



N° d'ordre UdS 1942

THÈSE

Présentée en cotutelle pour obtenir le grade de

Docteur de l'Université de Strasbourg, France
et de l'Université des Sciences, des Techniques et des Technologies de Bamako, Mali

Discipline/Spécialité : *Physique/Physique des particules élémentaires*

Présentée par

ISSIAKA TRAORE

**Etude et caractérisation des fonctions de réponse
des Détecteurs Solides de Traces Nucléaires :
Application à la dosimétrie radon et neutron**

Soutenue le : 07 Juin 2013

Membres du jury :

Co-directeurs de thèse : Abdel-Mjid NOURREDDINE, Université de Strasbourg
Abdramane BA, Université des Sciences, des Techniques
et des Technologies de Bamako

Rapporteurs externes : Marco CUFFIANI, Université de Bologne
Said FAKHI, Université Hassan II-Mohammedia

Examineurs : Vincent TOGO, INFN, Section de Bologne
Jean Marc JUNG, Université de Strasbourg
Abdellatif NACHAB, IPHC Strasbourg

A Yennenga et Nefertari

RÉSUMÉ

Cette thèse a été préparée en cotutelle entre l'Université de Strasbourg et l'Université des Sciences Techniques et Technologies de Bamako (Mali). Elle s'articule principalement autour de la caractérisation des Détecteurs Solides de Traces Nucléaires (DSTN) afin de les utiliser pour la métrologie du radon et des neutrons conformément aux nouvelles recommandations de la Commission Internationale de Protection Radiologique (CIPR-103). Les fonctions de réponse de PN3 et Neutrak, associés avec des convertisseurs adaptés, ont été étudiés en les irradiant par des neutrons du calibrateur Am-Be de l'IPHC (Institut Pluridisciplinaire Hubert Curien), aux protons de 1 à 3 MeV de l'accélérateur Van de Graaff de l'INESS (INstitut d'Electronique du Solide et des Systèmes) et par des neutrons de référence thermiques et rapides auprès des installations de l'IRSN (Institut de Radiologie et de Sûreté Nucléaire).

En dosimétrie neutronique, nous avons pu reproduire les résultats d'un test d'intercomparaison pour des neutrons rapides organisé par l'IRSN qui a validé nos mesures expérimentales, ce qui a permis de les appliquer aux neutrons thermiques. Un prototype de dosimètre neutrons basé sur la détection des thermiques a été testé avec succès au calibrateur de l'IPHC. Nous avons ainsi pu démontrer la faisabilité d'un dosimètre pouvant discriminer la contribution des neutrons thermiques des neutrons rapides par des convertisseurs chargés en bore BE10 et BN1. Les étalonnages de PN3 par des protons et des particules alpha permettraient de reconstituer le spectre en énergie des neutrons et de déterminer la dose associée.

En métrologie radon, l'étalonnage de CR-39 dans une chambre à ^{222}Rn a fourni une valeur de $0,12 \pm 0,02 \text{ tr.cm}^{-2}.\text{j}^{-1}.\text{Bq}^{-1}.\text{m}^3$. Elle a été comparée à la valeur $0,13 \text{ tr.cm}^{-2}.\text{j}^{-1}.\text{Bq}^{-1}.\text{m}^3$ obtenue par simulation Monte Carlo à l'aide du code MCNPX. Comme application, la concentration et la dose effective annuelle du radon ont été déterminées pour la première fois dans des habitats de Bamako. Toutes les valeurs obtenues se trouvent dans les limites de sécurité recommandées par la CIPR. Egalement pour la première fois, des mesures par spectrométrie gamma et par contact radiographie ont été réalisées sur des échantillons de sol malien. Les activités massiques mesurées pour les régions de Sé-

gou, Sikasso, Bamako et Kayes se trouvent dans la gamme de 19,9 à 132 Bq.kg⁻¹.

ABSTRACT

This thesis was prepared in cotutelage between the University of Strasbourg and the University of Technical Sciences and Technology of Bamako (Mali). It deals principally with the characterization of Solid State Nuclear Track Detectors (SSNTD) for measuring radon and neutrons in conformity with the new recommendations of the International Commission for Radiation Protection (CIPR-103). The response functions of PN3 and Neutrak, associated with adapted converters, have been studied in irradiations with neutrons at the Am-Be irradiator of the IPHC (Institut Pluridisciplinaire Hubert Curien), with 1 to 3 MeV protons of the Van de Graaff accelerator of the INESS (INstitut d'Electronique du Solide et des Systèmes) and by reference thermal and fast neutrons at the IRSN (Institut de Radiologie et de Sécurité Nucléaire). As concerns neutron dosimetry, we could reproduce the results of fast neutron intercomparison test organized by the IRSN, which validated our experimental methods and permits them to be applied to thermal neutrons. A prototype neutron dosimeter based on thermal detection has been successfully tested at the IPHC's irradiator. The feasibility of a dosimeter to discriminate thermal and fast neutrons using boron-containing BE10 and BN1 converters has been demonstrated. Calibrations of PN3 with protons and alpha particles will permit reconstituting neutron energy spectrum and to determine the associated dose. Calibration of CR-39 in a ²²²Rn chamber furnished the value $0.12 \pm 0.02 \text{ tr.cm}^{-2}.\text{d}^{-1}.\text{Bq}^{-1}.\text{m}^3$ that can be compared to the value $0.13 \text{ tr.cm}^{-2}.\text{d}^{-1}.\text{Bq}^{-1}.\text{m}^3$ obtained by MCNPX simulation. As an application, the concentration and annual effective dose of radon has been determined for the first time in some dwellings of Bamako. All of the values are within the security limits recommended by the CIPR. Also for the first time, measurements by gamma spectrometry and by contact radiography were made on samples of Malian soil. The mass activities

measured for the regions of Ségou, Sikasso, Bamako and Kayes fall in the range of 19.9 to 132 Bq.kg⁻¹.

REMERCIEMENTS

Le début de mon aventure en thèse a commencé en 2007 avec ma participation à Trieste en Italie à un cours d'été sur la physique des particules organisé par l'I.C.T.P (International Centre for Theoretical Physics) du 11 au 22 Juin sous l'impulsion et les encouragements de mon encadreur le Professeur Abdramane BA. C'est ici l'occasion pour moi de lui adresser les premiers vifs remerciements et ma profonde reconnaissance à son endroit. Merci de m'avoir poussé dans cette aventure merveilleuse.

De retour de Trieste, j'ai été accueilli par l'équipe de l'INFN de Bologne où j'ai commencé mes premiers pas dans la recherche sous la direction du Professeur émérite Giorgio GIACOMELLI et de son équipe ; qu'ils trouvent dans ce travail l'expression de ma gratitude. Vincent TOGO l'interface entre l'Université des Sciences des Techniques et des Technologies de Bamako (USTTB) et l'Institut National de Physique Nucléaire de Bologne (INFN) n'a ménagé aucun effort pour m'accompagner tout au long de ma thèse même pendant la douloureuse période qu'il a traversée avec la maladie de sa femme qui a disparu tragiquement. Que son âme repose en paix. Merci encore Vincent de m'avoir mis dans toutes les conditions durant tous mes séjours à Bologne.

Mon aventure m'a conduit par la suite vers l'horizon du groupe RaMsEs (Radioprotection et Mesures environnementales) de l'IPHC (Institut Pluridisciplinaire Hubert Curien) de Strasbourg où le Professeur Abdel-Mjid Nourreddine m'a accueilli dans son laboratoire à bras ouvert. Il a mis tous les moyens à ma disposition pour que je réussisse, il m'a ouvert plusieurs portes et des opportunités. Mes sincères et vifs remerciements au Professeur NOURREDDINE pour son hospitalité, sa générosité et la confiance qu'il m'a accordée.

Je tiens également à remercier tous les membres du groupe RaMsEs qui ont contribué de près ou de loin à l'élaboration de cette thèse, tout particulièrement à Addil SELLAM pour son aide précieuse à mon initiation à MCNPX. Merci aussi à Mathieu TROCME, Eric BAUSSAN et Marie VANSTALLE pour leur disponibilité et leur aide précieuse. Un clin d'œil amical à Estelle, Youbba et Grégoire.

Mes pensées fraternelles à Samir DZIRI avec qui j'ai partagé le déjeuner, le stress, l'actualité souvent très chaude du continent africain. Je n'oublierais pas les quelques moments en sa compagnie, les entraînements, les matchs de football auxquels nous prenions part. J'exprime ma sincère et profonde gratitude à Arthur PAPE pour le temps qu'il a consacré à la lecture de mes documents, pour sa rigueur, et son immense expérience au service des thésards. Je n'oublierais pas Abdelattif NACHAB qui par ses contributions pertinentes et sa méthodologie de travail m'ont permis d'avancer à grands pas dans la rédaction des articles et de terminer ma thèse dans les délais.

Il m'est aussi agréable de remercier mes collègues du département de physique de la FAST et les institutions qui m'ont accompagnées financièrement à savoir :

- le rectorat de l'université de Bamako à travers le Programme de Formation des Formateurs (PFF) ;
- le consulat de France à travers le programme SCAC ;
- le groupe RaMsEs de l'Institut Pluridisciplinaire Hubert Curien dont le directeur est le Professeur Abdel-Mjid NOURREDDINE.

Je voudrais aussi remercier mes parents, frères et sœurs pour leur patience, soutien et encouragement. Je ne saurais terminer sans exprimer ma gratitude à mon épouse et à mes filles.

TABLE DES MATIÈRES

Introduction	1
1. Interactions Rayonnement-Matière et dosimétrie . . .	4
1.1 Modes d'interactions des photons avec la matière	5
1.1.1 L'effet photoélectrique	5
1.1.2 L'effet Compton	7
1.1.3 L'effet de création de paire électron-positron . .	8
1.1.4 Loi d'atténuation et d'absorption des photons .	8
1.2 Modes d'interactions des particules chargées avec la matière	9
1.2.1 Particules chargées directement ionisantes . . .	9
1.3 Transfert linéique d'énergie ou pouvoir d'arrêt .	11
1.4 Parcours et portée des particules chargées	12
1.5 Interaction neutron-matière	14
1.5.1 Propriétés	14
1.5.2 Section efficace des neutrons	16
1.5.3 Sources neutroniques	16
1.5.3.1 Accélérateurs de particules	17
1.5.3.2 Réacteurs nucléaires	17
1.5.4 Sources isotopiques	19
1.5.4.1 Fission spontanée	19
1.5.4.2 Source (α, n)	20
1.5.4.3 Source (γ, n)	22
1.5.5 Interactions des neutrons avec la matière . . .	23
1.5.5.1 La diffusion	23
1.5.6 Autres sources de neutrons	28
1.5.7 Détection des neutrons	29
1.5.7.1 Détection des neutrons grâce aux protons de recul	30
1.5.7.2 Détection des neutrons grâce aux particules alpha	32
1.6 Dosimétrie	33
1.6.1 Les grandeurs physiques	34
1.6.1.1 Les grandeurs radiométriques	34
1.6.1.2 Les grandeurs dosimétriques	34

1.6.2	Les grandeurs de protection	35
1.6.2.1	Dose Equivalente	35
1.6.2.2	Equivalent de dose efficace ou dose efficace	35
1.6.2.3	Dose engagée	36
1.6.3	Grandeurs opérationnelles	37
1.6.3.1	Dosimétrie de zone ou d'ambiance	37
1.6.3.2	Dosimétrie individuelle	38
1.6.3.3	Grandeurs opérationnelles et limites annuelles de dose	40
1.7	Dosimètres	41
1.7.1	Dosimètres actifs	41
1.7.2	Dosimètres passifs	42
1.7.2.1	Historique et Principe des DSTN	42
1.7.2.2	Géométrie des traces observées dans les PADC	43
1.7.2.3	Les paramètres physiques liés aux DSTN	44
2.	Simulation Monte-Carlo	49
2.1	Les principes de base de la méthode Monte Carlo	50
2.1.1	Les méthodes d'échantillonnage	50
2.1.2	Les générateurs de nombres aléatoires	50
2.1.3	Incertitudes statistiques	51
2.2	Le code MCNP	51
2.2.1	Notion de trace, de poids d'une particule et de section efficace	53
2.2.2	Définition d'un fichier d'entrée dans MCNPX	55
2.2.3	Structure d'une simulation	56
2.2.3.1	Règles à observer dans un fichier de données	56
2.2.3.2	Définition des différentes structures	56
2.2.4	Les paramètres optionnels utilisés	60
2.2.4.1	Fiabilité d'une simulation	60
2.3	Le code GEANT4	61
2.3.1	Validation des codes de simulation	63
2.4	Code de traitement et d'analyse de données : ROOT	64
3.	Dosimétrie Radon	67
3.1	Etude de quelques propriétés du radon	69
3.1.1	Risques radio-toxicologiques liés au radon	69
3.1.2	Principe de réduction du radon	70
3.1.3	Energie Alpha Potentielle (EAP)	70

3.1.4	Facteur d'équilibre	71
3.2	Etalonnage des DSTN pour la mesure du Radon	72
3.2.1	Système d'étalonnage	72
3.2.2	Etalonnage des DSTN par simulation Monte Carlo MCNPX	75
3.3	Evaluation de la concentration du radon à Ba- mako et comparaison avec d'autres mesures en Afrique	76
3.3.1	Surveillance radiologique : réglementation en vi- gueur au Mali	76
3.3.2	Evaluation du radon à Bamako	77
3.3.3	Comparaison	78
3.3.4	Conclusion	79
4.	Mesures environnementales par LR115 et spectrométrie gamma	82
4.1	Dosimétrie alpha par contact autoradiographique avec des LR115	82
4.2	Mesure de l'activité par spectrométrie gamma .	84
4.2.1	La spectrométrie gamma : principe et application	84
4.2.1.1	Définition	84
4.2.1.2	Principe	85
4.2.1.3	Le détecteur semi-conducteur	85
4.2.1.4	Le préamplificateur	87
4.2.1.5	L'amplificateur	87
4.2.1.6	Le convertisseur analogique-numérique et l'analyseur multi-canaux	87
4.2.2	L'analyse par spectrométrie gamma	88
4.2.2.1	Préparation des échantillons	88
4.2.2.2	Etalonnage de la chaîne d'acquisition .	88
4.2.2.3	Préparation des échantillons pour analyse	91
4.3	Résultats	91
4.3.1	Conclusion	92
5.	Dosimétrie neutron	94
5.1	Dosimétrie neutron rapide	96
5.1.1	Notion d'équilibre protonique	96
5.1.2	Validation de nos méthodes expérimentales . . .	97
5.1.2.1	Test d'intercomparaison	97
5.1.2.2	Etalonnage des PN3 en vu du test d'in- tercomparaison	98
5.1.2.3	Résultats du test d'intercomparaison .	98
5.2	Dosimétrie neutron thermique	99

5.2.1	Production de neutrons thermiques	100
5.2.2	Étalonnage des dosimètres sur le dispositif Van Gogh de l'IRSN	101
5.2.2.1	Configuration d'irradiation	103
5.2.2.2	Résultats des irradiations de Van Gogh	103
5.2.3	Validation expérimentale du dosimètre PN3+BN1	108
5.2.3.1	Thermalisation de la source $^{241}\text{Am-Be}$ de l'IPHC	108
5.2.3.2	Test expérimental	108
5.2.3.3	Test avec MCNPX	110
5.2.4	Conclusion	111
6.	De la spectrométrie neutron à la dosimétrie neutron	113
6.1	Étalonnage des PN3 et Neutrak avec des parti- cules de protons	114
6.1.1	Étalonnage de la barrière de surface	114
6.1.2	Étalonnage des DSTN par des protons	116
6.1.2.1	Présentation de l'accélérateur Van de Graaf de Strasbourg	116
6.1.2.2	Expériences réalisées sur l'accélérateur Van de Graaf	117
6.2	Étalonnage des DSTN par des particules alpha .	121
6.2.1	Descriptif du dispositif expérimental pour l'éta- lonnage	121
6.2.2	Processus et résultats de l'étalonnage	122
6.2.3	Conclusion	123
	Conclusion générale	126
	<i>Annexe</i>	128
	A. Efficacité	129

LISTE DES TABLEAUX

1.1	Classification des neutrons selon leur énergie.	15
1.2	Quelques réactions utilisées pour la production de neutrons monoénergétiques en fonction d'un angle donné dans un accélérateur. E_{ps} et E_{ns} représentent l'énergie seuil. E_{n0} est l'énergie des neutrons si les deutons avaient une énergie nulle dans le cas des réactions (d,n) [Net78].	18
1.3	Valeurs de A et T tirées de [Bla99].	18
1.4	Quelques réactions (α,n) [Tro10]	21
1.5	Tableau récapitulatif des réactions neutrons-matière.	23
1.6	Fraction maximale d'énergie de neutron transférable aux noyaux de recul lors d'une collision frontale.	25
1.7	Seuil d'énergie de diffusion inélastique pour différents éléments.	26
1.8	Quelques réactions (n,x)	27
1.9	Valeurs de W_R selon les recommandations de l'ICRP [ICRP07].	36
1.10	Facteurs de pondération tissulaire [ICRP07]	36
1.11	Valeurs de limites recommandées (ICRP publication 60).	40
1.12	Caractéristiques des DSTN.	44
2.1	Tableau présentant la fiabilité d'une simulation Monte Carlo en fonction de l'erreur relative.	61
3.1	Isotopes principaux du Radon.	68
3.2	Energie Alpha Potentielle des descendants à vie courte du ^{222}Rn	71
3.3	Tableau récapitulatif de la concentration et de la dose effective annuelle du radon à Bamako.	78
4.1	Quelques caractéristiques de semi-conducteur à 300 K.	87
4.2	Activités d'échantillons de sols déterminées par spectrométrie gamma (les incertitudes sont données par le logiciel Genie 2000 et par LR115 (incertitudes statistiques).	91
4.3	Comparaison d'activité moyenne issue des publications [Ade12], [Nga08].	92

5.1	Configuration d'irradiation.	97
5.2	Quelques paramètres de matériaux modérateurs.	102
5.3	Fluence et équivalent de débit de dose ambiant à 75 cm.	103
5.4	Données expérimentales et simulées; les incertitudes de la simulation sont statistiques.	107
5.5	Données expérimentales et simulées par MCNPX.	111
6.1	Caractéristiques de la tri-source.	115

TABLE DES FIGURES

1.1	Classification des rayonnements.	5
1.2	Effet photoélectrique.	6
1.3	Effet compton.	7
1.4	Création de paire électron-positron.	8
1.5	Importance relative des trois types majeurs d'interaction photon matière établie à partir des tables de coefficients d'atténuation.	9
1.6	Coefficients d'atténuation massique en fonction de l'éner- gie des photons dans le plomb obtenu par le logiciel XMuDat	10
1.7	Pouvoir d'arrêt des protons et alpha dans le PN3 de formule $C_{12}H_{18}O_7$ par le code SRIM [Bie11].	11
1.8	Illustration du parcours projeté et du parcours moyen correspondant au trajet d'une particule.	13
1.9	Parcours projeté des protons dans le PN3.	14
1.10	Parcours projeté des alphas dans le PN3.	14
1.11	Schéma du principe de production des neutrons dans un accélérateur.	17
1.12	Spectre de $^{241}\text{Am-Be}$ et de ^{252}Cf de l'Institut de Radio- logie et de Sureté Nucléaire (IRSN)	19
1.13	Irradiateur Van Gogh de l'IRSN à Cadarache.	20
1.14	"Calibrateur" de l'IPHC en 3D.	22
1.15	Géométrie de la source $^{241}\text{Am-Be}$, les côtes sont en mm [AEA03].	22
1.16	Schéma de diffusion élastique.	23
1.17	Courbe de section efficace de neutrons incidents sur des atomes de C, O, H; seul H ne présente pas de résonance.	25
1.18	Section efficace de fission de ^{233}U et ^{238}U	27
1.19	Section efficace de quelques réactions nucléaires extraites de la base de données /ENDF/B-VII.0.	28
1.20	Section efficace de quelques réactions nucléaires (n, γ) extraites de la base de données /ENDF/B-VII.0.	29
1.21	Distributions angulaires des protons de recul résultant de la diffusion élastique de neutrons dans le centre de masse.	30

1.22	Distributions angulaires des protons provenant de la diffusion élastique des neutrons dans le système du laboratoire [All09].	31
1.23	Distribution énergétique des protons de recul provenant de la diffusion élastique des neutrons dans le système du centre de masse.	32
1.24	Schéma de principe de détection de particule alpha par la réaction $^{10}\text{B}(n,\alpha)^7\text{Li}$	33
1.25	Fantôme de calibration de l'installation Van Gogh de l'IRSN.	39
1.26	De la gauche vers la droite un fantôme mathématique et un fantôme voxelisé.	39
1.27	Relation entre les grandeurs physiques, opérationnelles et de protection [Jim07].	40
1.28	PN3 et Neutrak de dimensions respectives $20\times 25\times 1,5$ mm ; $19\times 9\times 0,8$ mm.	44
1.29	De gauche à droite : traces de particules révélées dans le LR115 ; dans le PN3 à incidence normale et oblique. . .	45
1.30	Géométrie d'une trace à incidence normale.	46
1.31	Forme d'une trace révélée à incidence oblique.	47
2.1	Historique de la propagation d'un neutron dans un matériau. En (1) le neutron est diffusé sur un noyau du matériau avec production d'un photon par le noyau excité. En (2) fission et production d'un photon et de deux neutrons secondaires. L'événement (3) correspond à la capture de l'un des deux neutrons secondaires. En (4) fuite du deuxième neutron secondaire. En (5) diffusion du photon issu de la fission. En (6) fuite du photon issu de la fission. En (7) photo-absorption du photon issu de la désexcitation du noyau.	52
2.2	Problème Monte Carlo de trois milieux avec trois histoires ; tiré de [Bad09].	54
2.3	Diagramme des tables de sections efficaces et modèles pour photons, électrons, neutrons et protons pour différentes gammes en énergie tiré de [Fma09].	55
2.4	Architecture d'un programme GEANT4.	62
2.5	Différents spectres de l'IRSN en vue de la validation du code MCNPX.	64
2.6	Architecture du système ROOT.	65
3.1	Chaîne de décroissance des trois familles radioactives naturelles	68

3.2	A gauche photo du dispositif d'injection de radon dans le tonneau et à droite le schéma du même dispositif. . .	73
3.3	Evolution de l'activité du radon en fonction du temps dans le tonneau.	73
3.4	Activité du ^{222}Rn donnée par le détecteur actif Alpha-GUARD au cours de l'étalonnage.	74
3.5	Détecteur de radon ($d_1=6$ cm ; $d_2=2,8$ cm ; $h_1=2,5$ cm ; $h_2=0,9$ cm).	75
3.6	Courbe d'étalonnage des CR-39 pour les particules α . Les incertitudes statistiques de la simulation sont de l'ordre des points rouges.	76
3.7	Concentration moyenne du radon dans quelques régions d'Afrique.	79
4.1	Flacon en polyéthylène de dimensions $2 \times 2 \times 0,6$ cm contenant des LR115.	83
4.2	Spectre gamma d'un échantillon avec les raies et le continuum.	85
4.3	Schéma simplifié d'une chaîne de spectrométrie gamma.	86
4.4	Schéma représentant les bandes de valence, de conduction et interdite (gap) dans un isolant, un semi-conducteur et un conducteur.	86
4.5	Analyse d'un pic isolé parfaitement gaussien.	89
5.1	Coefficients de conversion dose-fluence ; réponse de détecteurs CR-39 et LR115 tiré de [Com01].	95
5.2	Courbe de l'équilibre protonique.	97
5.3	Courbe d'étalonnage des PN3 irradiés aux neutrons.	99
5.4	Résultats du test d'intercomparaison de l'IRSN.	100
5.5	Nombre de traces.cm $^{-2}$ en fonction de l'équivalent de dose pour des PN3 sans convertisseur.	104
5.6	Traces de particules chargées issues de la réaction $^{10}\text{B}(n,\alpha)^7\text{Li}$ observées dans le PN3+BE10 à gauche et le PN3+BN1 à droite à la dose 3 mSv. Les neutrons sont produits suivant la configuration Cf+D2O.	104
5.7	Spectre en diamètre des particules alpha suivant la configuration Cf+D2O avec les LR115.	105
5.8	Courbe d'étalonnage par les neutrons lents du dosimètre PN3+BN1.	106
5.9	Courbe d'étalonnage des LR115+BN1 irradiés aux neutrons thermiques.	106
5.10	Spectre en diamètre des particules alpha suivant la configuration Cf+D2O avec les PN3.	107

5.11	Spectre $^{241}\text{Am-Be}$ obtenu par MCNPX avant et après modération par sphères Bonner de diamètres différents.	109
5.12	Fluence de neutrons rapides et thermiques pour différents diamètres de sphères modératrices.	109
5.13	A gauche : sphère Bonner montée au "calibrateur" et sur laquelle on a collé des pochettes contenant des PN3. A droite : modélisation MCNPX.	110
5.14	Prototype de dosimètre neutron par exploration des thermiques	111
6.1	Schéma des méthodes spectrométriques et globales. . .	114
6.2	Montage expérimental pour l'étalonnage du détecteur au silicium.	115
6.3	Spectre obtenu au cours de l'étalonnage du détecteur au silicium.	116
6.4	Accélérateur 4 MV.	117
6.5	Schémas de montages expérimentaux avec des cibles de nickel de $0,13\ \mu\text{m}$ à gauche et $0,5\ \mu\text{m}$ à droite.	118
6.6	Spectre simulé et expérimental de retrodiffusion de protons sur la cible de $0,5\ \mu\text{m}$ de Nickel.	118
6.7	A gauche la gamelle et à droite la même gamelle simulée par MCNPX.	119
6.8	Spectre de la réponse de la barrière de surface simulé par MCNPX.	119
6.9	Courbe d'étalonnage des PN3 irradiés aux protons. . .	120
6.10	Courbe d'étalonnage des neutrons irradiés par des protons et traités chimiquement pendant 9h.	120
6.11	A gauche, une vue d'ensemble du dispositif expérimental pour l'étalonnage des DSTN aux particules alpha. A droite, une vue de l'intérieur de la gamelle modifiée pour notre expérience.	122
6.12	Spectre en diamètre de particules alpha pour un temps de décapage de 7h.	123
6.13	Spectre en énergie de particules alpha lors de l'étalonnage des PN3.	124
6.14	Courbe d'étalonnage de PN3 irradiés avec des particules alpha.	125
6.15	Courbe d'étalonnage de LR115 irradiés avec des particules alpha.	125
A.1	Angle solide.	130

INTRODUCTION

En dépit des derniers accidents nucléaires (Tchernobyl, Fukushima) et des appels pressants à tourner le dos au nucléaire, il représentera encore un enjeu économique, scientifique et social majeur dans les domaines de l'agriculture, la médecine, dans le secteur minier, la recherche, dans l'industrie . De ce fait, la nécessité d'assurer la protection des travailleurs contre les rayonnements ionisants s'impose par la prise de mesures préventives afin d'éviter les accidents.

Les dosimètres sont l'un des outils efficaces permettant de quantifier l'équivalent de dose absorbée par un organisme ; il en existe plusieurs types selon les rayonnements à détecter (α , β , γ etc.). Dans le cadre de cette thèse préparée en cotutelle entre l'Université des Sciences des Techniques et Technologies de Bamako (USTTB) et celle de Strasbourg (UdS) nous étudierons les fonctions de réponses de dosimètres passifs ou visuels, pour des mesures environnementales.

Parmi les dosimètres passifs, les Détecteurs Solides de Traces Nucléaires (DSTN) que nous avons utilisés dans ce travail, sont depuis plusieurs années employés en recherche fondamentale et appliquée ; ils trouvent actuellement plusieurs applications en géologie, biologie, archéologie, astrophysique et physique nucléaire. Ils offrent des avantages tels que la simplicité, l'insensibilité aux rayonnements γ , leur faible coût. Le principe de détection repose sur la visualisation des effets de l'interaction du rayonnement incident lorsqu'il produit une trace latente dans le DSTN. Un développement chimique approprié permet d'élargir les traces latentes et grâce au système d'analyse d'image, les dommages engendrés par le passage des particules peuvent être visualisées.

L'étude des fonctions de réponse des DSTN de type PN3, LR115, Neuttrak objet de cette thèse passe par une série d'irradiation par des particules alpha, des protons et des neutrons. Nous présenterons dans ce travail scindé en six chapitres, les différentes expériences de caractérisation, de simulation, pour la métrologie radon, neutron et la spectrométrie neutron.

Ainsi au premier chapitre sont décrits les différents DSTN utilisés comme dosimètres passifs, leurs propriétés et les différents modes d'interaction avec les particules neutres (neutrons) et chargées (alpha et

protons). Nous avons aussi consacré une partie du chapitre à la définition des grandeurs en dosimétrie et radioprotection.

Le deuxième chapitre est consacré à la description des principes et méthodes de simulation Monte Carlo MCNPX et Geant4. La validation de la physique et de la géométrie utilisées dans ces deux codes a été faite par comparaison avec des cas expérimentaux. Le code MCNPX a surtout été utilisé pour des simulations dans les chapitre III et V. Les résultats expérimentaux obtenus ont été confrontés aux calculs de simulation.

Le troisième chapitre passe en revue les différentes propriétés du radon, les textes régissant la surveillance radiologique au Mali. Nous avons présenté les différentes étapes d'étalonnage des DSTN par des particules alpha en vue de leur utilisation pour des mesures environnementales dans la ville de Bamako.

Au chapitre IV, nous exposerons une étude comparative utilisant deux techniques nucléaires à savoir la spectrométrie gamma et la dosimétrie alpha par contact auto-radiographique par LR115 pour la détermination de l'activité massique d'échantillon de sols provenant de quatre régions du Mali.

Le chapitre V présente les résultats obtenus suite à l'étalonnage de PN3 par une source de référence neutronique pour la dosimétrie neutron. Scindé en trois parties, la première décrit les expériences de dosimétrie neutron rapide ayant conduit à la validation de nos méthodes expérimentales. La deuxième partie porte sur l'étalonnage d'une nouvelle configuration de dosimètre dans des champs de référence. La troisième partie est dédiée aux tests de validation du dosimètre.

Au chapitre VI, seront présentés des expériences dans une perspective de spectrométrie neutron en énergie. Les irradiations des DSTN par des particules alpha et protons ont été effectuées respectivement sur les installations 4 MV de l'INESS et sur le dispositif spectrométrie alpha de l'IPHC, puis des courbes diamètre-énergie ont été établies.

Chapitre 1

1. INTERACTIONS RAYONNEMENT-MATIÈRE ET DOSIMÉTRIE

Contents

1.1	Modes d'interactions des photons avec la matière	5
1.1.1	L'effet photoélectrique	5
1.1.2	L'effet Compton	7
1.1.3	L'effet de création de paire électron-positron . . .	8
1.1.4	Loi d'atténuation et d'absorption des photons . . .	8
1.2	Modes d'interactions des particules chargées avec la matière	9
1.2.1	Particules chargées directement ionisantes	9
1.3	Transfert linéique d'énergie ou pouvoir d'arrêt .	11
1.4	Parcours et portée des particules chargées . . .	12
1.5	Interaction neutron-matière	14
1.5.1	Propriétés	14
1.5.2	Section efficace des neutrons	16
1.5.3	Sources neutroniques	16
1.5.4	Sources isotopiques	19
1.5.5	Interactions des neutrons avec la matière	23
1.5.6	Autres sources de neutrons	28
1.5.7	Détection des neutrons	29
1.6	Dosimétrie	33
1.6.1	Les grandeurs physiques	34
1.6.2	Les grandeurs de protection	35
1.6.3	Grandeurs opérationnelles	37
1.7	Dosimètres	41
1.7.1	Dosimètres actifs	41
1.7.2	Dosimètres passifs	42

Les rayonnements en interagissant avec la matière cèdent une partie ou la totalité de leurs énergies dans des collisions avec les électrons atomiques et/ou avec les noyaux du milieu traversé. Ils peuvent être

classés en deux catégories selon leur mode d'interaction avec la matière (figure 1.1) :

- les rayonnements ionisants : constitués d'une partie des rayonnements électromagnétiques dont l'énergie $E > 12,4 \text{ eV}$, de particules chargées lourdes ou légères et de particules non chargées. Les particules non chargées induisent des rayonnements ionisants par des particules secondaires créées au cours de leur interaction avec la matière ; on dit qu'ils sont indirectement ionisants ;
- les rayonnements non ionisants : sont en général des ondes électromagnétiques dont l'énergie $E \leq 12,4 \text{ eV}$.

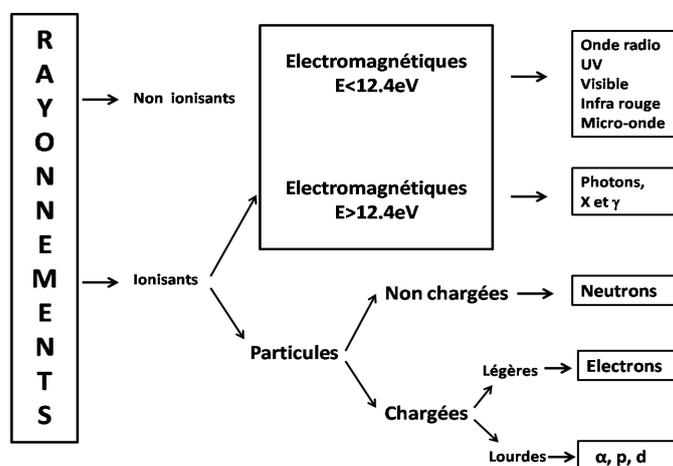


Fig. 1.1: Classification des rayonnements.

1.1 Modes d'interactions des photons avec la matière

Lorsque des photons émis dans les transitions nucléaires "rayons γ " ou dans les transitions atomiques "rayons X" pénètrent dans la matière, ils peuvent interagir :

- avec les électrons par effet Compton ou effet photoélectrique ,
- au voisinage du noyau par effet de création ou de matérialisation de paires.

1.1.1 L'effet photoélectrique

Lorsqu'un photon d'énergie E entre en collision avec les électrons liés des couches internes d'un atome, la totalité de l'énergie du photon incident est absorbée par l'atome. Cette énergie est transférée à un

électron qui est éjecté du cortège électronique avec une énergie cinétique E_c égale à l'énergie du photon diminuée de l'énergie de liaison B (figure 1.2). L'effet photoélectrique ne se produit que lorsque $E_\gamma > B$ ($E_c = E_\gamma - B$).

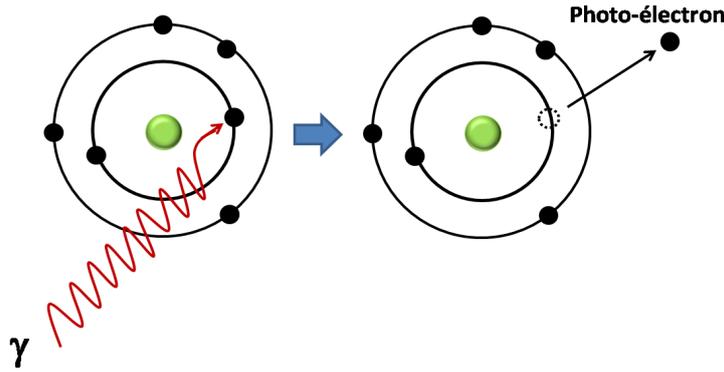


Fig. 1.2: Effet photoélectrique.

La probabilité d'interaction d'un photon avec un atome est prédominante pour des photons de basse énergie, en particulier, pour les éléments de Z élevé. La section efficace pour la couche K est [Sie65] :

$$\sigma_{PE} = \frac{8\pi r_0^2 Z^2}{3(137)^4} 4\sqrt{2}(\varepsilon)^{\frac{-7}{2}}$$

avec $\varepsilon = \frac{E_\gamma}{E_0}$

r_0 = rayon de l'électron,

E_γ = énergie du photon incident,

E_0 = énergie de l'électron au repos,

Z = numéro atomique de la cible.

D'une façon générale, la section efficace de l'effet photoélectrique suit la loi : $\sigma_{PE} \propto \frac{Z^{4,35}}{E_\gamma}$.

Suite à l'ionisation de l'atome par effet photoélectrique le cortège électronique subit un réarrangement au cours duquel soit un électron appelé "électron Auger" est éjecté, soit un rayon X de fluorescence est émis par désexcitation.

1.1.2 L'effet Compton

L'effet Compton ou la diffusion Compton illustré sur la figure 1.3 consiste en la diffusion élastique d'un photon incident sur un électron faiblement lié auquel il cède une partie de son énergie. La probabilité d'interaction par effet Compton ne dépend que de la densité du matériau traversé.

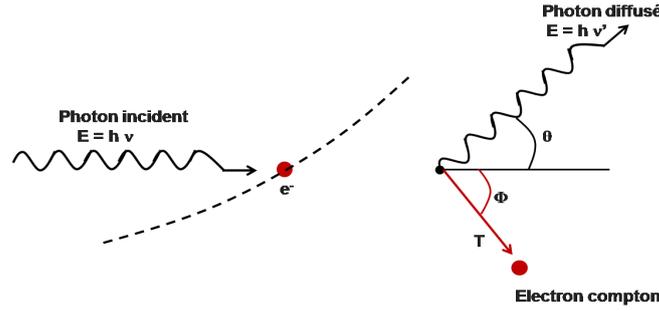


Fig. 1.3: Effet compton.

La relation entre la longueur d'onde du photon diffusé et l'angle de diffusion θ est :

$$\frac{c}{\nu'} - \frac{c}{\nu} = \lambda' - \lambda = \frac{h}{m_e c} (1 - \cos \theta)$$

L'énergie transférée à l'électron est donnée par la relation :

$$T = h\nu - h\nu' = \frac{(h\nu)^2(1 - \cos \theta)}{m_e c^2 + h\nu(1 - \cos \theta)}$$

La section efficace différentielle par unité d'angle solide de diffusion Compton a été déterminée en 1929 par Klein et Nishima [Kle29] :

$$\frac{d\sigma_c}{d\Omega} = \frac{r_0^2}{2} \times \frac{1}{[1 + \varepsilon(1 - \cos \theta)]^2} \left(1 + \cos^2 \theta + \frac{\varepsilon^2(1 - \cos \theta)^2}{1 + \varepsilon(1 - \cos \theta)} \right),$$

où r_0 est le rayon de l'électron et $\varepsilon = \frac{h\nu}{m_e c^2}$.

La section efficace différentielle intégrée donne la section efficace totale du processus :

$$\sigma^c = 2\pi r_0^2 \left\{ \frac{1 + \varepsilon}{\varepsilon^2} \left[\frac{2(1 + \varepsilon)}{1 + 2\varepsilon} - \frac{1}{\varepsilon} \ln(1 + 2\varepsilon) \right] + \frac{1}{2\varepsilon} \ln(1 + 2\varepsilon) - \frac{1 + 3\varepsilon}{(1 + 2\varepsilon)^2} \right\}$$

1.1.3 L'effet de création de paire électron-positron

Dans le champ coulombien qui règne au voisinage du noyau, un photon incident d'énergie $E > 2E_0 = 2 \times 0,511 \text{ MeV}$ peut être totalement absorbé et conduire à la création d'une paire électron-positron (figure 1.4). De l'énergie cinétique est transférée à l'électron et au positron.

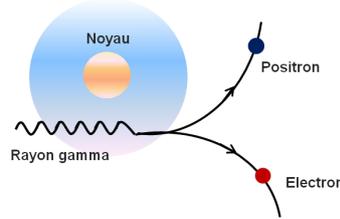


Fig. 1.4: Création de paire électron-positron.

En fin de ralentissement, le positron s'annihile avec un électron au repos du milieu en émettant deux photons d'énergie $0,511 \text{ MeV}$ suivant deux directions opposées. La section efficace de cet effet est donnée par la relation :

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

avec $\alpha = \frac{1}{137}$ = constante de la structure fine. La figure 1.5 résume l'importance des modes d'interaction photons-matière.

1.1.4 Loi d'atténuation et d'absorption des photons

Lorsqu'un faisceau monoénergétique de photons d'intensité I_0 pénètre dans la matière, on a une diminution progressive de l'intensité de ce faisceau dans le matériau traversé. Cette diminution de photons incidents ou atténuation est caractérisée par un coefficient d'atténuation linéique noté μ ; la fraction d'intensité I transmise après le passage dans l'épaisseur de matière comprise entre x et $x + dx$ et le coefficient d'atténuation est donnée par la relation : $dI = -I \times \mu \times dx$, après intégration :

$$I(x) = I_0 \times e^{-\mu x} \quad (1.1)$$

avec $\mu = n \times \sigma_{totale} = n(\sigma_{PE} + \sigma_c + \sigma_{pair})$ ou n est le nombre de noyaux ou de centres cibles par cm^3 ; $n = N_A \rho / M$; N_A = nombre d'Avogadro; ρ = densité; M = masse molaire du matériau traversé.

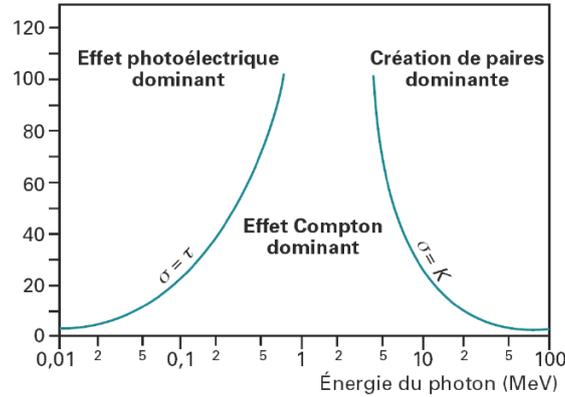


Fig. 1.5: Importance relative des trois types majeurs d'interaction photon matière établie à partir des tables de coefficients d'atténuation.

Dans la littérature les valeurs des coefficients d'atténuation massique $\mu_m = \mu \times \rho$ exprimées en cm^2/g sont tabulées (figure 1.6). L'équation 1.1 en fonction de μ_m est :

$$I(x) = I_0 \times e^{-\left(\frac{\mu_m}{\rho}\right) \times \rho x}.$$

En radioprotection on définit la couche de demi atténuation CDA (ou épaisseur moitié $X_{1/2}$) et l'épaisseur dixième $X_{1/10}$ comme les épaisseurs nécessaires pour atténuer respectivement d'un facteur 2 et 10 l'intensité du faisceau incident :

$$\begin{aligned} CDA = X_{1/2} &= \frac{\ln 2}{\mu} & \text{et} & & I(nX_{1/2}) &= \frac{I_0}{2^n} \\ X_{1/10} &= \frac{\ln 10}{\mu} & \text{et} & & I(nX_{1/10}) &= \frac{I_0}{10^n} \end{aligned}$$

n représente le nombre d'épaisseur $X_{1/2}$ et $X_{1/10}$.

1.2 Modes d'interactions des particules chargées avec la matière

1.2.1 Particules chargées directement ionisantes

Le passage d'une particule chargée dans la matière se traduit par de faibles transferts d'énergie cinétique par diffusions élastiques et/ou inélastiques sur les électrons et les noyaux atomiques du milieu ralentisseur, accompagné de faibles changements de direction.

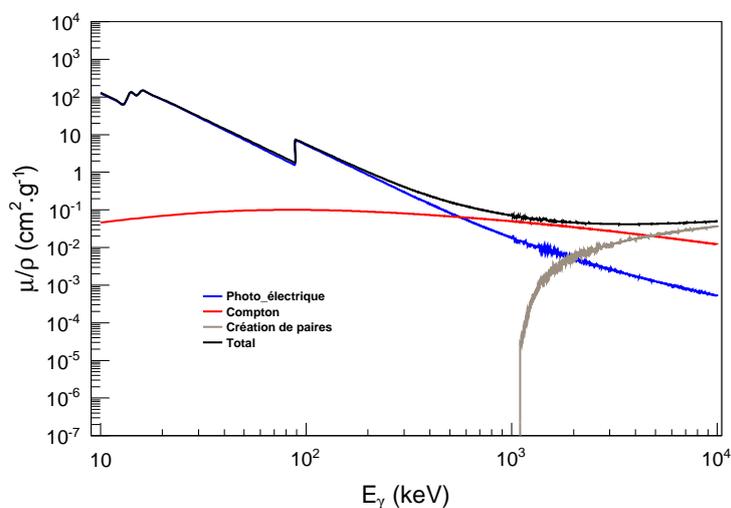


Fig. 1.6: Coefficients d'atténuation massique en fonction de l'énergie des photons dans le plomb obtenu par le logiciel XMuDat²

1. Diffusions inélastiques

- avec le noyau : la particule subit une forte déflexion dans le champ électrique intense autour du noyau et peut rayonner une partie de son énergie ; ce phénomène est appelé rayonnement de freinage ou bremsstrahlung.
- avec les électrons : c'est le mode d'interaction prépondérant pour les particules lourdes chargées. En fonction de la quantité d'énergie transférée à l'atome, il y aura une ionisation ou une excitation du milieu. Dans certains cas, les électrons éjectés peuvent avoir une énergie suffisante pour créer à leur tour des ionisations secondaires (électrons delta) au cours de leur ralentissement vu le nombre de collisions par unité de parcours très élevé.

2. Diffusions élastiques

- avec le noyau : la particule incidente est déviée sans émission électromagnétique et sans excitation du noyau ; la particule chargée ne perd que l'énergie cinétique nécessaire à la conservation des lois régissant la mécanique classique. Cette réaction a été mise en évidence par les expériences de Rutherford et Geiger-Marsden en 1911.
- avec les électrons : le champ des électrons dévie la particule incidente de faible énergie ($E < 100 \text{ eV}$). Quelque soit le mode d'interaction, la perte d'énergie peut se résumer en la contribution

du pouvoir d'arrêt électronique, nucléaire et radiatif (bremsstrahlung) :

$$S = -\frac{dE}{dx} = \left(-\frac{dE}{dx}\right)_{elec} + \left(-\frac{dE}{dx}\right)_{nucl} + \left(-\frac{dE}{dx}\right)_{radia}$$

Le pouvoir d'arrêt dépend essentiellement du type de particule, de son énergie et des propriétés du matériau traversé. La figure 1.7 représente le pouvoir d'arrêt électronique et nucléaire des protons et particules alpha dans le détecteur solide de trace nucléaire PN3. De nombreux programmes d'accès gratuits sur internet comme ASTAR³, PSTAR⁴, ESTAR⁵, SRIM⁶, permettent de calculer le pouvoir d'arrêt.

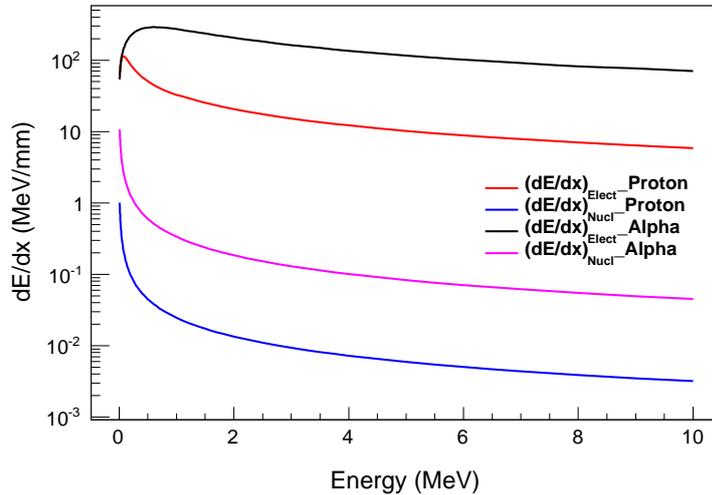


Fig. 1.7: Pouvoir d'arrêt des protons et alpha dans le PN3 de formule C₁₂H₁₈O₇ par le code SRIM [Bie11].

1.3 Transfert linéique d'énergie ou pouvoir d'arrêt

Le Transfert Linéique d'Énergie (TLE) ou pouvoir d'arrêt représente la perte d'énergie des particules incidentes traversant la matière par unité de longueur. Il mesure le ralentissement des particules chargées suite aux interactions élastiques et/ou inélastiques avec les élec-

3. ASTAR : Stopping-power and range tables for helium-ions
4. PSTAR : Stopping-power and range tables for protons
5. ESTAR : Stopping-power and range tables for electrons
6. SRIM : Stopping and Range of Ions in Matter.

trons orbitaux du milieu ralentisseur. Son expression en mécanique relativiste est donnée par la formule de Bethe-Bloch [Bet33] :

$$TLE = \frac{-dE}{dx} = \frac{z^2 e^4}{4\pi \varepsilon_0^2 m_e v^2} NZ \left[\ln \left(\frac{2m_e v^2}{I} \right) - \ln \left(1 - \frac{v^2}{c^2} \right) - \frac{v^2}{c^2} - \frac{C_k}{Z} \right]$$

avec :

z et v : la charge et la vitesse de la particule incidente,

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

$\varepsilon_0 = 8,854 \cdot 10^{-10} \text{ F.cm}^{-1}$: permittivité du vide,

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

Z : numéro atomique du milieu absorbant,

C_k : terme correctif d'effet de couche à basse énergie,

N : nombre de noyaux cibles par unité de volume,

I : potentiel moyen d'ionisation $I(\text{eV}) = 9,1 \times Z(1+1,9Z^{2/3})$.

La formule de Bethe-Bloch est approximativement valable pour les particules lourdes variant de quelques MeV ($\beta \sim 0,1$) à des centaines de GeV. A très haute énergie (TeV), la perte d'énergie par la radiation devient importante et la formule doit être complétée par des termes supplémentaires. A très basse énergie, quand la vitesse de la particule est comparable à celles des électrons atomiques, la formule n'est plus valable.

1.4 Parcours et portée des particules chargées

La portée (range ou parcours projeté) correspond à la profondeur maximale de pénétration d'une particule chargée dans un matériau ; cette grandeur pratique, est très utile pour la conception d'écran protecteur contre les rayonnements ionisants.

Pour une même particule, de même énergie, le parcours peut être déterminé dans un matériau 2 connaissant celui du matériau 1 par la formule :

$$\frac{R_1}{R_2} = \frac{\rho_2}{\rho_1} \sqrt{\frac{A_1}{A_2}}$$

avec $\frac{R_1}{R_2}$, $\frac{\rho_2}{\rho_1}$, $\frac{A_1}{A_2}$ représentant respectivement le rapport du parcours, de la masse volumique et de la masse atomique d'un matériau 1 et 2. Le parcours moyen ou parcours CSDA (Continuous Slowing Down Approximation) d'une particule chargée dans la matière est le trajet nécessaire pour que cette particule perde complètement son énergie cinétique de manière continue le long de sa trajectoire. Chaque particule

incidente a un parcours individuel, la relation entre le parcours moyen et le pouvoir d'arrêt est :

$$R = \int_{E=E_0}^{E=0} S^{-1} dE = \int_0^{E_0} \left(\frac{dE}{dx} \right)^{-1} dE$$

Lorsque l'énergie de la particule incidente tend vers zéro, le parcours ne peut pas être évalué car la formule de Bethe-Bloch n'est plus valable aux basses énergies, on utilise alors la formule suivante :

$$R_{CSDA}(E_0) = R(E_{min}) + \int_{E_{min}}^{E_0} \left(\frac{dE}{dx} \right)^{-1} dE$$

où E_{min} est l'énergie minimale permettant d'obtenir l'expression analytique valable du parcours et $R(E_{min})$ est une valeur déterminé expérimentalement.

Les figures 1.9 et 1.10 représentent respectivement le parcours projeté des protons et particules alpha dans le détecteur solide de trace nucléaire PN3 par les codes de simulation SRIM, MCNPX⁷ et GEANT4⁸.

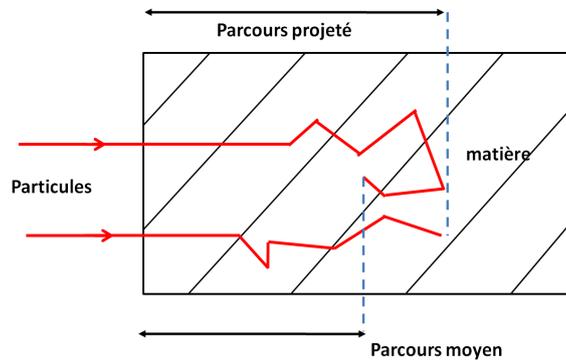


Fig. 1.8: Illustration du parcours projeté et du parcours moyen correspondant au trajet d'une particule.

7. MCNPX : Monte Carlo N Particle eXtended.

8. GEANT4 : GEometry ANd Tracking.

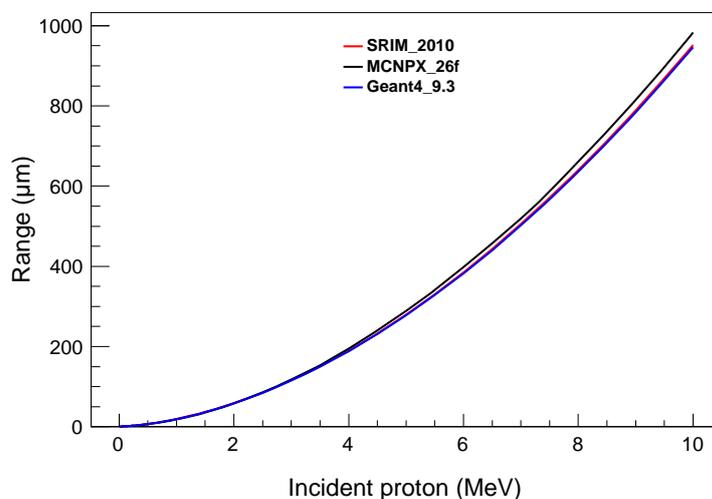


Fig. 1.9: Parcours projeté des protons dans le PN3.

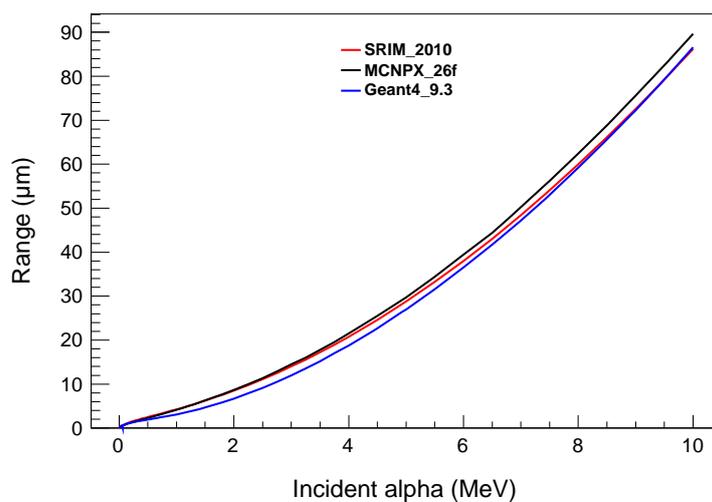


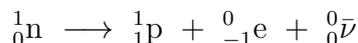
Fig. 1.10: Parcours projeté des alphas dans le PN3.

1.5 Interaction neutron-matière

1.5.1 Propriétés

Le neutron est une particule neutre découverte en 1932 par Sir James Chadwick d'énergie au repos $939,56 \text{ MeV}/c^2$. Instable en dehors du noyau, il se transforme en un proton avec une période de 12

min suivant la réaction de désintégration :



Etant sans charge, son interaction avec les électrons du milieu est moins importante (plus de 10^6 fois moins probable [Mac87]) qu'avec les noyaux. Selon leur énergie, ils vont réagir différemment avec la matière, d'où la classification de la table 4.2. Dans notre travail nous nous intéresserons plus particulièrement aux neutrons rapides et thermiques.

Nature des neutrons	Energie
ultra froids	< 100 neV
Froids	< 25 meV
Lents ou thermiques	25 meV - 0,5 eV
Epithermiques	0,5 eV - 50 keV
Intermédiaires	50 keV - 1 MeV
Rapides	1 MeV - 20 MeV
Relativistes	20 MeV - 1 GeV
Ultra-relativistes	>1 GeV

Tab. 1.1: Classification des neutrons selon leur énergie.

1. **Neutrons rapides** : Les sources radioactives de neutrons produisent des neutrons rapides ayant une énergie cinétique comprise entre 1 et 20 MeV, ils sont facilement détectables par les instruments de mesure par rapport aux neutrons thermiques ou lents.
2. **Neutrons thermiques ou lents** : Lorsque les neutrons rapides interagissent avec un milieu peu absorbant, ils perdent progressivement leur énergie par des processus successifs de diffusion élastique et finissent par se thermaliser jusqu'à ce qu'ils soient en équilibre thermodynamique avec le milieu. Ils acquièrent alors une énergie qui suit une distribution de Maxwell-Boltzmann :

$$N(E)dE = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \left(\frac{E}{kT} \right)^{1/2} \exp \left(-\frac{E}{2kT} \right) \frac{dE}{kT}$$

avec

$N(E)dE$: le nombre de neutrons compris entre E et $E+dE$;

k : la constante de Boltzmann ;

T : la température absolue.

La valeur moyenne de l'énergie cinétique des neutrons lents à la température ambiante $T=20^\circ\text{C}$ se situe autour de 25 meV, et leur

vitesse $v \approx 2200$ m/s. Notons que la distribution de Maxwell-Boltzmann passe par un maximum pour $E_0 = k \times T$.

1.5.2 Section efficace des neutrons

Les interactions des neutrons avec la matière sont caractérisées par leur probabilité d'interaction appelée section efficace microscopique σ , elle est exprimée en barn ($1\text{b} = 10^{-28}\text{m}^2$). On définit également la section efficace macroscopique par la relation Σ (cm^{-1}) = $N \cdot \sigma$ où N représente le nombre de noyaux par unité de volume. La somme des sections efficaces de toutes les interactions possibles pour les neutrons d'une énergie donnée est appelée section efficace totale $\sigma_{total} = \sum_i \sigma_i$ (la section efficace macroscopique totale est notée Σ_{total}).

Lorsqu'un neutron traverse un milieu d'épaisseur L , la probabilité d'interaction est donnée par l'expression : $1 - e^{-(\Sigma_{total} L)}$, on peut alors définir le libre parcours moyen par la relation $1 / \Sigma_{total}$. A basse énergie (cas des neutrons lents) les sections efficaces d'absorption (fission et capture) suivent approximativement une loi en $1/v$.

De manière analogue aux photons, les neutrons sont atténués dans la matière suivant la loi de Beer-Lambert :

$$\Phi(x) = \Phi_0 e^{-\Sigma_{total} \times x}$$

avec

$\Phi(x)$ la fluence de neutrons sortant du milieu d'épaisseur x ,

Φ_0 la fluence de neutrons incidents.

Il existe de nos jours plusieurs bases de données standardisées sur les sections efficaces de différentes réactions en fonction de l'énergie des neutrons incidents, les plus connues sont :

- ENDF Evaluated Nuclear Data File (USA),
- EAF European Activation File (UK),
- JENDL Japanese Evaluated Nuclear Data Library (Japon),
- CENDL Chinese Evaluated Nuclear Data Library (Chine),
- TENDL TALYS-based Evaluated Nuclear Data Library ,
- TENDL TALYS-based Evaluated Nuclear Data Library ,
- EXFOR EXchange FORmat for the transmission of experimental nuclear reaction data.

1.5.3 Sources neutroniques

Contrairement aux radionucléides émetteurs γ et β , il n'existe pas de radionucléides naturels fissiles émetteurs de neutrons en dehors de ^{235}U , par conséquent les neutrons sont produits dans des accélérateurs

de particules, dans des réacteurs nucléaires, par fission spontanée ou par réactions induites par des γ ou α .

1.5.3.1 Accélérateurs de particules

Les neutrons sont produits dans des accélérateurs de particules dans lesquels une source d'ions (^1H , ^2H) est accélérée linéairement et focalisée par des aimants afin d'impacter une cible mince (^{45}Sc , ^7Li , ^2H , ^3H). Les réactions nucléaires entre la cible et les ions incidents produisent des neutrons émis dans toutes les directions. L'énergie du neutron varie en fonction de l'angle d'émission, elle est maximale dans la direction de la particule incidente. Le principe de la production est schématisé par la figure 1.11.

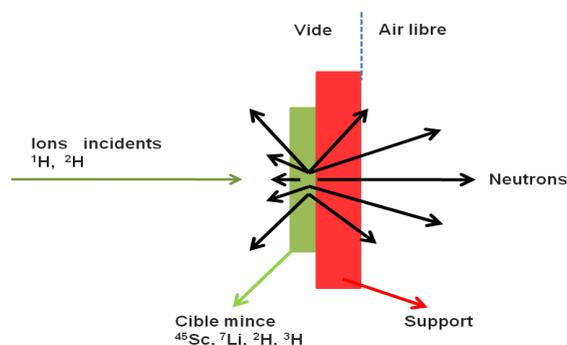


Fig. 1.11: Schéma du principe de production des neutrons dans un accélérateur.

- Les réactions (p,n) sont endothermiques, elle nécessite une énergie élevée ; pour des énergies peu supérieures au seuil, on obtient des neutrons monoénergétiques ou quasi monoénergétiques variant de quelques keV à des dizaines de MeV.
- Les réactions (d,n) sont en général exoénergétiques à l'exception de quelques unes comme $^{12}\text{C}(\text{d},\text{n})$, $^2\text{H}(\text{d},\text{n})$. Dans le tableau 1.2 sont données quelques réactions conduisant à la production de neutrons monoénergétiques.

1.5.3.2 Réacteurs nucléaires

Les réacteurs sont à la fois une source intense de neutrons et de photons provenant de la fission de combustible. Ils produisent environ 6.10^{13} neutrons par seconde et peuvent atteindre une puissance de quelques mégawatt par réaction entretenue. Le spectre d'énergie des neutrons issus des réacteurs nucléaires est continu et peut être modifié

Réactions	Q (MeV)	E_{ps} (MeV)	E_{ns} (keV)	E_{n0} (MeV)
$^3\text{H}(p,n)$	- 0,764	1,019	63,7	-
$^7\text{Li}(p,n)$	-1,646	1,882	29,4	-
$^{45}\text{Sc}(p,n)$	-2,79	2,85	1,35	-
$^2\text{H}(d,n)$	3,265	-	-	2,45
$^3\text{H}(d,n)$	17,6	-	-	14,1
$^9\text{Be}(d,n)$	3,79	-	-	3,44
$^{14}\text{N}(d,n)$	5,1	-	-	4,8

Tab. 1.2: Quelques réactions utilisées pour la production de neutrons monoénergétiques en fonction d'un angle donné dans un accélérateur. E_{ps} et E_{ns} représentent l'énergie seuil. E_{n0} est l'énergie des neutrons si les deutons avaient une énergie nulle dans le cas des réactions (d,n) [Net78].

en intensité et en énergie. Il existe plusieurs approximations analytiques des spectres de fission dont les plus utilisés sont :

- le spectre de Watt : $n(E) = \exp\left(\frac{-E}{a}\right) \cdot (\sinh(b \times E))^{1/2}$,
- le spectre de Cranberg : $n(E) = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \frac{e^{-AB/4}}{\sqrt{A^3 B}} e^{-\frac{E}{A}} \text{sh}\sqrt{BE} dE$,
- le spectre de Maxwell : $n(E)dE = A\sqrt{E} e^{-\frac{E}{T}} dE$.

Quelques valeurs de A et T sont données dans le tableau 1.3 pour le spectre de Maxwell.

Noyau fissile	A	T
^{233}U	1,888	1,307
^{235}U	1,872	1,290
^{239}Pu	2,121	1,333

Tab. 1.3: Valeurs de A et T tirées de [Bla99].

Dans les réacteurs, les doses délivrées par le composant photon sont du même ordre voire supérieures à celles délivrées par le composant neutron. Des écrans disposés entre le cœur et l'objet à irradier permettent de faire varier le rapport entre les deux composantes. Un autre moyen de produire des neutrons dans les réacteurs nucléaires consiste à utiliser des réactions de spallation ; ces réactions sont induites par des nucléons ou des petits noyaux s'ils sont animés d'une énergie cinétique élevée (de 10 MeV à quelques GeV) sur des noyaux lourds ou intermédiaires en leur arrachant des fragments [Reu03].

1.5.4 Sources isotopiques

1.5.4.1 Fission spontanée

Plusieurs nucléides transuraniens ($Z > 92$) lourds, artificiels pour la plupart ont une probabilité de décroissance par fission spontanée importante. Les radio-isotopes de fission spontanée les plus courants sont le ^{252}Cf et le ^{248}Cm . Ils ont une décroissance par émission α de probabilité respective 96,91% et 91,74% et par fission spontanée (probabilité respective 3,09 et 8,39%). Le ^{252}Cf a une émission neutronique de 2,314 neutrons $s^{-1}\mu\text{g}^{-1}$, il présente un spectre de fission de Watt (figure 1.12) d'énergie moyenne 2,1 MeV [Bal00], en plus il n'est pas émetteur γ .

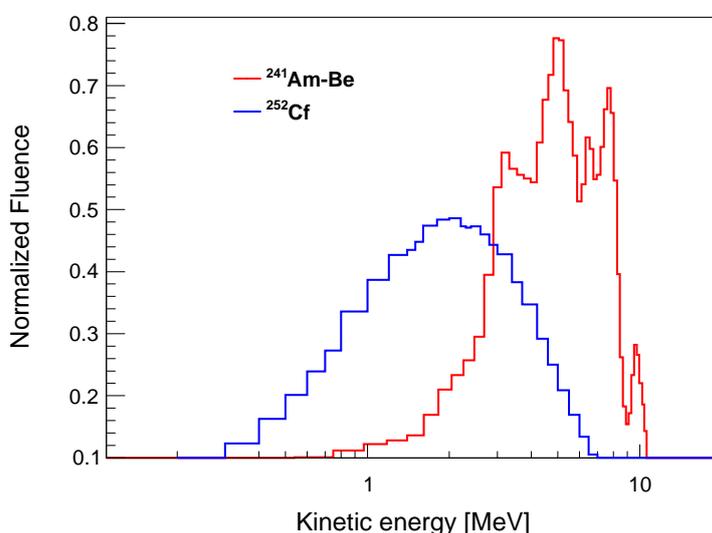


Fig. 1.12: Spectre de $^{241}\text{Am-Be}$ et de ^{252}Cf de l'Institut de Radiologie et de Sûreté Nucléaire (IRSN)

^{252}Cf : source de neutrons sur les installations de l'IRSN

Une partie de notre travail a été réalisée sur les installations de l'IRSN, précisément sur l'irradiateur Van Gogh constitué de deux sources radioactives $^{241}\text{Am-Be}$ et ^{252}Cf . Nous avons utilisé uniquement la source de ^{252}Cf puisque notre groupe dispose d'une installation avec une source $^{241}\text{Am-Be}$. Cette source (^{252}Cf) est entreposée dans un container en polyéthylène placé au pied de l'irradiateur. La source en position d'irradiation est à une hauteur de 3,2 m au dessus du sol, ce qui limite le bruit de fond dû aux neutrons diffusés sur le sol. Un banc d'étalonnage

motorisé permet de placer les instruments au niveau de la source et à toute position entre 0 et 2 m, la distance d'irradiation conventionnelle étant 75 cm [Gre05].

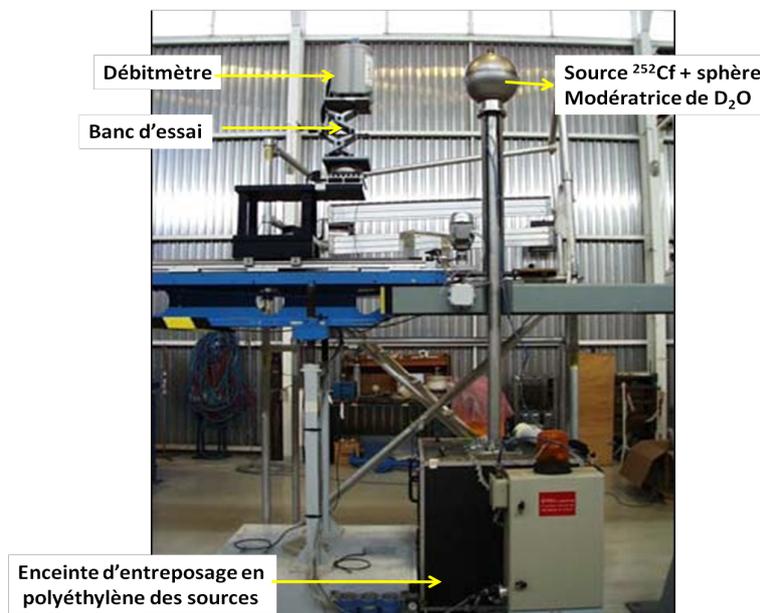


Fig. 1.13: Irradiateur Van Gogh de l'IRSN à Cadarache.

1.5.4.2 Source (α, n)

La production de neutrons est le résultat d'un mélange associant un isotope émetteur α (^{241}Am , ^{210}Po , ^{239}Pu , ^{238}Pu , ^{226}Ra , ^{227}Ac , ^{242}Cm , ^{244}Ra) et un matériau cible léger (^7Li , ^9Be , ^{10}B , ^{11}B , ^{19}F). Le tableau 1.4 illustre quelques réactions (α, n). La cible de béryllium ^9Be donne le maximum de neutrons [Kno00] suivant la réaction :



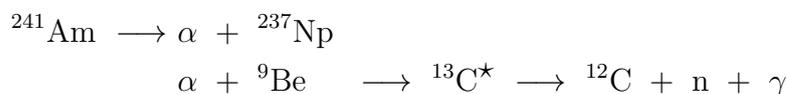
Les sources de PuBe et de $^{241}\text{Am-Be}$ sont génératrices de champs mixtes (n, γ), ce qui peut compliquer l'analyse spectrale des mesures faites avec les détecteurs. Des méthodes de discrimination n/γ doivent être mises en place afin d'exploiter correctement les spectres neutroniques ; dans notre étude nous utiliserons une source $^{241}\text{Am-Be}$ décrite ci-dessous et nos détecteurs (PN3 et LR115) sont transparents aux γ .

1. Source de neutrons à l'IPHC

Réaction	Q (MeV)	E _{seuil} (MeV)	Ab. nat [%]
${}^7\text{Li} (\alpha, n) {}^{10}\text{B}$	-2,790	4,382	92,4
${}^9\text{Be} (\alpha, n) {}^{12}\text{C}$	5,701	-	100
${}^{10}\text{B} (\alpha, n) {}^{13}\text{N}$	1,059	-	19,9
${}^{11}\text{B} (\alpha, n) {}^{14}\text{N}$	0,158	-	80,1
${}^{19}\text{F} (\alpha, n) {}^{22}\text{Na}$	-1,952	2,362	100

Tab. 1.4: Quelques réactions (α, n)[Tro10]

Le groupe RaMsEs de l'IPHC a construit un irradiateur où l'utilisateur peut manipuler une source de neutrons rapides de ${}^{241}\text{Am}$ -Be dont le spectre est représenté sur la figure 1.12, afin de caractériser les détecteurs de neutrons en routine. La source est constituée d'un mélange de poudre de dioxyde d'américium avec du béryllium, qui permet ainsi de produire des neutrons rapides suivant la réaction :



Cette source que nous avons utilisée émet $(2,24 \pm 0,10) \cdot 10^6$ neutrons par seconde avec une activité de 1 Ci (37 GBq) en émission α ; elle émet aussi des photons de différentes énergies (3,216 ; 4,438 ; 9,641 MeV) grâce à la désexcitation du ${}^{13}\text{C}$. La source est pilotée par un système pneumatique automatique qui en contrôle la sortie et la rentrée. Au repos, elle est logée dans un cube de polyéthylène de dimensions $84 \times 84 \times 84 \text{ cm}^3$ qui absorbe la totalité des radiations neutroniques. Ce dispositif est dans une salle (figure 1.14) en béton de dimensions $404 \times 413 \times 386 \text{ cm}^3$, d'épaisseur 1 m afin d'éviter l'exposition externe des utilisateurs.

2. Géométrie de la source de neutrons

La poudre de dioxyde d'américium est dans un godet en plomb d'épaisseur environ 3 mm capable d'absorber les α et les γ de basse énergie (59 keV) de la source ${}^{241}\text{Am}$; cependant cette épaisseur n'est pas suffisante pour absorber les raies de plus de 3,216 MeV émises par la désexcitation du ${}^{13}\text{C}$, d'où la présence de champ mixte n/γ .

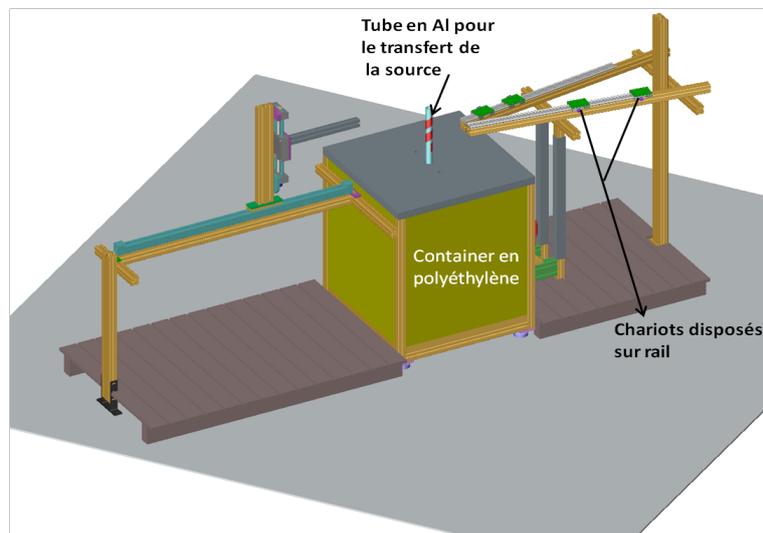
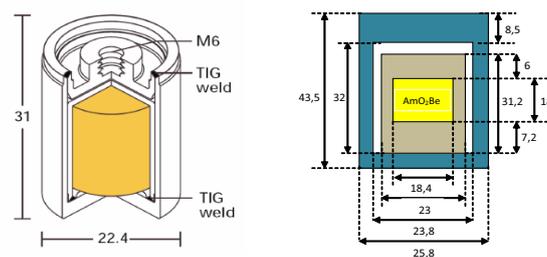
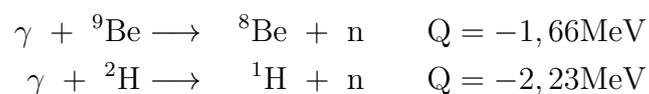


Fig. 1.14: "Calibrateur" de l'IPHC en 3D.

Fig. 1.15: Géométrie de la source $^{241}\text{Am-Be}$, les côtes sont en mm [AEA03].

1.5.4.3 Source (γ, n)

Le principe de cette de réaction est de fournir suffisamment d'énergie d'excitation à un noyau-cible via un photon (bombardement photonique) pour permettre l'émission d'un neutron. On parle alors de photoneutrons. La réaction a lieu si l'énergie du photon incident est supérieure à l'énergie de liaison du neutron le moins lié, qui est généralement supérieure à 6 MeV, sauf dans le cas du béryllium (seuil à 1,67 MeV) et du deutérium (seuil à 2,21 MeV). C'est pourquoi les noyaux cibles les plus utilisés dans la pratique sont le ^9Be et le ^2H suivant les photo-réactions :



1.5.5 Interactions des neutrons avec la matière

Les interactions des neutrons avec la matière sont de deux types : la diffusion et l'absorption ($\sigma_{total} = \sigma_{diffusion} + \sigma_{absorption}$) résumé dans la table 1.5.

Interactions	Sections efficaces	
Diffusion	diffusion élastique (n,n)	σ_{elas}
	diffusion inélastique (n,n')	σ_{inelas}
Absorption	les réactions nucléaires (n,x)	σ_x
	les réactions de fission (n,f)	σ_f
	les réactions de capture (n, γ)	σ_γ

Tab. 1.5: Tableau récapitulatif des réactions neutrons-matière.

1.5.5.1 La diffusion

Le ralentissement des neutrons rapides dans la matière se fait principalement par diffusion sur les noyaux des atomes ayant une masse proche de celle du neutron.

1. **La diffusion élastique** : au cours d'une diffusion élastique, les neutrons incidents interagissent avec les noyaux légers en leur cédant une partie de leur énergie cinétique produisant ainsi un noyau de recul (figure 1.16). La relation entre l'énergie du neutron incident E_n et l'énergie cédée au noyau de recul E_r dans le système du laboratoire est obtenue à partir des lois de conservation de la quantité de mouvement et de l'énergie. Si l'angle de diffusion du neutron est θ_n (E'_n son énergie, P'_n sa quantité de mouvement) et celui du noyau de recul est θ_r (E_r , P_r) on a :

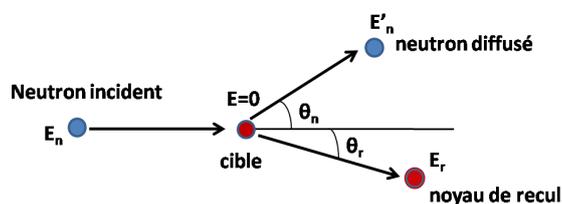


Fig. 1.16: Schéma de diffusion élastique.

$$(P'_n)^2 = (P_n)^2 + (P_r)^2 - 2P_n P_r \cos \theta_r$$

En combinant la relation $E'_n = E_n - E_r$ avec l'approximation non relativiste $P_n^2 = 2m_n E_n$ on a finalement la relation entre E_r et E_n :

$$E_r = 4 \frac{m_n m_r}{(m_n + m_r)^2} E_n \cos^2 \theta_r \quad (1.2)$$

En posant

$$\xi = 4 \frac{m_n m_r}{(m_n + m_r)^2}$$

la relation 1.2 devient : $E_r = \xi E_n \cos^2 \theta_r$.

m_n = masse du neutron ;

m_r = masse du noyau de recul.

En passant au système du centre de masse grâce à la relation $2\theta_r = \pi - \theta$ [Val89], la relation 1.2 devient :

$$E_r = 2 \frac{m_n m_r}{(m_n + m_r)^2} E_n (1 - \cos \theta) \quad (1.3)$$

où θ représente l'angle de diffusion dans le système du centre de masse. L'importance de l'équation 1.3 réside dans le fait que les distributions angulaires des noyaux de recul des diffusions élastiques sont données dans le centre de masse. Il convient pour la détection des neutrons par l'intermédiaire des noyaux de recul d'utiliser des cibles composées d'atomes légers (masse voisine de celle du neutron), plus particulièrement des atomes d'hydrogène : si $m_n = m_r \approx m_H$ alors $\xi = 1$ et

$$E_r = E_n \cos^2 \theta_r \quad (1.4)$$

En effet, les noyaux légers sont les "ralentisseurs de neutrons" les plus efficaces. Lorsqu'un neutron heurte un noyau lourd, il rebondit en transférant très peu d'énergie. Ces neutrons qui ont rebondi ne seront pas diffusés par le nuage d'électrons légers autour du noyau, mais continueront en ligne droite. Les matériaux composés d'éléments légers seront utilisés dans notre étude pour "thermaliser" les neutrons rapides. Dans une collision frontale ($\theta_r = 0$) la fraction maximale d'énergie $\bar{\tau} = E_r/E_n$ transmise au noyau cible diminue lorsque la masse du noyau cible augmente comme l'indique les valeurs du tableau 1.6.

la figure 1.17 représente la section efficace de diffusion élastique des neutrons incidents sur des atomes de C, H, et O composants essentiels de nos DSTN.

Noyau cible	Masse atomique	Fraction maximale transmise $\Upsilon = E_r/E_n$
Hydrogène	1	1
Deutérium	2	$8/9 \approx 0,89$
Hélium	4	$16/24 \approx 0,64$
Carbone	12	$48/169 \approx 0,28$
Oxygène	16	$64/289 \approx 0,22$

Tab. 1.6: Fraction maximale d'énergie de neutron transférable aux noyaux de recul lors d'une collision frontale.

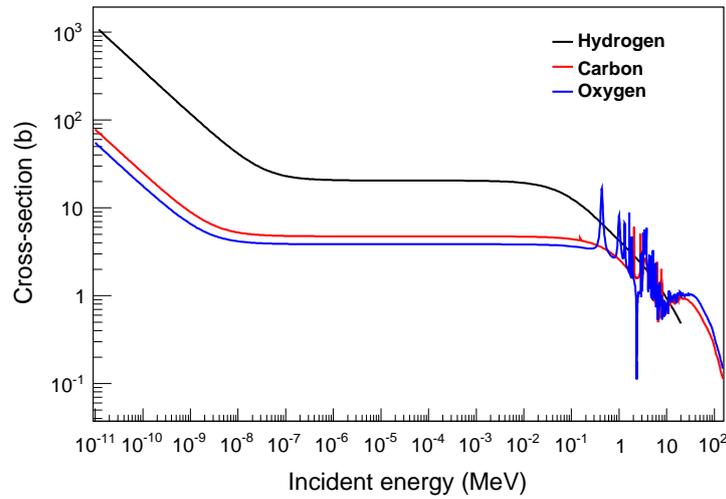


Fig. 1.17: Courbe de section efficace de neutrons incidents sur des atomes de C, O, H ; seul H ne présente pas de résonance.

L'énergie moyenne des neutrons après "n" chocs élastiques sur des noyaux d'hydrogène est donnée par la relation [Kur35] :

$$\bar{E}_n = \frac{\int_0^{T_1} E f_n(E) dE}{\int_0^{T_1} f_n(E) dE} = \frac{E_1}{2^n}$$

avec

$$f_n(E) = \frac{1}{(n+1)! E_1} \ln \left(\frac{E_1}{E} \right)^{n-1}$$

$f_n(E)$ est la fonction représentant la forme du spectre de neutrons en fonction de l'énergie,
 E_1 est l'énergie initiale du neutron.

2. La diffusion inélastique(n,n') :

Lors d'une collision inélastique avec un noyau, un neutron peut être absorbé momentanément ; le noyau ainsi composé est dans un état excité. Il se désexcitera par émission gamma ou conversion interne en émettant un nouveau neutron, moins énergétique. Ce processus n'est possible que pour des neutrons rapides, car l'énergie des neutrons lents n'est en général pas suffisante pour exciter le noyau. Autrement, le noyau reste dans l'état métastable ; il s'agit des réactions à seuil. Le tableau 1.7 illustre le seuil énergétique nécessaire pour une diffusion inélastique sur quelques éléments [Bar85]. Dans toutes diffusions inélastiques il n'y a pas conservation de l'énergie cinétique après collision.

Eléments	Seuil de diffusion inélastique (MeV)
C	4,40
O	6,10
Al	0,85
Si	1,30
Fe	0,85
Pb	0,60

Tab. 1.7: Seuil d'énergie de diffusion inélastique pour différents éléments.

- Les réactions de fission (n,f)
Les neutrons de toute énergie réagissent avec des éléments lourds comme ^{233}U , ^{235}U et ^{239}Pu pour former un noyau composé instable qui se désintègre ensuite en fragments de fission en émettant des neutrons rapides. La section efficace est plus grande pour les neutrons lents. Pour les nucléides tels que le ^{232}Th et ^{238}U , la fission n'a lieu que pour des énergies du neutron supérieures à 1 MeV (figure 1.18). Cette propriété est exploitée dans les dosimètres de neutrons basés sur l'utilisation d'éléments fissiles, pour séparer la composante rapide des thermiques.
- Les réactions nucléaires (n,nx)
Dans ces réactions, le noyau cible en absorbant un neutron forme un noyau composé qui en se désexcitant émet de nouveaux neutrons ou des particules chargées (proton, alpha). La plupart des réactions nucléaires (n,x) sont endoénergétiques ($Q < 0$), par conséquent le neutron doit disposer de l'énergie suffisante (réaction à seuil) pour que la réaction se produise ; toutefois, il existe des exceptions (réactions exoénergétiques). La connaissance des paramètres (angle de diffusion, énergie de réaction) concernant les particules chargées créées par ce type de réaction $^{10}\text{B}(n,\alpha)^7\text{Li}$, $^3\text{He}(n,p)^3\text{H}$, $^6\text{Li}(n,\alpha)^3\text{H}$ de sections effi-

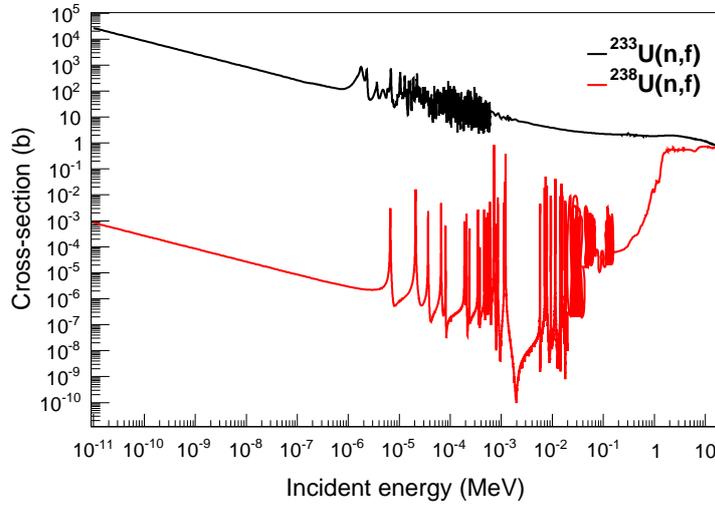


Fig. 1.18: Section efficace de fission de ^{233}U et ^{238}U .

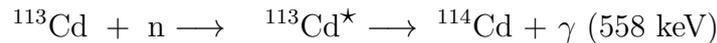
caces élevées (figure 1.19) permet en principe de remonter aux caractéristiques des neutrons incidents (neutrons lents). Le tableau 1.8 [Gua11] illustre quelques exemples de réactions nucléaires (n, particules chargées).

Cible	Réactions
^{10}B	$^{10}\text{B} + \text{n} \rightarrow \alpha (1,47 \text{ MeV}) + {}^7\text{Li} (0,84 \text{ MeV}) + \gamma$ à 94%
	$^{10}\text{B} + \text{n} \rightarrow \alpha (1,78 \text{ MeV}) + {}^7\text{Li} (1,01 \text{ MeV}) + \gamma$ à 6%
^6Li	$^6\text{Li} + \text{n} \rightarrow {}^3\text{H} (2,72 \text{ MeV}) + \alpha (2,05 \text{ MeV})$
^3He	$^3\text{He} + \text{n} \rightarrow {}^3\text{H} (191 \text{ keV}) + \text{p} (573 \text{ keV})$

Tab. 1.8: Quelques réactions (n,x)

– Les réactions de capture radiative (n, γ)

Le noyau de l'atome cible capture le neutron incident, le nouveau noyau composé possède une énergie d'excitation élevée qui est la somme de l'énergie cinétique du neutron incident et de son énergie de liaison dans le noyau composé. Le noyau excité revient dans son état fondamental en émettant un ou plusieurs photons accompagné de conversion d'électrons comme l'illustre ces réactions :



Le phénomène d'activation a lieu si le noyau résiduel formé après la capture est radioactif. Plus la vitesse des neutrons est

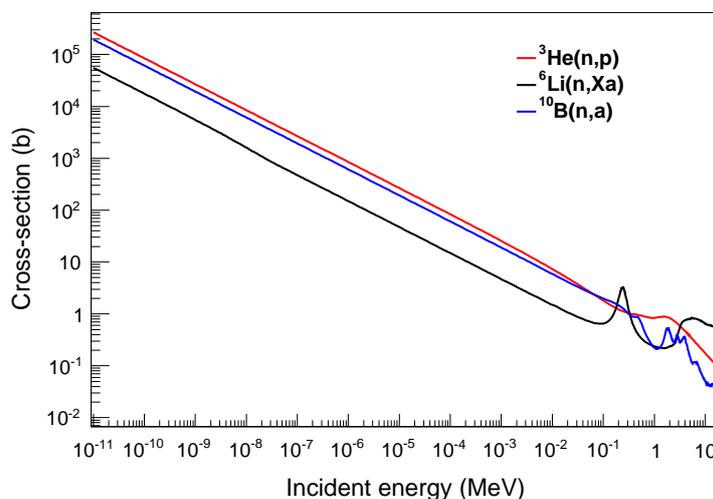


Fig. 1.19: Section efficace de quelques réactions nucléaires extraites de la base de données /ENDF/B-VII.0.

petite, plus la section efficace de capture radiative est grande et d'ordre de grandeur très variable selon les nucléides. Le comportement des courbes de sections efficaces (figure 1.20) présente des similarités plus ou moins systématiques, ainsi on a :

- un comportement général inversement proportionnel à la vitesse des neutrons ; cette loi en $1/v$ est le plus souvent bien suivie dans le domaine des neutrons thermiques (en dessous de l'électronvolt) ;
- un comportement complexe avec une courbe présentant de nombreux "pics" passablement irréguliers dans le domaine épithermique, typiquement entre quelques eV et quelques keV ; ces pics sont appelés "résonances" de la section efficace.

Nous utiliserons dans notre travail une coquille de Cd de rayon 15,30 cm et d'épaisseur 0,8 mm afin d'absorber les neutrons thermiques produits par la modération à l'eau lourde d'une source de ^{252}Cf .

1.5.6 Autres sources de neutrons

Les autres sources de neutrons sont :

- les rayons cosmiques : les neutrons de basses énergies (< 10 MeV) sont les produits de l'évaporation des noyaux atmosphériques initialement excités par les particules primaires de hautes énergies. Leur distribution angulaire est quasi-isotrope. Les neutrons de hautes énergies proviennent du choc direct entre les pro-

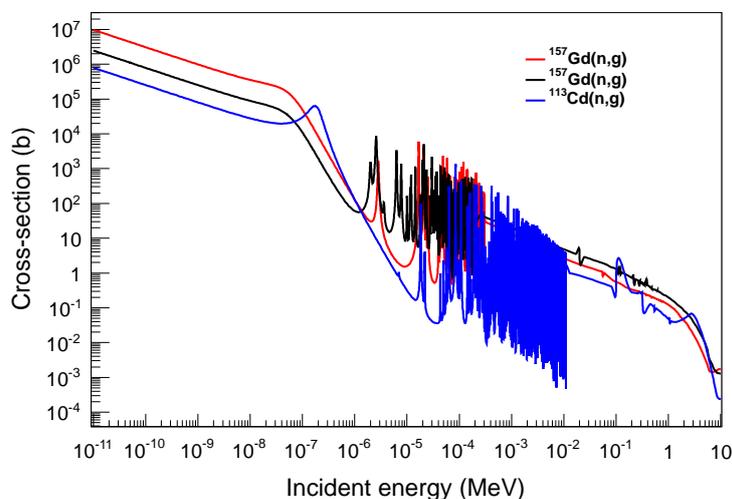


Fig. 1.20: Section efficace de quelques réactions nucléaires (n,γ) extraites de la base de données /ENDF/B-VII.0.

tons de hautes énergies et les noyaux de l'atmosphère au cours des réactions en chaîne périphériques (au départ de la gerbe de particules secondaires). Ils présentent une distribution angulaire anisotrope, car ils sont produits de façon privilégiée en direction de la surface de la Terre. La présence de ces neutrons en haute atmosphère est gênante pour l'électronique embarquée.

- la spallation : c'est une réaction au cours de laquelle des protons très énergétiques (≈ 1 GeV) vont collisionner une cible afin de produire des neutrons.
- les réactions de fusion constituent aussi une source de production de neutrons.

1.5.7 Détection des neutrons

Deux problématiques se posent quant à la détection des neutrons. La première est celle récurrente de la discrimination entre neutrons et photons généralement produits en même temps. Les détecteurs que nous utiliserons dans ce travail sont transparents aux rayonnements gamma.

La deuxième problématique est que le neutron n'interagit pas directement avec la matière, de ce fait sa détection s'effectue grâce à des particules secondaires chargées produites lors de la diffusion et/ou de la capture dans la matière.

1.5.7.1 Détection des neutrons grâce aux protons de recul

Dans la section 1.5.5.1 il a été montré que pour une collision frontale la fraction d'énergie transmise est maximale pour les atomes d'hydrogène, par conséquent les matériaux fortement hydrogénés constituent les meilleurs candidats pour produire des noyaux de recul (protons) détectables par les instruments de mesure. Le convertisseur le plus utilisé pour la diffusion élastique H(n,p)n est le Polyéthylène (PE) de formule $(CH_2)_n$.

Nous n'utiliserons pas de convertisseur PE dans la mesure où le PN3 (49% d'hydrogène; $n_H \approx 24 \cdot 10^{22} \text{cm}^{-3}$) peut jouer le rôle de convertisseur et de dosimètre avec une réponse très proche des dosimètres mixtes (PN3 + PE).

1. Distribution angulaire des protons de recul

La figure 1.21 dont les données proviennent de la base ENDF/B-VII.0 représente la distribution angulaire des protons de recul pour des énergies de neutrons de 1 eV, 500 keV, 1 MeV, 5 MeV et 10 MeV dans le référentiel du centre de masse. La distribution est uniforme lorsque l'énergie des neutrons est inférieure ou égale à 1 MeV et quasi uniforme à 10% près entre 1 et 10 MeV. Dans le

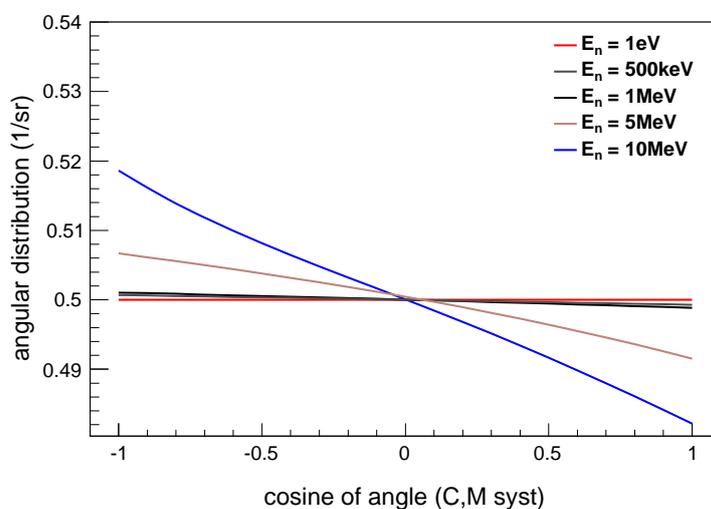


Fig. 1.21: Distributions angulaires des protons de recul résultant de la diffusion élastique de neutrons dans le centre de masse.

système du laboratoire, cette distribution angulaire a une forme parabolicoïde dont les minima sont nul ou quasi nul pour des angles de 0 à 90° avec un maxima à 45°.

2. Distribution en énergie des protons de recul

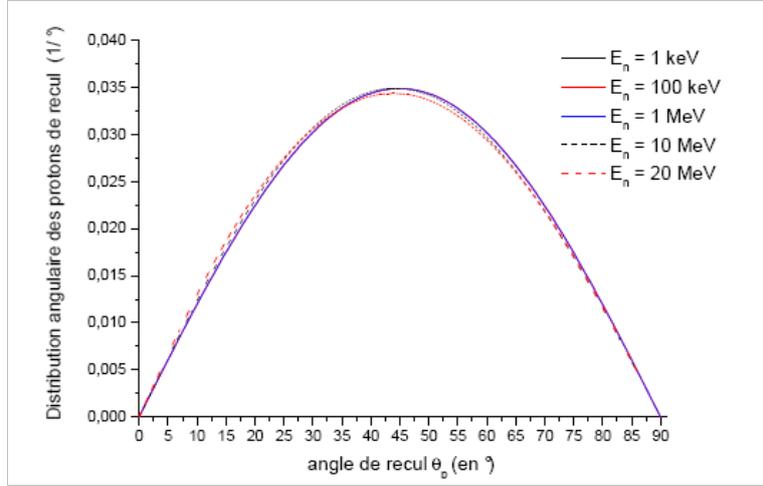


Fig. 1.22: Distributions angulaires des protons provenant de la diffusion élastique des neutrons dans le système du laboratoire [All09].

L'équation 1.4 où le noyau cible est le proton s'écrit comme suit dans le système du laboratoire :

$$E_p = E_n \cos^2 \theta_r \quad (1.5)$$

et dans le système du centre de masse :

$$E_p = \frac{E_n}{2} (1 - \cos \theta) \quad (1.6)$$

La diffusion élastique étant le processus majeur dans la création de protons de recul, la probabilité pour qu'un proton ait une énergie comprise entre E_p et dE_p est :

$$P(E_p)dE_p = \frac{\sigma(\theta)}{\sigma_d} d\omega = \frac{\sigma(\theta)}{\sigma_d} 2\pi \sin \theta \quad [\text{Ben07}] \quad (1.7)$$

$\sigma(\theta)$ = section efficace différentielle angulaire de diffusion ;

σ_d = section efficace totale de diffusion.

Puisque la diffusion élastique de neutrons sur les protons dans le centre de masse est isotrope pour des énergies inférieures à 10 MeV, on a par symétrie sphérique :

$$\frac{\sigma(\theta)}{\sigma_d} = \frac{1}{4\pi} \quad (1.8)$$

Grâce aux équations 1.6, 1.7, 1.8 :

$$P(E_p) = \frac{1}{E_n} \quad \text{si } E_p < E_n$$

$$P(E_p) = 0 \quad \text{si } E_p > E_n$$

La représentation graphique (figure 1.23) de la fonction $P(E_p) = 1/E_n$ est rectangulaire et met en évidence l'uniformité de la distribution en énergie des protons de recul.

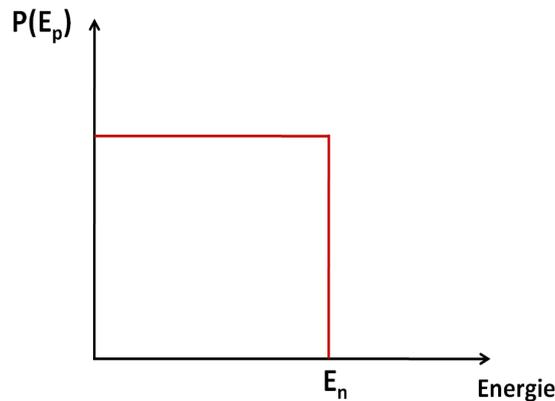


Fig. 1.23: Distribution énergétique des protons de recul provenant de la diffusion élastique des neutrons dans le système du centre de masse.

1.5.7.2 Détection des neutrons grâce aux particules alpha

La détection des neutrons thermiques se fait via les réactions nucléaires du type (n, particules chargées). En effet l'utilisation de convertisseur à section efficace très élevée comme le ^{10}B , ^3He , et le ^6Li permet de créer des particules chargées alpha détectables par les différents instruments en dosimétrie (figure 1.24). Nous avons utilisé deux types de convertisseurs borés, l'un connu sous le nom de BE10 (constitué de ^{10}B à 99%) et l'autre BN1 (Bore Naturel constitué de ^{10}B à 20% et de ^{11}B à 80%).

1. Caractéristiques des convertisseurs borés utilisés

La société DOSIRAD [Sar10] spécialisée dans les ventes des "films nucléaires" nous a fourni les convertisseurs BE10 et BN1 utilisés pour nos expériences. Les données du constructeur montrent que le BE10 et le BN1 sont tous deux composés de trois parties :

- une couche de support en PET (Polyéthylène Téréphtalate) de $100\mu\text{m}$ d'épaisseur, de formule brute $\text{C}_{10}\text{H}_8\text{O}_4$;

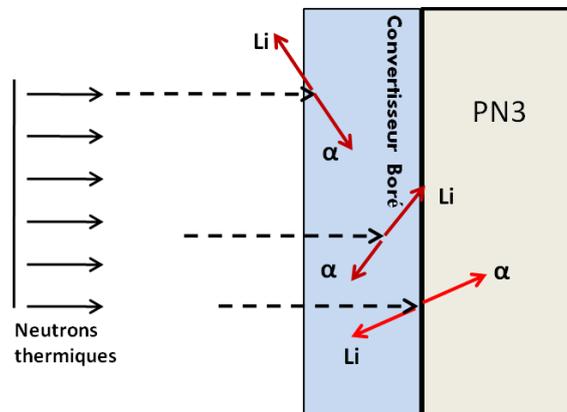


Fig. 1.24: Schéma de principe de détection de particule alpha par la réaction $^{10}\text{B}(n,\alpha)^7\text{Li}$.

- une couche d'accrochage de $2\ \mu\text{m}$ composée de SARAN F-310 (Polyvinyl Dichloride) ;
- une couche active de 92% de poudre de bore naturel (BN1) ou bore 10 (BE10) et de 8% de résidu de liant organique (70% de méthyléthylcétone de formule brute $\text{C}_4\text{H}_8\text{O}$, 25% d'esters méthyliques et 5% de cyclohexane) d'épaisseur $40\ \mu\text{m}$.

2. Autres convertisseurs

Il existe d'autres types de convertisseurs de neutrons thermiques comme :

- le nitrate de lithium naturel LiNO_3 ;
- le tétraborate de lithium $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$;
- l'élastobore B_4C ;
- le fluorure de lithium LiF ;
- l'ortho-carborane $\text{C}_2\text{B}_{10}\text{H}_{12}$;
- Le téflon C_2F_4 dopé au bore ou au lithium.

1.6 Dosimétrie

La dosimétrie est l'un des outils de la radioprotection, elle a pour objet de quantifier la dose absorbée par l'organisme humain et les dégâts biologiques y résultant. Pour évaluer les effets observés en fonction des quantités de rayonnement reçues en un lieu (dosimétrie de zone) ou sur une personne (dosimétrie individuelle), on se réfère à des grandeurs et unités de mesures définies par l'ICRU⁹ [ICRP96] suivant que

9. ICRU : International Commission on Radiation Units and measurements

l'on considère des sources, des champs de rayonnements, ou des cibles irradiées.

La radioprotection est l'ensemble des dispositions (règles, normes, procédures), des moyens de prévention et de surveillance visant à empêcher ou réduire les effets nocifs des rayonnements directement ou indirectement ionisants produits sur des personnes, y compris les atteintes portées à l'environnement conformément aux normes prévues par la législation et les règlements en vigueur. Les grandeurs en radioprotection peuvent être classées en trois grandes catégories :

- les grandeurs physiques ;
- les grandeurs de protection ;
- les grandeurs opérationnelles.

1.6.1 *Les grandeurs physiques*

Les grandeurs physiques sont des grandeurs accessibles quantitativement par le calcul ou par la mesure. On distingue parmi ces grandeurs : l'énergie, l'activité, le taux d'émission, l'intensité d'émission, les grandeurs radiométriques et dosimétriques.

1.6.1.1 *Les grandeurs radiométriques*

Elles servent à caractériser le champ de rayonnements, on peut citer le flux, la fluence et le débit de fluence. La fluence Φ représente le nombre de particules incidents dN sur une sphère de section droite dS :

$$\Phi = \frac{dN}{dS}.$$

Le débit de fluence $\dot{\Phi}$ est défini comme la dérivée de la fluence par rapport au temps $\dot{\Phi} = \frac{d\Phi}{dt} = \frac{d^2N}{dt ds}$.

Le flux qui n'est pas à confondre avec la fluence est défini comme le nombre de particules émises, reçues ou transférées par unité de temps

$$\varphi = \frac{dN}{dt}.$$

1.6.1.2 *Les grandeurs dosimétriques*

Elles caractérisent l'effet physique des rayonnements sur la matière en terme d'énergie transférée ou reçue.

1. **Le Kerma ou dose transférée**

Le Kerma (Kinetic Energy Released in MAtter) est défini par la

formule : $K = \frac{dE_i}{dm}$ où dE_i est la somme des énergies cinétiques

initiales de toutes les particules chargées mises en mouvement par les particules incidentes dans l'élément de volume de masse dm . Il traduit le transfert d'énergie aux particules secondaires chargées directement ionisant. Son unité est le Gray (J.kg^{-1}). Le Kerma est donc utilisé pour caractériser les effets des rayonnements indirectement ionisants comme les photons et les neutrons.

2. La dose absorbée

La dose absorbée D est le quotient de l'énergie moyenne ΔE cédée par le rayonnement à l'élément de matière de masse Δm ; elle est exprimée en Gray (J.kg^{-1}) : $D = \frac{\Delta E}{\Delta m}$. La dose absorbée est bien définie pour la matière inerte, par contre, elle ne rend pas compte des effets biologiques des rayonnements sur les tissus vivants, d'où la nécessité de définir des grandeurs de protection.

1.6.2 Les grandeurs de protection

L'effet des rayonnements sur l'organisme ne dépend pas uniquement de la dose absorbée mais également de la nature du rayonnement et de la radio-sensibilité des tissus ou organes exposés. Les grandeurs de protection ne sont pas mesurables et sont définies dans les recommandations de l'ICRP¹⁰ [ICRP07]. Elles permettent de fixer les limites d'exposition externe et interne.

1.6.2.1 Dose Equivalente

Tous les rayonnements ne produisent pas le même effet biologique pour une même dose absorbée; à dose absorbée égale pour un même tissu, certains rayonnements sont plus néfastes que d'autres. Pour exprimer cet effet, l'ICRP a défini un facteur de pondération radiologique W_R dépendant de la nature et de l'énergie du rayonnement R . La dose équivalente a pour expression $H_T = \sum_R W_R D_{T,R}$ où $D_{T,R}$ est la dose absorbée moyenne dans l'organe ou le tissu T pour un rayonnement R ; son unité est le Sievert (Sv). Les valeurs du facteur de pondération sont données dans le tableau 1.9.

1.6.2.2 Equivalent de dose efficace ou dose efficace

Chaque tissu ou organe, possède sa propre radio-sensibilité. Ainsi pour une même dose équivalente (H_T) nous avons des risques et effets biologiques différents en fonction du tissu ou de l'organe irradié. C'est pourquoi l'ICRP a introduit une grandeur caractérisant l'effet des

10. ICRP : International Commission on Radiological Protection.

Rayonnement	Gamme d'énergie	Valeur de W_R
$\gamma, e^+, e^-, \mu^+, \mu^-$	Toute énergie	1
p, π^+, π^-	Toute énergie	2
α , fragment de fission, ions lourds	Toute énergie	20
Neutrons	$E_n < 1\text{MeV}$	$2,5 + 18,2e^{-\ln(E_n)^2/6}$
	$1\text{ MeV} \leq E_n \leq 50\text{MeV}$	$5 + 17e^{-(\ln 2E_n)^2/6}$
	$E_n > 50\text{ MeV}$	$2,5 + 3,25e^{-(\ln 0,04E_n)^2/6}$

Tab. 1.9: Valeurs de W_R selon les recommandations de l'ICRP [ICRP07].

rayonnements sur les tissus et organes appelé dose efficace E . L'équivalent de dose efficace (ou dose efficace) est la somme des doses équivalentes dans les différents organes ou tissus, pondérées par le facteur tissulaire W_T . Ce facteur représente la radiosensibilité du tissu considéré; quelques valeurs sont données dans le tableau 1.10. La formule suivante traduit l'expression de la dose efficace : $E = \sum_T W_T H_T = \sum_T W_T \sum_R D_{T,R}$

Tissu ou organe	W_T donnée en %
Gonades	0,08
Moelle osseuse (rouge)	0,12
Colon	0,12
Poumon	0,12
Estomac	0,12
Vessie	0,04
Sein	0,12
Foie	0,04
Œsophage	0,04
Thyroïde	0,04
Peau	0,01
Surface des os	0,01
Cerveau	0,01
Glandes salivaires	0,01
Autres tissus ou organes	0,12
Total	100

Tab. 1.10: Facteurs de pondération tissulaire [ICRP07]

1.6.2.3 Dose engagée

La dose engagée, contrairement aux doses équivalente et efficace, concerne l'exposition interne résultant de l'incorporation d'un radionu-

cléide. Dans ce cas la durée de l'irradiation est liée à la période physique et à la période biologique de décroissance du radionucléide incorporé. On définit la dose équivalente engagée et la dose efficace engagée comme suit :

- dose équivalente engagée $H_T(\tau) = \int_{t_0}^{t_0+\tau} H_T(t) dt$;
- dose efficace engagée $E(\tau) = \sum_T W_T H_T(\tau)$.

1.6.3 Grandeurs opérationnelles

Les grandeurs de protection n'étant pas mesurables, l'ICRU a introduit le concept de grandeurs opérationnelles avec pour objectif d'estimer de façon "raisonnable" les grandeurs de protection. Pour les différentes expositions aux rayonnements ionisants, il existe deux types de grandeurs opérationnelles destinées à :

- la surveillance des zones de travail et de l'environnement : ce sont l'équivalent de dose ambiant $H^*(d)$ et l'équivalent de dose directionnel $H'(d, \alpha)$;
- la surveillance individuelle des personnes caractérisée par l'équivalent de dose individuel en profondeur $H_p(d)$.

1.6.3.1 Dosimétrie de zone ou d'ambiance

L'ICRU utilise une sphère¹¹ de 30 cm en matériau équivalent tissu qui représente le corps humain pour définir les grandeurs opérationnelles de zone. Ces grandeurs opérationnelles se réfèrent à la dose équivalente en Sievert qui existerait dans la sphère si cette dernière était placée dans le champ de rayonnement.

1. Equivalent de dose ambiant

Noté $H^*(d)$, il correspond à l'équivalent de dose en un point d'un champ de rayonnement qui serait produit par le champ correspondant expansé et unidirectionnel dans la sphère ICRU, à la profondeur d , sur le rayon faisant face à la direction du champ unidirectionnel selon la norme ISO 21909 [AFNOR05]. La profondeur recommandée est 10 mm d'où l'écriture $H^*(10)$. Notons que cette grandeur convient essentiellement pour l'estimation des doses dues aux rayonnements fortement pénétrants ; les appareils de contrôle d'ambiance sont calibrés majoritairement à partir de $H^*(10)$ et donne une estimation raisonnable de la dose efficace.

11. Sphère ICRU : composé de 76,2% d'oxygène, 11,1% de carbone, 10,1% d'hydrogène et 2,6% d'azote, de masse volumique 1 g.cm^{-3} .

2. Equivalent de dose directionnel

L'équivalent de dose directionnel $H'(d, \Omega)$ en un point dans le champ de rayonnement est la dose équivalente qui serait produite par le champ de rayonnement à une profondeur d (en mm) dans la sphère ICRU, sur un rayon et dans une direction spécifiée Ω . La profondeur recommandée est 0,07 mm ou 3 mm d'où les notations $H'(0,07, \Omega)$, $H'(3, \Omega)$. Cette grandeur est communément utilisée pour estimer les doses dues à des rayonnements faiblement pénétrants.

1.6.3.2 Dosimétrie individuelle

Equivalent de dose personnel en profondeur $H_p(d)$

L'équivalent de dose personnel en profondeur $H_p(d)$ est l'équivalent de dose dans un tissu mou (identique au matériau équivalent au tissu de l'ICRU) à un point spécifique de la surface du corps et à une profondeur recommandée de 10 mm pour le corps entier. D'autres valeurs sont préconisées par l'ICRU :

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

C'est la grandeur $H_p(10)$ qui est mesurée par un dosimètre porté à la surface du corps humain. Pour la calibration des dosimètres personnels une série de recommandations a été définie en utilisant un fantôme parallélépipédique (PMMA) de polyméthacrylate de méthyle $(C_5H_8O_2)_n$ de dimensions $30 \times 30 \times 15$ cm contenant de l'eau [AFNOR00]. Pour l'irradiation, le dosimètre individuel sera fixé sur la face avant du fantôme comme l'indique la figure 1.25.

Des fantômes anthropomorphiques plus ou moins complexes sont utilisés dans des simulations pour la détermination des grandeurs de protection ; ces fantômes représentent "un homme type" dans des champs d'irradiation standard. Il existe deux types de fantômes anthropomorphiques à savoir :

- **les fantômes mathématiques** : les différents organes du corps sont définis à l'aide de combinaisons d'équations de formes géométriques simples (sphères, cylindres, cônes, tores, ellipsoïdes ...). L'avantage de ce type de fantôme est qu'il est facile à coder en un temps de calcul rapide. Cependant sa simplicité ne permet pas de définir certains organes complexes comme la moelle rouge.

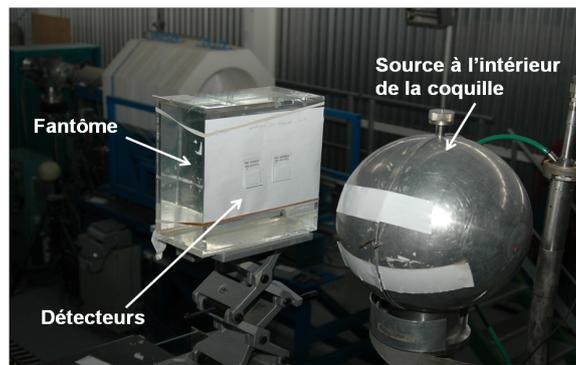


Fig. 1.25: Fantôme de calibration de l'installation Van Gogh de l'IRSN.

- **les fantômes voxelisés** : c'est une représentation du corps humain à partir d'images tomodensitométriques ou par IRM. L'ICRP 103 utilise des fantômes numériques de référence pour le calcul des équivalents de dose à l'organe et tissu. Sur la figure 1.26 nous avons un exemple de fantôme mathématique et voxelisé.

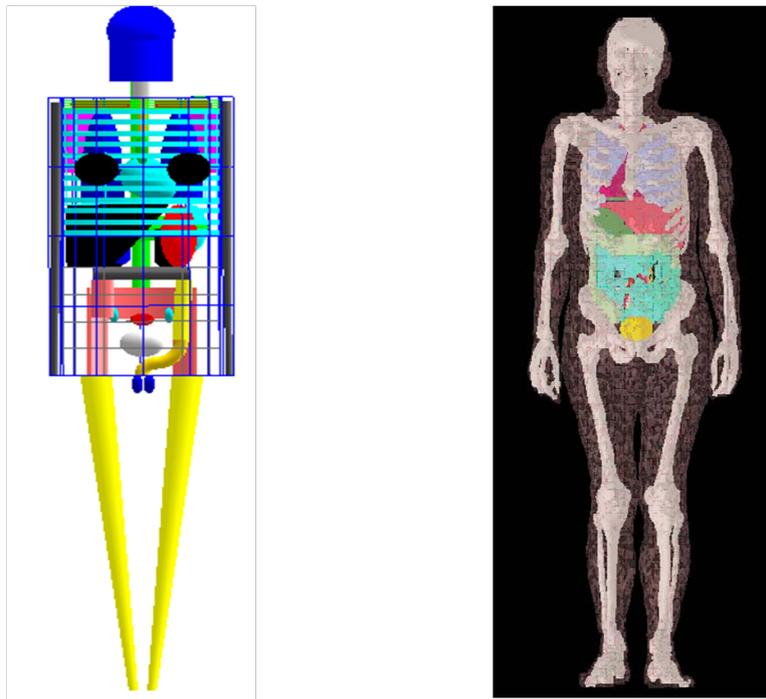


Fig. 1.26: De la gauche vers la droite un fantôme mathématique et un fantôme voxelisé.

1.6.3.3 Grandeurs opérationnelles et limites annuelles de dose

Les grandeurs opérationnelles étant de bons estimateurs des grandeurs de protection, elles peuvent être reliées aux limites annuelles de dose efficace et équivalente. La figure 1.27 et le tableau 1.11 résument respectivement les relations entre différentes grandeurs en radioprotection et les limites réglementaires de doses d'exposition.

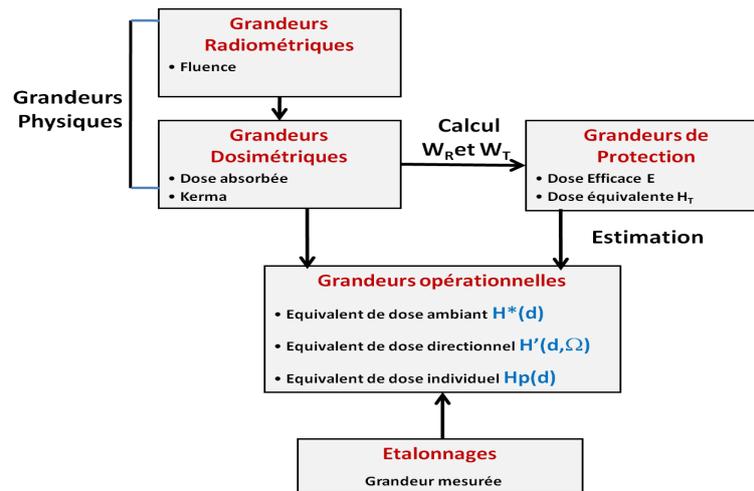


Fig. 1.27: Relation entre les grandeurs physiques, opérationnelles et de protection [Jim07].

Travailleurs	Grandeurs de protection		Grandeurs opérationnelles	Limite
	Dose efficace			
	Dose équivalente	Peau, mains, pieds	$H_p(0,07)$	500 mSv/an
		Cristallin	$H_p(3)$	150 mSv/an
Public	Dose efficace		$H_p(10)$	1 mSv/an en moyenne sur 5 ans
	Dose équivalente	Peau, mains, pieds	$H_p(0,07)$	50 mSv/an
		Cristallin	$H_p(3)$	15 mSv/an

Tab. 1.11: Valeurs de limites recommandées (ICRP publication 60).

1.7 *Dosimètres*

Les grandeurs opérationnelles sont accessibles par les dosimètres actifs et passifs. Dans ce travail, nous utiliserons essentiellement un dosimètre passif.

1.7.1 *Dosimètres actifs*

Les dosimètres actifs ou encore détecteurs semi-conducteurs mesurent l'équivalent de dose en temps réel; ils sont basés sur l'électronique et exploitent l'ionisation ou l'excitation des atomes lors de l'interaction avec la matière constituant le dosimètre. L'information donnée en temps réel est non seulement en dose intégrée mais aussi en débit de dose. L'une des difficultés majeures relative à l'utilisation des dosimètres actifs en dosimétrie neutron est la discrimination entre les neutrons et les photons; pour y arriver, la séparation des signaux par des procédés électroniques est utilisée. Notre laboratoire a développé un dosimètre opérationnel neutron avec la technologie des capteurs CMOS¹² de type MIMOSA¹³. En effet, cette technologie proposée en physique des particules pour la trajectographie des particules au minimum d'ionisation se compose d'une couche protectrice de SiO₂ et d'une couche épitaxiale (couche sensible de détection) de silicium pur de quelques μm d'épaisseur déposée sur un substrat de type P fortement dopé. Plus l'épaisseur de la couche sensible est faible, plus le capteur est transparent aux rayonnements gamma avec une sensibilité plus basse. La structure de détection se compose de deux éléments : un puits profond de type N qui joue le rôle d'élément collecteur de la charge et un puits de type P utilisé comme substrat pour l'électronique de lecture de chaque pixel. Contrairement aux anciens systèmes à micro pistes, il n'y a pas de champs électriques forts de collection de la paire électron-trou dans la technologie CMOS, la collection se fait par diffusion pure sur plusieurs micromètres de distance. Marie Vansdalle [Van11] a apporté la preuve expérimentale que les capteurs CMOS pouvaient être utilisés comme dosimètre neutron, toutefois elle a aussi mis à nu les faiblesses de ce dispositif dans sa thèse de doctorat soutenu en 2011. Au cours des tests du capteur CMOS en dosimétrie neutron, nos dosimètres passifs ont servi de témoin.

12. CMOS : Complementary Metal Oxide Semiconductor

13. MIMOSA : Minimum Ionizing MOS Active Pixel

1.7.2 *Dosimètres passifs*

Contrairement aux dosimètres actifs, les passifs ne permettent pas de suivre en temps réel les fluctuations de l'équivalent de dose. Pour la dosimétrie individuelle passive des neutrons, la norme ISO 21909 [AFNOR05] présente cinq classes de détecteurs passifs de neutrons utilisables comme dosimètres individuels dans certaines ou toutes les parties de la gamme d'énergie neutronique s'étendant de 25 meV à 20 MeV :

- dosimètres à émulsions nucléaires (DEN) ;
- détecteurs solides de traces nucléaires (DSTN) ;
- dosimètres thermo-luminescents à albédo (DTLA) ;
- dosimètres à émulsions surchauffées (DES) ;
- détecteurs à chambre d'ionisation (DIC).

Dans notre étude nous utiliserons parmi les détecteurs cités ci-dessus, un seul type de détecteur, à savoir les détecteurs solides de traces nucléaires (DSTN) pour la dosimétrie neutron et radon. La sensibilité des DSTN varie en fonction des neutrons (thermique, intermédiaire ou rapide) de telle sorte que plusieurs d'entre eux doivent être associés à des convertisseurs pour répondre aux besoins actuels de la dosimétrie.

1.7.2.1 *Historique et Principe des DSTN*

Lorsque le rayonnement se propage dans la matière, il laisse des traces latentes. Ce phénomène a été observé pour la première fois en 1958 par D.A Young [You58] dans un cristal de LiF préalablement en contact avec une feuille d'uranium. Une année plus tard Silk et Barn [Sil59] observèrent des zones de dommage (encore appelées traces latentes) dans le mica en utilisant un microscope électronique à transmission. Fleicher et al [Fle65] menèrent plusieurs travaux et améliorèrent les précédents en décrivant les mécanismes de développement chimique, de formation des traces dans des matériaux comme les minéraux, plastiques ou verres. Depuis lors, il y a eu une diversification du champ d'application des détecteurs solides de traces nucléaires dans des domaines aussi variés que la géologie, la biologie, l'archéologie, la physique nucléaire, l'étude des météorites, des échantillons lunaires.

Il y'a de grandes différences entre les traces latentes des deux grandes familles de détecteurs solides que sont :

- les minéraux (verre, mica, apatite, quartz, ...), les matériaux organiques polymères tels que les dérivés cellulosiques (nitrate de cellulose, di-acétate et tri-acétate de cellulose) ;
- les polycarbonates (CR-39, Lexan...).

1. Les détecteurs dérivés des minéraux organiques polymères : le LR115

Il s'agit d'un film en couche mince de marque Kodak. Il est constitué d'une couche de nitrocellulose ($C_6H_8N_2O_9$) de $12\ \mu\text{m}$ d'épaisseur moyenne, teintée en rouge et d'un support inerte de $100\ \mu\text{m}$ en polyester. Le nitrate de cellulose est parmi les DSTN les plus sensibles aux particules alpha. Il peut enregistrer des particules d'énergie comprise entre 1,4 et 4,7 MeV avec un angle d'incidence pouvant aller jusqu'à 50°C . Les particules alpha traversent ce type de détecteur laissant des trous de diamètres variables en fonction de l'énergie incidente. L'insensibilité du LR115 aux rayonnements électromagnétiques et aux électrons présente un grand intérêt pour son utilisation en champs mixte de rayonnements n/γ .

2. Les détecteurs dérivés des polycarbonates : les PADC

L'utilisation d'un polymère à base de carbonate de poly-allyldiglycol, connu sous la dénomination commerciale de CR-39 (Columbia Resin N°39) pour la détection des traces d'ions fut suggéré par Cartwright et al [Car78]. Ce polymère massif transparent, de formule chimique brute $C_{12}H_{18}O_7$ est utilisé dans l'industrie de la lunetterie, il offre à la fois une large gamme d'énergie et de type d'ion détectable lorsqu'il est utilisé en tant que DSTN. De nouvelles générations de films conditionnés et codés par différents fournisseurs pour avoir une identification unique sont commercialisées sous le nom de PN3 et neutrak (figure 1.28) ; les films CR-39 classiques sont commercialisés sous forme de feuilles de différentes épaisseurs. Les PN3 manufacturés par APVL¹⁴ et les neutrak 144-J fournis par Landauer Europe¹⁵ (dont les caractéristiques sont décrites dans le tableau 1.12) seront utilisés pour la dosimétrie neutron dans notre étude. Il existe plusieurs marques de PADC, on peut citer : les PM32, PM355, PM500, Makrofol®, Lexan® ...

1.7.2.2 Géométrie des traces observées dans les PADC

Lorsque les particules chargées interagissent avec le PADC, il y a brisure des liaisons intermoléculaires et formation de traces latentes ; la révélation de ses traces dépend essentiellement des conditions de traitement chimique (concentration de la solution, agitation uniforme de la solution, température, durée du décapage), de l'angle d'incidence et de

14. <http://www.apvl.com>

15. http://www.landauer-fr.com/dosimetres_neutrons_neutrak.html

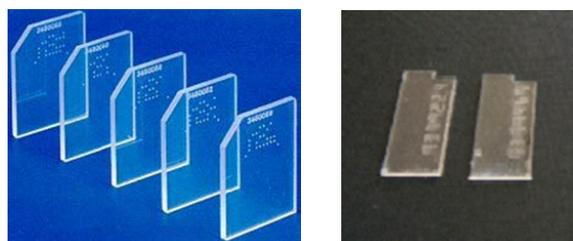


Fig. 1.28: PN3 et Neutrak de dimensions respectives $20 \times 25 \times 1,5$ mm ; $19 \times 9 \times 0,8$ mm.

Composition chimique	$C_{12}H_{18}O_7$
Densité	PN3 : $1,32 \text{ g.cm}^{-3}$ Neutrak : $1,32 \text{ g.cm}^{-3}$ CR-39 : $1,29 \text{ g.cm}^{-3}$
Poids moléculaire	274 g.mol^{-1}
Nombre d'électrons / molécule	146
A / Z	1,877
Potentiel d'ionisation	70,19 eV
Densité électronique	$1,24 \times 10^{23} \text{ g.cm}^{-3}$
Indice de réfraction	1,5
Seuil d'enregistrement Z/β	10

Tab. 1.12: Caractéristiques des DSTN.

l'énergie de la particule incidente. La forme des traces révélées (figure 1.29) régie par l'action simultanée de la solution chimique le long des trajectoires des particules et sur l'épaisseur du détecteur conduisent à considérer deux paramètres physiques à savoir :

- la vitesse d'attaque chimique surfacique du détecteur V_B ;
- la vitesse d'attaque chimique des traces latentes V_T ;

et les paramètres géométriques comme le diamètre et la hauteur des cônes caractéristiques des traces.

1.7.2.3 Les paramètres physiques liés aux DSTN

1. La vitesse d'attaque surfacique

Elle correspond à la vitesse avec laquelle l'épaisseur du détecteur est décapée lorsqu'il est soumis à un traitement chimique pendant une durée donnée. Généralement les techniques utilisées pour déterminer la valeur de V_B sont basées sur la mesure des épaisseurs, des masses du PADC. Nous utiliserons la mesure des épaisseurs dans notre travail.

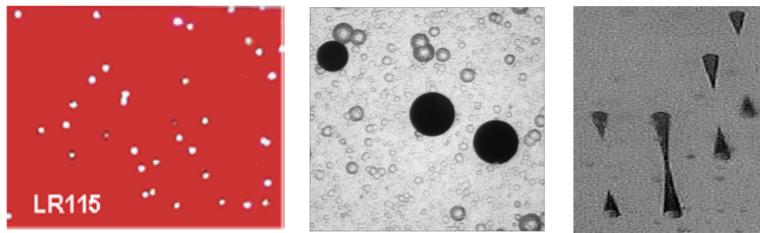


Fig. 1.29: De gauche à droite : traces de particules révélées dans le LR115 ; dans le PN3 à incidence normale et oblique.

– Méthode de mesure des épaisseurs du DSTN.

Durant le traitement chimique, la surface du détecteur est décapée couche par couche et son épaisseur diminue progressivement. Pour calculer V_B , l'épaisseur du détecteur est mesurée en des points sélectionnés avant le traitement chimique puis, remesurée à des intervalles de temps Δt régulier après chaque traitement. La vitesse d'attaque surfacique est donnée par l'expression $V_B = \Delta x / (2\Delta t)$ où Δx représente la variation d'épaisseur après le temps Δt mis pour le décapage.

– Détermination de V_B à partir de la variation de masse.

Cette méthode est basée sur la mesure de la variation de la masse Δm du détecteur avant et après traitement chimique, dans les mêmes conditions environnementales afin d'éviter les erreurs. A partir de la mesure de Δm et de la densité du détecteur on a : $V_B = \Delta m / (2S\rho)$; S =surface du détecteur, ρ =densité du détecteur et t =temps de décapage.

2. Vitesse d'attaque le long des traces

Notée V_T , cette vitesse traduit l'érosion interne des traces, c'est-à-dire la vitesse avec laquelle la solution chimique se propage le long de la trajectoire laissée par les particules incidentes dans le PADC. V_T dépend de l'énergie perdue par les particules incidentes, la température et la concentration de la solution.

3. Evaluation des paramètres à incidence normale et oblique

– Incidence normale.

Pour une incidence normale il y a formation de traces lorsque $V_T > V_B$. On déduit les relations suivantes à partir de la figure 1.30 :

$$L = (V_T - V_B)t$$

$$\sin \alpha = \frac{V_T}{V_B} = \frac{D/2}{L} \quad \text{et} \quad D = 2V_B t \sqrt{\frac{V_T - V_B}{V_T + V_B}}$$

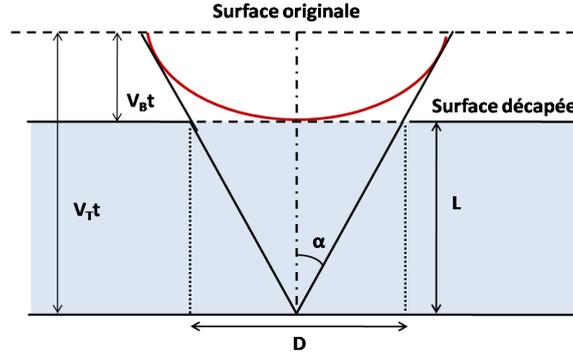


Fig. 1.30: Géométrie d'une trace à incidence normale.

– Incidence oblique.

En incidence oblique, la trace est inclinée d'un angle θ . L'ouverture de la trace à la surface du détecteur a la forme d'une ellipse dont le grand axe et le petit axe sont respectivement D_a , D_b :

$$D_a = \frac{2V_B t \sqrt{\left(\frac{V_T}{V_B}\right)^2 - 1}}{\left(\frac{V_T}{V_B}\right) \sin \theta + 1} \quad \text{et} \quad D_b = 2V_B t \left(\frac{\frac{V_T}{V_B} \sin \theta - 1}{\frac{V_T}{V_B} \sin \theta + 1} \right)^{1/2}$$

La longueur de la trace révélée est : $L = V_T t - \frac{V_B t}{\cos \theta}$.

4. Angle critique d'enregistrement.

Les traces dues à une incidence oblique de la particule incidente ne sont pas toutes observables même après un traitement chimique, car il existe un angle critique d'enregistrement (angle défini entre la trajectoire de la particule incidente et la normale à la surface du détecteur) en deçà duquel aucune trace n'est visible, son expression est : $\theta_c = \arccos \frac{V_B t}{\int_0^t V_T dt}$. C'est un paramètre important pour

les DSTN d'autant plus qu'il est lié à l'efficacité du détecteur par la relation : $\eta = 1 - \sin \theta_c$. Plus l'angle critique d'enregistrement est faible, plus l'efficacité du détecteur est élevée. La plupart des détecteurs ayant un angle critique d'enregistrement variant entre 2 et 5°C ont une grande efficacité de détection variant entre 85 et 99%.

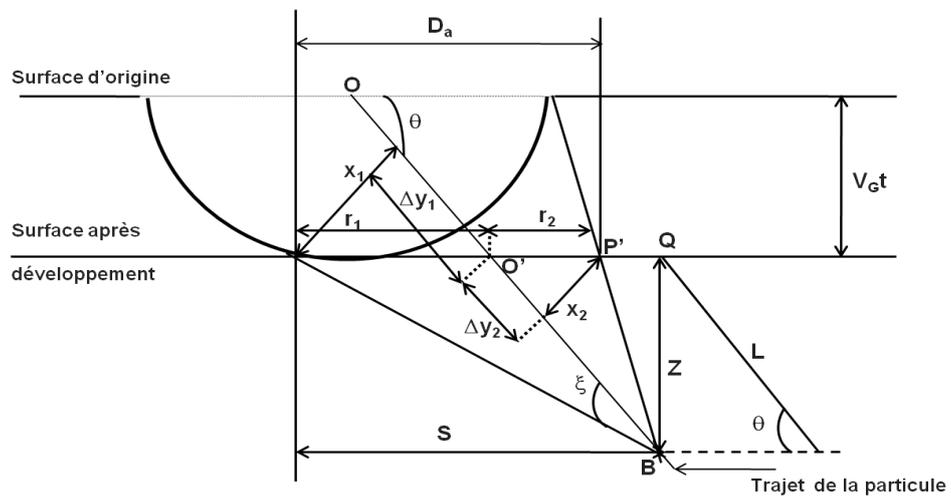


Fig. 1.31: Forme d'une trace révélée à incidence oblique.

Chapitre 2

2. SIMULATION MONTE-CARLO

Contents

2.1	Les principes de base de la méthode Monte Carlo	50
2.1.1	Les méthodes d'échantillonnage	50
2.1.2	Les générateurs de nombres aléatoires	50
2.1.3	Incertitudes statistiques	51
2.2	Le code MCNP	51
2.2.1	Notion de trace, de poids d'une particule et de section efficace	53
2.2.2	Définition d'un fichier d'entrée dans MCNPX . . .	55
2.2.3	Structure d'une simulation	56
2.2.4	Les paramètres optionnels utilisés	60
2.3	Le code GEANT4	61
2.3.1	Validation des codes de simulation	63
2.4	Code de traitement et d'analyse de données :	
	ROOT	64

Les méthodes Monte-Carlo sont des techniques statistiques basées sur des tirages de nombres aléatoires suivant des lois de probabilité ou densité de probabilité décrivant des phénomènes physiques mis en jeu et permettant de simuler leur caractère aléatoire. Dans les années 1940, Nicholas Metropolis et Stanislaw Ulam baptisèrent ces méthodes d'échantillonnage "Monte Carlo" par allusion à la principauté de Monaco et à son casino, haut lieu des jeux de hasard. Les méthodes Monte Carlo permettent de résoudre des problèmes complexes pour lesquels les approches analytiques ou numériques s'avèrent insuffisantes. Ces méthodes sont utilisées aujourd'hui dans plusieurs domaines notamment en physique nucléaire et subatomique pour le transport des particules lourdes et légères, dans les décisions financières par une approche

statistique du risque, en physique médicale etc. De nombreux codes Monte-Carlo ont été développés tels que les codes MCNP, MCNPX, GEANT4, TRIPOLI (code de résolution de l'équation du transport par méthode Monte Carlo développé au CEA), PENELOPE (PENetration and Energy LOSS of Positrons and Electrons) etc. La plupart de ces codes sont écrits dans le langage de programmation FORTRAN, à l'exception de GEANT4 qui est écrit en C++.

2.1 *Les principes de base de la méthode Monte Carlo*

2.1.1 *Les méthodes d'échantillonnage*

L'échantillonnage est réalisé à partir de deux méthodes : le méthode directe (ou d'inversion) et la méthode de réjection.

- **Méthode directe** : on définit une fonction de répartition F , monotone et croissante dans l'intervalle $[a,b]$ telle que : $F(a) = 0$ et $F(b) = 1$. Soit x , une variable aléatoire et $f(x)$ sa densité de probabilité cumulée associé dans l'intervalle $[a,b]$: $F(x) = \int_a^x f(x)dx$. On peut générer un nombre aléatoire A compris entre 0 et 1 tel que $A=F(x)$. La valeur échantillonnée y est obtenue en résolvant l'équation $y=F^{-1}(A)$. Ceci n'est possible que si la fonction de densité de probabilité $f(x)$ est intégrable et si la fonction de densité de probabilité cumulée $F(x)$ ainsi obtenue est réversible.
- **Méthode de réjection** : la densité de probabilité $f(x)$ est normalisée par rapport à sa valeur maximale, définissant ainsi une deuxième densité de probabilité $f'(x)$. Un nombre $A1$ est alors tiré aléatoirement dans l'intervalle $[0,1]$ et une valeur aléatoire $y1$ est calculée dans l'intervalle $[a,b]$ de sorte que $y1=a+(b-a)A1$. Un deuxième nombre $A2$ est tiré aléatoirement et la condition $A2 < f'(x)$ est testée. Si cette condition est satisfaite, $y1$ est acceptée, sinon, elle est rejetée et une nouvelle valeur $y2$ est calculée.

2.1.2 *Les générateurs de nombres aléatoires*

Les générateurs produisent une séquence de nombres "aléatoires" sans corrélation entre elle, issus d'une distribution uniforme entre 0 et 1, obéissant aux lois statistiques comme la moyenne, la variance etc. La précision d'une simulation dépend de la qualité du générateur utilisé. Dans la pratique, la plupart des générateurs de nombres aléatoires sont basées sur des algorithmes mathématiques déterministes répétitifs, fournissant des séries de nombres dit "pseudo-aléatoires". L'algorithme le plus couramment utilisé est celui de Lehmer, connu sous le nom de générateur par la méthode de congruence multiplicative

linéaire [And91]. Il produit des nombres compris entre 0 et $(m-1)$ à partir de la relation suivante : $x_{n+1} = (ax_n + c) \bmod m$, où m est la période du générateur et a, c des constantes. M est généralement égal à 2^b , b étant le nombre de bits codant un entier pour l'ordinateur utilisé. Pour le code MCNPX que nous avons utilisé le nombre maximum de particules produites est de l'ordre de 2.10^9 ($2^{31}-1$).

2.1.3 Incertitudes statistiques

Le calcul Monte Carlo est utilisé pour simuler des phénomènes aléatoires et est donc soumis à des incertitudes statistiques qui sont en général exprimées sous forme de variance ou d'écart type. Soit N le nombre total d'histoires (particules sources générées) que l'on souhaite simuler et x_i la valeur estimée pour la $i^{\text{ème}}$ histoire. La moyenne arithmétique d'une grandeur physique x échantillonnée au cours d'un calcul est définie par la relation :

$$\bar{x} = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N x_i$$

La variance associée est estimée à partir de la distribution de x_i :

$$s_x^2 = \frac{1}{N-1} \sum_{i=1}^N (x_i - \bar{x})^2$$

Si les variables x_i suivent une distribution normale, la variance de \bar{x} est :

$$s_{\bar{x}}^2 = \frac{s_x^2}{N}$$

D'une manière générale, l'incertitude statistique est proportionnelle à $\frac{1}{\sqrt{N}}$.

2.2 Le code MCNP

Le code Monte-Carlo développé par Los Alamos National Laboratory (LANL) dans les années 1940 est désigné par le sigle MCNP (Monte-Carlo N-Particle); il a été appliqué au transport des neutrons lors du projet Manhattan durant la seconde guerre mondiale pour des fins militaires. Ce code a vu son développement s'étendre au transport des photons, des électrons et à des applications pacifiques comme la radioprotection, la médecine, la physique des particules... Une extension du code MCNP nommée MCNPX (X pour eXtended) a été développée

plus tard à partir de la version 4C de MCNP qui prenait en compte un nombre limité de particules : les photons, les électrons et les neutrons. Le principe de fonctionnement de MCNPX est semblable à celui de MCNP4C, cependant il a été amélioré pour assurer le transport de 34 type de particules sur une large gamme d'énergie allant du meV au GeV. MCNPX a l'avantage de modéliser au mieux les interactions rayonnement-matière ; à chaque interaction une particule est transportée en fonction des processus physiques simulés. Le code suit d'une part l'histoire de chaque particule depuis sa création à sa disparition par fuite ou par absorption au cours d'une réaction et d'autre part, toutes les particules secondaires créées. La figure 2.1 décrit le passage d'un neutron dans le matériau par une succession de 7 événements. Dans le cas des particules neutres, comme les neutrons et photons, les

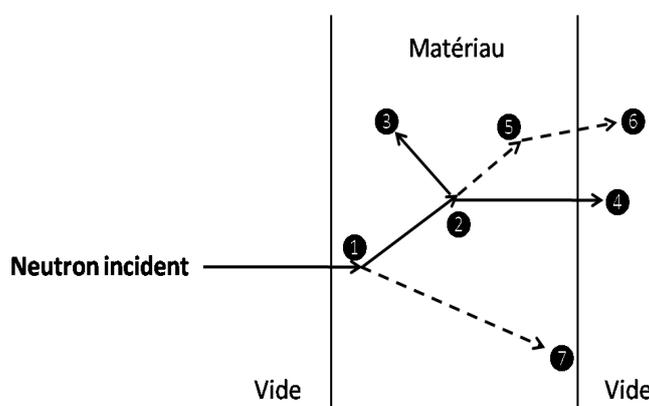


Fig. 2.1: Historique de la propagation d'un neutron dans un matériau. En (1) le neutron est diffusé sur un noyau du matériau avec production d'un photon par le noyau excité. En (2) fission et production d'un photon et de deux neutrons secondaires. L'événement (3) correspond à la capture de l'un des deux neutrons secondaires. En (4) fuite du deuxième neutron secondaire. En (5) diffusion du photon issu de la fission. En (6) fuite du photon issu de la fission. En (7) photo-absorption du photon issu de la désexcitation du noyau.

algorithmes calculent la distance qui sépare la particule de la bordure géométrique la plus proche, et la compare à la distance de la prochaine collision. Si la distance minimale correspond à une collision, les techniques d'échantillonnage sont utilisées pour le tirage du type d'interaction et le calcul des paramètres post-collision tels que l'énergie et la trajectoire des particules primaires et secondaires. En revanche, si la distance minimale correspond à une bordure géométrique, le code actualise la position de la particule dans la nouvelle cellule.

MCNPX offre plusieurs méthodes de calculs avancés, appelées techniques de réduction de variance, qui peuvent être combinées à la méthode Monte Carlo afin de réduire les temps de calcul pour une précision donnée sur le résultat. La fiabilité des valeurs calculées dépend des paramètres comme l'énergie et les sections efficaces, point faible de cette méthode. C'est la raison pour laquelle l'utilisation des codes Monte Carlo nécessite une validation expérimentale sur des cas similaires jugés relativement proches. MCNPX n'exige aucune connaissance en programmation de la part de l'utilisateur et son grand avantage est sa simplicité. Cependant ce code souffre de ne pouvoir avoir accès au code source, qui reste la propriété de Los Alamos. Son principe d'utilisation repose sur un unique fichier d'entrée codé dans un format ASCII. Dans notre étude nous avons utilisé la version 2.6f de MCNPX.

2.2.1 *Notion de trace, de poids d'une particule et de section efficace*

- **Trace** : l'émission d'une particule source initie une histoire. La trace reflète la trajectoire de la particule source durant son histoire. La particule source peut interagir et fournir une particule secondaire qui aura sa propre trace. Plusieurs traces peuvent ainsi appartenir à la même histoire. Une histoire se termine lorsque les trajectoires de la particule source et des particules secondaires sortent des limites géométriques de l'univers défini ou bien lorsque leur énergie cinétique atteint le minimum spécifié par l'utilisateur. Le passage d'une trace à travers une surface, ainsi que sa longueur à l'intérieur d'un volume permettent de calculer les flux de particules et les dépôts d'énergie dans le volume. Ces grandeurs seront obtenues par des tally.
- **Poids** : MCNPX ne simule pas exactement une particule physique dans la réalité, ceci afin de limiter la durée des simulations et améliorer l'efficacité des calculs. Un poids "w" de valeur 1 par défaut est associé à chaque particule; ce poids représente l'importance attribuée à la particule et reste constant pendant toute l'histoire de la particule. Si au cours de son histoire, la particule donne naissance par interaction à deux autres particules, ces dernières auront un poids identique égal à $w/2$ et ainsi de suite, de sorte que le résultat apporté par une particule soit multiplié par son poids. La figure 2.2 illustre bien ce processus.
A la fin de la simulation, les résultats attendus pour les "w" particules physiques sont comptabilisés dans le résultat final qui est normalisé à 1 par défaut, c'est à dire par particule source. En utilisant donc deux fois plus de particules sources, le résultat ne

sera pas deux fois plus grand mais plus précis.

Par exemple : supposons que l'énergie déposée par un proton de 1 MeV et de poids 1 soit de 1 MeV. L'énergie déposée par 100 protons de 1 MeV et de poids 1/100 est aussi de 1 MeV. L'incertitude statistique étant proportionnelle à $\frac{1}{\sqrt{N}}$ (N=nombre de protons), il est de l'ordre de 100% ($1/\sqrt{1}$) dans le premier cas et de 10% dans le second cas ($1/\sqrt{100}$).

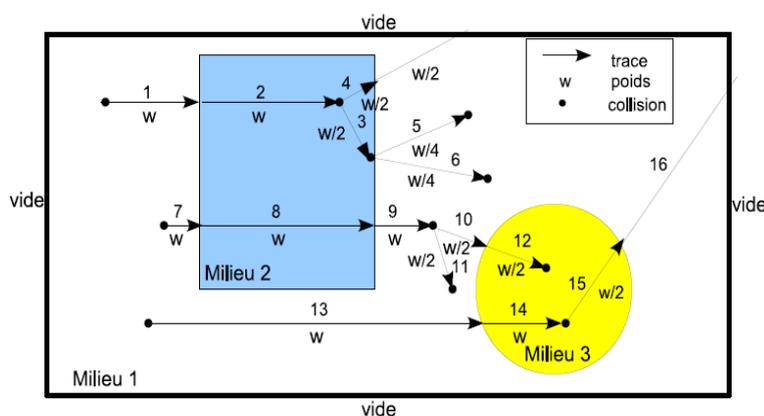


Fig. 2.2: Problème Monte Carlo de trois milieux avec trois histoires ; tiré de [Bad09].

- **Section efficace** : nous avons déjà abordé dans la section 1.5.2, l'existence de plusieurs bases de données standardisées sur les sections efficaces de différentes réactions. Le code de simulation MCNPX gère un ensemble de bibliothèques de sections efficaces par des interpolations et extrapolations dans des régions d'énergies où elles ne sont pas disponibles. Dans les régions énergétiques (haute énergie) non couvertes par les tables de sections efficaces, MCNPX utilise des modèles théoriques atomiques, nucléaires et quantiques (Isabel, Bertini-Dressner, ICNL ...). Ces modèles ne décrivent qu'un nombre limité de types de réactions. On comprend dès lors que les résultats d'une simulation dépendent fortement des sections efficaces utilisés, d'où la nécessité de valider la physique d'une simulation.

La figure 2.3 illustre les tables de sections efficaces et les modèles pour différentes gamme d'énergie dans MCNPX.

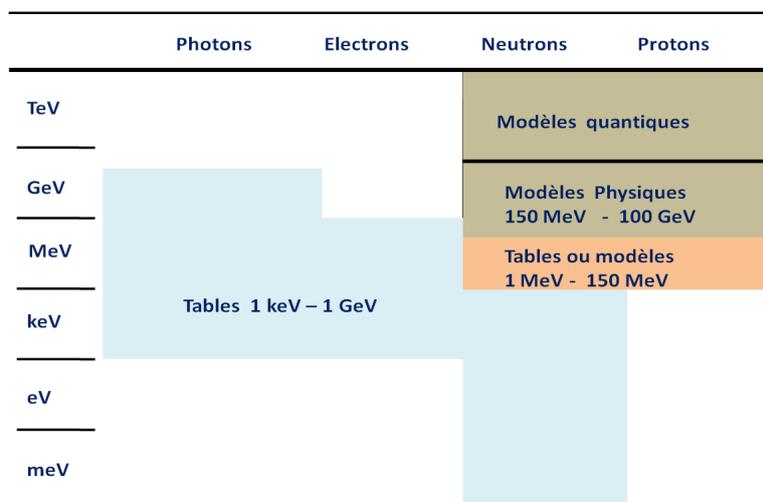


Fig. 2.3: Diagramme des tables de sections efficaces et modèles pour photons, électrons, neutrons et protons pour différentes gammes en énergie tiré de [Fma09].

2.2.2 Définition d'un fichier d'entrée dans MCNPX

Un fichier MCNPX se décompose en trois grandes parties, séparées par une ligne vide. La structure générale est la suivante :

- définition des cellules (contenant les surfaces et la spécification des matériaux) suivie d'une ligne vide ;
- définition des surfaces suivie d'une ligne vide ;
- définition des données (entre autres des matériaux et des estimateurs) et ajout d'informations et de données complémentaires.

Le principe de fonctionnement consiste à définir dans le fichier de données, les paramètres fondamentaux du problème à traiter. Ces paramètres sont :

- la définition de la géométrie du dispositif à simuler ;
- la description des matériaux, notamment leur composition chimique en terme d'éléments simples, ainsi que le choix des sections efficaces les mieux adaptées à ces matériaux ;
- la nature des particules à transporter ;
- la définition des sources de particules en termes de spectre d'émission, volume d'émission, loi d'émission angulaire ;
- les définitions des observables désirées (fluence, flux, dépôt d'énergie) par l'utilisation d'estimateurs appelés "tally" ;
- les paramètres additionnels utilisés pour améliorer l'efficacité, la rapidité d'exécution de la simulation.

2.2.3 *Structure d'une simulation*

2.2.3.1 *Règles à observer dans un fichier de données*

- le titre du problème est une ligne de huit caractères au maximum ;
- Il est possible d'ajouter des commentaires à l'intérieur du problème, soit en plaçant un "c" au début de la ligne pour mettre la ligne entière en commentaire, soit en plaçant le symbole "\$" à la fin d'une ligne pour ne mettre que ce qui vient après en commentaire ;
- aucune ligne du fichier ne doit dépasser 80 caractères, c'est pourquoi il faudrait terminer si besoin en ait une ligne par le caractère "&" et continuer sur la ligne suivante ;
- des caractères alphabétiques majuscules et/ou minuscules peuvent être utilisés ;
- les cellules, les surfaces et les données sont définies dans tous les ordres ;
- des cartes sont utilisées dans les définitions des cellules, surfaces et données.

2.2.3.2 *Définition des différentes structures*

1. **Définition des cellules**

Les cellules sont des boîtes constituant la géométrie à simuler. Dans une cellule, on définit :

- le numéro du matériau qui remplit la cellule ; la cellule est déclarée vide si on lui attribue le numéro 0 ;
- la densité des matériaux en g.cm^{-3} précédée d'un signe négatif ou en $10^{24} \text{ atomes.cm}^{-3}$ précédée d'un signe positif ;
- l'importance de la cellule pour les particules qui la traverse ou qui y sont créées, généralement égale à 1.

2. **Définition des surfaces**

Dans cette carte est spécifiée le numéro de la surface et ses dimensions. Le sens d'une surface est défini par un signe "+" ou un signe "-" devant le numéro de la surface. Pour une surface fermée (sphère, cylindre, cône ...) le signe "+" désigne l'extérieur et "-" l'intérieur de la surface.

3. **Définition des données**

C'est la dernière partie du fichier, elle regroupe un grand nombre de paramètres :

- le descriptif de la source, sa position, son spectre en énergie ou encore sa distribution angulaire ;
- les matériaux constituant les cellules ;
- les transformations de l'espace, utiles pour les rotations ou les inclinaisons des formes géométriques ;
- les observables ou estimateurs : "tally" et "mesh tally", ce sont des fonctions propres au code MCNPX qui permettent d'extraire les résultats d'une simulation, chaque résultat est exprimé par particule incidente ;
- les coupures qui permettent de limiter le temps de calcul.

4. Définition des sources

La carte essentielle décrivant la source est : SDEF ; de nombreux paramètres y sont définis. Voici quelques-uns en guise d'exemples :

- CEL : précise la cellule dans laquelle la source est définie ;
- SUR : définit la surface de la source ;
- ERG : définit l'énergie des particules sources, en MeV ;
- PAR : identifie le type de particule (électrons, protons,...) ;
- POS : définit le point de référence du centre de la source (par défaut(0, 0, 0)) ;
- VEC : représente le vecteur directeur de la source si elle est non isotrope ;
- DIR : est le cosinus directeur de la source si elle n'est pas isotrope ;
- RAD : définit le rayon de la source ;
- EXT : définit l'extension de la source depuis POS, le long de AXS ;
- AXS : définit l'axe de la source.

5. Définition des tally

Le terme tally (i.e. scores) désigne les résultats attendus à l'issue du calcul du code MCNPX. Ces codes permettent de calculer différentes grandeurs dans une ou plusieurs cellules de la géométrie. Les "tally" sont introduits par la carte Fn. Il en existe sept types, différenciés par le chiffre (n) en fonction du résultat que l'on souhaite obtenir. Les cartes En et FMn pour les "tally" sont des paramètres optionnels. Les différents types de "tally" sous MCNPX sont :

- F1 : donne comme résultat le nombre de particules traversant une surface dans l'un ou l'autre sens. Son unité est un nombre de particules ou le MeV ;
- F2 : donne la fluence de particules à travers une surface. Son unité est un nombre de particules par cm^2 ou en $\text{MeV} \cdot \text{cm}^{-2}$;

- F4 : est le flux moyenné dans une cellule, en particules par cm^2 ou en MeV.cm^{-2} ;
- F5 : est le flux en un point, en particules par cm^2 ou en MeV.cm^{-2} ;
- F6 : est l'énergie déposée en moyenne dans une cellule, en MeV.g^{-1} ou en jerks.g^{-1} ;
- F7 : est l'énergie de fission moyennée dans une cellule, en MeV.g^{-1} ou en jerks.g^{-1} ;
- F8 : est la distribution d'énergie des pulses déposée dans un détecteur, en pulses ou en MeV. Ce "tally" est différent du "tally" F6 puisqu'il n'exprime pas l'énergie déposée en fonction de l'énergie incidente, mais un nombre d'occurrence en fonction de l'énergie déposée.

Les deuxièmes unités correspondent à celles obtenues par adjonction d'un astérisque (Ex : *F1 a pour unité le MeV). Les estimateurs calculés sont normalisés au nombre de particules générées. Les mesh tally constituent un autre type d'estimateur, qui permettent de voxéliser l'information en maillant la cellule voulue et permettent de représenter des cartes 2D ou 3D des doses, flux ou autres quantités dans un détecteur.

Ci dessous un exemple de fichier d'entrée MCNPX.

```

Exemple } Titre du problème 80 caractères maximum, à option
c * Program : dE/dx_h.mcnp } Bloc de message à option
c * Task : check energy loss } Bloc de message à option
c après le symbole "c" suit des commentaires
c ccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccc
c Définition cellules
c ccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccc
c
1 0          1      imp :h=0 $ importance de h dans la cellule 1=0
2 1 -2.33   -1      imp :h=1 $ 2=cellule ; 1=matière ; -2.33=densité

c ccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccc
c Définition surfaces
c ccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccc
c
1 rpp -5. 5. -5. 5. -5. 5. $ parallépipède 10×10×10 cm3

c ccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccc
c Définition matériaux
c ccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccc
m1 14028.24c 1.00 $ Silicium Z=14 ; A=28 ; 24c=librairie
c ccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccc
c Définition source
c ccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccc
sdef par=h erg=1.5 pos=0. 0. 0.
c ccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccc
c Définition tally
c ccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccc
c
mode h      $ h ou 9=proton ; n ou 1=neutron ; p ou 2=photon
phys :h 7j  $ 7j=paramètres liés à la physique des protons
cut : h 1e34 1e-7 $ les protons d'énergies < 1e-7 sont tués
c
f4 :h 2 $ résultat attendu : fluence de proton dans la cellule 2
fm4 1000 $ multiplie le résultat du tally par 1000=103=V=volume &
de la matière 1. Après le symbole & on retourne à la ligne &
s'il y a plus de 80 caractères.
c
c ccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccc
c Exécution
c ccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccccc
nps 2e4 $ nombre de particules générées 20000

```

Exemple de fichier d'entrée MCNPX

2.2.4 Les paramètres optionnels utilisés

1. Techniques de réduction de variance.

Ces techniques sont indispensables lorsqu'un calcul nécessite trop de temps pour obtenir une statistique suffisante. Il existe plusieurs techniques, dont entre autres : la simplification de la géométrie, la variation de l'importance des cellules (incompatible avec le tally F8), les énergies de coupures (arrête de suivre les particules et diminue ainsi le temps par histoire), la moyenne sur les grands volumes.

2. La carte GEB (Gaussian Energy Broadening).

Elle permet de simuler la résolution en énergie des pics gaussiens d'un spectre. La définition des trois coefficients a, b et c dans le fichier d'entrée caractérise la résolution définie par la largeur à mi-hauteur des pics, $\text{FWHM}(E)^1 = a + b\sqrt{E + cE^2}$, où E est l'énergie exprimée en MeV. Ces coefficients sont fournis par le logiciel de spectrométrie γ génie2000.

3. La carte WGT.

Elle spécifie le poids de la source ; dans notre cas elle a été utilisée en dosimétrie radon et a pour formule $\text{WGT} = T \times A \times I$ où T = temps de comptage en seconde, A = activité de la source en Bq.m^{-3} et I = intensité d'émission en %.

Moritz, Vised et Sabrina sont quelques outils de visualisation disponible pour MCNPX. On peut grâce à ces outils visualiser la géométrie de la modélisation créée en 2D et 3D.

2.2.4.1 Fiabilité d'une simulation

Pour s'assurer de la fiabilité des résultats simulés par MCNPX, les tally sont associés à des erreurs relatives caractérisées par un nombre R. Cet écart type estimé et normalisé à la moyenne est donné par la relation $R = \frac{S_{\bar{x}}}{\bar{x}}$ qui est proportionnelle à $\frac{1}{\sqrt{N}}$ ($0 < R < 1$).

Ces erreurs ne sont pas dues aux résultats expérimentaux mais uniquement à la précision du calcul Monte Carlo. Le tableau 2.1 présente les intervalles d'erreurs relatives qui donnent un résultat fiable. Dans certains cas, les trajectoires de certaines particules sont importantes, l'échantillonnage n'est pas optimisé, ce qui engendre des erreurs dans les intervalles de confiance. Alors MCNPX affecte à chaque estimateur calculé sur T minutes, un facteur de qualité FOM (Figure Of Merit)

1. FWHM : Full Width at Half Maximum

en relation avec R l'erreur relative sur l'estimation d'une observable donnée :

$$FOM = \frac{1}{R^2 \times T}$$

Erreur relative	Fiabilité du calcul
0,5 à 1	Nulle
0,2 à 0,5	Faible
0,1 à 0,2	Discutable
< 0,1	Fiable
<0,05	Très fiable

Tab. 2.1: Tableau présentant la fiabilité d'une simulation Monte Carlo en fonction de l'erreur relative.

2.3 Le code GEANT4

Le code de simulation Monte Carlo GEANT4 basé sur la programmation orientée objet a été développé par le CERN pour simuler des collisions entre particules de hautes énergies ainsi que leurs interactions avec les détecteurs. GEANT4 offre la possibilité d'étudier plusieurs aspects d'une expérience : géométrie du système, matériaux utilisés, particules et processus physiques mis en jeu, génération des particules primaires, suivi des particules dans les matériaux, réponse du détecteur, visualisation du détecteur et des interactions. Il offre donc une flexibilité d'utilisation beaucoup plus importante que MCNPX, l'utilisateur a accès gratuitement au code source en ligne et peut y apporter toute modification désirée pour améliorer les performances physiques. La structure principale de GEANT4 est constituée de plusieurs catégories de classes en langage C++ dont chacune gère un aspect de la simulation. Un ensemble de programmes de complexité croissante vient avec le code et peut être employé comme point de départ pour l'utilisateur. Toutes les classes restent accessibles à l'utilisateur, notamment celles décrivant les processus physiques, la géométrie, les matériaux, les événements, les trajectoires... Elles se présentent ainsi :

- la catégorie Geometry regroupe toutes les classes nécessaires à l'utilisateur pour créer son environnement expérimental ;

- la catégorie Track contient un ensemble de fonctionnalités liées à la vie de la particule ainsi qu'au découpage de la trajectoire en un ensemble de steps. Ce module est utilisé par les processus ;
- la catégorie Processes contient toutes les classes concernant les processus physiques décrivant les interactions des particules avec les matériaux ;
- la catégorie Tracking regroupe les classes qui gèrent l'appel des processus physiques tout au long des différents steps qui constituent la trajectoire des particules ;
- la catégorie Run : son exécution commence avec la méthode BeamOn() ; il gère le lancement de la simulation ;
- la catégorie Event (évènement) suit l'histoire d'une particule source ;
- la catégorie Digits et Hits sert à enregistrer des informations (grandeurs physiques) liées à des éléments de la géométrie pour simuler la réponse du détecteur.
- la catégorie visualisation permet de voir la géométrie du détecteur, la trajectoire des particules, leurs interactions avec le détecteur. Plusieurs systèmes graphiques sont supportés : DAWN, WIRED, RayTracer, VRML, OPACS, OpenGL, OpenInventor, ASCII Tree etc.

La figure 2.4 ci-dessous illustre l'architecture de GEANT4. Une simula-

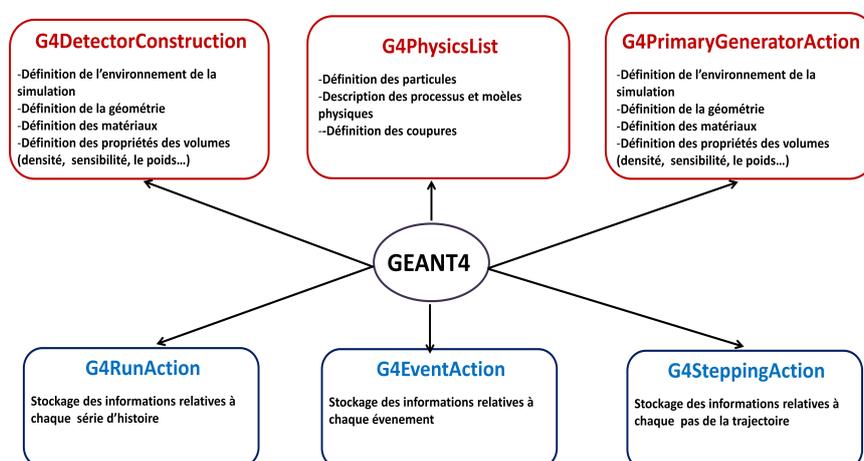


Fig. 2.4: Architecture d'un programme GEANT4.

tion avec GEANT4 contient au moins trois classes obligatoires à savoir :

- G4VUserDetectorConstruction : c'est une classe pour initialiser l'espace de simulation et la géométrie de la modélisation. De ce fait l'utilisateur a accès à différentes classes pour représenter des

formes élémentaires. On peut citer par exemple la classe G4BOX pour une forme parallélépipédique, G4Tubs pour un cylindre, G4Sphere pour une sphère etc. La combinaison de ces formes élémentaires permet de générer des formes plus complexes.

- G4VUserPhysicsList : cette classe permet de construire les particules et les processus physiques. En effet par défaut aucune particule ni aucun processus physique n'est défini, il appartient à l'utilisateur de définir toutes les particules utilisées, incluant les particules secondaires pouvant être produites par les interactions des particules primaires. Il existe plus d'une centaine de particules disponibles dans GEANT4 organisées en six grandes catégories : les leptons (électrons, muons, tau), les mésons (pions, kaons, etc.), les baryons (protons, neutrons, etc.), les bosons (Z^0 , W^+ , W^-), les particules à durée de vie courte et les noyaux (alpha, deutons ...). L'utilisateur définit aussi l'ensemble des processus physiques (effet compton, fission, création de paires, etc.) attribués à chaque particule. Une gamme de processus physiques dans un intervalle d'énergie allant de 250 eV à quelques TeV est proposée.
- G4VUserPrimaryGeneratorAction : cette classe permet de définir la source de particule utilisée afin de la générer. La source peut être ponctuelle ou complexe, sa position peut être fixe ou variable, l'énergie peut être fixe ou discrète.

Les classes optionnelles sont nombreuses, exemple : G4UserRunAction, G4UserEventAction, G4UserTrackingAction, G4UserSteppingAction etc.

2.3.1 *Validation des codes de simulation*

La fiabilité des valeurs calculées avec MCNPX et GEANT4 dépend essentiellement des sections efficaces, c'est la raison pour laquelle l'utilisation de ces codes Monte Carlo nécessite une validation expérimentale sur des cas similaires jugés relativement proche ou à partir des données de référence. Dans le but d'effectuer la comparaison entre les résultats expérimentaux et ceux obtenus par simulation afin de valider nos codes de simulation, nous avons procédé à la simulation du parcours projeté des protons et alpha dans le PN3 par SRIM, MCNPX et GEANT4 (figure 1.9 et 1.10).

Nous n'avons pas fait de simulation en dosimétrie neutron avec GEANT4 dans la suite de la thèse car, il a été démontré que ce code ne reproduit pas de façon satisfaisante le transport des particules par rapport

à MCNPX [Van11]. En effet, la seule bibliothèque G4NDL (Geant4 Neutron Data Library) qui gère le suivi des neutrons est incomplète, d'où l'utilisation de modèles en complément. En sus de la simulation du parcours projeté des alphas et protons, nous avons reproduit grâce à MCNPX les spectres bien connus de Cf, Cf+D20, Cf+D20+Cd de l'IRSN (figure 2.5) dans le cadre de la validation de ce code.

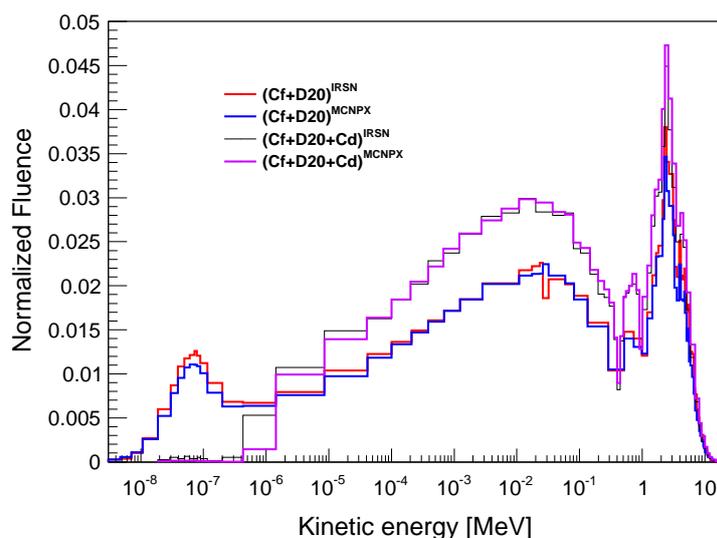


Fig. 2.5: Différents spectres de l'IRSN en vue de la validation du code MCNPX.

2.4 *Code de traitement et d'analyse de données : ROOT*

Dans le cadre de l'expérience NA49 au CERN, René Brun et Fons Rademakers ont au milieu des années 90 développé un logiciel "orienté objet" dénommé ROOT, qui est une bibliothèque de classes disponible gratuitement et facile à installer sur la plupart des machines. Les classes de ROOT offrent de très nombreuses possibilités dont :

- la capacité à stocker une importante quantité de données dans des bases de données optimisées appelées "arbres" ou "ntuples") ;
- la possibilité de visualiser des données par le biais d'histogrammes, de graphiques 2D, 3D et de faire du lissage de courbes ;
- la possibilité d'implémenter une interface graphique avec des boutons et des fenêtres pour lancer des applications ;
- la possibilité d'écrire du code compilé ou bien des scripts exécutés à l'aide de lignes de commandes grâce à un interpréteur C/C++ (CINT) développé par Masa Goto.

L'organigramme du système ROOT est décrit par la figure 2.6. Utilisé

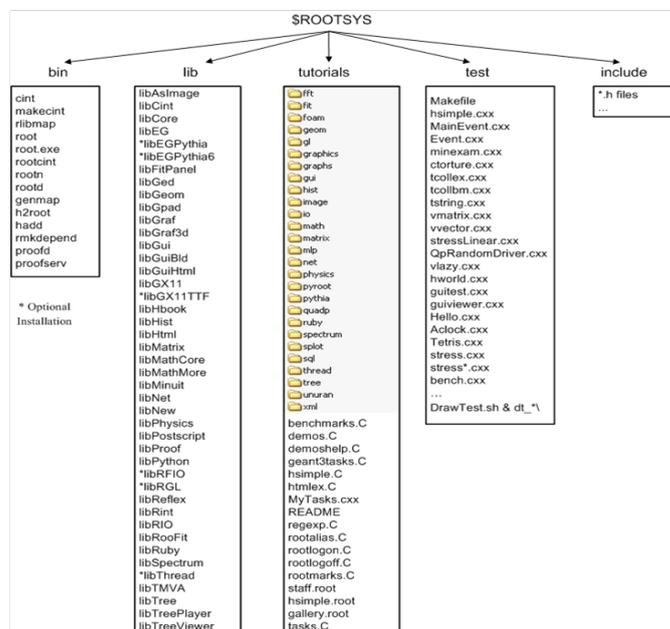


Fig. 2.6: Architecture du système ROOT.

surtout en physique des hautes énergies et en physique nucléaire, ROOT a vu de nos jours son champ d'application s'élargir à d'autres disciplines comme la médecine, la finance etc. Notons que ROOT peut être aussi utilisé pour faire des simulations. Tous les graphes de cette thèse ont été programmés par ROOT.

Chapitre 3

3. DOSIMÉTRIE RADON

Contents

3.1	Etude de quelques propriétés du radon	69
3.1.1	Risques radio-toxicologiques liés au radon	69
3.1.2	Principe de réduction du radon	70
3.1.3	Energie Alpha Potentielle (EAP)	70
3.1.4	Facteur d'équilibre	71
3.2	Etalonnage des DSTN pour la mesure du Radon	72
3.2.1	Système d'étalonnage	72
3.2.2	Etalonnage des DSTN par simulation Monte Carlo MCNPX	75
3.3	Evaluation de la concentration du radon à Ba- mako et comparaison avec d'autres mesures en Afrique	76
3.3.1	Surveillance radiologique : réglementation en vi- gueur au Mali	76
3.3.2	Evaluation du radon à Bamako	77
3.3.3	Comparaison	78
3.3.4	Conclusion	79

Le radon est un gaz noble, inodore, incolore, radioactif, de symbole Rn et de numéro atomique 86. Il est produit naturellement dans la croûte terrestre par désintégration du radium, provenant lui-même de la désintégration nucléaire de l'uranium et du thorium (tableau 3.1 et figure 3.1). Le radon 219, le radon 220 et le radon 222 sont les trois principaux isotopes naturels du radioélément radon dont on connaît 24 autres isotopes artificiels à nos jours. L'uranium et le thorium se forment à l'intérieur des cristaux ou des grains solides des roches et matériaux de construction. Selon la porosité du sol, la taille des grains,

l'humidité ou la proximité d'un pore, une partie de ces atomes arrive à migrer vers les pores ; cependant la majorité des atomes restent prisonniers dans le réseau cristallin. Par convection et diffusion, les gaz sont ensuite transportés à la surface du sol.

Le processus d'émanation et de transport du radon dans différents mi-

Famille radioactive	Période radioactive	Isotope du radon	Désignation	Energie alpha (MeV)	Période radioactive
^{235}U	$7,04 \cdot 10^8$	^{219}Rn	Actinon	6,8	3,96 s
^{238}U	$4,458 \cdot 10^9$	^{222}Rn	Radon	5,5	3,82 j
^{232}Th	$1,405 \cdot 10^{10}$	^{220}Rn	Thoron	6,3	55,6 s

Tab. 3.1: Isotopes principaux du Radon.

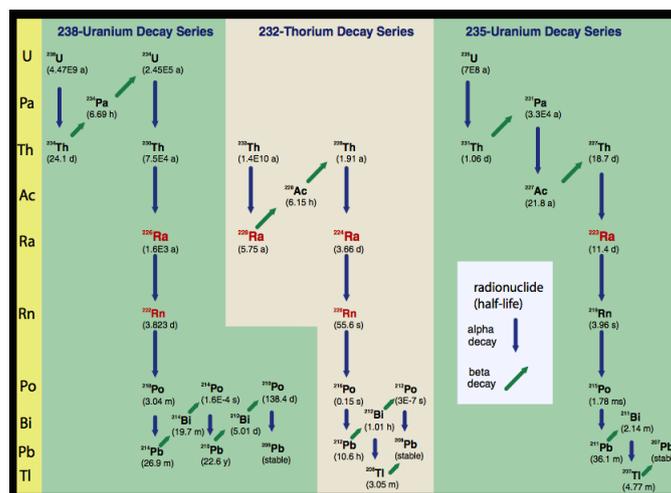


Fig. 3.1: Chaîne de décroissance des trois familles radioactives naturelles

lieux pour émerger à la surface du sol est mal connu. En effet, le coefficient d'émanation (rapport du nombre d'atomes ayant quitté le solide sur la quantité de radon produite par le radium du solide) peut varier de 1 à 90% suivant les paramètres comme la température, l'humidité, la nature des sols... Dans l'eau le radon est dissous. A l'air libre, il se désintègre en donnant successivement des atomes de ^{218}Po , ^{214}Pb , ^{214}Bi et ^{214}Po sous forme de particules microscopiques, sa concentration est faible du fait de sa dilution par les vents. Mais dans l'atmosphère plus confinée d'un bâtiment, il peut s'accumuler et atteindre des concentrations élevées. C'est pourquoi les pouvoirs publics recommandent de prendre des mesures correctives lorsque l'activité volumique moyenne

annuelle du radon dépasse une certaine valeur critique. Cette valeur est fixée à 200 Bq.m^{-3} au Canada, 150 Bq.m^{-3} aux Etats Unis, varie entre 200 et 400 Bq.m^{-3} dans de nombreux pays européens. Dans ce travail, nous allons utiliser des détecteurs solides de traces nucléaires type CR-39 pour évaluer les concentrations du radon dans différents habitats à Bamako pour la première fois. Le facteur d'étalonnage des dosimètres sera déterminé expérimentalement à l'aide d'une source étalon de radon et par simulation MCNPX.

3.1 *Etude de quelques propriétés du radon*

3.1.1 *Risques radio-toxicologiques liés au radon*

Le radon est considéré aujourd'hui comme étant la source principale d'exposition de la population aux rayonnements ionisants [Cat07]. Le radon en lui-même ne présente aucun risque une fois inhalé dans la mesure où il est entièrement presque réexhalé. Par contre, ses descendants à vie courte se déposent le long des voies respiratoires provoquant ainsi des dégâts de tissus au niveau des cellules les plus sensibles des bronches. C'est dans les années 1950 que l'exposition aux descendants du radon comme agent cancérigène de l'arbre trachéo-bronchique a été établie pour la première fois ; en 1987 le radon a été classé comme "cancérigène pulmonaire chez l'homme" par le Centre International de Recherche sur le Cancer (CIRC) suite à des études épidémiologiques ([Bay06],[Dar05]) qui ont été confirmées par des études menées en laboratoire sur des rats. Aujourd'hui le radon est la deuxième cause de cancer du poumon après le tabac. Puisque l'homme passe en moyenne plus de temps à l'intérieur d'un bâtiment, il est alors nécessaire d'étudier les zones dans lesquelles des concentrations de radon assez élevées peuvent être observées. C'est le cas, par exemple, des atmosphères confinées que l'on trouve dans certaines habitations construites sur des roches granitiques. C'est aussi le cas des sites de stockage des résidus issus du traitement de minerais d'uranium, des matériaux de construction. Pour la gestion du risque lié au radon, la commission internationale de protection radiologique ([ICRP09]) a défini des objectifs de précaution en proposant deux niveaux de dangerosité :

- entre 300 et 1000 Bq.m^{-3} , il est souhaitable d'entreprendre des actions correctives simples ;
- au delà de 1000 Bq.m^{-3} , des actions correctives, d'envergure doivent être conduites à bref délai, car le niveau de risque peut être important.

3.1.2 Principe de réduction du radon

Pour diminuer les teneurs en radon dans un bâtiment on peut envisager les solutions suivantes :

- étanchéifier le sol du bâtiment pour empêcher le radon de pénétrer ;
- obturer et colmater toutes les voies de passage : les fissures, les espaces autour des tuyaux, les matériaux poreux et les sols de terre battue ;
- appliquer des peintures étanches permettant de réduire les émissions ;
- "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 ;
- mettre en place un système de ventilation performant afin de drainer le radon présent dans le sol vers l'extérieur de l'habitation. Pour cela creuser un puisard sous les fondations et 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.

3.1.3 Energie Alpha Potentielle (EAP)

Le radon se désintègre dans l'air en donnant successivement des atomes de ^{218}Po , ^{214}Pb , ^{214}Bi et ^{214}Po sous forme de particules microscopiques. Le ^{214}Po du fait de sa très courte période (16 ms) ne parvient pas directement dans les poumons alors que les trois autres vont s'y fixer et se désintégrer jusqu'au ^{210}Pb . Ces trois produits de désintégration sont en général exprimés à l'aide d'une unité dédiée l'Energie Alpha Potentielle (EAP). L'EAP correspond à la somme des énergies des particules alpha émises lorsque tous les descendants à vie courte du radon 222 se sont désintégrés. L'Energie Alpha Potentielle par unité de volume d'air (EAPv) pondérée par le nombre de chaque descendant est donnée par l'expression suivante :

$$\text{EAPv} = 13,69 \cdot N(^{218}\text{Po}) + 7,69 \cdot [N(^{214}\text{Pb}) + N(^{214}\text{Bi})]$$
 où $N(^{218}\text{Po})$, $N(^{214}\text{Pb})$ et $N(^{214}\text{Bi})$ désignent respectivement les nombres d'atomes par mètre cube des isotopes ^{218}Po , ^{214}Pb et ^{214}Bi . Pour une activité d'un becquerel de radon 222 à l'équilibre avec ses descendants à vie courte, l'énergie alpha potentielle est 34520 MeV (somme des valeurs de la dernière colonne du tableau 3.2).

Il existe aussi une autre unité couramment utilisée que l'on appelle le Working Level (WL) et qui peut être exprimée en $\text{Bq} \cdot \text{m}^{-3}$. Sa définition d'origine historique vient de l'utilisation du Curie comme unité ($1 \text{ Ci} = 3,7 \cdot 10^{10} \text{ Bq}$) et donc $1 \text{ WL} = 3700 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$. Exprimé en énergie, 1

Descendant du ^{222}Rn	Période (min)	E_α (MeV)	Type de désintégration	EAP (MeV.Bq $^{-1}$)
^{218}Po	3,05	13,69	alpha	3620
^{214}Pb	26,8	7,69	bêta	17800
^{214}Bi	19,7	7,69	bêta	13100
^{214}Po	$2,7 \cdot 10^{-6}$	7,69	alpha	$2 \cdot 10^{-3}$

Tab. 3.2: Energie Alpha Potentielle des descendants à vie courte du ^{222}Rn .

WL correspond à une EAP de 127870 MeV.L $^{-1}$.

3.1.4 Facteur d'équilibre

Les descendants à vie courte du radon 222 présents dans un volume d'air quelconque ne sont pas en équilibre radioactif avec leur père d'une part parce qu'ils ne sont pas en quantité équivalente, d'autre part parce qu'ils peuvent être piégés sur les parois ou sur les aérosols, ou être en partie fixés par les filtres d'une ventilation. Pour quantifier cet état de "déséquilibre" on utilise le facteur d'équilibre F que l'on définit comme étant le rapport entre l'énergie alpha potentielle volumique des descendants à vie courte du radon présent dans l'air et celle de ses descendants s'ils étaient à l'équilibre radioactif avec le radon. Le facteur d'équilibre est donné par la relation suivante :

$$F = \frac{EAP_v}{5,55 \cdot 10^{-9} \times A_v}$$

où F = facteur d'équilibre ; EAP_v = l'énergie alpha potentielle volumique des descendants à vie courte du radon 222 exprimée en J.m 3 ; A_v = activité volumique du radon 222 en Bq.m $^{-3}$; le facteur $5,55 \cdot 10^{-9}$ représente l'énergie alpha potentielle des descendants à vie courte du radon 222 calculée pour 1 Bq de radon 222, à l'équilibre avec ses descendants à vie courte, et exprimée en J.Bq $^{-1}$. Le facteur d'équilibre est un paramètre sans dimension compris entre 0 et 1. Dans les bâtiments, la ICRP recommande la valeur moyenne de 0,4 comme facteur d'équilibre [UNSCEAR00]. Lorsque l'équilibre total est atteint, le facteur d'équilibre prend la valeur 1. A l'inverse, plus l'atmosphère est ventilée, moins l'équilibre peut s'établir et plus ce facteur est faible. Pour ce qui est des lieux souterrains comme les mines, on lui attribue la valeur 0,2.

3.2 Etalonnage des DSTN pour la mesure du Radon

3.2.1 Système d'étalonnage

Le laboratoire de l'PHC est équipé d'une chambre de radon qui est en fait un récipient de forme cylindrique (figure 3.2) de volume 224l pouvant être hermétiquement clos. Il dispose de vannes de départ et d'arrivée de gaz, de connecteurs électriques sur sa face arrière permettant la prise de mesure en continu sans ouverture. Le radon injecté dans le récipient est généré par une capsule contenant une solution de chlorure de radium 226, placée à l'intérieur d'un ballon rond en verre (de volume 33 cm³) en partie rempli d'eau et muni de deux vannes formant un circuit fermé avec le tonneau. Ce circuit relie le ballon à la chambre cylindrique par l'intermédiaire d'une pompe. Un filtre placé en amont dans le circuit sert à purifier l'air entrant dans la pompe. L'injection du radon à l'intérieur du tonneau se fait à l'aide de la pompe qui introduit de l'air filtré dans le ballon via un tuyau plongé dans l'eau. Ce flux d'air va donc entraîner le radon dans la chambre cylindrique. La vitesse de la pompe peut prendre les trois valeurs suivantes : 0,5 ; 1 et 2 L.min⁻¹ ainsi que leur dixième. Un appareil de mesure de l'activité volumique du radon AlphaGUARD (SAPHYMO GmbH, Heerstraße 149, D-60488 Frankfurt a.M., Germany) et un boîtier contenant deux plaquettes de CR-39 ; l'un pour le bruit de fond et l'autre pour enregistrer les traces de particules alpha laissées par le radon et ses descendants sont introduites à l'intérieur du tonneau, par la suite fermé hermétiquement. Le protocole suivant décrit l'injection du radon dans le tonneau :

- ouverture des vannes de la cuve ;
- ouverture des vannes du ballon ;
- après le choix de la vitesse de la pompe, mise en route de ce dernier pendant deux minutes ;
- arrêt de la pompe et fermeture des vannes du ballon ;
- fermeture des vannes de la chambre.

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 descendants solides $A(^{222}\text{Rn}) = A(^{218}\text{Po}) = A(^{214}\text{Po})$; il est possible de vérifier que cet équilibre est atteint grâce au moniteur de contrôle AlphaGUARD.

1. La source de radon : le radium 226

La source de radium 226 que nous avons utilisée est délivrée par NIST (National Institute of Standard and Technology) avec un certificat d'étalonnage. Un calcul d'activité volumique dans l'air en fonction des particules figurant sur le certificat d'étalonnage nous donne une valeur moyenne de 1500 Bq.m⁻³ à l'équilibre (figure 3.3). Dans la pratique, la valeur moyenne de l'activité mesurée est 1100 Bq.m⁻³. La résolution

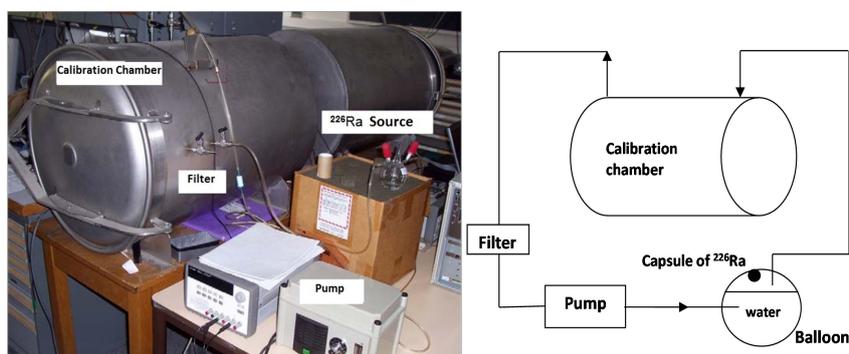


Fig. 3.2: A gauche photo du dispositif d'injection de radon dans le tonneau et à droite le schéma du même dispositif.

du système d'équations de désintégrations :

$$\begin{cases} \frac{dN_{Ra}}{dt} = -\lambda_{Ra}N_{Ra} \\ \frac{dN_{Rn}}{dt} = \lambda_{Ra}N_{Ra} - \lambda_{Rn}N_{Rn} \end{cases}$$

suivant la réaction : ${}^{226}_{88}\text{Ra} \longrightarrow {}^{222}_{86}\text{Rn} + {}^4_2\text{He}$

montre que la concentration atomique de radon est constante et qu'il est en équilibre séculaire avec son père le ${}^{226}\text{Ra}$ $\left(\frac{N_{Ra}}{N_{Rn}} = \frac{\lambda_{Rn}}{\lambda_{Ra}}\right)$. L'une des solutions montre aussi que le nombre maximum de ${}^{222}\text{Rn}$ est produit au bout de 33 jours.

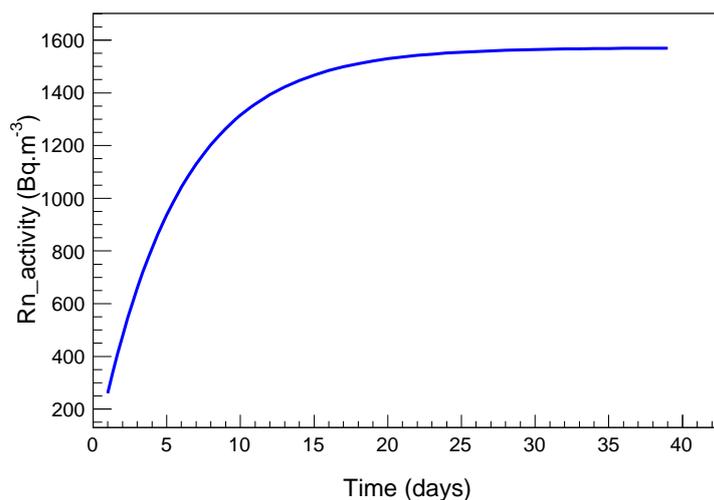


Fig. 3.3: Evolution de l'activité du radon en fonction du temps dans le tonneau.

2. Descriptif du boîtier dosimètre

Les boîtiers utilisés au cours de nos expériences nous ont été offerts par l'Institut National de Physique Nucléaire de Bologne (INFN). A l'intérieur on peut placer deux CR-39 circulaires de 1,6 cm de rayon chacun manufacturés par Intercast Europe selon les paramètres spécifiés par ENEA University of Bologna-INFN collaboration. Le boîtier est équipé d'un filtre qui ne laisse passer que le radon. Ces boîtiers ont été utilisés en 1991 par INFN pour une campagne de mesure du radon dans la ville de Bologne [Beo91].

3. Protocole d'étalonnage

L'étalonnage des CR-39 s'est déroulé de la façon suivante :

- à l'intérieur du récipient on y introduit l'AlphaGUARD et un boîtier contenant les CR-39, ensuite la source de radium est mise en route avec une activité initiale de 1200 Bq. Après 24h, le boîtier est récupéré ;
- une semaine après l'étape précédente (le temps pour la source de se "régénérer") on réintroduit un autre boîtier pour 24h, cette fois la valeur de l'activité volumique du radon est inférieure à la valeur maximale (800 Bq) ;
- enfin, 4 jours après la deuxième expérience, on relance pour 24 h le processus avec une activité de 500 Bq. Ainsi nous avons obtenu 3 points pour la calibration et notre témoin l'AlphaGUARD a enregistré les valeurs moyennes de l'activité volumique à l'intérieur de la cuve comme indiqué sur la figure 3.4.

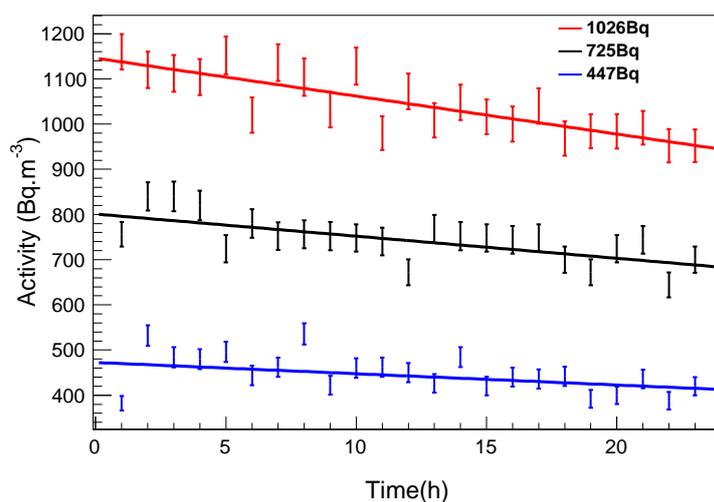


Fig. 3.4: Activité du ^{222}Rn donnée par le détecteur actif AlphaGUARD au cours de l'étalonnage.

4. Conditions de développement chimique

Les différents CR-39 irradiés par les particules alpha provenant du radon et les témoins ont été développés dans un bain de soude de 6,25 N rendu homogène grâce à un agitateur, à la température de $70 \pm 0,5^\circ\text{C}$ pendant 6h. Ces CR-39 ont été ensuite plongés dans une solution de HCl 0,12 N pendant 15 min. L'épaisseur des DSTN a été mesurée avant et après le décapage chimique, $9 \mu\text{m}$ de couche a été décapée.

3.2.2 Etalonnage des DSTN par simulation Monte Carlo MCNPX

Le boîtier contenant les CR-39 a été modélisé (figure 3.5) ainsi que les conditions expérimentales d'étalonnage afin de comparer les différents facteurs d'étalonnage. Dans le fichier d'entrée MCNPX, la géo-

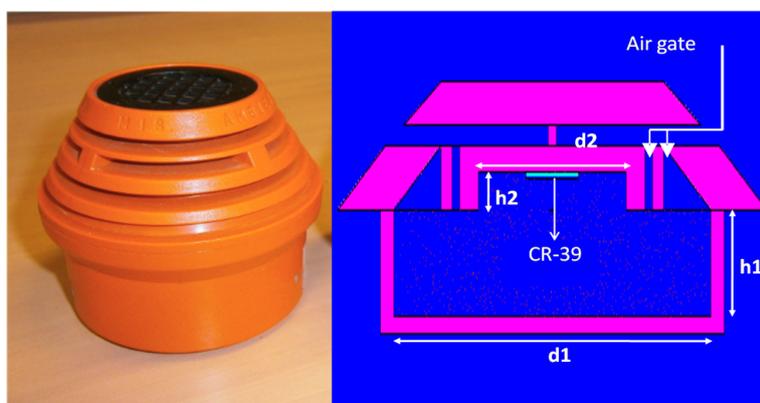


Fig. 3.5: Détecteur de radon ($d_1=6 \text{ cm}$; $d_2=2,8 \text{ cm}$; $h_1=2,5 \text{ cm}$; $h_2=0,9 \text{ cm}$).

métrie du boîtier a été modélisée avec les dimensions réelles comme on peut le voir sur la figure 3.5. A l'intérieur du boîtier nous n'avons modélisé qu'un seul CR-39, dans la mesure où le second qui enregistre le bruit de fond n'a aucun impact sur les résultats de la simulation. En effet, il n'existe pas de radon provenant de l'atmosphère pendant la simulation. Le volume actif du boîtier ($76 \cdot 10^{-3} \text{ m}^3$) a été rempli par 10^8 particules α d'énergie moyenne 5,49 MeV tirées au hasard et distribuées de façon homogène dans toutes les directions. Seule l'énergie du radon, qui est une énergie minimale par rapport à celle de ses descendants a été prise en compte dans la simulation puisque les populations absolues sont dans un rapport 10^5 entre le ^{222}Rn et ^{218}Po ; et 10^{11} entre ^{218}Po et ^{214}Po [Hig07]. La carte WGET contenant des informations relatives à l'activité volumique, le taux d'émission, la durée de chaque expérience (24 h), et les tally F1, F4, F8, F6 ont aussi été introduites afin d'évaluer le nombre de traces laissées sur le CR-39 après avoir traversé $9 \mu\text{m}$

de couche de CR-39. Le fichier PTRAC généré après la simulation a enregistré toutes les histoires des particules, leurs positions, le cosinus de leurs vecteurs directeurs, leurs énergies, leurs poids à travers toutes les cellules traversées, la durée des interactions, le type de noyaux collisionnés. Un programme C++ pour lire et exploiter le fichier PTRAC, nous a permis d'établir la courbe d'étalonnage (figure 3.6). Les résultats obtenus par la simulation et l'expérience (figure 3.6) sont respectivement $k_{sim}=0,126 \pm 0,007$ et $k_{exp}=0,119 \pm 0,017$ $\text{tr.cm}^{-2}.\text{j}^{-1}.\text{Bq}^{-1}.\text{m}^3$. La valeur expérimentale a été obtenue en appliquant la formule : $k = \rho / (C.t)$ où k = facteur de calibration, ρ = densité de traces (tr.cm^{-2}), C = concentration du radon (Bq.m^{-3}), t = temps d'exposition (j). Notre facteur de calibration expérimentale est en bon accord avec celui publié dans l'article de Jojo et al [Jo94] dont la valeur est de : $0,118 \pm 0,011$ $\text{tr.cm}^{-2}.\text{j}^{-1}.\text{Bq}^{-1}.\text{m}^3$.

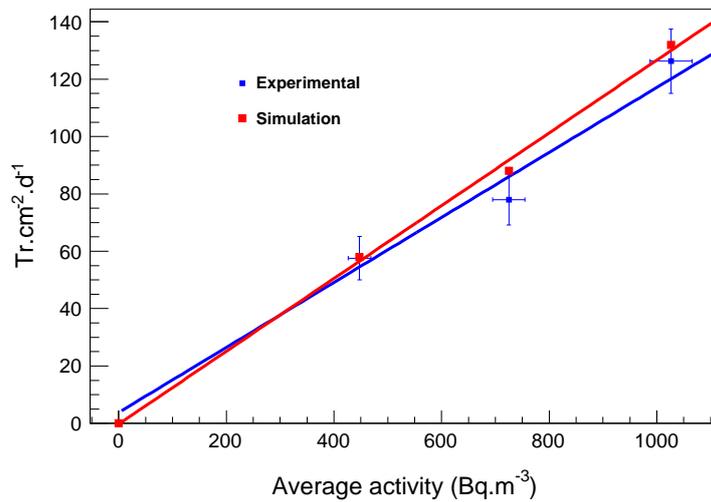


Fig. 3.6: Courbe d'étalonnage des CR-39 pour les particules α . Les incertitudes statistiques de la simulation sont de l'ordre des points rouges.

3.3 Evaluation de la concentration du radon à Bamako et comparaison avec d'autres mesures en Afrique

3.3.1 Surveillance radiologique : réglementation en vigueur au Mali

La surveillance radiologique est une activité récente au Mali. Le premier document administratif relatif à la radiologie est l'ordonnance N°02-059/P-RM du 05 Juin 2002 portant radioprotection et sureté des sources de rayonnements ionisants. Cette ordonnance stipule en son

article premier : "La présente ordonnance s'applique à toute situation entraînant l'exposition ou un risque d'exposition aux rayonnements ionisants et à toute intervention en cas de situation d'urgence radiologique ou d'exposition chronique". A la suite de ce document il a été créé le 05 Juin 2002 par ordonnance N°02-060/P-RM l'Agence Malienne de Radioprotection AMRAP qui est chargée entre autre de :

- délivrer les autorisations de détention et d'utilisation de sources de rayonnements ionisants et de pratiques mettant en œuvre des rayonnements ionisants ;
- procéder périodiquement à des inspections radiologiques programmées ou inopinées ;
- effectuer des recherches et assurer la formation et l'information ;
- participer à toute opération d'urgence radiologique en cas d'incident ou d'accident impliquant des sources de rayonnements ionisants.

En 2006 le décret N°06-488/p-RM a fixé les règles relatives à la protection contre les rayonnements ionisants, à la sûreté et à la sécurité des sources de rayonnements ionisants. En attendant des textes complémentaires fixant les normes radiologiques propres au Mali, l'AMRAP s'aligne sur les valeurs recommandées par les organisations internationales compétentes en la matière.

3.3.2 *Evaluation du radon à Bamako*

Bamako est une ville tropicale où il fait chaud en moyenne sur toute l'année. Pour cette raison, les habitants gardent leurs fenêtres et portes ouvertes, ce qui ne favorise pas une accumulation du radon dans les bâtiments. Nous avons choisi quelques rares bâtiments confinés et ordinaires pour effectuer nos mesures de radon. Six détecteurs ont été exposés pour trois mois (Octobre-Décembre, 2010) dans le sous sol de quelques bâtiments et après avoir changé les CR-39, ils ont été ré-exposés pour deux mois (Janvier-Février, 2011) dans des habitations courantes. Utilisant le facteur d'étalonnage expérimental, après traitement chimique et comptage du nombre de traces laissées par les particules alpha (en ayant pris soin de soustraire le bruit de fond), nous avons déterminé l'activité du radon dans les endroits où les boîtiers étaient exposés. Nous avons aussi calculé la dose effective annuelle de radon en utilisant le facteur de conversion donné par UNSCEAR [UNSCEAR09], ce facteur traduit la dose effective reçue par adulte par unité d'activité de ^{22}Rn et par volume d'air. Cette dose effective annuelle est calculée par la formule :

$ED(\text{mSv}\cdot\text{an}^{-1})=A(^{22}\text{Rn})\times D\times O\times F\times 24\times 365\times 10^{-6}$ où $A(^{22}\text{Rn})$ est l'ac-

tivité du radon en Bq.m^{-3} ; D le facteur de conversion en dose dont la valeur est $9\text{nSv.h}^{-1}.\text{Bq}^{-1}.\text{m}^3$; O le facteur d'occupation du radon dans les bâtiments (0,8) et F est le facteur d'équilibre du radon dans les bâtiments (0,4). Ces résultats sont résumés dans le tableau 3.3

Désignation	Cave (Bq.m^{-3})	Habitation courante (Bq.m^{-3})	Dose effective annuelle de radon dans les habitations courantes (mSv.an^{-1})	ICRP 2009 (Bq.m^{-3})
1	154±35	71±16	1,79	300
2	151±31	87±20	2,19	
3	121±28	93±20	2,35	
4	125±29	70±18	1,77	
5	136±31	80±20	2,02	
6	108±25	74±19	1,87	

Tab. 3.3: Tableau récapitulatif de la concentration et de la dose effective annuelle du radon à Bamako.

3.3.3 Comparaison

Dans la plupart des pays d'Europe, d'Amérique du Nord et dans bon nombre de pays d'Europe orientale, la présence du radon dans les habitations a suscité une vague d'intérêt au cours des 20 dernières années. Des enquêtes à l'échelle nationale ont été entreprises pour déterminer les niveaux de contamination dans les habitations et évaluer les risques de cancer du poumon qui en résultent. Ces pays ont mis en œuvre de vastes programmes de détection du radon dans les habitations et sur les lieux de travail. Les publications scientifiques semblent aussi accorder beaucoup d'attention à la question. Sur les 110 mémoires présentés au Colloque international sur le rayonnement naturel dans l'environnement, réuni à Lisbonne en 1987, plus de 70 ne traitaient que de la question du radon. Au colloque suivant sur la même question qui s'est réuni à Salzbourg en 1991, environ 70% des 163 mémoires traitaient les problèmes du radon [AIEA94].

En Afrique, on note un intérêt certain et des programmes de plus ou moins grande envergure ont été entrepris dans le sens de la surveillance du radon dans les habitations. La première étude scientifique à notre connaissance date de 1992, elle a été réalisée au Ghana [And92], puis s'en est suivi d'autres. A ce jour nous avons recensé six études en métrologie radon en Afrique. Les mesures que nous avons obtenus à Bamako ont été comparées à celles des régions africaines à notre disposition. La

figure 3.7 montre la variation du radon dans les habitations de certaines villes de pays africains. Hors mis le grand pic observé pour les mesures

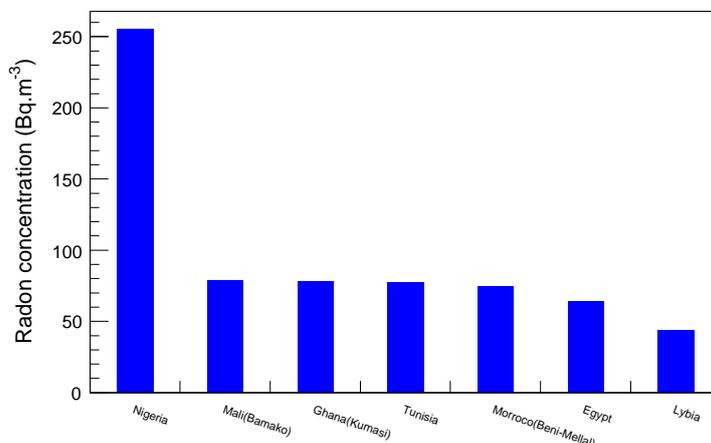


Fig. 3.7: Concentration moyenne du radon dans quelques régions d'Afrique.

faites au Nigéria [Obe12], on n'observe pas une divergence significative de la variation de la concentration moyenne du radon entre le Mali, le Ghana, le Maroc [Ouf05], l'Égypte, la Tunisie et la Lybie [Azm11]. Toutes les valeurs sont en deçà du seuil d'alerte de 300 Bq.m^{-3} recommandé par l'ICRP.

En revanche, nous avons relevé une valeur moyenne de $7 \pm 2 \text{ kBq.m}^{-3}$ dans une région volcanique du Cameroun [Nga08]; notons que dans cette région, les échantillons ont été prélevés à une profondeur de 50 cm.

3.3.4 Conclusion

L'une des contributions majeures dans ce chapitre a été l'utilisation du code de simulation Monte Carlo MCNPX pour la détermination du facteur d'étalonnage. Ce code reproduit bien les données expérimentales et peut par conséquent constituer un bon outil dans les pays en manque d'infrastructure adéquate pour réaliser des étalonnages. Les concentrations de radon mesurées à Bamako sont toutes en deçà des normes recommandées. Ce résultat n'est pas surprenant car dans un pays tropical comme le Mali où il fait chaud presque toute l'année, les habitations sont bien aérées (le radon ne peut donc s'y confiner). On a aussi constaté que la dose effective annuelle reste dans les limites ($3\text{-}10 \text{ mSv.an}^{-1}$) de l'ICRP [Wri08]. Le taux de radon dans les caves où l'air est confiné est plus élevé que celui des habitations comme indiqué

dans la littérature scientifique. Enfin les différents résultats de pays africains à notre disposition ont montré que la valeur seuil n'a été dépassée dans aucun des cas ; des études restent à mener afin de conforter nos conclusions et d'avoir une cartographie radon disponible à l'échelle continentale pour la protection de nos populations.

Chapitre4

4. MESURES ENVIRONNEMENTALES PAR LR115 ET SPECTROMÉTRIE GAMMA

Contents

4.1	Dosimétrie alpha par contact autoradiographique avec des LR115	82
4.2	Mesure de l'activité par spectrometrie gamma .	84
4.2.1	La spectrométrie gamma : principe et application .	84
4.2.2	L'analyse par spectrométrie gamma	88
4.3	Résultats	91
4.3.1	Conclusion	92

Dans ce chapitre, neuf échantillons de sols prélevés dans différentes régions du Mali ont été analysés par deux techniques nucléaires : la dosimétrie alpha par contact auto-radiographique et la spectrométrie gamma. La première technique consiste à utiliser des DSTN de type LR115 pour doser l'uranium (émetteur alpha) contenu dans les échantillons de sols prélevés. Quant à la spectrométrie gamma, c'est une technique qui permet d'identifier les radio-émetteurs et de quantifier leur activité dans un échantillon donné. L'objectif de ce travail est de valider la première méthode dont la mise en œuvre est simple et peu couteuse par la spectrométrie gamma.

4.1 Dosimétrie alpha par contact autoradiographique avec des LR115

Le nitrate de cellulose dont le nom courant est LR115, a été décrit dans la sous section 1.7.2.1. Des LR115 de dimensions $1,5 \times 1,5$ cm² ont été mis en contact auto-radiographique (contact direct) avec

des échantillons de sols conditionnés dans des flacons en polyéthylène de dimensions $2 \times 2 \times 0,6$ cm³ (figure 4.1). Ces échantillons proviennent des 4 régions du Mali à savoir : Bamako, Sikasso, Ségou et Kayes ; leur densité apparente moyenne est de $1,60$ g.cm⁻³. Dans une même région les échantillons ont été prélevés en différentes zones distantes d'au moins 10 km. Après deux mois d'irradiation, les LR115 ont été traités chimiquement dans une solution de soude de 2,5 N pendant 100 min à la température de 60°C. Chaque impact de particule α a laissé un micro-trou de 1 à 15 μ m de diamètre dans la couche rouge. La lecture des films développés, a été réalisée à l'aide du système automatique composé d'une caméra CCD reliée à un microscope optique et d'une table traçante (X,Y,Z) pilotée par le logiciel Visilog. L'activité massique de

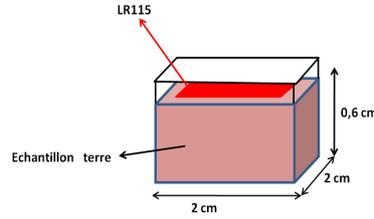


Fig. 4.1: Flacon en polyéthylène de dimensions $2 \times 2 \times 0,6$ cm contenant des LR115.

^{238}U a été estimée à partir de la densité de traces par la relation :

$$D = \varepsilon(\theta_c, E_\alpha)A \quad (4.1)$$

où $\varepsilon(\theta_c, E_\alpha)$ représente l'efficacité de détection en fonction de l'angle critique d'enregistrement θ_c et de l'énergie de la particule alpha E_α .

$$\varepsilon(\theta_c, E_\alpha) = \frac{1}{2} \int_{R_\alpha(E_{min})}^{R_\alpha(E_{max})} \int_0^{\theta_c} \sin \theta \cos \theta dR_\alpha d\theta \quad (4.2)$$

Dans la formule 4.2, E_{min} et E_{max} sont les limites des énergies détectées ; pour les particules alpha $E_{min} = 1,4$ MeV et $E_{max} = 4,7$ MeV. $R_\alpha(E_{min})$ et $R_\alpha(E_{max})$ représentent les parcours des particules α correspondant à ces énergies.

La relation entre le parcours R_α des particules α dans l'échantillon et leurs énergies E_α peut être décrite par l'équation : $R_\alpha = aE_\alpha^2 + bE_\alpha + c$; a, b et c sont les coefficients déterminés à partir de l'ajustement des points énergie-parcours (E_α, R_α) dans l'échantillon à analyser [Bie11]. L'efficacité de détection est calculée par intégration de l'équation 4.2 en utilisant des méthodes de calculs numériques [Pap98]. Après intégration, l'équation 4.1 devient :

$$D^{LR}(^{238}\text{U}) = (1,961a + 0,350b)A = \varepsilon_{LR}A.$$

L'activité de ^{238}U est : $A_U \cong A/8$, car il y a 8 désintégrations alpha pour passer de ^{238}U à l'élément stable qu'est le ^{206}Pb dans la famille de ^{238}U (voir Annexe B pour les différentes familles radioactives). Cette approximation n'est valable que pour l'équilibre séculaire ou permanent entre ^{238}U et ses descendants. Ceci est réalisé dans notre cas puisque les échantillons ont été conservés dans des flacons en polyéthylène hermétiquement clos pendant un temps suffisamment long (plus de 10 fois la période du ^{222}Rn). La formule utilisée pour déterminer l'activité ne tient pas compte de la contribution des familles du ^{232}Th et de ^{235}U .

4.2 Mesure de l'activité par spectrométrie gamma

4.2.1 La spectrométrie gamma : principe et application

4.2.1.1 Définition

La spectrométrie gamma à haute résolution est une technique non destructive, performante qui permet la détermination qualitative et quantitative des radionucléides émetteurs de rayonnements gamma dans un échantillon. En effet l'analyse d'un échantillon par spectrométrie gamma donne naissance à un spectre, qui est un histogramme du nombre de photons détectés en fonction de leur énergie. Le spectre est caractérisé par un fond continu (continuum) décroissant avec l'énergie et par la présence de plusieurs pics. Chaque pic correspond à un rayonnement gamma issu de la désexcitation des noyaux instables ou atome radioactif présent dans l'échantillon (figure 4.2). Par la position des pics (ou énergie des photons), on entreprend l'analyse qualitative du spectre qui consiste à déterminer les radioéléments présents dans l'échantillon analysé. Par la surface des pics (ou nombre d'impulsions), on entreprend l'analyse quantitative du spectre afin de déterminer pour chaque radioélément présent dans l'échantillon son activité en becquerel ramenée à la masse ou au volume de l'échantillon (Bq/kg ou Bq/L). La spectrométrie gamma est utilisée dans plusieurs domaines :

- la datation d'échantillon sur des courtes périodes en se basant sur le ^{137}Cs et en utilisant des spectromètres à bas bruit de fond ;
- les missions dans l'espace afin de valider des études scientifiques relatives aux processus d'émissions de gamma dans l'univers ;
- la cartographie d'une zone polluée suite au traitement à un accident nucléaire ou aux traitements de déchets ;
- la géologie et la prospection minière ;
- la protection de l'environnement.

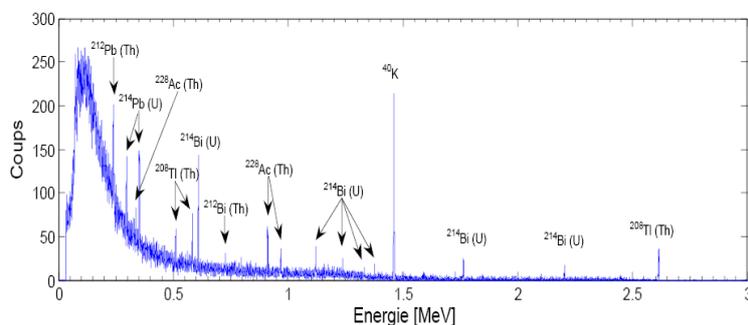


Fig. 4.2: Spectre gamma d'un échantillon avec les raies et le continuum.

4.2.1.2 Principe

Lorsqu'un noyau se désintègre, il est généralement suivi d'émission de photons d'énergie E_γ qui cède tout ou une partie de son énergie à un ou des électrons du détecteur par effet photoélectrique, diffusion Compton, production de paires e^+ , e^- . Les photons via les électrons vont créer des paires électrons trous dans le détecteur. La quantité d'électrons libérée est proportionnelle à l'énergie perdue par le rayonnement gamma dans le détecteur. Ces porteurs de charge sont collectés grâce à une différence de potentiel de quelques milliers de volts appliquée au semi-conducteur et constitue une impulsion électrique. L'électronique de mesure comprend les éléments suivants :

- le détecteur semi-conducteur ;
- un préamplificateur pour la minimisation du bruit ;
- un amplificateur ;
- un convertisseur analogique-numérique ;
- un analyseur multicanaux.

La figure 4.3 représente une chaîne d'instrumentation de spectrométrie, correspondant à la description ci-dessus. Chaque élément de la chaîne de la figure 4.3 possède ses propres limitations, et donc est susceptible d'introduire des perturbations au niveau du signal temporel observé.

4.2.1.3 Le détecteur semi-conducteur

Les détecteurs en spectrométrie gamma sont des détecteurs aux semi-conducteurs qui sont des matériaux électriquement intermédiaires entre les conducteurs et les isolants. Les électrons des semi-conducteurs prennent des valeurs d'énergies permises dans la bande de valence et de conduction. La bande de valence est riche en électron et ne participe

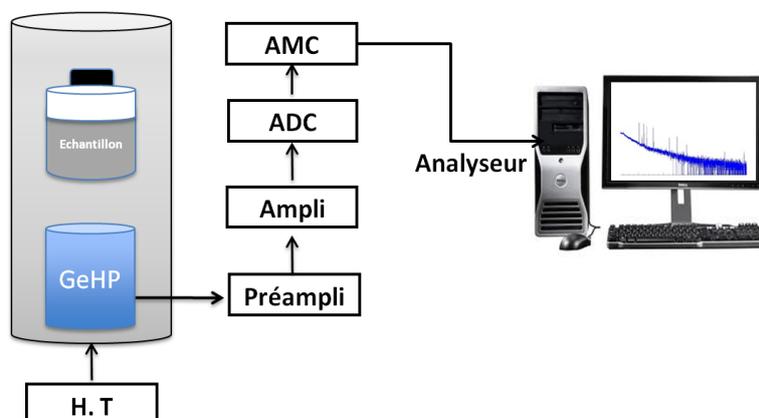


Fig. 4.3: Schéma simplifié d'une chaîne de spectrométrie gamma.

pas à la conduction contrairement à la bande de conduction. Les deux bandes sont séparées par une bande interdite appelé gap d'énergie $E_g = E_c - E_v$ (figure 4.4). Les performances d'un semi-conducteur dépendent et des valeurs prises par cette énergie E_g et de la température (agitation thermique).

Exemple : A 0°K le semi-conducteur est isolant.

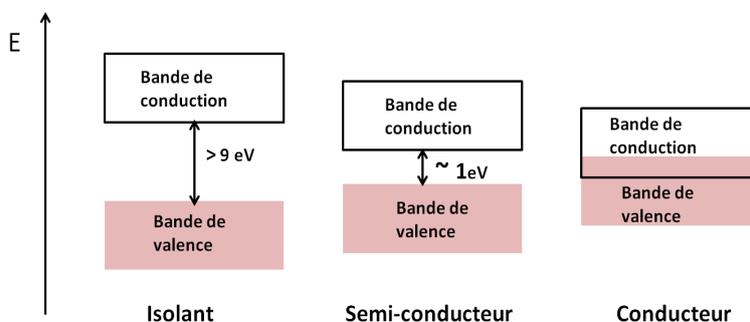


Fig. 4.4: Schéma représentant les bandes de valence, de conduction et interdite (gap) dans un isolant, un semi-conducteur et un conducteur.

A 300 K, on a dans le tableau 4.1 ci-dessous quelques caractéristiques de semi-conducteur. Les détecteurs Germanium ont des températures d'utilisation inférieures à celles des détecteurs de type Silicium. Il faut les refroidir pour réduire le déplacement des charges. Le moyen le plus couramment utilisé pour rafraîchir le composé semi-conducteur est l'azote liquide. Le nombre n d'électrons trou produit est donné par la relation $n = E_\gamma/W$ ou E_γ est l'énergie du photon absorbée et W

Matériaux	Z	E_g (eV)	W (eV)	Densité (g.cm ⁻³)	Mobilité (cm ⁻² .V ⁻¹ .S ⁻¹)	
					électron	trou
Si	14	1,1	3,62	2,33	1350	480
Ge	32	0,67	2,96	5,32	$3,6.10^{-4}$	$4,2.10^{-4}$
CdTe	48,32	1,47	4,43	6,06	1000	80
HgI ₂	80,53	2,13	4,64	5,78	1000	50-80
GaAs	31,33	1,45	4,51	5,35	8000	400
PbI ₂	82,35	2,6	7,68	6,16	8	2

Tab. 4.1: Quelques caractéristiques de semi-conducteur à 300 K.

l'énergie moyenne nécessaire pour la création de paire électron-trou. Le choix du détecteur semi-conducteur est un compromis entre la résolution, l'efficacité, la gamme d'énergie voulue, la nature des échantillons (liquide, solide, gazeux), le système de refroidissement, le volume et le coût. Dans notre cas nous utiliserons un détecteur planaire de germanium hyper-pur GeHP.

4.2.1.4 Le préamplificateur

Sa fonction principale est de convertir en tension électrique les porteurs de charges qu'il collecte puis de les amplifier et les mettre en forme. Il est sensible au bruit. Les préamplificateurs usuels peuvent traiter des taux de comptage de 200 à 1000 kcps.

4.2.1.5 L'amplificateur

Le signal de la tension issu du préamplificateur est traité par l'amplificateur qui le met en forme puis l'amplifiée de manière à optimiser le rapport signal bruit. Il est par contre l'élément qui est souvent le facteur limitant de la chaîne d'instrumentation, ceci étant essentiellement dû à la nature aléatoire du signal incident et à la largeur des impulsions photoniques générées.

4.2.1.6 Le convertisseur analogique-numérique et l'analyseur multi-canaux

- Le convertisseur analogique-numérique (CAD) converti les impulsions en un signal numérique reconnu par l'analyseur multi-canaux.
- La hauteur de chaque impulsion étant proportionnelle à l'énergie déposée par le photon, l'analyseur (DSA-1000) classe ces impul-

sions en fonction de leur énergie : un histogramme, appelé spectre est ainsi obtenu.

Le choix du nombre de canaux pour l'acquisition est fonction de la résolution du détecteur et de la plage d'énergie qu'on souhaite analyser ; nous utiliserons 8192 canaux dans notre travail. Un ordinateur doté d'un logiciel d'acquisition (Genie 2000) et de traitement des signaux est associé à l'analyseur.

4.2.2 L'analyse par spectrométrie gamma

On distingue trois étapes dans l'analyse d'un échantillon en spectrométrie gamma : la préparation de l'échantillon, l'étalonnage de la chaîne d'acquisition et le traitement des données en fin d'acquisition.

4.2.2.1 Préparation des échantillons

L'échantillon à analyser peut être solide ou liquide. Les échantillons de sols étant solides, nous décrirons le mode opératoire de leur préparation et stockage en vue de leur analyse suivant la norme ISO 18589-2 [ISO08]. Le processus décrit ci-dessous vise à rendre l'échantillon homogène afin d'éviter une sous estimation ou une surestimation de l'activité réellement présente.

– **Séchage**

Afin d'éviter les biais de mesure causés par des teneurs en eau variables d'un échantillon à l'autre, il est nécessaire de sécher les échantillons à 40°C puis à 105°C. Le séchage permet également d'augmenter la durée de conservation d'un échantillon.

– **Broyage et Tamisage**

Le broyage permet d'avoir une granulométrie des échantillons de sol inférieure à 200 μm , quant au tamisage il permet de retirer les débris divers. Après toutes ces opérations, l'échantillon est conditionné dans un flacon en polyéthylène dont la géométrie d'étalonnage est le SG50 (50 ml). Avant de lancer l'acquisition sur la chaîne de spectrométrie gamma, il doit être étalonné en énergie et en efficacité.

4.2.2.2 Etalonnage de la chaîne d'acquisition

Grâce au logiciel d'acquisition "Genie 2000", nous pouvons visualiser en temps réel le spectre de raies émis dans l'échantillon. L'exploitation de ce spectre en terme quantitatif et qualitatif ne peut se faire qu'en ayant pris le soin de faire un étalonnage en énergie et en efficacité.

– **Étalonnage en énergie**

Le but de cet étalonnage est de corrélérer le numéro du canal où le pic apparaît et l'énergie du rayonnement détecté. Pour cela, on utilise des sources étalons émettant des rayonnements dont on connaît précisément l'énergie et l'activité à une date donnée. De cette façon, on relie par une fonction polynomiale de la forme $E(\text{keV}) = C_0 + C_1x + C_2x^2 + \dots + C_nx^n$ (où x représente le canal de l'analyseur multi-canal) les canaux où apparaissent ces pics avec les énergies. Les coefficients C_0 et C_1 sont déterminés automatiquement par le logiciel ; les autres coefficients C_2, \dots, C_n représentant la partie non linéaire de la courbe d'étalonnage nécessitent plusieurs points d'étalonnage. A partir de la pente de la droite d'étalonnage, on détermine le numéro du canal, ensuite l'énergie du radioélément émetteur. De même, on peut déterminer l'activité du radioélément puisque la surface des pics est proportionnelle à l'activité. Les pics d'un spectre sont des gaussiennes dont la largeur à mi-hauteur est fonction de l'énergie suivant la relation $\text{FWHM}(E) = a + b(E + cE^2)^{0.5}$. FWHM est aussi appelé résolution en énergie, il est lié à l'écart-type par la relation $\text{FWHM} = 2,35 \cdot \sigma(E)$ (figure 4.5).

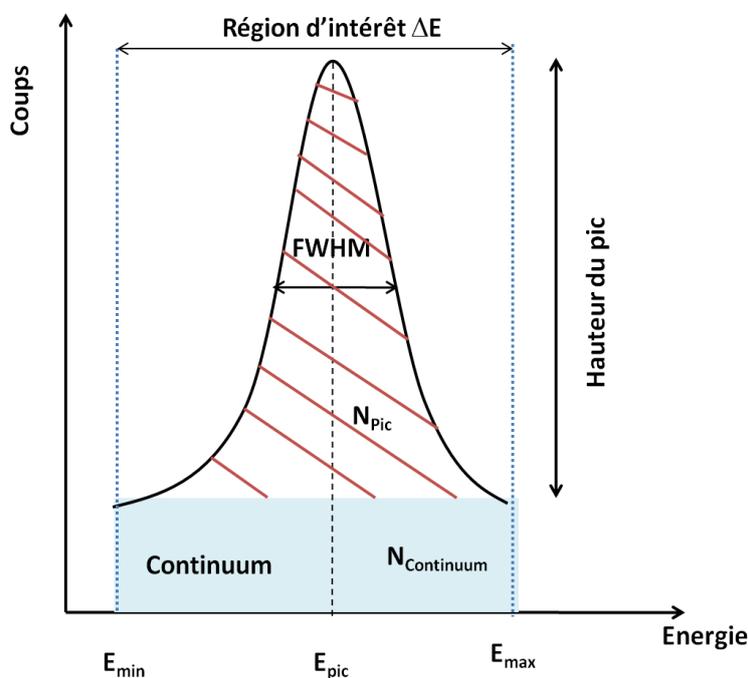


Fig. 4.5: Analyse d'un pic isolé parfaitement gaussien.

– **Étalonnage en efficacité**

Cet étalonnage nécessite au préalable un étalonnage en énergie. L'étalonnage en efficacité définit le rendement du détecteur en fonction de l'énergie; c'est le rapport du nombre de gammas détectés au nombre de même espèce émis par un étalon dans le même laps de temps. On utilise des sources étalons qui sont de nature et de forme semblable à celle de l'échantillon. A partir de la courbe d'étalonnage en efficacité établie grâce à un étalon dont les points expérimentaux sont distribués sur la plus grande gamme d'énergie possible, le spectre de l'échantillon est exploité pour le calcul de l'activité.

Lorsque l'échantillon est différent de l'étalon, il est nécessaire de corriger l'efficacité pour des effets de matrice¹. Certains radionucléides utilisés pour l'étalonnage sont entachés par le phénomène de pic-somme. On calcule l'efficacité absolue en tenant compte des différentes corrections. En pratique, on utilise une source ponctuelle de ¹⁵²Eu (énergies supérieures à 120 keV) et de ¹³³Ba (énergies inférieures à 120 keV).

La formule permettant de calculer l'efficacité d'absorption totale à partir d'une activité se calcule comme suit :

$$\varepsilon_E = \frac{N_{pic}(E)}{A \times T \times I(E) \times C_i}$$

où

$$N_{pic} = A \times I(E) \times \varepsilon_E \times \underbrace{f_d \times f_{C-1,E} \times f_{S,E} \times f_{att,E}}_{C_i}$$

avec :

N_{pic} = le taux de comptage net du pic d'énergie E_{pic} en coups.s⁻¹ ;

A = activité du radionucléide en Bq ;

ε_E = efficacité du comptage pour l'énergie E ;

T = temps d'acquisition en s ;

$I(E)$ = le rapport d'embranchement à l'énergie E ;

C_i = produit de différents facteurs correctifs inhérents aux conditions de mesure ;

f_d = facteur de correction de la décroissance radioactive ;

$f_{C-1,E}$ = facteur de correction des pertes par coïncidence pour l'énergie E ;

$f_{S,E}$ = facteur de correction de sommation pour l'énergie E ;

$f_{att,E}$ = facteur de correction de l'auto-absorption à l'énergie E .

1. Les effets de matrice induisent le phénomène d'auto-absorption

L'aire du pic N_{pic} est obtenue par la soustraction du nombre de coups dans le continuum $N_{continuum}$ au nombre total de coups N_{TOT} mesurés sur un intervalle d'énergie $[E_{min}, E_{max}]$ appelé région d'intérêt (figure 4.5).

4.2.2.3 Préparation des échantillons pour analyse

Tous les échantillons ont été séchés, broyés, tamisés et conditionnés dans un SG50 puis placés dans la chaîne de comptage BEGe constitué d'un cristal de germanium hyper-pur GeHP avec une résolution de 1,3 keV pour 661 keV de ^{137}Cs . Après 200 000 s de temps de comptage moyen, les échantillons ont ensuite été placés dans la chaîne de correction d'auto-absorption afin de déterminer les facteurs de correction. Enfin, les teneurs en ^{238}U ont été déterminées à partir de la raie de 63 keV du ^{234}Th descendant direct de ^{238}U . En outre la valeur du rapport $^{238}\text{U}/^{235}\text{U} \approx 22$ a été vérifiée dans tous nos calculs afin de nous assurer de la fiabilité de nos résultats.

4.3 Résultats

Les résultats des analyses par spectrométrie gamma et par contact auto-radiographique sont présentés dans le tableau ci-dessous. Les ac-

Echantillons	Spectrométrie γ A(Bq/kg)	LR115 A(Bq/kg)
Bamako I	$24,55 \pm 5,97$	$24,6 \pm 4,9$
Bamako II	$24,62 \pm 8,31$	$26,0 \pm 5,1$
Segou I	$21,63 \pm 5,63$	$26,3 \pm 5,1$
Ségou II	$22,97 \pm 4,24$	$25,8 \pm 5,1$
Sikasso I	$43,70 \pm 7,47$	$37,5 \pm 6,1$
Sikasso II	$39,59 \pm 10,30$	-
Falea I	$132,07 \pm 49,18$	$126,0 \pm 11,2$
Falea II	$43,78 \pm 11,13$	$46,3 \pm 6,8$
Falea III	$65,94 \pm 12,71$	-

Tab. 4.2: Activités d'échantillons de sols déterminées par spectrométrie gamma (les incertitudes sont données par le logiciel Genie 2000 et par LR115 (incertitudes statistiques).

tivités massiques de ^{238}U obtenues par les deux techniques sont en bon accord et mettent en évidence un taux élevé de ^{238}U dans la zone de Faléa qui est en effet une zone uranifère. Nous n'avons pas pu obtenir certains résultats avec la technique du contact auto-radiographique, dû au fait que les LR115 se décolorent au cours du traitement chimique

rendant impossible leur lecture au microscope.

L'autre difficulté liée à la technique par contact auto-radiographique est la détermination de la composition chimique des sols qui varient énormément. Néanmoins on peut utiliser des détecteurs visuels pour une analyse quantitative de l'activité d'un échantillon.

A titre comparatif, quelques résultats d'autres régions d'Afrique sont présentés dans le tableau 4.3. L'activité moyenne de ^{238}U au Mali est supérieure à celle mondiale à cause de la valeur élevée dans la région de Faléa ; sinon toutes les moyennes sont inférieures à celle mondiale.

Localisations	Mali	Cameroun	Nigéria	Egypte	Tripoli	Moyenne mondiale
^{238}U (Bq.kg ⁻¹)	46,5	14	39,8	13	10,5	40

Tab. 4.3: Comparaison d'activité moyenne issue des publications [Ade12], [Nga08].

4.3.1 Conclusion

Pour la première fois nous avons déterminé l'activité massique d'échantillons de sols en utilisant un détecteur visuel LR115 et par spectrométrie γ . Les résultats obtenus sont en bon accord, ce qui nous permet de valider la méthode par contact auto-radiographique. Cette méthode moins précise que la spectrométrie γ présente l'avantage d'être simple à utiliser et est de très loin moins coûteuse. Un autre inconvénient des LR115 est lié aux conditions de développement chimique qui leur font perdre la teinture rouge et les rend inexploitable au microscope.

Chapitre 5

5. DOSIMÉTRIE NEUTRON

Contents

5.1	Dosimétrie neutron rapide	96
5.1.1	Notion d'équilibre protonique	96
5.1.2	Validation de nos méthodes expérimentales	97
5.2	Dosimétrie neutron thermique	99
5.2.1	Production de neutrons thermiques	100
5.2.2	Etalonnage des dosimètres sur le dispositif Van Gogh de l'IRSN	101
5.2.3	Validation expérimentale du dosimètre PN3+BN1	108
5.2.4	Conclusion	111

Jusqu'à la fin du vingtième siècle, la dosimétrie neutron avait un statut de dosimétrie complémentaire par rapport à celle des photons (X et gamma). Les doses neutrons étaient comptabilisées avec celle des photons. Par ailleurs, l'ICRP avait revu à la hausse le facteur de pondération des neutrons et a recommandé un abaissement de la limite de dose efficace d'au moins un facteur 2.

Ce n'est qu'à partir de 2001 que la dosimétrie neutron verra son développement s'accélérer. D'une part, on assiste à la séparation des valeurs des doses pour les neutrons et les rayonnements photoniques et d'autre part à l'évolution de la réglementation dont l'une des conséquences est le développement d'une instrumentation appropriée.

Plus spécifiquement, la dosimétrie neutron représente aujourd'hui un enjeu considérable; près de 16700 travailleurs en France et 63000 en Europe sont régulièrement exposés à ces rayonnements indirectement ionisants.

Plusieurs difficultés subsistent quant à la détection des neutrons. La

première est liée à l'absence de charge qui ne leur permet pas d'interagir directement avec la matière, cependant ils mettent en route des particules secondaires (protons et alpha) très ionisantes qui créent à leur passage des dégâts.

La deuxième difficulté provient du fait que les neutrons couvrent une large gamme énergétique allant de 10^{-12} à 10^4 MeV, il faut donc adapter le système de détection selon l'énergie d'intérêt. Un autre problème est la présence systématique de photons dans les champs neutroniques, il est donc nécessaire de disposer de moyens de détection ayant une sensibilité faible voire nulle aux photons.

Les DSTN semblent être un bon candidat pour surmonter la plupart des difficultés mentionnées ci-haut : ils sont transparents aux γ , la norme ISO-21909 les classe parmi les cinq détecteurs passifs fiables pour la dosimétrie neutron, ils ont l'avantage de couvrir un large spectre énergétique et enfin, leur fonction de réponse en énergie est proportionnelle à la fluence des coefficients de conversion dose-énergie comme le montre la figure 5.1 [ICRP74], [Agos09], [Lus01].

Nous avons montré au chapitre I qu'il fallait associer aux dosimètres

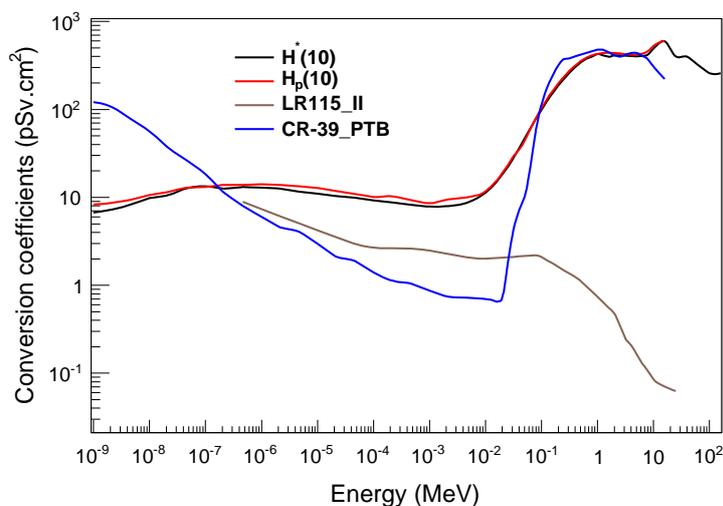


Fig. 5.1: Coefficients de conversion dose-fluence; réponse de détecteurs CR-39 et LR115 tiré de [Com01].

passifs ou actifs des écrans convertisseurs afin d'identifier les particules secondaires issues de l'interaction neutron-matière. Le choix des écrans dépend de la plage d'énergie des neutrons à détecter.

Pour les neutrons rapides, la détection est réalisée grâce aux protons de recul créés dans les détecteurs par des radiateurs riches en protons.

Quand aux neutrons thermiques leur détection se fera par l'utilisation de convertisseurs dopés avec du bore pour générer des particules alpha. Ce chapitre est divisé en deux grandes sections :

- la première est consacrée à la dosimétrie neutron rapide où nous exposerons les méthodes déjà appliquées dans ce domaine par notre laboratoire. Ces méthodes seront validées par notre participation à un test d'intercomparaison ;
- dans la seconde section, nous exposerons les études expérimentales et les simulations développées afin de concevoir un dosimètre neutron basé sur l'exploration des neutrons thermiques.

5.1 *Dosimétrie neutron rapide*

La détection des neutrons rapides se fait par diffusion élastique (n,p) de neutrons sur des matériaux ou des gaz fortement hydrogénés appelés convertisseurs (voir section 1.5.5.1). Le Polyéthylène (PE) est l'un des matériaux le plus hydrogéné, il est le convertisseur le plus utilisé. Dans notre travail, la détection de neutrons rapides se fera avec un convertisseur qui n'est autre que le détecteur PN3 lui même de formule $C_{12}H_{18}O_7$. En effet, des études menées par Belafrites [Bel04] ont montré qu'il était possible d'utiliser le PN3 composé de 48,6 % d'hydrogène en tant que convertisseur et détecteur à la fois (en annexe A, les efficacités de conversion du PE et du PN3 ont été calculées en guise d'illustration pour une énergie incidente neutron de 5 MeV). L'efficacité de détection des protons est étroitement liée à l'épaisseur du convertisseur pour le PE et à la quantité de PN3 décapée après traitement chimique, d'où la notion d'équilibre protonique.

5.1.1 *Notion d'équilibre protonique*

Lorsqu'on décape un DSTN irradié par des neutrons monoénergétiques, à partir d'une certaine épaisseur, les protons créés par diffusion élastique des neutrons sur le matériau sont compensés par ceux qui sont absorbés. Par conséquent le nombre de protons de recul produits en sortie du DSTN devient constant : c'est l'équilibre protonique. Quelque soit l'épaisseur décapée après l'épaisseur correspondant à l'équilibre protonique, le nombre de protons de recul reste constant pour la même énergie d'incidence. La figure 5.2 illustre cette notion d'équilibre protonique du PN3 en fonction de l'épaisseur décapée et du spectre d'énergie de neutrons incidents de la source de $^{241}\text{Am-Be}$.

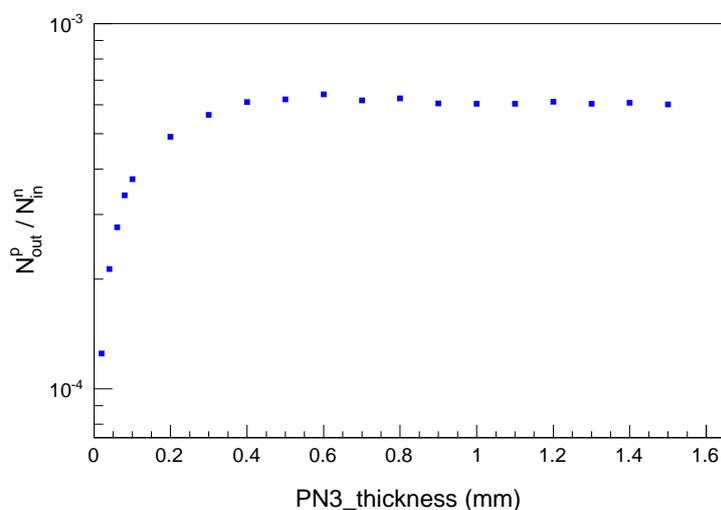


Fig. 5.2: Courbe de l'équilibre protonique.

5.1.2 Validation de nos méthodes expérimentales

5.1.2.1 Test d'intercomparaison

De 2008 à nos jours, notre laboratoire a participé à deux tests d'intercomparaison règlementaire pour la dosimétrie passive individuelle organisée par l'IRSN avec succès. En décembre 2010, date du dernier test, nos dosimètres ont été irradiés suivant deux configurations E et F (table 5.1) sur les installations de l'IRSN dédiées à la métrologie neutrons à des équivalents de doses dont nous ignorions les valeurs. Notre tâche a consisté à trouver ces valeurs avec une précision de 50%. Pour y arriver nous avons étalonné des DSTN du même lot, conçus et prévus pour avoir les mêmes caractéristiques de fonctionnement, compatibles avec les exigences de la norme ISO 8529-3 [AFNOR00].

Confir- gura- tion	Rayon- nement	Champ de rayon- nement	Energie moyenne ou no- minale (keV)	Angle α en degré	Hp* (mSv) Poitrine	Hp* (mSv) Poignet
E	neutrons	source $^{241}\text{Am-Be}$	4160	0	Hp(10)= 0,5 (7%)	Hp(10)= 0,5 (7%)
F	neutrons	source $^{252}\text{Cf+D20}$	550	0	Hp(10)= 0,5 (6%)	Hp(10)= 0,5 (6%)

Tab. 5.1: Configuration d'irradiation.

5.1.2.2 Etalonnage des PN3 en vu du test d'intercomparaison

Afin de déterminer les équivalents de doses pour le test d'intercomparaison, nous avons irradié nos PN3 avec deux sources de neutrons dont $^{241}\text{Am-Be}$ de l'IPHC et la source ISO de ^{252}Cf de l'IRSN. Les expériences d'irradiation au "calibrateur" du groupe RaMsEs ont été faites à des doses allant de 0,5 mSv à 10 mSv sachant que le débit de dose neutron de la source $^{241}\text{Am-Be}$ est égale à 0,022 mSv/h à 1 m. A l'IRSN nous avons irradié les PN3 à des équivalents de doses variant de 0,5 mSv à 24 mSv. Tous les DSTN ont ensuite subi les traitements chimiques suivants avant lecture au microscope :

- un pré-développement d'une heure qui permet d'une part de décaper une épaisseur importante de DSTN pour s'approcher de l'équilibre protonique et d'autre part d'éliminer les traces dues au radon et particules parasites. Le bain chimique dans lequel fut plongé les PN3 était composé de 40% de soude à 6,25 mol.l⁻¹ et 60% de méthanol, le tout porté à une température de 70°C ;
- un développement de 6h dans une solution de soude de normalité 6,25 N à 70°C ;
- enfin, ils ont été introduits dans une solution de HCl à 0,1 mol.l⁻¹, à température ambiante pendant 15 min afin de neutraliser les dépôts de soude.

Les images des traces obtenues grâce au microscope optique axioskop de magnification 100x couplé à une caméra CCD pilotée par le logiciel de lecture automatique Visilog 5.4¹ ont été analysées par le logiciel de traitement d'image ImageJ² afin de faciliter le comptage des traces. A la suite de ces opérations nous avons tracé la courbe d'étalonnage des PN3 (nombre de traces par cm² en fonction de l'équivalent de dose) représentée sur la figure 5.3. Ainsi, après avoir établi la courbe d'étalonnage des PN3 et calculé les réponses des DSTN suivant la formule $R_H = M/H$ (M=lecture d'un instrument de mesure, H=valeur conventionnellement vraie de la grandeur mesurée) tirée de la norme ISO 8529-1 [AFNOR01], on obtient les valeurs suivantes :

- $R_H(^{241}\text{Am-Be}) = 331 \pm 51$ traces/cm²/mSv ;
- $R_H(^{252}\text{Cf}) = 343 \pm 53$ traces/cm²/mSv ;

5.1.2.3 Résultats du test d'intercomparaison

En appliquant les mêmes modes d'opération chimique, de comptage des traces et en utilisant la courbe d'étalonnage, nous avons obtenu des

1. Noesis, <http://www.apvl.com>

2. <http://imagej.nih.gov/>

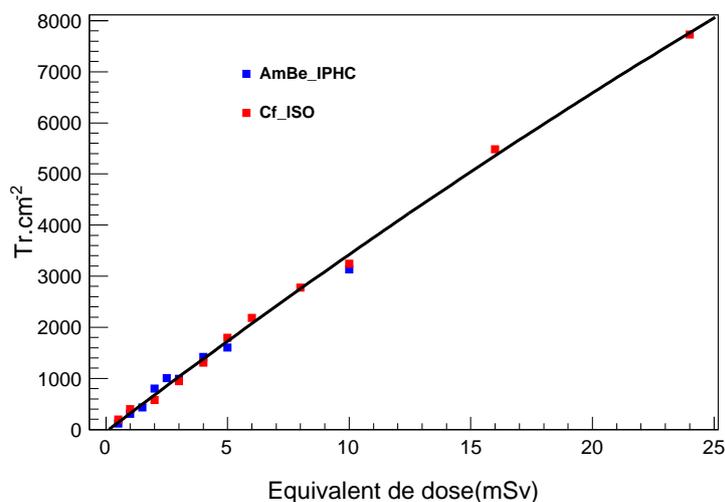


Fig. 5.3: Courbe d'étalonnage des PN3 irradiés aux neutrons.

résultats satisfaisants (voir figure 5.4) ; 5,33% d'écart pour la configuration E et 23,33% d'écart pour la configuration F. La réussite au test nous incline donc à appliquer les mêmes méthodes de développement chimique et de traitement d'image tout au long de notre travail.

Notons que pour le test d'intercomparaison de 2010, un premier lot de PN3 irradié à l'IRSN avait été analysé et nous avons trouvé que les équivalents de dose étaient inférieures à 0,5 mSv. En effet, en deçà de la valeur de sensibilité du PN3 (0,5 mSv en pratique et 0,3 mSv en théorie), nous nous retrouvons dans le bruit de fond. Nous avons envoyé ces premiers résultats qui ont été confirmés, il s'est trouvé que les PN3 n'étaient pas irradiés ; ce qui confirme une fois de plus la pertinence de nos méthodes.

5.2 Dosimétrie neutron thermique

Grâce aux succès des deux tests d'intercomparaison en 2008 et 2010, nous avons appliqué les mêmes méthodes expérimentales aux neutrons thermiques. Elles consistent à déterminer l'équivalent de dose total des neutrons (rapides + thermiques) dans un environnement donné grâce à la composante thermique. Cette méthode permet aussi de déterminer la contribution des thermiques à l'équivalent de dose total. Pour cela il faudrait étalonner les dosimètres soit avec des sources mono-énergétiques de thermiques ou des sources à spectre large contenant une composante thermique. Ne disposant pas de source monoénergé-

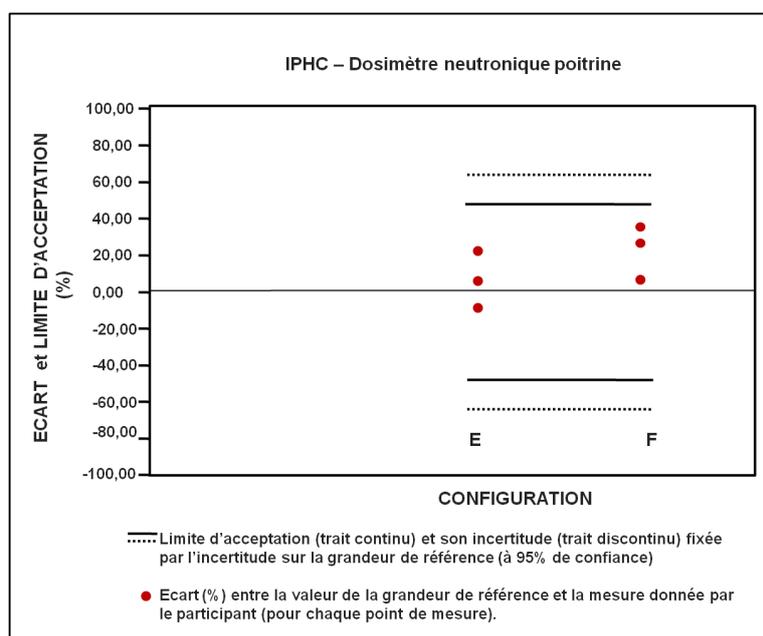


Fig. 5.4: Résultats du test d'intercomparaison de l'IRSN.

tique de neutrons thermiques, le choix d'un spectre neutronique s'est imposé. Nous avons alors mené une série d'irradiation sur les installations de référence de l'IRSN à Cadarache pour établir la réponse de nos détecteurs aux neutrons thermiques, suivi de test sur l'installation neutron de l'IPHC afin de valider le dosimètre passif dédié aux neutrons thermiques. Des simulations MCNPX ont aussi permis de déterminer des grandeurs physiques indispensables mais inaccessibles en l'état par expérience au cours des différentes campagnes d'irradiation.

5.2.1 Production de neutrons thermiques

La source de fission de ^{252}Cf de l'IRSN et celle de $^{241}\text{Am-Be}$ dont dispose l'IPHC ne produisent que des neutrons rapides dont l'énergie varie de 0,5 MeV à 20 MeV. Il existe des techniques de modulation qui permettent de produire en plus des rapides, des neutrons thermiques et intermédiaires à partir du spectre initial. La modulation consiste à faire subir aux neutrons incidents des collisions élastiques successives jusqu'à ce qu'ils atteignent l'équilibre thermique avec le milieu modérateur ; les neutrons se répartissent alors suivant une distribution maxwellienne dont l'énergie la plus probable à 20°C est de 0,025 eV. A cette température, leur énergie décroît jusqu'aux environs de 0,5 eV ;

ces neutrons sont qualifiés de thermiques. Le choix du matériel modérateur obéit à deux critères qui sont : le pouvoir de ralentissement et le ratio de modération.

– **le pouvoir de ralentissement (PR)**

Noté $\xi\Sigma_s$, où Σ_s représente la section efficace macroscopique de collision et ξ le décrément logarithmique moyen en énergie dans une collision, il traduit d'une part, la probabilité d'occurrence d'une collision dans le milieu modérateur et d'autre part la variation moyenne de l'énergie cinétique du neutron après collision. Lorsque les collisions élastiques avec un élément de nombre de masse A dominant le processus global de diffusion des neutrons, le décrément devient : $\xi = 1 - \frac{(A-1)^2}{2A} \ln \frac{A+1}{A-1}$. Le choix d'un matériau avec un grand pouvoir de ralentissement peut s'avérer être inefficace s'il présente une grande section efficace d'absorption neutronique, d'où le concept de ratio de modération.

– **le ratio de modération (RM)**

Il est traduit par la relation $\frac{\xi\Sigma_s}{\Sigma_a}$, avec Σ_a la section efficace d'absorption. Plus le ratio de modération d'un matériau est élevé, ce qui implique un grand pouvoir de ralentissement et un faible pouvoir de capture, plus ce matériau est efficace.

Dans le tableau 5.2 ci-dessous est donné les valeurs du ratio de modération, du pouvoir de ralentissement et du nombre de collisions N nécessaire ($N = \frac{\ln E - \ln E_0}{\xi}$) pour ralentir l'énergie des neutrons de 2 MeV à 0,025 eV de quelques matériaux solides. A la lumière des données du tableau 5.2, l'eau lourde apparaît comme le meilleur modérateur. Pour étalonner nos dosimètres avec des neutrons thermiques, nous avons mené une campagne d'irradiation sur l'installation van Gogh de l'IRSN à Cadarache où nous avons accès à une source de ^{252}Cf modérée à l'eau lourde.

5.2.2 Etalonnage des dosimètres sur le dispositif Van Gogh de l'IRSN

Le Laboratoire de Métrologie et de Dosimétrie des Neutrons (LMDN) de l'IRSN a un statut de laboratoire associé au Laboratoire National de Métrologie et d'Essais (LNE) qui a pour mission de préparer et de mettre en œuvre la politique française de métrologie. Le LMDN développe et exploite des installations produisant des champs neutroniques

Modérateurs	A	ξ	$\xi\Sigma_s$	$\frac{\xi\Sigma_s}{\Sigma_a}$	Nombre de collisions de 2.10^6 à $0,025$ eV
H ₂ O	18	0,107	1,42	62	19
D ₂ O	20	0,096	0,18	4830	35
He	4	0,43	9.10^{-6}	51	42
C	12	0,16	0,08	216	114
CH ₂	14	0,14	3,26	122	132

Tab. 5.2: Quelques paramètres de matériaux modérateurs.

de référence. Pour l'étalonnage de routine, de dispositifs de mesure des neutrons ayant déjà été soumis à l'ensemble des tests de fonctionnement sous rayonnement lors de leur conception ou homologation, les sources radioactives ²⁴¹Am-Be et ²⁵²Cf sont recommandées par la norme ISO 8529-1 car l'énergie moyenne des neutrons (4,2 MeV pour ²⁴¹Am-Be et 2,1 MeV pour ²⁵²Cf) est du même ordre que celle des neutrons produits par réaction de fission dans le cycle du combustible [Gre05]. Les dosimètres individuels et, en général, tous les appareils de mesure des neutrons sont étalonnés dans un champ "réaliste", ce qui permet d'obtenir une dosimétrie plus fiable et plus adaptée à chaque poste de travail. Pour nos expériences, nous avons utilisé la source de ²⁵²Cf de l'irradiateur Van Gogh décrite brièvement dans la sous section 1.5.4.1 dans les configurations suivantes :

- la source de ²⁵²Cf nue ;
- la source de ²⁵²Cf est placée au centre d'une sphère modératrice d'eau lourde de 15 cm de rayon avec une coquille en aluminium de 1,2 mm d'épaisseur ; ce dispositif donne un spectre neutronique avec une composante rapide, épithermique et thermique dont la contribution est de l'ordre de 12% du spectre total ;
- la même source de ²⁵²Cf modérée à l'eau lourde est recouverte d'une coquille de cadmium de 0,8 mm d'épaisseur pour couper les neutrons thermiques.

Les caractéristiques des sources de Van Gogh décrites à la date d'irradiation du 02/12/2011 sont présentées dans le tableau 5.3. Tenant compte des valeurs de fluence du tableau 5.3, on a un rapport cadmique de $1,18 \pm 0,13$. Ce rapport étant défini comme le ratio de la réponse d'un détecteur de neutrons à sa réponse dans les mêmes conditions, lorsqu'il est recouvert d'une feuille de cadmium d'épaisseur déterminée.

Sources	(Cf+D2O)/ <i>IRSN</i>	(Cf+D2O+Cd)/ <i>IRSN</i>
$\Phi(\text{cm}^{-2}\text{s}^{-1})$	$768,07 \pm 76,81$ (k=2)	$650,02 \pm 36,66$ (k=2)
$\dot{H}^*(10)(\mu\text{Sv}\cdot\text{h}^{-1})$	$268,21 \pm 25,75$ (k=2)	$245,71 \pm 24,06$ (k=2)

Tab. 5.3: Fluence et équivalent de débit de dose ambiant à 75 cm.

5.2.2.1 Configuration d'irradiation

Une série de deux irradiations a été menée sur les installations de Van Gogh. Des pochettes en aluminium scellées contenant des PN3, PN3+BN1, PN3+BE10 d'une part et des LR115, LR115+BN1, LR115+BE10 d'autre part ont été fixés sur un fantôme parallélépipédique (PMMA) pour des irradiations avec la source Cf+D2O à des équivalents de dose variant de 1 à 4 mSv.

Dans la deuxième série d'irradiation, nous avons utilisé la source de Cf+D2O+Cd et la même configuration des dosimètres.

5.2.2.2 Résultats des irradiations de Van Gogh

Tous les PN3 irradiés ont été développés chimiquement dans une solution de soude à 6,25 N à la température de 70°C pendant 7h et lus au microscope optique couplé à une caméra CCD. Les LR115 quant à eux, ont subi un traitement chimique à la soude de concentration 2,5 N, à la température de 60°C pendant 75 min. Les images des traces enregistrées par visilog ont été analysées par le logiciel de comptage imageJ. Pour déterminer l'équivalent de dose à partir des neutrons thermiques nous avons fait la différence entre le nombre de traces dû à la source de Cf+D2O et celle dû à la source Cf+D2O+Cd pour chaque dosimètre nu et associé aux convertisseurs BN1 ou BE10.

Nous avons constaté que sans convertisseur, le nombre de traces.cm⁻² est presque le même pour les différentes configurations d'irradiation Cf+D20 et Cf+D20+Cd en témoigne la figure 5.5. Le nombre de traces élevé observé avec la source de ²⁵²Cf nue s'explique par le fait qu'en thermalisant la source, on augmente le taux de thermiques (de 0 à 12%) en diminuant celui des rapides (de 100 à 88%). Sans convertisseur, on ne détecte que les rapides produits par les différentes sources. N'ayant pas atteint l'équilibre protonique compte tenu des conditions de développement chimique (pas de pré-développement), le nombre de traces lues entre 1 et 4 mSv est inférieure à ceux de l'étalonnage du dosimètre par le ²⁵²Cf de la figure 5.3.

– Résultats des dosimètres associés au BE10

Que ce soit avec les PN3 ou les LR115, les résultats obtenus avec le convertisseur BE10 sont inexploitable. On observe la saturation

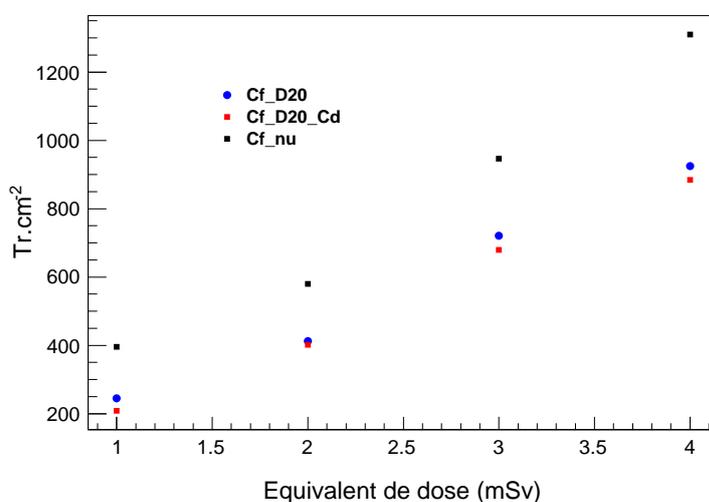


Fig. 5.5: Nombre de traces.cm⁻² en fonction de l'équivalent de dose pour des PN3 sans convertisseur.

des détecteurs à partir de 3 mSv, ce qui rend le comptage difficile, donc approximatif. Nous savons aussi que le BE10 est 4 fois plus sensible que le BN1 selon les données de la société DOSIRAD, il produit donc plus de particules alpha comme on peut le constater sur la figure 5.6. Par conséquent, nous pouvons conclure que le BE10 est un bon candidat pour les faibles équivalents de dose vu sa forte sensibilité, tandis que le BN1 peut être exploité dans le cadre des fortes équivalents de dose (≥ 1 mSv).

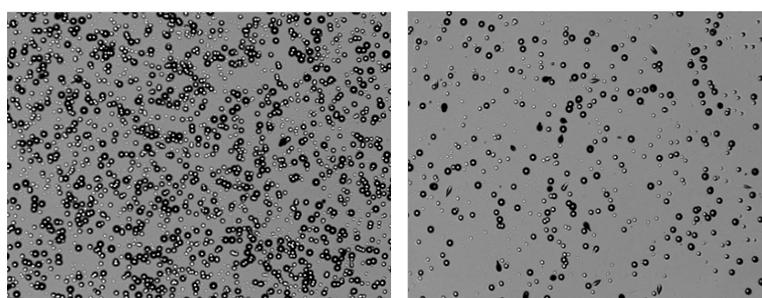


Fig. 5.6: Traces de particules chargées issues de la réaction $^{10}\text{B}(n,\alpha)^7\text{Li}$ observées dans le PN3+BE10 à gauche et le PN3+BN1 à droite à la dose 3 mSv. Les neutrons sont produits suivant la configuration Cf+D2O.

– Résultats avec le dosimètre LR115+BN1

Les LR115 sont capables d'enregistrer des particules α dont l'éner-

gie varie de 1,4 à 4,5 MeV ; or l'énergie sortant du bore est comprise entre 0,84 à 1,78 MeV. Le spectre en diamètre des particules alpha de la figure 5.7 rend bien compte de la réalité décrite précédemment et relative à la cinématique de la réaction $^{10}\text{B}(n,\alpha)^7\text{Li}$. Ce spectre en diamètre présente une coupure pour les énergies inférieures à 1,4 MeV. On peut donc conclure que le nombre de traces enregistrées par les LR115 ne rend compte que d'une partie de la réalité, car nous devrions avoir plus de traces que celles observées. Néanmoins la courbe d'étalonnage a été établie (figure 5.8).

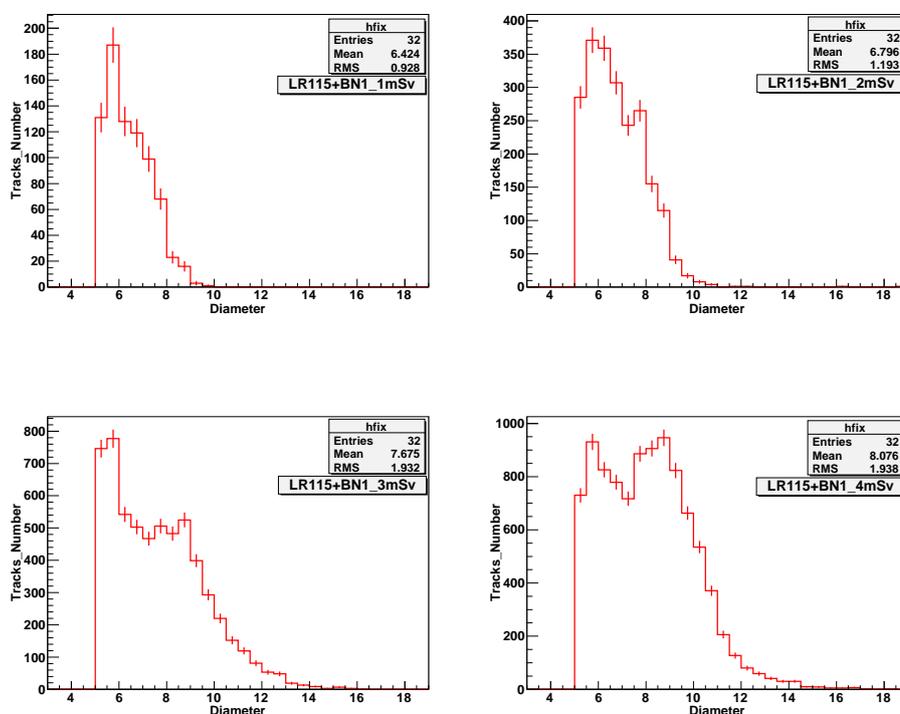


Fig. 5.7: Spectre en diamètre des particules alpha suivant la configuration Cf+D2O avec les LR115.

– Résultats du dosimètre PN3+BN1

La non saturation des PN3 avec le BN1 étant constatée, nous avons établi la courbe d'étalonnage reliant le nombre de traces.cm⁻² en fonction de l'équivalent de dose (figure 5.9). La variation linéaire ($y = 2728x + 213$) observée est caractéristique des courbes d'étalonnage en dosimétrie neutron rapide [Bel04] par DSTN. Le rapport cadmique calculé en faisant le rapport entre le nombre de traces résultant de la source Cf+D2O et de Cf+D2O+Cd est

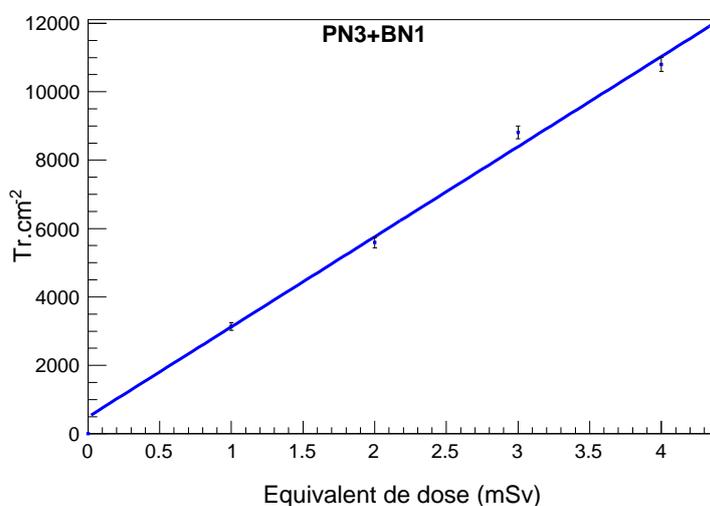


Fig. 5.8: Courbe d'étalonnage par les neutrons lents du dosimètre PN3+BN1.

de $1,46 \pm 0,20$. L'écart entre cette valeur et celle obtenue avec les données de l'IRSN est de 24%. Les spectres en diamètre de la figure 5.10 ont sensiblement la même forme et corroborent les résultats obtenus lors de la calibration des DSTN par des particules alpha (figure 6.14).

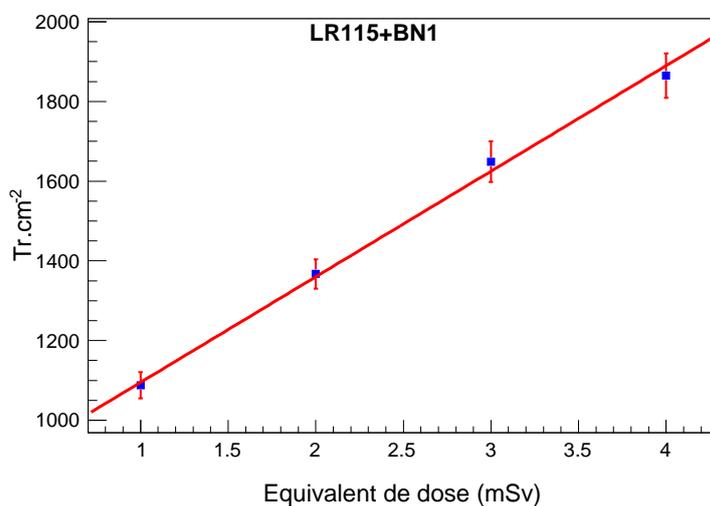


Fig. 5.9: Courbe d'étalonnage des LR115+BN1 irradiés aux neutrons thermiques.

– Résultats des simulations MCNPX

Sachant qu'il est impossible dans la pratique de déterminer la contribution des neutrons thermiques à l'équivalent de dose total

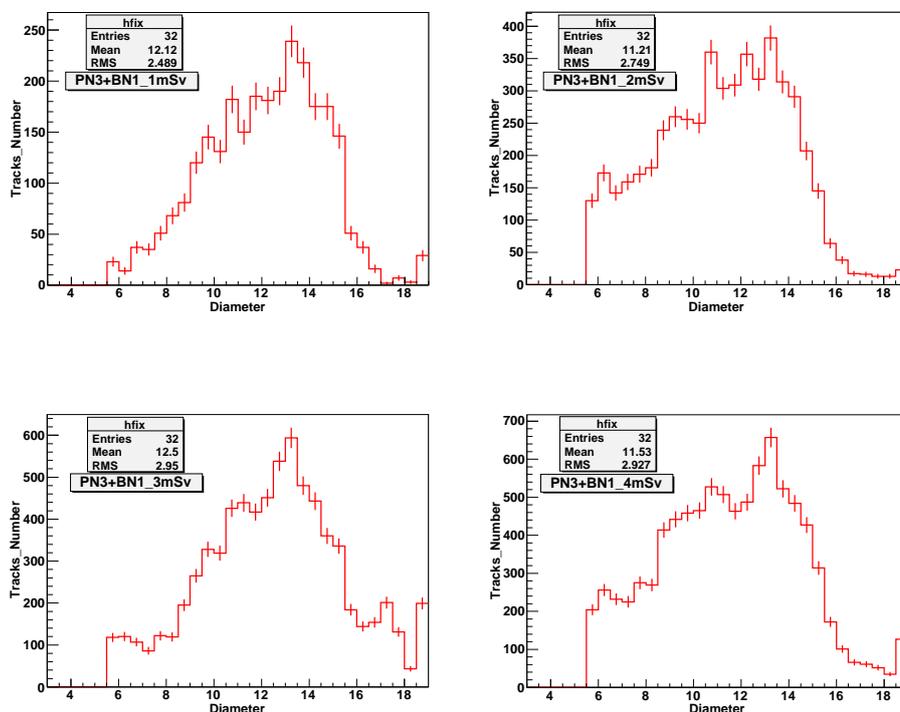


Fig. 5.10: Spectre en diamètre des particules alpha suivant la configuration Cf+D2O avec les PN3.

principalement dû aux rapides, nous avons eu recours au code de simulation MCNPX. Ce code a été validé en reproduisant d'une part le spectre expérimental des sources Cf+D2O et Cf+D2O+Cd de Van Gogh (figure 2.4) et d'autre part, la fluence, le débit d'équivalent de dose ambiant et personnel (tableau 5.4). La bonne reproductibilité des résultats expérimentaux par la simulation nous a permis, grâce aux coefficients de conversion de la ICPR 74, de déterminer la contribution des neutrons thermiques au spectre total de la source Cf+D2O, soit 15,5%.

Sources	$\Phi(\text{cm}^{-2}\text{s}^{-1})$	$\dot{H}^*(10)(\mu\text{Sv}\cdot\text{h}^{-1})$	$\dot{H}_p(10)(\mu\text{Sv}\cdot\text{h}^{-1})$
(Cf+D2O) _{IRSN}	768 ± 77	268 ± 26	279 ± 34
(Cf+D2O) _{MCNPX}	794 ± 2	252 ± 1	263 ± 1
Simu/Exp	-3,39%	5,97 %	5,73 %

Tab. 5.4: Données expérimentales et simulées ; les incertitudes de la simulation sont statistiques.

5.2.3 Validation expérimentale du dosimètre PN3+BN1

Le dosimètre PN3+BN1 étalonné à cadarache a été testé sur nos installations de l'IPHC en utilisant de nouveau le code de simulation MCNPX. La source $^{241}\text{Am-Be}$ de cette installation a un spectre sans thermique. Pour la validité de nos tests il faut donc produire un spectre avec une gamme d'énergie incluant les thermiques.

5.2.3.1 Thermalisation de la source $^{241}\text{Am-Be}$ de l'IPHC

Le spectre de la source $^{241}\text{Am-Be}$ du "calibrateur" représenté sur la figure 1.12 n'a pas de composante thermique. Pour produire des neutrons thermiques nous avons utilisé des sphères en polyéthylène (RM=122) encore appelé sphère Bonner. Le système de sphère Bonner (BSS) a été décrit pour la première fois en 1960 par Bramblett, Erwing et Bonner [Bra60]. Ce sont des sphères pleines en polyéthylène, fortement hydrogénées, au centre desquelles un espace a été aménagé pour la source de $^{241}\text{Am-Be}$. Les neutrons rapides issus de la source subissent des diffusions élastiques multiples, une partie des neutrons perdrait leur énergie pour atteindre une valeur comprise entre 25 meV et 0,5 eV à la sortie des sphères ; on obtient en ce moment un spectre de neutrons rapides et thermiques. En fonction des dimensions de la sphère, on peut obtenir un rendement maximal de neutrons thermiques. Dès lors, nous avons réalisé une simulation Monte Carlo en faisant varier le diamètre des sphères afin de trouver le diamètre produisant le plus de thermique.

Les figures 5.11 et 5.12 illustrent les différents spectres obtenus avec des sphères de diamètres variables et l'évolution du diamètre en fonction du flux de neutrons thermiques. Ces résultats montrent que la sphère donnant la fluence de thermiques la plus importante est celle ayant un diamètre de 8-9 pouces, cependant le rapport $\frac{\Phi_{\text{Thermique}}}{\Phi_{\text{rapide}}}$ est optimal pour la valeur de 10 pouces. A la lumière des résultats, notre laboratoire s'est doté de deux sphères Bonner de diamètre 9 et 12 pouces pour les tests.

5.2.3.2 Test expérimental

Nous avons irradié un lot de pochettes en aluminium scellées contenant chacun un PN3, PN3+BN1 et PN3+BN1+Cd ; l'écran convertisseur de Cd a une épaisseur de 0,9 mm. Les dosimètres à irradier ont été positionnés à une distance de 75 cm de la source sur un fantôme dans une première configuration, sans fantôme dans la seconde et dans la troisième configuration, ils ont été collés sur les sphères de 9 et 12

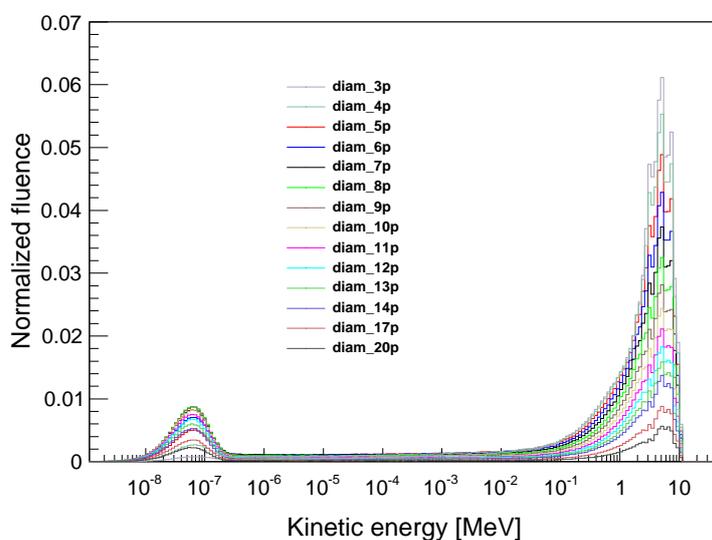


Fig. 5.11: Spectre $^{241}\text{Am-Be}$ obtenu par MCNPX avant et après modération par sphères Bonner de diamètres différents.

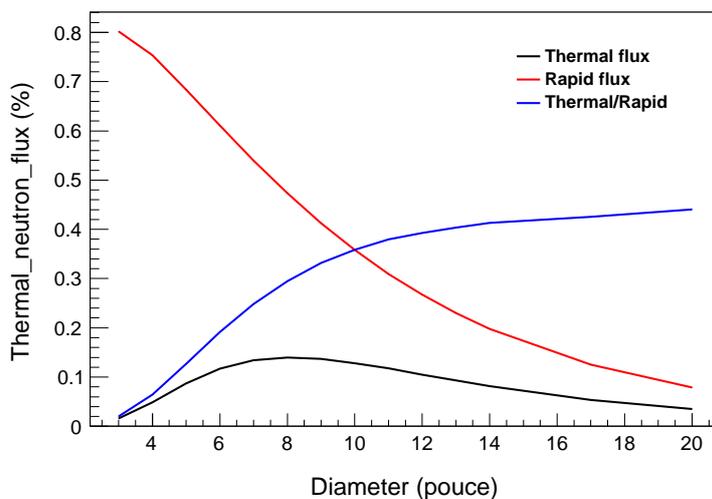


Fig. 5.12: Fluence de neutrons rapides et thermiques pour différents diamètres de sphères modératrices.

pouces (figure 5.13). Le test effectué avec la sphère de 12 pouces avait pour but de comparer le nombre de traces dû aux thermiques avec celles de la sphère de 9 pouces. Après irradiation, tous les PN3 ont subi un développement chimique de 7 h dans un bain de soude de 6,25 N à la

température de 70°C. Pour chaque cas le nombre de traces par cm^2 a été déterminé.

Au terme de ces tests on a les résultats suivants :

- la fraction de neutrons thermiques retrodiffusée par le fantôme est de 14%, en bon accord avec la littérature [Bed09] ;
- quelque soit le dosimètre utilisé (exemple PN3+BN1), le nombre de traces avec la sphère de 9 pouces ($603 \text{ traces.cm}^{-2}$) est plus élevé que celle de 12 pouces ($274 \text{ traces.cm}^{-2}$), en accord avec les prédictions de la simulation ;
- nous avons remarqué que pour 24 h d'irradiation, on a peu d'événements; nous avons ainsi réalisé 72 h d'irradiation. Le débit d'équivalent de dose personnel calculé grâce à la courbe d'étalonnage établie (figure 5.9) avec le PN3+BN1 est $\dot{H}_p(10)=12,0 \pm 0,3 \mu\text{Sv.h}^{-1}$.

La simulation MCNPX va nous permettre de vérifier la validité de ce résultat.

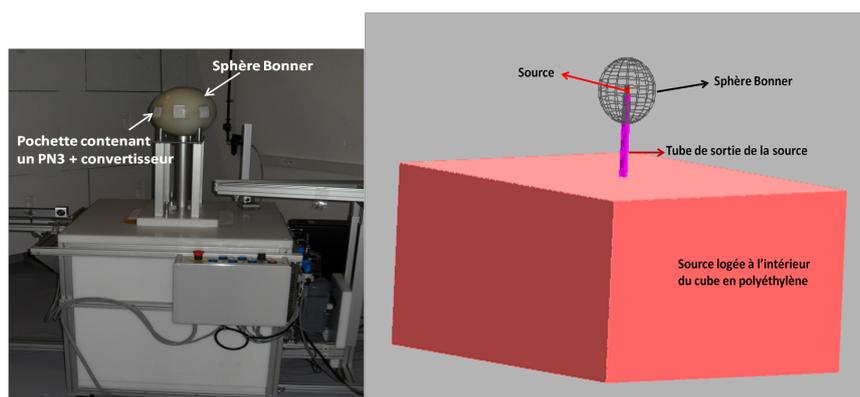


Fig. 5.13: A gauche : sphère Bonner montée au "calibrateur" et sur laquelle on a collé des pochettes contenant des PN3. A droite : modélisation MCNPX.

5.2.3.3 Test avec MCNPX

L'utilisation du code MCNPX pour déterminer le débit d'équivalent de dose personnel a été au préalable validé en simulant la fluence, le débit d'équivalent de dose ambiant et personnel de la source de $^{241}\text{Am-Be}$ nue. Les résultats présentés dans le tableau 5.5 reproduisent ceux de la littérature [Amg12].

Reprenant les mêmes conditions expérimentales, en sus de la sphère Bonner de 9 pouces, nous avons obtenu une valeur de l'équivalent de dose personnel de $15,71 \mu\text{Sv.h}^{-1}$, soit une divergence de 30,92% d'avec

la valeur calculée expérimentalement.

Sources	$\Phi(\text{cm}^{-2}\text{s}^{-1})$	$\dot{H}^*(10)(\mu\text{Sv}\cdot\text{h}^{-1})$
$(^{241}\text{Am-Be})_{IPHC}$	$41,0 \pm 1,9$	$48,8 \pm 2,4$
$(^{241}\text{Am-Be})_{MCNPX}$	$40,8 \pm 1,8$	$49,9 \pm 2,5$
Simu/Exp	0,49%	-2,25 %

Tab. 5.5: Données expérimentales et simulées par MCNPX.

5.2.4 Conclusion

Cette étude menée sur la dosimétrie neutron par l'utilisation des neutrons lents a montré que :

1. le LR115 n'est pas un bon dosimètre pour les neutrons thermiques ;
2. le BE10 et le BN1 ont une bande de sensibilité capable de couvrir les faibles ($< 1\text{mSv}$) et fortes ($> 4\text{mSv}$) équivalents de doses. Ainsi, associés au PN3, ils sont complémentaires dans le cadre de la surveillance dosimétrique en routine ;
3. le dosimètre dont le prototype est représenté sur la figure 5.14 a passé avec succès tous les tests et peut servir de dosimètre pour déterminer la dose totale, la contribution des thermiques et rapides. En revanche, il faudrait tester ce dosimètre auprès de réacteurs nucléaires vue la similitude du spectre d'étalonnage avec celui de fission des réacteurs.

En conclusion, ce travail a permis de caractériser les PN3 par des neutrons thermiques avec des neutrons dont la dose varie de 1 à 4 mSv. La linéarité de la courbe d'étalonnage complète le travail fait par Keiji ODA et al [Oda87] dans la gamme d'énergie variant de 0,035 à 0,7 mSv. C'est donc une contribution qui mérite d'être approfondie.



Fig. 5.14: Prototype de dosimètre neutron par exploration des thermiques

Chapitre 6

6. DE LA SPECTROMÉTRIE NEUTRON À LA DOSIMÉTRIE NEUTRON

Contents

6.1	Étalonnage des PN3 et Neutrak avec des particules de protons	114
6.1.1	Etalonnage de la barrière de surface	114
6.1.2	Etalonnage des DSTN par des protons	116
6.2	Étalonnage des DSTN par des particules alpha	121
6.2.1	Descriptif du dispositif expérimental pour l'étalonnage	121
6.2.2	Processus et résultats de l'étalonnage	122
6.2.3	Conclusion	123

Pour déterminer les grandeurs opérationnelles, on utilise deux méthodes :

- la méthode globale, qui permet de remonter à un équivalent de dose à partir de la mesure de la fluence via les coefficients de conversion fluence totale-équivalent de dose ;
- la méthode spectrométrique : spectrométrie en énergie ou par Transfert Linéique d'Énergie (TLE).

Dans ce chapitre, nous faisons une étude prospective pour la mise en œuvre d'une spectrométrie en énergie permettant de caractériser un champ de rayonnement en terme de distribution en énergie pouvant aboutir à la dosimétrie. L'approche par la spectrométrie en énergie nécessite, d'une part la connaissance des courbes de réponse en énergie des systèmes dosimétriques mesurée dans des champs de référence et d'autre part, une caractérisation des spectres. Les neutrons étant sans charge, ils mettent en mouvement des particules secondaires protons et

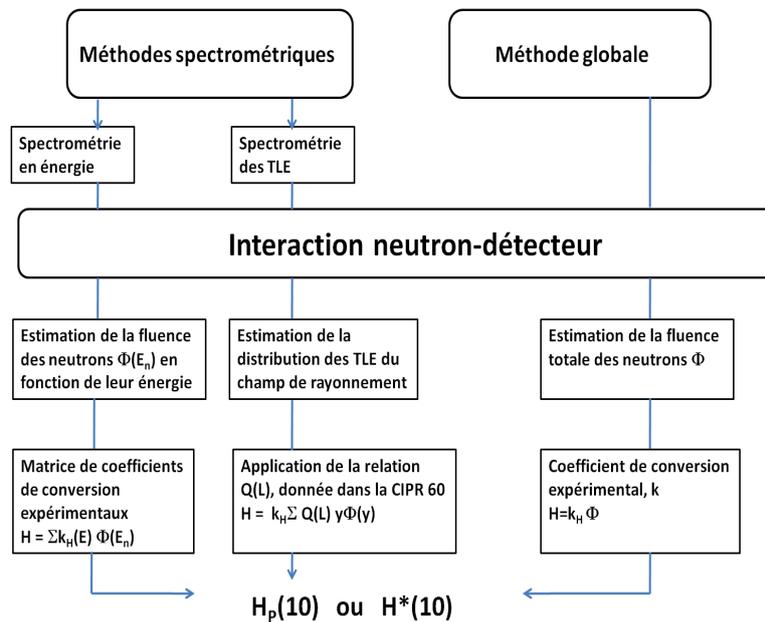


Fig. 6.1: Schéma des méthodes spectrométriques et globales.

α grâce auxquels nous avons étalonné nos DSTN de type LR115, neutrak et PN3.

L'étalonnage des PN3 et neutrak avec les protons a été réalisé auprès de l'accélérateur 4 MV de Van de Graaff de l'InESS de Strasbourg. Celui des PN3 et LR115 par des particules alpha a été effectué avec un ancien dispositif expérimental pour spectrométrie alpha que nous avons modifié afin de l'adapter à notre expérience. Après traitement chimique et lecture par microscope, une courbe d'étalonnage énergie incident-diamètre de traces a été établie pour les différents types de détecteurs.

6.1 Étalonnage des PN3 et Neutrak avec des particules de protons

Dans cette section est présentée l'ensemble des simulations et expériences faite pour aboutir à l'étalonnage des PN3 et neutrak.

6.1.1 Etalonnage de la barrière de surface

La barrière de surface ou détecteur de silicium est utilisée pour enregistrer le spectre en énergie d'une source de particules chargées (protons et α dans notre cas) et parfois des photons. Les détecteurs au

silicium que nous avons utilisés (figure 6.2) ont une surface active de 80 mm² avec une résolution de 14 keV à $E = 5,5$ MeV pour des particules α de ²⁴¹Am. En pratique, la résolution expérimentale dépend de la qualité du détecteur et de la chaîne électronique. Avant d'utiliser la barrière de surface, elle nécessite un étalonnage qui a été fait avec une tri-source de ²⁴⁴Cm, de ²⁴¹Am et de ²³⁹Pu dont les caractéristiques sont indiquées dans le tableau 6.1.

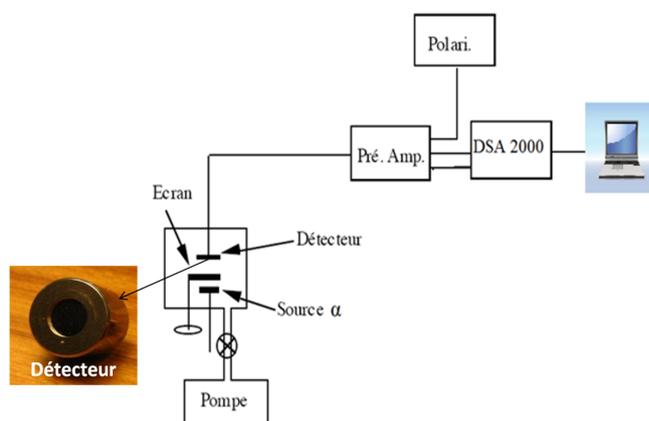


Fig. 6.2: Montage expérimental pour l'étalonnage du détecteur au silicium.

Radio-isotope	Période (années)	Energie alpha (MeV)	Intensité d'émission
²³⁹ Pu	2,41.10 ⁴	5,142	15%
		5,155	73%
²⁴¹ Am	433	5,442	12,5%
		5,484	85,2%
²⁴⁴ Cm	17,8	5,763	23,6%
		5,806	76,4%

Tab. 6.1: Caractéristiques de la tri-source.

Le dispositif expérimental utilisé pour l'étalonnage est décrit sur la figure 6.2. En effet, la source émettrice de particules alpha et la barrière de surface sont dans une enceinte où règne un vide secondaire ; lorsqu'on enlève l'écran entre la source et le détecteur, les particules alpha sont enregistrées par le détecteur qui envoie un signal pré-amplifié puis amplifié sur un PC. Ces signaux sont traités par le logiciel Genie 2000¹ et on obtient le spectre d'étalonnage de la (figure 6.3).

1. Genie 2000 : logiciel de traitement de spectres gamma fourni par la société Canberra.

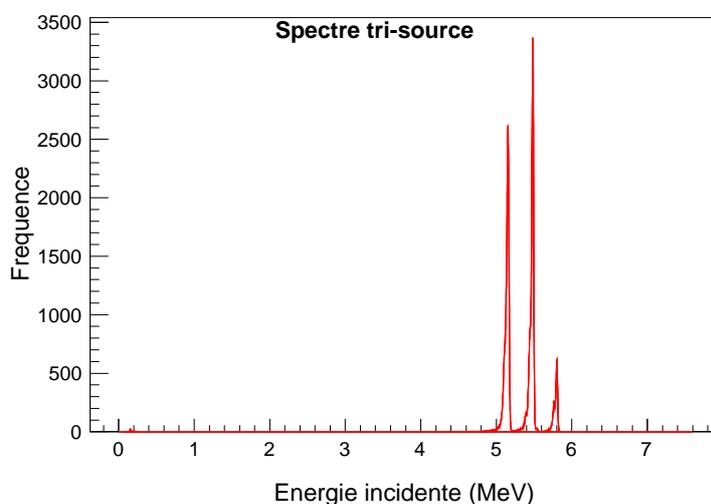


Fig. 6.3: Spectre obtenu au cours de l'étalonnage du détecteur au silicium.

6.1.2 Etalonnage des DSTN par des protons

Des DSTN de type PN3 et Neutrak ont été irradiés par des protons produits par l'accélérateur Van de Graaf 4MV de l'InESS².

6.1.2.1 Présentation de l'accélérateur Van de Graaf de Strasbourg

L'accélérateur 4 MV du type Van de Graaf est constitué de trois lignes de faisceau dont deux lignes continues pour les analyses et l'implantation haute énergie, ainsi qu'une ligne pulsée plus adaptée à certaines études. Ces caractéristiques techniques³ sont :

- source : HF ;
- tension d'accélération : 1 à 4 MV ;
- faisceaux disponibles : tous les ions sous forme gazeuse (H, D, ³He, ⁴He, C, N, O, Ne, Ar, Kr, Xe ...)
- courant : quelques dizaines de μA ;
- taille du faisceau : de l'ordre du mm ;
- balayage : électrostatique et piège à éléments neutres sur une surface de $2\text{ cm} \times 2\text{ cm}$;
- porte-échantillon : thermostaté, support refroidi (eau ou azote liquide) ou chauffé jusqu'à 700°C ;
- faisceau pulsé : 17 kHz, 1 ns.

2. InESS : Institut d'Électronique du Solide et des Systèmes.

3. source : <http://www-iness.c-strasbourg.fr/Accelerateur-4-MV>.

La figure 6.4 illustre l'accélérateur sur lequel nos expériences ont été faites.

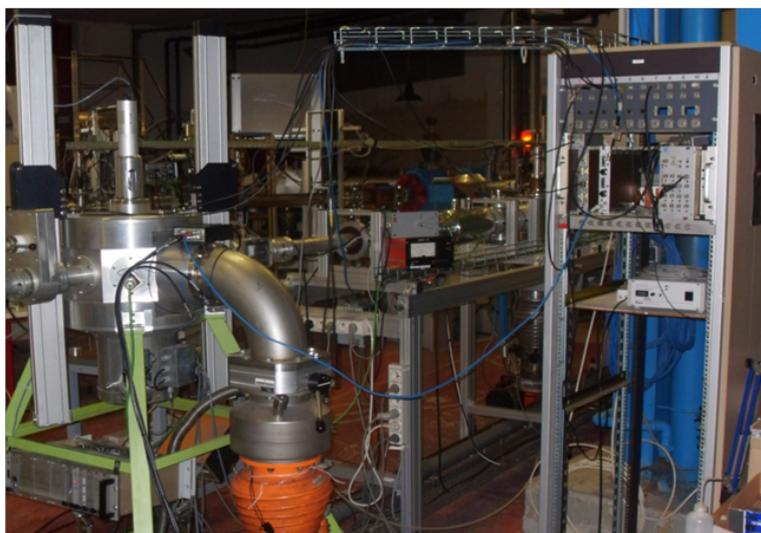


Fig. 6.4: Accélérateur 4 MV.

6.1.2.2 Expériences réalisées sur l'accélérateur Van de Graaf

Un faisceau intense de protons ($1,875 \cdot 10^{11}$ particules/s) produit par l'accélérateur Van de Graaf est diffusé par une cible de nickel afin d'éviter la saturation des DSTN. Les feuilles de Nickel les plus minces à notre disposition avaient des épaisseurs de $0,13 \mu\text{m}$ et $0,5 \mu\text{m}$. Une barrière de surface a été utilisée dans toutes ces expériences afin d'enregistrer le spectre en énergie des protons incidents. Ci-dessous (figure 6.5) sont exposés les conditions expérimentales et les schémas synoptiques de l'irradiation :

- intensité du faisceau issu de l'accélérateur varie entre 1 et 30 nA ;
- le temps d'irradiation des détecteurs varie de 15 à 30s pour éviter la saturation des DSTN ;
- la pression dans l'enceinte de la gamelle, $P = 10^{-5}$ mbar ;
- l'ouverture de la barrière de surface $S = 0,80 \text{ cm}^2$;
- résolution des barrières de surface utilisées : 20 et 37 keV pour une énergie $E = 3 \text{ MeV}$ respectivement pour la cible de $0,13 \mu\text{m}$ et $0,5 \mu\text{m}$.

1. Spectre simulé et expérimental obtenu par la barrière de surface.

Avant les expériences d'irradiation nous avons utilisé le logiciel de

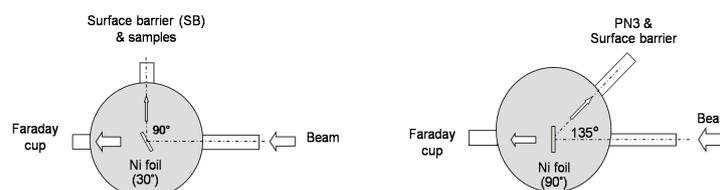


Fig. 6.5: Schémas de montages expérimentaux avec des cibles de nickel de $0,13 \mu\text{m}$ à gauche et $0,5 \mu\text{m}$ à droite.

rétrodiffusion Rutherford SIMNRA⁴ pour des simulations en vue de nous faire une idée de la réponse des détecteurs de silicium. Les réponses spectrales obtenues (après expériences) ont été parfaitement reproduites par le logiciel de simulation SIMNRA comme on peut le constater sur la figure 6.6. La simulation de la réponse de la barrière de surface avec MCNPX (figure 6.7) a donné un résultat non satisfaisant du fait du nombre limité de protons générés par la carte NPS ($2^{31}-1$ particules) et en dépit des techniques de réduction de variance appliquées. Nous avons néanmoins obtenu un spectre qui a la forme d'un peigne de Dirac (figure 6.8) avec des incertitudes de l'ordre de 70%.

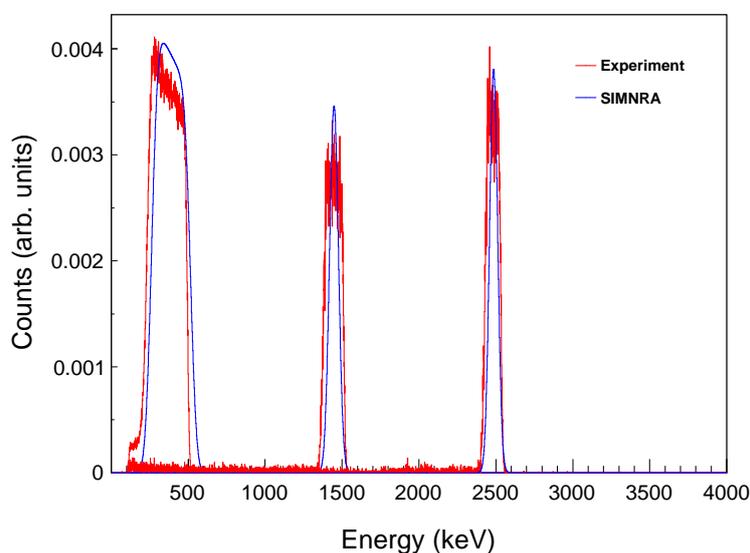


Fig. 6.6: Spectre simulé et expérimental de retrodiffusion de protons sur la cible de $0,5 \mu\text{m}$ de Nickel.

4. SIMNRA : Program for the simulation of backscattering spectra for ion beam analysis with MeV ions.

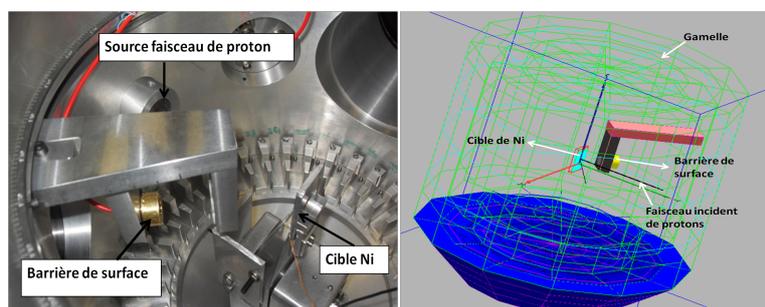


Fig. 6.7: A gauche la gamelle et à droite la même gamelle simulée par MCNPX.

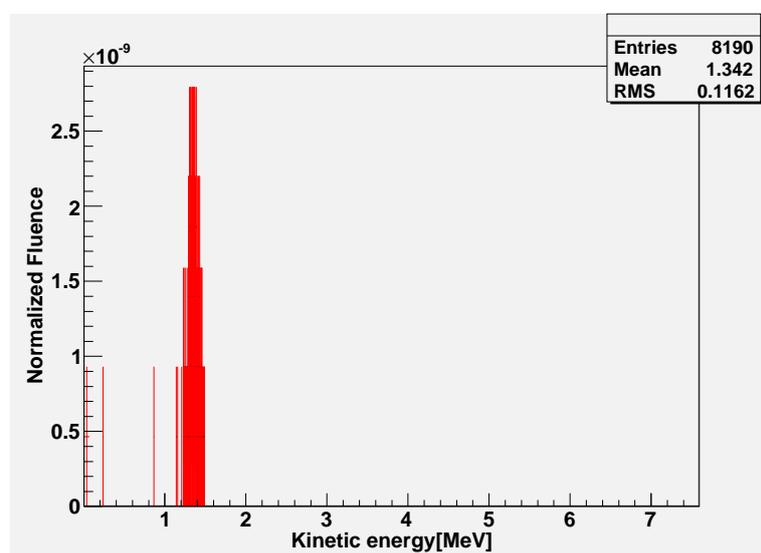


Fig. 6.8: Spectre de la réponse de la barrière de surface simulé par MCNPX.

2. Résultats de l'étalonnage des DSTN avec les protons.

Les DSTN irradiés par des particules de protons ont été traités dans une solution de soude de normalité 6,25 N à 70°C pendant 7h et 9h. Le traitement d'image identique à celui décrit plus haut à la section 5.1.2.2 nous a permis d'établir la courbe d'étalonnage du diamètre des traces en fonction de l'énergie incidente des protons. Les résultats de l'étalonnage et les équations correspondantes à l'ajustement de ces courbes (D est en μm et l'énergie en MeV) sont présentés sur les figures 6.9 et 6.10.

Dans la littérature ([Sad97], [Xia09]) les courbes d'étalonnage énergie-diamètre donnent des résultats légèrement différents dû à la nature des DSTN et aux conditions de traitement chimique ;

cependant on peut tirer les conclusions communes suivantes de cette même littérature à savoir que :

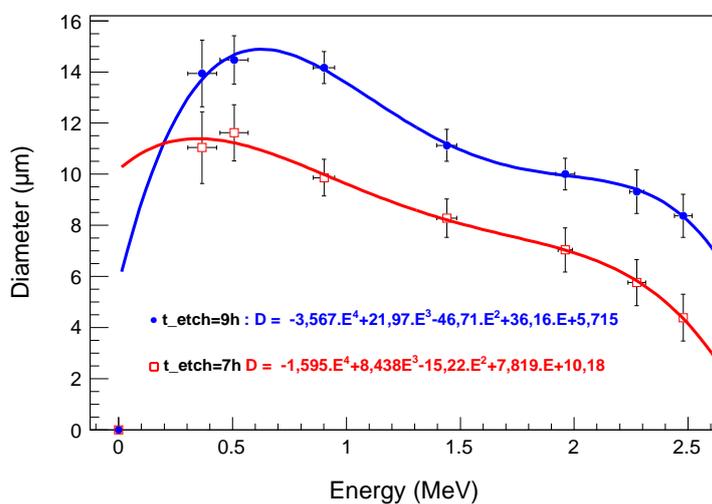


Fig. 6.9: Courbe d'étalonnage des PN3 irradiés aux protons.

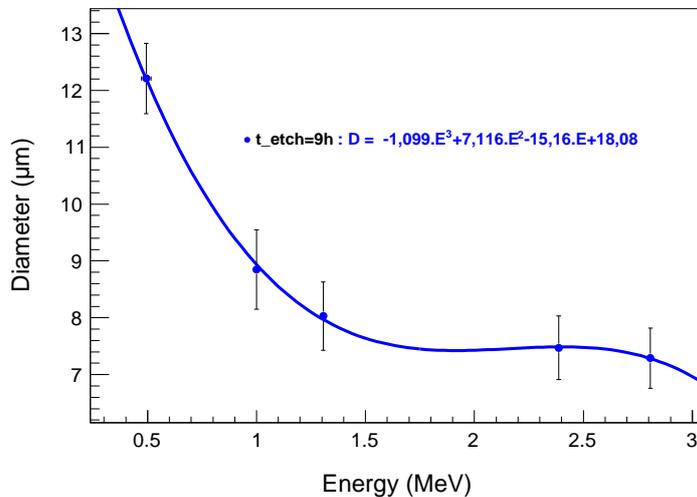


Fig. 6.10: Courbe d'étalonnage des neutrons irradiés par des protons et traités chimiquement pendant 9h.

- pour une énergie inférieure à 500 keV, l'effet de dispersion importante entraîne des barres d'erreurs grandes ;
- au delà de 500 keV, le diamètre des traces décroît lorsque l'énergie croît ;

- les courbes d'étalonnage épousent les contours de la forme de la courbe de Bethe et bloch avec un pic autour de 500 keV environ.

6.2 *Étalonnage des DSTN par des particules alpha*

Dans cette section nous allons décrire le processus d'étalonnage des PN3 et LR115 en vue de la dosimétrie neutron ; cet étalonnage en diamètre est fonction de l'énergie incidente des particules α issues de la source de ^{241}Am .

6.2.1 *Descriptif du dispositif expérimental pour l'étalonnage*

Le dispositif expérimental est composé de trois parties : la gamelle, le système électronique, une turbo pompe.

1. **La gamelle.**

L'intérieur de la gamelle a été modifié pour fixer la source alpha et la barrière de surface. Une fois que le spectre en énergie des particules alpha est enregistré, la surface active de la barrière de surface est obstruée par un bouchon en plastique sur lequel on fixe les DSTN pour l'irradiation. Le rôle du "cache" ou écran est de stopper les α une fois l'irradiation terminée afin de retirer le DSTN pour éviter sa saturation. Des feuilles de nickel et d'aluminium d'épaisseurs différentes servant à la dégradation de l'énergie des particules alpha (5,5 MeV) ont été fixées sur le support de la source de ^{241}Am conçue pour les besoins de l'expérience.

2. **Le système électronique.**

Il est composé d'un pré-amplificateur, d'un amplificateur logés dans un châssis NIM, d'un oscilloscope, d'un analyseur numérique DSA 2000 couplé au logiciel de spectrométrie Genie 2000.

3. **Turbo pompe.**

La turbo pompe est utilisée pour réaliser un vide secondaire de l'ordre de $5 \cdot 10^{-1}$ mbar dans la gamelle. Pour contrôler ce vide, une jauge de Pirani et un système de micro-fuite ont été montés entre la pompe et la gamelle. Ce système de micro-fuite qui, au départ a été conçu pour dégrader l'énergie de la source de ^{241}Am , s'est avéré inadapté, c'est pourquoi nous avons utilisé des feuilles de nickel et d'aluminium pour faire varier l'énergie initiale incidente de 5,5 MeV à 0,4 MeV. La figure 6.11 illustre ce dispositif expérimental.

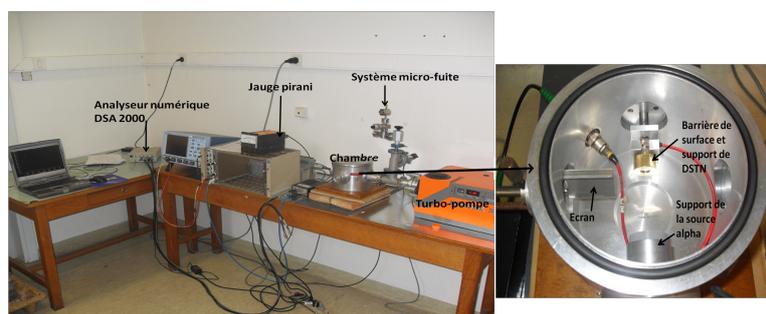


Fig. 6.11: A gauche, une vue d'ensemble du dispositif expérimental pour l'étalonnage des DSTN aux particules alpha. A droite, une vue de l'intérieur de la gamelle modifiée pour notre expérience.

6.2.2 Processus et résultats de l'étalonnage

L'étalonnage s'est déroulé en trois étapes :

- la première étape a consisté à dégrader progressivement l'énergie de 5,5 MeV émise par la source de ^{241}Am en combinant des feuilles d'aluminium et de nickel de différentes épaisseurs afin d'obtenir les valeurs désirées. A chaque énergie, le spectre a été enregistré par la barrière de surface puis un PN3 et un LR115 sont irradiés à cette même énergie. L'ensemble des opérations a été effectué manuellement et avec minutie.
- les PN3 et LR115 ont ensuite subi des traitements chimiques afin de révéler les traces latentes. Les conditions de développement des PN3 sont : $T=70^\circ\text{C}$, $t=7$ et 9h , $C=6,25\text{N}$. Quant au LR115, ils ont été développés dans une solution de soude de normalité 2,5 N, à 60°C pour une durée de 75 min ;
- les images des traces laissées par les particules alpha ont été lues par un microscope optique et traitées par ImageJ (mesure de diamètres).

La figure 6.12 présente quelques spectres en diamètre de particules alpha en incidence normale sur les PN3 obtenus après les trois étapes citées ci-dessus. Grâce aux différents spectres (figure 6.13) en énergie enregistrés par la barrière de surface, on a établi les courbes d'étalonnage énergie-diamètre pour les PN3 et LR115 (figures 6.14 et 6.15). Tous les spectres ont été ajustés par des gaussiennes afin de déterminer les valeurs moyennes des diamètres et les incertitudes associées.

Nous pouvons tirer des conclusions similaires à celles de l'étalonnage des DSTN aux protons de la section 6.1.2.2 ; ces conclusions sont en

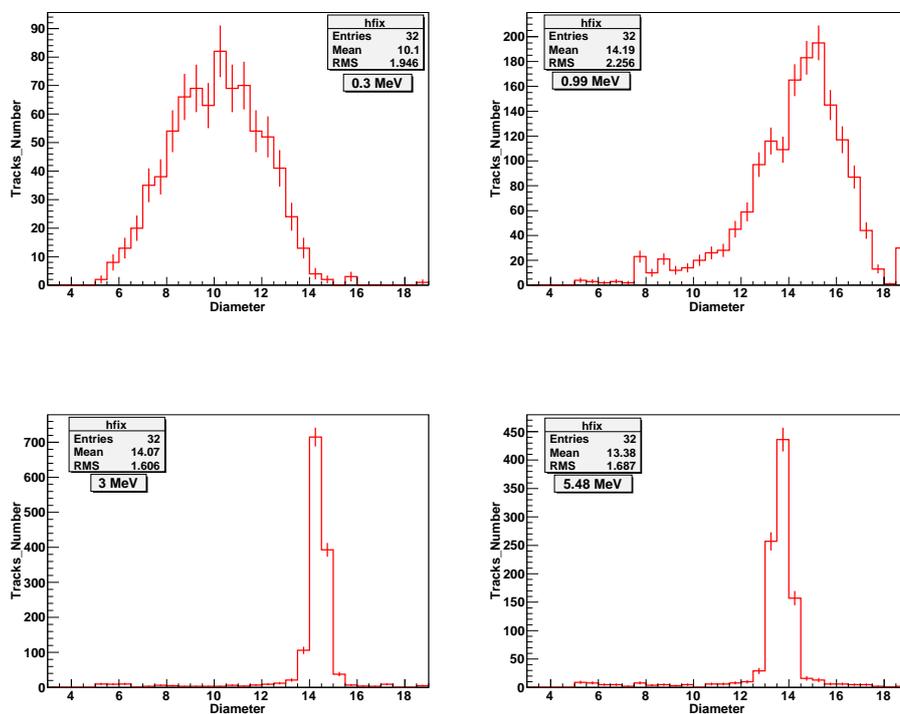


Fig. 6.12: Spectre en diamètre de particules alpha pour un temps de décaage de 7h.

bon accord avec les références [Fro91], [Bar95], [Kha99]. Pour le LR115, nous avons rencontré des difficultés pour mesurer les diamètres, ce qui expliquerait les grandes barres d'erreurs.

6.2.3 Conclusion

Bien que nous soyons conscients des difficultés à surmonter pour la mise en œuvre de la spectrométrie en énergie, nous en avons posé les bases. On pourrait dans un premier temps essayer de reconstruire un spectre en énergie de neutron thermique, puis de neutron rapide à partir des courbes d'étalonnage en diamètre. Si cette étape s'avérait concluante, on pourrait envisager de reconstruire un spectre complet en énergie et remonter à la dose.

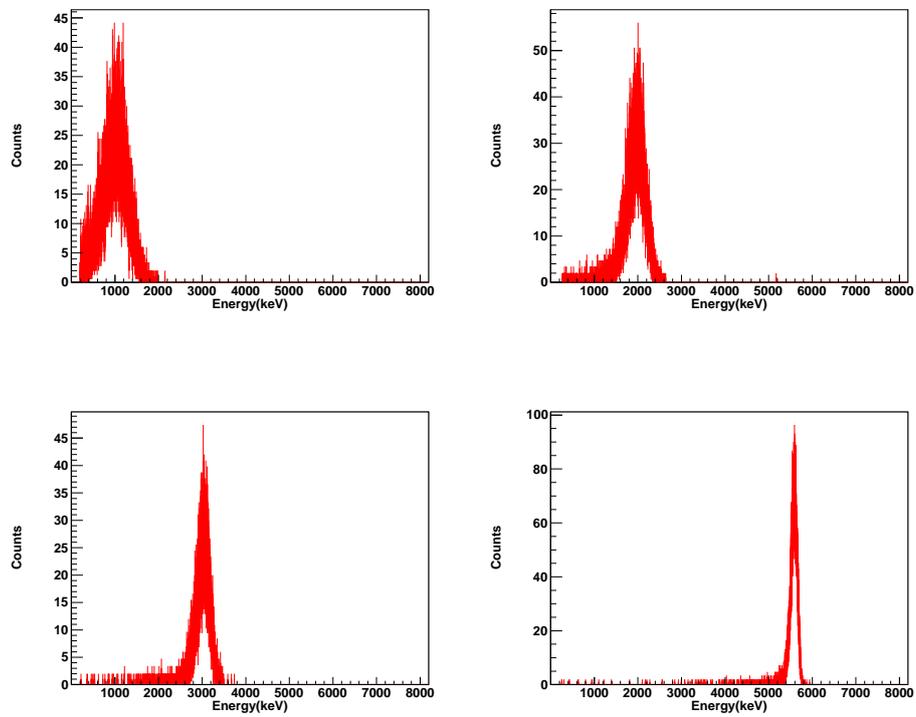


Fig. 6.13: Spectre en énergie de particules alpha lors de l'étalonnage des PN3.

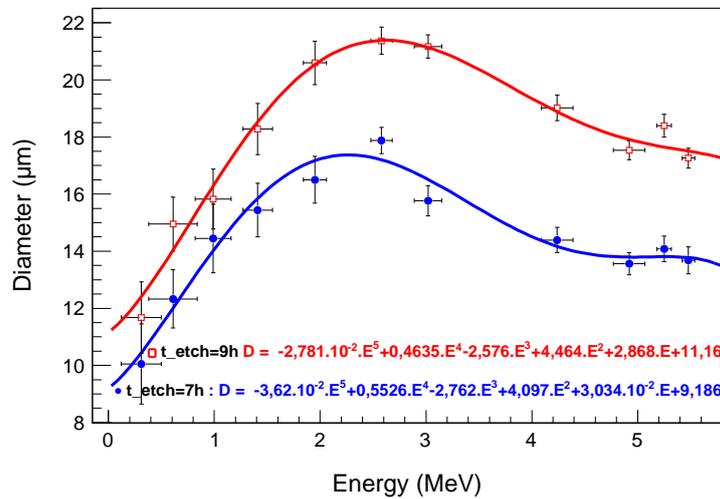


Fig. 6.14: Courbe d'étalonnage de PN3 irradiés avec des particules alpha.

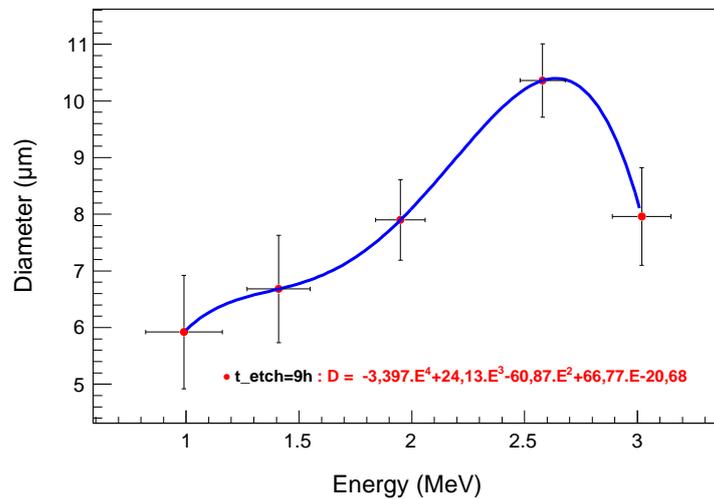


Fig. 6.15: Courbe d'étalonnage de LR115 irradiés avec des particules alpha.

CONCLUSION GÉNÉRALE

Ce travail a consisté à la caractérisation des fonctions de réponse des DSTN en vue de leurs applications pour des mesures environnementales, notamment en dosimétrie radon et neutron. Pour cela nous avons dans les quatre derniers chapitres réalisé une série d'étalonnage.

La première expérience qui a porté sur la dosimétrie radon, avait pour objectif d'évaluer l'activité du radon à Bamako. Disposant de dosimètre basé sur les DSTN de type CR-39, nous avons réalisé leur étalonnage sur les installations de l'IPHC. Ces mesures ont été corroborées par celles des méthodes Monte Carlo. Nous avons ainsi obtenu comme facteur d'étalonnage expérimentale $k_{exp} = 0,119$ et simulé $k_{sim} = 0,126 \text{ tr.cm}^{-2}.\text{j}^{-1}.\text{Bq}^{-1}.\text{m}^3$. Appliqués aux mesures environnementales à Bamako, ces mesures ont été comparées à d'autres études en Afrique et tous les résultats obtenus étaient en deçà des normes recommandées par la ICRP.

D'autres mesures environnementales, notamment l'activité massique des échantillons de sols de quatre régions, ont été analysée par spectrométrie gamma et par dosimétrie alpha par contact autoradiographique. Les résultats ont montré une activité massique variant de $\sim 19,9 \text{ Bq.kg}^{-1}$ à 132 Bq.kg^{-1} . Ces deux méthodes sont aussi en bon accord.

Les études menées sur un prototype de dosimètre neutron caractérisé avec des neutrons thermiques sur des installations de référence, puis testé sur les installations de l'IPHC, accompagné de simulations MCNPX, nous a permis de tirer les conclusions suivantes :

- parmi les DSTN (LR115, PN3) étudiés, seuls les PN3 peuvent être utiles, car ils couvrent un spectre énergétique plus large que les LR115 ;
- le convertisseur BE10 compte tenu de sa grande sensibilité est recommandé pour des faibles équivalents de dose ($< 1\text{mSv}$) tandis que le BN1 l'est pour les équivalents de dose supérieurs à 1 mSv ;
- la fonction de réponse de la combinaison PN3+BN1 est linéaire et sa valeur est de $2728 \pm 174 \text{ tr.cm}^{-2}\text{mSv}^{-1}$.

La dernière expérience a lieu à l'accélérateur Van de Graaf de l'INESS où des DSTN (PN3, Neutrak) ont été irradiés avec des protons d'éner-

gie variant de 0,5 à 2,5 MeV. A la suite de cette expérience, nous avons aménagé un dispositif expérimental afin d'irradier les DSTN (PN3, LR115) avec des particules alpha. Ces deux expériences ont abouti à l'établissement de relation énergie incidente-diamètre des traces en perspective de la spectrométrie neutron en énergie.

En guise de perspective, la mise en œuvre complète de la dosimétrie neutron sera opérationnelle après des études complémentaires afin de rendre le dosimètre portatif.

Pour la spectrométrie neutron par DSTN, les résultats obtenus montrent qu'il reste un travail colossal à faire.

ANNEXE

A. EFFICACITÉ

Seule une fraction des particules émises par une source arrive sur un détecteur en fonction de l'angle solide et, parmi celles-ci toutes n'interagissent pas dans son volume utile. Pour connaître le nombre de particules émises par la source il est nécessaire de connaître l'efficacité absolue et intrinsèque du dit détecteur. L'efficacité de détection traduit donc la capacité d'un dispositif à détecter un rayonnement donné, sa valeur est comprise entre zéro et un.

Efficacité absolue

Elle est donnée par la relation :

$$\varepsilon_{abs} = \frac{\text{Nombre de particules détectées}}{\text{Nombre de particules émis par une source}} = \frac{N_{par}^{dét}}{N_{par}^{émi}}$$

Efficacité intrinsèque

L'efficacité intrinsèque ε_{int} se traduit par la relation :

$$\varepsilon_{int} = \frac{\text{Nombre de particules détectées}}{\text{Nombre de particules arrivant sur le détecteur}} = \frac{N_{par}^{dét}}{N_{par}^{inc}}$$

L'efficacité absolue est reliée à l'efficacité intrinsèque par la formule :

$$\varepsilon_{abs} = \frac{\Omega}{4\pi} \cdot \varepsilon_{int}$$

où Ω est l'angle solide défini par la surface du détecteur vu de la source (figure A.1).

$$\Omega = 2\pi \left(1 - \frac{1}{\sqrt{a^2 + d^2}} \right)$$

Si $d \gg a \Rightarrow \Omega = \frac{\pi a^2}{d^2}$

$\frac{\Omega}{4\pi}$ est appelé efficacité géométrique.

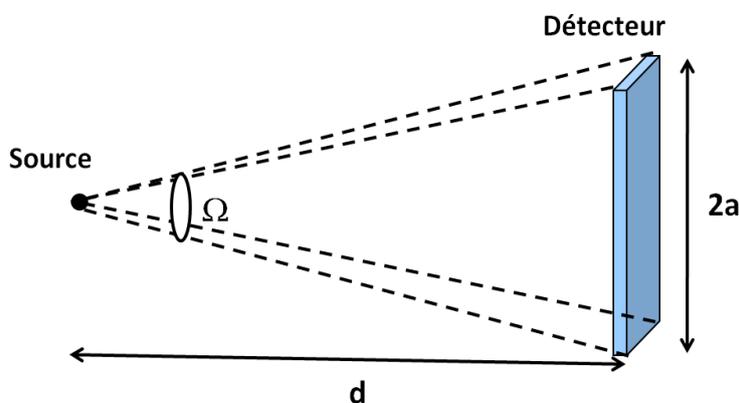


Fig. A.1: Angle solide.

Efficacité de conversion

Il traduit la probabilité qu'a une particule incidente interagissant avec un convertisseur (PE, bore 10) de créer des particules secondaires.

$$\varepsilon_{con} = \frac{\text{Nombre de particules créées dans le convertisseur}}{\text{Nombre de particules interagissant avec le détecteur}} = \frac{N_{par}^{cré}}{N_{par}^{in}} = 1 - \exp(-n\sigma x)$$

où

n = nombre d'atomes par unité de volume (at/cm^3);

σ = section efficace en cm^{-2} ;

x = épaisseur du convertisseur en cm .

Pour un matériel donné :

$$n\sigma = \left(\frac{\rho_{mat} N_A}{A_{mat}} \right) \sum_{elt}^N n_{elt} \sigma_{elt}$$

avec

ρ_{mat} la densité du matériel en g/cm^3 ;

N_A le nombre d'Avogadro = $6,02 \cdot 10^{23} \text{ mol}^{-1}$.

Efficacité du polyéthylène

Polyéthylène : $(CH_2)_n$;

densité : 0,93;

sections efficaces du carbone et de l'hydrogène tirées de la base de données ENDF/B-VII.0 pour des neutrons incidents de 5 MeV : $\sigma_H =$

$1,62 \cdot 10^{-24}$ et $\sigma_C = 1,12 \cdot 10^{-24}$;
épaisseur du PE = $6 \cdot 10^{-3}$.
Le coefficient de conversion $\varepsilon_{con}(5MeV) = 10^{-3}$.

Efficacité du PN3

PN3 : $C_{12}H_{18}O_7$;
densité : 1,32 ;
sections efficaces de l'oxygène $\sigma_O = 0,92 \cdot 10^{-24}$.
Les données non mentionnées ont les mêmes valeurs que celles du PE.
Le coefficient de conversion $\varepsilon_{con}(5MeV) = 0,85 \cdot 10^{-3}$.

Efficacité du convertisseur BE10

BE10 : 99% de ^{10}B et 1% de ^{11}B ;
densité : 2,34 ;
sections efficaces pour des neutrons incidents de $2,5 \cdot 10^{-8}$ MeV ; $\sigma_{^{10}B} = 3846 \cdot 10^{-24}$ et $\sigma_{^{11}B} = 5 \cdot 10^{-24}$;
épaisseur du BE10 = $4 \cdot 10^{-3}$.
Le coefficient de conversion $\varepsilon_{con}(2,5 \cdot 10^{-8}) = 0,88$.

BIBLIOGRAPHIE

- [Ade12] A.K. Ademola., R.I. Obed. Gamma radioactivity levels and their corresponding external exposure of soil samples from tantalite mining areas in Oke-Ogun, South-Western Nigeria. *Radioprotection* 47, n°2 (2012).
- [AEA03] AEA technology.X3 Capsule assembly. Certificate number USA/0631/S-96, Revision 3.40 North Ave, Burlington, MA 01803 (2003).
- [AFNOR00] AFNOR. ISO 8529-3 : Rayonnements neutroniques de référence (partie 3). Technical report, AFNOR mars (2000).
- [AFNOR01] AFNOR. ISO 8529-1 : Rayonnements neutroniques de référence (partie 1). Technical report, AFNOR février (2001).
- [AFNOR05] AFNOR. ISO 21909. Dosimètres individuels passifs pour les neutrons -Exigences de fonctionnement et d'essai. Technical report, AFNOR décembre (2005).
- [Agos09] S. Agosteo., M. Caresana., M. Ferrarini and M. Silari. A passive rem counter based on CR-39 SSNTD coupled with a boron converter. *Radiation Measurements* 44 (2009) 985-987.
- [AIEA94] AIEA. Le radon dans l'environnement humain : en faire l'inventaire. *Bulletin*, 2/(1994).
- [All09] A. Allaoua. Etude et développement de détecteurs dédiés aux mesures de référence de champs neutroniques mono-énergétiques. Université de Strasbourg, (2009).
- [Amg12] Amgarou. K et al. Characterization of the neutron field from the ^{241}Am -Be isotopic source of the IPHC irradiator, *Radiation Measurements* (2012), <http://dx.doi.org/10.1016/j.radmeas.2012.11.015> .
- [And91] Andreo P. Monte Carlo techniques in medical radiation physics. *Phys. Med. Biol.* 36(7) :861-920, (1991).
- [And92] Andam, A.A.B. Indoor and soil radon measurements in a tropical climate. *Nuclear Tracks and Radiation Measurements* 20, 371-375 (1992).

- [Azm11] Al-Azmi, D., Al-Abel, T., Alnasari, M.S., Borham. E.E., Chekir, Z., Khalifa, M.S., Shweikani, R. Coordinated indoor radon surveys in some Arab countries. *Radioprotection* 47, n°2 (2011).
- [Bad09] J.N. Badel. Contrôle dosimétrique des traitements de radiothérapie par simulation Monte Carlo de l'image de dose portale transmise. Institut National des Sciences Appliquées de Lyon., Algerie, (2009).
- [Bal00] P.A. Balo., R.C. Martin., J.B. Knaeur. Production, distribution and applications of californium-252 neutron source. *Applied Radiation and Isotopes*, 53 :785-792 (2000).
- [Bar85] D.T. Bartlett., J.D. Steel., AERE R 11926, CENDOS Report 1985-02, UKAEA-Harwell. (1985).
- [Bar95] R. Barillon., M. Fromm., A. Chambaudet. Variation of the critical registration angle of alpha particles in CR39 : implication for radon dosimetry. *Radiat. Meas.* 25, 631-634(1995).
- [Bay06] H. Baysson., M. Tirmarche., K. Leuraud., D. Laurier. Indoor radon and lung cancer in France, *Epidemiology*. 17, 121-125 (2006).
- [Bed09] R. Bedogni., G. Gualdrini., A. Esposito., R. Mishra., S. Tripathy. Design and test of an albedo personal neutron dosimeter based on PADC detectors. *Radiation Measurements* 44, 972-976 (2009).
- [Bel04] A. Belafrites. Développement et mise au point des méthodes de microanalyses nucléaires applications aux mesures environnementales. Université ferhat abbas-setif ufas., Algerie, (2004).
- [Ben07] M. Benmosbah. Spectrométrie des neutrons : étude de la réponse d'un ensemble de compteurs proportionnels. Thèse de Doctorat, Université de Franche-Comté, (2007).
- [Beo91] Beozzo, M., Bonazzi, E., Calligola, P., Degli Esposti, L., Folesani, M., Rassine, J.F., Giacomelli, G., Lembo, L., Maltoni, O., Massera, F., Nicoli, F., Pal, B., Patrizii, L., Poli, B., Predieri, F., Spagnoli, M., Serra, P., Sini, G.P., Spurio, M., Togo V. Measurement of indoor radon levels in the Bologna metropolitan area. *Nuclear Tracks and Radiation Measurements*, 19, 297-298 (1991).
- [Bet33] H.A. Bethe and Stosstheorie., *Handbuch der Physik*, 24(1933) 49.

-
- [Bie11] J.P.Biersack, J.F.Ziegler., Code SRIM-(2011).
<http://www.srim.org/SRIM/SRIM2011.htm>.
- [Bla99] D. Blanc., Précis de physique nucléaire. Deuxième édition
Dunod. (1999).
- [Bra60] Bramblett R.L., Ewing R.L., Bonner T.W. A new type of
neutron spectrometer. Nucl. Instr. Meth. 9, 1-12,(1960)
- [Car78] B.G. Cartwright., E.K. Shirk., P.B. Price. Nucl. Instrum. Me-
thods 153 (1978) 457.
- [Cat07] O. Catelinois., A. Rogel., D. Laurier., S. Billon., D.Hemon., P.
Verger et M. Tirmarche. Evaluation de l'impact sanitaire de
l'exposition domestique au radon en France. Bulletin épidé-
miologique hebdomadaire. Numéro thématique - Impact sa-
nitaire du radon domestique : de la connaissance à l'action,
15 mai (2007) / n°18-19, p 155-158.
- [Com01] Compendium of Neutron Spectra and Detector Responses
for Radiation Protection Purposes. Technical reports series
No.403. AIEA, Vienna 2001.
- [Dar05] S. Darby., D. Hill., A. Auvinen et al. Radon in homes and risk
of lung cancer collaborative analysis of individual data from
13 European case-control studies, British Medical Journal,
230 (2005).
- [Fle65] R.L. Fleischer., P.B. Price., R.M. Walker., Annu. Rev. Nucl.
Sci. 15 (1965) 1.
- [Fma09] F. Martinetti. Estimation des doses dues aux neutrons se-
condaires reçues par les patients en protonthérapie : cas des
traitements ophtalmologiques. Université Paris XI., France,
(2009).
- [Fro91] M. Fromm., F. Membrey., A. Chambaudet., R. Saouli. Proton
and alpha track profiles in CR-39 during etching and their
implications on track etching models. Nucl. Tracks. Radiat
Meas. 19, 163-168 (1991).
- [Gre05] V. Gressier., Rapport IRSN. Les installations de l'IRSN dé-
diées à la métrologie des neutrons. (2005).
- [Gua11] C. Guardiola., K. Amgarou., F. Garcia., C. Fleta., D. Quirion
and M. Lozano. Geant4 and MCNPX simulations of thermal
neutron detection with planar silicon detectors. Published
by iop publishing for sissa. (2011).
- [Hig07] Higeret, S. Développement d'un dosimètre électronique
compact à base de capteurs CMOS pour la mesure du Ra-
don, Université de Strasbourg, décembre (2007).

-
- [ICRP74] ICRP publication 74 (1997). Conversion coefficients for use in radiological protection against external radiation. Ann. ICRP, vol. 26/3.
- [ICRP07] ICRP publication 103 : Recommendations of the ICRP. Technical Report Annals of the ICRP Volume 37 (2-4), ICRP, International Commission on Radiological Protection, Elsevier. (2007).
- [ICRP09] ICRP Ref 00/902/09 ICRP Statement on Radon, Approved by the Commission in November (2009).
- [ICRP96] ICRP publication 74 : Conversion coefficients for use in radiological protection against external radiation. Technical Report Annals of the ICRP. Volume 26 (3/4), ICRP Oxford. Pergamon Press. (1996).
- [ISO08] ISO 18589-2 : Mesurage de la radioactivité dans l'environnement. (2008-03).
- [Jim07] C. Jimonet et H. Métivier. Personne compétente en radioprotection. EDP Sciences (2007).
- [Joj94] Jojo, P.J., Khan, A.J., Tyagi, R.K., Ramachandran, T.V., SubraRamu, M.C., Rajendra Prasad. Interlaboratory calibration of track-etch detectors for the measurement of radon and radon daughter levels. Radiation Measurements 23, 715-724 (1994).
- [Kha99] A.H. Khayrat., S.A. Durrani. Variation of alpha-particle track diameter in CR-39 as a function of residual energy and etching conditions. Radiat. Meas. 30, 15-18 (1999).
- [Kle29] O. Klein and Y. Nishima., Z. Phys. 52, 853 (1929).
- [Kno00] G.F. Knoll., Radiation Detection and Measurement. Third edition. John Wiley and Sons. (2000).
- [Kur35] Kurtchatov et al., Zh. Eksp. Teo. Fiz. N°5 659, (1935).
- [Lus01] M. Luszik-Bhadra., M. Matzke., H. Schuhmacher. Development of personal neutron dosimeters at the PTB and first measurements in the space station MIR. Radiation Measurements 33 (2001) 305-312.
- [Mac87] L. Macovicka. Thèse de doctorat sciences physiques, Université de Limoges, (1987).
- [Net78] F. Netter. Physique des neutrons et interaction rayonnements-matière. Techniques de l'Ingénieur, B3, 010 (1978).

-
- [Nga08] M. Ngachin., M. Garavaglia., C. Giovani., M.G. Kwato Njock., A. Nourreddine. Radioactivity level and soil radon measurement of a volcanic area in Cameroun. *Journal of environmental radioactivity*. 99, 1056-1060 (2008).
- [Obe12] Obed, R.I., Ademola, A.K and Ogundare, F.O. Radon measurements by nuclear track detectors in dwellings in Oke-Ogun area, south-western, Nigeria. *Radiation Protection Dosimetry* 148, 475-481 (2012).
- [Oda87] K. Oda., H. Miyake., M. Michijima. CR39-BN Detector for Thermal Neutron Dosimetry. *Journal of Nuclear Science and Technology* 24 :2, 129-134 (1987).
- [Ouf05] Oufni, I., Misdaq, M.A., Amrane, M. Radon level and radon effective dose rate determination in Moroccan dwellings using SSNTDs. *Radiation Measurements* 40, 118-123 (2005).
- [Pap98] A.Pape., J.C.Adloff., A.Haessler., A.Hoernel., A.Nourreddine., D.Oster., D. Weidmann. Quantitative alpha-particle detection in a homogeneous medium with LR115. *Nucl. Instr. Meth.* 143, 55 (1998).
- [Reu03] P. Reuss. Précis de neutronique. EDP Sciences (2003).
- [Sad97] M. Sadowski., A. Szydłowski., M. Jaskola., T. Czyzewski. Comparison of responses of CR-39, PM-355 and CN track detectors to energetic hydrogen, helium, nitrogen and oxygen ions., *Radiat. Meas.* 28, 207-210 (1997).
- [Sar10] F. Sarradin and F. Boudet., *Dosirad lab* (2010). url : <http://dosirad.pagespro-orange.fr/soc f.htm>.
- [Sie65] K.Siegbahn. Alpha, Beta and gamma-ray spectroscopy. North Holland Publishing Company.(1965).
- [Sil59] E.C.H. Silk., R.S. Barnes., *Philos. Mag.* 4, 970 (1959).
- [Tro10] M. Trocme., Private communication (2010).
- [UNSCEAR00] Sources and Effects of Ionizing Radiation vol.1. United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation. Report to the General Assembly, with Scientific Annexes. New-York, United Nations Publication (2000).
- [UNSCEAR09] United Nation Scientific Committee on the Effect of Atomic Radiation, Sources and Effects on Ionizing Radiation. United Nations, New York.
- [Val89] L. Valentin. Noyaux et particules. Deuxième et troisième cycles, Hermann edition (1989).

-
- [Van11] M. Vanstalle. Dosimétrie électronique et métrologie neutrons par capteur CMOS à pixels actifs. Thèse de doctorat. Université de Strasbourg. (2011).
- [Wri08] Wrixon, A. D. New ICRP recommendations. *J. Radiol. Prot.* 28, 161-168 (2008).
- [Xia09] D. Xiaojiao., L. Xiaofei., T. Zhixin., H. Yongsheng., G. Shilun., Y. Dawei., W. Naiyan. Calibration of CR-39 with monoenergetic protons., *Nucl. Instr. and Meth. A* 609, 190-193(2009).
- [You58] D.A. Young., *Nature* 182, 375 (1958).