent comme le capteur CMOS du point de vue de la détection de particules alpha modulo l'efficacité), trois chambres d'ionisation à électret, l'appareil de mesure AlphaGUARD et bien entendu notre capteur MIMOSA. Il est à noter, toutefois, que le capteur utilisé au cours de cette expérience n'est pas le même que celui utilisé lors de notre première prise de mesures.

## VIII.2. Lecture des différents détecteurs

Après 21 jours, le temps au bout duquel le radon est à l'équilibre séculaire avec le  $^{226}\text{Ra}$  à l'intérieur de la fiole, nous l'avons injecté à l'intérieur de la cuve de la même façon que nous l'avions fait auparavant, mais cette fois pour une durée de 3 jours.

### VIII.2.1 Chambres à électret

Afin de déterminer l'activité volumique mesurée par chaque électret, nous avons relevé leur tension avant et après l'exposition au radon à l'aide du lecteur prévu à cet effet. L'évaluation de cette activité a été effectuée selon le formalisme présenté dans le deuxième chapitre de ce mémoire. Le tableau IV-3 regroupe les résultats obtenus par les trois électrets utilisés.

| Electret | Tension initiale (V) | Tension finale (V) | Activité volumique ( $\text{Bq.m}^{-3}$ ) |
|----------|----------------------|--------------------|---|
| SY8384   | 615                  | 430                | $1110 \pm 111$                            |
| SV9528   | 550                  | 365                | $1130 \pm 113$                            |
| SV9595   | 586                  | 362                | $1370 \pm 137$                            |

**Tableau IV-3 :** Activités volumiques mesurées par trois chambres d'ionisation à électret

L'activité volumique moyenne ainsi obtenue est donc de  $1203 \pm 120 \text{ Bq.m}^{-3}$ . Rappelons que ce dispositif permet de déterminer l'activité volumique du seul radon et non de ses descendants solides.

### VIII.2.2 LR115 et CR39

Après l'exposition, nous avons effectué un développement chimique séparé pour les deux DSTN (LR115 et CR39) mis en œuvre, dont les conditions de développement sont données au chapitre I à savoir 2,5 M, 2 h pour le LR115 et 7 M, 6 h pour CR39. Les densités de traces sont obtenues à partir du système de lecture associé (voir figure I-9).

Pour remonter à l'activité volumique du radon et de ses descendants solides, on a utilisé le même formalisme décrit au § III du premier chapitre, mais cette fois-ci, on a intégré l'équation I-25 sur les deux gammes d'énergies en MeV [1,4 ; 4,7] et [0 ; 7,7] correspondant respectivement au LR115 et au CR39.

$$D_{LR} = (0,413 a_1 + 2,518 a_2) A_{Rn} \quad (IV-10)$$

$$D_{CR} = (1,117 a_1 + 9,227 a_2) A_{Rn} \quad (IV-11)$$

Où:

$D_{LR}$  et  $D_{CR}$  : densités de traces enregistrées respectivement dans le LR115 et le CR39 exprimées en nombre de traces par  $m^2.s$

Les coefficients  $a_1$ ,  $a_2$  sont déterminés à partir de l'ajustement de la forme, des points énergie-parcours ( $E_\alpha$ ,  $R_\alpha$ ) obtenus par le code SRIM03 dans l'air. Avec  $a_1 = 2,970 \cdot 10^{-3}$  et  $a_2 = 0,6997 \cdot 10^{-3}$ .

$A_{Rn}$  : activité volumique du radon et de ses descendants solides exprimée en  $Bq.m^{-3}$ .

Les activités trouvées par cette méthode sont de  $3679 \pm 361 Bq.m^{-3}$  pour le LR115 et de  $3478 \pm 208 Bq.m^{-3}$  pour le CR39. Cette fois, l'activité volumique déterminée est celle du radon et de ses descendants, car ces détecteurs ne peuvent pas séparer les  $\alpha$  correspondant à chaque isotope.

### VIII.3. Comparaison des résultats

Le tableau ci-dessous résume les résultats obtenus par les différents systèmes de détection utilisés au cours de cette expérience :

| Détecteurs | Activité volumique (Bq.m <sup>-3</sup> ) | détection <sup>214</sup> Po et <sup>218</sup> Po |
|------------|--|--|
| Electret   | 1203 ± 120                               | NON  |
| LR115      | 3679 ± 361                               | OUI  |
| CR39       | 3478 ± 208                               | OUI  |
| AlphaGUARD | 1137 ± 114                               | NON  |

**Tableau IV-4 : Bilan des résultats obtenus**

Dans la mesure où le capteur CMOS se comporte comme un simple détecteur visuel similaire au DSTN, ces données permettent de vérifier l'hypothèse selon laquelle l'activité volumique totale mesurée par ce capteur est environ trois fois supérieure à l'activité volumique en Rn par le détecteur commercial AlphaGUARD pour un facteur d'équilibre proche de 1.

Les mesures effectuées par le capteur CMOS sont comparées au résultat de simulation [Nac03c]. Sachant que, par calcul de simulation, on a 10,4 traces (voir figure IV-19) correspondent à une activité de 1000 Bq pour 87 h de mesure, alors, pour une période de 72 h (3 jours) et une activité de 1170 Bq (moyenne de l'activité affichée par AlphaGUARD et celle lue à partir des Electrets) le nombre de trace simulé sera de 10.

Le tableau IV-5 regroupe les résultats expérimentaux et ceux simulés. Nous constatons une bonne concordance ces résultats. La différence entre les résultats obtenus avec les capteurs MIMOSA au cours des différentes expériences est due au changement du détecteur. Les résultats enregistrés par capteurs CMOS durant cette expérience, indiquent bien que le facteur d'équilibre est proche de 1.

|                         |    |            |
|-------------------------|----|------------|
| <b>Simulation</b>       |    | 30 ± 3,77  |
| <b>Mesure Matrice 1</b> | 33 | 27,5 ± 5,2 |
| <b>Mesure Matrice 2</b> | 22 |            |

**Tableau IV-5 : Comparaison des résultats expérimentaux et simulation Monte Carlo des capteurs CMOS**

## IX. Conception d'un nouveau détecteur radon

L'ensemble de ces tests a fait l'objet en octobre 2002 d'un dépôt de brevet européen (N°02360302.0), concernant l'invention d'un dispositif électronique portatif pour les mesures en continu de l'activité volumique du radon dans l'environnement atmosphérique appelé (ALPHARAD). L'originalité réside dans la collection électrostatique et un capteur qui remplacera le MIMOSA. Les points forts de ce dispositif, par rapport à l'existant, sont : le petit volume, l'autonomie et la simplicité (suppression de la procédure lourde de développement chimique de films plastiques), le comptage direct résolu en temps (dosimétrie opérationnelle) et l'absence de haute tension. Pour ce dernier point, une micro-cathode originale a été réalisée pour optimiser le champ de collection tout en assurant la détection résolue de deux raies du radon.

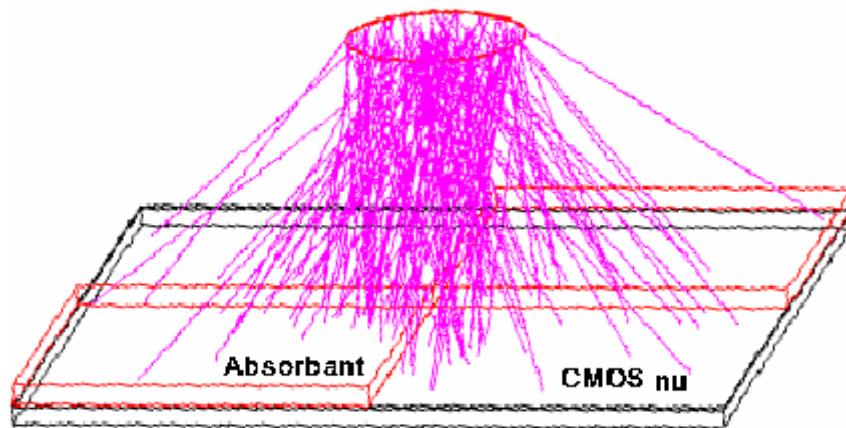
### IX.1. Filtres en énergie

Pour la discrimination en énergie des descendants solides du radon ;  $^{218}\text{Po}$  (6 MeV) et  $^{214}\text{Po}$  (7,7 MeV), nous avons d'abord pensé à mettre en place sur le détecteur des absorbants en mylar aluminisé de différentes épaisseurs correspondant à chaque énergie (figure IV-20). Des études théoriques basées sur des modélisations Monte Carlo ont été réalisées à l'aide des codes GEANT et SRIM03 pour optimiser les épaisseurs des absorbants (filtres). Le tableau IV-6 regroupe les valeurs des épaisseurs simulées par les deux codes.

| $E_{\alpha}$ ( MeV ) | Parcours ( $\mu\text{m}$ ) par SRIM | Parcours ( $\mu\text{m}$ ) par GEANT |
|----------------------|-------------------------------------|--------------------------------------|
| 5,3                  | 29,53                               | 30                                   |
| 5,48                 | 31,07                               | 31,5                                 |
| 6                    | 35,75                               | 35                                   |
| 7,7                  | 53,36                               | 54,2                                 |

**Tableau IV-6 :** Parcours des descendants du radon dans du Mylar obtenus par SRIM et GEANT

L'idée d'utiliser le Mylar comme absorbant a été rejetée à cause des problèmes rencontrés pendant la réalisation au niveau de la fixation des absorbants sur le capteur. Cependant nous avons opté de le remplacer par une plaque de Si d'épaisseur de 300  $\mu\text{m}$ . Dans cette dernière on a creusé deux puits de différentes profondeurs en laissant au fond deux couches d'épaisseurs 29  $\mu\text{m}$  et 5  $\mu\text{m}$  pour filtrer les deux isotopes  $^{218}\text{Po}$  et  $^{214}\text{Po}$  ( $E_\alpha = 6$  et 7,68 MeV). Le creusage a été effectué à l'aide de la technologie D.R.I.E employée pour les MEMS (Micro-Electro-Mechanical System) par L'ESIEE (Paris).



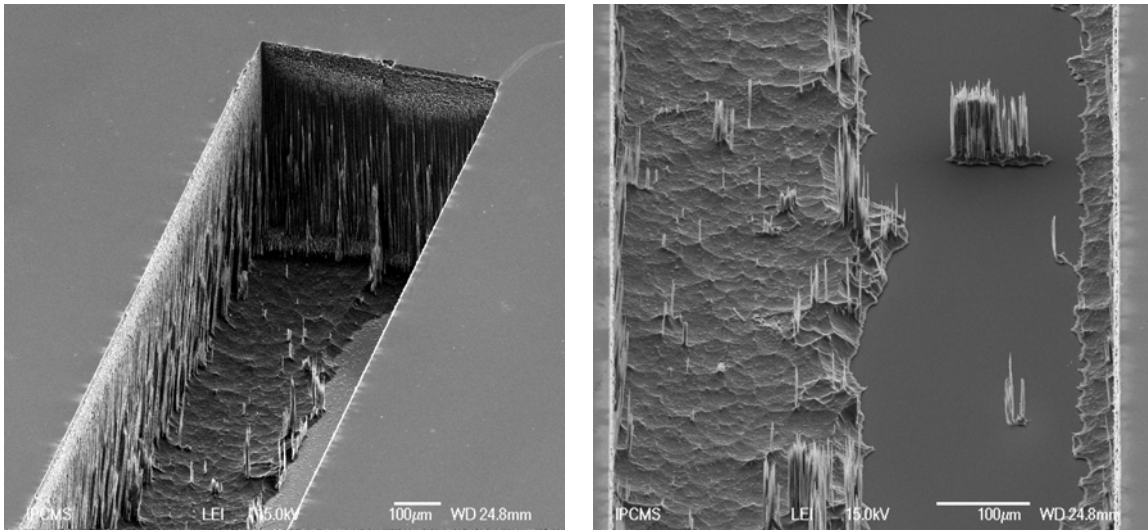
**Figure IV-20 :** Schéma simulé par GEANT du capteur CMOS, des absorbants en rouge et d'une source plane alpha

## IX.2. Analyse par Microscope Electronique à Balayage

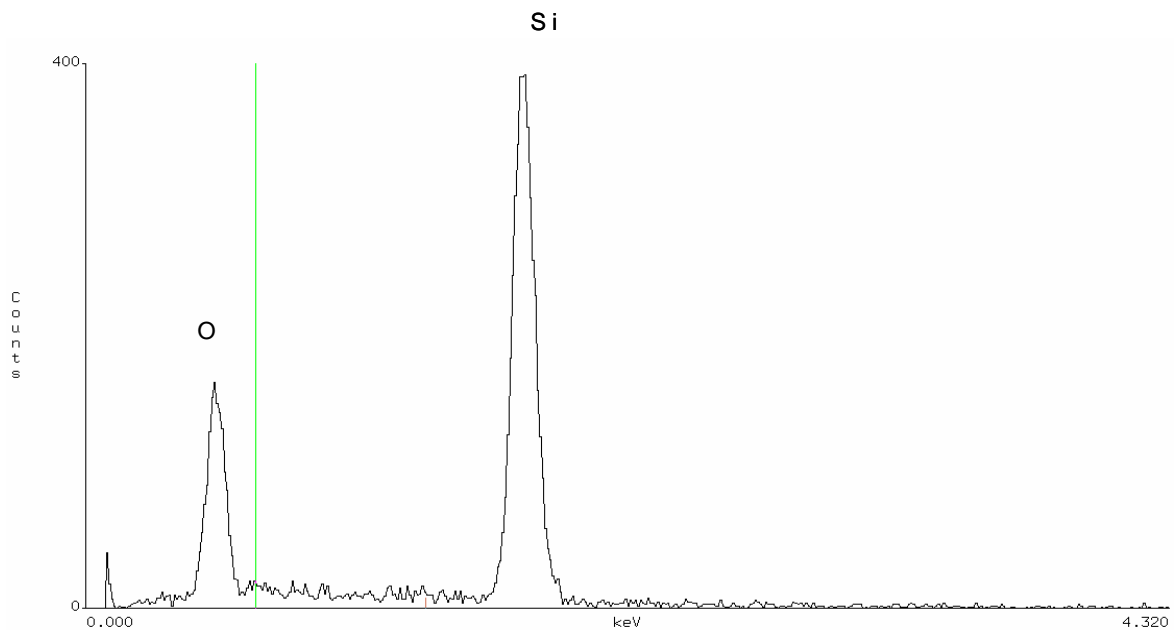
Afin de s'assurer des résultats de la technique du creusage de la plaque en Si et de la profondeur des puits, cette dernière a été analysée par Microscope Electronique à Balayage (MEB). Cette caractérisation a été faite à l'Institut de Physique et Chimie des Matériaux de Strasbourg (IPCMS). Le MEB permet d'obtenir des images de surfaces de pratiquement tous les matériaux solides, à des échelles allant de celle de la loupe ( $\times 10$ ) à celle du microscope électronique en transmission ( $\times 500000$ ). Le MEB conventionnel fonctionne dans un vide ordinaire ( $10^{-5}$  à  $10^{-6}$  mbar). Les échantillons peuvent être massifs de dimension allant de quelques  $\mu\text{m}$  à une dizaine de cm de diamètre. Ils doivent supporter le vide et être conducteurs. Equipé de détecteurs de rayons X, cet appareil permet de faire une cartographie multi-élémentaire. L'image MEB (figure IV-21) obtenue a bien montré les deux puits creusés et a différencié les épaisseurs des deux fonds restant. Le spectre de l'analyse ainsi obtenu est



représenté sur la figure IV-22, il montre l'existence des deux éléments ; l'oxygène et le silicium.



**Figure IV-21 :** Images MEB de la plaque Si  
vue du haut des puits (à gauche) ; vue de l'intérieur (à droite)



**Figure IV-22 :** Spectre obtenu après l'analyse multi-élémentaire  
par MEB de la plaque de Si avec traces d'oxygène.

La collection est optimisée grâce à une micro-cathode aux dimensions du micron, qui permet de générer un champ très important sous quelques volts de tension. La micro-cathode est déposée sur la plaque de Si, ce qui permet, d'une part, de dessiner les masques d'électrodes par les techniques standard de lithographie, et d'autre part, de profiter de la

maîtrise complète de l'épaisseur du silicium en technologie DRIE (au micron près) pour réaliser le filtre en énergie pour les deux isotopes  $^{218}\text{Po}$  et  $^{214}\text{Po}$ . Tout ce système est actuellement en cours de développement.

## X. Conclusion

Il ressort de cette étude que dans le domaine de la dosimétrie active, tenant compte de leur fonction de réponse linéaire et de leur sensibilité aux rayonnement directement ionisants, les capteurs CMOS présentent une très bonne alternative pour le suivi en temps réel de l'évolution de la concentration du radon et ses descendants dans l'environnement atmosphériques. Cette dosimétrie opérationnelle se heurte en effet à des limitations techniques persistantes, que les capteurs d'imagerie intégrée à pixels actifs sont susceptibles de repousser considérablement.

Les nouvelles normes européennes entrées en vigueur en 2002 sont un véritable défi au développement de nouveaux systèmes, pratiques à mettre en œuvre (pas de développement chimique ou électrochimique), autonomes (alimentation), sans danger (pas de haute tension), délivrant une information en temps réel, et surtout à coût réduit. Cette dernière condition est un pré-requis si on envisage réellement d'équiper massivement les lieux publics de systèmes de surveillance du Radon. Notre système intégré répond exactement à toutes ces exigences.

- un petit volume (comparable à celui d'un téléphone portable),
- une autonomie et une simplicité accrues (suppression de la procédure lourde de développement chimique des films plastiques),
- un comptage direct résolu en temps (dosimétrie opérationnelle),
- une absence de haute tension (alimentation par une batterie).

## XI. Perspectives du développement

La dosimétrie passive des neutrons dans le domaine de la radioprotection est aujourd'hui assurée par les moyens suivants : films photographiques, dosimètres thermoluminescents, détecteurs solides de traces nucléaires et tout récemment les films photostimulables. Ces détecteurs ne permettent pas de suivre en temps réel l'évolution du champ de rayonnements. Leur sensibilité varie en fonction de neutrons (thermique, intermédiaire ou rapide) de telle sorte que plusieurs d'entre eux doivent être associés pour répondre de manière correcte aux besoins actuels de la dosimétrie. Le dosimètre doit évidemment satisfaire aux spécifications dosimétriques mais aussi répondre aux critères de faisabilité pratique (facile d'utilisation, possibilité de miniaturisation).

En perspective, nous envisageons d'utiliser les capteurs CMOS pour la détection des neutrons dans une large gamme d'énergie. Grâce à la faible épaisseur (inférieur à 15  $\mu\text{m}$ ) de leur partie sensible, ces détecteurs présentent l'avantage d'être transparents aux rayonnements gamma accompagnant en général les champs neutroniques.

### XI.1. Principes de discrimination des neutrons

Les neutrons sont des rayonnements indirectement ionisants, leur détection se fera en utilisant des convertisseurs spécifiques à chaque gamme d'énergie de neutrons. Le classement des neutrons se fait en général en fonction de leurs énergies :

| Energie neutron                          | Type           |
|--|----------------|
| $0,025 < E_n < 0,4 \text{ eV}$           | thermiques     |
| $0,4 \text{ eV} < E_n < 0,1 \text{ MeV}$ | intermédiaires |
| $0,1 \text{ MeV} < E_n$                  | rapides        |

**Tableau IV-7 :** Classification des neutrons selon leurs énergies

Les neutrons, au contraire des autres particules, ne sont pas gênés par les forces coulombiennes lors de leur passage dans un milieu. Les différentes interactions neutrons-matière sont : la diffusion élastique, la diffusion inélastique, la réaction nucléaire et la fission.

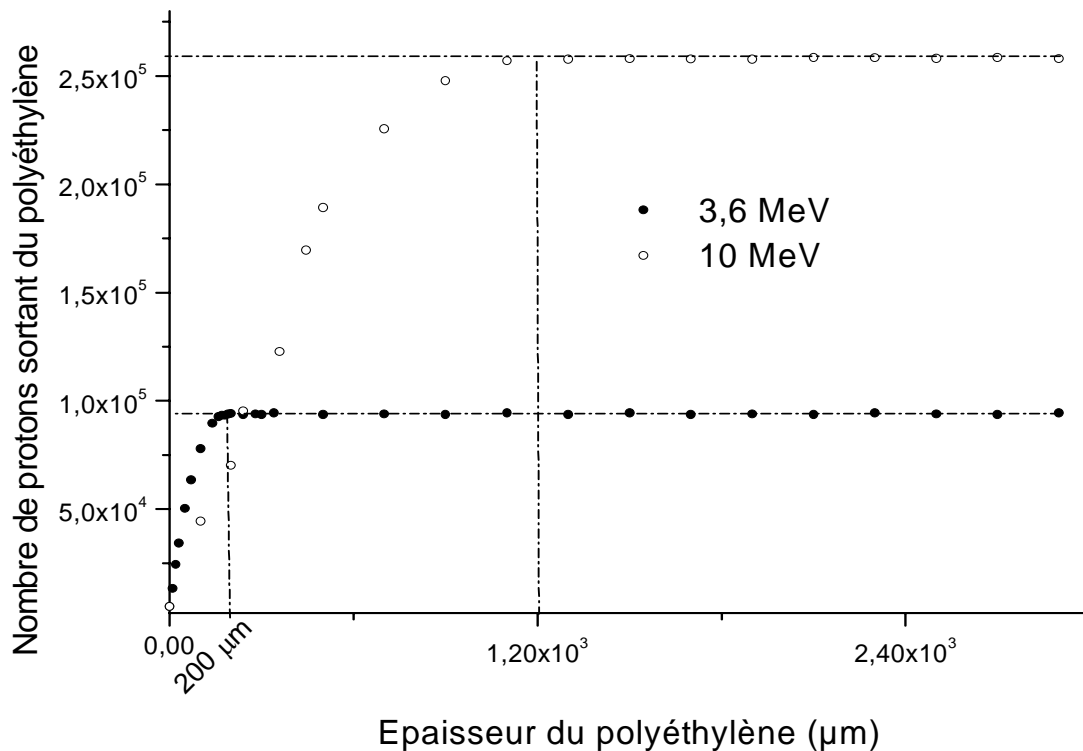
La détection des neutrons s'effectue grâce à des particules chargées produites lors de sa diffusion et/ou de sa capture dans la matière. Dans le domaine de la dosimétrie neutronique, on utilise les convertisseurs des neutrons suivants :

- Polyéthylène ((CH<sub>2</sub>)<sub>n</sub>) sera utilisé pour convertir les neutrons rapides en protons par la diffusion élastique H(n , p)n,
- Le Bore sera utilisé pour produire la réaction nucléaire  $^{10}\text{B}(n , \alpha)^7\text{Li}$  avec les neutrons thermiques et intermédiaires,  $^{10}\text{B}(n , \alpha)^7\text{Li}$  produisant  $E_\alpha = 4,78$  MeV,
- Lithium ( $^6\text{Li}$ ), par la réaction  $^6\text{Li}(n , \alpha)^3\text{H}$  produisant  $E_\alpha = 2,05$  MeV, sera utilisé pour les neutrons thermiques,
- Azote ( $^{14}\text{N}$ ), par la réaction  $^{14}\text{N}(n , p)^{13}\text{C}$ , sera également utilisé pour les neutrons thermiques.

## XI.2. Optimisation de l'épaisseur du convertisseur

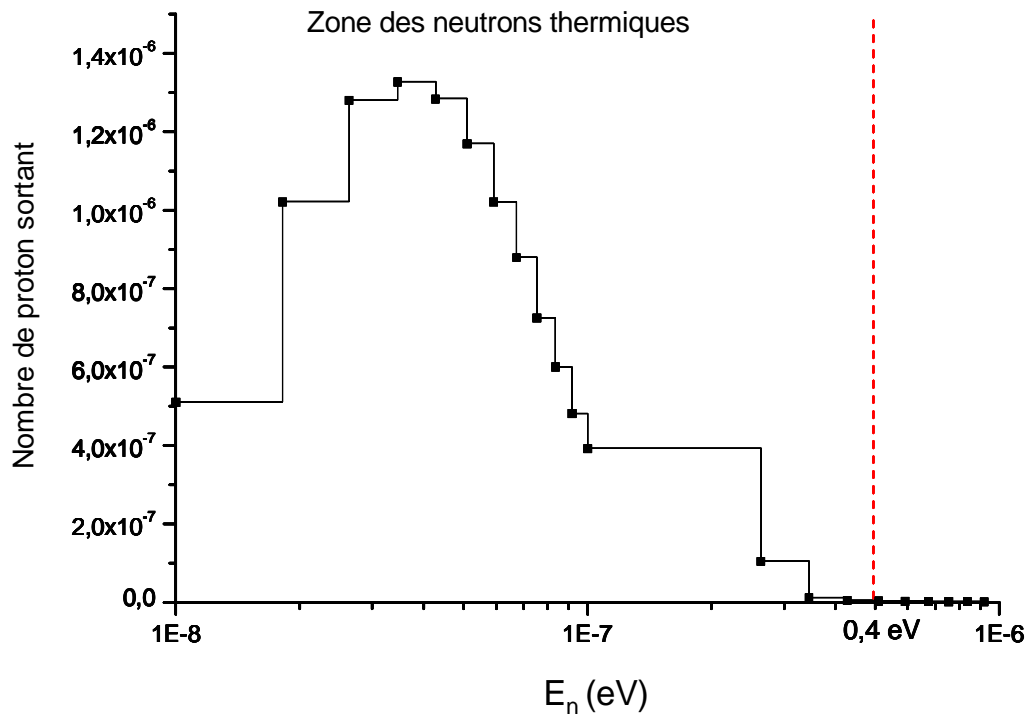
Comme il a été déjà signalé, la détection des neutrons rapides ne se réalise qu'à travers la détection des protons de recul lors de la diffusion élastique n(n , p)H. Pour cela une étude d'optimisation de l'épaisseur du polyéthylène (CH<sub>2</sub>)<sub>n</sub> a été effectuée. En effet, de part leur mode de formation, les protons de recul selon leurs énergies et l'épaisseur du convertisseur peuvent soit être arrêtés dans le convertisseur, soit franchir le convertisseur vers la couche sensible capteur. Il est donc intéressant de vérifier qu'une épaisseur de 1 mm de polyéthylène réalise un équilibre protonique pour les neutrons de 2 à 10 MeV de la source de Am-Be du groupe RaMsEs .

Cette étude a été faite en deux étapes. Tout d'abord, on génère des protons de recul par le code MCNP [Bie99] version 4C dans une épaisseur donnée, puis on suit ces protons dans la même épaisseur par un programme que nous avons élaboré sous langage FORTRAN. Dans la figure IV-23 est représentée la variation du nombre de proton sortant du convertisseur en fonction de l'épaisseur de ce dernier pour deux énergies 3,6 et 10 MeV. Les résultats montrent que si l'équilibre protonique est maintenu avec une telle épaisseur pour une énergie donnée il est forcément possible pour une énergie inférieure. L'équilibre protonique commence à 1 mm de polyéthylène pour les neutrons de 10 MeV et à partir de 200 µm pour les neutrons de 3,6 MeV. Cette dernière valeur d'énergie a été choisie pour valider notre étude de simulation, elle est comparable avec celle utilisée par Fernandez & al [Fer91].



**Figure IV-23 :** Optimisation de l'épaisseur du convertisseur en polyéthylène

Afin de valider nos calculs de simulations, des tests sont en cours de réalisation, en utilisant des neutrons rapides entre 2 MeV et 10 MeV émis par une source Am-Be. Pour les neutrons thermiques et intermédiaires, nous projetons d'utiliser l'accélérateur 4 MV de l'IReS/PHASE pour produire la réaction  ${}^7\text{Li}(p, n){}^7\text{Be}$  en variant l'énergie des protons incidents entre l'énergie seuil de la réaction situé à 1,87 MeV et 2,5 MeV. L'étude cinématique de cette réaction selon l'énergie des protons et l'angle de diffusion des neutrons produits a montré que les énergies des neutrons se situent au dessus de 173 keV. Pour produire des neutrons thermiques nous avons eu recours à des modérateurs à base de polyéthylène. La figure IV-24 montre un spectre simulé par MCNP de neutrons thermiques obtenus à partir d'une source mono-énergétique d'énergie 230 keV pour produire la réaction  ${}^7\text{Li}(p, n){}^7\text{Be}$  auprès de l'accélérateur de 4 MV. Ce spectre a été calculé après une couche de polyéthylène d'épaisseur 15 cm.



**Figure IV-24 :** Spectre simulé obtenu par thermalisation des neutrons d'énergie 230 keV par un bloc de polyéthylène d'épaisseur 15 cm

Le circuit CMOS prévu pour la dosimétrie neutrons comporte 1 million de pixels avec un pas de 20 microns. Ce capteur servira donc pour la dosimétrie (mise au point et calibration) mais aussi pour l'imagerie directe de neutrons, qui est parfaitement complémentaire aux RX (sensibilité aux matériaux légers).

# **Conclusion générale**





Ce travail a porté principalement sur la recherche et développement en instrumentation nucléaire : spectrométrie gamma et dosimétrie alpha par capteurs actifs à pixels.

Dans le domaine de la spectrométrie gamma, l'objectif concerne la correction des effets de matrice en particulier l'étude du phénomène de la self-absorption. La deuxième partie est consacrée à l'étude de faisabilité et mise au point d'un nouveau dispositif électronique portable à base des capteurs CMOS pour les mesures en continue de l'activité volumique du radon dans l'environnement atmosphérique.

Il ressort de cette étude que la spectrométrie gamma à haute résolution à l'aide de GeHP peut constituer un outil d'analyse performant pour effectuer des mesures environnementales. Cette technique non destructive et ne nécessitant pas de préparation radiochimique, permet de doser en une seule mesure l'ensemble des émetteurs gamma d'énergies inférieurs à 2 MeV contenus dans l'échantillon. Les analyses multi-élémentaires quantitatives nécessitent l'utilisation de standard calibré semblable à l'échantillon en densité et en géométrie. La qualité d'une mesure dépend de la nature de la matrice, où le phénomène d'absorption et d'auto-atténuation des gamma dans l'échantillon avant d'atteindre le détecteur peut influencer les résultats des mesures.

La première partie de la thèse traite le phénomène de la self-absorption gamma, pour diverses géométries auprès des différentes chaînes de détection mises en œuvre au groupe RaMsEs de l'IReS de Strasbourg. Des mesures expérimentales ont été réalisées et complétées par des calculs de modélisation de type Monte Carlo en utilisant dans un premier temps, le code GEANT et puis le code MCNP (Monte Carlo N-Particles). Le protocole expérimental de mesure du coefficient d'auto-absorption consistait à dissoudre des quantités connues d'émetteur  $\gamma$ , dans des solutions diluées d'acides (sulfurique, nitrique, bromoforme) et d'alcool pour avoir des densités comprises entre 0,8 et 3. Les fonctions de réponse en énergie et en efficacité des deux détecteurs GeHP (ENTER et BeGe) a été déterminée à l'aide d'un standard multi-gamma utilisé dans les mêmes conditions et géométries que les échantillons étudiés. Pour les modélisations de la fonction de réponse, un code a été développé et validé, dont l'algorithme est constitué de trois composantes. La première, consiste à caractériser le système (source-détecteur) en tenant compte de la composition du milieu, de la forme, et des dimensions de chaque élément du système. Dans la seconde, on introduit la nature étendue de la source et les processus de transport des rayonnements  $\gamma$  dans la matière. Dans la troisième,

on spécifie le milieu sensible pour la détection et le type des résultats demandés tel que le dépôt en énergie, la photofraction, et le flux à travers le volume ou la surface.

L'étude par simulation Monte Carlo de l'auto-absorption en fonction de l'énergie gamma et en fonction de la densité de l'échantillon nous a conduit à paramétrer ce coefficient. Il a été ainsi possible d'élargir les applications de la spectrométrie  $\gamma$  aux analyses quantitatives de radioéléments dans l'environnement. Elle nous a permis ainsi de compléter les analyses quantitatives par spectrométrie  $\gamma$  d'échantillons de phosphate sédimentaires du Maroc et de leurs dérivés, et plus particulièrement lors du dosage de l'uranium dans les phosphogypses. Ce travail a permis :

- de maîtriser les paramètres de modélisation des processus d'interactions rayonnements-matière spécifiques à la spectrométrie  $\gamma$ ,
- de prendre en compte la géométrie 3 D, la composition chimique et la densité de l'échantillon,
- la détermination de quantités difficilement accessibles par l'expérience pour l'analyse des échantillons différents du standard.

La caractérisation des systèmes de détection réalisée dans cette partie de la thèse, pourra servir au groupe RaMsEs/IREs dans l'avenir pour l'analyse des radionucléides dans des échantillons solides de l'environnement. En effet, ce groupe s'est engagé dans un programme de démarche qualité en vue d'accréditation selon les normes ISO/CEI 17025, où la correction de l'auto-absorption et l'effet de sommation d'énergie dans les échantillons sont indispensables pour l'analyse par spectrométrie gamma.

La deuxième partie de la thèse consiste à appliquer des capteurs CMOS de type MIMOSA dérivés de ceux développés par l'IREs et le LEPSI pour la physique des particules à la détection de rayonnements de neutrons et de particules alpha, pour en faire des dosimètres électroniques impulsionnels personnels. Plus précisément, ces appareils doivent permettre de suivre en temps réel les doses et débits de dose dans des environnements variés, que ce soit auprès des réacteurs nucléaires, des accélérateurs utilisés en milieu hospitalier (radiothérapie) ou encore des zones de stockage de matériaux radioactifs. Les capteurs CMOS sont constitués de trois couches aux fonctionnalités différentes : une couche de dioxyde de silicium, une zone épitaxiale sensible aux rayonnements ionisants, et une couche de substrat fortement dopée déterminant la rigidité mécanique du capteur. Le capteur CMOS est lié à une chaîne

d'acquisitions. Une carte d'acquisition numérique reçoit les signaux analogiques issus du capteur, après avoir été préalablement transformés en numérique à l'aide de deux cartes intermédiaires. Les cartes permettent également le fonctionnement du capteur en milieu hostile, en assurant la bonne transmission des signaux sur quelques dizaines de mètres.

Notre travail a d'abord consisté à élaborer un code permettant le traitement des données enregistrées par le système d'acquisition et la visualisation des traces laissées par le passage des particules  $\alpha$  à travers le détecteur. Dans un premier temps, la mise au point d'un programme en langage FORTRAN a permis d'exécuter quatre actions différentes :

- rendre les fichiers de données lisibles et utilisables,
- retrancher les matrices de piédestaux (les deux premières) de chaque autre matrice,
- compter le nombre de traces de particules  $\alpha$  enregistrées par le capteur,
- enregistrer toutes ces données dans un fichier exploitable par la suite.

Nous avons également développé deux autres codes permettant, à l'aide de la station de travail (PAW), d'avoir une visualisation des traces. Ces deux programmes ont été utilisés séparément pour le comptage aisé (basse activité) et pour le comptage le plus complexe (chevauchement des traces). Les traces correspondent à des « clusters » d'environ cent pixel « allumés ». Une représentation graphique de la superposition de ces traces est ainsi effectuée.

Après avoir réalisé ces étapes d'acquisition et de traitement des données issues des capteurs CMOS, des mesures de dosimétrie radon ont été effectuées à partir d'une source de radium. L'objectif de ces mesures était de déterminer la réponse (en terme de nombre particules  $\alpha$  détectées) du capteur pour une activité volumique en radon mesurée avec la chambre d'ionisation AlphaGUARD. Le gaz radon a été injecté dans une cuve en acier inoxydable dans laquelle ont été préalablement placés les détecteurs : AlphaGUARD, Electret, détecteurs solides de traces nucléaires (CR39 et LR115) et le capteur CMOS. Cette étude comparative a montré une bonne concordance entre les résultats des différents détecteurs utilisés pendant les mesures. Il a été démontré qu'il est ainsi possible d'utiliser les capteurs CMOS pour la détection quantitative de particules  $\alpha$  du radon. Cependant, la mise en place d'un capteur exclusivement dédié à ce type de rayonnement offrirait de meilleurs résultats.

Dans le but de mettre au point un premier prototype de dosimètre électronique pour la mesure du radon, les équipes IReS/LEPSI sont en train de concevoir un nouveau circuit

(ALPHARAD) intégrant les fonction de capteur, d'amplification du signal, de réjection du bruit et de compteur *on-chip* pour lequel un brevet européen (N°02360302.0) a été déposé en 2002.

En conclusion, les avantages de ce dispositif par rapport à ceux existant, sont :

- son petit volume (comparable à celui d'un téléphone portable),
- son autonomie et sa simplicité pas de développement chimique,
- son comptage temporel direct (dosimétrie opérationnelle),
- son absence de haute tension (alimentation par batterie).

Pour ce dernier point, une micro-cathode a été conçue afin d'optimiser le champ de collection tout en assurant la détection résolue des deux raies alpha ( $^{218}\text{Po}$  et  $^{214}\text{Po}$ ) grâce à des épaisseurs calibrées de silicium jouant le rôle d'absorbants.

Des études préliminaires concernant la détection neutrons ont été réalisées pour caractériser la sensibilité du système à différentes gammes d'énergie neutron. Les neutrons rapides sont convertis en protons via un convertisseur hydrogéné, et les neutrons thermiques en particules  $\alpha$ . Des calculs de simulation Monte Carlo de la fonction de réponse de ce système à l'aide du code MCNP, ont été effectués. La validation de ces calculs est basée sur la comparaison avec la dosimétrie passive par Détecteurs Solides de Traces Nucléaires (PN3, CR39) et par détecteurs photostimulables en utilisant les techniques de traitement d'images.

- o - o - o - o - o - o - o -

# **Références bibliographiques**



- Alp98** User Manual  
Portable Radon Monitor AlphaGUARD,  
Genitron Instruments, Germany, (1998)
- Amg02** K. Amgarou  
Thèse d'Universitat Autònoma de Barcelona, (2002)
- Azk99a** K. Azkour  
Thèse d'Université Chouaib Doukkali - El Jadida Maroc, (1999)
- Azk99a** K. Azkour, A. Nourreddine, J. C. Adloff & A. Pape  
Rad. Meas. 31(1999) 223
- Bal97** V.V. Balashov  
Interaction of particles and radiation with matter,  
Springer, (1997)
- Bar94** R. Barillon  
Thèse de Franche-Comté France, (1994)
- Bar97** R. Barillon, M. Fromm, A. Chambaudet, H. Marah & A. Sabir  
Radiat. Meas. 28 (1997) 619
- Ber78** M.J. Berger & J.H. Hubbell  
XCOM : Photon cross section on a personal computer,  
Report NBSIR 87-3597 (National Bureau of Standards, Gaithersburg, MD (1978)
- Bet33** H. A. Bethe  
Stosstheorie, Handbuch der Physik, 24 (1933) 491
- Bie03** J.P. Biersack, J.F. Ziegler  
Code SRIM-2003. <http://www.srim.org/SRIM/SRIM2003.htm>
- Bil02** L. Bilali, A. Aouad, K. EL harfi, M. Benchanaâ & A. Moukhliisse  
J. Anal. Appl. Pyrolysis 65 (2002) 221
- Bou00** A. Boukhair  
Thèse d'Université Chouïb Doukkali - El Jadida Maroc, (2000)
- Bri97** J. F. Briesmeister  
MCNP – A General Monte Carlo N-Particle Transport Code,  
LA-12625-M, (1997)
- Cas78** R.M. Casson & E.V. Benton  
Nucl. Track Detection. 2, p173, (1978)
- Chu78** W.K. Chu, J.W. Mayer & M.A. Nicolet  
Backscattering Spectrometry and radiation,

- Academic Press, Inc. (London) Ltd., (1978)
- Cut83** N. H. Cutshall, I. L. Larsen & C. R. Olsen,  
Nucl. Inst. Meth. Phys. Res. B206 (1983), 309
- Dav99** W. David, L. Bronson  
Model S573 ISOCS Calibration Software, (1999)
- Dep02** G. Deptuch  
Thèse d'Université Louis Pasteur de Strasbourg, France, (2002)
- Dur87** S.A. Durrani & R.K. Bull  
Solid State Nuclear Track Detection  
Pergamon Press (1987)
- Ele95** E-Perm<sup>®</sup> System Manual,  
Electr& Passive Environmental Radon Monitor (E-Perm<sup>®</sup>) System for Measurement of  
Radon in Air,  
Genitron Instruments, Germany, (1995)
- Fer03** J.M. Fernandez-Vera & J. Sempau  
PENELOPE- A code for System for Monte Carlo Simulation of Electron and Photon  
Transport. Workshop Proceedings. Issy-les-Moulineaux, France, 7-10 July (2003)
- Fer91** F. Fernandez, C. Domingo, C Baixeras, E. Luguera, M. Zamani & M Debeauvais  
Nucl. Tracks Radiat. Meas.19 (1991) 467
- Fil87** K. Filali-Jaouhari  
Thèse de Clermont II France, (1987)
- Fle63** R.L. Fleischer & P.B. Price  
Science 140 (1963) 1221
- Fle64** R.L. Fleischer, P.B. Price, R.M Walker & E.L Hubbard  
Phys. Rev. 133A, (1964) 1443
- Fle65** R.L Fleischer, P. B Price & R.M Walker  
J. Appl. Phys. 36, (1965) 3645
- Fle98** R.L. Fleischer  
Tracks to innovation, nuclear track in science and technology  
Springer (1998)
- Fro91** M. Fromm, F. Membery, A. Chambaudet & R. Saouli  
Nucl.Tracks Radiat. Meas. 19 n° 1- 4, (1991) 163
- Gea94** Geant, Detector description and simulation tool,  
CERN Program Library (1994)
- Hec60** H.H. Hekmann, B.L. Perkins, W.B. Simon, F.M. Smith & WH. Barkas  
Phys. Rev., 117, (1960) 544



- Hen71** R.P. Henke & E.V. Benton  
Nucl. Instr. Meth. 97, (1971) 483
- Jon92** G. Jonsson & R. Hellborg  
Nucl. Inst. Meth. B63, (1992) 399
- Kit90** M. E. Kitto  
Appl. Radiat. Isot. 42 (1990) 825
- Kno00** G.F Knoll  
Radiation detection and measurement,  
J. Wiley and Sons 3<sup>rd</sup> edition (2000)
- knu88** E. O. Knutson  
Modeling indoor concentrations of radon's decay products. in: Radon and its decay products in indoor air  
Eds. Nazaro. W. W and Nero A. V., John Wiley & Sons, (1988) 161
- Kob75** L. Koblinger  
Nucl. Sci. Eng., 56, (1975) 218
- Led78** C.M. Lederer & V.S. Shirley  
eds., Table of Isotopes, 7<sup>th</sup> edition (Wiley, New York) appendix III, (1978)
- Lid01** D.R. Lide  
CRC Handbook of Chemistry and Physics,  
81<sup>st</sup> ed., CRC Press, West Beach Lakes, FL, (2001)
- Mem90** F. Membrey, A. Chambaudet, M. Fromm & R. Saouli  
Nucl. Tracks Radiat. Meas. 17, (1990)183
- Met49** N. Metropolis & S. Ulam  
The Monte Carlo,  
J. of the Am. Stast. Asso. 44 (1949) 335
- Mey97** P. Meyer, M. Jouffroy, F. Membry, M; Fromm & A. Chambaudet  
Rad. Prot. Dosim. 74 (1997) 75
- Mor75** J. Morel, rapport,  
CEA-R-4656, (1975) 73
- Nac02a** A. Nachab, M. Benjelloun, A. Nourreddine & A. Pape  
Physical and Chemical News, 7 (2002) 52
- Nac02b** A. Nachab, A. Nourreddine, D. Oster, S. Kihel, L. Mougin & A. Pape  
Journées de L.A.R.D, Strasbourg, France, 7-8 octobre (2002)
- Nac02c** A. Nachab, A. Nourreddine, M. Benjelloun, D. Oster, S. Kihel & A. Pape  
Journées des jeunes chercheurs, Aussois, France, 9-13 décembre (2002)

- Nac03a** A. Nachab, A. Nourreddine, M. Benjelloun, D. Oster, S. Kihel & A. Pape  
Nucl. Instr. Meth, B 215 (2004) 228
- Nac03b** A. Nachab, A. Nourreddine, M. Benjelloun & A. Pape  
Accepté pour publication dans « Physical and Chemical News », Août (2003)
- Nac03c** A. Nachab, S. Higuere, D. Husson & A. Nourreddine  
Soumis pour publication au Nucl. Instr. Meth. B
- Pap98** A. Pape, J.C. Adloff, A. Haessler, A. Hoernel, A. Nourreddine, D. Oster & D. Weidmann  
Nucl. Instr. Meth. 143 (1998) 55
- Paw95** Physics Analysis Workstation  
CERN Program Library, (1995)
- Puz98** J. M. Puzovic, I. V. Anicin  
Nucl. Inst. Meth. Phys. Res. A414 (1998) 279
- Ram98** I. Ramos-Lerate, M. Barrera, R. A. Ligerro & M. Casas-Ruiz  
J. Env. Radiat. 38 (1998) 47
- Sie65** K. Siegbahn  
Alpha, beta and gamma-ray spectroscopy,  
North Holland Publishing Company (1965)
- Som80** G. Somogyi  
Nucl. Inst. Meth. 173 (1980) 21
- Sze94** S. M. Sze  
Semiconductor Sensors, John Wiley & Sons,  
New York, USA, (1994)
- Tan80** A. B. Tanner  
Asupplementary review, J.A.S. Adams, W. M. Lowder & T. F. Gesell, Eds, The nat. Rad.  
Env. II, US ERDA, Springfield, (1980) 5
- Tia01** D. Tian, D. Xie, Y. Ho, F. Yang,  
J. Nucl. Sci. Tech. 38 (2001) 655
- Vag01** F. Vaginay  
Thèse d'université Franche-Comte Besançon, (2001)
- Wie77** L. Wielopolski  
Nucl. Inst. Meth. Phys. Res, 143 (1977) 577
- Zet84** P. Zettwoog & J. Le Gac  
Club Vessivière- rapport CEA, (1984)

# **Annexes**



<<<< DETECTEUR GeHYP >>>>

C

C ----- Definition des cellules -----|

C

c 2 2 -1.000000 -7 -8 9 \$ source  
c 3 3 -0.920000 -10 -18 19 #2 \$ flacon en (CH2)n  
4 4 -5.3230000 -11 13 -14 #9 \$ crystal en Ge  
5 5 -2.700000 -12 15 -14 #4 #6 #7 #9 #11 \$ capot en Al  
6 1 -0.001293 -16 15 -20 \$ la fenetre  
7 1 -0.001293 -121 20 -14 #4 #9 #11 \$ l'air qui separe le capot et le Ge  
c 8 6 -1.170000 -22 23 -14 #4 #5 #6 #7 #9 #10 #11 \$ suport de la source en plexyglace  
9 1 -0.001293 -24 25 -14 \$ puit du crystal  
c 10 1 -0.001293 -10 18 -191  
11 4 -5.3230000 -115 135 -14 #4 #9  
12 1 -0.001293 30 -31 -14 32 33 -34 #4 #5 #6 #7 #9 #11  
13 7 -8.960000 (-30:31:14:-32:-33:34) (30 -36 -14 37 38 -39)  
14 8 -11.35000 (-30:36:14:-37:-38:39) (30 -41 -14 42 43 -44)  
15 0 #4 #5 #6 #7 #9 #11 #12 #13 #14\$ outside

C

C

C

C ----- Definition des surfaces -----|

C

8 PZ 2.35  
9 PZ -2.35  
18 PZ 2.45  
19 PZ -2.45  
7 CZ 1.87  
10 CZ 1.97  
11 CY 2.45  
115 CY 2.55  
12 CY 3.50  
121 CY 3.40

13 PY 2.47  
135 PY 2.37  
14 PY 6.67  
15 PY 2.07  
16 CY 0.05  
20 PY 2.17  
22 CY 4.00  
23 PY -2.27  
24 CY 0.60  
25 PY 3.43  
191 pz 4.005  
30 py -13.33  
31 pz 9.50  
32 pz -9.50  
33 px -9.50  
34 px 9.50  
36 pz 9.60  
37 pz -9.60  
38 px -9.60  
39 px 9.60  
41 pz 14.6  
42 pz -14.6  
43 px -14.6  
44 px 14.6

C

---

C

C

C ----- Defintion de la source et des materiaux -----|

C

MODE P

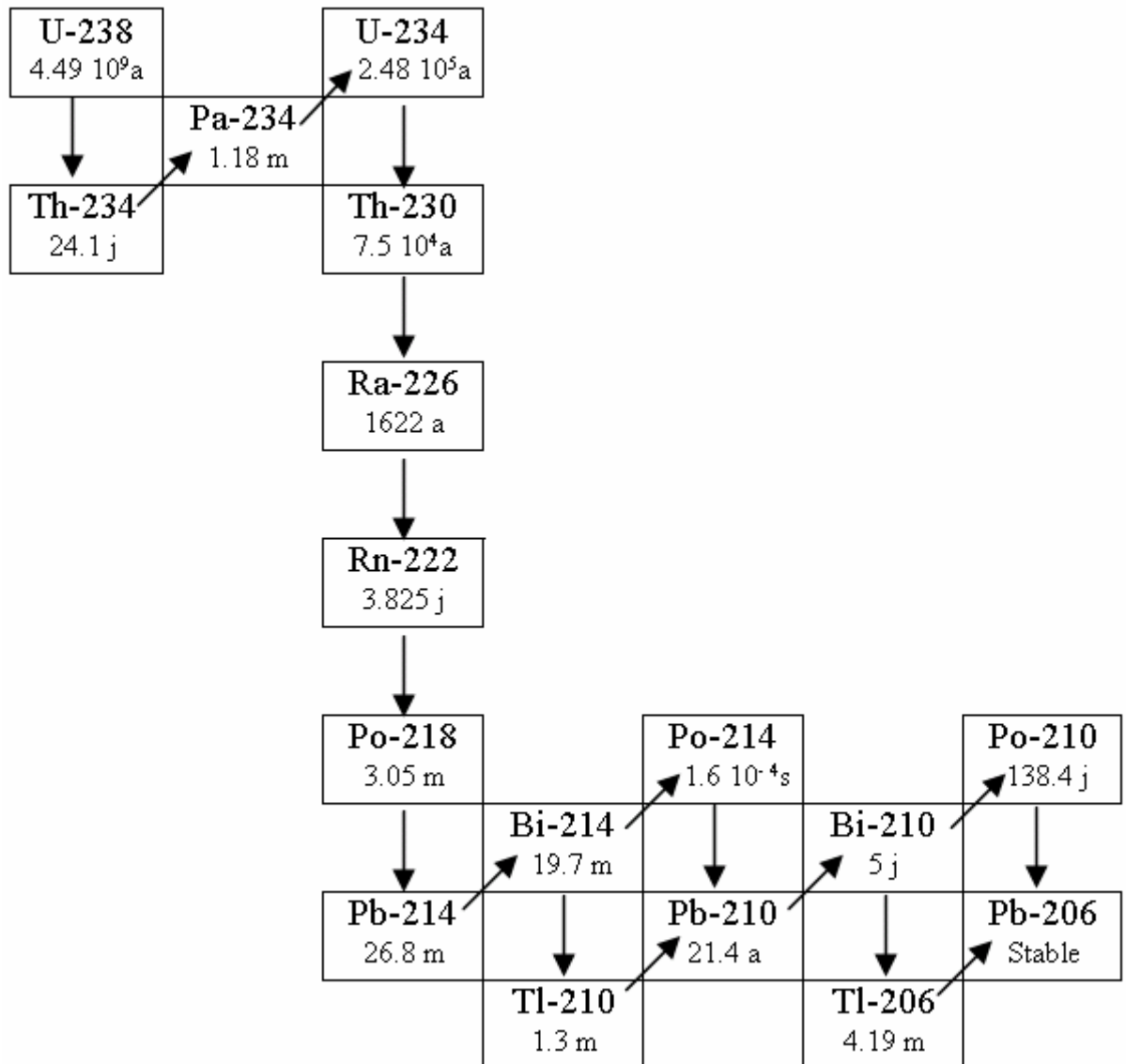
IMP:P 1 1 1 1 1 1 1 1 1 0

SDEF erg=d1 pos= 0 -7.83 0

Si1 L 0 0.0532 0.0796 0.0810 0.1606 0.2232 0.2764 0.3029 0.3560 0.3830

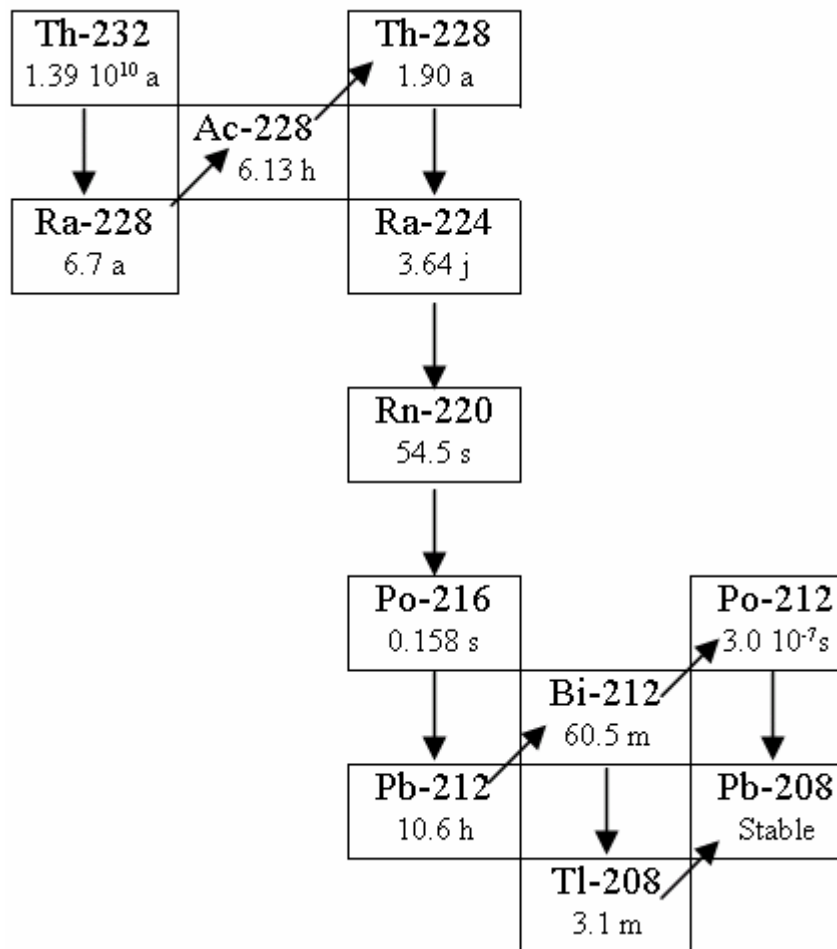
Sp1 D 0 0.0211 0.0262 0.3406 0.0064 0.0045 0.7164 0.1833 0.6205 0.0894  
E0 0 399i 0.4  
F8:P 4  
FT8 GEB 0.67495E-3 0.98233E-3 0  
m1 8000.01P -0.2421 7000.01P -0.7553 6000.01P -0.0021&  
18000.01P -0.0005  
c m2 8000.01P -0.34 1000.01P -0.66  
c m2 8000.01P -0.57 1000.01P -0.29 16000.01P -0.14  
c m3 1000.01P -0.67 6000.01P -0.33  
m4 32000.01P 1.0  
m5 13000.01P 1.0  
c m6 1000.01P -0.5000 6000.01P -0.3333 8000.01P -0.1667  
m7 29000.01P -1  
m8 82000.01P -1  
NPS 300000000  
PRDMP 1000000 -15 1 1 0  
C \_\_\_\_\_  
C

**Annexe I :** *Fichier input pour une simulation par MCNP*

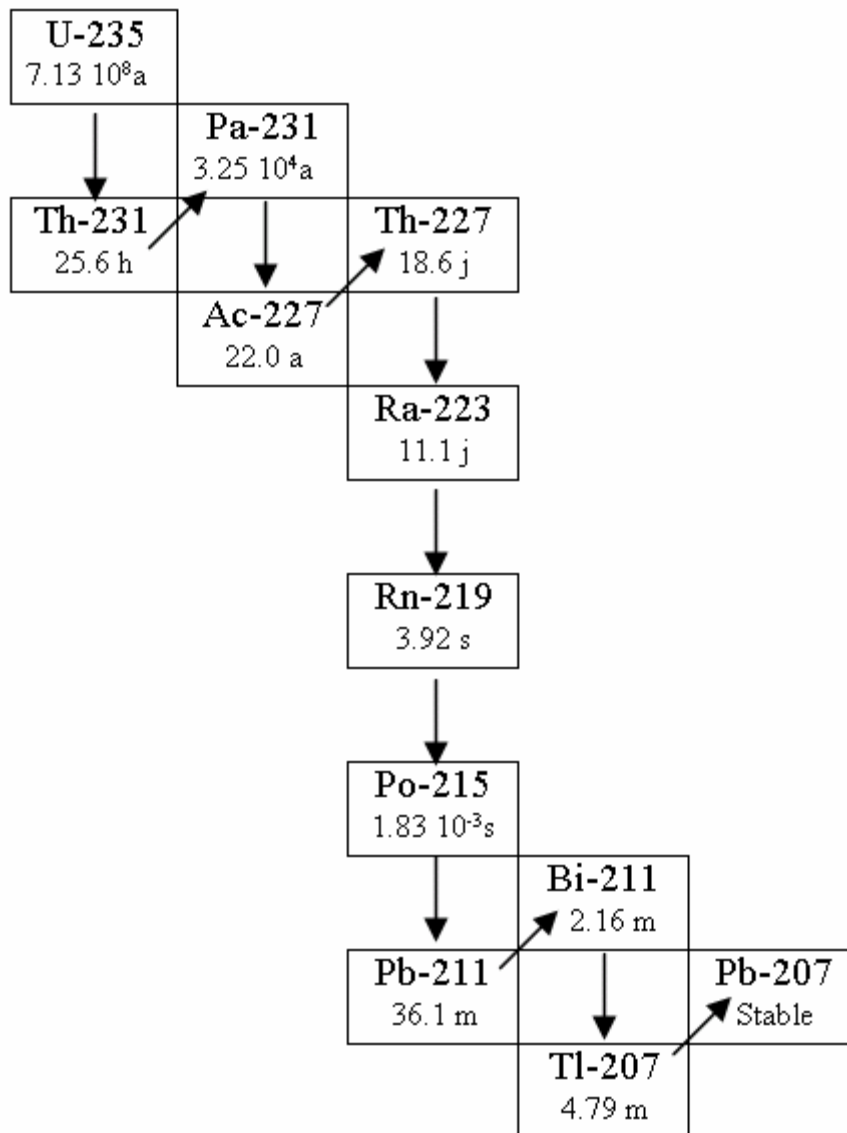


**Annexe II-1 :** Schéma de désintégration de la famille de  $^{238}\text{U}$  mettant en évidence la succession d'éléments formés au cours de la désintégration





**Annexe II-2 :** Schéma de désintégration de la famille de  $^{232}\text{Th}$ , mettant en évidence la succession d'éléments formés au cours de la désintégration



**Annexe II-3:** Schéma de désintégration de la famille de  $^{235}\text{U}$ , mettant en évidence la succession d'éléments formés au cours de la désintégration

**read\_file.f**

```
program read_file
  integer systemf,statf
  character*30 cfile
  character*3 nom
  integer*4 info(12)
  integer*4 ia(32),ib(32)
  integer*2 ic(64)
  equivalence (ic,ib)
  integer*4 isum(64,64),isum5(64,64),ient5(64,64),ient(64,64)
  real*4 sum(64,64),sumt(64,64),sum5(64,64)
10  print*,"Donner le nom de la matrice"
  read*,nom
  If (nom .ne. "a".and. nom .ne. "b") then
  print*,"Erreur"
  goto 10
  endif
  do i=1,64
  do j=1,64
  sum(i,j)=0
  sumt(i,j)=0
  sum5(i,j)=0
  ient(i,j)=0
  ient5(i,j)=0
  enddo
  enddo
  nnma=0
  nnmat=0
*
  nfile=0
  istat=systemf('ls nom\_du\_fichier\_à\_traiter>result.dat')
  print *, ' systemf istat ',istat
  open(10,file='result.dat',status='old',form='formatted')
```

---

```

& ,iostat=ier0)
if(ier0.ne.0) then
  print *,' erreur open result.dat ',ier0
  stop
endif
100  read(10,'(a)',end=101) cfile
     nfile=nfile+1
     ln=lenocc(cfile)
     istat=statf(cfile(1:ln),info)
     print *,' fichier ',nfile,' ',cfile(1:ln),ln,info(7)
     if(istat.ne.0) stop 99
*
     lin=60
     open(lin,file=cfile(1:ln),status='old',access='direct'
& ,recl=32*4,form='unformatted',iostat=ier1)
     print *,'open file ',lin,ier1
     lout=61
     if(ier1.eq.0) then
       imat=2
* nombre total de matrices
       nmat=info(7)/64/64/2   ! mat 64X64 mot 16 bit=2 octets
* nombre matrice A ou B
       nmat=nmat/2

1  If (nom= "a") then
   ideb=(imat-1)*128+1   ! ( mat A )
elseif (nom= "b") then
   ideb=(imat-1)*128+1+64  ! ( mat B )
endif
c 1  ideb=(imat-1)*128+1   ! ( mat A )
c 1  ideb=(imat-1)*128+1+64  ! ( mat B )
     ifin=ideb+64-1
     icol=0
     isel=0
     print *,' matrice ',nmat,ideb,ifin

```

---

---

```

do nrec1=ideb,ifin
  read(lin,rec=nrec1) (ia(i),i=1,32)
  icol=icol+1
  do i=1,32
    ia1=ishftc(ia(i),-8,32)
    ia2=iand(ia1,-16711936) ! 'FF00FF00'x
    ia3=iand(ia1,16711935) ! '00FF00FF'x
    ia4=ishftc(ia3,-16,32)
    ia1=ior(ia2,ia4)
    ib(i)=ishftc(ia1,-16,32)
  enddo ! i
*
*****
c      do k=2,64
c      if(ic(k).ne.0.and.ic(k-1).eq.0) ic(k)=0
c      enddo
c      endif
*****
if(isel.eq.0) then ! au moins 1 pixel > 5
do k=1,64
  if(ic(k).ge.50.and.ic(k).le.255) isel=1
enddo ! k
endif
do k=1,64 ! matrice lue
  isum(k,icol)=ic(k)
isum5(k,icol)=0
if(ic(k).ge.50.and.ic(k).le.255) isum5(k,icol)=ic(k)

  enddo
enddo ! nrec1

*
nnmat=nnmat+1
if(isel.eq.1) print *, ' matrice pixel > 50 ',nnmat,imat
do i=1,64

```

---

---

```

do j=1,64
  sumt(i,j)=sumt(i,j)+isum(i,j)
enddo ! j
enddo ! i
if(isel.eq.1) then
  nnma=nnma+1 ! matrice avec au moins 1 pixel > 5
  do i=1,64
    do j=1,64
      sum(i,j)=sum(i,j)+isum(i,j)
      if(isum(i,j).ne.0) ient(i,j)=ient(i,j)+1
      sum5(i,j)=sum5(i,j)+isum5(i,j)
      if(isum5(i,j).gt.0) ient5(i,j)=ient5(i,j)+1
    enddo ! j
  enddo ! i
endif
*
  imat=imat+1
  if(imat.lt.nmat) go to 1 ! matrice suivante
  close(lin)
endif
go to 100
101 continue
*
  do i=1,64
    do j=1,64
      if(ient(i,j).gt.0) sum(i,j)=sum(i,j)/float(ient(i,j))
      if(ient5(i,j).gt.0) sum5(i,j)=sum5(i,j)/float(ient5(i,j))
      sumt(i,j)=sumt(i,j)/float(nnmat)
    enddo
  enddo
*
  ier2=0
  open(lout,file='fich1',status='new'
& ,form='unformatted',iostat=ier2)
  print *,'open file ',lout,ier2

```

---

```
if(ier2.eq.0) then
  write(lout) ((sum(i,j),i=1,64),j=1,64)
  write(lout) ((sum5(i,j),i=1,64),j=1,64)
  write(lout) ((sumt(i,j),i=1,64),j=1,64)
close(lout)
endif
print *, ' end job ', nrec1, ' records in ', nnma, nnmat, ' matrices A'
end
```

**Annexe III-1**

**track\_sup.kumac**

```
for/file 66 image1.jpg
graphics/meta 66 -111
h/del *
option *
option date
*
appli comis quit
  subroutine data
    vector sum(64,64),sumt(64,64),sum5(64,64)
    ier2=0
    lout=30
    open(lout,file='fich1',status='old'
& ,form='unformatted',iostat=ier2)
    print *,'open file ',lout,ier2
    if(ier2.eq.0) then
      read(lout) ((sum(i,j),i=1,64),j=1,64)
      read(lout) ((sum5(i,j),i=1,64),j=1,64)
      read(lout) ((sumt(i,j),i=1,64),j=1,64)
      close(lout)
    endif
  end
quit
* set hcol 1206
selnt 1
* igset txci 3
* igset txfp -100
set tfon -20
zone 1 1
call data
* 2d 100 'Traces alpha du Radon enregistres dans A',nnma 64 0. 64. 64 0. 64. 0.
* put_vec/cont 100 sum
* lego 100
*
```



```
2d 101 ' ' 64 0. 64. 64 0. 64. 0.  
put_vec/cont 101 sum5
```

```
contour  
pic/print seb.jpg  
for/close 66
```

### **Annexe III-2**

## single\_mat.kumac

```
macro single_mat 1=' ' 2=5 3=A
* arg 1 = nom fichier  arg2 = seuil pixel (5 par defaut) arg3 = matrice A ou B
if [1] = ' ' then
  read cfile
else
  cfile = [1]
endif
cseuil=[2]
cmat=[3]
*
h/del *
option *
option date
*
appli comis quit
  subroutine lec(ievi,cflen,cfile,cseuil,cmat)
    character cflen*(*)
    character cfile*(*)
    character cseuil*(*)
    character cmat*(*)
    vector nend(1),numev(2)
    vector amat(64,64)
    dimension ma(32)
    data m1/-65536/
    data lfil/0/
* nb matrices A et B dans le fichier
  if(lfil.eq.0) then
    len=lenocc(cfile)
    read(cflen,10) lfil
    read(cseuil,10) iseuil
    if(cmat(1:1).eq.'A') imat=0
    if(cmat(1:1).eq.'B') imat=64
```

```

    print *, ' seuil pixel ',iseuil
10  format(i10)
    nmat=lfil/(64*64*2)
    numev(2)=nmat/2
    print *, ' matrice ',cmat(1:1),imat
    print *, ' fichier ',cfile(1:len),len
    print *, ' nb matrices A et B ',nmat,' nb octets ',lfil
endif
*
    nend(1)=0
    open(66,file=cfile(1:len),form='unformatted',
&  access='direct',recl=32*4,iostat=is)
    if(is.eq.0) then
    iev=ievi
1    k=0
    ideb=(iev-1)*128+1+imat
    ifin=ideb+64-1
    ir=0
    isel=0
    do jrec=ideb,ifin
    ir=ir+1
    read(66,rec=jrec) (ma(i),i=1,32)
    k=1
    do i=1,32
*  echange bytes 1 2 3 4 --> 4 3 2 1 les 4 octets d'un mot de 32 bits
    ia1=ishftc(ma(i),-8,32)
    ia2=iand(ia1,-16711936)
    ia3=iand(ia1,16711935)
    ia4=ishftc(ia3,-16,32)
    ia1=ior(ia2,ia4)
*  4 3 2 1 -> 2 1 4 3 remise en ordre des mots de 16 bits
    ma(i)=ishftc(ia1,-16,32)
*  mots 16 bits dans mots 32 bits avec propagation du signe
    i2=jbyt(ma(i),1,16)
    i1=jbyt(ma(i),17,16)

```

```
    if(jbit(i1,16).eq.1) then
      i1=ior(i1,m1)
    endif
    if(jbit(i2,16).eq.1) then
      i2=ior(i2,m1)
    endif
amat(k,ir)=i1
amat(k+1,ir)=i2
k=k+2
if(i1.ge.iseuil.or.i2.ge.iseuil) then
  isel=1
endif
enddo
enddo
if(isel.eq.0) then
  iev=iev+1
  if(iev.gt.nmat/2) go to 99
  go to 1
endif
close(66)
endif
numev(1)=iev
go to 91
99  print *, ' fin fichier ',iev,nmat/2
    nend(1)=1
    go to 90
91  print *, ' matrice ',cmat(1:1),iev,ideb,ifin
90  continue
    end

quit
zone 1 1
* nbre octets du fichier dans coct sous forme caractere
lsfc = 'ls -l //[cfile]
*lsf = $shell('ls -l 03-07-2002_22h51m54s',' ')
lsf = $shell([lsfc],' ')
```

```
cnam = $word([lsf],9,1)
coct = $word([lsf],5,1)
mess [lsf]
mess [coct] [cnam] [cseuil] [cmat]
*
* matrices A
titre = 'Matrice '//[cmat]
2d 400 $quote([titre]) 64 0. 64. 64 0. 64. 0.
iev=2
v/inp numev(2) 2
nmat: read iev ' stop = 0'
while ( ([iev] > 0) .AND. ([iev] <= numev(2)) ) do
  call lec([iev],$quote([coct]),$quote([cnam]),$quote([cseuil]),$quote([cmat]))
  if nend(1) > 0 goto fin
  mess " matrice "[iev]
  put_vect/cont 400 amat
  lego 400
  * contour
  iev = numev(1) + 1
  if [iev] > numev(2) then
    mess 'fin de lecture des matrices' [iev] numev(2)
    breakl
  endif
  goto nmat
endwhile
fin:
return
```

### Annexe III-3

