

REPUBLIQUE ALGERIENNE DEMOCRATIQUE ET POPULAIRE
MINISTÈRE DE L'ENSEIGNEMENT SUPERIEUR & DE LA RECHERCHE SCIENTIFIQUE
UNIVERSITE MOHAMED SEDDIK BENYAHIA DE JIJEL
FACULTÉ DES SCIENCES EXACTES ET INFORMATIQUE
DEPARTEMENT DE PHYSIQUE



THÈSE

Présentée pour l'obtention du diplôme de

DOCTORAT EN SCIENCES

Spécialité : Physique

Option : Physique Nucléaire

Par

Dalil BOUMALA

Thème

**Couplage de méthodes de simulation Monte-Carlo avec la
spectrométrie gamma à bas bruit de fond : Application aux
mesures des basses activités environnementales**

Soutenue le : 30 / 06 / 2018

Devant le jury :

Président	Noureddine BRIHI	Prof.	Univ. Jijel
Rapporteur	Abdelfettah BELAFRITES	Prof.	Univ. Jijel
Co-rapporteur	Jean-Emmanuel GROETZ	MC/HDR.	Univ. B.F.C Besançon
Examineurs	Ahmed BOUCENNA	Prof.	Univ. Sétif 1
	Mohammad El-Amine BENAMAR	Prof.	Univ. Blida 1
	Nabil OUNOUGH	MCA	Univ. Jijel

Table des matières

Remerciements	1
Introduction	2
1 Concepts fondamentaux de la radioactivité	5
1.1 La radioactivité et ses sources	5
1.1.1 Radioactivité naturelle	7
1.1.2 Radioactivité artificielle	9
1.1.3 Ordres de grandeurs de la radioactivité environnementale	10
1.2 Cinétique radioactive et notion d'équilibre séculaire	11
1.2.1 Cas d'un seul corps radioactif	11
1.2.2 Filiation à deux corps radioactifs	11
1.2.3 Filiation à n corps	13
1.3 Familles radioactives naturelles	14
1.3.1 Famille de l'uranium-238	14
1.3.2 Famille de l'uranium-235	16
1.3.3 Famille du thorium-232	16
1.4 De l'exposition aux rayonnements à la dosimétrie	17
1.4.1 Données nécessaires pour l'évaluation dosimétrique	17
1.4.2 Exposition des populations	18
1.4.3 Dosimétrie des rayonnements ionisants	19
1.4.4 Limites de dose	23
1.5 Mesure de la radioactivité	24
1.6 Problèmes posés par la mesure de radioactivité	26
1.6.1 Problème de géométries	26
1.6.2 Pertes de comptage dues au détecteur	27
1.6.3 Auto-absorption	27
1.6.4 Effet de cascade	27
2 Spectrométrie gamma et modélisation par méthode Monte-Carlo	28
2.1 Spectrométrie gamma	28
2.1.1 Principe physique	28
2.1.2 Interactions photon-matière	29
2.1.3 Atténuation des photons gamma dans la matière	34
2.1.4 Types de détecteurs gamma	36

2.1.5	Electronique d'acquisition	43
2.1.6	Analyse des échantillons par spectrométrie gamma	44
2.1.7	Cas particulier : spectrométrie γ à bas bruit de fond	47
2.2	Modélisation par méthode Monte-Carlo	49
2.2.1	Généralités	49
2.2.2	Principe des méthodes Monte-Carlo pour la simulation du transport des particules dans la matière	50
2.2.3	Incertitudes statistiques	53
2.2.4	Fiabilité d'une simulation	53
2.2.5	Le code MCNP6	53
2.2.6	Structure du fichier d'entrée	54
3	Etude par simulation des problématiques liées aux effets de matrice et de pic-somme	59
3.1	Modélisation du dispositif expérimental	59
3.2	Étalonnage du dispositif de mesure	61
3.2.1	Le standard IAEA-447	61
3.2.2	Étalonnage en énergie	64
3.2.3	Spectre expérimental de l'IAEA-447	64
3.2.4	Étalonnage en efficacité	65
3.2.5	Étalonnage de la largeur à mi-hauteur des pics	69
3.2.6	Validation du modèle avec la courbe d'efficacité expérimentale	70
3.3	Effet d'auto-absorption	75
3.3.1	Mise en évidence des phénomènes par simulation numérique	75
3.3.2	Corrections de l'auto-absorption	81
3.4	Effet de pic-somme	87
3.4.1	Mise en évidence expérimentale de l'effet de pic-somme	87
3.4.2	Paramètres influençant la coïncidence	88
3.4.3	Corrections des effets de coïncidence	92
4	Métrologie de la radioactivité : Application aux mesures environnementales	98
4.1	Choix des matériaux à mesurer	98
4.1.1	Gisements de ressources minérales	98
4.1.2	Généralités sur les phosphates et la production des engrais	100
4.1.3	Traitement des minerais et fabrication des engrais	102
4.1.4	Le phosphore dans le système sol-plante	108
4.1.5	Matériaux de construction	109
4.2	Procédure expérimentale	112
4.2.1	Préparation et conditionnement des échantillons	112
4.2.2	Mesures spectrométriques	113
4.2.3	L'activité minimale détectable	114
4.3	Résultats et discussions	114
4.3.1	Concentrations d'activité des radionucléides ^{226}Ra , ^{232}Th et ^{40}K	114
4.4	Évaluation des effets radiologiques	120
4.4.1	Débit de dose absorbée et dose efficace annuelle	121

TABLE DES MATIÈRES

iii

4.4.2	Excès de risque de cancer au cours d'une durée de vie	122
4.4.3	Radium équivalent	122
4.4.4	Indices de risque externes et internes	122
4.4.5	Indice gamma	123
4.4.6	Doses de rayonnement γ et paramètres radiologiques	123
Conclusion		131
Références		133

Table des figures

1.1	Répartition des noyaux stables et radioactifs en fonction de Z et de N [Boumala 2007]	6
1.2	Familles radioactives naturelles de U-238, U-235 et Th-232 [Tedjani 2016]	15
1.3	Synoptique du processus de détection et de mesure de la radioactivité [Lyoussi 2010]	25
2.1	Spectre gamma type [Lyoussi 2008]	29
2.2	Effet Photoélectrique	30
2.3	Effet Compton	31
2.4	Création de paire	32
2.5	Probabilités de réalisation des effets photoélectrique, Compton et de production de paires dans les tissus biologiques en fonction de l'énergie.	34
2.6	Schéma des bandes d'énergie pour un conducteur, un semi-conducteur et un isolant.	37
2.7	Fonctionnement d'un détecteur à jonction P-N	38
2.8	Notion élémentaire d'angle solide de détection	39
2.9	Distribution gaussienne du pic [Tavernier 2010]	40
2.10	Forme schématique des différentes géométries des cristaux de germanium [Degrelle 2017]	42
2.11	Electronique d'acquisition	43
2.12	Différentes géométries de conditionnement utilisées en spectrométrie gamma [Dziri 2013]	46
2.13	Structure du fichier d'entrée MCNP.	55
3.1	De gauche à droite : Visualisation des facteurs propres au détecteur plannaire BEGe ; Modélisation du détecteur sous code de calcul MCNP6	60
3.2	Droite d'étalonnage en énergie donnée par le logiciel Génie 2000	65
3.3	Spectre expérimental du standard de référence IAEA-447	66
3.4	Emissions gamma des radionucléides des familles naturelles	67
3.5	Courbe d'étalonnage en efficacité expérimentale du standard IAEA-447	69
3.6	Comparaison spectre expérimental et simulé avec une matrice équivalente sol	71
3.7	Comparaison spectre expérimental et simulé avec une matrice équivalente Tourbe	72

3.8	Comparaison spectre expérimental et simulé avec une matrice équivalente sédiment	72
3.9	Courbe d'étalonnage calculée du standard IAEA-447	73
3.10	Comparaison des efficacités expérimentales et simulées pour une géométrie SG50 en contact.	74
3.11	Variation du taux de comptage en fonction de la densité	77
3.12	Variation du taux de comptage en fonction de la composition chimique	79
3.13	Atténuation de la fluence selon la loi de Beer-Lambert [Degrelle 2017].	82
3.14	Dispositifs pour la méthode de transmission [Degrelle 2017].	83
3.15	Schéma de décroissance du Co-60	88
3.16	Vérification expérimentale de l'effet de pic-somme sur le spectre du Co-60	89
3.17	Dispositif de variation de la distance source-détecteur	89
3.18	Effet de la distance source-détecteur sur les PS	90
4.1	Principe de fabrication des engrais superphosphatés	105
4.2	Principe de fabrication des engrais NPK, procédé nitrique	107
4.3	Comparaison des concentrations d'activités Ra-226, Th-232 et K-40 dans les échantillons d'engrais phosphatés	116
4.4	Comparaison des concentrations d'activités Ra-226, Th-232 et K-40 dans les échantillons de matériaux de construction	120
4.5	Concentration relative des radionucléides Ra-226, Th-232 et K-40 à AED dans les engrais phosphatés	125
4.6	Variation des valeurs de ELCR pour l'ensemble des échantillons phosphatés	125
4.7	Concentration relative des radionucléides Ra-226, Th-232 et K-40 à Raeq dans les engrais phosphatés	127
4.8	Variation des valeurs de AED pour l'ensemble des matériaux de construction	129
4.9	Variation des valeurs de ELCR pour l'ensemble des matériaux de construction	129

Liste des tableaux

1.1	Les radionucléides primordiaux, classés par périodes croissantes [Chelet 2006]	8
1.2	Radionucléides cosmogéniques dans l’atmosphère [Chelet 2006]	8
1.3	Activité naturelle en Bq/kg de quelques produits courants [Le Petit 2012]	10
1.4	Activité spécifique exprimée en mBq/kg de quelques produits de la chaîne alimentaire	10
1.5	Facteurs de pondération WR pour différents types de rayonnements [Delacroix 2006]	22
1.6	Facteurs de pondération WT pour différents tissus ou organes [Delacroix 2006]	23
1.7	Valeurs limites des doses efficaces pour certaines catégories d’individus pour 12 mois consécutifs	24
1.8	Valeurs limites des doses équivalentes pour certains organes et tissus pour 12 mois consécutifs	24
2.1	Résolution (en keV) d’un détecteur germanium dans les trois configurations possibles [Courtine 2007]	42
2.2	Critères de fiabilité d’une simulation	53
2.3	Différents types d’estimateurs utilisés par MCNP	57
3.1	Activités du standard IAEA-447 à la date de référence	62
3.2	Activités du standard IAEA-447, au jour de l’acquisition estimées par le logiciel Darwin	63
3.3	Facteur correctifs d’interférences pour certains radionucléides	68
3.4	Comparaison des efficacités expérimentales et simulées par MCNPX pour le standard IAEA-447	74
3.5	Compositions chimiques élémentaires en pourcentage massique des types de sols utilisés pour la simulation	78
3.6	Source multi-gamma avec les activités correspondantes à chaque émetteur	79
3.7	Variation du taux de comptage en fonction de l’énergie des photons et la densité du milieu atténuateur	80
3.8	Liste des éléments sélectionnés, ainsi que leur coefficient d’atténuation massique à 59,54 keV [Berger 2016]	85
3.9	Résultats simulés du nombre de photons détectés en fonction de l’épaisseur et du coefficient d’atténuation massique de l’élément traversé.	85

3.10	Coefficients d'atténuation linéaires et massiques mesurés pour le standard IAEA-447	87
3.11	Corrections de coïncidences calculées par MCNP6 et ETNA à appliquer à l'efficacité expérimentale.	95
3.12	Résultats de la méthode de transfert. L'efficacité pour la géométrie d'étude est comparée à l'efficacité expérimentale réalisée avec le standard IAEA-447.	96
3.13	Efficacités expérimentales et simulées par MCNP6 et les facteurs de correction de pic-somme pour le standard IAEA-447 pour trois positions ; au contact, à 4 cm et à 7 cm	97
3.14	Comparaison des efficacités expérimentales et simulées par MCNPX et les facteurs de correction de PS pour le standard IAEA-447 en contact, à 4 cm et à 7 cm	97
4.1	Provenance des échantillons phosphatés analysés	113
4.2	Provenance des échantillons de matériaux de construction analysés	113
4.3	Concentration d'activités de Ra-226, Th-232 et K-40 dans échantillons phosphatés	115
4.4	Concentrations d'activité moyennes du Ra-226, Th-232 et K-40 dans les minéraux phosphatés de différents pays listés pour comparaison avec la présente étude	117
4.5	Concentrations d'activité moyennes du Ra-226, Th-232 et K-40 dans les engrais phosphatés de différents pays listés pour comparaison avec la présente étude	118
4.6	Concentrations d'activité de Ra-226, Th-232 et K-40 dans les produits de matériaux de construction	119
4.7	Dose de rayonnement gamma et paramètres radiologiques des échantillons phosphatés mesurés	124
4.8	Comparaison des concentrations d'activité du Ra-226, Th-232 et K-40 dans des minéraux phosphatés de différents pays du monde	127
4.9	Dose de rayonnement gamma et paramètres radiologiques des échantillons de matériaux de construction	128

Remerciements

Les travaux de recherche de cette thèse ont été réalisés au Laboratoire Chrono-Environnement (UMR, CNRS 6249) de l'Université de Bourgogne Franche-Comté dans le cadre du Programme National Exceptionnel (P.N.E).

Pour commencer, je souhaite remercier mon directeur de thèse M. Abdelfettah BELAFRITES, Professeur à l'Université de Jijel pour m'avoir encadré et dirigé sans relâche tout au long de ces longues années de thèse. Encore un grand merci pour ses précieux conseils et compétences scientifiques dont j'ai bénéficié tout au long de la réalisation de cette thèse, ainsi pour clarifier et synthétiser mes pensées. Un remerciement tout particulier pour ses qualités humaines, et qu'il trouve ici ma profonde reconnaissance.

Je tiens à exprimer ma plus profonde gratitude et mes remerciements les plus respectueux à mon co-directeur de thèse M. Jean-Emmanuel GROETZ H.D.R à l'Université de Bourgogne Franche-Comté pour m'avoir chaleureusement accueilli dans son équipe et pour la confiance qu'il m'a accordée dès mon premier jour dans son laboratoire. Ses conseils m'ont été d'une grande utilité pour mener à bien cette étude, qu'il mérite également toute ma reconnaissance pour son apport à mon travail.

Je tiens également à exprimer ma reconnaissance envers M. Noureddine BRIHI, Professeur à l'Université de Jijel pour l'honneur qu'il m'a fait en acceptant de présider le Jury de cette thèse.

Je remercie vivement M. Ahmed BOUCENNA, Professeur à l'université de Sétif 1, qui m'a fait l'honneur encore une fois d'accepter de faire partie du membre de jury et d'examiner ce travail.

Je témoigne ma respectueuse gratitude à M. Mohammad El-Amine BENAMAR, Professeur à l'université de Blida 1, pour avoir accepté de juger ce travail.

Je tiens également à remercier chaleureusement M. Nabil OUNOUGH, Maître de conférences à l'Université de Jijel pour avoir accepté d'examiner ce travail.

Tous ceux qui ont participé de près ou de loin à l'achèvement de ce projet de thèse. En particulier M. Mavon Christophe pour son aide et sa disponibilité à la réalisation des mesures et des analyses.

De manière générale, je remercie l'ensemble des personnes du laboratoire de physique des rayonnements et applications de l'université de Jijel ainsi que l'équipe du laboratoire Chrono-Environnement qui m'ont particulièrement aidé tout au long de ce parcours de thèse.

Introduction générale

L'exposition permanente des êtres humains aux rayonnements ionisants à partir des différentes sources naturelles est incontournable de la vie sur Terre. Les principaux contributeurs à cette exposition naturelle sont les rayons cosmiques de haute énergie et les radionucléides provenant de l'écorce terrestre (K, U et Th) qui sont présents dans l'environnement. La population mondiale est également exposée aux rayonnements résultant des rejets dans l'environnement de matières radioactives provenant de sources artificielles et de l'utilisation des combustibles ou des matières contenant naturellement des radionucléides.

Au cours du vingtième siècle, l'homme a produit de manière significative des radionucléides artificiels. Cet accroissement est principalement lié aux différentes applications des rayonnements dans des domaines aussi variés que l'industrie, le médical, l'énergie, la recherche, le militaire, etc. Au niveau mondiale, la contribution moyenne de l'exposition humaine aux sources artificielles est un ordre de grandeur inférieur à celle liée à la radioactivité naturelle. Cependant, à l'échelle régionale, les débit de doses artificielles peuvent être élevés.

Actuellement, la baisse des niveaux tolérables de radioactivité artificielle dans l'environnement nécessite une amélioration constante des moyens d'analyses. L'évolution de l'instrumentation nucléaire et la dosimétrie passe par la mise en œuvre de technologies modernes développées dans des domaines de recherche plus fondamentale. Cette activité englobe les mesures et les analyses de la radioactivité naturelle et artificielle par des méthodes de spectrométrie et les expertises radiologiques sur site. Pour élargir la gamme de mesure aux faibles radioactivités, il est très important d'améliorer la sensibilité de détection des moyens de mesure. Dans ce cadre, il faut disposer de systèmes de détection à bas bruit de fond permettront d'atteindre de meilleures sensibilités de l'ordre de quelques mBq.kg^{-1} .

Les travaux de recherche de cette thèse s'inscrivent dans le cadre des mesures fines de la radioactivité environnementale par spectrométrie gamma à bas bruit de fond. Il s'agit de caractériser les fonctions de réponse de la chaîne de détection opérationnelle au niveau du laboratoire Chrono-Environnement et d'étudier les effets de coïncidences vraies dans le cas d'émetteurs multi-gamma ainsi que les effets de matrice. Ces travaux se sont réalisés en trois étapes. La première porte sur l'étude expérimentale et la modélisation Monte-Carlo du phénomène de pic-somme. La deuxième étape traite les effets de la densité et de la charge effective des échantillons sur l'auto-absorption des photons à basse énergie. Enfin, la dernière étape concerne les applications de ces corrections pour finaliser les calculs de doses et de paramètres radiologiques pour certains échantillons de phosphates bruts et leur produits dérivés, et de matériaux de

construction.

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

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

Le manuscrit est scindé en quatre chapitres. Le premier chapitre rappelle brièvement les notions de la radioactivité et les définitions usuelles utilisées en métrologie des rayonnements ionisants et aux mesures environnementales, à savoir les grandeurs dosimétriques et opérationnelles. Le deuxième chapitre est consacré à la description de la spectrométrie gamma, des interactions photon-matière et de la modélisation par méthode Monte-Carlo. Les codes Monte-Carlo deviennent un outil essentiel en physique de l'interaction rayonnement-matière tant dans le domaine de l'instrumentation nucléaire que dans celui de la radioprotection et de la physique médicale. La possibilité d'inclure une grande partie des processus physiques sous forme de modèles numériques de plus en plus sophistiqués les rendent à la fois plus précis, fiables et prédictifs. L'accent est mis plus particulièrement sur la réalisation de calculs numériques de type Monte-Carlo à l'aide du code MCNP6.

Le chapitre trois traite la problématique liée aux effets de matrice et de pic-somme dans le standard IAEA-447 par la méthode Monte-Carlo. Il concerne l'étude et l'évaluation expérimentale et simulée des pic-somme et d'auto-absorption dont le but d'affiner l'étalonnage expérimental du spectromètre utilisé, dénommé BEGe (Broad

energy Germanium).

Enfin, le dernier chapitre de cette thèse est consacré à la métrologie de la radioactivité appliquée aux basses activités environnementales et à la dosimétrie. En plus des expositions aux radiations (médicale, cosmique,...), la population est exposée aux différents types de matériaux qui constituent une source non négligeable. Ces mesures concernent la quantification de l'activité des échantillons de quelques matériaux mesurés en laboratoire afin d'évaluer l'impact dosimétrique ou radiologique associés à leurs utilisation.

Chapitre 1

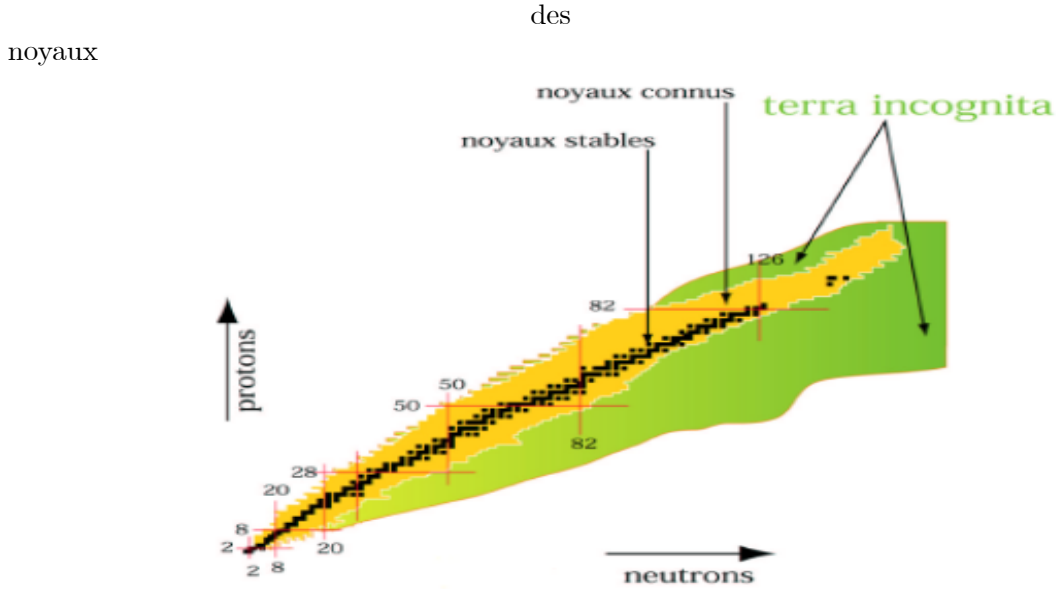
Concepts fondamentaux de la radioactivité

1.1 La radioactivité et ses sources

En 1896, Henri Becquerel découvrit que l'uranium et ses composés émettent continuellement un rayonnement. Pierre et Marie Curie poursuivant les travaux commencés par Becquerel ont donné à ce phénomène le nom de radioactivité. On appelle radioactivité le processus entraînant une transformation du noyau atomique au cours de laquelle un rayonnement nucléaire (particule ou onde électromagnétique) est émis ; une telle transformation nucléaire est appelée "désintégration radioactive". Elle est indépendante des composants chimiques et des conditions extérieures telles que la pression et la température [Chelet 2006]. L'activité d'un matériau radioactif est le nombre de désintégrations par seconde, exprimée en Becquerel (Bq), 1 Bq correspond à une désintégration par seconde. Elle se calcule à partir du nombre de noyaux radioactifs et de la période du radionucléide. La période radioactive est le temps nécessaire pour que le nombre de noyaux initiaux N soit divisé par deux.

Actuellement, on en connaît un peu plus de 3000 nucléides (figure 1.1). Parmi ces noyaux, 256 existent à l'état naturel, les autres étant produits artificiellement [Jimonet 2007]. La grande majorité des nucléides couramment observés dans la nature sont stables dans le sens qu'ils ont une durée de vie infinie. Ils forment ce qu'on appelle "ligne de stabilité" du plan (Z, N) . Cette ligne se confond avec la ligne $Z = N$ pour les noyaux les plus légers, puis s'en écarte progressivement au fur et à mesure que le nombre de nucléons augmente ($N = 1,5 Z$ pour le ^{209}Bi par exemple). Les nucléides situés de part et d'autre de cette ligne ont des durées de vie, allant de quelque 10^{15} ans à quelque millisecondes, d'autant plus courtes qu'ils en sont plus éloignés. Ceux que l'on dit "loin de la vallée de stabilité" ont des durées de vie inférieures à quelques

minutes ; on qualifie d'exotiques ceux situés aux frontières de nos connaissances.



1.pdf

FIG. 1.1 – Répartition des noyaux stables et radioactifs en fonction de Z et de N [Boumala 2007]

Tous les autres sont des noyaux radioactifs qui subissent des désintégrations spontanées aboutissant à des émissions de particules et/ou de rayonnements ionisants. On distingue principalement quatre modes de désintégrations radioactives :

- Désintégration alpha : ${}^A_Z X \rightarrow {}^{A-4}_{Z-2} Y + {}^4_2 He$.
- Désintégration bêta moins : ${}^A_Z X \rightarrow {}^A_{Z+1} Y + e^- + \bar{\nu}_e$.
- Désintégration bêta plus : ${}^A_Z X \rightarrow {}^A_{Z-1} Y + e^+ + \nu_e$.
- Capture électronique : ${}^A_Z X + e^- \rightarrow {}^A_{Z-1} Y + \nu_e$.

où ν_e et $\bar{\nu}_e$ sont respectivement un neutrino et un antineutrino électronique permettant de justifier la conservation de l'énergie et du nombre leptonique avant et après la désintégration.

L'émission qui n'est pas présentée dans la charte des radionucléides (1.1) est l'émission des photons gamma (désexcitation gamma). Pour cause, ce n'est pas à proprement parler une désintégration radioactive car il n'y a aucun changement pour le noyau au niveau de sa composition nucléonique. Comme tous les systèmes quantiques l'ensemble des nucléons qui constitue le noyau ${}^A_Z X$ peut se trouver dans un état excité, noté ${}^A_Z X^*$. L'état ${}^A_Z X^*$ présente une énergie d'excitation E^* par rapport à l'état fondamental ${}^A_Z X$. La seule énergie mise en jeu ici étant l'énergie de masse, l'état excité a donc une masse

plus grande que l'état fondamental, défini comme l'état de plus faible masse. On a donc :

$$m \left({}^A_Z X^* \right) c^2 = m \left({}^A_Z X \right) c^2 + E^* \quad (1.1)$$

Si l'énergie de liaison est plus faible dans l'état excité, sa désexcitation vers l'état fondamental va être énergétiquement favorable. Elle se fait par émission d'un photon γ qui emporte l'excès d'énergie suivant le processus : ${}^A_Z X^* \rightarrow {}^A_Z X + \gamma$. L'énergie du photon γ est donnée par :

$$E_\gamma = \left[m \left({}^A_Z X^* \right) - m \left({}^A_Z X \right) \right] c^2 \quad (1.2)$$

L'énergie d'émission des rayonnements γ issus de la radioactivité est généralement comprise entre 20 keV et 3 MeV. Le spectre en énergie d'émission des rayonnements gamma est un spectre de raies.

1.1.1 Radioactivité naturelle

La radioactivité naturelle fait partie intégrante de la vie et a toujours existé partout dans l'univers depuis son origine. Cette radioactivité naturelle provient depuis le centre de la Terre, la croûte terrestre, l'atmosphère dans laquelle nous vivons et l'univers qui nous entoure. On distingue principalement deux grands groupes de radionucléides naturels :

- des radionucléides dits **primordiaux**, qui étaient présents au moment de la formation de la Terre et que l'on trouve aujourd'hui encore dans la croûte terrestre, certes en moindre quantité qu'à l'origine. Les radionucléides primordiaux répertoriés sont au nombre d'une trentaine, leurs périodes étant toutes supérieures à 700 millions d'années. Ce sont les premiers termes des trois séries radioactives naturelles (uranium-238, uranium-235, thorium-232), qui aboutissent toutes à des isotopes stables du plomb ($Z = 82$). Il existe encore un certain nombre d'isotopes radioactifs naturels ne donnant pas de chaîne de désintégration. Les principaux sont portés dans le tableau 1.1, le plus abondant est le ${}^{40}\text{K}$. Ce tableau présente des radionucléides primordiaux parmi les plus abondants (potassium-40, uranium-238, uranium-235, thorium-232).

- des radionucléides d'origine cosmique dits **cosmogéniques**, qui se forment par l'action des rayons cosmiques sur des noyaux d'atomes présents dans notre environnement ; ils sont parfois appelés radionucléides naturels induits. Les rayons cosmiques formés essentiellement de protons de haute énergie (83 à 89 %), de particules α (10 à 15 %), des noyaux légers (2 %) provenant du soleil et des galaxies, constituant

Nucléide	Composition isotopique	Période radioactive	Mode de désintégration
Uranium-235	0,72 %	$7,038 \cdot 10^8$ ans	α
Potassium-40	0,0117 %	$1,277 \cdot 10^9$ ans	β^- (89,3%), β^+ (89,3%)
Uranium-238	99,27 %	$4,468 \cdot 10^9$ ans	α
Thorium-232	100 %	$1,405 \cdot 10^{10}$ ans	α
Platine-190	0,01 %	$6,50 \cdot 10^{11}$ ans	α
Tellure-123	0,908 %	$1 \cdot 10^{13}$ ans	CE
Gadolinium-152	0,2 %	$1,08 \cdot 10^{14}$ ans	α
Indium-115	95,7 %	$4,41 \cdot 10^{14}$ ans	β^-
Cadmium-113	12,22 %	$7,7 \cdot 10^{15}$ ans	β^-
Plomb-204	1,4 %	$1,4 \cdot 10^{17}$ ans	α
Chrome-50	4,345 %	$1,8 \cdot 10^{18}$ ans	CE-CE

TAB. 1.1 – Les radionucléides primordiaux, classés par périodes croissantes [Chelet 2006]

Nucléide	Activité mondiale en TBq	Période radioactive	Mode de désintégration
Carbone-14	12750000	5570 ans	β^-
Tritium	1275000	12,33 ans	β^-
Béryllium-7	413000	53,12 jours	CE
Soufre-35	7100	87,32 jours	β^-
Chlore-36	5600	$3,01 \cdot 10^5$ ans	β^-
Phosphore-32	4100	14,26 ans	β^-
Aluminium-26	710	$7,17 \cdot 10^5$ ans	CE

TAB. 1.2 – Radionucléides cosmogéniques dans l'atmosphère [Chelet 2006]

le rayonnement cosmique primaire [Gambini 1992]. Les interactions du rayonnement cosmique avec les noyaux présents dans les hautes couches de l'atmosphère (au-dessus de 15 km environ) produisent des isotopes radioactifs et de particules secondaires qui, à leur tour, peuvent créer des espèces radioactives. Le tableau 1.2 donne la liste des principaux radionucléides produits par les rayons cosmiques. Les plus importants sont le ^3H ($T = 12,33$ ans) et le ^{14}C ($T = 5570$ ans), produits par réactions sur le carbone et l'azote de l'atmosphère. Outre l'exposition externe due au rayonnement cosmique, les particules cosmogéniques produites lors des interactions dans l'atmosphère peuvent être ingérer ou inhaler et donner lieu à une faible exposition interne pour l'homme.

Généralement, le niveau de la radioactivité naturelle a été presque constant au cours des siècles passés, cependant, il existe des augmentations de concentration de radioactivité naturelle, que l'on appelle radioactivité naturelle renforcée [Paradis 2016]. Certains phénomènes naturels conduisent à des augmentations de concentration de

radioactivité naturelle dans les matériaux appelés NORM (Naturally Occuring Radioactive Materials). L'activité humaine a également conduit à des concentrations élevées de radioactivité naturelle, c'est ce que l'on nomme les TENORM (Technologically Enhanced Naturally Occuring Radioactive Materials).

1.1.2 Radioactivité artificielle

Depuis la découverte de la radioactivité artificielle par Irène et Frédéric Joliot-Curie en 1934, l'homme a su exploiter l'énergie fabuleuse cachée au cœur de la matière. Elle est devenue depuis un sujet d'étude et de recherche important dont les applications sont de plus en plus présentes dans notre quotidien, allant de la production de l'électricité à l'industrie en passant par les applications médicales et militaires.

Les essais nucléaires atmosphériques qui se sont déroulés essentiellement de 1956 à 1963, ont libéré des produits de fission en majorité du ^{137}Cs , du ^{90}Sr et les radioisotopes $^{238,239}\text{Pu}$. Ces essais ont également conduit à des émissions de ^6C et de ^3H . Les retombées ont engendré une contamination chronique de l'environnement même après l'arrêt total des essais atmosphériques dans le monde. À leurs tours les installations nucléaires constituent une voie d'apport de radionucléides artificiels dans l'environnement par leurs rejets en fonctionnement normal ou par les incidents qui se sont produits. Généralement, ces installations suivant leurs domaines d'utilisations que se soit militaire ou civile comportent de multiples fonctions susceptibles de générer une exposition pour l'homme : la fabrication des armes nucléaires, l'extraction et le traitement du minerai, l'enrichissement de l'uranium, la conversion et la fabrication du combustible, les centrales nucléaires, le retraitement du combustible, le démantèlement des installations et finalement la gestion des déchets.

Dans l'industrie non nucléaire, des sources radioactives sont utilisées pour de nombreuses applications. Les domaines d'utilisation de traceurs sont nombreux et très variés : études de ventilation (débit, filtration ...), contrôles de mélanges (fluides, poudres, gaz ...), études hydrodynamiques, recherches de fuite, mesures des usures (moteurs, corrosion ...), l'irradiation industrielle (stérilisation des aliments et du matériel médical, production des produits radio-pharmaceutiques, durcissement de composants électroniques, . . .), l'analyse non destructive (radiographie industrielle), la mesure à l'aide de jauges d'épaisseur ou de niveau et l'utilisation de traceurs radioactifs [Basdevant 2002].

Dans les spécialités médicales, on utilise également des sources externes de rayonnements ionisants à des fins diagnostiques (radiographie conventionnelle, scanographie, radiologie interventionnelle), mais aussi des sources internes en médecine nucléaire (diagnostic par scintigraphie ou thérapie par radioisotope). Des doses très élevées sont

	^{238}U (Bq.kg $^{-1}$)	^{232}Th (Bq.kg $^{-1}$)	^{40}K (Bq.kg $^{-1}$)
Croûte terrestre	40	40	400
Sols	35	35	370
Granite	52	48	1100
Calcaire	15	5	90
Phosphate	11300	30	200
Phosphogypse	200	17	60
Zircon	4000	500	20
Monazite	10000	600000	10

TAB. 1.3 – Activité naturelle en Bq/kg de quelques produits courants [Le Petit 2012]

	^{40}K	^{226}Ra	^{210}Pb	^{210}Po	^{232}Th	^{228}Ra	^{228}Th	^{235}U
Produits laitiers	50000	5	40	60	0,3	5	0,3	0,05
Viandes	-	15	80	60	1	10	1	0,05
Poissons	-	100	1100	2000	-	-	-	-
Fruits et légumes	-	30	90	30	0,5	20	0,5	0,1
Céréales	-	80	200	100	3	60	3	1

TAB. 1.4 – Activité spécifique exprimée en mBq/kg de quelques produits de la chaîne alimentaire

délivrées lors de traitements par radiothérapie externe ou par curiethérapie [Foos 2012, Gambini 1992]. Des sources radioactives sont également utilisées dans des laboratoires pour des dosages biologiques (radio-immunologie) ainsi que pour la recherche.

1.1.3 Ordres de grandeurs de la radioactivité environnementale

La radioactivité est omniprésente dans notre environnement. Elle est principalement due à la présence des radionucléides des chaînes naturelles (^{238}U , ^{235}U et ^{232}Th) ainsi qu'au ^{40}K . La répartition de ces radionucléides est caractérisée par une grande variabilité. Leurs teneurs dans la plupart des matériaux sont faibles.

Les processus géochimiques peuvent cependant donner lieu à des phénomènes de concentration et certaines espèces minérales ou formations géologiques présentent des activités significativement plus élevées. Quelques ordres de grandeur sont donnés aux tableaux 1.3 et 1.4 pour illustrer cette variabilité pour quelques matériaux usuels et éléments de la chaîne alimentaires.

1.2 Cinétique radioactive et notion d'équilibre séculaire

1.2.1 Cas d'un seul corps radioactif

Le phénomène de radioactivité se caractérise par l'énergie et les rayonnements émis, ainsi que par un caractère aléatoire fait que le nombre de désintégrations par unité de temps suit une loi probabiliste. Soit λ_1 la probabilité pour qu'un noyau se désintègre par unité de temps, dénommé usuellement constante radioactive. Le nombre de désintégrations par unité de temps est obtenu en multipliant le nombre de noyaux radioactifs par la probabilité λ_1 , soit :

$$-\frac{dN_1}{dt} = \lambda_1 N_1 \quad (1.3)$$

A rappeler que λ_1 est liée à la période radioactive T_1 par la relation : $T_1 = \ln 2 / \lambda_1$. La résolution de l'équation (1.3) donne le nombre de noyaux radioactifs résiduels à l'instant t , soit :

$$N_1(t) = N_{1,0} \cdot e^{-\lambda_1 t} \quad (1.4)$$

où $N_{1,0}$ est le nombre de noyaux radioactifs initiaux.

L'activité de ces noyaux radioactifs est définie comme étant le nombre total de désintégrations par unité de temps, soit :

$$A_1(t) = \lambda_1 N_1(t) = A_{1,0} \cdot e^{-\lambda_1 t} \quad (1.5)$$

où $A_{1,0} = \lambda_1 N_{1,0}$. Notons dans ce cas que l'activité A_1 est égale au taux de décroissance : $A_1 = -dN_1/dt$.

1.2.2 Filiation à deux corps radioactifs

Très souvent un noyau radioactif (1) donne un descendant (2) lui même radioactif et donnant le noyau (3) stable. Soit λ_1 , λ_2 et λ_3 les constantes radioactives des noyaux (1), (2) et (3). Soit $N_1(t)$, $N_2(t)$ et $N_3(t)$ le nombre de noyaux (1), (2) et (3) au temps t . On supposera que $N_{1,0} = N_0$ et $N_{2,0} = N_{3,0} = 0$. Le système d'équations gérant l'évolution de cette chaîne est le suivant :

$$\frac{dN_1(t)}{dt} = -\lambda_1 N_1 \quad (1.6)$$

$$\frac{dN_2(t)}{dt} = \lambda_2 N_2 - \lambda_1 N_1 \quad (1.7)$$

$$\frac{dN_3(t)}{dt} = \lambda_2 N_2 \quad (1.8)$$

Dans l'équation 1.7, le terme positif vient du fait que le noyau (2) se forme à partir du noyau (1) et le terme négatif vient de la décomposition radioactive du noyau (2). Cependant, dans l'équation 1.8, il n'y a qu'un terme positif car (3) est formé à partir de (2) mais il est stable. L'équation 1.6 a pour solution, en tenant de la condition initiale $N_1(0) = N_0$:

$$N_1(t) = N_0 e^{-\lambda_1 t}$$

En utilisant cette solution que l'on reporte dans l'équation 1.7 et en utilisant la méthode générale de résolution des équations différentielles avec second membre, on trouve, en tenant compte de la condition initiale $N_2(0) = 0$:

$$N_2(t) = \frac{\lambda_1 N_{1,0}}{\lambda_2 - \lambda_1} \left(e^{-\lambda_1 t} - e^{-\lambda_2 t} \right) \quad (1.9)$$

L'activité du radionuclide (2) est par définition :

$$A_2 = \lambda_2 N_2$$

En terme d'activité, l'équation 1.9 s'écrit :

$$A_2(t) = \frac{\lambda_2 \lambda_1 N_{1,0}}{\lambda_2 - \lambda_1} \left(e^{-\lambda_1 t} - e^{-\lambda_2 t} \right)$$

ou encore :

$$A_2(t) = \frac{\lambda_2}{\lambda_2 - \lambda_1} A_{1,0} \left(e^{-\lambda_1 t} - e^{-\lambda_2 t} \right)$$

Le nombre de noyaux (3) peut être obtenu en remarquant que le nombre total de noyaux est conservé :

$$N_1(t) + N_2(t) + N_3(t) = N_{1,0}(0) \quad (1.10)$$

Notion d'équilibre radioactif

Certains cas limites sont intéressants. Lorsque les périodes des noyaux (1) et (2) sont telles que $T_2 \gg T_1$ (le noyau fils a une période beaucoup plus longue que celle du noyau père), c'est-à-dire si $\lambda_1 \gg \lambda_2$, $e^{-\lambda_1 t} \ll e^{-\lambda_2 t}$ et $N_2(t) = N_0 e^{-\lambda_2 t}$. Le système se comporte comme deux entonnoirs superposés où celui du haut a un plus grand débit que celui du bas. La cinétique de l'ensemble est déterminée par celui du bas.

Si au contraire $T_1 \gg T_2$ (le noyau père a une période beaucoup plus longue que celle du noyau fils), c'est, dans le cas des deux entonnoirs, le premier qui donne la cinétique de l'ensemble. En effet, $\lambda_1 \ll \lambda_2$ et $e^{-\lambda_1 t} \gg e^{-\lambda_2 t}$. On a alors : $N_2(t) = \frac{\lambda_1}{\lambda_2} N_0 e^{-\lambda_1 t}$ ou $\lambda_2 N_2(t) = \lambda_1 N_1(t)$, c'est-à-dire : $A_2(t) = A_1(t)$ [Le Sech 2010].

L'ensemble des noyaux (2) décroissent à la même vitesse que les noyaux (1). Ceci se produit avec une précision meilleure que un pour mille au bout d'un temps supérieur à 10 fois la période du noyau fils. On dit qu'il y a un équilibre radioactif ou un équilibre séculaire.

1.2.3 Filiation à n corps

Dans une filiation radioactive, le noyau père instable atteint ainsi la stabilité par une succession de désintégrations. Chaque étape est caractérisée par un état intermédiaire correspondant à un radionucléide fils de l'élément père. Généralement, le plomb (Pb) est l'élément chimique stable, élément le plus lourd possédant des isotopes stables. De manière générique, une filiation radioactive de n corps s'écrit :

$$(1) \rightarrow (2) \rightarrow (3) \rightarrow \dots \rightarrow (n) \rightarrow (n+1) \text{ stable.}$$

L'activité d'un radioélément dans la filiation en fonction du temps est donnée par la relation :

$$A_n(t) = \lambda_n N_n(t) \quad (1.11)$$

$N_n(t)$ étant le nombre de noyaux radioactifs du radioélément n présents à l'instant t et λ_n sa constante de désintégration en s^{-1} . On peut généraliser le résultat à tous les noyaux de la chaîne de désintégrations, sauf le dernier. La variation du nombre $N_n(t)$ est donnée par :

$$dN_n = -\lambda_n N_n dt + \lambda_{n-1} N_{n-1} dt \quad (1.12)$$

Harry Bateman a trouvé une formule explicite générale pour les quantités en prenant la transformée de Laplace de ces variables.

$$N_n(t) = \frac{N_{1,0}}{\lambda_n} \sum_{i=1}^n C_i^n e^{-\lambda_i t} \quad (1.13)$$

où les coefficients C_i^n sont donnés par :

$$C_i^n = \frac{\prod_{j=1}^n \lambda_j}{\prod_{j=1, j \neq i}^n (\lambda_j - \lambda_i)} \quad (1.14)$$

Ce système d'équations portent le nom d'équations de Bateman de la filiation [Le Sech 2010]. Il permet par exemple de calculer l'évolution en fonction du temps de l'activité d'un fût de déchets radioactifs.

1.3 Familles radioactives naturelles

Les radioéléments naturels peuvent être répartis en trois familles : celles de l'uranium-238, de l'uranium-235 et du thorium-232. Une famille radioactive représente une succession de désintégrations radioactives. A l'origine de la famille, l'élément père, de longue demi-vie, se désintègre en un élément fils, lui même radioactif, qui se désintègre en un autre élément radioactif, et ainsi de suite. La filiation radioactive s'achève lorsque l'on obtient un élément ou un isotope stable (respectivement le ^{206}Pb , le ^{207}Pb et le ^{208}Pb).

1.3.1 Famille de l'uranium-238

La famille de l'uranium-238 comprend un certain nombre d'isotopes formés et détruits au cours de désintégrations α et β successives. Elle part de l' ^{238}U , de $4,49.10^9$ ans de période, pour aboutir à un isotope stable, le ^{206}Pb . Le schéma de filiation est indiqué à la figure 1.2 (a).

L' ^{238}U se désintègre en ^{234}Th et ^{234m}Pa ayant les périodes respectives de 24,1 jours et 1,18 minutes. Ces périodes sont suffisamment petites pour considérer que le ^{234}Th et le ^{234m}Pa sont en équilibre avec l' ^{238}U . La transition du ^{234}Th à l' ^{234}U se fait en passant par l'état métastable du nucléide intermédiaire, à savoir le ^{234m}Pa . L' ^{234}U se transforme en ^{230}Th ayant une période de $7,52.10^4$ ans, à son tour instable. Sa désintégration mène vers le ^{226}Ra de période 1622 ans.

Le ^{226}Ra se désintègre en produisant le ^{222}Rn qui est un gaz radioactif de période 3,825 jours. Ses descendants immédiats ont de courtes périodes leur permettant ainsi de se mettre rapidement en équilibre avec lui. Il faut noter que le ^{226}Ra est directement la source de libération du ^{222}Rn dans l'atmosphère. Le groupe ^{218}Po , ^{214}Pb , ^{214}Bi et ^{214}Po est gouverné par la période du ^{214}Pb qui est de 26,8 minutes. Dans ce groupe il y a émission des particules α , β et des rayons γ . Les principales raies γ émises sont dues aux ^{214}Pb et ^{214}Bi . Le spectre de ces γ est très étendu, allant des faibles aux très hautes énergies. Au bas de la chaîne, on trouve un radionucléide ayant une période relativement longue, le ^{210}Pb , de 22 ans de période. Sa désintégration vers le ^{210}Bi , de période 5,02 jours, s'accompagne de l'émission de rayons γ . Le ^{210}Bi se désintègre lui aussi pour donner le ^{210}Po ayant une période de 138,3 jours. Ce dernier se désintègre pour arriver à la fin de la chaîne terminée par le plus léger des isotopes naturels de

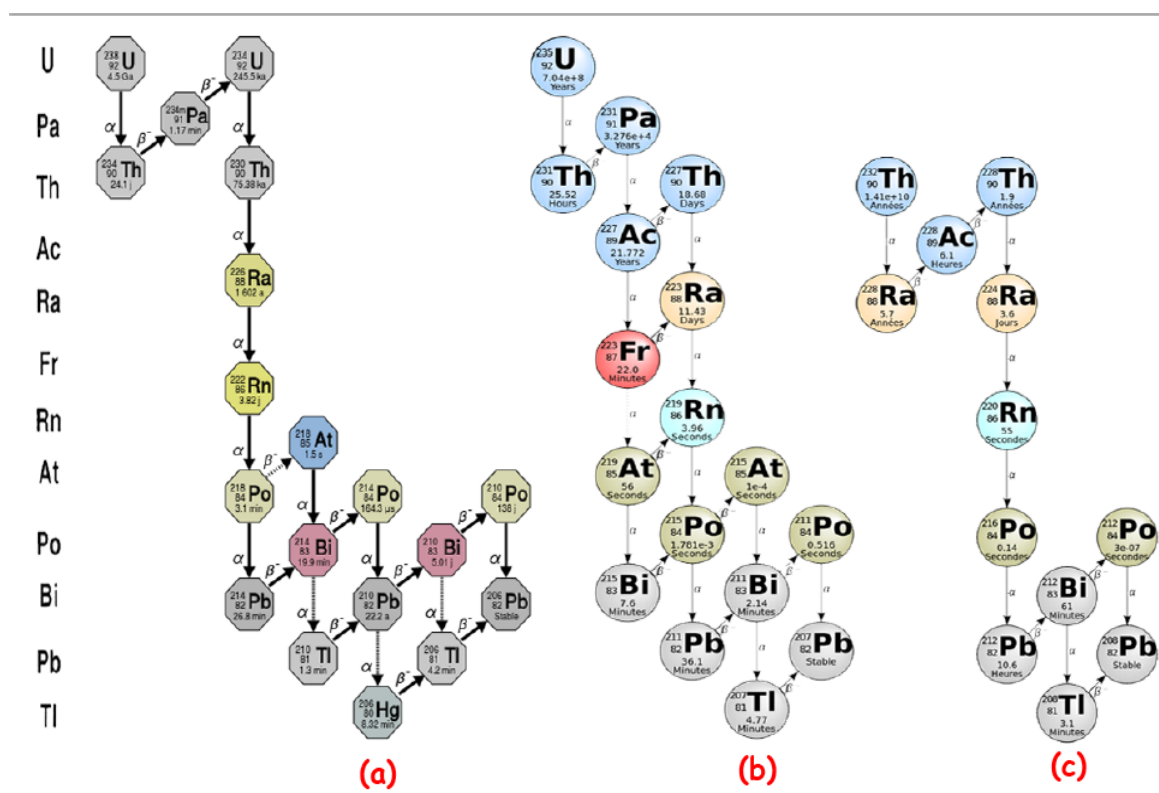


FIG. 1.2 – Familles radioactives naturelles de U-238, U-235 et Th-232 [Tedjani 2016]

plomb qui est le ^{206}Pb .

Dans cette famille, deux isotopes sont particulièrement importants : le ^{226}Ra et son fils le ^{222}Rn . Ce gaz radioactif, qui émane du sol, est le principal responsable de la diffusion de la radioactivité dans l'atmosphère : l'air contenu dans le sol contient environ $40.10^3 \text{ Bq.m}^{-3}$ de radon.

1.3.2 Famille de l'uranium-235

Cette famille a pour précurseur l'uranium-235 qui a la plus longue période dans cette famille : $7,13.10^8$ ans. La figure 1.2 (b) présente les différents descendants de l' ^{235}U , leurs modes de désintégrations ainsi que leurs périodes respectives. Son descendant immédiat est le ^{231}Th de période 25,6 heures lui permettant ainsi d'être en équilibre avec le radionucléide père ^{235}U . Le radionucléide obtenu après la désintégration du ^{231}Th est le ^{231}Pa de période $3,25.10^4$ ans, qui est bien un émetteur α .

L' ^{227}Ac obtenu après désintégration du ^{231}Pa a pour période 22 ans, il émet des particules β dans 98,8 % des cas avec une énergie maximale de 45 keV. Il est caractérisé par les raies γ émises par le ^{227}Th . En effet, ce dernier est en équilibre avec ^{227}Ac à cause de sa faible période qui est de 18,6 jours. Les raies γ les plus intenses émises par le ^{227}Th sont 50,2 keV (8,50 %) et 236 keV (11,2 %). Le reste de la chaîne est constitué de radionuclides de courtes périodes, donc en équilibre avec ^{227}Ac . À la fin de la chaîne on retrouve un isotope de plomb qui est le ^{207}Pb stable. Dans la famille de l'uranium-235, les isotopes importants sont le ^{231}Pa et le ^{219}Rn , élément gazeux de 3,92 secondes de période.

1.3.3 Famille du thorium-232

Cette famille débute par le ^{232}Th , de $13,9.10^9$ ans de période. La figure 1.2 (c) présente les différents descendants du ^{232}Th , leurs modes de désintégrations ainsi que leurs périodes respectives. Le descendant immédiat est le ^{228}Ra , de période 6,7 ans. Il est pratiquement en équilibre avec son descendant ^{228}Ac de période 6,13 heures. La désintégration de l' ^{228}Ac s'accompagne de l'émission de plusieurs raies γ . Le produit de cette désintégration est le ^{228}Th , de période 1,9 ans. Un état d'équilibre s'établit rapidement entre le ^{228}Th et le reste de la chaîne, à cause des courtes périodes des différents radionucléides restants. Plusieurs raies γ sont émises dans ce groupe. Le spectre de ces raies s'étend des basses énergies jusqu'à 2615 keV.

La famille du thorium se termine elle aussi par un isotope stable de plomb qui est le ^{208}Pb . Dans cette famille, le ^{220}Rn , de 55 secondes de période, il contribue avec ses descendants à la diffusion de la radioactivité naturelle dans l'atmosphère. Toutefois, il disparaît à une hauteur de 10 à 20 mètres, du fait de sa courte période.

1.4 De l'exposition aux rayonnements à la dosimétrie

La radioactivité est invisible et ne fait pas de bruit ; elle passe inaperçue. Pour mieux se protéger, il faut la détecter, estimer les doses auxquelles les personnes ont été exposées et évaluer le risque encouru. En matière d'exposition à la radioactivité ou plus généralement aux rayonnements ionisants, les circonstances d'exposition peuvent varier : domicile, lieux publics, activité professionnelle, cadre médical.

1.4.1 Données nécessaires pour l'évaluation dosimétrique

La connaissance des concentrations en radionucléides dans les différents milieux, air, sols, fertilisants, eaux, produits alimentaires, matériaux de construction, qu'elle ait été acquise à l'aide de modèles de transfert dans l'environnement ou de mesures, permet d'évaluer l'impact dosimétrique. La première étape de cette évaluation est la détermination des voies de transfert, qui peuvent être regroupées en deux catégories distinctes : Les voies de transfert qui conduisent à une irradiation externe, et celles qui aboutissent à une contamination interne.

Exposition externe

L'exposition externe est provoquée par une source radioactive située à distance de l'individu. Cette source peut émettre des rayonnements qui interagissent avec le corps humain en créant des ionisations, selon le type de rayonnement, pénètre plus ou moins profondément dans l'organisme. Les rayonnements ionisants d'origine naturelle, les gaz radioactifs présents dans l'atmosphère et les particules en suspension ou déposées sont les principales sources d'irradiation externe. Dans une moindre mesure, les radionucléides présents dans l'eau de mer ou de rivière sont également responsables d'une irradiation externe des individus qui sont en contact avec cette eau, que soit du fait de leurs loisirs (baignade), ou de leurs activités professionnelles (cas des pêcheurs).

Compte tenu du faible parcours des particules α dans l'air, de quelques cm, et à priori dans l'eau quelques dizaines de μm , seul les photons et les électrons sont considérées dans l'évaluation de l'impact dosimétrique par irradiation externe, les particules α ne contribuent qu'à la dose délivrée à la peau. Le calcul est en général traité en deux étapes : le calcul de la dose absorbée dans l'air suivi de la transformation de celle-ci en dose efficace. L'autre possibilité d'exposition externe est la contamination externe, est provoquée par un produit radioactif qui s'est déposé sur la peau, les vêtements ou les plans de travail. Elle peut conduire à l'incorporation des produits radioactifs dans l'organisme.

Exposition interne

Se produit lorsque les substances radioactives ont pénétré dans l'organisme d'une personne. Les substances radioactives peuvent pénétrer dans l'organisme d'une personne de diverses manières : par inhalation, ingestion mais également par une brèche cutanée ou par voie veineuse (par exemple lors d'une scintigraphie) elle ne concerne pas les gaz rares, qui ne sont pas métabolisés par l'organisme humain.

1.4.2 Exposition des populations

L'équivalent de dose est une grandeur utilisée pour chiffrer les conséquences radiologique d'une irradiation chez l'homme : il tient compte non seulement de la dose absorbée mais aussi de la nature et de l'énergie de l'irradiation.

Exposition liée au rayonnement cosmique

L'intensité du rayonnement cosmique varie peu avec l'altitude et est donc sensiblement la même sur toute la planète. L'équivalent de dose annuel est d'environ 300 mSv.an^{-1} au niveau de la mer, soit environ 15 % de l'exposition naturelle de l'homme. Les radionucléides cosmogéniques arrivent au sol au bout de quelques semaines à quelques années de sorte que leur dilution au niveau du sol est quasiment homogène. Au plan de l'exposition interne seuls ^3H , ^7Be , ^{14}C et ^{22}Na méritent une attention, car ^{10}Be ne contribue pas à la dose absorbée du fait de sa très longue période ($1,6 \cdot 10^6$ années). Les apports annuels par ingestion de ces radionucléides, ainsi que les doses correspondantes.

Exposition externe liée à la radioactivité tellurique

L'activité massique moyenne d'un sol est de 370 Bq.kg^{-1} pour ^{40}K , 40 Bq.kg^{-1} pour ^{238}U et 40 Bq.kg^{-1} pour ^{232}Th . L'UNSCEAR (United Nations Scientific Committee on the Atomic Radiation) a calculé que la population mondiale reçoit en moyenne un équivalent de dose efficace lié au rayonnement tellurique de 350 mSv.an^{-1} , soit du même ordre de grandeur que celui lié au rayonnement cosmique au niveau de la mer.

Il est à noter que la radioactivité naturelle peut être considérée comme quasi-homogène dans les sols ; toutefois en ce qui concerne la chaîne de ^{238}U , il est possible de mettre en évidence des concentrations en ^{210}Pb plus importantes dans les couches superficielles d'un sol qu'en profondeur. C'est la conséquence de la diffusion du ^{222}Rn vers l'atmosphère et des retombées de ses descendants sur les sols en fonction des conditions météorologiques locales.

Exposition interne liée au radon

Dans l'exposition liée à la radioactivité naturelle, le radon est responsable de la plus grande part de l'exposition interne. La dose moyenne est de $1000 \mu\text{Sv}\cdot\text{an}^{-1}$ [Le petit 2002].

Exposition interne liée aux radionucléides autres que le radon

Le corps humain présente une activité naturelle de 8200 Bq environ (4500 Bq dûs au ^{40}K et 3700 Bq dûs au ^{14}C). Par ailleurs, les incorporations apportées par les aliments sont respectivement 36000 et 20000 $\text{Bq}\cdot\text{an}^{-1}$. Certains fruits peuvent renfermer 260 $\text{Bq}\cdot\text{an}^{-1}$ de ^{226}Ra comme par exemple la noix du Brésil. La dose liée à l'activité interne de l'homme est d'environ $350 \mu\text{Sv}$ par an.

1.4.3 Dosimétrie des rayonnements ionisants

La dosimétrie, étymologiquement "mesure de la dose", est une discipline fondée sur la mesure physique de l'échange d'énergie entre le rayonnement et la matière. C'est donc naturellement que le point de départ du système de grandeurs dosimétriques se trouve au niveau des grandeurs physiques, dites aussi primaires, assez aisément accessibles aux techniques de mesures absolues. Les autres catégories de grandeurs sont :

Pour quantifier les risques d'effet stochastiques de l'exposition aux rayonnements, établir des limites d'expositions des travailleurs et du public et vérifier le respect de ces limites dans le cadre de la radioprotection, les grandeurs de protections, définies par la CIPR, pour mesurer l'exposition des travailleurs aux rayonnements ionisants, les grandeurs opérationnelles, développées par l'ICRU.

Grandeurs physiques

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

- l'énergie du rayonnement en MeV, et son intensité d'émission en %,
- l'activité de la source d'exposition en Bq ou débit de fluence : particules ou photons/ $\text{cm}^2\cdot\text{s}$,
- la dose en Gy ou débit de dose en $\text{Gy}\cdot\text{s}^{-1}$,
- le transfert linéique d'énergie en $\text{MeV}\cdot\text{cm}^{-1}$,
- le coefficient d'atténuation massique en $\text{cm}^2\cdot\text{g}^{-1}$.

Toute source de rayonnement est entourée d'un champ de particules : même si elle émet un faisceau bien défini géométriquement, des phénomènes secondaires, par-

ticulièrement des diffusions, font que le champ réel est beaucoup plus complexe, en direction comme en énergie. A l'intérieur d'un angle solide $d\Omega$, un point M du champ de rayonnement peut être défini par un spectre différentiel du nombre de particules en fonction de leur énergie. Dans un intervalle d'énergie compris entre E_1 et E_2 , la radiance particulaire est :

$$p(E_1, E_2) = \int_{E_1}^{E_2} p_E \cdot dE \quad (1.15)$$

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

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

Grandeurs dosimétriques

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

$$K = \frac{\sum dE_{tr}}{dm} \quad (1.16)$$

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

$$\dot{K} = \frac{dK}{dt} \quad (1.17)$$

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

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

$$D = \frac{dE}{dm} \quad (1.18)$$

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

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

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

$$\dot{D} = \frac{D}{dt} \quad (1.19)$$

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

$$\dot{D} = \dot{\Phi} E_{\gamma} \frac{\mu}{\rho} (1 - g) \quad (1.20)$$

avec $\dot{\Phi}$ est le débit de fluence dans le cas de l'émission isotrope. Il est donné par la relation :

$$\dot{\Phi} = \frac{AI_{\gamma}}{4\pi r^2} \quad (1.21)$$

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

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

Grandeurs de protection

La notion de dose absorbée dans la matière ne rend pas compte à elle seule des effets provoqués dans les tissus de l'organisme vivant. L'énergie cédée par unité de masse entraîne en effet sur les atomes et molécules, des ionisations et excitations, mais dans la matière vivante cet effet physique initial engendre des réactions de nature biochimique d'abord dans la cellule touchée puis éventuellement dans le tissu. On conçoit que la densité d'énergie cédée doit jouer un rôle, c'est-à-dire ce que nous venons de définir comme le transfert linéique d'énergie. Des expériences sur des animaux de laboratoire

Nature et fourchette d'énergie	Facteurs de pondération W_R
Photons : X, γ (toutes énergies)	1
β^- , β^+ et électrons	1
Neutrons : 100 KeV < E < 2 MeV	20
Proton : E > 2 MeV	5
Particules α et fragments de fission	20
Noyaux lourds	20

TAB. 1.5 – Facteurs de pondération W_R pour différents types de rayonnements [Delacroix 2006]

confirment ce fait : à même dose absorbée délivrée par des rayonnements ionisants de natures différentes, les effets globaux étudiés ne sont pas les mêmes. L'effet des rayonnements sur les organismes vivants dépend de la dose absorbée dans les tissus, mais également de la nature du rayonnement et de la sensibilité des tissus ou organes exposés.

Dose équivalente : Pour un organe exposé à des rayonnements ionisants de types et d'énergies différents, la dose équivalente à l'organe est une somme pondérée des doses absorbées, exprimées en gray (Gy), dans cet organe associées aux divers rayonnements. La dose absorbée associée à chaque rayonnement d'un type et d'une énergie donnée est multipliée par le facteur de pondération pour le rayonnement correspondant qui tient compte, aux faibles doses, de la différence d'effet que peut induire chaque type de rayonnement. La dose équivalente H à l'organe T s'écrit :

$$H_T = \sum_R w_R D_{T,R} \quad (1.22)$$

où $D_{T,R}$ est la dose moyenne absorbée dans les tissus ou les organes, notée T sensible aux radiations R . Le facteur de pondération W_R est un facteur multiplicatif dépendant du type de rayonnement incident sur le tissu ou l'organe, Selon les recommandations de la CIPR 60 les facteurs de pondération sont résumés dans la table 1.5. L'unité de l'équivalent de dose est le sievert Sv , telle que : $1Sv = 1J.kg^{-1}$.

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

Tissus ou organes	Facteurs de pondération W_T
Gonades	0,20
Moelle osseuse	0,12
Colon	0,12
Poumons	0,12
Estomac	0,12
Vessie	0,05
Seins	0,05
Foie	0,05
Thyroïde	0,05
Peau	0,01
Surface osseuse	0,01
Reste	0,01
TOTAL	1,00

TAB. 1.6 – Facteurs de pondération WT pour différents tissus ou organes [Delacroix 2006]

par un facteur de pondération tissulaire W_T dont les valeurs sont données dans la table 1.6.

La dose efficace E s'écrit :

$$E = \sum_T W_T H_T \quad (1.23)$$

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

$$\frac{1}{T_e} = \frac{1}{T_p} + \frac{1}{T_b} \quad (1.24)$$

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

1.4.4 Limites de dose

Se sont des valeurs fixées pour les doses résultant de l'exposition des personnes professionnellement exposées, des étudiants ainsi que des autres personnes du public,

Catégories de personnes	Limite dose efficace
Personnes professionnellement exposées	20 mSv
Etudiants de 16 à 18 ans	6 mSv
Public	1 mSv
Femmes enceintes	Maximum 1 mSv durant la grossesse

TAB. 1.7 – Valeurs limites des doses efficaces pour certaines catégories d’individus pour 12 mois consécutifs

Organes ou tissus	Dose équivalente
Peau, main, avant-bras, peids, chevilles	500 mSv
Cristallin	150 mSv
Gonades	100 mSv
Moelle rouge, colon, poumons, estomac	167 mSv
Vessie, seins, foie, thyroïde, autres	400 mSv

TAB. 1.8 – Valeurs limites des doses équivalentes pour certains organes et tissus pour 12 mois consécutifs

aux rayonnements ionisants qui s’appliquent à la somme des doses concernées résultant de sources externes pendant la période spécifiée et des doses engagées sur sur cinquante ans résultant d’incorporations pendant la même période. Les femmes qui allaitent ne doivent pas être maintenues à un poste de travail où il existe un risque d’incorporation de substances radioactives.

Dans le tableau 1.7, sont données les valeurs maximales de référence annuelles fixées dans la réglementation pour l’exposition aux rayonnements ionisants des travailleurs et du public. En ce qui concerne les organes ou tissus pris individuellement, les limites sont présentés dans le tableau 1.8.

1.5 Mesure de la radioactivité

La radioactivité est présente à l’état naturel dans notre environnement : en temps normal, plus de 10 becquerels par m³ d’air peuvent être mesurés du fait de particules naturelles. Cependant, certaines activités humaines peuvent avoir un impact sur le taux naturel de la radioactivité. Il est nécessaire donc de pouvoir mesurer et évaluer l’impact et le taux de cette radioactivité dans le but de prévenir les risques humains et de s’assurer du bon niveau des seuils de sécurité.

Pour quantifier la radioactivité et ses effets, on utilise des appareils et des unités de mesure particulières. Il existe deux principales unités : le becquerel et le sievert qui permettent de mesurer, l'un, le niveau de radioactivité, l'autre, les effets biologiques de cette radioactivité sur les organismes vivants.

Plusieurs instruments spécifiques peuvent être utilisés pour mesurer la radioactivité dans un lieu donné ou sur une personne. Tous reposent sur le même fonctionnement technique : ils mesurent le nombre d'ionisations (arrachements d'électrons aux atomes) et d'excitations (transmissions d'énergie aux atomes qui passent à un état excité) provoquées par les rayonnements radioactifs qui traversent le détecteur de l'instrument de mesure. D'une manière générale la détection et la mesure de radioactivité est un processus à plusieurs étapes comme le montre le synoptique de la figure 1.3 [Lyoussi 2010].

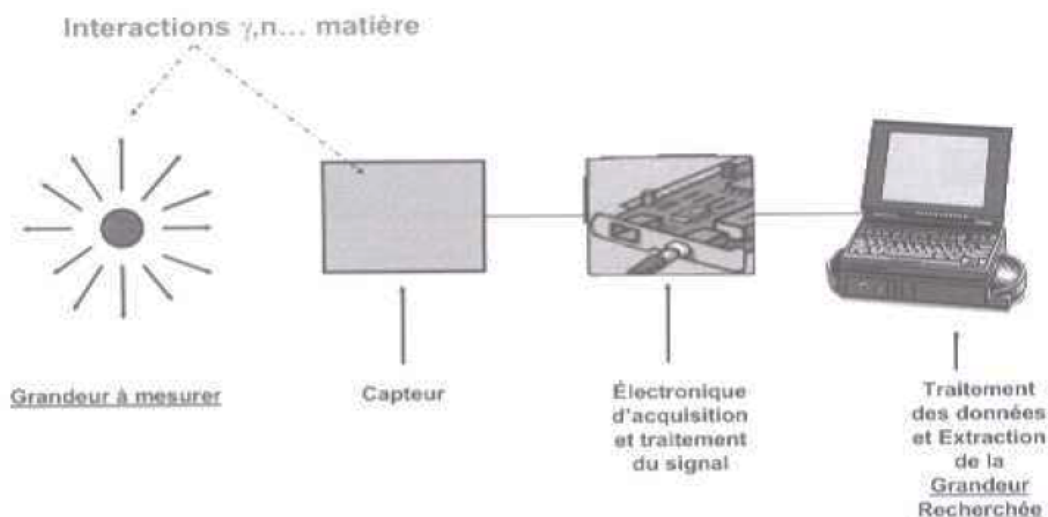


FIG. 1.3 – Synoptique du processus de détection et de mesure de la radioactivité [Lyoussi 2010]

Techniquement, le rayonnement radioactif passe d'abord dans le volume sensible du détecteur de l'instrument. En fonction de la conception de l'appareil et du type de rayonnements que l'on veut mesurer, ce détecteur peut être un matériau gazeux, solide ou liquide. Le rayonnement interagit avec la matière du détecteur : effets électriques, chimiques ou lumineux résultant de l'ionisation du gaz, du liquide, du cristal ou du film photographique que le détecteur contient dans son capteur. Ces informations sont ensuite amplifiées, comptées et traitées par la sonde, pour indiquer le flux des particules radioactives, l'énergie des particules et la dose absorbée.

Les rayonnements émis par les radionucléides se mesurent grâce à divers appareils [Rodier 1974] :

- Détecteurs mettant en jeu l'ionisation des gaz (compteur proportionnel, compteur Geiger-Müller, chambre d'ionisation, etc.).
- Détecteurs à scintillations.
- Détecteurs à semi-conducteurs (silicium, germanium).
- Détecteurs thermoluminescents.
- Détecteurs photoluminescents.
- Détecteurs solides de traces nucléaires (DSTN).
- Dosimètres par résonance paramagnétique électronique.
- Dosimètres chimiques.
- Appareils mettant en jeu les méthodes calorimétriques.

La mesure de la radioactivité est donc une thématique pluridisciplinaire faisant appel à des connaissances en physique nucléaire et atomique, en interaction rayonnement-matière, en électronique, en acquisition et interprétation des résultats. Il est à noter qu'une distinction doit être faite entre détecter la présence de radiations et mesurer une grandeur caractéristique telle que le dénombrement des rayonnements, leur énergie, la dose absorbée, le débit de dose absorbée, etc. Dans l'ensemble, les différents détecteurs utilisés pour ce types de mesures sont extrêmement sensibles. Ils peuvent mesurer des activités radioactives un million de fois inférieures aux niveaux nocifs pour notre santé.

1.6 Problèmes posés par la mesure de radioactivité

Il est évident qu'en pratique, les mesures de radioactivité (en α , en β , en γ et en neutron) posent un certain nombre de problèmes dont la solution dépend étroitement de l'activité mesurée et de l'utilisation ultérieure du résultat.

Dans ce travail, on va s'intéresser à la détection et la mesure des rayons γ . Particulièrement, des contraintes inhérentes à la spectroscopie de ces rayons s'imposent et qu'on doit tenir en compte, à savoir :

1.6.1 Problème de géométries

Une source radioactive émettant des particules de manière isotrope, seules sont enregistrées celles qui se trouvent dans l'angle solide sous lequel le détecteur « voit la source ». Ce facteur, négligeable lorsqu'il s'agit de fortes activités, devient très important lorsque l'on est en présence d'activités, très faible, voisine du bruit de fond des appareils utilisés. Il est donc nécessaire de veiller à se placer dans des conditions de géométrie les plus favorables possibles ; des corrections sont éventuellement apportées au résultat. De même il faut, lors des opérations d'étalonnage, s'assurer que les condi-

tions sont rigoureusement identiques pour la source et l'échantillon à mesurer [Le Petit 2002].

1.6.2 Pertes de comptage dues au détecteur

Quel que soit le type de détecteur utilisé, il existe toujours un intervalle de temps entre le moment où une impulsion de comptage est déclenchée et celui où l'impulsion suivante peut apparaître. Ce temps mort, condition en fait l'activité maximale que peut enregistrer un détecteur sans perte de comptage trop important.

1.6.3 Auto-absorption

Un photon gamma émis au sein d'un milieu possède un parcours moyen, distance parcourue avant son interaction avec son environnement, dépendant de son énergie et de la densité du milieu traversé. Lorsqu'un photon est émis au sein d'une matrice volumique et homogène, il est possible qu'il interagisse avec des atomes de sa propre matrice se trouvant sur sa trajectoire. Dans ce cas il est considéré comme absorbé. Cela a comme conséquence diminution du comptage dans le photo-pic [Gilmore 2008].

1.6.4 Effet de cascade

Le phénomène de coïncidence intervient lorsque deux raies γ émises en cascade sont détectées simultanément. On obtient alors une impulsion correspondant à la somme des énergies déposées dans le détecteur par les deux raies. Ces impulsions « sommes » se répartissent sur tout le spectre jusqu'à l'énergie maximale $E_1 + E_2$, obtenue quand les deux photons, respectivement d'énergie E_1 et E_2 , sont totalement absorbés [Gilmore 2008]. Un troisième pic d'absorption totale apparaît alors sur le spectre et il y a perte de comptage par « effet somme ».

Chapitre 2

Spectrométrie gamma et modélisation par méthode Monte-Carlo

2.1 Spectrométrie gamma

2.1.1 Principe physique

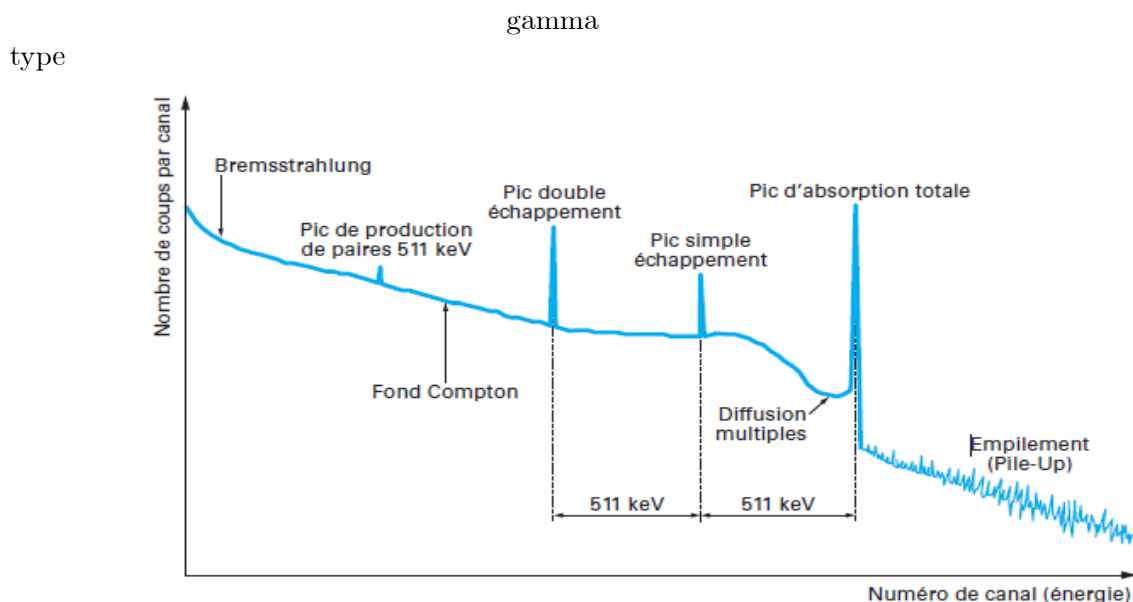
La spectrométrie gamma, tout particulièrement à l'aide de cristaux de GeHP, est l'une des techniques les plus puissantes d'analyse et de caractérisation nucléaire. Cette technique a, par ailleurs, l'avantage d'être non destructive. Il s'agit de l'analyse de l'énergie et de l'intensité des rayonnements gamma émanant spontanément de l'objet radioactif à mesurer. Ces photons accompagnent la plupart des modes de désintégrations radioactives et ont des énergies précises, caractéristiques des transitions entre états nucléaires excités. Plusieurs transitions peuvent se produire dans un même noyau avec des probabilités différentes et conduire ainsi à l'émission de photons gamma d'énergies différentes.

La mesure de ces photons au moyen d'un dispositif approprié permettant de les classer en fonction de leur énergie (raies gamma caractéristiques) et l'analyse du spectre obtenu permettent d'identifier et de quantifier les radionucléides présents dans l'objet mesuré. En effet, le nombre de photons émis à une énergie donnée est représentatif de la quantité de l'émetteur gamma.

La détection des photons gamma met en jeu différents modes d'interaction. Le spectre des photons gamma allant d'environ 20 keV à quelques MeV, les principaux processus d'interaction avec la matière sont l'effet photoélectrique, l'effet Compton et la création de paires. Le spectre gamma ainsi obtenu sera donc divisé en plusieurs

composantes (figure 2.1) :

- pics d’absorption totale;
- fond Compton;
- fond des diffusions multiples;
- pics de simple et double échappement (respectivement lorsqu’un ou les deux photons d’annihilation sortent du détecteur sans interagir);
- pic d’annihilation (électron, positron) à 511 keV;
- empilement ou Pile-Up (au-delà du pic d’absorption totale, cela provient de coïncidences fortuites de plusieurs gamma arrivés en même temps sur le détecteur);
- bremsstrahlung ou rayonnement de freinage (décélération d’un électron dans le détecteur ou son environnement).



4.pdf

FIG. 2.1 – Spectre gamma type [Lyoussi 2008]

2.1.2 Interactions photon-matière

Les rayons gamma sont des photons émis au cours de transitions entre états excités des noyaux atomiques. À la différence des particules comme les ions, les électrons ou les neutrons, les photons peuvent être absorbés par un atome et transférer leur énergie à l’un des électrons du système atomique qui sera excité ou ionisé si l’énergie est suffisante : c’est l’effet photoélectrique. Ils peuvent aussi être diffusés élastiquement par les atomes du milieu ou bien perdre de l’énergie dans une collision avec les électrons de la matière sans être absorbés comme dans l’effet Compton. Si l’énergie des photons est

suffisante, on peut observer la matérialisation de l'énergie, c'est-à-dire la transformation de l'énergie en matière qui résulte dans la création d'une paire électron-positron. L'importance des trois effets varie en fonction de l'énergie du photon incident et du numéro atomique Z de la matière. D'autres processus d'interaction moins importants peuvent se produire avec un photon, en l'occurrence la diffusion Rayleigh avec un électron lié, la diffusion Thomson avec un électron libre ou la diffusion Delbruck avec le champ coulombien du noyau.

Effet photoélectrique

C'est un mécanisme d'absorption totale où le photon incident transfère totalement et rapidement son énergie et permet l'éjection d'un électron profond (électron fortement lié). Il y a donc disparition du photon, création d'un ion et apparition d'un photoélectron, qui est arraché à son orbite suivant le mécanisme [Gruppen 2008] : $\gamma + atom \rightarrow atom^+ + e^-$ (figure 2.2). Le photoélectron est éjecté avec une énergie cinétique E_{e^-} égale à celle du photon incident E_γ diminuée de son énergie de liaison E_l à l'atome du milieu.

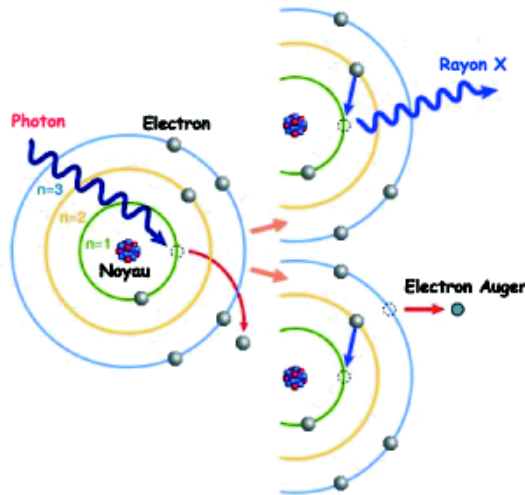


FIG. 2.2 – Effet Photoélectrique

L'atome résiduel est dans un état ionisé avec une vacance de site qui sera comblée par un électron libre d'une autre couche. Ce réarrangement électronique s'accompagne d'émission de rayons X qui peuvent à leur tour, par effet photoélectrique, faire éjecter un nouvel électron du cortège électronique. On parle d'effet Auger, l'électron ainsi

éjecté est appelé électron Auger (figure 2.2). L'émission d'électrons Auger est favorisée pour des matériaux à faible numéro atomique, où les énergies de liaison sont faibles [Knoll 1999].

La probabilité d'occurrence de l'effet photoélectrique par atome dépend fortement de l'énergie E du photon incident et du numéro atomique Z du milieu traversé. Elle varie approximativement comme Z^4/E^3 . La section efficace d'absorption photoélectrique σ_{PE} dépend du numéro atomique Z de l'atome et de l'énergie du photon incident. Elle est donnée par la relation :

$$\sigma_{PE} = \left(\frac{32}{\gamma}\right)^{\frac{1}{2}} \alpha^4 \cdot Z^4 \cdot \sigma_T \quad (2.1)$$

avec $\alpha = 1/137$ appelée constante de la structure fine et $\gamma = E/m_0c^2$ où m_0 est la masse de l'électron au repos.

Effet Compton

La diffusion Compton représente l'interaction du photon avec les électrons des couches périphériques (électron faiblement lié). Le photon incident, d'énergie E_γ cède une partie de son énergie à un électron de ces couche puis diffuse en un autre photon d'énergie inférieure, comme schématisé dans la figure 2.3.

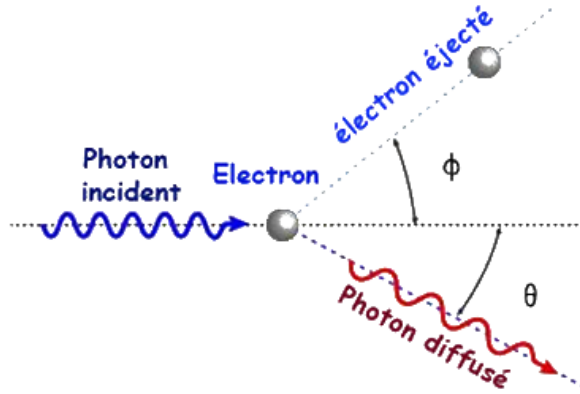


FIG. 2.3 – Effet Compton

L'énergie du photon diffusé $E_{\gamma'}$ et l'énergie cinétique de l'électron Compton E_c sont donnée par la relation :

$$E_{\gamma'} = \frac{E_\gamma}{1 - \cos \theta} \quad (2.2)$$

L'énergie du photon Compton varie sur une gamme allant de $E_\gamma / (1 + 2\varepsilon)$ pour $\theta = \pi$ (rétrodiffusion du photon) à E_γ pour $\theta = 0$. L'énergie cinétique de l'électron diffusé est donné par [Gruppen 2008] :

$$E_{e^-} = E_\gamma - E_{\gamma'} = \left[\frac{\varepsilon(1 - \cos \theta)}{1 + \varepsilon(1 - \cos \theta)} \right] E_\gamma \quad (2.3)$$

La section efficace différentielle de cet effet est donnée par la formule de Klein et Nishina [Blanc 1997] :

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \frac{r_e^2}{2} \frac{1}{[1 + \alpha(1 - \cos \varphi)]^2} \left[1 + \cos^2 \varphi + \frac{\alpha^2(1 - \cos \varphi)}{1 + \alpha(1 - \cos \varphi)} \right] \quad (2.4)$$

Vu que l'énergie du photon incident se répartit entre l'énergie cinétique de l'électron Compton et l'énergie du photon diffusé, la section efficace peut se décomposer en une composante absorbée et une composante diffusée : $\sigma_C = \sigma_{ab} + \sigma_{dif}$. La section efficace totale de l'effet Compton σ_C dépend linéairement du numéro atomique Z et diminue lorsque l'énergie du photon augmente.

Effet de création de paires

La matérialisation d'un photon correspond à la disparition d'un photon et la création d'une paire électron-positron. Chaque particule créée a une énergie reliée à sa masse m_e qui vaut $m_e c^2$ et par conséquent la création d'une paire électron-positron présente un seuil en énergie égal à $2m_e c^2$ ($2m_e c^2 = 1,02 \text{ MeV}$).

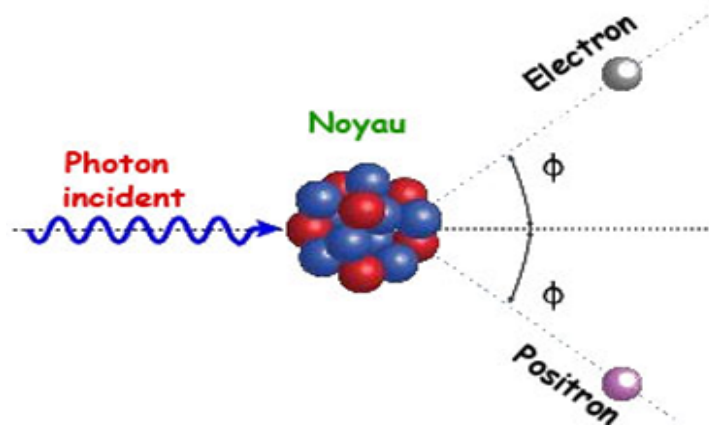


FIG. 2.4 – Création de paire

Si l'énergie initiale du photon E est suffisante ($E > m_e c^2$), on peut observer la création d'un électron et de son antiparticule le positron. Le photon doit passer nécessairement au voisinage d'un noyau atomique. En effet, la matérialisation de photons

dans le vide n'est pas possible. Le processus de création de paires varie pratiquement comme Z^2 , où Z est le numéro atomique du noyau avec lequel le photon interagit. Le positron ainsi créé dans la matière va ralentir et s'annihiler, alors qu'il est pratiquement au repos, avec un électron pour donner deux photons de 0,511 MeV chacun qui seront émis dans des directions opposées afin de conserver la valeur initialement nulle de la quantité de mouvement du système positron plus électron. Dans la pratique, le processus de création de paires ne devient important que pour des énergies supérieures à $4m_e c^2$ (figure 2.4). La section efficace de production de paires s'exprime par les formules rapprochées suivantes [Blanc 1997, Grupen 2008] :

– Pour $1 \prec \frac{E_\gamma}{m_e c^2} \prec \frac{137}{\alpha Z^{1/3}}$

$$\sigma_{paire} = 4 r_e^2 \alpha Z^2 \left[\frac{7}{9} \ln 2 \frac{E_\gamma}{m_e c^2} - \frac{109}{54} \right] \quad (2.5)$$

– Pour $\frac{E_\gamma}{m_e c^2} \succ \frac{1}{\alpha Z^{1/3}}$

$$\sigma_{paire} = 4 r_e^2 \alpha Z^2 \left[\frac{7}{9} \ln \left(\frac{183}{Z^{1/3}} \right) - \frac{1}{54} \right] \quad (2.6)$$

Domaine de prépondérance de chacun des effets

La probabilité d'occurrence de l'un des trois effets est fonction de l'énergie du rayonnement électromagnétique considéré et de la nature de la matière dans laquelle ce rayonnement se propage.

Influence de l'énergie du rayonnement électromagnétique incident : La figure 2.5 illustre les variations des probabilités d'occurrence des trois effets dans un tissu biologique en fonction de l'énergie.

La grandeur appelée μ sera définie dans la section : Atténuation des photons gamma dans la matière. Ici nous nous contenterons de dire qu'elle est représentative de la probabilité d'interaction des rayonnements électromagnétiques dans la matière. D'après la figure 2.5, il apparaît que [Tavernier 2010] :

- l'effet photoélectrique prédomine aux basses énergies [1–100 keV]. La probabilité d'occurrence est une fonction décroissante de l'énergie du rayonnement incident ;
- l'effet Compton est l'effet prédominant aux énergies intermédiaires comprises entre 0,1 MeV et quelques MeV ;
- la probabilité d'occurrence de l'effet de production de paires, au-dessus de son seuil d'apparition de 1,022 MeV, est une fonction croissante de l'énergie.

Influence de la nature du matériau absorbeur : La probabilité d'interaction par effet photoélectrique et par effet de production de paires est une fonction croissante

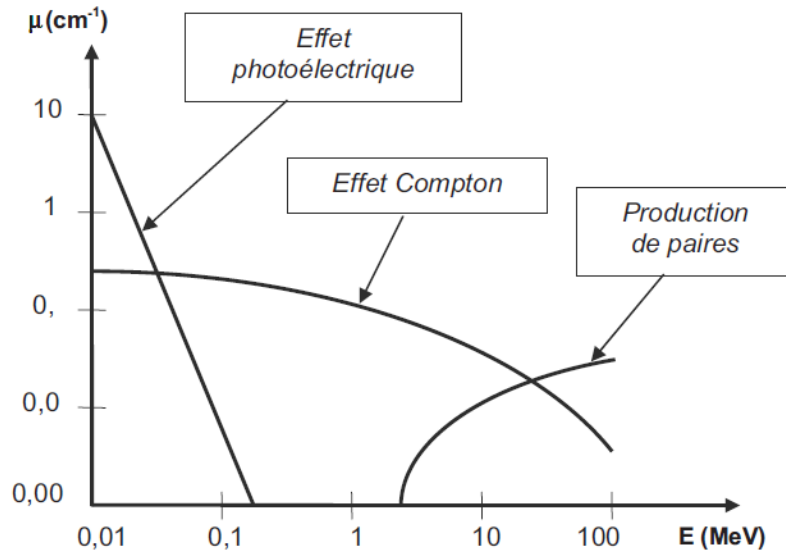


FIG. 2.5 – Probabilités de réalisation des effets photoélectrique, Compton et de production de paires dans les tissus biologiques en fonction de l'énergie.

du numéro atomique Z . Dans le cas de l'effet photoélectrique, elle est même proportionnelle à Z^4 . La probabilité d'interaction par effet Compton est également favorisée pour des numéros atomiques Z élevés mais de façon plus limitée que pour les effets photoélectrique et de production de paire. Ainsi, en raisonnant en termes relatifs, des matériaux denses (Z élevé) favoriseront les deux effets précédents au détriment de l'effet Compton qui sera favorisé pour des matériaux moins denses (Z plus faible). Pour se protéger, il conviendra donc d'utiliser des écrans de matériaux denses pour favoriser les interactions des rayonnements électromagnétiques par effet photoélectrique et défavoriser les interactions par effet Compton. De ce fait, la création de rayonnements diffusés dans l'écran sera limitée au maximum.

2.1.3 Atténuation des photons gamma dans la matière

L'atténuation d'un faisceau de photons incidents résulte de l'absorption des photons par l'effet photoélectrique, l'effet Compton et, si l'énergie des photons est suffisante, par la création de paires électrons-positrons. Si on appelle σ_{tot} la section efficace totale d'absorption des photons et si on désigne par σ_{PE} , σ_C et σ_{paire} les sections efficaces d'absorption respectivement de l'effet photoélectrique, de l'effet Compton et de la création de paires, on pose : $\sigma_{tot} = \sigma_{PE} + \sigma_C + \sigma_{paire}$.

Considérons un faisceau de section droite S traversant la matière composée de noyaux de masse atomique M et de masse volumique ρ . Un volume dV d'une tranche de

matière d'épaisseur dz a une masse $dm = \rho dV = \rho S dz$ et contient $\rho S dz / M$ moles soit $N \rho S dz / M$ atomes, $N = 6,0221367 \times 10^{23} \text{ mol}^{-1}$ désignant le nombre d'Avogadro. Si le faisceau traverse l'épaisseur de matière dz , la section efficace totale des interactions est $\sigma_{tot} N \rho S dz / M$. La probabilité d'interaction dP est le rapport de cette section efficace à la surface S soit :

$$dP = \frac{\sigma_{tot} N \rho S dz}{MS} = \frac{\sigma_{tot} N \rho dz}{M} \quad (2.7)$$

Cette probabilité est égale au rapport du nombre de particules dN absorbées au nombre de particules $N(z)$ présentes dans la tranche dz . Les particules étant absorbées, dN doit être négatif. Algébriquement on posera :

$$\frac{dN}{N(z)} = - \left(\frac{\sigma_{tot} N \rho}{M} \right) dz = -\mu dz \quad (2.8)$$

avec : $\mu = \frac{\sigma_{tot} N \rho}{M}$ (le coefficient d'absorption linéique).

Le nombre de photons transmis $N(z)$ est donné par une loi exponentielle décroissante :

$$N(z) = N_0 e^{-\mu z} \quad (2.9)$$

Les valeurs des coefficients d'atténuation linéique décroissent avec l'énergie. Le coefficient d'atténuation (absorption) massique μ_m est défini par le rapport :

$$\mu_m = \frac{\mu}{\rho} = \frac{\sigma_{tot} N}{M} \quad (2.10)$$

ρ étant la masse volumique du matériau généralement exprimée en $g.cm^{-3}$, μ_m est exprimé en $cm^2.g^{-1}$. L'intérêt de définir le coefficient μ_m réside dans la relative faible variation de ce paramètre avec l'état de la matière. L'expression donnant l'intensité transmise I_t ou le nombre de photons transmis N_t est :

$$\begin{aligned} I_t(z) &= I_0 e^{-\mu_m \rho z} \\ N_t(z) &= N_0 e^{-\mu_m \rho z} \end{aligned} \quad (2.11)$$

Le coefficient d'absorption massique $\mu_m = \mu / \rho$ de l'effet photoélectrique des électrons d'une couche électronique donnée peut être calculé par la relation suivante à partir de la section efficace de photoabsorption et de la masse volumique :

$$\mu_m \left(\frac{cm^2}{g} \right) = \frac{\mu}{\rho} = \frac{\sigma (cm^2/électron) \times N (atomes/cm^3) n_s}{\rho (g/cm^3)} \quad (2.12)$$

n_s est le nombre d'électrons dans la couche électronique considérée.

2.1.4 Types de détecteurs gamma

Les deux types de détecteur les plus utilisés en spectrométrie gamma sont : les détecteurs à scintillation (scintillateurs) et les détecteurs à semi-conducteurs.

Détecteurs à scintillations

Brièvement, le principe de fonctionnement d'un scintillateur repose sur l'émission de la lumière à la suite du dépôt d'énergie (total ou partiel) du photon gamma à détecter dans le matériau scintillant. Le scintillateur étant relativement transparent à son spectre d'émission (c'est une des propriétés fondamentales d'un élément scintillateur utilisé à des fins de détection de particules), ces photons de scintillations sont recueillis par un photomultiplicateur. Celui-ci va permettre de les transformer en un signal électrique exploitable. Pour cela, il est composé de plusieurs éléments aboutissant à cette conversion : une photocathode, une électrode focalisante, une série de dynodes et une anode [Blanc 1997]. Il existe deux grandes familles de scintillateurs, les organiques et les inorganiques (minéraux). Le type de scintillateur le plus utilisé pour la mesure non destructive par spectrométrie gamma est l'iodure de sodium (NaI).

Détecteurs à semi-conducteurs

Les semi-conducteurs offrent l'avantage de présenter une énergie nécessaire à la création d'une paire électrons-trous très faible : elle est de 3,61 eV dans le silicium, 2,94 eV dans le germanium alors que dans les gaz cela varie de 20 à 40 eV et dans les matériaux scintillateurs de 400 à 1000 eV. De plus, les matériaux utilisés comme semi-conducteurs ont des masses volumiques élevées ($5,32 \text{ g.cm}^{-3}$ pour le germanium et $2,33 \text{ g.cm}^{-3}$ pour le silicium), ce qui favorise l'interaction des photons dans le milieu [Kleinknecht 1986].

Particulièrement, ces matériaux se caractérisent par une conductivité électrique intermédiaire entre les conducteurs et les isolants. À la température du zéro absolu, les semi-conducteurs sont rigoureusement des isolants (leur bande de valence est remplie d'électrons et leur bande de conduction complètement vide). L'élévation de la température n'a pas pour effet de modifier les propriétés de conduction des isolants mais elle a pour effet de rendre conducteur un matériau semi-conducteur [Gilmore 2008]. Donc, l'agitation thermique communiquant une énergie suffisante à un certain nombre d'électrons de la bande de valence pour passer à la bande de conduction.

Le fonctionnement d'un semi-conducteur est basé sur la théorie des bandes selon laquelle les électrons prennent des valeurs d'énergies permises dans la bande de valence et la bande de conduction. La bande de valence est riche en électrons, mais ne participe pas à la conduction, contrairement à la bande de conduction qui procure une certaine

conductivité au matériau. Ces deux bandes sont séparées par la bande interdite qui s'appelle aussi le gap (figure 2.6).

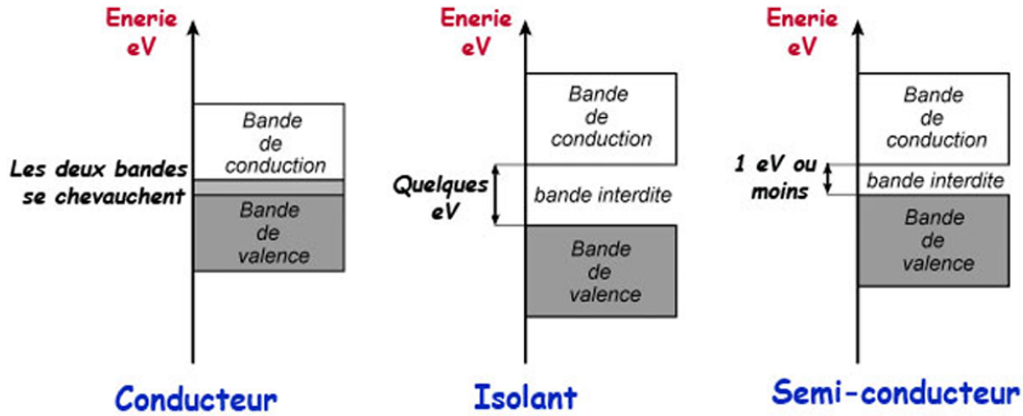


FIG. 2.6 – Schéma des bandes d'énergie pour un conducteur, un semi-conducteur et un isolant.

Le passage d'un électron de la bande de valence à la bande de conduction dépend de la température et du gap du matériau. Dans le cas du germanium, le gap est de l'ordre de 0,7 eV [Tavernier 2010]. L'énergie thermique d'un électron peut être de cet ordre, d'où la nécessité de refroidir le cristal pour réduire le bruit de fond provenant des impulsions causées par l'agitation thermique. Les électrons excités dans la bande de conduction vont laisser un nombre de trous équivalents dans la bande de valence. Sous l'action d'un champ électrique les électrons de la bande de conduction se déplacent vers le pôle positif et les trous de la bande de valence vers le pôle négatif. La conduction par les électrons est dite de type *N* alors que la conduction par les trous est dite de type *P*. D'après l'équation de Boltzmann, la probabilité de passage d'un électron de la bande de valence à la bande de conduction dépend de la température [Gilmore 2008] :

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

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

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

Si l'on accole deux semi-conducteurs extrinsèques, un étant de type P , l'autre étant de type N , on constitue une jonction $P-N$ dans laquelle apparaît, au voisinage du contact, une région désertée par les porteurs de charge [Blanc 1997]. En effet, la mise en contact de chaque semi-conducteur, initialement électriquement neutre, a provoqué la diffusion des électrons majoritaires de la région N vers la région P , et réciproquement, celle des trous majoritaires de la région P vers la région N . Le déplacement des porteurs majoritaires de charges laisse des atomes dopeurs ionisés, ces ions engendrent un champ électrique de quelques 10^5 V.m^{-1} qui s'oppose à la diffusion des porteurs majoritaires à travers la jonction, ce qui concourt à un état d'équilibre. La profondeur de la zone désertée peut être augmentée en polarisant la diode en inverse. Dans une diode à jonction $P-N$, la partie utile à la détection est cette zone désertée (zone de déplétion), il faut donc que son épaisseur soit satisfaisante pour que l'absorption du photon soit totale. Le fonctionnement du détecteur est le suivant (figure 2.7) :

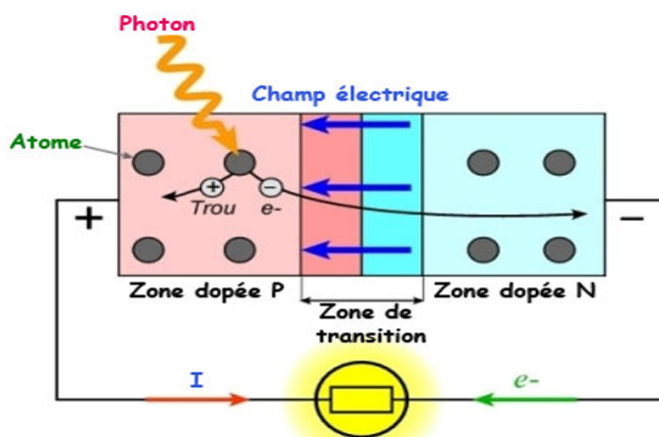


FIG. 2.7 – Fonctionnement d'un détecteur à jonction P-N

Le rayonnement traverse une zone non désertée mince (fenêtre d'entrée ou zone morte) puis perd son énergie dans la zone désertée. Le nombre moyen de paire électron-trou créés est égal à (si l'absorption est totale) : $N = E_0/\varepsilon$. E_0 énergie du photon incident, ε énergie de création de la paire électron-trou (2,98 eV pour le germanium à la température ambiante). La présence du champ électrique dans cette zone désertée permet la collecte des charges créées par les photons. La charge totale collectée sur les contacts est intégrée par un préamplificateur de charge et convertie en une impulsion de tension dont l'amplitude est proportionnelle à l'énergie déposée dans le cristal.

Paramètres fondamentaux d'un détecteur de spectrométrie gamma

Deux paramètres essentiels d'un détecteur de spectrométrie gamma sont le rendement de détection et la résolution en énergie.

Rendement de détection : En général, l'efficacité de détection est défini pour l'ensemble géométrique de mesure. L'efficacité est souvent exprimée en pourcentage du nombre de rayonnements incidents. Deux types d'efficacités sont ainsi définis [Lyoussi 2010] :

- L'efficacité absolue (ε_{abs}) dépend de la géométrie et de la probabilité d'interaction du photon dans le détecteur, elle est définie par la relation :

$$\varepsilon_{abs} = \frac{\text{nombre d'impulsions comptés}}{\text{nombre de rayonnements émis par la source}}$$

- L'efficacité intrinsèque (ε_{int}) dépend des propriétés du détecteur et elle peut être déterminée par la relation suivante :

$$\varepsilon_{int} = \frac{\text{nombre d'impulsions comptés}}{\text{nombre de rayonnements reçus par le détecteur}}$$

L'efficacité absolue est reliée à l'efficacité intrinsèque par la relation suivante [Lyoussi 2010] :

$$\varepsilon_{abs} = \frac{\Omega}{4\pi} \varepsilon_{int} \quad (2.13)$$

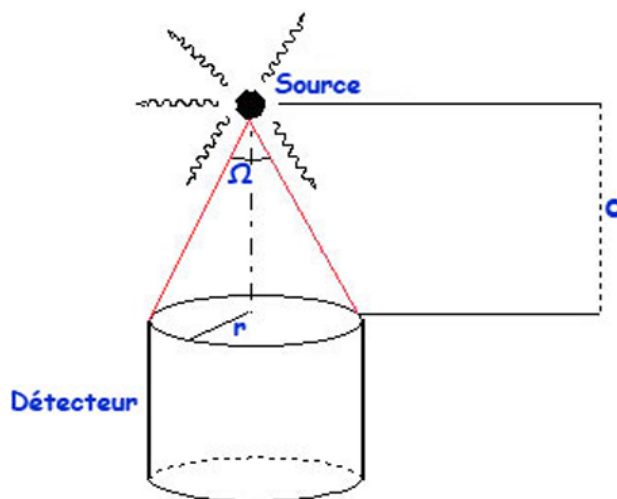


FIG. 2.8 – Notion élémentaire d'angle solide de détection

où Ω est l'angle solide de détection (figure 2.8) défini comme étant la surface du détecteur vue par la source définie comme ponctuelle, elle est donnée par l'équation

suivante :

$$\Omega = 2\pi \left(1 - \frac{d}{\sqrt{d^2 + a^2}} \right) \quad (2.14)$$

Cas particulier : si $d \gg a$, l'angle solide $\Omega \approx \frac{\pi r^2}{d^2}$.

Le rendement ou l'efficacité de détection des photons gamma pour un pic d'absorption totale dépend essentiellement :

- du volume actif du détecteur ;
- de sa forme ;
- de la géométrie source-détecteur ;
- des interactions avec le cristal et les matériaux environnants.

Résolution en énergie : La résolution en énergie mesure la capacité d'un détecteur à séparer des raies gamma dans un spectre. Dans le cas d'un pic sous forme d'une distribution gaussienne (figure 2.9), la largeur du pic mesurée à mi-hauteur encore appelée FWHM (full width at half maximum) [Tavernier 2010]. La résolution est fixée généralement par :

- les fluctuations statistiques dans le processus de production des charges ;
- les défauts de la collection des charges ;
- le bruit électronique.

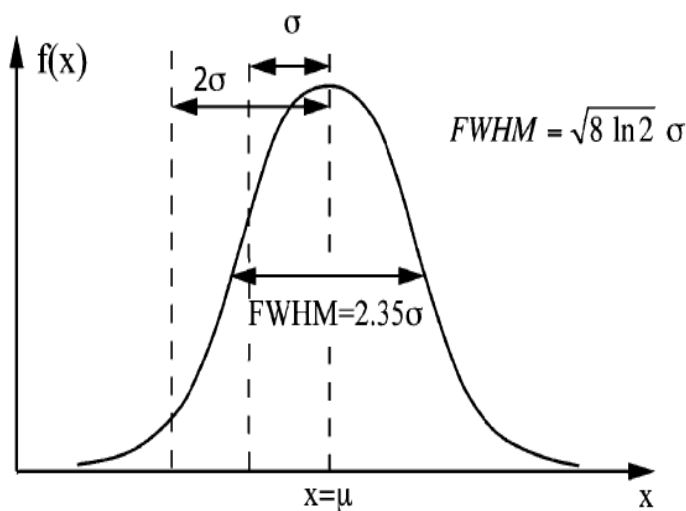


FIG. 2.9 – Distribution gaussienne du pic [Tavernier 2010]

Une bonne résolution est de l'ordre de 1% mais certains détecteurs sont loin de cette performance. Dans le cas idéal, la forme du pic est parfaitement gaussienne, et

la résolution est liée à l'écart-type σ de la distribution [Tedjani 2016] :

$$FWHM = \sigma\sqrt{8 \ln 2} = 2,355 \sigma \quad (2.15)$$

Notons qu'il est utile de définir une résolution relative R (exprimée en %) comme étant le rapport de la résolution $FWHM$ à l'énergie du pic :

$$R(E) = \frac{FWHM}{E} \quad (2.16)$$

Tout comme l'efficacité, la résolution $FWHM$ varie avec l'énergie des photons gamma. Que ce soit pour les scintillateurs ou les semi-conducteurs, la résolution est la somme de plusieurs contributions comme la fluctuation statistique, le bruit électronique, la dispersion dans la collection des charges (semi-conducteurs) ou des photons (scintillateurs), etc.

Détecteurs GeHP

On distingue deux types de détecteurs germanium : les détecteurs compensés au lithium Ge(Li) et les détecteurs au germanium hyper pur (GeHP). Les détecteurs Ge(Li) sont fabriqués de la même façon que les détecteurs Si(Li). Ce type de détecteur a été commercialisé depuis le début des années 60 jusqu'au début des années 80 [Knoll 1999]. Par la suite, ce détecteur a été remplacé par les détecteurs au germanium ultra-pur, dont les performances sont équivalentes pour un même volume actif mais qui permet notamment d'être ramené à température ambiante entre des mesures. En effet, le lithium diffusant à température ambiante, les détecteurs germanium compensés au lithium ne peuvent être utilisés à température ambiante. Il s'agit d'un cristal de germanium pur dont la concentration en impureté a été abaissée de 10^{13} à 10^{10} atomes.cm⁻³. Les détecteurs germanium existent sous trois configurations géométriques : planaire , coaxiale et puits [Courtine 2007].

- **La géométrie planaire** (figure 2.10 (1)) permet d'avoir une réponse du détecteur à basse énergie (de 1 keV à 1 MeV). C'est avec cette configuration que la résolution est la meilleure (tableau 2.1). L'épaisseur du volume actif peut aller jusqu'à 1 ou 2 cm, ce qui donne un volume de 10 à 30 cm³, ce qui est relativement faible.
- **La géométrie coaxiale** (figure 2.10 (2)) permet de contourner le problème de volume. Pour cette géométrie le volume actif de détection est significativement augmenté, qui peut atteindre 750 cm³. Par contre, la réponse en énergie se trouve décalée vers les hautes énergies : de 10 keV à 10 MeV. En plus, la résolution est moins bonne qu'avec la géométrie planaire (tableau 2.1).

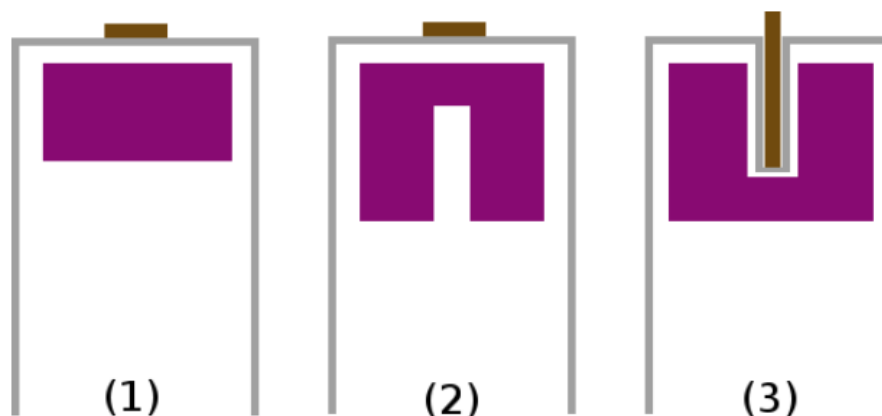


FIG. 2.10 – Forme schématique des différentes géométries des cristaux de germanium [Degrelle 2017]

Energie (keV)	Géométrie		
	Planaire (1)	Coaxial (2)	Puits (3)
122	0,65	0,80	1,20
1332	2,00	3,40	2,00

TAB. 2.1 – Résolution (en keV) d'un détecteur germanium dans les trois configurations possibles [Courtine 2007]

- **Avec la géométrie puits** (figure 2.10 (3)) la réponse du détecteur est dans le même intervalle en énergie que la géométrie coaxiale mais du fait que l'on peut introduire un échantillon à l'intérieur du détecteur, cela améliore la détection. La résolution à basse énergie est moins bonne qu'avec une géométrie coaxiale mais à haute énergie la résolution est meilleure avec la géométrie puits (tableau 2.1).

Critères de choix d'un détecteur GeHP

Le choix de la géométrie se fait en fonction de trois principaux critères : le rendement de détection (qui dépend du volume du cristal), la résolution en énergie et la gamme d'énergie. En règle générale, la résolution et la gamme d'énergie sont liées au volume. En effet, plus un détecteur sera volumineux plus sa gamme en énergie sera élevée et donc son rendement de détection aussi. En revanche, un détecteur de faible volume aura une gamme en énergie plus basse, un rendement de détection faible mais d'excellentes résolutions en énergie. Au laboratoire, les spectromètres germanium ont une efficacité relative comprise entre 40 et 65 % [Le Petit 2002]. Les détecteurs de type

puits sont employés pour les petites géométries de comptage, ce qui leur confère un important rendement de détection compte tenu de leur géométrie enveloppante.

En plus des critères de choix géométriques, l'utilisateur doit aussi baser son choix de détecteur sur les propriétés de l'échantillon à mesurer, à savoir :

- la quantité d'échantillon disponible ;
- sa nature (liquide, solide, gazeux) ;
- les niveaux d'activité rencontrés.

2.1.5 Electronique d'acquisition

Dans une chaîne de mesure le détecteur est relié à une chaîne d'acquisition électronique. C'est au niveau de cette chaîne d'acquisition que s'élabore le spectre qui sera ensuite analysé. En spectrométrie, les signaux fournis par un détecteur sont analysés par une chaîne électronique constituée généralement des éléments suivants (figure 2.11) : un préamplificateur, un amplificateur, un convertisseur analogique-numérique (ADC) et un analyseur multi-canaux (AMC).

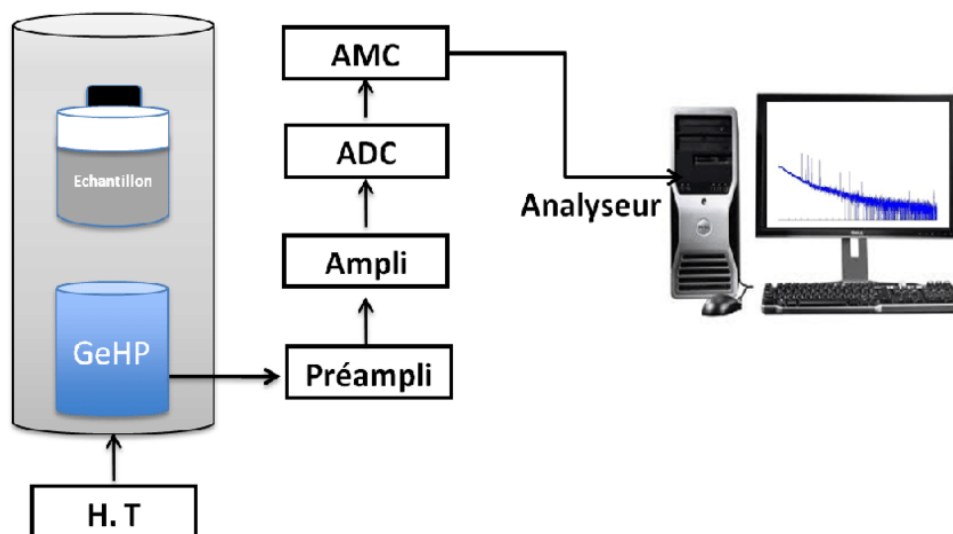


FIG. 2.11 – Electronique d'acquisition

Cette électronique peut se présenter sous de multiples formes. On voit dans les catalogues des dispositifs compacts qui intègrent toute la chaîne depuis la haute tension jusqu'à l'analyseur. D'autres intègrent tout dans un boîtier ou même sur une simple carte mais nécessitent un ordinateur pour l'analyse. Il existe également des électroniques d'acquisition en tiroir du format NIM qui transmettent ces données à un ordinateur distant.

La haute tension (HT) permet la polarisation en inverse du semi-conducteur (augmentation de la zone de déplétion). Le préamplificateur de charge, lié physiquement au détecteur, collecte les charges créées par un dépôt d'énergie. Son rôle est de convertir les charges en une tension, avec une amplitude d'impulsion en sortie du préamplificateur proportionnelle à la charge en entrée. En contrepartie, le signal est légèrement bruité. Un signal est séparé en deux parties, un temps de montée très court et une décroissance exponentielle qui suit une constante τ .

L'amplificateur met en forme le signal (quasi gaussienne) qui permet au codeur de quantifier de manière précise la hauteur du signal. Ensuite, il amplifie le signal jusqu'à une tension souhaitée à l'aide d'un gain. Le gain définit l'échantillonnage en énergie du spectre de sortie : plus le gain est élevé, plus la valeur maximale du spectre en énergie est faible. Par exemple, si l'amplificateur fournit une tension maximale de 5 V repartis sur 8000 canaux, le gain définit la valeur en énergie correspondant au dernier canal. L'amplificateur filtre aussi le signal pour le séparer du bruit électronique. La hauteur de l'impulsion est convertie en valeur numérique à l'aide du convertisseur analogique-numérique.

Enfin, l'analyseur multi-canaux convertit la hauteur de l'impulsion en une valeur de canal du spectre en énergie. Quelle que soit sa forme, l'analyseur fait appel à un logiciel dont les fonctions principales sont :

- la gestion des acquisitions ;
- la mesure des paramètres de la chaîne de spectrométrie (résolution, énergie, rendement) ;
- la recherche et la localisation des pics d'absorption totale ;
- le calcul de l'abscisse et de la surface de chaque pic ;
- le calcul de l'activité des radionucléides détectés à partir d'une table contenant les données nucléaires, compte tenu des paramètres propres à l'échantillon mesuré.

2.1.6 Analyse des échantillons par spectrométrie gamma

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

Etalonnage en énergie

L'étalonnage en énergie d'un spectromètre γ nécessite un certain nombre de sources radioactives émettrices de rayonnement γ . Les spectres obtenus correspondent aux raies des énergies de ces sources. Les raies d'absorption totale sont classées par leurs amplitudes (sommets des pics). La position du sommet des pics étalons peut donc être déduire de l'ajustement de simples gaussiennes par la méthode des moindres carrés dépendant du nombre de raies gamma employées pour l'étalonnage. La réponse énergie-canal s'écrit alors par une relation polynomiale comme le montre l'équation 2.17 :

$$E(keV) = a_0 + a_1C + a_2C^2 + a_3C^3 + \dots \quad (2.17)$$

où a_0 , a_1 , a_2 et a_3 sont les coefficients à déterminer et C le canal (position du pic) de l'AMC. Chaque canal est associé à une énergie.

Pour augmenter l'ordre du polynôme, un plus grand nombre de points d'étalonnage sont nécessaires. Le coefficient a_0 représente le décalage du point de départ par rapport à zéro, a_1 représente le gain et les deux autres coefficients voire plus représentent la partie non linéaire de la courbe d'étalonnage. Le spectromètre possède un seuil nécessaire pour éliminer le bruit de fond électronique, dont la valeur correspond à l'énergie seuil analysée. En se limitant au premier ordre, à partir de la pente de la droite d'étalonnage, une source peut être identifiée par les numéros du canal de ces pics et l'énergie correspondante. Depuis la bibliothèque où sont répertoriés les radio-isotopes en fonction de leurs énergies, l'émetteur gamma peut être identifié.

Etalonnage en efficacité

L'étalonnage en efficacité d'une chaîne de spectrométrie gamma consiste à établir la réponse de ce paramètre en fonction de l'énergie. En général, pour réaliser un étalonnage en efficacité, on doit utiliser des sources étalons qui sont de natures et de formes semblables à celles de l'échantillon à analyser. Elles sont référencées par une activité massique, volumique ou un taux d'émission photonique des principales raies. Une courbe de rendement en fonction de l'énergie est obtenue pour une géométrie et une matrice donnée. À partir de cette courbe, les efficacités de détection des différents pics du spectre de l'échantillon sont exploitées pour le calcul de l'activité. Cependant, lorsque l'échantillon est différent de l'étalon, il est nécessaire de corriger l'efficacité pour les effets de matrice et de pic-somme due aux transitions en cascade et aux empilements (cas des taux de comptage élevés). Pour une énergie E donnée, l'efficacité d'absorption totale peut être déterminée suivant l'équation 2.18 :

$$\varepsilon(E) = \frac{N_{net}(E)}{A(E) \times I_\gamma(E) \times t} \quad (2.18)$$

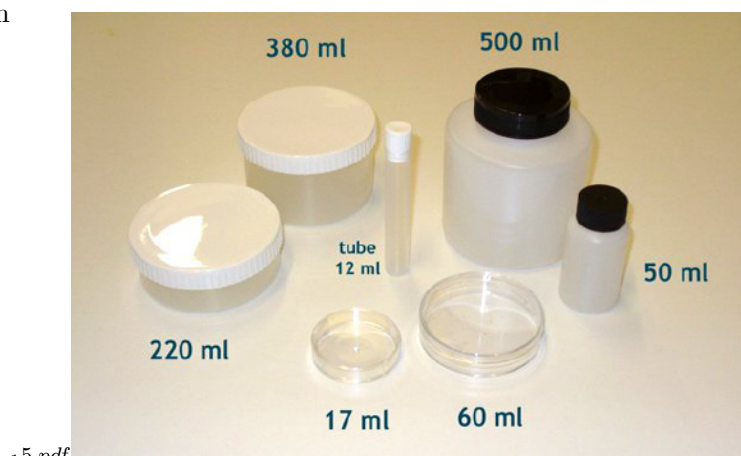
Deux fonctions sont souvent utilisées en spectrométrie pour le calcul de l'efficacité partir de la courbe d'étalonnage en efficacité. Elles sont le logarithme de l'efficacité fonction polynôme soit du logarithmique de l'énergie, soit de l'inverse de l'énergie (équation 2.19) :

$$\begin{aligned} \text{Appolog} &\rightarrow \ln[\varepsilon(E_i)] = \sum_j a_j \ln(E_i)^j \\ \text{Apocope} &\rightarrow \ln[\varepsilon(E_i)] = \sum_j a_j (E_i)^{-j} \end{aligned} \quad (2.19)$$

Géométrie d'étalonnage

Le rendement doit être déterminé avec une géométrie d'étalonnage similaire à la géométrie de mesure. Dans le cas où l'on ne dispose pas d'étalons correspondant à la géométrie de mesure, il faut effectuer un transfert de rendement. Selon le détecteur utilisé, des géométries d'étalonnage sont choisies afin d'augmenter la sensibilité de détection. Pour la mesure de routine de faible radioactivité, la position de l'échantillon au contact du capot du détecteur est privilégiée. L'utilisation d'un grand volume pour la mesure est souhaitable. En effet, la limite de détection après la correction des effets d'auto-absorption est améliorée d'un facteur 5 pour les faibles énergies et d'un facteur 7 à 8 pour des énergies plus élevées. Une panoplie de géométries standardisées est proposée et utilisée en fonction de l'activité et la quantité de l'échantillon (figure 2.12).

ech



15.pdf

FIG. 2.12 – Différentes géométries de conditionnement utilisées en spectrométrie gamma [Dziri 2013]

2.1.7 Cas particulier : spectrométrie γ à bas bruit de fond

Pour les mesures environnementales, les niveaux d'activités étant généralement faibles. À des très basses activités, la mesure précise qui exprime effectivement les niveaux d'activités devient très difficile ou presque impossible avec une chaîne de mesure ordinaire. La technique de spectrométrie gamma à l'aide de détecteurs germanium possède de nombreuses caractéristiques avantageuses ayant permis d'effectuer cette sélection, celle-ci c'est qu'on appelle spectrométrie gamma bas bruit de fond [Mouchel 1992]. L'expression « bas bruit de fond » signifie que ces spectromètres sont capables de mesurer des niveaux d'activité très faibles, 10 000 à 100 000 fois inférieurs à ceux que l'on rencontre généralement dans la nature. A titre d'exemple, les détecteurs Ge peuvent mesurer des activités de l'ordre de quelques mBq.kg^{-1} alors que la radioactivité du corps humain est de l'ordre de 50 Bq.kg^{-1} pour l'élément ^{40}K .

Dans le cadre des mesures des basses activités, l'analyse d'un échantillon peut donner un résultat très proche de celui obtenu lors de la détermination du bruit de fond du dispositif de mesure. Le critère décisif est la limite de détection qui est lié directement avec le bruit de fond de détecteur :

$$L_D \propto \frac{\sqrt{LTMH.B}}{\varepsilon.\Delta t}$$

Pour améliorer la limite de détection, le bruit de fond doit être éliminé ou réduit au plus bas possible de façon à accroître les sensibilités de détection pour pouvoir mesurer des activités à l'ordre de la trace.

Origine du bruit de fond d'un spectromètre gamma

Le bruit de fond est le comptage ou l'enregistrement d'un spectre dans des conditions normales d'utilisation de la chaîne de mesure en l'absence de la source dont on veut mesurer le rayonnement. La connaissance de ce bruit de fond est utile pour améliorer la justesse des résultats de mesure de l'activité, notamment dans le cas des basses radioactivités. Les composantes du bruit de fond ont essentiellement pour origine la radioactivité primordiale, le rayonnement cosmique et éventuellement la radioactivité artificielle qui est présente dans les matériaux constituant le spectromètre ou dans son environnement immédiat.

La radioactivité des matériaux : Elle a trois origines essentielles :

- une radioactivité naturelle qui regroupe les chaînes de ^{238}U , ^{235}U , ^{232}Th ainsi que ^{40}K ;
- une radioactivité artificielle (^{137}Cs produit des retombées des expérimentations d'engins nucléaires atmosphériques et de l'accident de Tchernobyl, ^{60}Co produit

de l'utilisation de sources industrielles...);

- une radioactivité cosmogénique créée par le rayonnement cosmique (^{54}Mn , ^{65}Zn , ^{60}Co , ^{63}Cu ...).

Généralement, tout matériau contient des radionucléides, avec des taux extrêmement variables d'un matériau à l'autre, pour minimiser le bruit de fond du détecteur, il convient donc de sélectionner au mieux les matériaux constituant le détecteur et le blindage.

Les rayonnements cosmiques : Il est composé principalement de muons (75%), d'électrons, de protons (25%) et de neutrons (quelques %); il est à l'origine de particules secondaires créées essentiellement dans le blindage et détectées par le spectromètre.

Détecteur Ge(HP) à bas bruit de fond

Pour pouvoir mesurer des activités de l'ordre du mBq.kg^{-1} , le bruit de fond du détecteur doit être minimisé au maximum. Ceci impose pour les spectromètres Ge(HP) les trois conditions suivantes :

- les matériaux du cryostat doivent être sélectionnés pour leur pureté radioactive par rapport à la radioactivité naturelle ;
- le détecteur Ge(HP) doit être entouré d'un blindage contre la radioactivité ambiante, généralement constitué de plomb, cuivre et polyéthylène borée contre les neutrons ;
- pour minimiser l'influence du rayonnement cosmique, le détecteur Ge(HP) doit être installé dans un site souterrain.

Réduction de bruit de fond et optimisation du blindage

Le blindage a pour but essentiel d'absorber tout rayonnement provenant de la radioactivité externe au détecteur. Cette radioactivité naturelle, dite ambiante est composée principalement de rayonnements gamma. C'est pourquoi on l'entoure généralement d'un blindage composé de matériaux lourds spécifiques. Le choix du blindage dépend généralement de la nature du matériau (densité et Z) et de son épaisseur. Au regard d'un certain nombre de caractéristiques (Z important, facilité d'usinage, coût, pureté...) un matériau préférablement s'impose pour arrêter les photons gamma, il s'agit du plomb. Les réflexions préliminaires à la réalisation de la protection d'un spectromètre gamma conduisent à se poser la question de l'épaisseur du blindage qui permettra l'optimisation du bruit de fond d'une manière significative [Hurtado 2006].

L'énergie E_γ la plus élevée, d'intensité non négligeable dans la radioactivité naturelle est la raie de 2614 keV de la transition $^{208}\text{Tl} \rightarrow ^{208}\text{Pb}$ (famille du Th-232). L'épaisseur du blindage doit donc être suffisante pour absorber ces photons : en général 15 cm de plomb sont nécessaires et suffisants. Ainsi, la dégradation des photons gamma produit un flux de photons de plus faibles énergies (par effet Compton) et de rayons X de 80 keV par réarrangement des couches électroniques.

Le plomb naturel contient un isotope radioactif le ^{210}Pb qui contribue au bruit de fond à basse énergie : des photons γ de 46 keV. Pour éliminer cette composante du fond on peut utiliser un plomb archéologique "très vieux" caractérisé par une très faible radioactivité. Le coût du plomb étant lié à sa pureté radiologique, on utilise généralement quelques centimètres de plomb de très faible radioactivité (2 à 5 cm), le complément à 15 cm s'effectuant avec un plomb de qualité moindre. Une autre étape consiste à optimiser la forme, les différentes dimensions de ce dernier et voire aussi la position du détecteur dans le blindage.

2.2 Modélisation par méthode Monte-Carlo

2.2.1 Généralités

Le terme "méthode Monte-Carlo" désigne toute méthode visant à calculer une valeur numérique approchée d'une grandeur physique en utilisant des procédés aléatoires, c'est-à-dire des techniques statistiques basées sur des lois probabilistes [Sayah 2012]. La méthode Monte-Carlo a connu son essor dans les années quarante avec Nicholas Metropolis, Stanislaw Ulam et John Von Neumann, dans le cadre du projet américain Manhattan pour le développement de l'arme nucléaire [Leslie 1962]. Elle repose sur la loi des grands nombres qui consiste à répéter un grand nombre de fois une expérience de manière indépendante, qui permet de justifier la convergence de la méthode. L'approximation ainsi obtenue est proche de la vraie valeur de l'espérance du phénomène étudié. Le recours à cette méthode de calcul est envisageable, particulièrement lorsque le problème étudié est complexe et que la solution analytique est impossible. Donc, les méthodes de Monte-Carlo ne reposent pas sur la résolution d'équations explicites. Ce sont des méthodes non déterministes. De nos jours, l'utilisation de ces méthodes de calcul s'est largement étendue à de nombreux domaines aussi variés que la physique, les mathématiques, la chimie, la médecine et la biologie. En effet, ces applications sont considérablement développées avec l'envolée des outils informatiques fournissant des moyens de calcul de plus en plus puissants.

2.2.2 Principe des méthodes Monte-Carlo pour la simulation du transport des particules dans la matière

Les méthodes Monte-Carlo deviennent un outil essentiel en physique de l'interaction rayonnement-matière. L'idée d'utiliser les simulations aléatoires est directement liée à la complexité des interactions radiatives dans un milieu donné. La possibilité d'inclure une très grande partie de la physique de l'interaction élémentaire sous la forme de modèles numériques de plus en plus élaborés les rendent à la fois plus prédictifs, précis et fiables.

Le principe de ces méthodes consiste à évaluer une donnée numérique à l'aide de processus aléatoires associés à une fonction de densité de probabilité décrivant un phénomène réel. De manière plus précise, on cherche à reproduire le déroulement d'un phénomène physique en supposant qu'il est le résultat d'une succession d'événements microscopiques probabilistes. Un générateur de nombres aléatoires est utilisé pour déterminer chaque nombre aléatoire ainsi que sa probabilité conformément à la fonction de densité de probabilité. De ces valeurs, l'estimateur est calculé et sa valeur enregistrée en mémoire. En effet, la répétition des processus aléatoires un grand nombre de fois permet d'estimer la moyenne de la grandeur recherchée à une précision statistique voulue. Une particule se déplaçant dans la matière possède une certaine probabilité de rencontrer un atome avec lequel elle va interagir. Après interaction, sa trajectoire et son énergie vont être modifiées en fonction de certaines lois de probabilité. La méthode Monte-Carlo consiste alors à suivre le parcours et les interactions successives d'un grand nombre de particules, dites histoires. Il est à noter que chaque interaction soit décrite par une fonction mathématique issue d'un modèle physique. Les fonctions de probabilité sont déterminées par les sections efficaces qui permettent de calculer le parcours de la particule entre deux interactions, le type d'interaction, l'énergie transférée, l'angle de déviation, les particules secondaires créées, etc.

Notion de section efficace et de libre parcours moyen

Considérons un faisceau de N particules par seconde qui bombarde une cible contenant ρ_n noyaux par unité de volume. Nous supposons que la cible est suffisamment mince, d'épaisseur dx , pour qu'une particule incidente n'interagisse qu'une fois au plus. De ce bombardement peut résulter une variété d'événements (diffusion élastique, inélastique, etc.). Le nombre moyen de particules dN ayant été perdu du faisceau par une réaction d'un type donné, est proportionnel à ρ_n , N , et dx . On note σ_i le coefficient de proportionnalité. Nous obtenons donc la relation [Sayah 2012] :

$$dN = -N\rho_n\sigma_i dx \quad (2.20)$$

ρ_n s'écrit : $\rho_n = \rho \times \frac{N_A}{A}$, avec ρ la masse volumique, N_A le nombre d'Avogadro et A le nombre de masse de la cible.

La quantité σ_i est appelée section efficace partielle correspondante à la réaction i étudiée. Elle possède la dimension d'une surface, exprimée en barn ($1\text{barn} = 10^{-24}\text{cm}^2$). En intégrant la relation précédente sur une cible épaisse, le nombre de particules restantes suite à l'interaction du faisceau sur une épaisseur x par la réaction i , est donné par :

$$N(x) = N_0 e^{-\rho_n \sigma_i x} \tag{2.21}$$

N_0 étant le nombre initial de particules incidentes. Puisqu'une particule peut générer plusieurs types de réactions, la section efficace totale σ_{tot} est donnée par la somme de toutes les sections efficaces partielles : $\sigma_{tot} = \sum_i \sigma_i$.

Donc, le nombre de particules $N(x)$ restant dans le faisceau après avoir parcouru une distance x , et en prenant en compte toutes les réactions possibles des particules, peut être exprimé par :

$$N(x) = N_0 e^{-\rho_n \sigma_{tot} x} \tag{2.22}$$

La quantité λ , définie par :

$$\lambda = \frac{1}{\rho_n \sigma_{tot}} \tag{2.23}$$

est appelé le libre parcours moyen qui correspond à la valeur moyenne de la distance parcourue par la particule entre deux réactions. Nous obtenons alors la relation :

$$N(x) = N_0 e^{-\frac{x}{\lambda}} \tag{2.24}$$

Le libre parcours moyen est inversement proportionnel à la section efficace totale ou macroscopique d'interaction dans le milieu traversé.

Echantillonnage statistique de fonctions de probabilité

La génération de la trajectoire d'une particule par le code Monte-Carlo est réalisée par un échantillonnage statistique de fonctions de probabilité. Ceci est effectué à l'aide de générateurs de nombres pseudo-aléatoires, obtenus par des algorithmes mathématiques. L'échantillonnage d'une loi de probabilité non uniforme sur la base d'une fonction de densité $f(x)$ se fait essentiellement par deux méthodes : la méthode de transformation et la méthode de rejection de Von Neuman.

La méthode de transformation consiste à déterminer à partir de la densité de probabilité $f(x)$ une fonction de répartition $F(x)$, cumulative de $f(x)$ avec :

$$F(x) = \int_{-\infty}^x f(u) du \tag{2.25}$$

Des nombres pseudo-aléatoires η sont ensuite tirés au hasard sur le segment $[0, 1]$. Les nombres $x = F^{-1}(\eta)$ sont repartis suivant la densité de probabilité $f(x)$.

La méthode de rejection de Von Neumann consiste à échantillonner la densité de probabilité $f(x)$ ayant une valeur maximale F_{max} et une valeur de x comprise dans un intervalle $[x_{min}, x_{max}]$. Une valeur de x est tirée suivant une loi uniforme sur le segment $[x_{min}, x_{max}]$. Un nombre aléatoire η distribué uniformément sur le segment $[0, 1]$ est généré. La valeur x est acceptée si $f(x)/F_{max} > \eta$, sinon elle est rejetée. Cette méthode est évidemment plus couteuse en temps de calcul que la méthode de transformation, puisqu'une partie des tirages est simplement rejetée.

Transport des particules dans la méthode Monte-Carlo

La simulation du transport d'une particule est effectuée en suivant son évolution (énergie, trajectoire) dans le milieu. À un instant donné, la particule est caractérisée par sa position dans l'espace, sa direction et son énergie. Dans ce travail on s'est focalisé essentiellement sur les interactions photon-matière.

La simulation de la vie d'un photon, de sa naissance jusqu'à son absorption totale ou sa sortie du milieu étudié prend en compte les différents événements possibles par un tirage aléatoire suivant les probabilités liées à chaque type d'interaction possible en fonction des matériaux définis (ou milieu atténuateur). Chacune des interactions est caractérisée par une section efficace σ_i :

- effet photoélectrique (σ_{PE});
- diffusion Compton (σ_C);
- création de paire (σ_{paire});
- diffusion Rayleigh (σ_R).

Considérons par exemple un photon juste après une collision. La première étape consiste à sélectionner la distance qu'il va parcourir avant la prochaine collision. Ceci est réalisé à partir du libre parcours moyen λ associé à la section efficace totale σ_{tot} du photon. Une distance x est alors tirée suivant la loi de probabilité exponentielle $e^{-x/\lambda}$. Ensuite, le processus d'interaction est choisi à partir des sections efficaces partielles σ_i . Un nombre aléatoire X est alors tiré entre 0 et 1 :

- si $0 \leq X < \left[\frac{\sigma_{PE}}{\sigma_{tot}} \right] \Rightarrow$ effet photoélectrique;
- si $\left[\frac{\sigma_{PE}}{\sigma_{tot}} \right] \leq X < \left[\frac{\sigma_{PE} + \sigma_C}{\sigma_{tot}} \right] \Rightarrow$ diffusion Compton;
- si $\left[\frac{\sigma_{PE} + \sigma_C}{\sigma_{tot}} \right] \leq X < \left[\frac{\sigma_{PE} + \sigma_C + \sigma_R}{\sigma_{tot}} \right] \Rightarrow$ diffusion Rayleigh;
- si $\left[\frac{\sigma_{PE} + \sigma_C + \sigma_R}{\sigma_{tot}} \right] \leq X < \left[\frac{\sigma_{PE} + \sigma_C + \sigma_R + \sigma_{paire}}{\sigma_{tot}} \right] \Rightarrow$ création de paires, si l'énergie du photon $\geq 1,022$ MeV.

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

TAB. 2.2 – Critères de fiabilité d’une simulation

2.2.3 Incertitudes statistiques

Toute valeur mesurée ou calculée, à l’exception du décompte d’éléments, possède une certaine incertitude. La prise en compte de cette incertitude est essentielle pour une interprétation correcte des résultats et les conclusions qui en découlent. Dans le cas d’un calcul de grandeur physique par la méthode Monte-Carlo deux sources d’incertitudes sont à considérer :

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

En pratique, les incertitudes statistiques sont généralement données par le code Monte-Carlo. En revanche, les incertitudes systématiques nécessitent en général un gros travail d’analyse des différents éléments du calcul [Dziri 2013].

2.2.4 Fiabilité d’une simulation

Pour un calcul de simulation, plusieurs grandeurs statistiques sont estimées, testées et affichées dans le fichier de sortie (résultats). Ces grandeurs renseignent sur la précision du résultats du calcul Monte-Carlo. A chaque estimation, nommée tally, de la quantité demandée par l’utilisateur, une incertitude statistique relative R est associée. L’incertitude R est proportionnelle avec $1/\sqrt{N}$, avec N est le nombre d’histoires [MCNP 2003]. Le tableau 2.2 donne la fiabilité d’un calcul Monte-Carlo en fonction de l’erreur relative R [Pelowitz 2007] :

2.2.5 Le code MCNP6

Le code MCNP (Monte Carlo N-Particle) a été développé par le Laboratoire de Los Alamos dans le cadre du projet Manhattan. Il est utilisé essentiellement dans

l'étude du transport des photons, des neutrons et des électrons seuls ou combinés dans des configurations géométries tridimensionnelles complexes constituées de dans les réacteurs nucléaires, etc. Au cours des années 90, MCNP a été étendu à certaines particules lourdes chargées dans sa version MCNPX (Monte Carlo N-Particles eXtended), ce qui a rendu possible la simulation des protons et des ions lourds [Dziri 2013]. Le code MCNPX possède le même principe de fonctionnement que MCNP, mais il permet le transport de 34 types de particules sur une gamme d'énergie allant de 1 keV à 100 GeV. MCNPX a encore 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 version utilisée est la version MCNP6 qui est apparue suite au regroupement des versions MCNP5 et MCNPX. La fusion des deux différentes équipes travaillant sur ces deux versions a permis l'obtention d'un code plus évolué [Degrelle 2017]. Les paramètres requis pour la simulation sont résumés dans un fichier d'entrée crée par l'utilisateur et relu par MCNP6 au départ de la simulation. Les résultats sont affichés dans le fichier de sortie avec les différentes observables en fonction des tallies demandés.

2.2.6 Structure du fichier d'entrée

Le code MCNP6 s'exécute à partir d'un fichier d'entrée qui se décompose en trois grandes parties, séparées par une ligne vide (figure 2.13) : les cartes des cellules, les cartes des surfaces et les cartes des données. Les deux premières permettent de construire l'ensemble géométrique voulu par la définition des cellules et des surfaces. La troisième partie permet de définir tous les processus physiques.

Généralement, le fichier d'entrée définit :

- la géométrie du problème à simuler ;
- la description des matériaux utilisés et la sélection des sections efficaces correspondantes à chacun de ces matériaux ;
- la définition de la source de particules incluant la nature des particules que l'on souhaite suivre, leur énergie, la position de la source et la direction initiale des particules émises par la source ;
- les techniques de réduction de variance pour diminuer les incertitudes statistiques et améliorer des résultats.

```

1ere Partie
  Définitions des cellules
    ----- Blanc -----
2eme Partie
  Définitions des surfaces
    ----- Blanc -----
3eme Partie
  Définitions:
    - Source
    - Intervalle d'énergie
    - Types de résultats voulus ( Tally)
    - Nombres d'histoires

```

FIG. 2.13 – Structure du fichier d'entrée MCNP.

Définition des cellules

Les cellules sont des boîtes constituant la configuration géométrique à simuler, de forme simple et homogène. Elles sont formées par la combinaison de plusieurs surfaces à l'aide des opérateurs booléens : d'intersection, d'union ou d'exclusion. Généralement, une cellule est décrite par un ensemble de paramètres définissant : les numéros de cellules et de matériaux attribués par l'utilisateur, la densité de matériau, les numéros des surfaces désignant la cellule avec les signes adéquats et les importances pour chaque type de particule. Un numéro de surface muni d'un signe (-) indique l'intérieur de la cellule, sinon son inverse. La formulation pour définir une cellule est la suivante [Nachab 2003] :

$$j \ m \ d \ geom \ params$$

avec

j : numéro de la cellule donnée par l'utilisateur,

m : numéro de la cellule si elle n'est pas vide,

d : densité du matériau en g.cm^{-3} (précédé par le signe -) ou en atomes.cm^{-3} (précédé par le signe +)

$geom$: signe de la cellule et les différents opérateurs booléens (espace, : et #),

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

Définition des surfaces

C'est dans ce bloc que sont définies la géométrie et les dimensions des différents matériaux à simuler. La création des surfaces peut se faire de plusieurs manières : par des équations, des points ou des macrobodies. Dans ce travail, on a utilisé la troisième méthode des macrobodies. Les surfaces macrobodies sont des formes géométriques déjà prêtes à l'utilisation. Les formes prédéfinies sont : RCC (cylindre), REC (cylindre elliptique), RPP (parallélépipède), SPH (sphère), WED (cale, coin), BOX (boite), TRC (cône), HEX (hexagone), T (tore circulaire), P (plan). MCNPX retranscrit ces géométries sous forme d'équations de surface. Les facettes sont assignées des numéros individuels sélectionnés par l'utilisateur en vue de leur exploitation dans les différents estimateurs.

Données physiques

Ce bloc permet de fournir toutes les caractéristiques des problèmes physiques autres que la géométrie, tels le type de particules transportées, les propriétés physiques des matériaux, la source de rayonnement, les estimateurs, les bibliothèques de sections efficaces à utiliser, la quantité et le type des données fournies dans le fichier de sortie, etc.

La source des rayonnements émis dans un problème est définie dans la carte SDEF du fichier d'entrée. Cette commande offre la possibilité de définir une très grande variété de sources. Les principaux paramètres à définir sont :

PAR : le type de particule que la source émet (p pour photon, n pour neutron, e pour électron et h pour proton).

POS : la position de la source

ERG : définit l'énergie en MeV de la source.

CEL : la cellule contenant la source

RAD : le rayon de la source si celle-ci est étendue

AXS : la direction d'émission de la source

EXT : la hauteur de la source

WGT : l'activité relative au temps d'acquisition de la source telle que : $WGT = \sum(A \times I) \times t$, où A est l'activité, I le rapport d'embranchement et t le temps d'acquisition.

Il existe d'autres paramètres supplémentaires permettant à une variable de prendre plusieurs valeurs. Pour les introduire, il faut inscrire la distribution Dn (n étant le numéro de la distribution) à la place d'une valeur numérique fixe. Chaque distribution utilisée est ensuite paramétrée par une ou plusieurs cartes : SIn (Source Information Card), SPn (Source Probability Card) et SBn (Source Bias Card). Le nombre total d'histoires à transporter dans le calcul est indiqué par la carte NPS . Le type de

Estimateur	Spécification	Type de particule
F1	Courant surfacique	n, p, e ,pe
F2	Flux surfacique moyen	n, p, e, pe
F4	Flux moyen sur une cellule	n, p, e, pe
F5	Flux en un point	n, p
F6	Énergie moyenne déposée dans une cellule	n, p, e
F7	Énergie moyenne de fission dans une cellule	n
F8	Pulse height tally	n, p, e, pe

TAB. 2.3 – Différents types d'estimateurs utilisés par MCNP

particules est précisé dans la carte *MODE*.

Estimateurs

Les estimateurs (tallies) sont des observables permettant de spécifier la grandeur physique que l'on veut obtenir à la fin du calcul MCNPX. Huit types d'estimateurs peuvent être utilisés simultanément dans MCNPX. Chacun d'entre eux fournit le résultat sous forme normalisée par histoire. Pour chaque estimateur, il faut préciser le type de particule ainsi que la surface à travers laquelle ou la cellule dans laquelle le résultat sera estimé. Les estimateurs se présentent de la manière suivante : $Fkn : X C1 C2...Ci$

Avec k : un nombre entre 0 et 99 pour différencier les tallies de même type.

n : un chiffre entre 1 et 8 pour indiquer le type d'estimateur calculé.

X : le type de la particule.

Ci : une cellule sur laquelle on veut calculer l'estimateur.

Le tableau 2.3 représente les différents types d'estimateurs disponible dans MCNPX. Notons que les estimateurs peuvent être associés à d'autres cartes afin d'avoir un résultat autre que celui spécifié par la carte Fn .

Matériaux

Comme indiqué précédemment les cellules sont constituées de matériaux qui sont définis par la carte Mn . Les éléments qui composent les matériaux sont définis selon la notation [Nachab 2003] :

$$Mn \text{ Z AID1 } fraction1 \text{ Z AID2 } fraction2, \dots$$

où Z AID indique l'élément i utilisé et il est décomposé en ZZZAAA.abx, où Z est le numéro atomique de l'élément considéré, AAA son nombre de masse, ab la librairie

des sections efficaces à utiliser et x la classe de la donnée. La fraction présente la composition élémentaire du constituant dans le matériau. Elle peut être définie en terme de fraction atomique ou en terme de pourcentage massique précédé par un signe moins. Dans le cas des photons et les éléments naturels, la valeur de AAA se ramène à 000 et ZAID s'écrit ZZZ000.

Réduction de la variance

L'efficacité d'un calcul de simulation dépend de deux paramètres principaux : la variance et le temps de calcul. Pour réduire les erreurs liées à la statistique, on peut augmenter le nombre de particules générées qui va réduire l'écart-type des histoires, mais par conséquent le temps de calcul augmente. Pour cette raison, la méthode de réduction de variance a été développée pour réduire l'incertitude sur la mesure sans pour autant trop augmenter le temps de calcul. Plusieurs méthodes de réduction de variance existent [Booth 1985] :

- Méthode de troncature : consiste à tronquer les espaces qui ne contribuent pas d'une manière significative aux comptages. Pour cela, on élimine les espaces sans importance dans le modèle final ou réduire la taille qui va permettre de minimiser le temps de calcul.
- Méthode du contrôle de la population : elle utilise la division des particules et la roulette russe afin de contrôler le nombre d'échantillons dans chaque région de l'espace. Dans les régions prépondérantes, on suit un nombre important de particules avec un poids faible. Le nombre faible de particules est suivi avec un poids fort.
- Méthode de médication de l'échantillonnage : l'échantillonnage s'applique pour les distributions qui envoient des particules dans une direction donnée ou qui se trouvent dans un intervalle d'énergie ou qui changent la nature de l'interaction dans le milieu. C'est une méthode qui modifie l'échantillonnage statistique afin d'augmenter le nombre de comptage par particule.
- Méthode partiellement déterministe : elle utilise des techniques déterministes telle que des estimateurs de l'événement ou le contrôle de la séquence des nombres aléatoires.

Chapitre 3

Etude par simulation des problématiques liées aux effets de matrice et de pic-somme

3.1 Modélisation du dispositif expérimental

La modélisation du dispositif de mesure a pour objectifs principaux l'optimisation de ses performances et la mise en place d'un moyen d'étalonnage et de caractérisation plus précis. En spectrométrie γ , la modélisation avec le code de calcul MCNP6 permet d'estimer les spectres des dépôts d'énergie dans le cristal du détecteur pour une source γ quelconque placée en face à celui-ci. Ensuite, les spectres simulés peuvent être comparés aux spectres expérimentaux.

Dans ce travail, le détecteur utilisé pour la quantification des émetteurs γ est un GeHP de configuration plannaire BEGe (Modèle BE 3825, CANBERRA), fait ainsi l'objet d'une modélisation à partir des dimensions fournies par le constructeur (figure 3.1) :

- une description de l'ensemble de détection formé par le détecteur, son support et son collimateur. Cette modélisation intègre les données physico-chimiques (densité et stœchiométrie) et nucléaires (sections efficaces) propres à chaque matériau ;
- une description géométrique de la source photonique, de sa localisation par rapport au détecteur et de la définition de son émission.

L'une des caractéristiques des détecteurs planaires est leur grande performance en matière d'efficacité pour la détection des photons gamma de basse énergie. Le BEGe peut justifier de cet avantage grâce notamment à sa très fine fenêtre d'entrée en carbone époxy d'une épaisseur de 0,6 mm. Le système de détection est caractérisé

3. Etude par simulation des problématiques liées aux effets de matrice et de pic-somme 60

par une efficacité relative de 20 % et d'une résolution nominale (FWHM) de 0,38 à 5.9 keV, 0,628 à 122 keV et 1,724 à 1332.5 keV. Il est doté d'une zone morte supérieure (frontale) très mince de l'ordre de $0,4 \mu m$. La zone morte latérale entourant la zone active du cristal est de l'ordre de 0,6 mm. Le cristal a une épaisseur de 2,55 cm et un diamètre de 3,55 cm.

Les matériaux qui entourent le cristal de germanium sont des matériaux de faible activité, notamment le cuivre du holder ainsi que l'aluminium du capot. Une paroi supplémentaire en plomb archéologique de 2 cm a été ajoutée à l'intérieur du blindage en plomb initial (15 cm) [Boumala 2018]. Cette configuration est donc faite de telle sorte à réduire efficacement le bruit de fond sur les spectres mesurés.

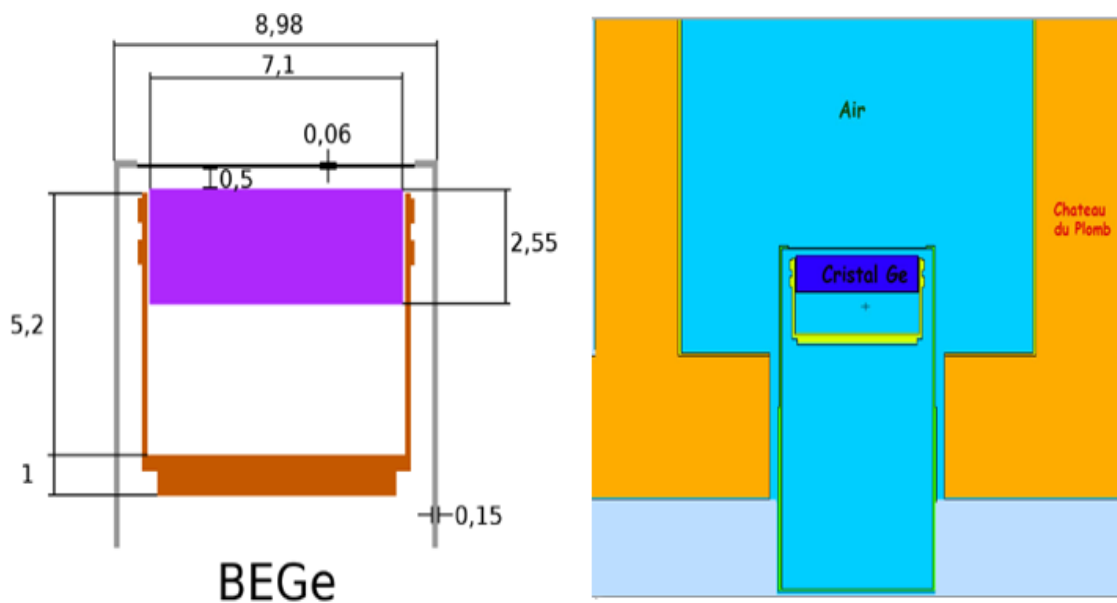


FIG. 3.1 – De gauche à droite : Visualisation des facteurs propres au détecteur plannaire BEGe; Modélisation du détecteur sous code de calcul MCNP6 .

Comme décrit dans le chapitre 2, MCNP6, par la carte SDEF, permet de définir la source radioactive. La modélisation des différentes énergies par les cartes SI et SP permet de reproduire un spectre expérimental. Plusieurs façons existent pour inclure le taux d'émission de la source dans la simulation; la carte WGT a été utilisée dans ce cadre. L'utilisation de la carte GEB, en introduisant les coefficients de la résolution déterminées expérimentalement ($a = 4.10^{-4}$, $b = 96.10^{-5}$, $c = 0,22$) en keV permet d'inclure la résolution expérimentale à la simulation. La distribution spectrale des photons déposées dans le détecteur en fonction de l'énergie est modélisée par le tally F8.

3.2 Étalonage du dispositif de mesure

L'analyse par spectrométrie gamma repose sur l'étude des pics d'absorption totale observés dans le spectre enregistré suite à la mesure d'un radionucléide donné. La relation entre le nombre d'impulsions enregistrées dans un pic et l'activité du radionucléide émettant les photons d'énergie correspondante nécessite la connaissance précise de l'efficacité d'absorption totale pour cette énergie, dans les conditions géométriques de la mesure. L'étalonnage en efficacité expérimental conduit à des couples de valeurs discrètes de type $(E, \varepsilon(E))$. La bonne interprétation des spectres relève donc du bon étalonnage des dispositifs de mesure, particulièrement les détecteurs gamma. Dans cette partie, nous nous intéressons à l'étalonnage du spectromètre. Trois types d'étalonnage sont essentiels en vue d'une métrologie faisant intervenir par la suite la simulation numérique, à savoir :

- l'étalonnage en énergie ;
- l'étalonnage en efficacité ;
- l'étalonnage de la largeur à mi-hauteur des pics photoélectriques (résolution).

3.2.1 Le standard IAEA-447

Pour l'analyse des échantillons environnementaux, le standard de référence IAEA-447 commercialisé par l'Agence Internationale de l'Énergie Atomique (AIEA) a été choisi [Shakhashiro 2012]. Ce standard est un échantillon de sol de nature organique contenant de la mousse (sol moussu). Ces principales caractéristiques sont les suivantes :

- il est commercialisé en assez grande quantité. Il est alors tout à fait possible de créer n'importe quelle géométrie selon l'échantillon à analyser ;
- il est de type sol, ce qui peut se rapprocher au mieux de la nature des échantillons à analyser ;
- les activités spécifiques des radioéléments sont certifiées.

Le standard IAEA-447 contient les radionucléides naturels tels que les isotopes 235 et 238 de l'uranium, le ^{232}Th ainsi que le ^{40}K . Il a accumulé en plus des radionucléides artificiels provenant des retombées atmosphériques comme le ^{137}Cs , ^{241}Am ainsi que les isotopes 239, 240 et 241 du plutonium. Ces radionucléides avec leurs pics respectifs (raies gamma caractéristiques) ont été utilisés pour déterminer la courbe d'efficacité expérimentale pour la gamme d'énergies compris entre 45 et 2615 keV. Les radionucléides présents dans ce standard et leurs activités spécifiques certifiées à la date de référence du "15 Novembre 2009" sont représentés dans le tableau 3.1 [Shakhashiro 2012].

Radionuclide	Valeur certifiée (Bq.kg ⁻¹)	Incertitudes (Bq.kg ⁻¹)
¹³⁷ Cs	425	10
²⁰⁸ Tl	13,0	0,5
²¹⁰ Pb	424	20
²¹⁰ Po	423	10
²¹² Pb	37,0	1,5
²¹⁴ Pb	26,0	2,0
²¹⁴ Bi	24,8	2,0
²²⁶ Ra	25,1	2,0
²²⁸ Ac	37,0	2,0
²³⁴ Th	25,5	2,0
²³⁴ U	21,8	3,0
²³⁸ U	22,2	0,8
²³⁸ Pu	0,15	0,015
²³⁹⁺²⁴⁰ Pu	5,3	0,16
²³² Th	37,3	2,0
²⁴¹ Am	2,2	0,2
⁴⁰ K	550	20
⁹⁰ Sr	5,0	0,3
²⁴¹ Pu	8,0	1,0

TAB. 3.1 – Activités du standard IAEA-447 à la date de référence

Les activités spécifiques, autrement dit activités restantes au jour de l'étalonnage du détecteur BEGe, sont estimées par le logiciel DARWIN. Ce logiciel élaboré et distribué par le CEA est un ensemble de programmes de calculs de grandeurs physiques intéressant le cycle du combustible en fonction de l'espace et du temps. La grandeur fondamentale calculée est la concentration des noyaux radioactifs classés traditionnellement en trois familles :

- les produits de fission (PF) ;
- les noyaux lourds (NL) ;
- les produits d'activation (PA).

Il faut noter qu'à priori un même nucléide peut figurer dans plusieurs familles. C'est le processus physique de sa formation qui décide de sa famille d'appartenance. Les grandeurs d'intérêt dérivées associées à la formation des noyaux actifs sont : les activités, les masses, les puissances résiduelles, les spectres ou encore les nombres de particules émises par groupe d'énergie (sources de rayonnements), les productions de neutrons par réactions (α, n) et fission spontanée ainsi que la radiotoxicité.

Pour notre étude, nous avons utilisé ce logiciel pour déterminer les activités des radioéléments d'une filiation radioactive. L'évolution en fonction du temps des concen-

Radionuclides	Activité (Bq.kg ⁻¹)	Incertitudes (Bq.kg ⁻¹)
¹³⁷ Cs	383,5	9,0
²¹⁰ Pb	378,7	18,0
²¹⁰ Po	378,7	9,0
²¹² Pb	8,3	0,3
²²⁶ Ra	25,1	2,0
²²⁸ Ac	15,5	0,8
²³⁴ U	21,8	0,8
²³⁸ U	22,2	0,8
²³⁸ Pu	0,15	0,02
²³⁹⁺²⁴⁰ Pu	5,3	0,2
⁴⁰ K	550	20
⁹⁰ Sr	4,5	0,3
²³² Th	37,3	2,0
²⁴¹ Am	2,2	0,2
²⁴¹ Pu	6,5	0,8

TAB. 3.2 – Activités du standard IAEA-447, au jour de l’acquisition estimées par le logiciel Darwin

trations des noyaux radioactifs est régie par des équations différentielles appelées équations de Bateman. Les activités spécifiques des radioéléments présents dans le standard IAEA-447 estimées par le logiciel DARWIN au jour de l’expérience sont répertoriées dans le tableau 3.2 [Tsilanzara 2000].

Une fois les activités restantes de ces radionucléides sont calculées (tableau 3.2), il est possible donc de choisir la géométrie de mesure du standard pour qu’elle soit identique à celle des échantillons qu’on veut analyser. On peut alors exprimer l’efficacité absolue de détection comme suit [Degrelle 2017] :

$$\varepsilon_{abs} = \frac{N}{A.I.t} \cdot C \quad (3.1)$$

avec C rassemblant toutes les éventuelles corrections à appliquer, à savoir : la correction d’auto-absorption et la correction de coïncidence.

Une quantité de 48 grammes du standard IAEA-447 a été emballée et scellée dans un conteneur en polyéthylène de géométrie standardisée SG50 pendant 4 semaines avant d’effectuer les mesures, afin d’assurer l’équilibre séculaire. Ensuite, l’étalon est positionné au contact de la fenêtre du détecteur et mesuré pendant 250.10³ s. Généralement, les échantillons environnementaux présentent des niveaux d’activité faibles. Pour avoir des résultats statistiquement significatifs, il est nécessaire d’effectuer des me-

sures sur des durées de comptage relativement longues, qui peuvent aller jusqu'aux plusieurs jours.

3.2.2 Étalonnage en énergie

La calibration en énergie permet de définir un lien entre le numéro de canal et l'énergie. Cette correspondance canal-énergie doit être réalisée avant toute acquisition, sous peine d'obtenir des spectres gamma décalés en énergie. Pour la réaliser, la nature de la source à utiliser n'est pas un critère. Elle peut être volumique, ponctuelle, monoénergétique ou multi-émettrice. La seule condition nécessaire est de connaître avec précision l'énergie des photons qu'elle délivre.

L'étalonnage en énergie du détecteur BEGe a été réalisé dans un premier temps avec une source ponctuelle de ^{60}Co émettant des photons γ à 1,17 MeV et 1,33 MeV (figure 3.2). Cela a permis de repérer un éventuel décalage en énergie. La calibration complète a ensuite été réalisée avec une source volumique de ^{152}Eu émettrice de photons γ sur une large gamme d'énergie allant de 120 à 1400 keV. Les canaux et les énergies correspondantes sont reliés par une relation polynomiale de type [Le Petit 2002] :

$$E = \sum_{i=0}^n a_i \cdot x^i$$

où i représente la position du pic d'énergie E et les coefficients a_i sont déterminés selon la méthode des moindres carrés. Cette relation peut être obtenue directement par le logiciel Génie 2000, ou peut être trouvée manuellement en répertoriant le numéro de canal associée à son énergie. L'étalonnage réalisé pour le détecteur BEGe donnait une relation où $n = 2$. Cet étalonnage en énergie est très important, notamment pour pouvoir utiliser les bibliothèques de données, les radioéléments étant définis à partir des énergies de leur photons γ émis. Nous verrons par la suite que cet étalonnage est nécessaire pour pouvoir utiliser la simulation numérique dans le but de se rapprocher au mieux de l'expérience. La figure 3.2 représente la droite de calibration en énergie du détecteur BEGe.

3.2.3 Spectre expérimental de l'IAEA-447

La figure 3.3 représente le spectre expérimental du standard IAEA-447 mesuré en utilisant le détecteur BEGe pour un temps d'acquisition de 250.10^3 secondes. Les flèches indiquent les pics caractéristiques de chaque émetteur gamma présents. L'identification des pics se fait à partir des bibliothèques dans Genie 2000 contenant

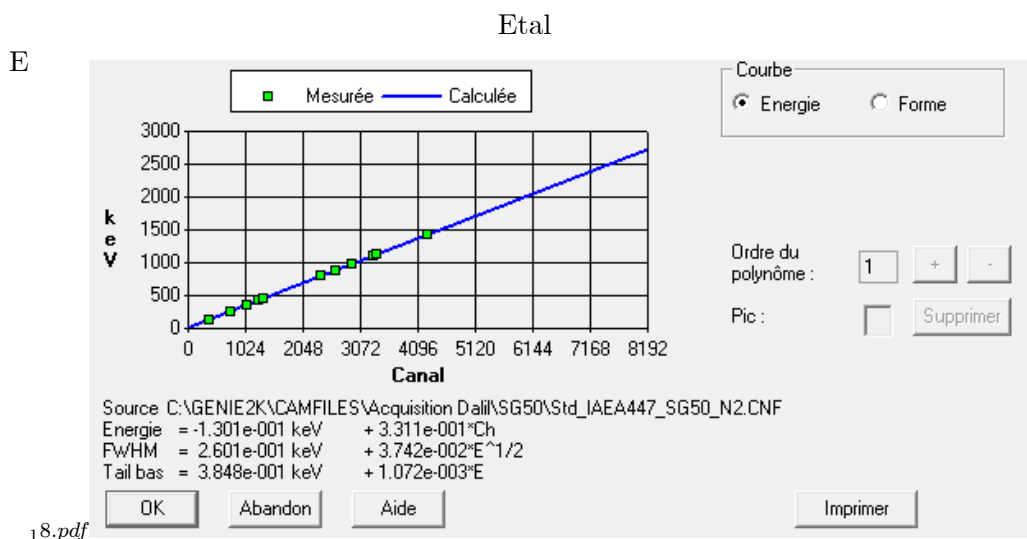


FIG. 3.2 – Droite d'étalonnage en énergie donnée par le logiciel Génie 2000

toutes les informations sur les radionucléides (énergie, probabilité d'émission...). La bibliothèque utilisée dans ce travail est Lib-Sediment.NLB qui contient les descendants de ^{238}U , ^{232}Th et l'élément primordial ^{40}K .

Le tableau 3.4 présente les radionucléides des chaînes de l'uranium-238 et du thorium-232 les plus facilement mesurables par spectrométrie gamma ainsi que les caractéristiques des rayonnements associés [énergie et intensité des raies].

3.2.4 Étalonnage en efficacité

L'étalonnage en efficacité détermine la relation entre le nombre de coups relevés sur le spectre et le taux de désintégration des isotopes. Il est indispensable pour mener une analyse quantitative des radioéléments présents dans les échantillons. L'activité des échantillons reposera sur cet étalonnage, de ce fait s'il y a une erreur sur l'efficacité, celle-ci se reportera inévitablement sur l'activité.

Le premier critère pour choisir la source ou l'échantillon standard qui nous permettra d'obtenir notre courbe étalon est la faible incertitude associée aux activités connues des radioéléments qui y sont présents. Le deuxième critère est la similitude entre les caractéristiques physico-chimiques du standard et de l'échantillon d'étude, c'est-à-dire la même géométrie et la même matrice. Nous verrons, dans la suite de ce chapitre, que ce critère est primordial et qu'une différence peut engendrer une mauvaise estimation de l'activité de l'échantillon d'étude. Dans l'idéal, les radioéléments présents dans le standard devraient être monoénergétiques afin d'éviter tout problème de coïncidence

3. Etude par simulation des problématiques liées aux effets de matrice et de pic-somme

Radionucléide	Période	Energie des principales raies γ en keV et [intensité, en %]
^{232}Th	$1,405 \cdot 10^{10}$ ans	Raies d'intensité faible
^{228}Ra	5,75 ans	13,52 [1,6]
^{228}Ac	6,13 heures	99,45 [1,3], 129,1 [2,8], 209,4 [4,4], 270,3 [3,6], 328 [3,2], 338,4 [11,5], 409,4 [21,1], 463 [4,5], 755,2 [1,05], 772,1 [1,6], 794,8 [4,6], 835,6 [1,8], 911,1 [27,8], 946,6 [5,2], 968,9 [16,7], 1495,8 [1], 1587,9 [3,6], 1630,4 [1,9]
^{228}Th	1,913 an	84,4 [1,22]
^{224}Ra	3,66 jours	241 [4,1]
^{216}Po	0,15 seconde	Raies d'intensité faible
^{212}Pb	10,64 heures	238,6 [43,5], 300,1 [3,3]
^{212}Bi	60,55 minutes	39,9 [1,0], 727,3 [6,6], 785,4 [1,1], 1620,7 [1,5]
^{212}Po	$0,31 \cdot 10^{-6}$ s	Raies d'intensité faible
$^{208}\text{Tl} [**]$	3,07 minutes	277,3 [6,4], 510,8 [22,8], 583,2 [85,1], 763,1 [1,9], 860,7 [12,5]
^{238}U	$4,468 \cdot 10^9$ ans	15 [8]
^{234}Th	24,10 jours	63,3 [4,5], 92,4 [2,6], 92,8 [2,6]
$^{234\text{m}}\text{Pa}$	1,17 minute	Raies d'intensité faible
^{234}U	$2,445 \cdot 10^5$ ans	Raies d'intensité faible
^{230}Th	$7,7 \cdot 10^4$ ans	Raies d'intensité faible
^{226}Ra	1622 ans	11,6 [1,2], 186,2 [3,3]
^{218}Po	3,05 minutes	Raies d'intensité faible
^{214}Pb	26,8 minutes	53,2 [1,1], 74,8 [6,2], 77,1 [10,4], 86,8 [4,6], 242,0 [7,4], 295,2 [18,7], 351,9 [35,8], 785,9 [1,1]
^{214}Bi	19,9 minutes	609,3 [45], 665,5 [1,6], 768,4 [4,8], 806,2 [1,2], 934,1 [3,1], 1120,3 [14,9], 1155,2 [1,7], 1238,1 [6,0], 1280,9 [1,5], 1377,7 [4,2], 1401,5 [1,4], 1408 [2,5], 1509,2 [2,1], 1661,1 [1,2], 1729,6 [3,1], 1764,5 [16,1], 1847,4 [2,1]
^{214}Po	$164,3 \cdot 10^{-6}$ s	Raies d'intensité faible
^{210}Pb	22,3 ans	46,5 [4,1]
^{210}Bi	5,012 jours	Raies d'intensité faible
^{210}Po	138,38 jours	Raies d'intensité faible

FIG. 3.4 – Emissions gamma des radionucléides des familles naturelles

Radionucléide	Raies gamma interférées (keV)	Proportion dans le pic (%)
^{234}Th	63,28 (^{234}Th) – 63,81 (^{232}Th)	98,2
^{226}Ra	186,21 (^{226}Ra) – 185,72 (^{235}U)	57,1
^{212}Pb	238,63 (^{212}Pb) – 242,00 (^{214}Pb)	62,4
^{40}K	1460,82 (^{212}Pb) – 1459,14 (^{228}Ac)	94,8

TAB. 3.3 – Facteur correctifs d’interférences pour certains radionucléides

blindage de l’enceinte de mesure. La présence d’autres pics peut être imputée à une légère contamination du détecteur ou des matériaux situés à proximité. Un troisième type d’interférence à considérer est celui du dosage d’un radionucléide déjà présent dans le bruit de fond de l’ensemble spectrométrique (par exemple ^{40}K ou ^{137}Cs). Ces deux derniers cas sont plus difficiles à traiter car l’importance de la contribution "parasite" (issue du bruit de fond) dans le pic à déconvoluer ne peut être connue que par une mesure séparée préalable, et par conséquent pour des conditions de mesure non rigoureusement identiques, alors que dans le premier cas il s’agit de la même mesure.

Dans notre cas, vu la présence des radionucléides primordiaux dans le standard d’étalonnage utilisé plusieurs pics en interférence peuvent avoir lieu, alors des facteurs correctifs sont requis pour déterminer la surface nette du pic d’intérêt. La courbe d’efficacité obtenue donc a été corrigée pour les raies gamma interférées aux pics analytiques utilisés pour la détermination des raies principales des séries ^{238}U et ^{232}Th , tel que le ^{208}Tl , le ^{212}Pb , le ^{226}Ra , le ^{234}Th et le ^{40}K . Le tableau 3.3 présente les principaux facteurs correctifs d’interférences pour ces radionucléides [Shakhashiro 2012, Gilmore 2008].

Calcul des efficacités

La courbe d’efficacité est déterminée par l’ajustement d’une expression polynomiale appliquée aux valeurs expérimentales obtenues au moyen des sources étalons en utilisant l’équation 1.20. L’incertitude associée à cette efficacité est donnée par la formule suivante :

$$\frac{\Delta\varepsilon}{\varepsilon} = \frac{\Delta A}{A} + \frac{\Delta N}{N} + \frac{\Delta I}{I} + \frac{\Delta t}{t}$$

Un certain nombre de fonctions analytiques décrivant la dépendance de l’efficacité du pic d’absorption totale en fonction de l’énergie ont été proposé dans la littérature. Le modèle le plus courant est l’interpolation polynomiale dans un système de coordonnées logarithmiques [Le petit 2002].

L’ajustement utilisé dans le cadre de cette étude est une fonction polynômiale, dite fonction Appolog, d’ordre 4 appliquée aux efficacités définies précédemment, la

réponse en efficacité en fonction de l'énergie s'écrit forme [Gray 1985, Hammed 1993] :

$$\ln \varepsilon = a_0 + a_1 \ln E + a_2 \ln E^2 + a_3 \ln E^3 + a_4 \ln E^4$$

L'ordre ($n = 4$) est l'ordre adéquat qui regroupe les meilleurs paramètres statistiques tel que le facteur de confiance, qui doit être le plus petit dans le sens de la méthode des moindres carrés. Les coefficients d'ajustement non linéaires a_i permettant de déterminer l'efficacité de détection pour n'importe qu'elle énergie gamma retrouvée dans le spectre [Boumala 2018]. La figure 3.5 représente la courbe d'étalonnage en efficacité expérimentale pour le standard de référence IAEA-447.

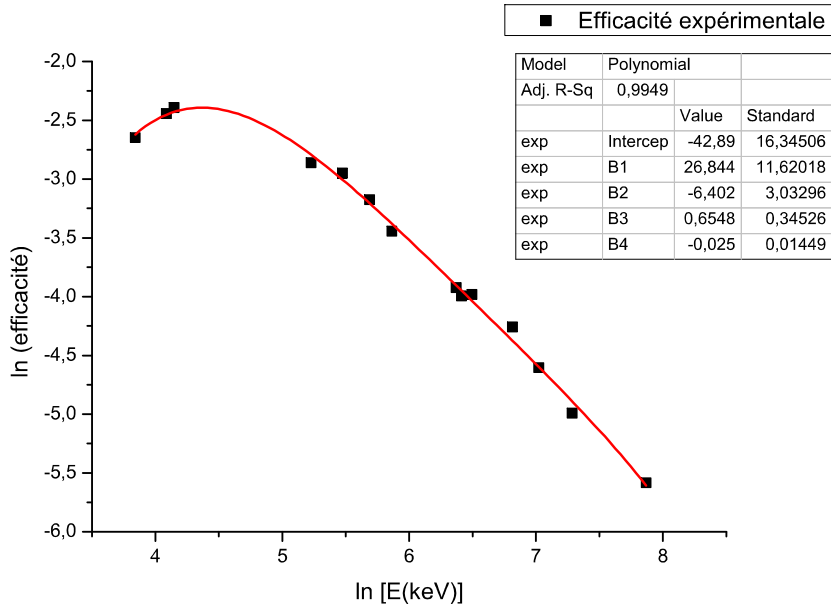


FIG. 3.5 – Courbe d'étalonnage en efficacité expérimentale du standard IAEA-447

On remarque bien que l'allure de cette courbe est identique à celle des sections efficaces d'interactions des rayons gamma avec le matériau détecteur. Généralement, l'allure de la courbe d'efficacité dépend de la nature du détecteur, elle augmente à basse énergie jusqu'à un maximum vers 100 à 200 keV, puis décroît à des énergies plus élevées.

3.2.5 Étalonnage de la largeur à mi-hauteur des pics

L'étalonnage de la résolution permet de relier la largeur à mi-hauteur des pics d'absorption totale à l'énergie des photons gamma. La connaissance précise de la résolution

du détecteur pour n'importe qu'elle énergie est indispensable pour des études par simulation numérique. Pour ce type d'étalonnage le choix des sources n'est pas vraiment important, cependant il est recommandé d'éviter de prendre des pics présentant des rayons X. Dans notre étude, nous avons choisi des sources mono-énergétiques d' ^{241}Am , de ^{137}Cs et de ^{60}Co . Il est ensuite simple de relever la largeur à mi-hauteur proposée par Génie 2000 en fonction de l'énergie des photons gamma. La courbe de tendance choisie pour représenter la largeur à mi-hauteur (FWHM) en fonction de l'énergie E est de la forme :

$$FWHM = A + B \cdot \sqrt{E + C \cdot E^2}$$

La résolution en énergie est définie selon trois facteurs [Knoll 1999] :

- la fluctuation du nombre de porteurs de charges ;
- la non-uniformité de la collection des charges ;
- les effets d'élargissement dus aux composés électroniques (bruit de la chaîne électronique).

À basse énergie, la contribution du bruit électronique et de la collection des charges est dominante, alors que l'élargissement dû aux porteurs de charges est significatif à plus haute énergie. Le choix de cet ajustement s'est fait en fonction de celui utilisé dans notre code de calcul pour nos études numériques, puisque MCNP6 impose cet ajustement.

3.2.6 Validation du modèle avec la courbe d'efficacité expérimentale

En se basant sur les dimensions et cotes du dispositif fournies par le constructeur, nous allons essayer de reproduire par simulation les mesures expérimentales de manière à valider l'ensemble de spectrométrie (étalon et détecteur BEGe) que nous avons défini. La modélisation que l'on désire faire consiste à simuler les spectres des dépôts d'énergie dans le cristal du détecteur pour l'étalon IAEA-447. Les spectres simulés peuvent être ensuite comparés aux spectres expérimentaux. La validation du modèle simulé consiste à déterminer la réponse du détecteur, c'est-à-dire à déterminer la courbe d'étalonnage en efficacité calculée par le code MCNP6 en fonction de la géométrie source-détecteur et du standard pour une large gamme d'énergie. Cet étalonnage a été réalisé préalablement d'une manière expérimentale.

Mis à part la connaissance des dimensions des différents constituants du détecteur, pour une simulation plus précise la bonne connaissance de la matrice du standard (IAEA-447) est indispensable. Cependant, la composition chimique précise est inconnue et il est très peu probable qu'elle soit obtenue. De plus, la masse volumique apparente ne peut être identique selon le tassement appliqué lors du remplissage des

porte échantillons (SG50). Nous verrons dans ce qui suit les impacts d'une matrice différente sur l'efficacité de détection. Afin de pallier cette limite, on a proposé plusieurs matrices supposées équivalentes à celle du standard avec différentes compositions chimiques. Ces dernières sont bien sûres fictives dans le sens où l'on ne définira pas les éléments qui composent réellement le standard IAEA-447, ce qui traduit par des propriétés d'atténuation des photons gamma différentes. Pour faire un choix, nous avons simulé les spectres des dépôts d'énergie corespondants à ces matrices supposées équivalentes. La comparaison du spectre expérimental avec l'ensemble des spectres simulés par MCNP6 va permettre de déterminer la matrice fictive la plus proche de celle du standard.

- Cas d'une matrice "équivalente Sol" de composition chimique : O (50,02 %), Si (34,69 %), Al (5,93 %), Fe (1,68 %), Ca (1%),K (2,47 %), Na (1,56 %), Mg (0,25 %) et Ti (0,16 %).

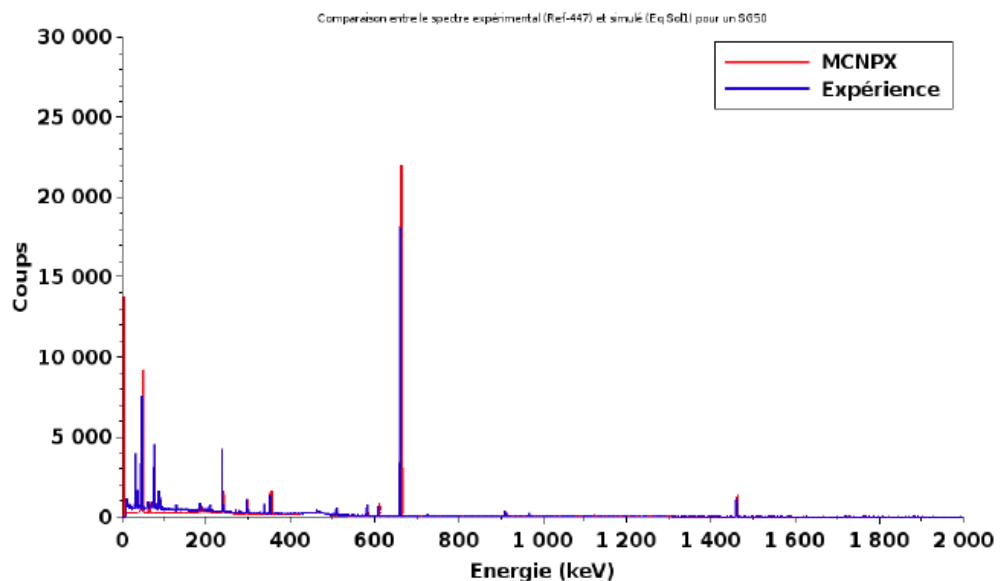


FIG. 3.6 – Comparaison spectre expérimental et simulé avec une matrice équivalente sol

- Cas d'une matrice "équivalente Tourbe" de composition chimique : C (60 %), O (18,5 %), Si (11,5 %), Al (3 %), Ca (2 %) et Fe (5 %).
- Cas d'une matrice "équivalente Sédiment" de composition chimique : O (30 %), Si (11 %), Al (4,5 %), Fe (25,4 %), H (0,23 %), Ti (0,5 %), Mg (1,5 %), Ca (17,2 %), Ca (1 %), Na (1,6 %) et Mn (0,096 %).

À partir de la comparaison des spectres simulés avec le spectre expérimental, on a pu

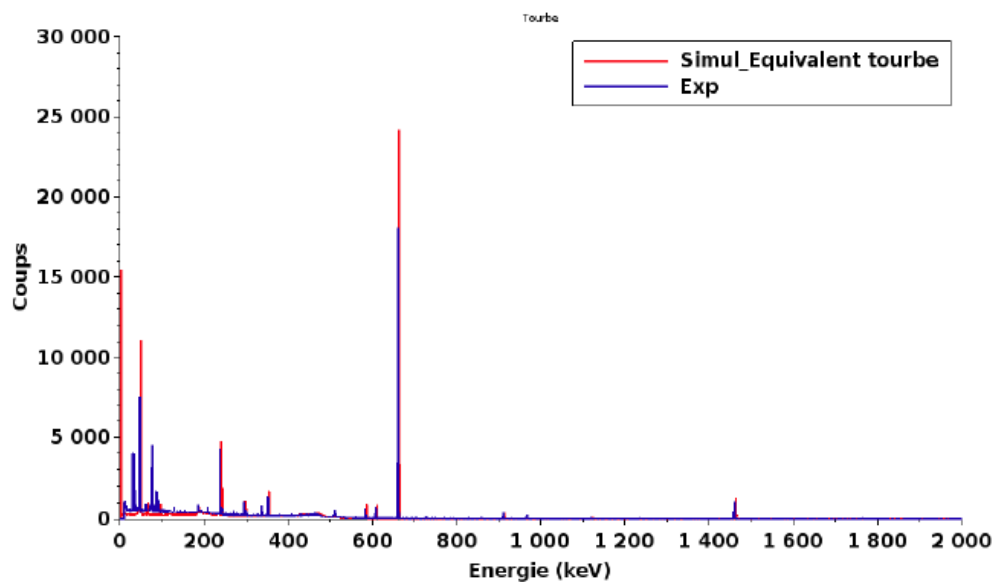


FIG. 3.7 – Comparaison spectre expérimental et simulé avec une matrice équivalente Tourbe

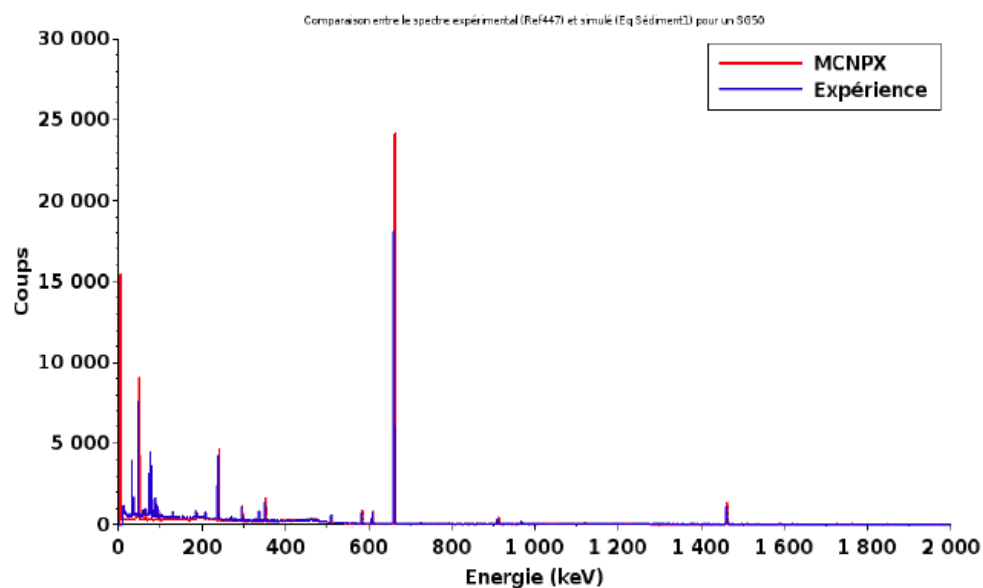


FIG. 3.8 – Comparaison spectre expérimental et simulé avec une matrice équivalente sédiment

tirer la conclusion suivante : la matrice fictive la plus proche de celle de l'étalon est la matrice "équivalente Sol". Pour le reste des simulations, on va supposé que la matrice fictive étalon est celle du Sol de composition chimique : O (50,02 %), Si (34,69 %), Al (5,93 %), Fe (1,68 %), Ca (1 %), K (2,47 %), Na (1,56 %), Mg (0,25 %) et Ti (0,16 %). En utilisant le spectre simulé obtenu avec cette matrice de sol, on a pu déterminer la courbe d'étalonnage calculée (figure 3.9)

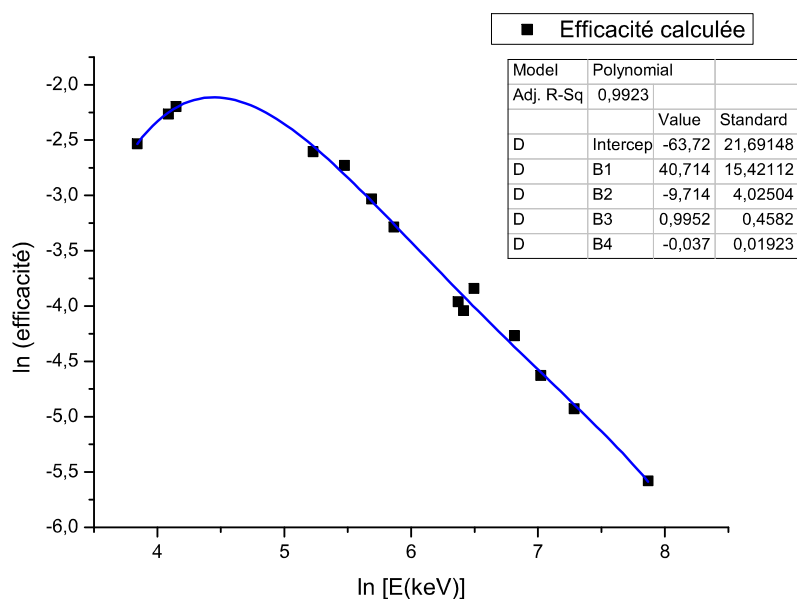


FIG. 3.9 – Courbe d'étalonnage calculée du standard IAEA-447

On voit clairement que l'allure générale de cette courbe calculée (figure 3.9) est de la même forme que celle obtenue expérimentalement. La figure 3.10 montre la comparaison des deux courbes d'efficacités expérimentale et calculée en fonction de l'énergie.

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

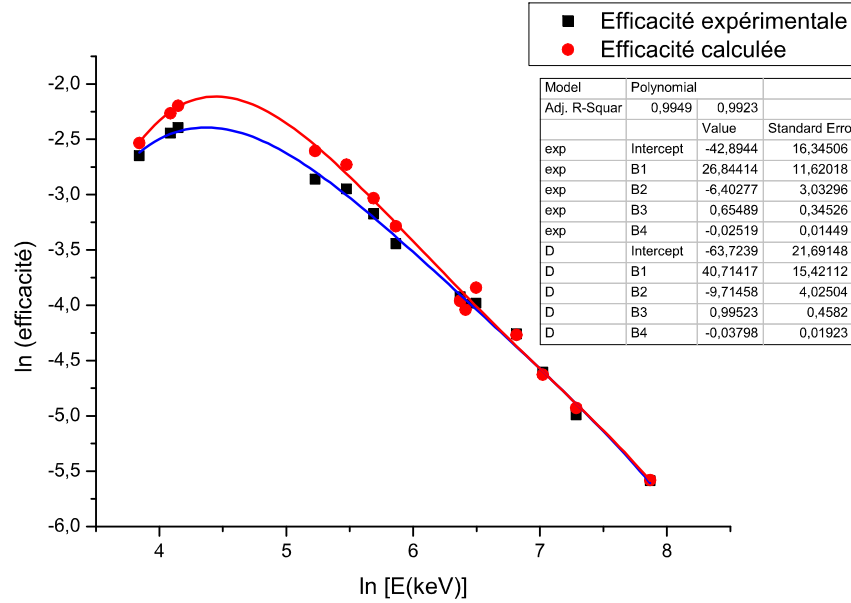


FIG. 3.10 – Comparaison des efficacités expérimentales et simulées pour une géométrie SG50 en contact.

Nucléide	Energie	Intensité (%)	ε_{Exp}	ε_{Sim}	Rapport ($\varepsilon_{Exp}/\varepsilon_{Sim}$)
²¹⁰ Pb	46,54	4,25	0,070 ± 0,0035	0,079	0,88
²⁴¹ Am	59,54	35,70	0,086 ± 0,0038	0,104	0,83
²³⁴ Th	63,28	4,80	0,091 ± 0,0045	0,111	0,82
²²⁶ Ra	186,21	3,35	0,057 ± 0,0029	0,073	0,77
²¹² Pb	238,63	43,60	0,052 ± 0,0021	0,065	0,80
²¹⁴ Pb	295,22	18,50	0,041 ± 0,0016	0,048	0,86
²¹⁴ Pb	351,93	35,60	0,032 ± 0,0010	0,037	0,85
²⁰⁸ Tl	583,19	85,00	0,019 ± 0,0007	0,019	1,03
²¹⁴ Bi	609,31	45,49	0,018 ± 0,0006	0,017	1,04
¹³⁷ Cs	661,66	84,99	0,018 ± 0,0006	0,021	0,86
²²⁸ Ac	911,2	25,80	0,014 ± 0,0004	0,014	1,00
²¹⁴ Bi	1120,29	14,90	0,010 ± 0,0003	0,009	1,02
⁴⁰ K	1460,82	10,60	0,006 ± 0,0003	0,007	0,93
²⁰⁸ Tl	2614,51	99,75	0,003 ± 0,0002	0,003	0,99

TAB. 3.4 – Comparaison des efficacités expérimentales et simulées par MCNPX pour le standard IAEA-447

D'après le tableau 3.4 et la figure 3.10, nous pouvons constater que les valeurs simulées sont toujours supérieures aux valeurs expérimentales, exceptées pour ^{228}Ac à 911,2 keV et pour l'isotope primordial du potassium ^{40}K à 1460,82 keV, en raison de la présence de cet isotope partout et principalement d'origine humaine.

3.3 Effet d'auto-absorption

L'auto-absorption est un facteur déterminant en spectrométrie gamma. Il se manifeste par des pertes d'impulsions et la sous-estimation de l'efficacité pour un rayonnement d'une énergie donnée. Il dépend de l'énergie incidente, de la densité de l'échantillon, de son volume et du nombre atomique Z du milieu atténuateur [Dziri 2012]. Il concerne les échantillons qui ont des propriétés d'atténuation différentes de celles de l'étalon. L'auto-absorption concerne donc les photons qui n'atteignent pas le détecteur à cause de leur atténuation dans la matrice elle-même, les conteneurs ou bien les capots des détecteurs. Afin de prendre en considération les pertes causées par ce phénomène, il est nécessaire de corriger la surface du pic d'absorption totale. Plusieurs techniques existent pour déterminer les facteurs correctifs d'auto-absorption, comme la mesure par transmission de l'échantillon ou la simulation Monte-Carlo. Dans cette section, on mettra l'accent sur la contribution de la composition chimique dans les pertes de comptage pour des énergies inférieures à 100 keV. Pour la simulation, lorsqu'un système de détection est correctement modélisé, les facteurs de correction de densité et de composition chimique se calculent en simulant différentes densités d'échantillon.

3.3.1 Mise en évidence des phénomènes par simulation numérique

Le but de cette étude est de montrer l'impact de l'auto-absorption sur des mesures environnementales. Le travail de simulation s'effectue sur la modélisation du détecteur BEGe. Celui-ci est notamment utilisé pour la quantification des photons gamma de faible énergie. Il est donc nécessaire de connaître l'influence de l'auto-absorption sur l'efficacité de détection. La simulation de référence se base sur les caractéristiques suivantes :

- une matrice équivalente Sol de composition chimique : O (50,02 %), Si (34,69 %), Al (5,93 %), Fe (1,68 %), Ca (1 %), K (2,47 %), Na (1,56 %), Mg (0,25 %) et Ti (0,16 %);
- la hauteur de remplissage est de 4,2 cm;
- la masse de l'échantillon est 48 g.

L'étude est réalisée à l'énergie 46,5 keV caractéristique de ^{241}Am afin de comprendre comment agit l'auto-absorption surtout à basse énergie. Pour ce faire, nous

allons simuler une source quasi-ponctuelle noyée dans une tige de plexiglas. La partie radioactive émettrice de photons est en réalité un disque très mince de diamètre 3 mm. Les facteurs qui contribuent aux effets d'auto-absorption étant la densité, la composition chimique et l'épaisseur d'échantillon traversée par les photons. Nous proposons de faire une série de simulations en fixant un facteur et en faisant varier les deux autres facteurs pour déterminer leur contribution dans le phénomène d'auto-absorption. Cette étude permettra de définir les caractéristiques physico-chimiques que doit avoir le standard par rapport aux échantillons d'étude dans le but d'améliorer la courbe d'efficacité. Chacune des simulations de cette étude est réalisée avec 10^8 événements.

Influence de la densité et de la hauteur de remplissage

Les deux paramètres que l'on fait varier à la fois au cours de ces simulations sont la densité et la hauteur de remplissage. Tandis que , la composition chimique reste inchangée. Les variables sont définies comme suit : la densité varie de 0,5 à 1,5 $g.cm^{-3}$ avec un pas de 0,5 et la hauteur varie de 0 à 4 cm avec un pas de 1. Étant donné que le volume est invariable et que la densité varie, il faut prendre en compte la modification de masse de l'échantillon ainsi que le nombre de coups obtenu pour chaque cas. L'activité des isotopes est calculée selon l'équation suivante :

$$A = A_m \cdot m \cdot 10^{-3} \tag{3.2}$$

où A_m est l'activité massique ($Bq.kg^{-1}$) et m la masse de l'échantillon.

La figure 3.11 montre que la différence de densité entre les échantillons impacte notamment le comptage qui est lié directement à l'efficacité de détection à basse énergie.

Mais dans quelle mesure cela pose-t-il problème lors de l'étalonnage en efficacité ? D'une part, il est difficile d'obtenir une densité identique dans tout l'échantillon, notamment à cause de la nature du milieu, mais aussi de la granulométrie utilisée lors de l'échantillonnage. Quand bien même l'étude serait faite sur une partie de la mine où la densité est identique et homogène, le tassement de l'échantillon dans le tube est un facteur à prendre en compte.

Pour une hauteur de remplissage identique, l'échantillon peut être plus ou moins tassé, ce qui augmentera ou diminuera la densité apparente de cet échantillon. D'autre part, pour un échantillon standard d'une densité donnée, il est difficile d'ajuster la densité des échantillons à celle du standard tout en gardant la même épaisseur de remplissage, pour les mêmes raisons que celles citées précédemment. Bien que cela reste très difficilement réalisable expérimentalement, le standard utilisé pour réali-

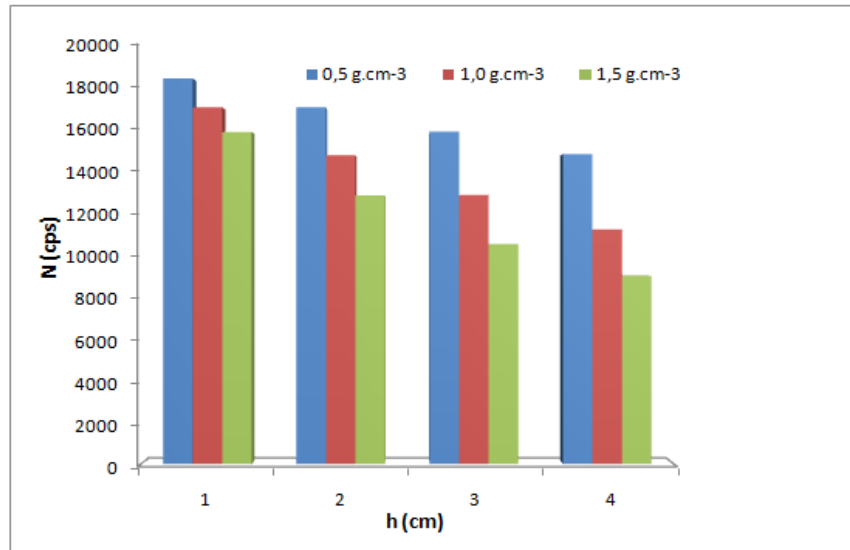


FIG. 3.11 – Variation du taux de comptage en fonction de la densité

ser l'étalonnage doit posséder la même densité que les échantillons à étudier, pour ainsi éviter de biaiser l'efficacité aux basses énergies. Même si une augmentation de la quantité de matière permet d'obtenir un échantillon plus représentatif, il n'est pas recommandé de tasser l'échantillon dans le flacon d'acquisition dans l'espoir d'obtenir un meilleur comptage (dû à une activité plus importante de l'échantillon). Bien au contraire, l'auto-absorption sera d'autant plus présente que l'échantillon sera dense.

Influence de la composition chimique et de la hauteur de remplissage

Pour expliquer la perte de comptage due à la composition chimique des échantillons, on revient sur la notion de charge effective (Z_{eff}). Pour des matrices composées d'un seul élément chimique les trois processus d'interaction gamma-matière, à savoir l'effet photoélectrique, Compton et création de paire peuvent être exprimés en fonction de l'énergie du photon E et du nombre atomique Z de l'élément. Cependant pour les matrices des échantillons mesurés, la composition chimique est hétérogène. Elle est en général composée de plusieurs éléments avec différentes proportions. Dans ce cas, la matrice peut être considérée comme un élément fictif possédant un numéro atomique fictif. Différentes expressions ont été proposées pour le calcul du Z_{eff} . Dans ce travail,

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

TAB. 3.5 – Compositions chimiques élémentaires en pourcentage massique des types de sols utilisés pour la simulation

la formule utilisée pour le calcul de Z_{eff} est [Dziri 2013] :

$$Z_{eff} = \left(\sum_i \alpha_i \cdot Z_i^{3,5} \right)^{\frac{1}{3,5}}$$

avec :

$$a_i = \frac{\left(\frac{\omega_i Z_i}{A_i} \right)}{\left(\sum_i \frac{\omega_i Z_i}{A_i} \right)}$$

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

Dans cette optique, des simulations en considérant un étalon de densité fixe de 1 g.cm^{-3} pour cinq matrice équivalente de sol (tableau 3.5) avec différentes hauteurs de remplissage ont été effectuées. En faisant varier le Z_{eff} de chaque matrice, on a obtenu la figure 3.12.

Influence de l'énergie des photons gamma

Pour compléter cette étude, on va élargir la gamme énergétique des photons gamma de 46 à 1836 keV afin de bien comprendre comment agit l'auto-absorption selon l'énergie des photons qui traversent l'échantillon. Le tableau 3.6 regroupe les différents isotopes utilisés pour l'étude ainsi que leurs énergies caractéristiques.

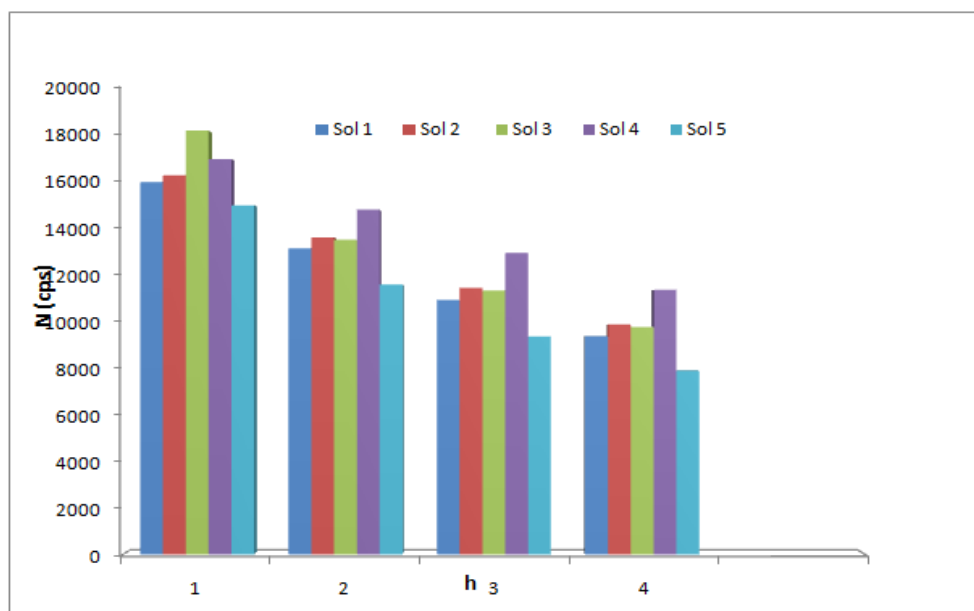


FIG. 3.12 – Variation du taux de comptage en fonction de la composition chimique

Elément	Energie (keV)	Intensité (%)	Activité (Bq)
^{210}Pb	46,54	4,25	1156
^{241}Am	59,54	35,92	1185
^{109}Cd	88,03	3,61	1150
^{57}Co	122,06	85,51	1577
^{51}Cr	320	9,87	1456
^{85}Sr	514,01	98,5	1233
^{137}Cs	661,66	84,99	2365
^{88}Y	898,04	93,90	2358
^{60}Co	1173,23	99,85	2352
^{60}Co	1332,49	99,98	2352
^{88}Y	1836,06	99,32	2358

TAB. 3.6 – Source multi-gamma avec les activités correspondantes à chaque émetteur

Densité	d = 1,5 ($g.cm^{-3}$)				d = 1 ($g.cm^{-3}$)				d = 0,5 ($g.cm^{-3}$)			
Hauteur (cm)	1	2	3	4	1	2	3	4	1	2	3	4
46,54	172	139	79	36	222	198	122	82	240	196	135	102
59,54	182	113	86	56	218	186	132	96	262	205	176	122
88,03	268	188	142	82	280	258	282	104	312	286	244	225
122,06	368	288	196	98	390	245	204	152	418	342	235	196
320	968	895	835	798	992	938	814	845	1004	954	982	886
514,01	2450	2245	2018	1954	2680	2534	2418	2472	2784	2712	2652	2512
661,66	4042	3919	3758	3482	4086	3976	3812	3882	4130	4082	4028	3924
898,04	7204	7051	6782	6259	7300	7265	7238	7105	7375	7298	7218	7176
1173,23	8675	8486	8296	7652	8712	8665	8512	8588	8814	8765	8714	8634
1332,49	8496	8321	8094	7548	8572	8506	8488	8428	8682	8618	8524	8595
1836,06	6711	6616	6358	5977	6874	6825	6786	6756	7012	6984	6945	6905

TAB. 3.7 – Variation du taux de comptage en fonction de l'énergie des photons et la densité du milieu atténuateur

On a réalisé donc des simulations en supposant que la composition chimique est équivalente sol avec une densité variée de 0,5 à 1,5 $g.cm^{-3}$. Les résultats obtenus sont présentés dans le tableau 3.7.

Les résultats de l'étude montrent que l'atténuation des photons gamma de basse énergie est plus ou moins importante selon la densité de l'échantillon, ce qui implique une différence de comptage important entre les simulations à 46,54, 59,54 et 88,03 keV. Par conséquent, l'efficacité aux moyennes et hautes énergies n'est clairement pas touchée par la différence de masse volumique. Lors de l'étalonnage en efficacité, la différence de masse volumique entre le standard et l'échantillon d'étude peut avoir des répercussions aux basses énergies. Il est donc important que ces deux échantillons aient la même composition chimique pour faire une étude des photons aux basses énergies.

Synthèse de l'étude numérique

L'étude numérique montre certains choix à éviter lors de l'échantillonnage. D'une part, il n'est pas recommandé de tasser fortement l'échantillon dans le flacon SG50, cela diminuerait les taux de comptage et par conséquent la l'efficacité de détection. D'autre part, un travail sur de faibles hauteurs de remplissage et un plus long temps d'acquisition est préférable en vue d'améliorer l'efficacité de détection et d'éviter une trop forte diminution du taux de comptage. Cependant si l'échantillon est très faiblement actif, il faut préférer travailler sur une importante hauteur de remplissage pour

éviter d'atteindre la limite de détection, car la perte en nombre de coups est bien plus importante que le gain en efficacité.

La densité, la composition chimique et l'épaisseur de l'échantillon jouent un rôle important dans l'auto-absorption des photons gamma de faible énergie. L'étude montre l'importance de la similarité entre l'échantillon de référence, qui permettra de réaliser l'étalonnage en efficacité, et l'échantillon d'étude. Dans le cas idéal, ces deux échantillons doivent avoir les mêmes propriétés physico-chimiques : même masse volumique, même composition chimique et même géométrie, pour pouvoir faire l'étude des photons de basse énergie. La géométrie peut être choisie simplement par l'opérateur et il est facile de la faire concorder entre le standard et l'échantillon. Par contre, obtenir la même composition chimique et la même masse volumique est quasiment irréalisable expérimentalement. Le standard référence utilisé par le laboratoire est le IAEA-447, sa composition chimique est inconnue et difficile à obtenir avec précision.

De plus, au vu de la diversité des sols et des minéraux, il est très peu probable que les échantillons d'étude aient la même composition que ce standard. Concernant la masse volumique, le tassement plus ou moins important de la matière dans le flacon d'acquisition nous empêche de réaliser deux échantillons de même densité apparente lorsque l'on travaille avec des poudres. Pour conclure, l'étalonnage expérimental en efficacité est obligatoirement biaisé aux basses énergies car le standard ne respecte pas les conditions citées précédemment. Il faut donc corriger ces phénomènes ou trouver des outils permettant de s'affranchir efficacement des effets d'auto-absorption.

3.3.2 Corrections de l'auto-absorption

De nombreuses études ont déjà été réalisées afin de corriger l'effet d'auto-absorption. C'est pour cela que mes travaux ne feront pas l'objet de ces corrections directes. Il sera cependant exposé les causes pour lesquelles je me tourne vers des méthodes alternatives.

D'après la loi de Beer-Lambert, l'atténuation de la fluence d'une source dont les rayonnements traversent un échantillon de largeur h , selon la figure 3.13, s'exprime selon l'équation suivante [Cutshall 1983] :

$$I(h) = I_0(h) \cdot e^{(-\mu_T x)} \quad (3.3)$$

où $I_0(h)$ et $I(h)$ sont respectivement la fluence avant et après atténuation, et où μ_T est le coefficient d'atténuation linéique total.

Dans le cas de mesures environnementales par spectrométrie gamma, c'est l'échantillon lui-même qui est la source du rayonnement. L'origine des photons détectés par le

dispo

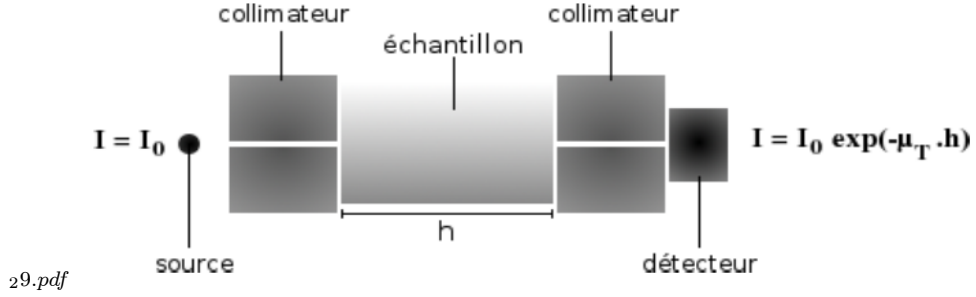


FIG. 3.13 – Atténuation de la fluence selon la loi de Beer-Lambert [Degrelle 2017].

crystal peut se situer n'importe où selon l'élément d'épaisseur dh . Ainsi certains photons gamma parcourront un chemin plus important dans l'échantillon que d'autres. En intégrant sur toute l'épaisseur H , nous pouvons écrire :

$$\frac{I(\text{éch})}{I_0(\text{éch})} = \frac{1}{H} \int_0^H \exp(-\mu_T \cdot h) dh \quad (3.4)$$

$$\frac{I(\text{éch})}{I_0(\text{éch})} = \frac{1 - \exp(-\mu_T \cdot H)}{\mu_T \cdot H} \quad (3.5)$$

L'équation 3.5 est définie comme le facteur d'atténuation F_{att} de l'échantillon [Cutshall 1983, Galloway 1991, Miller 1997], tel que :

$$F_{att} = \frac{1 - \exp(-\mu_T \cdot H)}{\mu_T \cdot H} \quad (3.6)$$

Ce facteur représente la contribution de l'auto-absorption de l'échantillon sur les photons qu'il émet. Ainsi pour déterminer une correction C_{abs} de cette auto-absorption par rapport à un standard, on peut écrire [Nachab 2003, Jodlowski 2014, Dziri 2014] :

$$C_{abs} = \frac{F_{att}(\text{standard})}{F_{att}(\text{échantillon})} \quad (3.7)$$

$$C_{abs} = \left(\frac{1 - \exp(-\mu_T \cdot H)}{\mu_T \cdot H} \right)_{\text{standard}} \times \left(\frac{\mu_T \cdot H}{1 - \exp(-\mu_T \cdot H)} \right)_{\text{échantillon}} \quad (3.8)$$

$$C_{abs} = \left(\frac{1 - \frac{I}{I_0}}{\ln\left(\frac{I_0}{I}\right)} \right)_{\text{standard}} \times \left(\frac{\ln\left(\frac{I_0}{I}\right)}{1 - \exp(-\mu_T \cdot H)} \right)_{\text{échantillon}} \quad (3.9)$$

L'équation 3.8 permet de calculer la correction d'auto-absorption mathématiquement pour n'importe quelle énergie. Elle suggère cependant que les compositions chimiques de l'échantillon et du standard soient connues pour pouvoir déterminer avec précision les coefficients linéiques d'atténuation totale à chaque énergie. Or il a été

mentionné plus tôt que la connaissance parfaite de ces compositions était difficile. L'équation 3.9 quant à elle, permet de définir une correction expérimentale par le biais de la méthode de transmission. Cette méthode se réalise avec deux acquisitions selon les dispositifs représentés sur la figure 3.14.

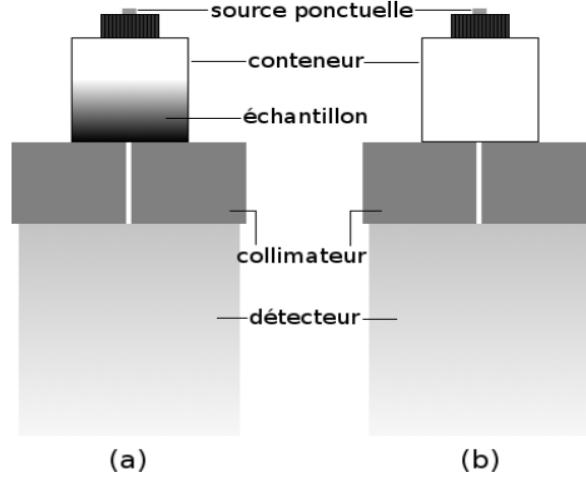


FIG. 3.14 – Dispositifs pour la méthode de transmission [Degrelle 2017].

On notera que nous n'utilisons pas un deuxième collimateur en plomb entre la source et le capuchon du conteneur pour assurer la stabilité du dispositif. Dans ces conditions, la diffusion des photons gamma dans l'échantillon est possible. Le dispositif (a) permet de définir I (atténuation des photons gamma dans l'échantillon à une énergie donnée) et le dispositif (b) définit I_0 (aucune atténuation dans l'échantillon).

Cette technique est limitée par le nombre de sources que possède le laboratoire. Une source ponctuelle multiénergétique, notamment aux basses énergies, ou plusieurs sources monoénergétiques seraient idéales pour obtenir une correction sur une plus grande gamme en énergie. De plus ces sources doivent être fortement actives pour obtenir un bon taux de comptage à la sortie du collimateur. Ces conditions sont difficiles à obtenir à cause du coût des sources, mais également à cause des règlements inhérents à la possession de sources radioactives. Une autre méthode plus directe est également proposée. La correction d'auto-absorption par rapport à un standard peut être définie comme le rapport de l'efficacité du standard sur l'efficacité de l'échantillon d'étude, pour une énergie et une géométrie considérées, telle que :

$$C = \frac{\varepsilon (\text{standard})}{\varepsilon (\text{échantillon})} \quad (3.10)$$

Cependant, les travaux de Jodlowski et al. [Jodlowski 2014] ont montré par simulation que les résultats entre cette méthode et celle citée précédemment (équation 3.8)

divergeaient en fonction de l'épaisseur de l'échantillon et en fonction du coefficient d'atténuation massique du standard par rapport à celui de l'échantillon. Il semble difficile de savoir laquelle des deux méthodes surestime ou sous-estime la correction d'auto-absorption. Jodlowski propose d'appliquer l'équation 3.9, et de faire intervenir le coefficient d'atténuation et la densité de l'échantillon et du standard, plutôt que l'équation 3.9. Il n'est parfois pas simple de corriger la courbe d'efficacité et le terme manquant pour y parvenir reste encore la composition chimique, indispensable pour déterminer le coefficient d'atténuation massique par l'équation ???. Il faut donc soit déterminer le coefficient d'atténuation massique de l'échantillon, soit trouver une autre méthode nous permettant de nous affranchir des effets d'auto-absorption.

Correction par méthodes Monte-Carlo

Des coefficients de correction spécifiques seraient déterminés pour le standard d'étalonnage IAEA-447. La méthode de correction que nous proposons ici est basée sur le couplage de l'expérience et la simulation numérique. Avec le code de calcul MCNP6, nous allons utiliser les résultats que nous obtenons expérimentalement par la méthode de transmission. Lors d'une étude où se mélangent expériences et simulations, il faut que la modélisation numérique soit fidèle à l'expérience. Si la cohérence des résultats n'est pas assurée, alors il faudra déterminer un facteur de correction permettant d'ajuster la simulation à l'expérience. Ce facteur peut s'exprimer tel que [Degrelle 2016] :

$$f_{cor} = \frac{N_{Exp}}{N_{MCNP}} \quad (3.11)$$

Pour définir le facteur f_{cor} , une simulation est réalisée selon le même dispositif de la figure 3.14, où le flacon SG50 est vide. Le nombre de photons ayant été trouvé par simulation dans cette configuration est de 14466. Ce résultat est comparé au résultat expérimental obtenu $N_{Exp} = 11802$ coups. En calculant le facteur de correction du pic photoélectrique à 59,54 keV dans le dispositif d'étude pour des flacons vides, on a trouvé la valeur de 0,82, ce qui traduit par une importante différence entre N_{Exp} et N_{MCNP} . Une telle différence peut s'expliquer d'après les caractéristiques du détecteur données par le fabricant. Certaines de ces caractéristiques peuvent être incomplètes ou peu précises. Le facteur f_{cor} doit être pris en compte pour chaque simulation afin de réaliser l'étalonnage en atténuation. Une courbe étalon sera déterminée selon chaque épaisseur de l'IAEA-447 traversée.

Les courbes étalons sont réalisées par simulation numérique. Dans le fichier d'entrée MCNP6, par différents éléments composants la matrice équivalente sol dont les coefficients d'atténuation massiques à 59,54 keV sont connus.

Elément chimique	O	Na	Mg	Al	Si	Ca	K	Ti
μ_m ($cm^2.g^{-1}$)	0,191	0,228	0,259	0,280	0,324	0,672	0,579	0,786

TAB. 3.8 – Liste des éléments sélectionnés, ainsi que leur coefficient d’atténuation massique à 59,54 keV [Berger 2016]

Epaisseur (cm)	1	2	3	4
μ_m ($cm^2.g^{-1}$)	N_{corr}	N_{corr}	N_{corr}	N_{corr}
0,191	6465	6056	5515	4986
0,228	6334	5915	5450	5878
0,259	6185	5820	5338	4937
0,280	6015	5570	5146	4720
0,324	5840	5371	4952	4560
0,672	5635	5183	4682	4327
0,579	5476	4986	5664	4270
0,786	5224	4819	4384	4104

TAB. 3.9 – Résultats simulés du nombre de photons détectés en fonction de l’épaisseur et du coefficient d’atténuation massique de l’élément traversé.

Lors de la définition des cellules dans le script MCNP6, la cellule représentant l’élément doit avoir une densité identique à celle de l’IAEA-447, soit $1,14 \text{ g.cm}^{-3}$. Cela permet d’éviter qu’il y ait une différence d’auto-absorption due à la densité entre la simulation et l’expérience. Pour mener à bien cette méthode, l’atténuation des photons ne doit être influencée que par le coefficient d’atténuation et non par la densité. Il y aura au total quatre acquisitions dont la variable est l’épaisseur d’échantillon traversée, variant de 1 à 4 cm. Une série de simulations représente huit calculs dont l’élément à l’intérieur du flacon SG50 est cité dans le tableau 3.8. Chacun de ces calculs comporte 10^9 histoires.

Les résultats des différentes séries de simulations sont répertoriés dans le tableau 3.9. N_{corr} est le nombre de coups net simulé ayant été corrigé par le facteur de correction f_{cor} de l’équation 3.11. Par conséquent, l’erreur systématique de la simulation n’est pas calculée puisque le facteur f_{cor} inclue toutes différences systématiques entre la simulation et l’expérience. Pour chaque série de simulations, une courbe étalon de l’atténuation peut être tracée : $N_{corr} = f_{cor} (\mu_m)$.

Méthode de transmission : La méthode de transmission est une méthode purement expérimentale. Cette étude suggère donc une mesure simple de la transmission de photons à travers des échantillons inconnus où les variations des transmissions de photons sont supposées être linéairement corrélées à la densité des échantillons. Selon

la loi de Beer-Lambert, un faisceau de photons parallèles avec énergie E et d'intensité $I_0(E)$, arrivant en incidence normale sur un matériau d'épaisseur x , est atténué selon la relation :

$$I(E) = I_0(E) \cdot \exp(-\mu(E) \cdot x) \quad (3.12)$$

Pour toute énergie E , $I_0(E)$ est l'intensité du faisceau parallèle de photons incidents alors que $I(E)$ est l'intensité des photons transmis, $\mu(E)$ est l'atténuation linéaire coefficients (m^{-1}). Dans un spectre gamma, le photons sont dénombrés par canal, donc la formule 3.12 peut se mettre sous la forme :

$$N(E) = N_0(E) \cdot \exp(-\mu(E) \cdot x) \quad (3.13)$$

où $N(E)$ et $N_0(E)$ représentent les taux de comptage correspondant à chaque énergie E trouvée dans le spectres obtenus pour des mesures avec et sans échantillons (flacon SG50 vide), respectivement. Le coefficient d'atténuation linéaire correspond à chaque énergie est dérivé à partir des rapports des aires de pics nets des deux spectres comme suit :

$$\mu(E) = \frac{1}{x} \cdot \ln \left[\frac{N_0(E)}{N(E)} \right] \quad (3.14)$$

où $N_0(E)$ et $N(E)$ sont les aires de pics nets correspondant à l'énergie E dans les spectres obtenus avec des échantillons vides et remplis, respectivement. L'incertitude associée au coefficient d'atténuation linéique est donnée par la formule [Lépy 2004], en négligeant l'erreur sur le coefficient d'atténuation dans l'air :

$$u^2(\mu_{éch}(E)) = \frac{1}{x^2} \cdot \left[\frac{u^2(x)}{x^2} \cdot \ln \left(\frac{N_{air}}{N_{éch}} \right)^2 + \left(\frac{u^2(N_{air})}{N_{air}^2} + \frac{u^2(N_{éch})}{N_{éch}^2} \right) \right] \quad (3.15)$$

Le travail est réalisé sur le détecteur BEGe, dont les caractéristiques sont définies dans la section 3.1. Deux sources multi-gamma ont été utilisées, à savoir ^{133}Ba et ^{152}Eu . Chaque échantillon a été placé sur le dessus du détecteur, puis les sources ponctuelles ont été placées au-dessus de l'échantillon. Dans cette partie, un échantillon de IAEA-447 a été conditionné et mesuré dans la géométrie SG50. L'échantillon est d'épaisseur 4,5 cm de masse 48 g et de desité $1,14 \text{ g.cm}^{-3}$. Les valeurs expérimentaux des coefficients d'atténuation massiques correspondants au standard IAEA-447 pour les raies gamma plus intenses sont indiquées dans le tableau 3.10.

E (keV)	Coefficient d'atténuation linéique (cm ⁻¹)	Coefficient d'atténuation massique (cm ² .g ⁻¹)
80,99	2,15.10 ⁻¹ ± 0,070	0,188 ± 0,060
121,78	1,38.10 ⁻¹ ± 0,032	0,121 ± 0,027
244,69	1,27.10 ⁻¹ ± 0,025	0,111 ± 0,017
276,39	1,16.10 ⁻¹ ± 0,016	0,101 ± 0,010
302,85	1,10.10 ⁻¹ ± 0,012	0,096 ± 0,007
344,27	1,11.10 ⁻¹ ± 0,010	0,097 ± 0,009
356,01	1,16.10 ⁻¹ ± 0,006	0,101 ± 0,008
778,9	8,52.10 ⁻² ± 0,038	0,074 ± 0,015
964,07	7,85.10 ⁻² ± 0,055	0,068 ± 0,075
1085,83	7,26.10 ⁻² ± 0,032	0,063 ± 0,024
1112,07	6,50.10 ⁻² ± 0,027	0,057 ± 0,016
1408,01	5,66.10 ⁻² ± 0,062	0,049 ± 0,035

TAB. 3.10 – Coefficients d'atténuation linéaires et massiques mesurés pour le standard IAEA-447

3.4 Effet de pic-somme

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

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

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

Pour mettre en évidence le phénomène de pic-somme d'une manière expérimentale, on a utilisé une source du ⁶⁰Co dont le schéma de niveaux caractéristiques est présenté dans la figure 3.15.

La désintégration par émission de particule β^- du ⁶⁰Co vers un état excité du ⁶⁰Ni est suivie par une émission en cascade de deux photons gamma : le premier γ_1 d'énergie

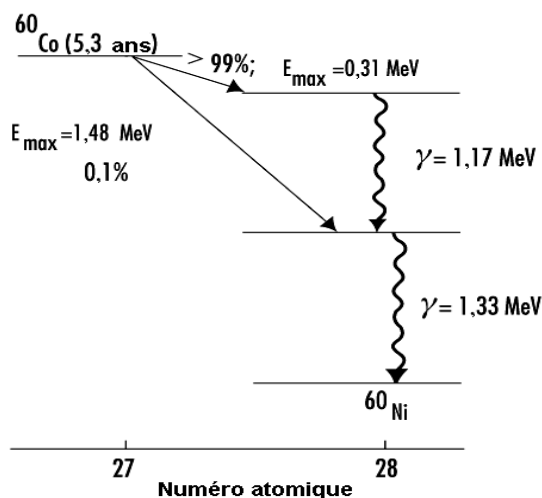


FIG. 3.15 – Schéma de décroissance du Co-60

1173 keV et le deuxième γ_2 de 1332 keV avec des intensités d'émission voisinant 100 % pour les deux transitions. Les durées de vies des niveaux d'excitation sont de l'ordre de la picoseconde. La détection de γ_1 et γ_2 se traduit par des impulsions de chacune des raies dans le spectre de la figure 3.16. L'absorption totale de γ_1 suivie de l'absorption totale de γ_2 simultanément donne le pic de coïncidence à l'énergie 2,505 MeV.

3.4.2 Paramètres influençant la coïncidence

Le phénomène de coïncidences vraies provient à la fois de la détection simultanée $\gamma\gamma$ et γX . Il dépend essentiellement de deux paramètres : de la distance source-détecteur et du schéma de désintégration du nucléide en question.

Effet de la distance source-détecteur

Ce paramètre géométrique est directement lié à l'angle solide de détection. La variation de la distance source-détecteur influe sur l'importance de l'effet de pic-somme [Dziri 2013]. En pratique, au-delà d'une certaine distance les effets de pic-somme sont négligeables. Pour mettre en évidence l'effet de la distance, des mesures d'une source ponctuelle de ^{60}Co ont été effectuées.

L'ajout d'un dispositif spécifique permet d'éloigner la source du détecteur à différentes distances (figure 3.17). Des mesures à distances de 7, 4 cm et au contact du détecteur ont été réalisées. Pour donner un ordre de grandeur de la perte de comptage

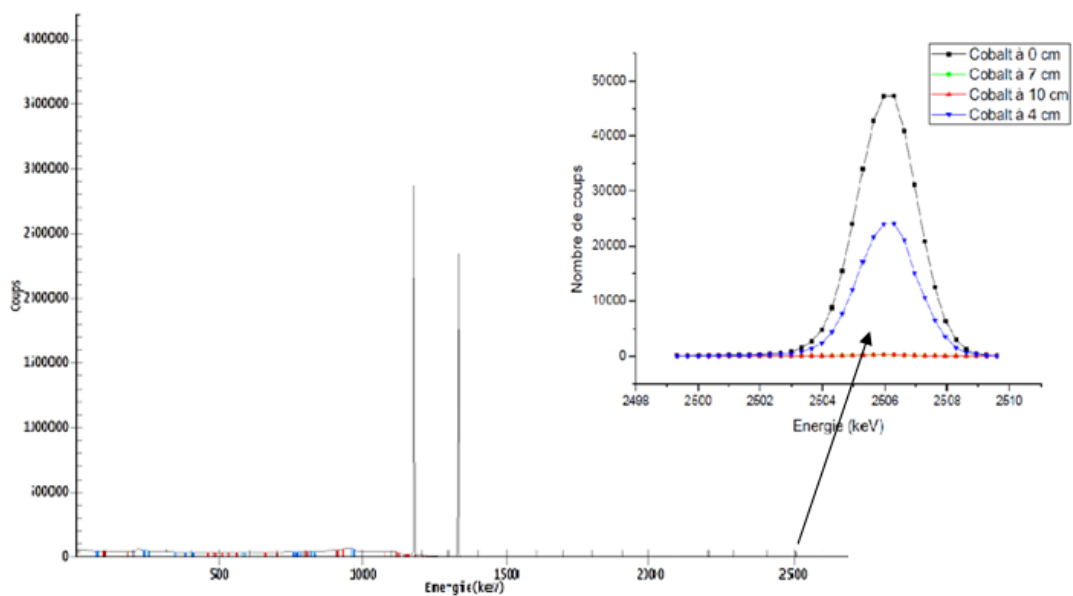


FIG. 3.16 – Vérification expérimentale de l'effet de pic-somme sur le spectre du Co-60



FIG. 3.17 – Dispositif de variation de la distance source-détecteur

due aux coïncidences vraies, le rapport surface du pic à 2505 keV normalisée respectivement par les surfaces des pics à 1332 keV et 1173 keV avoisine les 7 % lorsque l'échantillon est au contact et tend vers zéro au-delà de 7 cm du détecteur comme le montrent les courbes des figures 3.16 et 3.18 pour les énergies de 1173 et 1332 keV. En éloignant la source du détecteur l'effet de pic-somme s'amenuise.

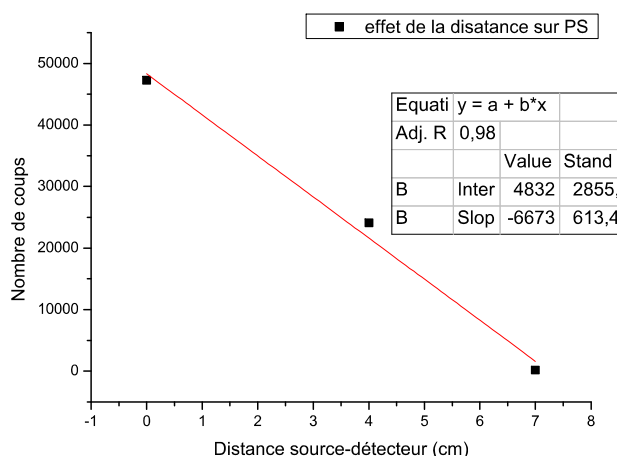


FIG. 3.18 – Effet de la distance source-détecteur sur les PS

Effet du schéma de désintégration

La coïncidence entre deux photons gamma est possible s'ils proviennent du même noyau. Ainsi, la création de pics sommes ne touchent que les photons provenant d'isotopes émetteurs multi-gamma. Un cas simple est celui du ^{60}Co , ce radioélément est émetteur de photons gamma à deux énergies principales, 1,17 et 1,33 MeV, comme le montre son schéma de désintégration à la figure 3.15. Ces deux niveaux nucléaires principaux à 2,505 et à 1,333 MeV ont un temps de vie de 3,3 ps et 0,73 ps respectivement. Ces temps sont très courts par rapport à la constante de temps des spectromètres gamma qui est de l'ordre de quelques microsecondes. Il est alors impossible pour le système de détection de dissocier les deux photons gamma qui l'atteindraient simultanément. Il attribue alors cette détection à un troisième photon ayant comme énergie la somme des énergies des deux photons gamma. Un pic-somme apparaît alors sur le spectre à l'énergie 2,505 MeV.

Mathématiquement, le taux de comptage des photons γ (1,17 MeV) et γ (1,33 MeV)

s'expriment selon les relations suivantes :

$$\begin{aligned} N_{1,17} &= A \cdot p_{1,17} \cdot \varepsilon_{1,17} \\ N_{1,33} &= A \cdot p_{1,33} \cdot \varepsilon_{1,33} \end{aligned} \quad (3.16)$$

où A est l'activité de la source, p_i est la probabilité d'émission du photon i et ε_i est l'efficacité d'absorption totale à l'énergie i . Cependant, lorsque les phénomènes de coïncidence affectent la détection, ces taux de comptage deviennent :

$$\begin{aligned} N_{1,17}^{TCS} &= A \cdot p_{1,17} \cdot \varepsilon_{1,17} - A \cdot p_{1,17} \cdot \varepsilon_{1,17} \cdot \varepsilon_{1,33}^T \\ N_{1,33}^{TCS} &= A \cdot p_{1,33} \cdot \varepsilon_{1,33} - A \cdot p_{1,33} \cdot \varepsilon_{1,33} \cdot \varepsilon_{1,17}^T \end{aligned} \quad (3.17)$$

où les termes retranchés aux équations et sont les pertes dues aux coïncidences entre les deux photons. Globalement, on obtient :

$$N_i^{TCS} = A \cdot p_i \cdot \varepsilon_i - A \cdot p_i \cdot \varepsilon_i \cdot \varepsilon_j^T \quad (3.18)$$

avec $A \cdot p_i$ représentant le nombre d'événement donnant naissance au pic photoélectrique à l'énergie i , ε_i représentant la probabilité de détection du photon γ_i dans le pic photoélectrique i et ε_j^T la probabilité de détection du photon γ_j n'importe où sur le spectre (efficacité totale à l'énergie j). Il est alors possible de corriger les pertes des pics photoélectriques. La correction s'écrit telle que :

$$C_i = \frac{N_i}{N_i^{TCS}} \quad (3.19)$$

Outre la perte de coups dans les photopics, les coïncidences donnent naissance à un pic-somme que nous appellerons γ_{PS} . Ce gain de coups peut s'exprimer selon la relation suivante :

$$N_{PS} = A \cdot p_{1,17} \cdot \varepsilon_{1,17} \cdot p_{1,33} \cdot \varepsilon_{1,33} \quad (3.20)$$

Dans le cas général d'un schéma complexe à plusieurs niveaux d'énergie, les corrections des coïncidences deviennent plus complexes et l'on doit prendre en compte les pertes d'impulsions en amont et en aval de l'état excité, ainsi que le gain d'impulsions ajouté par la sommation.

Généralisation à plusieurs cascades : Pour une raie γ_{ij} , le facteur correctif doit prendre en compte toutes les possibilités de coïncidences avec d'autres émissions gamma. Le facteur de correction peut s'exprimer sous la forme d'un produit de trois facteurs :

$$C_{\gamma_{ij}}/\gamma = A.B.C \quad (3.21)$$

avec,

A : représente les coïncidences avec des raies gamma précédant la raie γ_{ij} .

B : représente les coïncidences avec des raies gamma suivant la raie γ_{ij} .

C : prend en compte les coïncidences des raies gamma dont la somme des energies est egale à E_{ij} .

Pour un schéma de désintégration comportant $n + 1$ niveaux, de 0 à n , on peut ecrire ces facteurs comme suit :

$$A = \prod_{l=i}^{n-1} \left[\prod_{k=l+1}^n a_{kl}^{-1} \right] \quad (3.22)$$

avec i l'état excité à considérer et a_{kl}^{-1} le facteur de correction correspondant aux transitions γ_{ij} .

$$B = \prod_{p=1}^j \left[\prod_{m=0}^{p-1} b_{pm}^{-1} \right] \quad (3.23)$$

où b_{pm}^{-1} sont les facteurs de correction en aval de l'état excité i .

$$C = \prod_{g=j+1}^{i-j} c_{gj}^{-1} \quad (3.24)$$

avec c_{gj} les facteurs de correction des gains d'implusions par sommation. En introduisant les notion d'efficacité totale et d'efficacité du pic d'absorption totale, les facteurs peuvent s'exprimer comme suit :

$$c_{gj} = 1 + \frac{I_{gj} \times I_{jg}}{I_{ij}} \times \frac{\varepsilon_{gj} \times \varepsilon_{ij}}{\varepsilon_{gj}} \quad (3.25)$$

3.4.3 Corrections des effets de coïncidence

Les effets de coïncidence deviennent un problème majeur s'ils sont présents dans le spectre de l'étalon, ce qui causera obligatoirement un mauvais étalonnage en efficacité et donc une mauvaise estimation de l'activité des radioéléments des échantillons à analyser [Degrelle 2017]. Dans le cadre de ce travail, on s'est intéressé à la correction des raies de quelques radionucléides pour lesquels des corrections de coïncidence pourraient être nécessaires. Plus particulièrement le ^{214}Bi en vue d'utiliser son activité pour la détermination de celle du ^{226}Ra . En supposant que le ^{226}Ra est en équilibre séculaire avec ses descendants, ce qui implique qu'ils ont la même activité. Plusieurs

techniques existent pour déterminer les facteurs correctifs de ce phénomène : la méthode analytique, la simulation Monte Carlo et la méthode expérimentale :

- correction de l'activité : le rapport entre les activités des raies du ^{214}Bi les plus intenses et l'activité du ^{214}Pb qui est utilisé comme référence, égale à $23,85 \pm 0,02 \text{Bq.kg}^{-1}$, fournie par le logiciel Genie 2000,
- facteurs TCS (Genie 2000) : ils ont été déterminés comme des rapports entre les valeurs de la courbe expérimentale FEPE donnée par Genie 2000 et la courbe d'ajustement d'ordre 4,
- ratio (Exp/Sim) : le rapport entre l'efficacité expérimentale et l'efficacité calculée à partir des simulations Monte-Carlo avec le code MCNP6.
- correction en tenant compte du transfert de rendement.

Correction par ETNA

Le code ETNA (Efficiency Transfer for Nuclide Activity measurements) est un logiciel utilisé en spectrométrie gamma pour le calcul du transfert de rendement dans le cas d'un changement de géométrie source-détecteur, et des corrections dues aux coïncidences pour des nucléides à schémas de désintégration complexe. Il permet ainsi d'améliorer la précision des résultats d'analyse quantitative par spectrométrie gamma. La qualité des mesures effectuées par spectrométrie gamma dépend directement de la connaissance précise du rendement de détection expérimentale pour les conditions géométriques de l'ensemble source-détecteur. Compte tenu de la grande diversité des échantillons couramment mesurés, les étalons ne sont pas disponibles pour l'ensemble des matrices et des géométries rencontrées pour réaliser des analyses quantitatives fines de la radioactivité. Il est à rappeler que dans les cas de mesure en géométrie rapprochée, en particulier pour la mesure des échantillons environnementaux, l'effet de pic-somme perturbe le spectre et affectent les aires des pics, conduisant en cela à des résultats quantitatifs erronés.

ETNA est un outil basé sur des formules analytiques permettant le calcul du rendement pour des conditions de mesure différentes de celles de l'étalonnage, on parle alors du transfert de rendement [Lépy 2010]. Il tient compte des variations des paramètres géométriques de l'ensemble source-détecteur. L'utilisation de ce logiciel a permis de calculer les coefficients de correction des effets de pic-somme. Son utilisation requiert l'introduction dans la base de données des courbes de rendement total et de rendement d'absorption totale. Le rendement total est le rapport du nombre d'événements enregistrés dans tout le spectre au nombre de photons émis par la source. Le rendement d'absorption totale est défini comme étant le rapport du nombre d'événements enregistrés sous le pic d'absorption totale correspondant à une énergie E_i , par le nombre

de photons i émis par la source. Le calcul ETNA nécessite ainsi, l'utilisation de sources mono-énergétiques afin d'établir les deux paramètres qui manquent à la base de données de ce programme. La modélisation est inévitable pour pallier la non disponibilité de ces sources. MCNP6 offre cette possibilité de simuler pic par pic et donc de se substituer aux sources mono-énergétiques. Par conséquent on peut déterminer les valeurs du rendement total et du rendement d'absorption totale.

Correction par simulations Monte-Carlo

Le code de calcul MCNP6 ne prend pas en compte le phénomène de coïncidences. Par conséquent, les photons générés sont indépendants les uns des autres. Cette caractéristique peut être utilisée dans le but de déterminer une correction des coïncidences sur l'efficacité expérimentale affectée par ce phénomène. La fiabilité des corrections de coïncidence par MCNP6 sera testée par rapport aux corrections obtenues par le logiciel ETNA.

Pour caractériser la fonction de réponse du détecteur trois acquisitions sont réalisées avec une source ponctuelle d' ^{152}Eu d'une activité de 24000 Bq à trois distances du détecteur : en contact, à 4 cm et à 7 cm. Ainsi, trois simulations reproduisant le plus fidèlement possible ces acquisitions sont réalisées avec MCNP6. La correction des coïncidences avec MCNP6 est donnée par la relation suivante :

$$C_{MCNP6} = \frac{\varepsilon_{MCNP6}}{\varepsilon_{Exp}}$$

La correction des coïncidences est également déterminée par le logiciel ETNA pour la même source. Le tableau 3.11 rassemble les corrections à apporter à l'expérience pour que celle-ci ne soit plus affectée par les effets de sommation, en fonction de la distance source-détecteur. L'écart-type σ (%) entre les valeurs de C_{MCNP6} et C_{ETNA} y est également calculée.

Ces résultats montrent bien que les corrections obtenus par MCNP6 et ETNA sont relativement proches, à l'exception de quelques énergies, notamment à 121,78, 688,65 et 1005 keV, où l'écart-type est important particulièrement pour la position au contact. Généralement, sans prendre en compte les énergies où l'écart-type est supérieure à 15 %, la différence moyenne entre les corrections de ETNA et de MCNP6 est comprise entre 4 et 8 %. Nous pouvons alors nous permettre de valider l'utilisation de la simulation Monte-Carlo en vue de corriger l'efficacité expérimentale atteinte par les coïncidences.

E (keV)	$d = 0 \text{ cm}$ (en contact)			$d = 4 \text{ cm}$			$d = 7 \text{ cm}$		
	C_{MCNP6}	C_{ETNA}	σ (%)	C_{MCNP6}	C_{ETNA}	σ (%)	C_{MCNP6}	C_{ETNA}	σ (%)
121,78	1,205	1,007	15,01	1,124	0,998	8,90	0,996	0,964	2,26
244,69	1,084	0,992	6,50	1,002	0,982	12,41	0,982	0,972	6,07
295,93	1,091	1,015	5,37	0,992	1,003	7,77	0,975	1,001	1,85
344,27	1,158	1,088	4,95	1,102	1,002	7,07	1,008	0,974	7,89
411,12	1,152	1,042	7,77	0,992	0,994	12,45	0,968	0,972	8,39
443,96	1,141	1,135	4,24	1,105	1,018	6,15	1,015	0,993	8,48
586,26	1,132	0,997	9,54	1,005	0,987	12,72	0,982	0,971	7,07
688,65	1,219	0,958	18,45	1,103	1,005	6,92	0,988	0,972	2,82
778,90	1,118	1,012	7,49	0,998	1,004	4,24	0,972	0,998	1,83
867,37	1,214	1,132	5,79	1,005	1,105	7,07	0,983	1,068	6,01
964,07	1,110	1,008	7,21	1,018	0,994	4,05	0,992	0,963	6,36
1005,27	1,096	0,812	20,08	0,989	1,006	11,02	0,972	0,988	1,13
1085,86	1,103	0,987	8,20	1,016	0,974	2,96	0,982	0,952	2,12
1089,73	1,093	0,997	6,78	0,988	0,986	1,41	0,973	0,914	4,17
1112,06	1,164	1,012	10,74	1,096	1,001	6,71	0,899	0,956	4,03
1408,00	1,198	1,137	4,31	1,108	1,025	5,86	0,988	0,962	8,78

TAB. 3.11 – Corrections de coïncidences calculées par MCNP6 et ETNA à appliquer à l'efficacité expérimentale.

Transfert de rendement : Pour l'étalonnage du détecteur, le standard IAEA-447 a été conditionné dans un flacon de type SG50. Dans ce cas, le standard peut être considéré comme une source étendue (source volumique). Les caractéristiques de cette nouvelle source volumique sont les suivantes : le flacon SG50 (50 cm^3) a un diamètre de 3,95 cm et une hauteur de 6,15 cm. Elle est remplie jusqu'à une hauteur de 4,5 cm par un échantillon d'une masse de 48 g et d'une densité apparente de $0,598 \text{ g.cm}^{-3}$. Le standard IAEA-447 contient les descendants de séries radioactives de ^{238}U et du ^{232}Th ; une grande majorité de ces descendants sont des émetteurs multi-gamma. En examinant les schémas de désintégration que nous avons sélectionnés seulement quelques radionucléides pour lesquels la somme des coïncidences des corrections pourraient être nécessaires, tel que ^{234}Th , ^{214}Pb , ^{214}Bi , ^{228}Ac , ^{212}Bi et ^{208}Tl . Particulièrement, le ^{214}Bi qui possède un schéma de désintégration très complexe.

Dans cette partie, nous voulons obtenir une courbe d'efficacité par transfert, qui sera affranchie des effets de coïncidence contrairement à la courbe d'efficacité expérimentale obtenue précédemment. Les efficacités totales pour la géométrie de référence (avec une source ponctuelle) et pour le flacon SG50 sont calculées par la simulation Monte-Carlo. La composition du standard IAEA-447 est approximée par la composition chimique de type sol citée au-dessus. La relation pour calculer l'efficacité de la

Nucléide	E (keV)	ε_{ponct}	ε_{ponct}^T	ε_{SG50}^T	ε_{SG50}	ε_{Exp}	C
^{234}Th	63,28	0,146	0,978	0,897	0,103	0,091	1,169
^{214}Pb	295,22	0,095	0,226	0,162	0,068	0,041	1,660
^{214}Pb	351,93	0,056	0,132	0,118	0,050	0,032	1,075
^{208}Tl	583,19	0,046	0,108	0,098	0,041	0,019	2,176
^{214}Bi	609,31	0,052	0,106	0,092	0,045	0,018	2,313
^{228}Ac	911,2	0,025	0,059	0,051	0,022	0,010	1,201
^{214}Bi	1120,29	0,012	0,042	0,039	0,011	0,006	1,862
^{40}K	1460,82	0,009	0,045	0,027	0,007	0,003	1,078

TAB. 3.12 – Résultats de la méthode de transfert. L'efficacité pour la géométrie d'étude est comparée à l'efficacité expérimentale réalisée avec le standard IAEA-447.

géométrie d'étude est la suivante :

$$\varepsilon_{SG50} = \varepsilon_{Ponct} \cdot \frac{\varepsilon_{SG50}^T}{\varepsilon_{Ponct}^T}$$

où ε_{Ponct} est l'efficacité de référence qui correspond à la source ponctuelle. L'efficacité ε_{SG50} déterminée par transfert est libre de tout effet de coïncidence. Elle pourrait alors servir de correction à l'efficacité expérimentale réalisée avec le standard IAEA-447 où la correction s'exprimerait telle que :

$$C_{TCS} = \frac{\varepsilon_{SG50}}{\varepsilon_{Exp}}$$

Les résultats obtenus sont rassemblés dans le tableau 3.12. D'après ces résultats, la correction à appliquer à l'efficacité expérimentale est hétérogène en fonction de l'énergie. Les valeurs obtenues du facteur correctif varient de 1,16 jusqu'à 2,31 pour une énergie de 609,31 keV du ^{214}Bi . Il est légitime de penser que ces corrections soient surestimées. En effet, ces résultats ne suivent pas une variation régulière et semblent difficilement justifiables.

Dans le même esprit de travail, nous avons réalisé trois acquisitions pour le standard IAEA-447 à trois distances différentes du détecteur afin de déterminer les facteurs correctifs de pic-somme. En pratique, la simulation par MCNP6 des efficacités à partir d'un étalon permet de calculer les coefficients de correction de pic-somme pour le même étalon. C'est le ratio de l'efficacité simulée sur celle mesurée. Trois simulations reproduisant ces trois positions sont réalisées avec MCNP6 pour le standard IAEA-447. La justesse de la correction est conditionnée par la qualité de la simulation. Les valeurs des facteurs de correction de pic-somme ainsi obtenues sont résumées dans la table 3.13.

3. Etude par simulation des problématiques liées aux effets de matrice et de pic-somme 97

Nucléide	E (keV)	$d = 0 \text{ cm}$			$d = 4 \text{ cm}$			$d = 7 \text{ cm}$		
		ε_{Exp}	ε_{MCNP6}	C	ε_{Exp}	ε_{MCNP6}	C	ε_{Exp}	ε_{MCNP6}	C
^{234}Th	63,28	0,091	0,079	0,875	0,032	0,032	1,004	0,0252	0,0262	0,988
^{214}Pb	295,22	0,041	0,038	0,987	0,009	0,008	0,978	0,0073	0,0074	1,024
^{214}Pb	351,93	0,032	0,037	1,060	0,007	0,008	1,044	0,0058	0,0063	1,096
^{208}Tl	583,19	0,019	0,023	1,213	0,006	0,007	1,196	0,0040	0,0044	1,102
^{214}Bi	609,31	0,018	0,035	1,954	0,005	0,008	1,735	0,0045	0,0060	1,342
^{228}Ac	911,2	0,010	0,013	1,374	0,004	0,005	1,278	0,0033	0,0038	1,152
^{214}Bi	1120,29	0,006	0,009	1,638	0,002	0,003	1,582	0,0016	0,0020	1,268
^{40}K	1460,82	0,003	0,004	1,091	0,001	0,001	1,098	0,0007	0,0008	1,088

TAB. 3.13 – Efficacités expérimentales et simulées par MCNP6 et les facteurs de correction de pic-somme pour le standard IAEA-447 pour trois positions ; au contact, à 4 cm et à 7 cm

Nucléide	E (keV)	$d = 0 \text{ cm}$	$d = 4 \text{ cm}$		$d = 7 \text{ cm}$	
		$\varepsilon_{Réf}$	ε_{4cm}	$C_{TCS} = \frac{\varepsilon_{4cm}}{\varepsilon_{Réf}}$	ε_{7cm}	$C_{TCS} = \frac{\varepsilon_{7cm}}{\varepsilon_{Réf}}$
^{234}Th	63,28	0,091	0,032	0,351	0,0252	0,787
^{214}Pb	295,22	0,041	0,008	0,195	0,0073	0,912
^{214}Pb	351,93	0,032	0,007	0,218	0,0058	0,828
^{208}Tl	583,19	0,019	0,006	0,315	0,0040	0,666
^{214}Bi	609,31	0,018	0,006	0,333	0,0045	0,750
^{228}Ac	911,2	0,010	0,004	0,400	0,0033	0,825
^{214}Bi	1120,29	0,006	0,002	0,333	0,0016	0,802
^{40}K	1460,82	0,003	0,001	0,333	0,0007	0,704

TAB. 3.14 – Comparaison des efficacités expérimentales et simulées par MCNPX et les facteurs de correction de PS pour le standard IAEA-447 en contact, à 4 cm et à 7 cm

Correction par méthode expérimentale

La méthode expérimentale consiste à mesurer le rendement d'un pic d'absorption totale en faisant varier la distance source-détecteur. A partir d'une certaine distance il n'y aura plus de coïncidences et le rendement ne dépend que du flux de photons. La comparaison donc entre les régions d'intérêt mesurées pour les mêmes énergies γ dans des géométries différentes : la géométrie est utilisée pour des mesures d'activité et pour une géométrie de référence qui n'est pas affectée par les coïncidences. Le ratio entre la mesure à distance et au contact est le facteur de correction de coïncidence [Boshkova 2014]. En se basant sur les résultats expérimentaux présentés dans la partie précédente, on pourra déterminer les facteurs de correction de pic-somme pour le standard IAEA-447. Le tableau regroupe l'ensemble des corrections à apporter à la courbe d'efficacité expérimentale.

Chapitre 4

Métrologie de la radioactivité : Application aux mesures environnementales

4.1 Choix des matériaux à mesurer

4.1.1 Gisements de ressources minérales

Une ressource minérale est une concentration de matériau présent naturellement, sous forme, solide, liquide ou gazeuse, à l'intérieur de la croûte terrestre, sous une forme et une quantité telles que son extraction à des fins économiques est effectivement ou potentiellement faisable. En effet, compte tenu de l'étendue de la surface terrestre, et de l'épaisseur de la lithosphère, ces stocks de minéraux représentent des quantités considérables que l'humanité sera toujours très loin d'avoir la capacité d'épuiser. D'autant que la terre est toujours en activité, au plan géodynamique et de la géologie de surface, avec un renouvellement permanent des formations géologiques – et donc des matières premières minérales – que ce soient par des mécanismes endogènes (remontées magmatiques, surrection des montagnes, renouvellement des plaques lithosphériques...) ou exogènes (altération, sédimentation terrestre et marine). Ces ressources ne sont dans l'ensemble pas renouvelables. L'évaluation de la quantité d'une ressource dans une zone donnée dépend de nombreux paramètres du gisement, dont la localisation, la profondeur, la taille, la configuration, la nature minérale, la qualité, la densité, les caractéristiques géologiques, la proximité de ressources voisines.

Les ressources minérales constituent un des éléments clés du développement de l'humanité. De tous temps, les activités humaines ont nécessité l'utilisation de matériaux, pour satisfaire des besoins aussi variés que l'habitat, les travaux publics, le transport,

l'industrie, ou l'agriculture. Dans l'ensemble des matériaux, les ressources minérales occupent une place à part. Elles ont été formées au cours des temps par des processus géologiques, le plus souvent, bien avant l'arrivée de l'homme sur Terre. Le domaine des ressources minérales représente un des volets du grand ensemble de ressources naturelles, à côté des ressources énergétiques et alimentaires, des richesses biologiques, dont la biodiversité, et des ressources que constituent les milieux physiques : sols, eau, atmosphère.

En vue de son histoire géologique de formation, un gisement de ressources minérales constitue un véritable cocktail de différentes substances radioactives. On y trouve notamment du ^{40}K , du ^{228}Ra , du ^{232}Th , mais aussi du ^{210}Po , du ^{210}Pb et de ^{238}U avec des variations spectaculaires d'un gisement à l'autre, et même dans un même gisement. Une des sources de radioactivité dans l'environnement autre que celles d'origine naturelle est principalement due à l'usage étendu de minerais extraits et leurs dérivés pour la production des matériaux que nous utilisons couramment comme par exemple les matériaux de construction (gravier, sable, argile, ciment, plâtre), les engrais agricoles, les métaux, le sel et le gypse, les papiers, les verres, etc., qui ont des applications familières et façonnent notre quotidien.

La demande et l'utilisation de ces produits ne cesse d'augmenter avec le temps. Par ailleurs, les processus physico-chimiques mis en œuvre dans certaines activités industrielles peuvent conduire dans certaines circonstances à une concentration potentielle de ces radionucléides naturels dans les résidus ou les produits finis et semi-finis de ces industries. Bien que les niveaux de radioactivité de ces matériaux NORM reste généralement modérés, une exposition prolongée à ces matériaux peut, dans certains cas particuliers, devenir significative et dépasser les limites légales d'exposition. Ce qui a pour effet d'augmenter les taux d'exposition ainsi que les risques de contamination à la fois sur la population et l'environnement. C'est dans cette perspective que ces matériaux et leurs produits dérivés doivent être contrôlés et examinés et vis-à-vis de la radioactivité d'une manière permanente et régulière. Il est également important de surveiller et d'étudier le devenir (transfert) de ces substances radioactives dans l'environnement (radioécologie), afin de connaître leur impact éventuel sur les populations humaines (radioprotection). À l'issue de la recherche bibliographique menée, nous avons orienté l'échantillonnage vers quelques minéraux de matières premières utilisés couramment dans les domaines de l'industrie des phosphates et la production de matériaux de construction.

4.1.2 Généralités sur les phosphates et la production des engrais

Phosphate naturel (PN) est un terme général qui décrit les assemblages minéraux naturels contenant une concentration élevée de minéraux phosphatés. Le terme se rapporte aussi bien aux minerais phosphatés non enrichis qu'aux produits concentrés. Le phosphate est le composant de ces roches ayant un intérêt agronomique. Plus le contenu en phosphate (P_2O_5) sous forme d'apatite est élevé, plus le potentiel économique du minerai est grand. Le phosphate de calcium se trouve dans des roches magmatiques et dans des roches sédimentaires des différents âges. Ces roches peuvent avoir été plus ou moins métamorphosées ou remaniées, altérées ou lessivées.

– **Les gisements sédimentaires** représentent la plus grande partie des réserves mondiales. Ils ont fourni environ 80 à 90 % de la production mondiale ces dernières années [Mineral 2013]. Particulièrement, ces gisements se trouvent dans des formations d'âge géologique très différent, montrent une gamme très large de compositions chimiques et de formes physiques, se trouvent souvent en couches épaisses relativement horizontales, et peuvent être à la base de terrains de recouvrement peu profonds. Les gisements les plus importants sont Cambrien (Chine, Kazakhstan, Vietnam, Mongolie), Permien (Utah, Montana, Idaho, Wyoming aux Etats-Unis), Créatacé supérieur (Moyen-Orient, Egypte), Eocène (gisements d'Afrique du Nord Algérie, Tunisie, Maroc), Mio-Pliocène (Floride et Caroline du Nord aux Etats-Unis). Les matières phosphatées des minerais sédimentaires présente une cristallisation extrêmement fine ; les cristallites ont généralement des dimensions bien inférieures au micron. Dans le réseau de ces micro-cristaux, de très nombreuses substitutions (concernant des sites occupés normalement par P, Ca, F) sont possibles : PO_4 remplacé par SO_4 , CO_3 , ou SiO_4 , F par OH, Ca par Mg, Al, Fe, K, Na, Sr, U, Th ou des terres rares. Les éléments phosphatés individualisés des minerais sédimentaires sont visibles à l'œil nu ou au microscope et ils se présentent sous différents types que l'on peut classer en fonction de leur forme, de leur taille et de leur structure interne. Les gisements du Djebel Onk font partie des gisements de ce type. Ses ressources peuvent atteindre 2 milliards de tonnes au niveau du bassin de Djebel Onk.

– **Les gisements d'origine magmatique dits ignés** sont les moins nombreux et fournissent environ 10 à 20 % de la production mondiale des concentrés. Le plus important est situé dans la péninsule de Kola, à l'extrême Nord-Ouest de la Russie ; les gisements sont associés à des intrusions alcalines, le plus souvent, il s'agit de syénites néphéliniques à cœur de carbonatites. Parmi les autres gisements de carbonatites à apatite, on trouve les gisements du Canada, Jacupiranga au Brésil, Siilinjärvi en Finlande ou Phalaborwa en Afrique du Sud. Les minerais d'origine magmatiques sont caractérisés par la présence des grains d'apatite bien cristallisés dans le système hexagonal, avec

des dimensions allant de quelques dizaines de microns jusqu'à quelques millimètres. La structure cristallographique permet de distinguer la fluorapatite $\text{Ca}_5(\text{PO}_4)_3\text{F}$, de l'hydroxylapatite $\text{Ca}_5(\text{PO}_4)_3\text{OH}$ et de la cholroapatite $\text{Ca}_5(\text{PO}_4)_3\text{Cl}$.

La radioactivité naturelle dans l'industrie

Les procédés de production de certaines activités industrielles peuvent modifier les équilibres physico-chimiques de la radioactivité naturelle contenue dans les matières premières utilisées et la concentrer dans les sous-produits et résidus. Il s'agit alors de radioactivité naturelle technologiquement renforcée. Elle représente un risque éventuellement accru de dissémination dans l'environnement et donc d'exposition humaine, même après l'arrêt de l'activité industrielle. Cette radioactivité naturelle involontairement renforcée provient des industries extractives de minerais et de ressources géologiques ainsi que des étapes successives de séparation, d'épuration, de transformation, et d'utilisation des sous-produits.

Comme mentionné plus haut, certains minerais contiennent par nature des concentrations relativement importantes en substances radioactives naturelles, les minerais de phosphate, les sables au zircon, certains minerais non-ferreux : cette radioactivité se retrouvera dans les produits finis et les résidus du processus. Les industries qui utilisent ces matières sont donc des secteurs à risque : l'industrie des phosphates (production d'acide phosphorique, d'engrais ou autres produits phosphatés), la fonderie et la fabrication de matériaux réfractaires (utilisation des sables au zircon), la métallurgie non-ferreuse primaire (à partir du minerai ou du concentrât).

Les processus physico-chimiques des différentes substances radioactives naturelles (uranium, radium, plomb, polonium,...) étant différents, ces éléments ne vont pas forcément suivre le même chemin dans le processus de transformation. Ils peuvent s'accumuler préférentiellement dans certains résidus ou produits. Alors que dans les matières premières minérales, tous les radionucléides d'une même chaîne de désintégration sont généralement présents avec la même activité (on parle d'équilibre séculaire), cet équilibre est brisé par les processus de transformation physico-chimiques. Par exemple, dans l'industrie des phosphates, l'uranium et le radium sont, au départ, présents dans le minerai de phosphate avec une même concentration d'activité ; dans les processus de transformation, l'uranium va se retrouver dans les produits finis (acide phosphorique ou engrais) tandis que le radium se trouvera dans les résidus (phosphogypse notamment) ou se forme de scallings dans les installations.

On peut ainsi identifier un certain nombre de secteurs industriels à risque, à cause des matières premières utilisées ou/et des processus mis œuvre. La problématique NORM peut également se rencontrer dans d'autres secteurs, vu la diversité des pro-

cessus pouvant mener à une concentration des substances radioactives naturelles.

4.1.3 Traitement des minerais et fabrication des engrais

En tant que ressource minérale, le minerai de phosphate est considéré comme un matériau NORM qui contient des quantités significatives de radionucléides primordiaux. Ainsi, des quantités importantes de ces radionucléides peuvent être transférées des minerais aux produits finis et aux résidus. L'industrie des engrais phosphatés est considérée comme une source potentielle de radio-contamination naturelle [Ajmal 2014]. Par conséquent, l'utilisation d'engrais phosphatés dans les activités agricoles pourrait entraîner une migration potentielle des radionucléides des engrais vers le sol et les plantes, et via la chaîne alimentaire, vers les êtres humains ce qui pourrait provoquer des effets sur la santé. Compte tenu des effets néfastes sur la santé humaine dus à l'utilisation croissante d'engrais phosphatés, il est essentiel d'analyser la teneur en radionucléides ^{238}U , ^{226}Ra , ^{232}Th et ^{40}K , non seulement dans le minerai de phosphate, mais aussi dans différents types d'engrais phosphatés agricoles.

La mise en valeur répond aux critères classiques de l'exploitation minière : adéquation aux besoins du marché et rentabilité économique de l'exploitation. Les réserves se chiffrent en dizaines de milliards de tonnes ou en siècles de consommation. Dans la plupart des cas, les minerais de phosphates ne peuvent pas être utilisés directement ; il convient de les solubiliser par une attaque acide. Néanmoins, une petite partie est utilisée en application directe. Préalablement, les minerais de phosphate doivent être enrichis.

L'objectif principal du traitement des minerais de phosphates est de produire des concentrés utilisables dans l'industrie des engrais pour la production d'acide phosphorique ou d'engrais phosphatés. Ces concentrés doivent avoir une teneur minimale en P_2O_5 (> 30 % d'une façon générale), des teneurs maximales en chlorures, sulfures, matière organique, ainsi que dans les rapports $\text{Fe}_2\text{O}_3 + \text{Al}_2\text{O}_3 + \text{MgO}/\text{P}_2\text{O}_5$ ($< 0,09$ environ) et $\text{CaO}/\text{P}_2\text{O}_5$ ($< 1,60$ environ). Pour répondre à ces spécifications, on utilise en général des procédés simples d'enrichissement par voie physique sèche pour les minerais faiblement argileux (broyage sélectif et classifications granulométriques), humide pour les minerais argileux (débouillage et classifications granulométrique) ou flottation. Les minerais d'origine magmatique ne posent en général pas de problèmes d'enrichissement, même pour des teneurs très basses en P_2O_5 (4 – 5 %), ce qui n'est pas le cas pour les minerais sédimentaires pour des teneurs minimales de 7 à 15 % P_2O_5 , notamment pour les minerais à gangue carbonatée.

Depuis des décennies, les exploitants de gisements sédimentaires ont bénéficié de minerais altérés, faiblement carbonatés ne nécessitant pas de traitements par calcina-

tion ou flottation. Mais cette situation évolue et il convient de rappeler que les trois quarts des réserves en phosphate mondiales sont des minerais carbonatés. Dans ce contexte, le traitement de ces minerais fait encore relativement figure d'exception. En dehors de la calcination à température moyenne qui vise à éliminer la matière organique et la pyrite par exemple à Youssoufia (Ganntour, Maroc) et en Caroline du Nord (États-Unis), la calcination sur carbonates existe notamment dans la petite usine de Vernal (Phosphoria Formation) aux États-Unis, au Djebel Onk (Algérie), en Égypte et au Maroc. La calcination est basée sur la dissociation des carbonates à une température comprise entre 700 et 1000 °C suivie d'une hydratation de la chaux et de la magnésie libre contenues dans la décharge du four.

Par contre la flottation des carbonates est en développement. C'est assurément une voie d'avenir, même si elle a subi un échec sur le gisement de Karatau (Kazakhstan) où elle a été arrêtée à la fin des années 80. Diverses usines existent déjà au Moyen Orient et aux États-Unis. Une grosse usine a été installée en Chine et le projet d'Al Jalamid en Arabie Saoudite prévoit aussi un traitement dans une très grosse installation (5 Mt/an de concentrés). Au fil du temps, divers procédés ont été expérimentés : flottation inverse (flottation des carbonates et dépression des phosphates), flottation directe des phosphates, flottation combinée anionique des carbonates et cationique des phosphates⁶, etc. Un développement récent a porté sur l'utilisation d'un nouveau collecteur (acides gras sulfonés).

La teneur en phosphate est exprimée soit en pentoxyde de phosphore (P_2O_5), soit en phosphate tricalcique (TCP ou BPL = Bone Phosphate of Lime = phosphate de chaux des os = $P_2O_5 \times 2,1853$). Ce terme rappelle l'époque où les os étaient la source principale de phosphate dans l'industrie des engrais. Les fabricants d'acide phosphorique et d'engrais phosphatés demandent normalement une teneur minimum de 28 pour cent de P_2O_5 et la plupart des catégories de phosphates commercialisées contiennent plus de 30 pour cent de P_2O_5 (65 pour cent de BPL). Pour répondre à cette exigence, la plupart des minerais de phosphate subissent un traitement comme nous l'avons vu plus haut.

Phosphate de monoammonium

Le phosphate de monoammonium, phosphate monoammonique ou dihydrogénophosphate d'ammonium, est un composé chimique de formule $NH_4H_2PO_4$. On le désigne également par le sigle MAP, de l'anglais Monoammonium phosphate (MAP). Il s'agit d'un sel d'ammoniac NH_3 et d'acide phosphorique H_3PO_4 , constitué de cations ammonium NH_4^+ et d'anions dihydrogénophosphate HPO_4^{2-} . Il se forme à l'état de poudre cristalline lorsqu'on mélange deux solutions d'ammoniac et d'acide phospho-

rique, en même temps que le phosphate d'ammonium $(\text{NH}_4)_3\text{PO}_4$ et le phosphate de diammonium $(\text{NH}_4)_2\text{HPO}_4$ en fonction de la concentration relative en ammoniac et en acide phosphorique; il apparaît dès que la solution devient acide :



Il entre dans la composition d'engrais pour l'agriculture, où il permet d'apporter de l'azote et du phosphore sous une forme assimilable par les plantes, ainsi que dans les poudres pour extincteurs, typiquement mélangé sous une forme fluidifiée à du sulfate d'ammonium $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$.

Les cristaux de phosphate de monoammonium sont biréfringents, et à ce titre fréquemment utilisés en optique, présentant, aux longueurs d'onde de la lumière visible, les indices de réfraction $n_o = 1,522$ et $n_e = 1,478$. Ces cristaux sont également piézo-électriques, propriété mise à profit dans les transducteurs électroacoustiques de sonars, l'alternative étant les transducteurs à magnétostriction. Les cristaux de phosphate de monoammonium ont largement remplacé ceux de quartz SiO_2 et de sel de Seignette (tartrate double de sodium et de potassium, $\text{KOOCC-CHOH-CHOH-COONa}$) au milieu du siècle dernier car ils sont plus faciles à travailler et ne sont pas déliquescents.

Phosphate de diammonium

Le phosphate de diammonium ou phosphate diammonique ou hydrogénophosphate d'ammonium, est un composé chimique de formule $(\text{NH}_4)_2\text{HPO}_4$. Il s'agit d'un sel d'ammoniac NH_3 et d'acide phosphorique H_3PO_4 , constitué de cations ammonium NH_4^+ et d'anions hydrogénophosphate HPO_4^{2-} . Il se forme à l'état de poudre cristalline lorsqu'on mélange deux solutions concentrées d'ammoniac et d'acide phosphorique, en même temps que le phosphate d'ammonium $(\text{NH}_4)_3\text{PO}_4$ et le phosphate de monoammonium $\text{NH}_4\text{H}_2\text{PO}_4$ en fonction de la concentration relative en ammoniac et en acide phosphorique :



En agriculture, le phosphate de diammonium est également appelé de façon indifférente DAP (de l'anglais Diammonium Phosphate) ou 18-46-0 (18 % N, 46 % P_2O_5 , 0 % K_2O). Il se dissout très facilement dans l'eau, donnant une solution aqueuse faiblement basique de pH compris entre 7,6 et 8,2 pour une concentration de 100 g de DAP par litre d'eau. Il est utilisé principalement comme engrais et comme retardateur de flamme pour le bois (par exemple dans la lutte contre les incendies de forêt). On l'utilise également comme source d'azote et de phosphore pour l'élevage de la levure, comme flux de brasage, ou encore comme catalyseur dans la production d'aminoplastes.

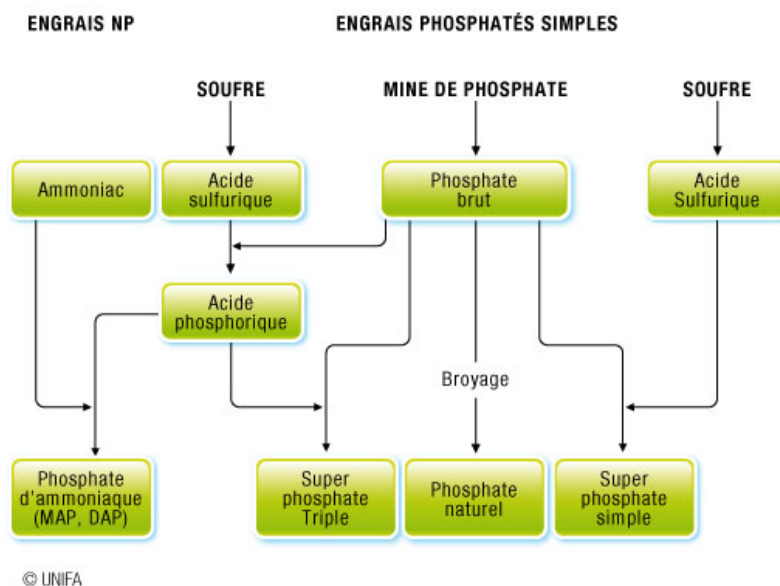


FIG. 4.1 – Principe de fabrication des engrais superphosphatés

Superphosphates

Un superphosphate est un engrais minéral phosphaté. Il intervient dans divers processus métaboliques des plantes. Il est important pour leurs racines et pour leur croissance. Les besoins en phosphore varient en fonction des espèces. Des plantes telles que la pomme de terre, le colza et la luzerne ont des besoins très élevés en phosphore, tandis que d'autres comme l'avoine et le tournesol ont des besoins relativement faibles.

Les superphosphates renferment de l'acide phosphorique soluble dans l'eau, accompagné d'une partie soluble seulement dans le citrate, et même d'une certaine proportion insoluble. Selon la teneur en phosphore quantifiée en P_2O_5 , (pentoxyde de phosphore), on distingue le superphosphate simple SSP, le superphosphate triple TSP et le superphosphate enrichi ESP :

- **Le superphosphate simple (SSP)** : est obtenu par attaque chimique acide d'une roche phosphatée (comme l'apatite) par de l'acide sulfurique. Il contient 16 à 20 % de P_2O_5 . Il fut le premier engrais à être synthétisé. Le superphosphate simple se présente sous forme de granulés de couleur grise. En plus du phosphate, le superphosphate simple apporte à la plante du soufre et du calcium.
- **Le superphosphate triple (TSP)** : est obtenu par attaque chimique acide d'une roche phosphatée par de l'acide phosphorique. Il s'agit de la forme de superphosphate la plus efficiente. Sa teneur en P_2O_5 est de l'ordre de 45 %. Sa teneur élevée en phosphate et sa très grande solubilité en font un engrais très

populaire. Le phosphate qu'il contient est rapidement mis à la disposition des plantes.

- **Le superphosphate enrichi (ESP)** : est obtenu par l'attaque combinée de ces deux acides.

La notion de superphosphate tient au fait que sous cette forme acide, ces phosphates peuvent être plus facilement libérés en milieu aqueux sous forme d'ions phosphates libres, et seront plus faciles à fixer par la plante et plus efficaces et plus rapides en tant qu'engrais, avant qu'ils soient lessivés et transportés dans les eaux de drainage, rivières et nappes phréatiques. Ils constituent la principale catégorie d'engrais phosphatés, et celle qui est le plus rapidement assimilée par les plantes. Ils donnent des résultats supérieurs aux phosphates simples, notamment au début de la végétation à cause surtout de la diffusion plus parfaite dans la couche arable de l'acide phosphorique soluble, car l'important est de placer cet acide à la portée des racines. Ils sont utilisables sur tous types de cultures et tous types de sols. Ils s'emploient à raison de 200 à 500 kg à l'hectare.

Les superphosphates simples SSP, ESP apportent aussi du soufre, utile à certaines cultures. Ils sont souvent employés comme fumure de fond. Compte tenu de leur faible teneur en phosphore, ils sont souvent fabriqués ou employés près des lieux de disponibilité en minerai ou comme matières premières pour la fabrication d'engrais complexes NP, PK, NPK.

Engrais minéraux composés

Les engrais composés associent plusieurs matières premières pour constituer des formules PK, NP, NK, NPK apportant plusieurs éléments nutritifs avec souvent du soufre, du magnésium et des oligo-éléments. L'agriculteur gagne du temps en apportant tous ces éléments en une seule fois. Les nombreuses formules proposées répondent localement aux besoins des sols et des cultures. Elles sont principalement proposées sous forme solides, mais peuvent exister en liquide sous forme de solutions claires (dont le dosage peut être exprimé aux 100 kilos ou aux 100 litres) ou de suspension. Parmi les engrais composés, on distingue essentiellement les engrais ternaires NPK. Ces derniers sont généralement apportés avant le semis ou avant la plantation et sont souvent incorporés au sol par les dernières préparations de sol. Selon les procédés de fabrication, on classe différents types d'engrais composés :

Les engrais composés obtenus par réaction chimique : Par réaction entre matières premières et produits intermédiaires, phosphates naturels, ammoniac, acides nitrique, sulfurique et phosphorique, chlorure et sulfate de potassium, on obtient des

engrais ternaires NPK sous forme de granules. Il y a plusieurs procédés de granulation des engrais complexes NP, NPK qui diffèrent par la nature des matières premières utilisées. Une des plus abouties utilise la liqueur de nitrate d'ammonium comme source d'azote. Certaines formulations peuvent incorporer également du sulfate d'ammonium broyé ou fabriqué in-situ dans le granulateur par neutralisation de l'acide sulfurique (H_2SO_4) par l'ammoniac (NH_3).

La source de P_2O_5 peut être pour partie le superphosphate simple pour sa grande vertu à granuler, mais la majeure partie (dans le cas de NPK à fort dosage P_2O_5) vient du phosphate d'ammonium (phosphate mono ou diammonique, MAP ou DAP) fabriqué in-situ dans le granulateur par neutralisation de l'acide phosphorique (H_3PO_4) par l'ammoniac (NH_3) ou par ajout de sel solide broyé. La source de K_2O est le plus souvent le chlorure de potassium (KCl) mais parfois, pour des formulations pauvres en chlore, le sulfate de potassium (K_2SO_4) est utilisé.

La granulation des engrais complexes est une technique délicate qui doit prendre en compte, en fonction de la formule choisie, le pH final, le bilan eau/vapeur (matières premières solides ou liquides), le bilan thermique de l'opération (présence ou non de réactions de neutralisation exothermiques) et la faculté des produits à granuler ou non.

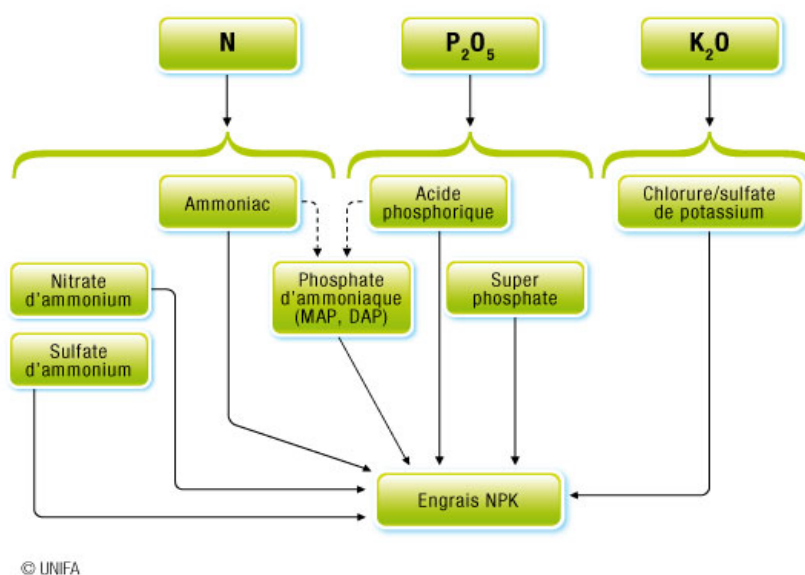


FIG. 4.2 – Principe de fabrication des engrais NPK, procédé nitrique

Les engrais composés de mélange dits de «bulk-blending» : Les engrais simples ou composés déjà granulés ou compactés sont mélangés entre eux pour constituer une nouvelle formule. Les particules peuvent être de taille et de formes différentes.

Leur contenu en éléments nutritifs est différent de celui de la formule déclarée après mélange.

Exemple : à partir d'Urée granulée (46 % N) + phosphate d'ammoniaque granulé (18 % N- 46 % P₂O₅) + Chlorure de potassium compacté (60 % K₂O) on obtient une gamme d'engrais composés NPK de mélange de titre aussi varié que 19-19-19, 25-15-15 ou 10-20-30. Si cette technique de mélange a l'avantage de produire de nombreuses formules s'adaptant aux besoins locaux, elle doit s'accompagner de précautions dans le choix des engrais de base et dans la qualité du mélange. Les engrais doivent être compatibles entre eux sous l'angle chimique et physique. Les granulométries doivent être proches et suffisamment resserrées. Il n'est pas recommandé d'épandre ces engrais composés de mélange à des largeurs de plus de 28 mètres compte tenu du comportement balistique différent des particules variables en densité et dans leur forme. La projection des différentes particules du mélange à des largeurs variables ne garantit plus la répartition en tout point de la parcelle de la formule déclarée.

4.1.4 Le phosphore dans le système sol-plante

Le phosphore (P) est un élément qui est largement distribué dans la nature. Il est considéré, avec l'azote (N) et le potassium (K), comme un constituant fondamental de la vie des plantes et des animaux. Le phosphore a un rôle dans une série de fonctions du métabolisme de la plante et il est l'un des éléments nutritifs essentiels nécessaires pour la croissance et le développement des végétaux. Il a des fonctions à caractère structural dans des macromolécules telles que les acides nucléiques et des fonctions de transfert d'énergie dans des voies métaboliques de biosynthèse et de dégradation. A la différence du nitrate et du sulfate, le phosphate n'est pas réduit dans les plantes mais reste sous sa forme oxydée la plus élevée [Marschner 1993].

Le phosphore est absorbé principalement pendant la croissance végétative et, par la suite, la majeure partie du phosphore absorbé est transférée dans les fruits et les graines pendant les étapes de reproduction. Des plantes déficientes en phosphore montrent un retard de croissance (réduction de la croissance des cellules et des feuilles, de la respiration et de la photosynthèse), et souvent une couleur vert foncé (concentration plus élevée en chlorophylle) et une coloration rougeâtre (augmentation de la production d'anthocyanes). Il a été signalé que le niveau de l'approvisionnement en phosphore pendant les étapes reproductrices règle la partition des photosynthétats entre les feuilles-sources et les organes reproducteurs, ceci étant essentiel pour les légumineuses fixatrices d'azote [Marschner 1993]. Des animaux et des êtres humains en bonne santé demandent également des quantités adéquates de phosphore dans leur nourriture pour que leurs processus métaboliques soient normaux. Cet élément nutritif est

absorbé par les plantes dans la solution du sol en tant qu'anion orthophosphate monovalent (H_2PO_4) et divalent (HPO_4), chacun représentant 50 % du phosphore total à un pH proche de la neutralité (pH 6 à 7). A pH 4-6, H_2PO_4 représente environ 100 pour cent du phosphore total en solution. A pH 8, H_2PO_4 représente 20 pour cent et HPO_4 80 pour cent du phosphore total [Black 1968].

Quand un engrais phosphaté hydrosoluble est appliqué au sol, il réagit rapidement avec les composants du sol. Les produits en résultant sont des composés phosphatés modérément solubles et du phosphore adsorbé sur les particules colloïdales du sol [FAO 1984]. Une faible concentration en phosphore dans la solution du sol est habituellement adéquate pour la croissance normale des plantes. Par exemple, Fox et Kamprath (1970) et Barber (1995) ont suggéré qu'une concentration de 0,2 ppm de phosphore était adéquate pour une croissance optimale. Cependant, pour que les plantes absorbent les quantités totales de phosphore nécessaires afin de donner de bons rendements, la concentration en phosphore de la solution du sol en contact avec les racines doit être maintenue pendant tout le cycle de croissance.

En culture continue, des apports de phosphore, en particulier d'engrais hydrosolubles, doivent être effectués pour maintenir le statut phosphaté du sol pour les sols fertiles ou augmenter celui des sols ayant une faible fertilité phosphatée naturelle. Par conséquent, le sol, la culture, l'eau, les méthodes de gestion des engrais phosphatés, les conditions climatiques, etc. sont des facteurs importants à considérer quand on essaye de formuler des recommandations de fertilisation phosphatée et obtenir des réponses adéquates des rendements des cultures.

4.1.5 Matériaux de construction

Les matériaux de construction représentent une source de rayonnement non négligeable car ils sont produits à partir de roches et de sols qui contiennent de la radioactivité à des niveaux variables en fonction de leur origine. La valeur moyenne pondérée mondiale du débit de dose absorbée dans l'habitation est de 84 nGy.h^{-1}

Les radionucléides naturels primordiaux (uranium-238 et descendants, thorium-232 et descendants, potassium-40) sont omniprésents dans la croûte terrestre et les matériaux de construction. Ils sont à l'origine des principales voies d'exposition à la radioactivité naturelle, par :

- inhalation du radon, gaz radioactif naturel dont les deux principaux isotopes sont issus de la désintégration de l'uranium-238 (radon 222) et du thorium-232 (radon 220),
- irradiation externe induite par les rayonnements provenant des radionucléides contenus dans le sol et les matériaux de construction

Le marbre

Le marbre est une roche métamorphique dérivée du calcaire, existant dans une grande diversité de coloris, pouvant présenter des veines, ou marbrures (veines et coloris sont dus à des inclusions d'oxydes métalliques, le plus souvent). Certains types de marbres portent des noms particuliers, par exemple le cipolin ou la griotte. Certains marbres, comme le vert antique, composés de calcaire et de serpentines, sont des ophicalces. Alors la formule chimique du marbre est (CaCO_3) et la densité est environ 2,7 et 2,8 $g.cm^{-3}$. Les principaux gisements de marbre en Algérie sont :

- Gisement de marbre de Filfila (Skikda, Nord-Est algérien) : Marbre blanc de grande qualité.
- Gisement de marbre de Kriste : Marbre rouge, jaune et rose.
- Gisement d'onyx de Mahouna : Onyx rubané polychrome.
- Gisement d'onyx de Bouhnifia : Onyx rose et gris.
- Gisement de travertin de Takbalet : De couleur jaune.

Le Marbre algérien, dans toutes ses variétés et couleurs est très apprécié en Europe (Espagne, Italie, France) et dans les pays du Moyen Orient. Dans cette étude, on s'est particulièrement intéressé par le gisement de Filfila.

Le plâtre

Le plâtre (Gypsum) est un matériau de construction ignifuge. Il est utilisé sous forme de pâte constituée d'un mélange de poudre et d'eau, ou préparé sous forme de plaques. La matière première est, à l'origine, un sulfate de calcium semi hydraté. Maintenant, de nombreux adjuvants entrent dans la composition du plâtre. Alors la formule chimique du plâtre est (CaSO_4) avec la densité est de l'ordre de 2,79 $g.cm^{-3}$.

Le ciment

Le ciment (du latin caementum, signifiant moellon, pierre de construction) est une matière pulvérulente, formant avec l'eau ou avec une solution saline une pâte plastique liante, capable d'agglomérer, en durcissant, des substances variées. Il désigne également, dans un sens plus large, tout matériau interposé entre deux corps durs pour les lier.

La composition de base des ciments actuels est un mélange de silicates et d'aluminates de calcium, résultant de la combinaison de la chaux (CaO) avec de la silice (SiO_2), de l'alumine (Al_2O_3), et de l'oxyde de fer (Fe_2O_3). La densité du ciment est environ de 3,1 $g.cm^{-3}$.

L'argile

L'argile désigne une matière rocheuse naturelle à base de silicates ou d'aluminosilicates hydratés de structure lamellaire, provenant en général de l'altération de silicates à charpente tridimensionnelle, tels que les feldspaths. Elle peut être une matière localement abondante, très diverse, traitée ou raffinée avant emploi, à la fois meuble ou plastique (souvent après addition d'eau) ou à pouvoir desséchant, absorbant ou dégraissant, voire à propriétés collantes ou encore réfractaires, pour servir par exemple autrefois selon des usages spécifiques, souvent anciens, au potier et au briquetier, au maçon et au peintre, au teinturier et au drapier, au verrier et à l'ouvrier céramiste. En réalité, le terme issu du latin *argilla* peut s'appliquer au choix à un minéral argileux et à un ensemble de minéraux argileux, ainsi qu'à diverses roches composées pour l'essentiel de ces minéraux. Les roches de la classe des lutites peuvent être l'argilite, l'argilolite ou argilotite, les shales à l'exclusion des schistes métamorphisés. Les argiles sont des roches sédimentaires clastiques. Lorsqu'elles renferment du calcaire, trois sous-classes sont définies entre le pôle argile et le pôle calcaire en fonction de l'augmentation de la teneur en calcaire : argile calcaire puis marne et enfin calcaire argileux. Les argiles riches en silice gélatineuse, soluble dans les alcalis, se nomment gaizes. Le limon ou le lehm désignent des argiles renfermant des particules siliceuses et accessoirement des pigments minéraux comme la limonite ou la goethite. Le loess est un dépôt de couleur jaunâtre d'origine paléoglacière composé principalement d'argiles et de fines particules calcaires et siliceuses.

Le granite

Le granite est une roche plutonique magmatique à texture grenue, riche en quartz, qui comporte plus de feldspath alcalin que de plagioclase. Il est caractérisé par sa constitution en minéraux : quartz, feldspaths potassiques (orthoses) et plagioclases, micas (biotite ou muscovite). Le granite et ses roches associées forment l'essentiel de la croûte continentale de la planète. C'est un matériau résistant très utilisé en construction, dallage, décoration, sculpture, sous l'appellation granit.

Le granite est le résultat du refroidissement lent, en profondeur, de grandes masses de magma intrusif qui formeront le plus souvent des plutons, ces derniers affleurant finalement par le jeu de l'érosion qui décape les roches sus-jacentes. Ces magmas acides (c'est-à-dire relativement riches en silice) sont essentiellement le résultat de la fusion partielle de la croûte terrestre continentale. Certains granites (plagiogranites) rencontrés en petits plutons dans la croûte océanique sont, quant à eux, le résultat de la différenciation ultime de magmas basiques. Ses minéraux constitutifs sont principalement du quartz, des micas (biotite ou muscovite), des feldspaths potassiques (orthoses)

et des plagioclases. Ils peuvent contenir également de la hornblende, de la magnétite, du grenat, du zircon et de l'apatite. On dénombre aujourd'hui plus de 500 couleurs de granite différentes. Les roches volcaniques correspondantes sont les rhyolites. La composition chimique moyenne du granite est : 74,5 % de SiO_2 , 14 % de Al_2O_3 , 9,5 % de $(\text{Na}_2\text{O}, \text{K}_2\text{O})$, 2 % d'oxydes (Fe, Mn, Mg, Ca) et de densité moyenne : $2,7 \text{ g.cm}^{-3}$.

Le minerai de fer

Le minerai de fer est une roche contenant du fer, généralement sous la forme d'oxydes, comme l'hématite. La teneur en fer est considérablement variable dans les minerais selon le minéral ferrifère, sachant également que l'isomorphisme, presque toujours présent dans les minéraux naturels, réduit la teneur théorique. Dans la nature les minerais de fer d'exploitation sont essentiellement des oxydes : notamment l'hématite Fe_2O_3 , la magnétite Fe_3O_4 et la limonite HFeO_2 . En Algérie, le gisement fer de la mine de l'Ouenza est situé à 120 km au Sud Est de Annaba et à 80 km au nord de Tébessa. Il est aussi limité à l'est par la frontière Algéro-tunisienne et au nord par la wilaya de Souk-Ahras. La mine de l'Ouenza est l'une des plus importantes unités de production de fer dans tout le territoire Algérien.

4.2 Procédure expérimentale

4.2.1 Préparation et conditionnement des échantillons

Afin de mesurer la radioactivité naturelle, plusieurs échantillons géologiques ont été collectés dans différentes régions de l'Algérie. Ces derniers peuvent se classer en deux catégories :

- Echantillons phosphatés : regroupant deux minéraux phosphatés (phosphate brut) et six engrais phosphatés (produits dérivés du mineral phosphaté). Le tableau 4.1 regroupe l'ensemble des échantillons phosphatés mesurés ainsi que leur origine ou leur provenance [Boumala 2018].
- Echantillons de matériaux de construction et matières premières : marbre, granite jaune et noir, plâtre, argile, ciment gris, fer brut. Le tableau 4.2 montre l'ensemble des échantillons de matériaux de construction collectés ainsi que leur provenance.

Les échantillons de forme et de géométrie différentes, dont l'activité sera déterminée, présentent une distribution de radioactivité hétérogène. Les radioéléments recherchés sont le ^{226}Ra , le ^{232}Th et le ^{40}K . Pour obtenir des échantillons homogènes, ces

Echantillons phosphatés	Provenance
Posphate brut 1 (PO1)	Mine de Djebel Onk
Posphate brut 2 (PO2)	Mine de Bordj Ghedir
Phosphate monoammonique (MAP)	Importé
Phosphate diammonique (DAP)	Importé
Engrais phosphatés composés (NPK)	Produit local (Fertial SPA)
Engrais phosphatés composés (NPKs)	Produit local (Fertial SPA)
Superphosphate simple (SSP)	Produit local (Fertial SPA)
Superphosphate triple (TSP)	Produit local (Fertial SPA)

TAB. 4.1 – Provenance des échantillons phosphatés analysés

Matériaux de construction	Provenance
Marbre	Gisement de marbre de Filfila (Skikda)
Granite jaune	Importé de l'Italie
Granite noir	Importé de l'Italie
Plâtre	Gisement de gypse à Deifel (Ouled Djellal)
Argile	Gisement d'argile à Ibn Ziad (Constantine)
Ciment gris	Ciment marchand (Constantine)
Fer brut	Gisement de fer à l'Ouenza (Tebessa)

TAB. 4.2 – Provenance des échantillons de matériaux de construction analysés

derniers sont séchés à 100 °C pendant 24 heures, puis broyés et tamisés (200 μm). Avant toute mesure par spectrométrie gamma, les échantillons tamisés ont été conditionnés et scellés dans des conteneurs standardisés SG50 étanches au radon pendant un mois, pour obtenir l'équilibre séculaire correspondant à 7 demi-vies de ^{222}Rn (3,8 jours) entre les radionucléides. Cette étape est nécessaire pour veiller à ce que le radon est confiné dans le volume et les descendants resteront également dans l'échantillon.

4.2.2 Mesures spectrométriques

Chaque échantillon préparé a été mesuré sous la même configuration géométrique d'étalonnage. L'analyse a été effectuée par spectrométrie gamma avec le détecteur BEGe avec un temps d'acquisition moyen de 86400 secondes.

Les concentrations d'activité correspondants aux radionucléides ^{226}Ra et ^{232}Th dans chaque échantillon ont été calculées de manière indirecte à partir de la valeur moyenne pondérée des activités spécifiques de leurs descendants à l'équilibre séculaire. Après la mesure et la soustraction du bruit de fond, les concentrations d'activité ont été estimées comme suit [Amrani 2001] :

a) La concentration du ^{226}Ra a été calculée comme la moyenne pondérée de l'activité déterminée en utilisant :

- les deux raies d'énergie 295,2 keV (19,2 %) et 351,9 (37,1 %) keV du ^{214}Pb ;
- les raies spécifiques du ^{214}Bi : 609,3 keV (46,1 %), 1120,3 keV (15 %) et 1764,5 keV (15,4%) ;

b) La concentration du ^{232}Th a été également calculée comme la moyenne pondérée de l'activité déterminée en utilisant les raies d'énergie caractéristiques :

- du ^{208}Tl : 583,19 keV (86 %) et 2614,51 keV (99,79 %) ;
- de l' ^{228}Ac : 338,4 keV (12 %) et 911,2 keV (29 %) ;
- du ^{212}Pb à 238,6 keV (43,6 %),

c) La concentration du ^{40}K a été déterminée directement par la mesure de la raie d'énergie caractéristique à 1460,8 keV (10,6 %).

Le tableau résume l'ensemble des radionucléides des familles naturelles mesurables par la technique de spectrométrie γ

4.2.3 L'activité minimale détectable

L'activité minimale détectable (MDA) des radionucléides ^{40}K , ^{226}Ra et ^{232}Th pour tous les échantillons, est donnée dans le tableau suivant (les détails sont dans la partie). L'activité minimale détectable (MDA) pour le ^{40}K , ^{226}Ra , ^{232}Th et ^{137}Cs dans les sols ont été déterminées et sont donnés dans le tableau.

4.3 Résultats et discussions

4.3.1 Concentrations d'activité des radionucléides ^{226}Ra , ^{232}Th et ^{40}K

En utilisant la technique de spectrométrie gamma, les concentrations d'activité des radionucléides primordiaux ^{226}Ra , ^{232}Th et ^{40}K ont été déterminées (tableau 4.3 et tableau 4.6), pour l'ensemble des échantillons mesurés.

Echantillons phosphatés

D'après les résultats obtenus (tableau 4.3), nous pouvons constater que la radioactivité des minéraux PO1 et PO2 est principalement due aux radionucléides des séries de l' ^{238}U , en particulier le ^{226}Ra , et du ^{232}Th . Les concentrations du ^{226}Ra dans PO1 et PO2 sont 143 ± 7 et 366 ± 17 Bq.kg $^{-1}$, respectivement. Ces valeurs indiquent qu'il existe une différence significative de la teneur de ce radionucléide entre PO1 et PO2, puisque la concentration du ^{226}Ra dans PO2 est environ 2,5 fois plus élevée que celle du PO1. Le ^{232}Th montre une concentration très élevée dans le PO1 (382 ± 14 Bq.kg $^{-1}$), cependant, il se présente en très faible valeur dans PO2 (5 ± 1 Bq.kg $^{-1}$).

Echantillon mesuré	Concentration d'activité (Bq.kg ⁻¹)		
	²²⁶ Ra	²³² Th	⁴⁰ K
PO1	143 ± 7	382 ± 14	19 ± 2
PO2	366 ± 17	5 ± 1	26 ± 10
NPK	149 ± 6	14 ± 3	3782 ± 250
NPKs	7 ± 1	3 ± 1	3142 ± 222
MAP	5 ± 1	15 ± 2	52 ± 11
DAP	69 ± 3	8 ± 1	50 ± 7
SSP	132 ± 4	12 ± 3	526 ± 39
TSP	156 ± 7	16 ± 2	534 ± 43

TAB. 4.3 – Concentration d'activités de Ra-226, Th-232 et K-40 dans échantillons phosphatés

Concernant le ⁴⁰K, les concentrations d'activité obtenues sont comparables pour les deux minéraux PO1 et PO2.

Les limites d'activité maximales admissibles sont 35, 35 et 400 Bq.kg⁻¹, respectivement pour le ²²⁶Ra, ²³²Th et ⁴⁰K [UNSCEAR 2000]. Les concentrations du ²²⁶Ra et du ²³²Th obtenues pour le PO1 dépassent ces limites. Pour PO2, seules les concentrations du ²²⁶Ra qui sont plus élevées que les niveaux d'activité admissibles puisque la concentration de ²³²Th était faible. Quant au ⁴⁰K, les concentrations obtenues étaient inférieures aux niveaux admissibles pour les deux échantillons.

La figure 4.3 montre la différence des concentrations d'activités du ⁴⁰K dans les échantillons d'engrais phosphatés, étant plus élevés que la valeur moyenne admissible de 400 Bq.kg⁻¹. Tandis que les activités du ²²⁶Ra et du ²³²Th se trouvent faibles et dans les mêmes proportions que les valeurs limites, à l'exception les superphosphates TSP et SSP pour lesquels les valeurs sont nettement supérieures aux limites 35 et 35 Bq.kg⁻¹.

En outre, le tableau 4.3 énumère les valeurs des concentrations d'activité spécifique dans les engrais phosphatés. On peut voir que ces valeurs variaient de 5 ± 1 à 156 ± 7 pour le ²²⁶Ra, de 3 ± 1 à 16 ± 2 pour le ²³²Th et de 50 ± 7 à 3782 ± 250 Bq.kg⁻¹ pour le ⁴⁰K. On retrouve donc l'ensemble des radioéléments appartenants aux familles naturelles ²³⁸U, ²³²Th et ⁴⁰K. En examinant ces résultats, on peut tirer comme conclusion : les deux fertilisants NPK et NPKs présentent les niveaux d'activités les plus élevées (3782 ± 250 et 3142 ± 222 Bq.kg⁻¹) par rapport aux autres radionuclides identifiés, étant plus élevés que la valeur moyenne admissible de 400 Bq.kg⁻¹, tandis

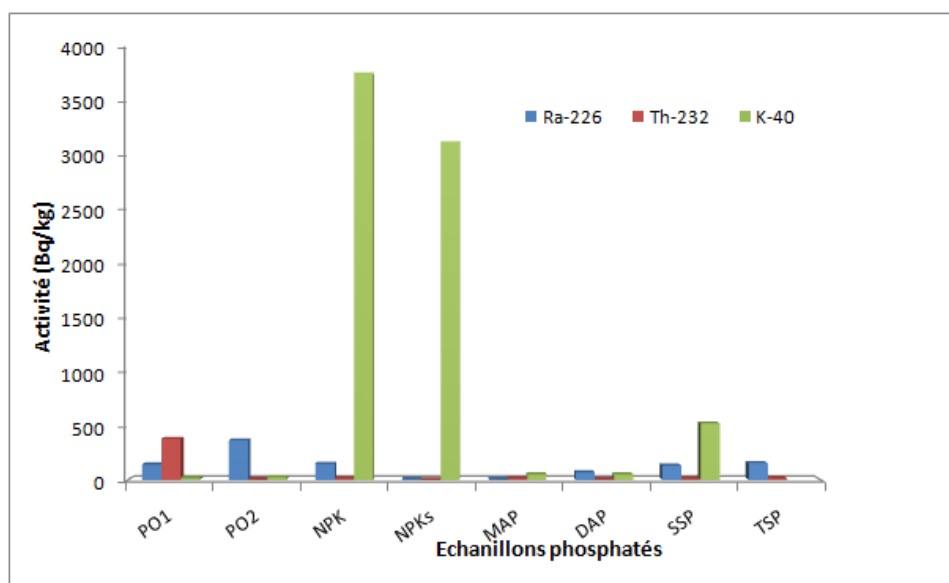


FIG. 4.3 – Comparaison des concentrations d’activités Ra-226, Th-232 et K-40 dans les échantillons d’engrais phosphatés

que l’engrais DAP présentait la valeur la plus faible pour le ^{40}K . Les activités du ^{226}Ra et du ^{232}Th se trouvent faibles et dans les mêmes proportions que les valeurs limites, à l’exception les superphosphates TSP et SSP pour lesquels ces valeurs sont nettement supérieures aux limites 35 et 35 Bq.kg^{-1} . En plus, les concentrations d’activité du ^{226}Ra dans tous les engrais étudiés, à l’exception de l’engrais MAP, étaient plus élevées que celles du ^{232}Th .

Les concentrations d’activité de ^{226}Ra , ^{232}Th et ^{40}K en Bq.kg^{-1} dans les minerais de phosphate étudiés ont été comparées avec d’autres résultats rapportés dans différentes études menées dans d’autres pays à travers le monde. Le tableau 4.4 résume ces résultats, où nous pouvons voir que la variation des niveaux de radioactivité naturelle pour tous les radionucléides observés sur différents sites d’échantillonnage était principalement due aux différences géologiques et géographiques entre toutes les zones minières.

Le tableau 4.5 montre la comparaison des concentrations d’activité de ^{226}Ra , ^{232}Th et ^{40}K obtenus pour tous les engrais phosphatés analysés avec celles rapportées dans d’autres pays à travers le monde. Cette comparaison montre une variation remarquable des concentrations d’activité. La figure 4.3 présente également une comparaison entre les concentrations d’activité ^{226}Ra , ^{232}Th et ^{40}K pour tous les échantillons d’engrais analysés. Les résultats obtenus montrent une variation remarquable des concentrations

Pays	Concentration d'activité (Bq.kg ⁻¹)			Référence
	²²⁶ Ra	²³² Th	⁴⁰ K	
Algérie (PO1)	143	382	19	[Boumala 2018]
Algérie (PO2)	366	5	26	[Boumala 2018]
Arabie saoudite	64	17	2453	[Alharbi 2013]
Inde	120	65	2624	[Chauhan 2013]
Nigeria (Sokoto)	1039	258	536	[Jibiri 2012]
Nigeria (Togo)	1801	16	871	[Jibiri 2012]
Chine	367	5	45	[Song 2011]
Égypte (El-Mahamid)	567	217	2017	[Abbady 2005]
Égypte (W.ElMashash)	666	330	329	[Abbady 2005]
Brasil	352	246	87	[Saueia 2005]
Égypte (Abu-Tartor)	871	19	176	[Sam 1999]
Soudan (Uro)	4021	8	62	[Sam 1999]
Soudan (Kurun)	432	7	141	[Sam 1999]
Pakistan (Hazara)	440	50	207	[Khan 1998]
Finland	10	10	110	[Khan 1998]
Tunisia	821	29	32	[Olszewska 1995]
Jordanie	1044	2	8	[Olszewska 1995]
Tanzania	5022	717	286	[Makweba 1993]
Étas-Unis (Western)	1000	20	N.F	[Olszewska 1995]
Étas-Unis (Florida)	1600	20	N.F	[Olszewska 1995]
Maroc	1600	20	10	[Guimond 1989]

TAB. 4.4 – Concentrations d'activité moyennes du Ra-226, Th-232 et K-40 dans les minéraux phosphatés de différents pays listés pour comparaison avec la présente étude

Type de fertilisant	Pays	^{226}Ra	^{232}Th	^{40}K	Référence
NPK	Algérie	149	14	3872	[Boumala 2018]
	Arabie saoudite	70	25	4293	[El-Taher 2013]
	Inde	79	28	252	[Chauhan 2013]
	Brésil	420	80	2700	[Saucia 2005]
MAP	Algérie	5	15	52	[Boumala 2018]
	Arabie saoudite	17	42	78	[El-Taher 2013]
	Brésil	17	231	118	[Saucia 2005]
	Pakistan	561	85	138	[Khan 1998]
DAP	Algérie	69	8	50	[Boumala 2018]
	Inde	< 2	13	33	[Shahul 2014]
	Arabie saoudite	9	36	45	[El-Taher 2013]
	Inde	75	65	44	[Chauhan 2013]
	Pakistan	545	56	237	[Khan 1998]
	Bengladesh	99	15	74	[Alam 1997]
SSP	Algérie	132	12	526	[Boumala 2018]
	Inde	396	39	56	[Chauhan 2013]
	Arabie saoudite	55	9	553	[El-Taher 2013]
	Égypte	627	6	8	[Mourad 2009]
	Brésil	871	100	375	[Saucia 2005]
	Pakistan	556	50	221	[Khan 1998]
TSP	Algérie	146	16	534	[Boumala 2018]
	Inde	284	23	72	[Chauhan 2013]
	Arabie saoudite	100	6	546	[El-Taher 2013]
	Égypte	516	7	107	[Mourad 2009]
	Brésil	122	538	147	[Saucia 2005]
	Pakistan	559	84	142	[Khan 1998]

TAB. 4.5 – Concentrations d’activité moyennes du Ra-226, Th-232 et K-40 dans les engrais phosphatés de différents pays listés pour comparaison avec la présente étude

d’activité des radionucléides d’un engrais à l’autre. De plus, ces concentrations ont été comparées avec celles rapportées dans d’autres pays dans le tableau 4.5. Comme le montre ce tableau, les teneurs en radioactivité des engrais varient considérablement d’un pays à l’autre. Cette inhomogénéité peut être essentiellement due aux différentes origines des minéraux phosphatés et au traitement chimique impliqué dans le processus industriel de production de ces engrais. Il est à noter que ces valeurs ne sont pas des valeurs représentatives pour les pays mentionnés, mais pour la région d’où les échantillons ont été collectés.

Echantillons de matériaux de construction

Comme il est indiqué ci-dessus, les échantillons de matériaux de construction mesurés peuvent être classés en deux catégories. Une catégorie contenant des produits

Echantillon mesuré	Concentration d'activité (Bq.kg ⁻¹)		
	²²⁶ Ra	²³² Th	⁴⁰ K
Marbre	5 ± 1	1 ± 0,3	17 ± 7
Granite Jaune	62 ± 7	97 ± 16	1340 ± 119
Granite Noir	15 ± 7	42 ± 11	571 ± 55
Platre	8 ± 2	27 ± 4	72 ± 10
Argile	38 ± 9	26 ± 5	256 ± 37
Fer brut	13 ± 5	<	15 ± 2
Ciment gris	27 ± 7	10 ± 2	131 ± 18
Ciment blanc	19 ± 4	2 ± 0,5	112 ± 15
Brique rouge	29 ± 8	25 ± 6	167 ± 27

TAB. 4.6 – Concentrations d'activité de Ra-226, Th-232 et K-40 dans les produits de matériaux de construction

de matières premières (minéraux) prélevés de gisements locaux et une autre catégorie contenant des matériaux de construction finis locaux et importés. Ces échantillons ont fait l'objet d'analyse par spectrométrie gamma. Les concentrations d'activité du ²²⁶Ra, ²³²Th et ⁴⁰K en Bq.kg⁻¹, pour les différents matériaux de construction et matières premières, sont données dans le tableau 4.6.

Il convient de signaler que dans l'ensemble des différents matériaux de construction et matières premières mesurés, on retrouve pratiquement tous les radioéléments naturels primordiaux ²³⁸U, ²³²Th et ⁴⁰K (tableaux ci-dessus). En examinant les résultats obtenus, on peut tirer les conclusions suivantes : Les concentrations d'activité du ²²⁶Ra, ²³²Th et ⁴⁰K varient selon la nature de chaque échantillon mesuré dans les intervalles (5 ± 1 – 62 ± 7), (1 ± 0,3 – 97 ± 16) et (15 ± 3 – 1340 ± 119) Bq.kg⁻¹, respectivement. Le radionucléide ⁴⁰K est celui qui contribue le plus à l'activité spécifique de tous les matériaux de construction mesurés.

Les concentrations d'activité les plus élevées en radionucléides naturels ²²⁶Ra, ²³²Th et ⁴⁰K ont été obtenues pour un matériau importé qui est le granite jaune (62 ± 7, 97 ± 16 et 1340 ± 119 Bq.kg⁻¹), alors que le fer brut (provenant du gisement de l'Ouenza) présente des teneurs en ²²⁶Ra, ²³²Th et ⁴⁰K nettement plus basses (13 ± 5, < LD et 15 ± 2 Bq.kg⁻¹, respectivement.

En comparant les valeurs des concentrations d'activité obtenues avec les limites maximales admissibles de 35, 35 et 400 Bq.kg⁻¹, respectivement pour le ²²⁶Ra, ²³²Th et ⁴⁰K, on constate que les concentrations du ²²⁶Ra et du ²³²Th obtenues ne dépassent pas ces limites, à l'exception de l'échantillon de granite jaune (62 ± 7, 97 ± 16, 1340 ± 119 Bq.kg⁻¹). Quant au ⁴⁰K, les concentrations d'activité obtenues étaient inférieures au

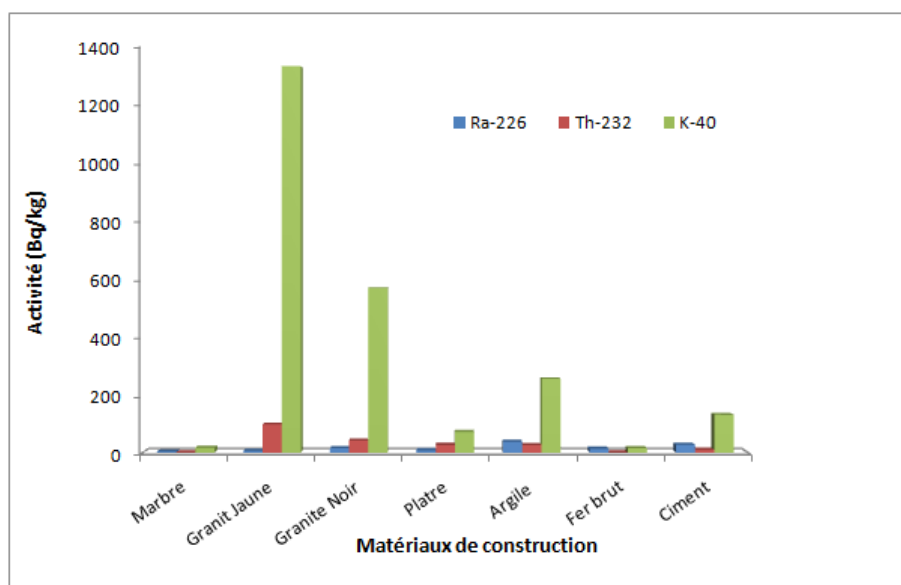


FIG. 4.4 – Comparaison des concentrations d'activités Ra-226, Th-232 et K-40 dans les échantillons de matériaux de construction

niveau d'activité admissible de 400 Bq.kg^{-1} pour tous les échantillons, à l'exception des échantillons de granite jaune et noir 1340 ± 119 et $571 \pm 55 \text{ Bq.kg}^{-1}$, respectivement. Les concentrations d'activité obtenues sont généralement à faibles niveau mais elles sont très variables selon la nature de la roche. La concentration d'activité en ^{226}Ra la plus élevée correspond à l'échantillon de granite jaune qui est de l'ordre de $1340 \pm 119 \text{ Bq.kg}^{-1}$. Pour le ^{232}Th , la concentration la plus haute dans le Bq.kg^{-1} . Quant au radionuclide primordial ^{40}K , son activité pour tous les échantillons dépassent la valeur moyenne admissible par l'UNSCEAR qui est 400 Bq.kg^{-1} . Les valeurs d'activité du ^{40}K dans tous les types d'échantillons sous étude sont plus élevées que celles du ^{226}Ra , ^{232}Th ainsi que tous les radioéléments identifiés (figure 4.4).

4.4 Évaluation des effets radiologiques

L'un des principaux objectifs de la mesure de la radioactivité dans les échantillons environnementaux est d'estimer les doses d'exposition aux rayonnements et d'évaluer les effets radiologiques sur les êtres humains. Les analyses par spectrométrie gamma permettent d'estimer les risques radiologiques liés à l'irradiation externe. UNSCEAR propose des modèles basés essentiellement sur les concentrations des matériaux en ^{226}Ra (^{238}U), ^{232}Th et ^{40}K pour définir certaines grandeurs dosimétriques comme le radium équivalent, les indices de risque interne et externe, le débit de la dose absorbée

et de dose efficace annuelle. Certaines limites à ne pas dépasser sont recommandées. Un indice de risque est un paramètre qui est représenté par une seule valeur qui prend en compte les concentrations d'activités mesurées en ^{226}Ra , ^{232}Th et ^{40}K dans le matériau [Javied 2011]. Les paramètres radiologiques suivants ont été calculés à partir des activités mesurées A_{Ra} , A_{Th} et A_K pour les radionucléides spécifiés ^{226}Ra , ^{232}Th et ^{40}K , respectivement.

4.4.1 Débit de dose absorbée et dose efficace annuelle

Considérant que les radionucléides naturels ^{226}Ra , ^{232}Th et ^{40}K sont uniformément répartis dans le sol, le débit de dose dû au rayonnement gamma dans l'air extérieur à 1,0 m au-dessus du sol peut être calculé en unités de $\text{nGy}\cdot\text{an}^{-1}$, en utilisant la formule [UNSCEAR 2000] :

$$D = \sum (A_X \cdot C_X) \quad (4.3)$$

où A_X ($\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$) est l'activité moyenne de ^{226}Ra , ^{232}Th et ^{40}K et C_X ($\text{nGy}\cdot\text{an}^{-1}$ par $\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$) leurs facteurs de conversion de dose correspondants. Dans le présent travail, les valeurs de C_X utilisées dans tous les calculs de débit de dose sont 0.462, 0.604 et 0,042 ($\text{nGy}\cdot\text{an}^{-1}$) pour ^{226}Ra , ^{232}Th et ^{40}K , respectivement [Al-Trabulsy 2011]. Par conséquent, D peut être calculé comme suit :

$$D = 0,462 A_{Ra} + 0,604 A_{Th} + 0,042 A_K \quad (4.4)$$

La valeur acceptable pour le débit de dose absorbée externe doit être inférieure à 59 $\text{nGy}\cdot\text{an}^{-1}$, selon [UNSCEAR 2008]. Le débit de dose absorbé ne donne pas directement le risque radiologique auquel un individu est exposé [Jibiri 2007]. Il peut être considéré en termes de dose efficace annuelle équivalent du rayonnement gamma terrestre en plein air, qui est converti à partir de la dose absorbée en prenant en compte le facteur de conversion de la dose absorbée dans l'air à la dose efficace et le facteur d'occupation extérieure. Le débit de dose efficace annuel ($AEDR$, en $\text{mSv}\cdot\text{an}^{-1}$) a été estimé à l'aide de la formule suivante :

$$AED = D \times T \times F \quad (4.5)$$

où D ($\text{nGy}\cdot\text{h}^{-1}$) est le débit de dose calculé donné dans l'équation 4.4, T est le temps d'occupation extérieur [$0,2 \times 24$ (heures) $\times 365,25$ (jours)] et F est le facteur de conversion [$0,7 \times 10^{-6}$ $\text{Sv}\cdot\text{Gy}^{-1}$]. Ainsi, l'expression de AED devient :

$$AED = D (\text{nG}\cdot\text{h}^{-1}) \times 8760 (\text{h}\cdot\text{y}^{-1}) \times 0,2 \times 0,7 (\text{Sv}\cdot\text{Gy}^{-1}) \times 10^{-6} \quad (4.6)$$

Les valeurs de AED ne dépassent pas la limite annuelle de dose efficace fixée à 1 $\text{mSv}\cdot\text{an}^{-1}$ pour le grand public [UNSCEAR 2008].

4.4.2 Excès de risque de cancer au cours d'une durée de vie

Ce paramètre donne la probabilité de développer un cancer dans une population d'individus au cours d'une vie à un niveau donné d'exposition au rayonnement. Il est calculé en supposant une relation linéaire entre la dose et les effets stochastiques. Le facteur ELCR peut être estimé en utilisant l'équation suivante [Taskin 2009] :

$$ELCR = AEDE \times DL \times RF \quad (4.7)$$

où $AEDE$ est l'équivalent de dose efficace annuelle, DL est la durée de vie moyenne (supposée être 70 ans) et RF est le facteur de risque mortel de cancer par Sievert, qui est stochastiquement déterminé par la CIPR (1990) à 0,05 pour le publique.

4.4.3 Radium équivalent

Cet indice radiologique est utilisé pour comparer les niveaux d'activité de ^{226}Ra , ^{232}Th et ^{40}K dans les matériaux. Il est basé sur l'idée que 10 Bq.kg⁻¹ de ^{226}Ra , 7 Bq.kg⁻¹ de ^{232}Th et 130 Bq.kg⁻¹ de ^{40}K produisent la même dose efficace de rayonnement gamma. La notion de Ra_{eq} est également employé pour évaluer les risques radiologiques dus à la radioactivité dans les matériaux de l'environnement. Il est calculé à partir de la relation donnée par Beretka et Mathew [Beretka 1985] :

$$Ra_{eq} = A_{Ra} + (7/10) A_{Th} + (10/130) A_K \quad (4.8)$$

Le maximum autorisé de l'activité équivalente au radium est signalée à être inférieur à 370 Bq.kg⁻¹, afin de limiter la dose efficace à 1 mSv.an⁻¹ pour le grand publique [UNSCEAR 1982].

4.4.4 Indices de risque externes et internes

Comme mentionné dans, en ce qui concerne la population, la limite supérieure des doses des différentes radiations dans les matériaux ne doit pas dépasser 1 mSv.an⁻¹. Afin de limiter la dose de radiation à cette valeur, différents modèles basés sur des critères différents ont été proposés. Le modèle proposé par Kriger [Krieger 1981] est basé sur un indice appelé indice de risque externe H_{ex} , qui peut être quantifié en utilisant la relation suivante [Oladele 2009] :

$$H_{ex} = A_{Ra}/370 + A_{Th}/259 + A_K/4810 \quad (4.9)$$

Le risque d'exposition aux rayonnements est négligeable lorsque la valeur maximale de l'indice de risque externe est inférieure à l'unité ($H_{ex} \leq 1$), ce qui correspond à une activité maximum du radium- equivalent de 370 Bq.kg⁻¹.

La décroissance du ^{226}Ra aboutit au ^{222}Rn et ses descendants avec différentes proportions en tenant compte de l'équilibre radioactif. En plus de l'exposition externe aux rayonnements, l'inhalation du gaz ^{222}Rn et de ses produits de désintégration à courte durée de vie, tels que le ^{214}Po et le ^{218}Po (α -émission d'énergie élevée) peut être dangereuse pour les organes respiratoires internes. L'exposition interne au radon et ses descendances est défini par l'indice de risque interne H_{in} , qui peut être quantifié par la relation ci-après [Shahul 2014] :

$$H_{in} = A_{Ra}/185 + A_{Th}/259 + A_K/4810 \quad (4.10)$$

La valeur limite de l'indice de risque interne doit être inférieure à l'unité ($H_{in} \leq 1$).

4.4.5 Indice gamma

Un autre indice de risque radiologique dit indice représentatif de niveau (indice gamma), noté $I_{\gamma r}$, est utilisé pour examiner le niveau de risque des rayonnements gamma. C'est aussi un moyen pour contrôler l'excès de dose associé aux radionucléides naturels ^{226}Ra , ^{232}Th et ^{40}K dans les matériaux. Il peut être calculé selon la formule [Oladele 2009] :

$$I_{\gamma r} = A_{Ra}/150 + A_{Th}/100 + A_K/1500 \quad (4.11)$$

Les valeurs de $I_{\gamma r} \leq 1$ correspondent à une dose efficace annuelle inférieure ou égale à 1 mSv.an⁻¹, tandis que $I_{\gamma r} \leq 0,5$ correspond à une dose efficace annuelle inférieure ou égale à 0,3 mSv.an⁻¹ [Turham 2008].

4.4.6 Doses de rayonnement γ et paramètres radiologiques

Echantillons phosphatés

Les valeurs de doses et des paramètres radiologiques pour les deux minéraux de phosphate ainsi que les engrais phosphatés ont été calculées après avoir déterminé les activités des différents radionucléides (tableau 4.7).

Les valeurs des débits de dose absorbée (D) calculées en utilisant l'équation (4.4) pour les deux minéraux de phosphate, sont très élevés : pour PO1, la valeur de D est de l'ordre de 6 fois la limite admissible fixée à 55 nGy.h⁻¹ [UNSCEAR 2008], et la valeur correspondante pour PO2 est environ trois fois la valeur limite. En se basant sur la radioactivité des engrais phosphatés, les débits de dose absorbés calculés pour les engrais phosphatés varient entre 14 et 235 nGy.h⁻¹, avec une valeur moyenne de

Ech	$D(\text{nGy.h}^{-1})$	$AEDR(\text{mSv.an}^{-1})$	ELCR	$Ra_{eq}(\text{Bq.kg}^{-1})$	H_{ex}	H_{in}	$I_{\gamma r}$
PO1	297	0,36	$1,29 \times 10^{-3}$	690	1,86	2,25	4,78
PO2	173	0,21	$0,75 \times 10^{-3}$	375	1,86	2,25	2,50
NPK	235	0,28	$1,00 \times 10^{-3}$	460	1,24	1,64	3,65
NPKs	136	0,16	$0,57 \times 10^{-3}$	252	0,68	0,70	2,16
MAP	14	0,01	$0,036 \times 10^{-3}$	30	0,08	0,09	0,21
DAP	38	0,04	$0,14 \times 10^{-3}$	83	0,22	0,41	0,56
SSP	90	0,11	$0,39 \times 10^{-3}$	190	0,51	0,86	1,35
TSP	104	0,12	$0,34 \times 10^{-3}$	220	0,59	1,01	1,55

TAB. 4.7 – Dose de rayonnement gamma et paramètres radiologiques des échantillons phosphatés mesurés

102 nGy.h^{-1} . Il est révélé que les valeurs de D dépassent la valeur admissible pour les engrais NPK, NPK, SSP et TSP. L'engrais NPK présente la valeur maximale qui est de l'ordre de quatre fois la valeur limite. Cependant, les engrais MAP et DAP présentent des valeurs acceptables qui ne dépassent pas la limite recommandée de 55 nGy.h^{-1} .

En prenant un facteur d'occupation extérieur de 0,2 et un facteur de conversion de $0,7 \text{ Sv.Gy}^{-1}$, les doses efficaces annuelles de minerais de phosphate et d'engrais ont été estimées à partir de l'équation (4.6). Les résultats pour le calcul des valeurs $AEDR$ sont présentés dans le tableau 4.7. Pour PO1 et PO2, ces valeurs sont de 0,36 et 0,21 mSv.an^{-1} , respectivement, ce qui représente environ 36 et 21% de la limite recommandé de $1,0 \text{ mSv.an}^{-1}$ [UNSCEAR 2008] comme dose annuelle maximale pour le grand public. Les résultats montrent que les valeurs $AEDR$ des échantillons d'engrais varient entre 0,01 et 0,28 mSv.an^{-1} avec une valeur moyenne de $0,12 \text{ mSv.an}^{-1}$, c'est-à-dire environ 12 % de la limite de dose annuelle. ^{40}K est le principal contributeur aux doses d'engrais NPK, tandis que ^{226}Ra est le principal contributeur à D dans les engrais DAP, SSP et TSP. La somme de la contribution relative de ^{226}Ra et ^{40}K au AED varie de 32 à 98 % dans tous les engrais analysés, comme le montre la figure 4.5.

Les valeurs du paramètre ELCR ont été calculés à partir de l'équation (4.7) pour le cas d'exposition externe due aux minerais de phosphate et d'engrais. Ces valeurs figurent dans la troisième colonne du tableau 4.7. Comme indiqué dans ce tableau, les valeurs vont de $0,75.10^{-3}$ à $1,29.10^{-3}$ et de $0,036.10^{-3}$ à $1,00.10^{-3}$ pour les minerais de phosphate et les engrais phosphatés, respectivement. La valeur moyenne du facteur ELCR pour les minerais de phosphate était ($1,02.10^{-3}$) relativement élevée, donc elle est de l'ordre 3,5 fois la moyenne mondiale de $0,29.10^{-3}$ [UNSCEAR 2008]. La valeur correspondante pour les engrais ($0,42.10^{-3}$) était légèrement supérieure à la moyenne mondiale (figure 4.6).

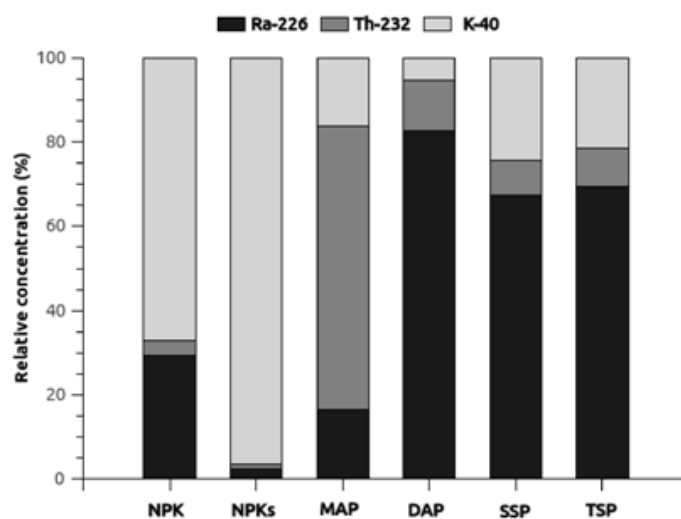


FIG. 4.5 – Concentration relative des radionucléides Ra-226, Th-232 et K-40 à AED dans les engrais phosphatés

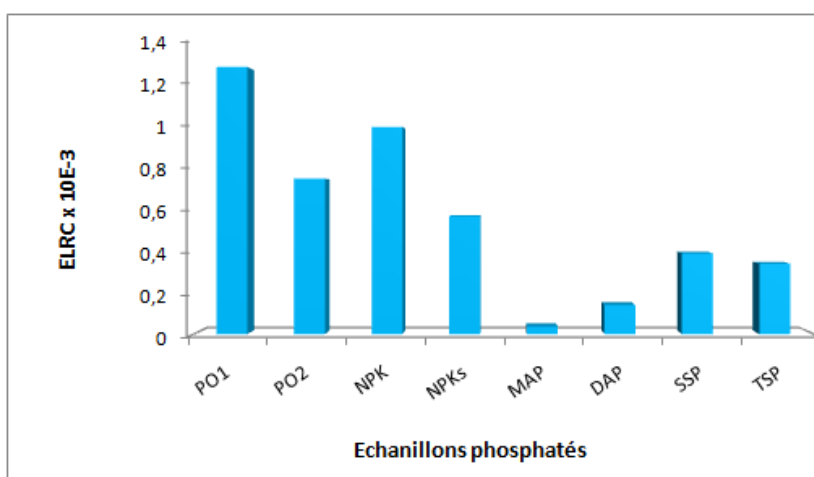


FIG. 4.6 – Variation des valeurs de ELCR pour l'ensemble des échantillons phosphatés

Cela signifie que le facteur de cancer à vie est un risque supplémentaire que quelqu'un puisse avoir un cancer si cette personne est exposée à des substances cancérigènes pendant une longue période. En outre, il encourage le contrôle de l'utilisation de ces matériaux par différents moyens, tels que la sensibilisation à l'environnement sur le rôle des radionucléides naturels et ses risques radiologiques pour les mineurs, les fabricants, les agriculteurs et le publique.

Puisque les distributions du ^{226}Ra , ^{232}Th et ^{40}K dans les échantillons étudiés n'étaient pas uniformes, l'activité de l'équivalent radium (Ra_{eq}) a été calculée en utilisant l'équation 4.8 pour comparer les activités spécifiques obtenues dans ces échantillons. Les résultats de Ra_{eq} sont présentés dans la quatrième colonne du tableau 4.7. Les valeurs de Ra_{eq} obtenues pour les deux minerais PO1 et PO2 sont 690 et 375 Bq.kg^{-1} , respectivement. La valeur obtenue pour le PO1 est de l'ordre de deux fois la valeur limite de 370 Bq.kg^{-1} recommandée, tandis que celle obtenue pour PO2 est du même ordre que la valeur limite. Les valeurs correspondantes pour tous les échantillons d'engrais phosphatés varient entre 30 et 690 Bq.kg^{-1} , avec une valeur moyenne de 206 Bq.kg^{-1} . Ces valeurs sont nettement inférieures au seuil recommandé, à l'exception de l'échantillon NPK (460 Bq.kg^{-1}).

Les valeurs moyennes calculées de H_{ex} (équation 4.9) et H_{in} (équation 4.10) sont également présentées dans le tableau 4.7. Les valeurs de H_{ex} pour PO1 et PO2 étaient respectivement 1.86 et 1.0, il est donc clair que la valeur de H_{ex} pour PO1 dépasse l'unité. Concernant les échantillons d'engrais, H_{ex} varie de 0,08 à 1,24 avec une valeur moyenne de 0,55, ces valeurs H_{ex} pour les engrais sont inférieures à l'unité, sauf pour l'engrais NPK (1,24). Les valeurs de H_{in} pour PO1 (2.25) et PO2 (2.0) dépassent la limite d'unité. Les valeurs de H_{in} varient de 0,095 à 1,64 pour les échantillons d'engrais ayant une valeur moyenne de 0,79, et la limite de 1,0 pour H_{in} n'a été dépassée que pour l'engrais NPK (1,64). Les valeurs calculées de $I_{\gamma r}$ (équation 4.11) sont présentées dans la dernière colonne du tableau 4. Les valeurs obtenues pour PO1 (4,78) et PO2 (2,50) dépassent la limite de l'unité. De plus, pour les engrais mesurés, les valeurs correspondantes varient entre 0,56 et 3,65, avec une valeur moyenne de 1,58. Toutes les valeurs obtenues dépassent la limite de 1,0, à l'exception pour les engrais MAP et DAP.

D'après la figure 4.7, la contribution relative du ^{226}Ra et du ^{40}K au paramètre Ra_{eq} varie de 28% à 95% dans tous les engrais analysés. Le ^{226}Ra représente la contribution principale au Ra_{eq} pour les engrais DAP, SSP et TSP, tandis que le ^{40}K contribue principalement au Ra_{eq} pour l'engrais NPK. Le ^{232}Th a la contribution la plus faible au Ra_{eq} dans tous les engrais à l'exception du MAP.

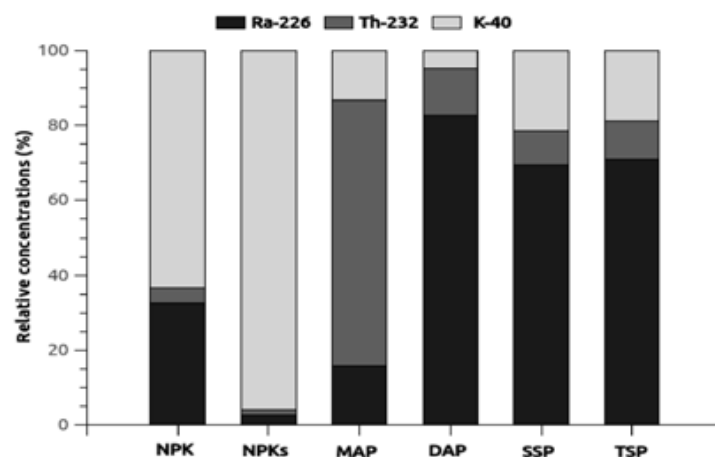


FIG. 4.7 – Concentration relative des radionucléides Ra-226, Th-232 et K-40 à Ra_{eq} dans les engrais phosphatés

Pays	D($nGy \cdot h^{-1}$)	AED($nGy \cdot an^{-1}$)	Ra_{eq} ($Bq \cdot kg^{-1}$)	Référence
Algérie (PO1)	297	0,36	690	[Boumala 2018]
Algérie (PO2)	173	0,21	375	[Boumala 2018]
Brésil	-	-	710	[Saucia 2005]
Égypte (El-Mahamid)	410	0,41	921	[Abbady 2005]
Égypte (W.ElMashash)	527	0,53	1182	[Abbady 2005]
Égypte (Abu-Tartor)	-	-	321	[Khater 2001]
Soudan (Uro)	1862	1,8	4147	[Sam 1999]
Soudan (Kurun)	211	0,18	141	[Sam 1999]
Pakistan (Hazara)	242	0,234	527	[Khan 1998]
Finland	15	0,016	36	[Khan 1998]
Tunisie	398	0,38	865	[Olszewska 1995]
Jordanie	484	0,45	1047	[Olszewska 1995]
Tanzania	2765	2,60	6069	[Makweba 1993]
États-Unis (Western)	474	0,45	1029	[Guimond 1989]
États-Unis (Florida)	751	0,71	1629	[Guimond 1989]
Russie (Kola)	62	0,07	147	[Guimond 1989]
Maroc	752	0,71	1629	[Guimond 1989]

TAB. 4.8 – Comparaison des concentrations d'activité du Ra-226, Th-232 et K-40 dans des minéraux phosphatés de différents pays du monde

Echantillon	$D(\text{nGy.h}^{-1})$	$AEDR(\text{mSv.an}^{-1})$	ELCR	$Ra_{eq}(\text{Bq.kg}^{-1})$	H_{ex}	H_{in}	$I_{\gamma r}$
Marbre	2,89	0,004	$0,01 \times 10^{-3}$	5,40	0,01	0,02	0,04
Granite jaune	142,80	0,17	$0,61 \times 10^{-3}$	222,97	0,81	0,98	2,27
Granite noir	56,10	0,06	$0,24 \times 10^{-3}$	84,37	0,32	0,36	0,90
Platre	22,63	0,02	$0,09 \times 10^{-3}$	31,50	0,13	0,16	0,36
Argile	43,93	0,05	$0,18 \times 10^{-3}$	74,12	0,25	0,35	0,68
Fer brut	6,62	0,008	$0,02 \times 10^{-3}$	14,04	0,03	0,07	0,09
Ciment	23,67	0,02	$0,10 \times 10^{-3}$	42,82	0,13	0,20	0,36

TAB. 4.9 – Dose de rayonnement gamma et paramètres radiologiques des échantillons de matériaux de construction

Le tableau 4.8 compare les résultats rapportés du débit de dose D , de la dose efficace annuelle AED et des activités équivalentes au radium Ra_{eq} obtenues dans d'autres pays avec ceux déterminés dans cette étude. Les grandeurs D , AED et Ra_{eq} évaluées dans ce travail varient dans les valeurs moyennes rapportées d'autres pays.

Echantillons de matériaux de construction

Les concentrations d'activité des principaux radionucléides primordiaux ^{226}Ra , ^{232}Th et ^{40}K identifiés dans l'ensemble des échantillons de matériaux de construction étaient relativement faibles. À partir de ces activités, les valeurs des doses et des paramètres radiologiques associés à ces échantillons sont estimés et illustrés dans le tableau 4.9.

Le tableau 4.9 indique les valeurs de débit de dose absorbée pour tous les matériaux de construction mesurés. Ces valeurs varient de 2,89 à 142,8 nGy.h⁻¹. Nous pouvons confirmer que toutes ces valeurs sont dans la norme de réglementation (< 55 nGy.h⁻¹), à l'exception du granite jaune pour lequel la valeur obtenue est de l'ordre d'environ 2,5 fois la limite recommandée (figure 4.8).

En examinant les valeurs des doses efficaces annuelles, on peut également confirmer que tous les produits de construction étudiés sont dans la norme (< 1 mSv.an⁻¹). Toutes les valeurs de doses annuelles pour les produits sains sont comprises entre 0,004 et 0,17 mSv.an⁻¹.

Les valeurs du paramètre ELCR ont été calculés pour le cas d'exposition externe due aux différents matériaux de construction. Ces valeurs figurent dans la troisième colonne du tableau 4.9. Ces valeurs varient dans l'ensemble de $0,01 \cdot 10^{-3}$ à $0,61 \cdot 10^{-3}$.

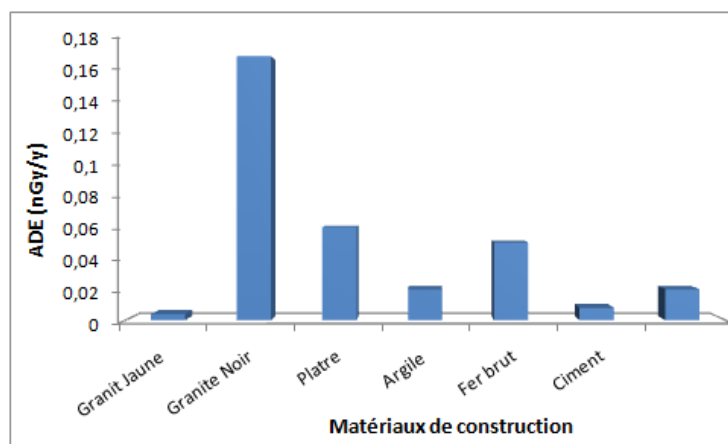


FIG. 4.8 – Variation des valeurs de AED pour l'ensemble des matériaux de construction

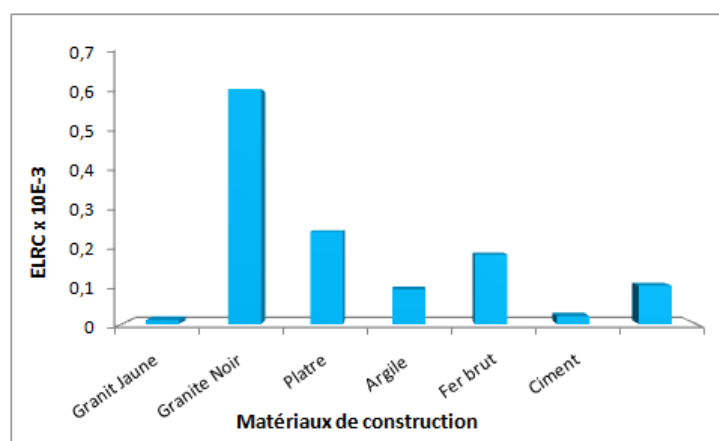


FIG. 4.9 – Variation des valeurs de ELRC pour l'ensemble des matériaux de construction

Toutes ces valeurs sont donc inférieures à la moyenne mondiale de $0,29.10^{-3}$ (figure 4.9). Concernant les paramètres radiologiques, l'activité de l'équivalent radium, les indices de risque externe et interne et l'indice gamma ont été calculés pour tous les échantillons de produits de construction. D'après les résultats du tableau 4.9, on peut constater que les valeurs caractéristiques de l'ensemble de ces paramètres sont dans les normes de réglementation sans exception. Les paramètres H_{ex} , H_{in} et $I_{\gamma r}$ sont inférieurs à l'unité. Pour le Ra_{eq} , les valeurs correspondantes varient de 5,40 à 222,97 Bq.kg⁻¹.

Conclusion

La spectrométrie est une méthode d'analyse non destructive qui reste un outil performant pour effectuer des mesures de la radioactivité environnementale. Elle permet la détermination en une seule mesure des radionucléides émetteurs pour une gamme d'énergie allant de 20 keV à 3 MeV. Des étalonnages qualitatif (en énergie) et quantitatif (en efficacité) sont des étapes importantes pour une mesure précise. Dans ce travail, nous avons effectué un étalonnage en efficacité d'un détecteur HPGe de type Puits en vue des applications aux mesures de la radioactivité dans l'environnement, en particulier pour évaluer les activités pour une série d'échantillons géologiques.

La détermination de la courbe d'efficacité a été faite par un couplage d'une méthode expérimentale avec celle de simulation Monte-Carlo. La configuration Puits du détecteur et les transitions en cascade donnent lieu au phénomène de pic-somme, qui a une influence sur la courbe d'efficacité. Dans cette étude, nous avons déterminé des paramètres de correction de ce phénomène par trois voies. Une bonne concordance a été trouvée entre les résultats obtenus avec ceux cités dans la littérature. Le modèle du détecteur simulé à l'aide du code MCNP6 a été exploité pour étudier quelques effets de matrice, tels que la hauteur de remplissage des échantillons qui a montré l'importance de l'effet aux basses énergies.

La première partie de ces travaux s'est portée sur les effets d'auto-absorption, notamment dans le but d'améliorer la quantification des radioéléments émetteurs gamma de faible énergie. Nous avons convenu l'importance du choix du standard par rapport à la nature des échantillons à étudier. Ainsi, le standard IAEA-447 utilisé pour l'étalonnage en efficacité n'est pas le plus adéquat pour l'analyse des sédiments. En effet, l'atténuation du rayonnement, à une énergie donnée, par l'échantillon dépend de ces caractéristiques physico-chimiques. Les échantillons sédimentaires et le standard IAEA-447 ne possèdent ni la même densité apparente ni la même composition chimique. Par conséquent l'auto-absorption des photons gamma ne sera pas similaire entre ces échantillons ce qui a pour conséquence la mauvaise quantification de certains radioéléments.

Le but a été de trouver une solution pour que le standard et les échantillons étudiés aient le même degré d'atténuation. La solution proposée a été de réaliser l'étalonnage en efficacité par simulation Monte-Carlo, où l'on pourrait choisir librement les caractéristiques du standard numérique. Cependant, la problématique était de déterminer la composition chimique des sédiments sans devoir passer par une analyse élémentaire longue et coûteuse. En faisant intervenir la simulation numérique, nous avons pu déterminer une composition chimique virtuelle ayant le même degré d'atténuation que la composition chimique réelle des échantillons.

La deuxième étude traite des phénomènes de coïncidence touchant les radioéléments multi-gamma, notamment lorsque la source est proche du détecteur. Le logiciel ETNA, permettant de faire les corrections de ces coïncidences, ainsi que le transfert de rendement a été particulièrement exploité. L'utilisation de la simulation numérique pour parvenir à corriger les pics sommes a été testée et comparée aux résultats que propose ETNA pour des distances source-détecteur différentes. Ainsi la différence moyenne entre ETNA et MCNP6 est comprise entre 6 et 8 %. Quelques énergies ont cependant une différence bien supérieure. Ces résultats montrent malgré tout la fiabilité de la simulation pour ce genre de problématique. Les travaux de cette thèse regroupent certains points à ne pas négliger si l'on souhaite à terme réaliser une datation de qualité sur les échantillons sédimentaires. Ils sont également à prendre en compte pour toute autre application qui consisterait à déterminer l'activité d'une source ou d'un échantillon.

Finalement, la correction des effets de pic-somme et de l'auto-absorption est d'une nécessité irrévocable pour apporter une précision aux calculs finaux de l'activité. Cette correction a permis d'améliorer les résultats des différentes grandeurs calculées le long de ce chapitre, à savoir la dose absorbée et la dose efficace annuelle, le radium-équivalent, les indices de risque interne et externe. La concentration de la radioactivité naturelle de ^{40}K , ^{226}Ra et ^{232}Th est mesurée pour les phosphates bruts et ces dérivés ainsi que les matériaux de construction par la technique de spectrométrie gamma. Les valeurs obtenues sont comparables à celles des autres pays. Cette radioactivité varie selon les matériaux et leur origine géologique. L'activité de ^{40}K prédomine dans les engrais NPK, les superphosphates (SST et TSP) et le granite jaune. Cependant, l'activité du ^{226}Ra prédomine dans le minerai PO1. Le minerai rouge est PO2 est caractérisée par l'activité la plus élevée pour le ^{232}Th . Les engrais de type MAP et DAP, le marbre et le fer brut sont les matériaux qui ont les plus faibles activités.

Références

[**Abbady 2005**] A.G.E. Abbady, M.A.M. Uosif, A. El-Taher. Natural radioactivity and dose assessment for phosphate rocks from Wadi El-Mashash and El-Mahamid Mines, Egypt. *J Environ Radioact*, vol 84, pages 65–78, 2005.

[**Ajmal 2014**] P.Y. Ajmal, R.C. Bhangare, M. Tiwari, S.K. Sahu, G.G. Pandit. External gamma radiation levels and natural radioactivity in soil around a phosphate fertilizer plant at Mumbai. *J Radioanal Nucl Chem*, vol 300, pages 23–27, 2014.

[**Alam 1997**] M.N. Alam, M.I. Chowdhury, M. Kamal, S. Ghose, H. Banu, D. Chakraborty. Radioactivity in chemical fertilizers used in Bangladesh. *Appl Radiat Isot*, vol 48, pages 1165–1168, 1997.

[**Alharbi 2013**] W.R. Alharbi. Natural radioactivity and dose assessment for brands of chemical and organic fertilizers used in Saudi Arabia. *J Mod Phys*, vol 4, pages 344–348, 2013.

[**Al-Trabulsy 2011**] H.A. Al-Trabulsy, A.E.M. Khater, F.I. Habbani. Radioactivity levels and radiological hazard indices at the Saudi coastline of the Gulf of Aqaba. *Radiat Phys Chem*, vol 80, pages 343–348, 2011.

[**Amrani 2001**] D. Amrani et M. Tahtat. Natural radioactivity in Algerian building materials. *Appl Radiat Isot*, vol 54, pages 687–689, 2001.

[**Basdevant 2002**] J-L. Basdevant, J. Rich et M. Spiro. *Énergie nucléaire*. Éditions de l'École polytechnique, 2002.

[**Beretka 1985**] J. Beretka et P.J. Mathew. Natural radioactivity of Australian building materials, industrial wastes and by-products. *J Health Phys*, vol 48, pages 87–95, 1985.

[**Berger 1985**] M.J. Berger, J.H. Hubbell, S.M. Seltzer, J. Chang, J.S. Coursey, R. Sukumar et D.S. Zucker. *XCOM : Photon Cross Sections Database (NIST)*. <http://physics.nist.gov/PhysRefData/Xcom/html/xcom1.html>, en ligne (2016).

[**Bertin 1991**] M. Bertin. *Les effets biologiques des rayonnements ionisants*. Nouvelle édition, 1991.

[**Blanc 1997**] D. Blanc. *Les rayonnements ionisants détection, dosimétrie, spectrométrie*. 2e éd. Masson, 1997.

[**Booth 1985**] T. E. Booth. A sample problem for variance reduction in MCNP Rapport : LA-10363-MS, Los Alamos National Laboratory, États -Unis.

[**Boumala 2007**] D. Boumala. *Étude des propriétés nucléaires des noyaux dans la région de masse $A = 132$* . Thèse de magister, Physique, Université Mentouri de Constantine, 2007.

[**Boumala 2018**] D. Boumala, C. Mavon, A. Belafrites, A. Tedjani, J.-E. Groetz. Evaluation of radionuclide concentrations and external gamma radiation levels in phos-

phate ores and fertilizers commonly used in Algeria. *J Radioanal Nucl Chem*, vol , pages , 2018.

[**Boshkova 2014**] T. Boshkova. Experimental assessment of the coincidence summing corrections in gamma-ray spectrometry of bulk samples. *Applied Radiation and Isotopes*, vol 83, pages 1–7, 2014.

[**Calin 2015**] M.R. Calin , I. Radulescu, M.A. Calin. Measurement and evaluation of natural radioactivity in phosphogypsum in industrial areas from Romania. *J Radioanal Nucl Chem*, vol 304, pages 1303–1312, 2015.

[**Chauhan 2013**] P. Chauhan, R.P. Chauhan, M. Gupta. Estimation of naturally occurring radionuclides in fertilizers using gamma spectrometry and elemental analysis by XRF and XRD techniques. *Micro chem J*, vol 106, pages 73–78, 2013.

[**Chelet 2006**] Y. Chelet. *La radioactivité : Manuel d'initiation*. Édition Nucléon, 2002.

[**Courtine 2007**] F. Courtine. Étalonage d'un spectromètre gamma en vue de la mesure de la radioactivité naturelle. Mesures expérimentales et modélisation par techniques de Monte-Carlo. Thèse de doctorat, Physique Corpusculaire, Université Blaise Pascal, 2007.

[**Cutshall 1983**] N.H. Cutshall, I.L. Larsen et C.R. Olsen. Direct analysis of ^{210}Pb in sediment samples : self-absorption corrections. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, vol 206, pages 309–312, 1983.

[**Degrelle 2017**] Caractérisation numérique de la technique de spectrométrie gamma par simulation Monte-Carlo : Application à la datation d'échantillons environnementaux. Thèse de doctorat, Chimie - Physique, Université Bourgogne Franche-Comté, 2017.

[**Delacroix 2006**] D. Delacroix, J.P. Guerre et P. Leblanc. *Guide pratique : Radionucléides & Radioprotection*. 2e éd. EDP Sciences, 2006.

[**Diab 2008**] H.M. Diab, S.A. Nouh, A. Hamdy et S.A. El-Fiki. Evaluation of natural radioactivity in a cultivated area around a fertilizer factory. *J Nucl Radiat Phys*, vol 3, pages 53–62, 2008.

[**Dziri 2012**] S. Dziri, A. Nourredine, A. Sellam, A. Pape et E. Baussan. *Appl. Radiat. Isotopes*, vol 70, pages 11–44, 2012.

[**Dziri 2013**] S. Dziri. Études expérimentales et simulations Monte-Carlo en spectrométrie gamma : Correction des effets de cascade et de matrice pour des mesures environnementales. Thèse de doctorat, Physique, Université de Strasbourg, 2013.

[**Dziri 2014**] S. Dziri, A. Nachab et A. Nourreddine. Elemental composition effects on self-absorption for photons below 100 keV in a gamma-ray spectrometry. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, vol 330, pages 1–6, 2014.

- [**El Samad 2014**] O. El Samad, M. Aoun, B. Nsouli, G. Khalaf et M. Hamze. Investigation of the radiological impact on the coastal environment surrounding a fertilizer plant. *J Environ Radioact*, vol 133, pages 69–74, 2014.
- [**El-Taher 2013**] A. El-Taher et M.A.K. Abdelhalim. Elemental analysis of phosphate fertilizer consumed in Saudi Arabia. *Life Sci J*, vol 10, pages 701–708, 2013.
- [**Foos 2012**] J. Foos. Manuel de radioactivité. Édition HERMANN, 2012.
- [**Galloway 1991**] R.B. Galloway. Correction for sample self-absorption in activity determination by gamma spectrometry. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, vol 300, pages 367–373, 1991.
- [**Gambini 1992**] D. J. Gambini et R. Granier. Manuel pratique de radioprotection. TEC & DOC Lavoisier, 1992.
- [**Gilmore 2008**] G. Gilmore. Practical gamma-ray spectrometry. Wiley & Son, Ltd, 2008.
- [**Gray 1985**] P.W. Gray et A. Ahmad. Linear classes of Ge(Li) detector efficiency functions. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A*, vol, pages 237–577, 1985.
- [**Gruppen 2008**] C. Gruppen et B. A. Shwartz. Particle detectors. 2e éd. New york : Cambridge University Press, 2008.
- [**Guimond 1989**] R.J. Guimond et J.M. Hardi. Radioactivity released from phosphate-containing fertilizers and from gypsum. *Radiat Phys Chem*, vol 34, pages 309–315, 1989.
- [**Jimonet 2007**] C. Jimonet et H. Métivier. Principes de radioprotection – réglementation. EDP Sciences, 2007.
- [**Hammed 1993**] M.A. Hammed, P.W. Gray, A.H. Naboulsi et T.C. Mac Mahon. Analytical peak fitting for gamma-ray spectrum analysis with Ge detectors. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A*, vol, pages 334-543, 1993.
- [**Hassan 2016**] N.M. Hassan, N.A. Mansour, M. Fayez-Hassan et E. Sedqy. Assessment of natural radioactivity in fertilizers and phosphate ores in Egypt. *J Taibah Univ Sci*, vol 10, pages 296–306, 2016.
- [**Hurtado 2006**] S. Hurtado, M.R. García-Leónb et R. García-Tenorioc. Optimized background reduction in low-level gamma-ray spectrometry at a surface laboratory. *Radiation and isotopes*, vol 64, pages 1006–1012, 2006.
- [**Javied 2011**] S. Javied, N. Akhtar et M. Tufail. Radiological hazards of TENORM in precipitated calcium carbonate generated as waste at nitrophosphate fertilizer plant in Pakistan. *J Hazard Mater*, vol 192, pages 78–85, 2011.
- [**Jibiri 2007**] N.N. Jibiri, I.P. Farai, et S.K. Alausa. Estimation of annual effective dose due to natural radioactive elements in ingestion of foodstuffs in tin mining area of Jos-Plateau, Nigeria. *J Environ Radioact*, vol 94, pages 31–40, 2007.

- [**Jibiri 2012**] Jibiri NN, Fasae KP. Activity concentrations of ^{226}Ra , ^{232}Th and ^{40}K in brands of fertilizers used in Nigeria. *Radiat Prot Dosim*, vol 148, pages 132–137, 2012.
- [**Jodlowski 2014**] Pawel, Wachniew, Przemyslaw, Dinh et Chau Nguyen. Monte Carlo validation of the self-attenuation correction determination with the Cutshall transmission method in ^{210}Pb measurements by gamma-spectrometry. *Applied Radiation and Isotopes*, vol. 87, p 387–389, 2014.
- [**Kantele 1995**] J. Kantele. Handbook of nuclear spectrometry. Academic press, 1995.
- [**Khalifa 2005**] N.A. Khalifa et A.M. El-Arabi. Natural radioactivity in farm soil and phosphate fertilizer and its environmental implications in Qena governorate, Upper Egypt. *J Environ Radioact*, vol 84, pages 51–64, 2005.
- [**Khan 1998**] H.M. Khan, M. Tufail, A.J.A. Khatibeh et N. Ahmed. Radiometric analysis of Hazara phosphate rock and fertilizers in Pakistan. *J Environ Radioact*, vol 38, pages 77–84, 1998.
- [**Khater 2001**] A.E.M. Khater, R.H. Higgy et M. Pimpl. Radiological impacts of natural radioactivity in Abu-Tartor phosphate deposits. *J Environ Radioact*, vol 55, pages 255–267, 2001.
- [**Kleinknecht 1986**] K. Kleinknecht. Detectors for particle radiation. New york : Cambridge University Press, 1986.
- [**Knoll 1999**] G. F. Knoll. Radiation Detection and Measurement. 3e éd. New york : John Wiley & Sons, 1999.
- [**Krieger 1981**] R. Krieger. Radioactivity of construction materials. *Betonwerk Fertigteil Technik*, vol 47, pages 468–473, 1981.
- [**Le Petit 2002**] G. Le Petit et G. Granier. Spectrométrie gamma appliquée aux échantillons de l'environnement. TEC & DOC, 2002.
- [**Lépy 2010**] M.C. Lépy. Discussion sur les incertitudes générées par ETNA. Private communication, 2010.
- [**Le Sech 2010**] C. Le Sech et C. Ngô. Chassany. Physique nucléaire : Des quarks aux applications. Dunod, 2010.
- [**Lyoussi 2008**] A. Lyoussi. Mesure nucléaire non destructive dans le cycle du combustible. Partie 1. Vol. BN3 405. Paris : Techniques de l'ingénieur, 2008.
- [**Lyoussi 2010**] A. Lyoussi. Détection de rayonnements et instrumentation nucléaire. EDP Sciences, 2010.
- [**Makweba 1993**] M.M. Makweba et E. Holm. The natural radioactivity of the rock phosphates, phosphatic products and their environmental implications. *Sci Total Environ*, vol 133, pages 99–110, 1993.

[**Miller 1987**] Miller, Kevin. Self-absorption corrections for gamma ray spectral measurements of ^{210}Pb in environmental samples. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, vol 258, pages 281–285, 1987.

[**MCNP 2003**] Monte Carlo Team. MCNP-A general Monte Carlo N transport particle code, version 5. Los Alamos National Laboratory, LA-UR-03-1987, 2003.

[**Mouchel 1992**] D. Mouchel et R. Wordel. Measurement of low-level radioactivity in environmental samples by gamma ray spectrometry. *Appl radiat Isot*, vol 43, pages 49–59, 1992.

[**Molnàr 2002**] G.L. Molnàr, Z. Révay, T. Belgya. Wide energy range efficiency calibration method for Ge detectors. *Nucl Instr Meth Phys Res A*, vol 489, pages 140–159, 2002.

[**Mourad 2009**] N.M. Mourad, T. Sharshar, T. Elnimr, M.A. Mousa. Radioactivity and uoride contamination derived from a phosphate fertilizer plant in Egypt. *Appl Radiat Isot*, vol 67, pages 1259–1268, 2009.

[**Nachab 2003**] A. Nachab. Etude expérimentales et modélisations Monte-Carlo de l'auto-absorption gamma et de la dosimétrie active par capteur CMOS. Thèse de doctorat, Physique subatomique, Université de Strasbourg, 2003.

[**Nimet 2016**] Z. Nimet et A. Hakan. Assessment of radioactivity levels and radiation hazards using gamma spectrometry in soil samples of Edirne, Turkey. *J Radioanal Nucl Chem*, vol 310, pages 959–967, 2016.

[**Oladele 2009**] S.A. Oladele. Measurement of activity concentrations of ^{40}K , ^{226}Ra and ^{232}Th for assessment of radiation hazards from soils of the southwestern region of Nigeria. *Radiat Environ Biophys*, vol 48, pages 323–332, 2009.

[**Olszewska 1995**] M. Olszewska-Wasiolek. Estimates of the occupational radiological hazard in phosphate fertilizers industry in Poland. *Radiat Prot Dosim*, vol 58, pages 269–276, 1995.

[**Paradis 2016**] H. Paradis. Développement de la mesure par spectrométrie gamma en coïncidence. Thèse de doctorat, Physique nucléaire expérimentale, Université Paris-Saclay, 2016.

[**Pelowitz 2007**] D. B. Pelowitz. MCNPX user's manual, version 2.6.0. Los Alamos National Laboratory, LA-CP-07-1473, 2007.

[**Rodier 1974**] J. Rodier et J. Ph. Chassany. Manuel de radioprotection pratique. Maloine S. A, 1974.

[**Sahu 2014**] S.K. Sahu, P.Y. Ajmal, R.C. Bhangare, M. Tiwari et G.G. Pandit. Natural radioactivity assessment of a phosphate fertilizer plant area. *J Radiat Res Appl Sci*, vol 7, pages 123–128, 2014.

[**Sam 1999**] A.K. Sam, M.M.O. Ahamed, F.A. El Khangi, Y.O. El Nigumi et Elis Holm. Radiological and chemical assessment of Uro and Kurun rock phosphates. *J*

Environ Radioact, vol 42, pages 65–75, 1999.

[**Sam 2015**] I. Sam, A.M.A. Mostafa et L. AE-SM. Radiological impacts of natural radioactivity in phosphate rocks from El- Sibaiya and Red Sea coast mines, Egypt. J Radioanal Nucl Chem, vol 303, pages 53–61, 2015.

[**Saueia 2005**] C.H. Saueia, B.P. Mazzilli et D.I.T. Fávoro. Natural radioactivity in phosphate rock, phosphogypsum and phosphate fertilizers in Brazil. J Radioanal Nucl Chem, vol 264, pages 445–448, 2005.

[**Sayah 2012**] R. Sayah. Evaluation des doses dues aux neutrons secondaires reçues par les patients de différents âges traités par proton-thérapie pour des tumeurs intracrâniennes. Thèse de doctorat, Physique médicale, Université Paris XI, 2012.

[**Scholten 1996**] L.C. Scholten et C.W.M. Timmermans. Natural radioactivity in phosphate fertilizers. Fertil Res, vol 43, pages 103–107, 1996.

[**Shahul 2014**] P. H. Shahul, P.G. Sankaran et R. Mathiyarasu. A study on the impact of phosphate fertilizers on the radioactivity profile of cultivated soils in Srirangam (Tamil Nadu, India). J Radiat Res Appl Sci, vol 7, pages 463–471, 2014.

[**Shakhashiro 2012**] A. Shakhashiro, S. Tarjan, A. Ceccatelli, G. Kis-Benedek et M. Betti. IAEA-447 : a new certified reference material for environmental radioactivity measurements. Appl Radiat Isot, vol 70, pages 1632–1643, 2012.

[**Song 2011**] M.H. Song, B.U. Chang, S.M. Koh, Y.J. Kim, D.J. Kim et G.H. Kim. Overall natural radioactivity of a phosphate fertilizer industry in Korea. Radioprotection, vol 46, pages 113–118, 2011.

[**Taskin 2009**] H. Taskin, M. Karavus , P. Ay, A. Topuzoglu, S. Hidiroglu et G. Karahan. Radionuclide concentrations in soil and lifetime cancer risk due to gamma radioactivity in Kirklareli, Turkey. J Environ Radioact, vol 100, pages 49–53, 2009.

[**Tedjani 2016**] A. Tedjani, C. Mavon, A. Belafrites, D. Degrelle, D. Boumala, D. Rius et J.-E Groetz. Well GeHP detector calibration for environmental measurements using reference materials. Nucl.Instrum. Methods Phys. Res. A, vol 838, pages 12–17, 2016.

[**Tavernier 2010**] S. Tavernier. Experimental techniques in nuclear and particle physics. Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 2010.

[**Trevisi 2012**] R. Trevisi, S. Risica, M. D’Alessandro, D. Paradiso et C. Nuccetelli. Natural radioactivity in building materials in the European Union : a database and an estimate of radiological significance. J Environ Radioact, vol105, pages 11–20, 2012.

[**Tsilanizara 2000**] A. Tsilanizara, C.M. Diop, B. Nimal. DARWIN : An Evolution Code System for a Large Range of Applications. Journal of Nuclear Science and Technology, Supplement 1, pages 845–849, 2000.

[**Turham 2008**] S. Turham, U.N. Baykan et K. Sen. Measurement of the natural radioactivity in building materials used in Ankara and assessment of external doses. J

Radio Prot, vol 28, pages 83–91, 2008.

[**UNSCEAR 1982**] UNSCEAR Report, Ionizing radiation : sources and biological effects. United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiations, New York, 1982.

[**UNSCEAR 2000**] UNSCEAR, United Nations Scientific Committee on the Effect of Atomic Radiation, Dose Assessment Methodologies. Sources and Effects of Ionizing Radiation. Report to General Assembly, with Scientific Annexes. United Nations, New York, 2000.

[**UNSCEAR 2008**] UNSCEAR Report, Sources and effects of ionizing radiation, Volume I, Annex B-Exposures of the public and workers from various sources of radiation. United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiations, New York, 2008.

[**UNSCEAR 2008**] UNSCEAR, Sources and effects of ionizing Radiation ; A report to the General Assembly with scientific Annexes. United nations. New York, 2008.

[**Uosif 2014**] M.A.M. Uosif, A.M.A. Mostafa, R. Elsaman et M. El Sayed. Natural radioactivity levels and radiological hazards indices of chemical fertilizers commonly used in Upper Egypt. J Radiat Res Appl Sci, vol 7, pages 430–437, 2014.

Résumé

Les mesures fines des faibles radioactivités par la spectrométrie gamma nécessitent l'optimisation de la géométrie de détection et la connaissance du schéma de niveaux des raies gamma. Ainsi, on peut augmenter le taux de comptage et par conséquent, réduire l'incertitude statistique des pics spectraux exploités pour la quantification des radioéléments en rapprochant le plus possible l'échantillon du détecteur. Cependant, l'augmentation du volume de l'échantillon demande une correction de l'auto-absorption des émissions pour l'échantillon même, et le rapprochement du détecteur est à l'origine du phénomène de pic-somme. L'utilisation de MCNPX a permis de mettre en évidence les effets de matrice séparés : la densité de l'échantillon et le nombre atomique effectif dans l'atténuation des photons d'énergie en-dessous de 100 keV. Les facteurs de correction du pic-somme sont obtenus par MCNPX et ETNA pour des géométries standardisées SG50. Dans une application de dosimétrie, des échantillons géologiques de gisements de matières premières, à savoir les phosphates et leurs produits dérivés, ainsi que quelques matériaux construction ont été analysés par la spectrométrie gamma. L'²³⁸U, le ²³²Th et le ⁴⁰K ont été identifiés et corrigés des effets cités auparavant. La dosimétrie de leurs rayonnements gamma a permis d'évaluer les indices de risque radiologique, la dose absorbée et la dose efficace annuelle reçues provenant de ces matériaux. Les résultats obtenus sont dans les limites réglementaires prescrites par UNSCEAR.

Abstract

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

ملخص

تتطلب القياسات الدقيقة للنشاطات الإشعاعية المنخفضة بواسطة مطياف غاما تحسين هندسة الكشف ومعرفة مخطط مستويات خطوط غاما، كذلك يمكن زيادة نسبة العد وبالتالي يمكن التقليل من الارتياح الإحصائي الخاص بذروة الأطياف المستخدمة لتكميم العناصر المشعة، وهذا يجعل العينة أقرب ما يمكن من الكاشف. ومع ذلك، فإن زيادة حجم العينة يتطلب تصحيح الامتصاص الذاتي للعينة نفسها، وتقريبها إلى الكاشف يشكل أصل ظاهرة جمع الذروة. إن استعمال MCNPX سمح بإبراز المصفوفة المنفصلة لكثافة العينة والعدد الذري الفعال في تخفيف الفوتونات الأقل من 100 keV. يتم الحصول على عوامل تصحيح جمع الذروة باستعمال MCNPX و ETNA وهذا من أجل هندسة موحدة SG 50. في تطبيق قياس الجرعات، تم تحليل العينات الجيولوجية وودائع مواد الخام مثل الفوسفات ومشتقاته، وكذلك مواد البناء بواسطة مطياف غاما. العناصر ²³⁸U، ²³²Th و ⁴⁰K تم تحديدها وتصحيح تأثيراتها المذكورة سابقاً. وقد أتاح قياس جرعات إشعاعات غاما الخاصة بهذه العناصر من تقييم مؤشرات المخاطر الإشعاعية والجرعة الممتصة والجرعة الفعالة السنوية الواردة من هذه المواد. النتائج التي تم الحصول عليها هي ضمن الحدود التنظيمية التي حددتها UNSCEAR.

الكلمات المفتاحية : النشاط الإشعاعي، الفوسفات الخام، مواد البناء، المطيافية غاما، محاكاة Monte-Carlo، الامتصاص الذاتي، جمع الذروة، قياس جرعات غاما، مؤشرات الإشعاعية.