

REPUBLIQUE ALGERIENNE DEMOCRATIQUE ET POPULAIRE
MINISTÈRE DE L'ENSEIGNEMENT SUPERIEUR & DE LA RECHERCHE SCIENTIFIQUE
UNIVERSITÉ MOHAMED SEDDIK BENYAHIA 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

Ahmed TEDJANI

Thème

Mesure de basses activités et aux faibles énergies par spectrométrie gamma à bas bruit de fond et simulation numérique Monte-Carlo ; application à la mesure de l'activité du Pb-210.

Soutenue le : 10/12/2016

Devant le jury :

Président	Ahcene BOUMAIZA	Prof.	Université Mohamed Seddik Benyahia Jijel
Rapporteur	Abdelfettah BELAFRITES	Prof.	Université Mohamed Seddik Benyahia Jijel
Co-rapporteur	Jean-Emmanuel Groetz	HDR	Université de Bourgogne Franche-Comté
Examineurs	Zine-El-Abidine CHAOUI	Prof.	Université Ferhat Abbes Sétif 1
	Mokhtar ABBACI	M.R.	IAGN - COMENA Alger
	Nabil OUNOUGHFI	MCA.	Université Mohamed Seddik Benyahia Jijel

Dédicace

Ce travail est dédié

A la mémoire de mon Père.

A ma très chère mère : tu représentes pour moi le symbole de la bonté par excellence, la source de tendresse et l'exemple du dévouement qui n'a pas cessé de m'encourager et de prier pour moi.

A ma très chère femme : Ma vie à tes cotés est remplie de belles surprises. Tes sacrifices, ton soutien moral, ta gentillesse sans égal et ton profond attachement m'ont permis de réussir ce travail de doctorat.

A mon petit fils Ibrahim Elkhalil : Puisse Dieu, le tout puissant, te préserver et t'accorder santé, longue vie et bonheur.

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 de coopération algéro-française (Profas B+).

Je tiens tout d'abord à remercier mon directeur de thèse, M. Abdelfettah BELAFRITES professeur à l'Université de Jijel. Je lui suis très reconnaissant pour la confiance qu'il m'a accordé, ses encouragements, son aide et ses idées qui m'ont permis d'aller au fond de mes réflexions.

Mes remerciements les plus respectueux vont également à mon co-directeur de thèse M. Groetz Jean-Emmanuel maître de conférences HDR à l'Université de Bourgogne Franche-Comté pour m'avoir chaleureusement accueilli dans son groupe. Encore un grand merci pour ces précieux conseils et compétences scientifiques dont j'ai bénéficié tout au long de la préparation de cette thèse.

Je tiens à remercier tout particulièrement M. Ahcene BOUMAIZA professeur à l'université de Jijel, pour m'avoir fait l'honneur de présider le jury de cette thèse.

Je suis infiniment reconnaissant à M. Zine-El-Abidine CHAOUI professeur à l'université de Sétif, M. Mokhtar ABBACI directeur de recherches au commissariat à l'Energie Atomique « COMENA » Alger, d'avoir acceptés de participer au jury et d'examiner ce travail.

Je tiens également à remercier tous les membres du laboratoire Chrono-Environnement qui ont contribué de près ou de loin à l'élaboration de ce travail, tout particulièrement M. Christophe MAVON, M. Michel FROMM et Damien RIUS.

Je remercie de plus tous les membres de l'équipe de Laboratoire souterrain à Modane (IN2P3 UMR 6417) pour conduire nos mesures au détecteur Puits.

J'adresse mes remerciements les plus fraternels à Dalil BOUMALA, Mounir SOUICI, Nabil OUNOUGHI et à tous mes collègues du laboratoire de Physique des Rayonnements et Applications, pour leurs encouragements et leur assistance qui m'ont permis de faire cette thèse dans de bonnes conditions.

Table des matières

Introduction générale	1
1 De la radioactivité au rayonnement γ	3
1.1 La radioactivité	4
1.1.1 Historique	4
1.1.2 La métrologie des rayonnements	5
1.1.3 Les sources de la radioactivité	6
1.2 Les familles radioactives	7
1.3 Les filiations radioactives	8
1.4 L'équilibre séculaire	9
1.5 Le rayonnement gamma	11
1.5.1 Caractéristiques du rayonnement gamma	11
1.5.2 Les sources du rayonnement γ	12
1.5.3 Les transitions γ	13
1.6 L'interaction γ -matière	14
1.6.1 La diffusion Rayleigh	15
1.6.2 Effet photoélectrique	16
1.6.3 Effet Compton	16
1.6.4 La création de paires	16
1.7 Atténuation et absorption des photons	17
1.8 Détection des photons gamma	19
1.9 Types de détecteurs gamma	20
1.9.1 Détecteurs à scintillation	20
1.9.2 Détecteurs à gaz	20
1.9.3 Détecteurs à semi-conducteurs	21
1.9.3.1 Propriétés des semi-conducteurs	24

1.9.3.2	Les détecteurs germanium	25
1.9.3.3	Les différentes configurations géométriques (GeHP)	25
1.9.3.4	Avantages et inconvénients des détecteurs GeHP	27
2	La spectrométrie γ & simulation Monte-Carlo	28
2.1	La spectrométrie gamma	29
2.1.1	Le principe de la spectrométrie gamma.	29
2.1.2	Les caractéristiques principales des spectromètres	30
2.1.2.1	L'efficacité relative	30
2.1.2.2	La résolution en énergie	30
2.1.2.3	La linéarité de conversion énergétique	31
2.1.2.4	Le bruit intrinsèque	31
2.2	Chaîne de mesure et ses différentes composantes	31
2.2.1	Le détecteur	32
2.2.2	Electronique associée	32
2.2.2.1	Alimentation à haute tension	32
2.2.2.2	Le préamplificateur	32
2.2.2.3	Amplificateur	33
2.2.2.4	Codeur ou convertisseur analogique-numérique	34
2.2.2.5	Analyseur multicanaux	34
2.3	L'analyse des échantillons par spectrométrie γ	34
2.3.1	Etalonnage en énergie	35
2.3.2	Etalonnage en efficacité	35
2.3.3	Résolution en énergie	37
2.4	Spectrométrie gamma à bas bruit de fond	38
2.4.1	La limite de détection LD	38
2.4.2	Le seuil de décision SD	39
2.4.3	L'origine du bruit de fond	39
2.4.3.1	La radioactivité des matériaux	39
2.4.4	Les principes de réduction du bruit de fond	40
2.4.4.1	Sélection des matériaux	40
2.4.4.2	Sélection de la configuration du détecteur	40
2.4.4.3	Protection contre le radon	40
2.4.4.4	Diminution des rayonnements cosmiques	41
2.4.5	Les types d'incertitude en spectrométrie γ	42

2.5	La simulation Monte-Carlo	43
2.6	Le fonctionnement de la méthode Monte-Carlo	44
2.6.1	Principe de la méthode Monte-Carlo	44
2.6.2	Méthodes de simulation adaptée au type de particules	45
2.6.3	Estimation des incertitudes	46
2.6.3.1	Des incertitudes dites « systématiques » classées en catégorie B	46
2.6.3.2	Des incertitudes dites « statistiques » classées en catégorie A	47
2.6.4	Fiabilité de la simulation	47
2.6.5	Efficacité de la simulation Monte-Carlo	48
2.6.6	Réduction de la variance	48
2.7	Le code MCNP	49
2.7.1	Architecture du code MCNP	49
2.7.1.1	Les cellules	50
2.7.1.2	Les surfaces	51
2.7.1.3	La partie physique	51
3	Etalonnage d'un détecteur puits en vue de mesures environnementales	54
3.1	Introduction	55
3.2	Matériels et méthodes	55
3.2.1	Le détecteur GeHP à configuration Puits	55
3.3	La simulation Monte-Carlo	57
3.4	Le standard IAEA-447 (Moss-Soil)	58
3.4.1	Origine et préparation du matériau	58
3.4.2	Étude de caractérisation	59
3.4.3	Procédure de certification	60
3.4.4	Calcul des activités pour des filiations radioactives	60
3.5	Les standards IAEA-RGU1 et IAEA-Th1	62
3.5.1	Préparation de l'IAEA-RG-U1	62
3.5.2	Préparation de l'IAEA-RG-Th1	63
3.5.3	Les activités des standards IAEA-RG-U1 et IAEA-Th1	64
3.6	Protocole expérimental	64
3.7	Résultats et discussion	65
3.7.1	Efficacité du pic d'absorption totale (FEPE)	65
3.7.1.1	La déconvolution des pics en interférence	65
3.7.1.2	Identification des pics γ	66

3.7.1.3	Calcul d'efficacité	68
3.7.2	Effet de pic-somme	70
3.7.2.1	Généralités	70
3.7.2.2	Effet des coïncidences sur un spectre γ	71
3.7.3	Correction du pic-somme	75
3.7.4	Effet de la densité sur TCS	78
3.8	Influence de la hauteur de l'échantillon sur FEPE	79
3.9	Conclusion	80
4	Datation des sédiments lacustres	82
4.1	Introduction	82
4.2	Datation au ^{210}Pb	84
4.2.1	Modèle CFS (Constant Flux and sedimentation)	85
4.2.2	Modèle CRS (Constant Rate of Supply)	85
4.2.3	Modèle CIC (Constant Initial Concentration)	86
4.3	Datation au ^{137}Cs	86
4.4	Les sites étudiés	87
4.4.1	Lac de Longemer et Gérardmer	87
4.4.1.1	Lac de Longemer	87
4.4.1.2	Lac de Gérardmer	88
4.4.1.3	Caractéristiques du lac	88
4.4.2	Lac du Brévent	89
4.5	L'échantillonnage	90
4.6	Analyse des échantillons	91
4.7	Étude Géochronologique	92
4.7.1	Le lac de Longemer	92
4.7.1.1	Distribution du $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$	92
4.7.1.2	Profil du ^{137}Cs	96
4.7.2	Le lac de Gérardmer	97
4.7.2.1	Distribution du $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$	97
4.7.2.2	Profil du ^{137}Cs	100
4.7.3	Le lac du Brévent	101
4.7.3.1	Distribution du $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$	101
4.7.3.2	Profil du ^{137}Cs	104
4.8	Conclusion	106

Conclusion	107
Bibliographie	109
A Code MCNP6	117
Liste des tableaux	122
Table des figures	124

Introduction générale

La plupart des noyaux radioactifs présents dans l'environnement, qu'ils soient naturels ou artificiels sont émetteurs de rayonnements γ . L'enregistrement du spectre en énergie des γ émis par un échantillon permet d'identifier les noyaux radioactifs présents (analyse qualitative) et mesurer l'activité (analyse quantitative) : c'est la technique de spectrométrie γ . La technique de spectrométrie gamma, couramment utilisée, est basée sur un cristal de germanium de gros volume, maintenu sous vide, refroidi à la température de l'azote liquide dans un cryostat. Pour pouvoir mesurer des activités les plus faibles possibles, des spectromètres γ bas bruit de fond ont été développés et installés au Laboratoire souterrain de Modane (LSM). Le LSM est situé sous la montagne du Fréjus, au milieu du tunnel du même nom, à la frontière France-Italie. La technique de spectrométrie γ à bas bruit de fond, grâce à sa grande sensibilité, est utilisée dans de nombreuses disciplines dès que l'on veut étudier ou suivre le comportement de noyaux radioactifs. Des activités aussi faibles que 0,1 mBq/kg peuvent ainsi être mesurées par cette technique, suivant le type de noyaux radioactifs présents dans l'échantillon, la taille et la géométrie de l'échantillon, le volume et la géométrie du cristal de Ge et le temps de la mesure (typiquement 1 à plusieurs jours). Pour cela un étalonnage en efficacité du détecteur utilisé en mesure est nécessaire. La fonction d'efficacité doit être déterminée avec une source d'étalonnage similaire de l'échantillon à analyser en géométrie et composition. Le spectromètre à configuration puits avec une efficacité importante car la mesure se fait dans un angle presque de 4π va être exploité dans des mesures environnementales tel que l'analyse des sédiments lacustres afin de déterminer l'activité des retombés radioactifs comme le ^{210}Pb et le ^{137}Cs . Ces deux derniers seront utilisés par la suite à des méthodes de datation. Le prélèvement des sédiments lacustres se fait à l'aide d'un carottier qui s'enfonce dans le sédiment et dont on bouche la partie supérieure afin de pouvoir remonter son contenu à la surface. Cette technique qui préserve la structure des dépôts permet de prélever jusqu'à environ 1,5 m de sédiments. L'analyse de paramètres chimiques, physiques, ou biologiques en continu et à haute résolution (par

exemple tous les cm) sur une carotte permet de caractériser la variabilité de ces apports au cours du temps. L'enregistrement obtenu reflète l'impact des changements du climat et de l'activité biologique sur la qualité des eaux du lac, mais aussi l'effet possible des activités humaines dans le bassin versant (transport d'aérosols). Les activités de certains radionucléides naturels et artificiels représentent des données clés permettant d'évaluer l'âge des différents enregistrements sédimentaires. Cette analyse chronologique qui autorise une lecture des événements en fonction du temps est réalisée grâce à la datation des sédiments, notamment par la détection des pics d'activité de ^{210}Pb en fonction de la profondeur dans la colonne sédimentaire. Cette technique peut être validée par la méthode de datation au ^{137}Cs en se basant sur la détermination des activités de cet isotope dus aux essais nucléaires (qui débutent en 1951 avec un maximum de retombées en 1963) ou à l'accident de Tchernobyl en 1986. Le manuscrit de cette thèse est scindé en quatre chapitres. Le premier chapitre rappelle les notions de la radioactivité et les différents processus d'interaction des photons γ avec la matière ainsi que les principes et moyens de détection tel que les détecteurs semi-conducteurs. Le deuxième chapitre est consacré à la description de la spectrométrie γ et les méthodes de simulation Monte-Carlo pour le transport des particules ou des photons. Ces codes deviennent un outil essentiel en physique de l'interaction rayonnement-matière. Ils permettent en outre de remonter aux grandeurs inaccessibles expérimentalement. Le code utilisé dans ce travail est MCNP6 (Monte Carlo N-Particle) développé par le laboratoire Los Alamos (USA). Le troisième chapitre décrit l'étalonnage d'un détecteur à configuration Puits installée au LSM pour pouvoir mesurer des activités les plus faibles possibles et basses énergies. Le quatrième chapitre de cette thèse est consacré aux méthodes de datation des sédiments lacustres par le ^{210}Pb et le ^{137}Cs .

Chapitre 1

De la radioactivité au rayonnement

γ

Sommaire

1.1 La radioactivité	4
1.1.1 Historique	4
1.1.2 La métrologie des rayonnements	5
1.1.3 Les sources de la radioactivité	6
1.2 Les familles radioactives	7
1.3 Les filiations radioactives	8
1.4 L'équilibre séculaire	9
1.5 Le rayonnement gamma	11
1.5.1 Caractéristiques du rayonnement gamma	11
1.5.2 Les sources du rayonnement γ	12
1.5.3 Les transitions γ	13
1.6 L'interaction γ-matière	14
1.6.1 La diffusion Rayleigh	15
1.6.2 Effet photoélectrique	16
1.6.3 Effet Compton	16
1.6.4 La création de paires	16
1.7 Atténuation et absorption des photons	17
1.8 Détection des photons gamma	19
1.9 Types de détecteurs gamma	20
1.9.1 Détecteurs à scintillation	20

1.9.2	Détecteurs à gaz	20
1.9.3	Détecteurs à semi-conducteurs	21

1.1 La radioactivité

1.1.1 Historique

Depuis la formation de la Terre, la radioactivité est présente dans toute la matière, celui qui nous entoure et celui qui compose le monde vivant. La radioactivité est d'abord un phénomène physique naturel. Roches, eau, air, aliments : tout ce qui nous entoure est radioactif. Même notre corps ! Et si l'exposition n'est pas uniforme, tous les hommes y sont exposés naturellement en permanence. Ce n'est qu'à partir de 1896, grâce à la découverte d'Henri Becquerel, que la radioactivité est devenue un sujet d'étude majeur : traitement des tumeurs cancéreuses et autres applications médicales ; production d'énergie électrique et d'armes stratégiques et dissuasion ; datation de vestiges archéologiques....

Les progrès de la physique subatomique à basse énergie et les connaissances accumulées durant le siècle dernier ont permis de répertorier plus de 256 nucléides naturels (stables et quasi-stables). Il existe plusieurs bases de données dans lesquelles sont répertoriés les différents nucléides (isotopes stables et radioactifs) avec leurs caractéristiques (excès de masse, durée de vie, spin et parité de l'état fondamental, modes de décroissance, nature des transitions,...).

A titre d'exemple, sur la base de données NNDC (National Nuclear Data Center) la charte interactive des isotopes, présentée dans la figure (1.1), regroupe plus de 3339 nucléides avec leurs statistiques résumées dans le tableau (1.1).

Nombre de niveaux	168136
Nombre de niveaux avec durée de vie connue	24296
Nombre de niveaux avec spin et parité connus	126990
Nombre de transitions γ	255502
Nombre de transitions γ de multipolarité connue	80524
Nombre de transitions α	2033
Nombre de transition β et capture électronique / β^+	14761
Nombre de coïncidences $\gamma - \gamma$	3386569

TAB. 1.1: Statistiques relatives aux isotopes stables et radioactifs [1].

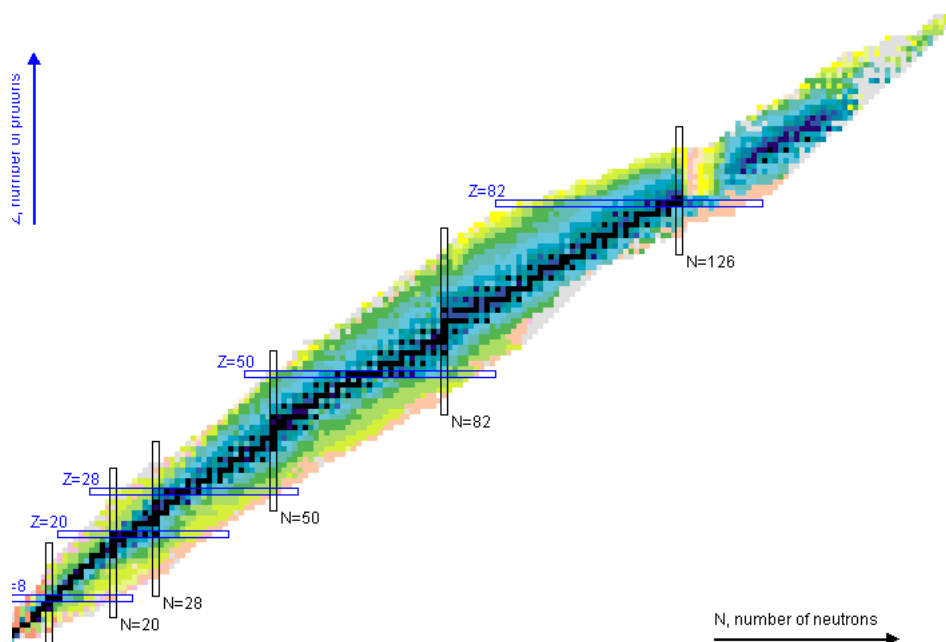


FIG. 1.1: La charte nucléaire.

Dans la représentation (N,Z) dite diagramme de Segré, la vallée de stabilité est située autour de la bissectrice pour $Z \leq 20$ et s'écarte de celle-ci vers les noyaux riches en neutrons selon la relation empirique de neutralisation de l'énergie coulombienne :

$$N - Z = 0,006A^{5/3} \quad (1.1)$$

A étant le nombre de masse.

1.1.2 La métrologie des rayonnements

La désintégration des isotopes radioactifs donne lieu à des rayonnements que l'on peut classer en deux catégories : rayonnements ionisants capables de ioniser des atomes et non ionisants avec une énergie inférieure à celle de liaison de l'électron. La présence de rayonnements ionisants dans l'environnement a été établie quelques années après la découverte de la radioactivité par Henri Becquerel. Avec les mesures des rayonnements ionisants avec et sans blindage, Rutherford et Cooke (1903) [2] ont émis l'hypothèse que ces rayonnements provenaient de l'environnement. En 1908, Mc Lennan prouve que la majeure partie de ces rayonnements a comme origine le sol, en observant une diminution de leur intensité sur un lac couvert de glace comparée à celle au-dessus d'un sol. Hess, en 1912 [3] accroche des détecteurs à des ballons et mesure l'intensité des ra-

diations en fonction de l'altitude. La diminution attendue avec l'altitude n'est pas mise en évidence, mais au contraire une augmentation pour des altitudes supérieures à 1000 mètres a été observée. Ce comportement a été expliqué par l'existence des rayonnements cosmiques. Depuis ces découvertes pionnières de la radioactivité naturelle, de nombreuses recherches ont été effectuées afin de caractériser chacune des radiations émises dans l'environnement. Les premiers dispositifs pour la détection des rayonnements ionisants étaient des écrans fluorescents et scintillans et des films photographiques comme par exemple ceux utilisés par Roentgen. Au début du vingtième siècle, trois types de détecteur ont été développés et sont encore utilisés de nos jours : la chambre à ionisation, le compteur Geiger-Muller et le compteur proportionnel. Ils sont tous les trois basés sur le principe simple de la mesure du courant résultant (ou impulsion-électrique) des paires électron-ion qui sont produites lors d'interactions entre des radiations et le volume sensible du détecteur, principalement du gaz. Ces appareils ont été largement décrits, par exemple par Rossi et Staub en 1949 [4] et Knoll en 1989 [5]. Ces trois types de détecteurs sont toujours utilisés en dosimétrie pour la quantification de la dose totale et du débit de dose total. En 1948, Hofstadter [6] montre que le cristal de iodure de sodium dopé au thallium (NaI(Tl)) a d'excellentes propriétés de scintillation. Cette découverte, avec le développement d'analyseurs multi-canaux (MCA) [7], signe le départ de la spectrométrie gamma moderne. Au cours de la même année, des résultats de mesures avec des systèmes de détection NaI(Tl) apparaissent dans la littérature [8,9]. Les systèmes de spectrométrie de terrain sont développés au cours des années cinquante et dans le début des années 60 ; leur usage se généralise avec le développement des MCA à transistor [10–13]. Par la suite, des détecteurs semi-conducteurs ont été développés avec le germanium comme matériau principal semi-conducteur et dont les premiers ont été produits par processus de dopage au lithium (Ge(Li)) [14]. Comparés aux détecteurs NaI(Tl), les détecteurs Ge(Li) ont une excellente résolution en énergie et permettent donc une meilleure identification des radionucléides [15].

1.1.3 Les sources de la radioactivité

La radioactivité naturelle provient principalement des atomes instables produits dans les étoiles, il y a des milliards d'années. Les traces de ces radioéléments et de leurs descendants se trouvent dans notre environnement. Quatre éléments contemporains de la naissance et de la mort des étoiles ont survécu car leurs durées de vie se mesurent en milliards d'années : deux isotopes de l'uranium, ^{238}U , ^{235}U , ^{232}Th et enfin le ^{40}K qui

constitue environ un dix millième du potassium naturel.

Les noyaux d'uranium et de thorium qui se désintègrent se transforment par « filiation radioactive ». On retrouve ces descendants, en équilibre radioactif (c'est-à-dire que pour chacun de ces descendants il s'en forme autant qu'il s'en désintègre), au sein des minerais d'uranium et de thorium. Les plus célèbres sont le radium, et le polonium, identifiés par Pierre et Marie Curie, et le radon en raison de sa part importante dans la radioactivité naturelle. Finalement, au bout de milliards d'années, les noyaux d'uranium et de thorium deviennent des noyaux stables de plomb, après être passés par toute la série de leurs descendants. La radioactivité naturelle résulte également du bombardement du globe terrestre par des particules de haute énergie en provenance de l'espace : les rayonnements cosmiques. Le bombardement des atomes de l'atmosphère génère aussi des éléments radioactifs dont les plus connus sont le ^{14}C et le tritium ^3H (le rayonnement secondaire). Toutes ces sources de radioactivité naturelle sont modestes et constantes à l'échelle des temps humains. Lors de l'apparition de la vie sur Terre, la radioactivité naturelle due à l'uranium était le double de celle d'aujourd'hui. Depuis quelques dizaines d'années, de nouvelles sources liées à l'activité humaine s'ajoutent aux sources naturelles. La plus importante résulte des soins et traitements médicaux.

1.2 Les familles radioactives

Les corps radioactifs existants dans la nature peuvent être classés en trois grandes familles. Chacune des familles est caractérisée par son « parent » (élément dont sont issus tous les membres de la famille) et dont la période est très grande. La suite d'éléments aboutit, dans chaque famille, après un certain nombre de désintégrations, à un élément stable. On suppose que les éléments, stables ou non, ont été produits lors de la formation de la Terre par agrégation de nucléons, les éléments radioactifs à vie trop courte (ex : le neptunium) ayant disparu. On peut donc penser qu'il n'y a aucune différence de nature entre les radioactivités naturelle et artificielle et que les radioéléments ont sans doute existé à l'origine, mais ont disparu à cause de leurs vie moyenne trop brève. Seules ont subsisté les familles radioactives dont les parents sont assez stables (vie moyenne de l'ordre de grandeur de l'âge de la Terre). On a aussi pu créer en laboratoire la plupart des noyaux radioactifs naturels, ce qui confirme la similitude des deux radioactivités. Le tableau ci-dessous résume les caractéristiques des trois grandes familles radioactives naturelles :

Famille	Parent	Période (ans)	Nombre de masse A	Émanation
Uranium-Radium	^{238}U	4 milliards et 1/2	$4n+2$	Radon
Thorium	^{232}Th	14 milliards	$4n$	Thoron
Uranium-Actinium	^{235}U	700 millions	$4n+3$	Actinon

TAB. 1.2: Les caractéristiques des trois familles radioactives naturelles.

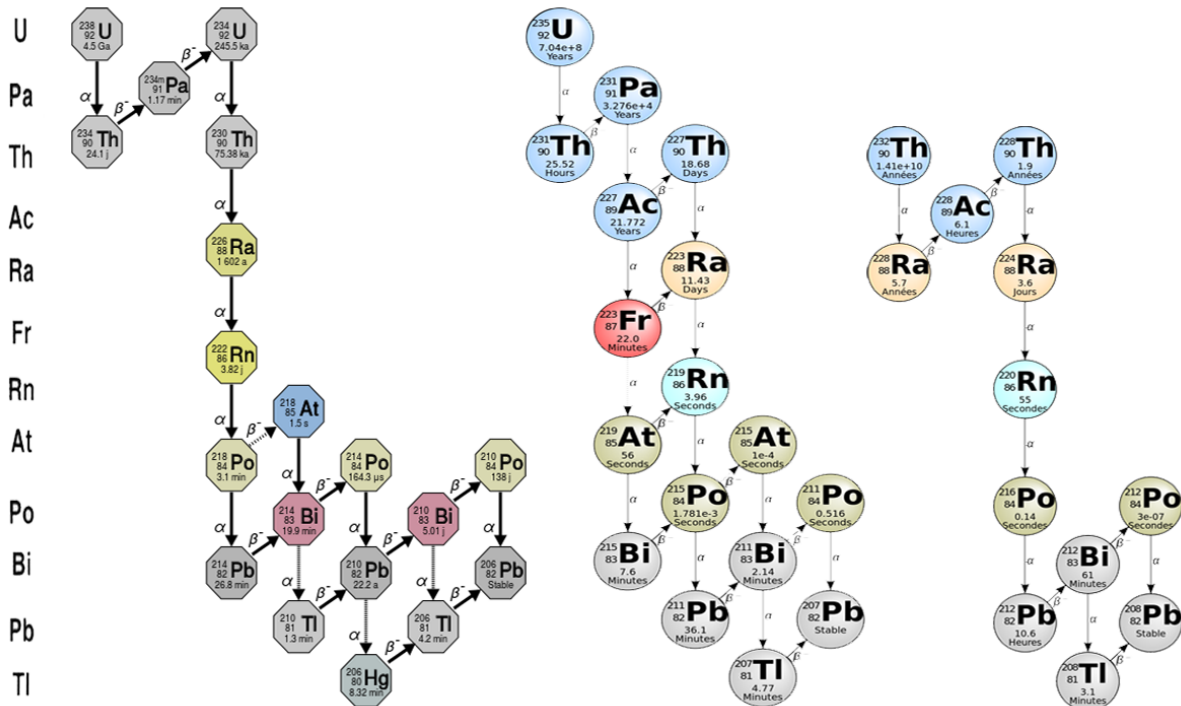


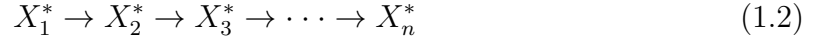
FIG. 1.2: Les trois chaînes radioactives naturelles.

En plus des radioéléments naturels faisant partie de ces trois familles, il existe d'autres éléments radioactifs naturels de très longue période comme le ^{40}K avec une période de $1,25 \cdot 10^9$ ans.

1.3 Les filiations radioactives

Une filiation radioactive (dite aussi "série de décroissance radioactive" ou encore "décroissance multiple") est par définition la stabilisation d'un noyau appelé "noyau père" en une succession de désintégrations. Chaque étape est caractérisée par un état intermédiaire correspondant à un radionucléide appelé "nucléide fils" de l'élément père.

Nous avons une filiation radioactive de n corps :



Où * désigne un isotope radioactif donné, X_n l'isotope stable de la filiation radioactive (les éléments entre deux étant tous des nucléides instables). L'activité d'un radioélément dans la filiation en fonction du temps est donnée par la relation :

$$A_n(t) = \lambda_n N_n(t) \quad (1.3)$$

$N_n(t)$ étant le nombre de noyaux radioactifs du radioélément n présents à l'instant t et λ_n sa constante de désintégration en s^{-1} . Pour déterminer le nombre $N_n(t)$ on utilisera la relation de Bateman [16] :

$$N_n(t) = C_1 e^{-\lambda_1 t} + C_2 e^{-\lambda_2 t} + \dots + C_n e^{-\lambda_n t} \quad (1.4)$$

C_i sont des coefficients déterminés comme suit :

$$C_1 = \prod_{i \neq 1} \frac{\lambda_i}{\lambda_i - \lambda_1} = \frac{\lambda_2}{(\lambda_2 - \lambda_1)} \frac{\lambda_3}{(\lambda_3 - \lambda_1)} \dots \frac{\lambda_{n-1}}{(\lambda_{n-1} - \lambda_1)} \frac{\lambda_n}{(\lambda_n - \lambda_1)} \quad (1.5)$$

$$C_2 = \prod_{i \neq 2} \frac{\lambda_i}{\lambda_i - \lambda_2} = \frac{\lambda_1}{(\lambda_1 - \lambda_2)} \frac{\lambda_3}{(\lambda_3 - \lambda_2)} \dots \frac{\lambda_{n-1}}{(\lambda_{n-1} - \lambda_2)} \frac{\lambda_n}{(\lambda_n - \lambda_2)} \quad (1.6)$$

$$C_n = \prod_{i \neq n} \frac{\lambda_i}{\lambda_i - \lambda_n} = \frac{\lambda_1}{(\lambda_1 - \lambda_n)} \frac{\lambda_2}{(\lambda_2 - \lambda_n)} \dots \frac{\lambda_{n-1}}{(\lambda_{n-1} - \lambda_n)} \quad (1.7)$$

1.4 L'équilibre séculaire

Lorsque la période de l'élément père est très nettement supérieure à celle des éléments fils, les activités des différents fils se mettent à l'équilibre avec celle du père. Cet équilibre, dit séculaire, est obtenu après un temps égal à environ 10 fois la période du fils dont la période est la plus longue : ^{234}U ($T=2,46 \cdot 10^5$ ans) pour la chaîne de l' ^{238}U ($T=4,47 \cdot 10^9$ ans) et ^{228}Ra ($T=5,75$ ans) pour la chaîne du ^{232}Th ($T=1,40 \cdot 10^{10}$ ans). En considérant que toutes les activités sont alors égales, l'erreur commise est inférieure à 1‰.

La figure 1.3 illustre le cas de la chaîne naturelle de filiation du ^{232}Th , pour un matériau

contenant une activité massique de $50 \text{ Bq}\cdot\text{g}^{-1}$ de ^{232}Th .

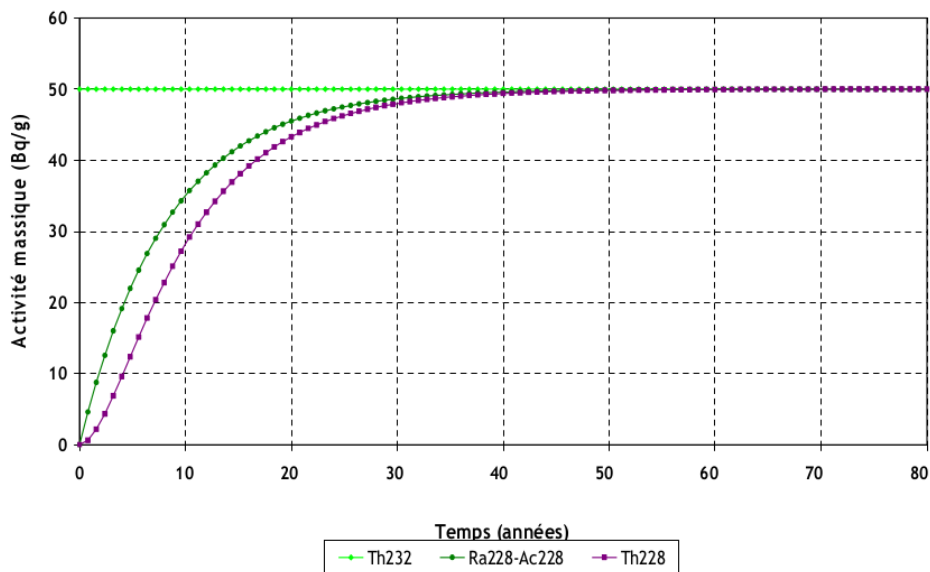


FIG. 1.3: Etablissement de l'équilibre séculaire dans le cas de la chaîne de filiation du ^{232}Th .

La figure 1.4 illustre le cas de la chaîne naturelle de filiation de l' ^{238}U , pour un matériau contenant une activité massique de $50 \text{ Bq}\cdot\text{g}^{-1}$ d' ^{238}U .

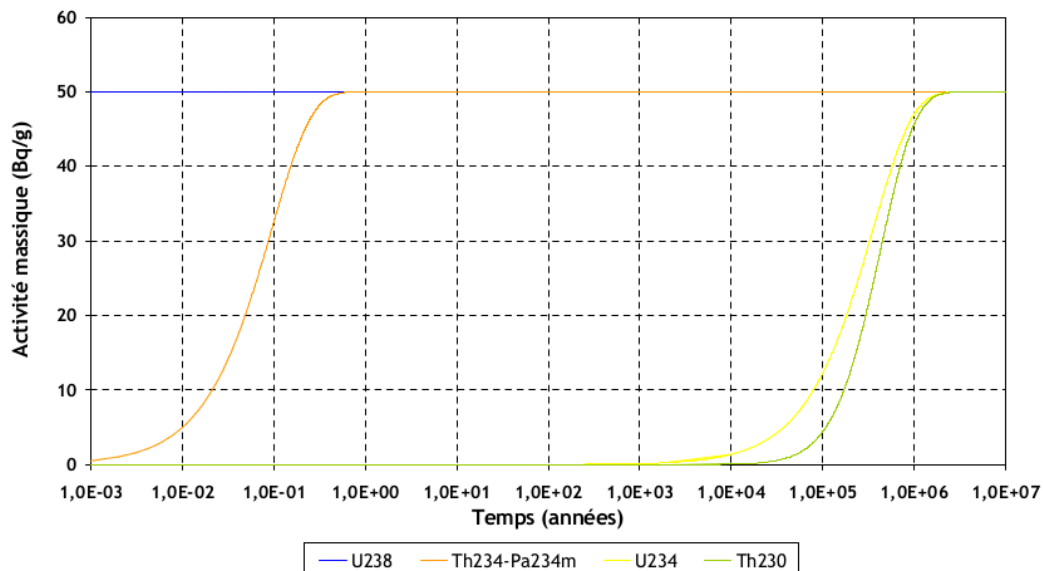


FIG. 1.4: Etablissement de l'équilibre séculaire dans le cas de la chaîne de filiation du ^{238}U .

La Directive européenne n96/29 Euratom du Conseil du 13 mai 1996 indique les différents équilibres séculaires à considérer pour les évaluations dosimétriques portant sur la population et les travailleurs. Le tableau suivant présente, pour les radionucléides retenus dans ce guide, les équilibres à prendre en compte.

Le père	Radionucléides descendants en équilibre
$^{90}\text{Sr}+$	^{90}Y
$^{137}\text{Cs}+$	$^{137\text{m}}\text{Ba}$
$^{238}\text{U}+$	^{234}Th , $^{234\text{m}}\text{Pa}$
$^{226}\text{Ra}+$	^{222}Rn , ^{218}Po , ^{214}Pb , ^{214}Bi , ^{214}Po , ^{210}Pb , ^{210}Bi , ^{210}Po
$^{210}\text{Pb}+$	^{210}Bi , ^{210}Po
$^{228}\text{Ra}+$	^{228}Ac
$^{228}\text{Th}+$	^{224}Ra , ^{220}Rn , ^{216}Po , ^{212}Pb , ^{212}Bi , ^{212}Po , ^{208}Tl
$^{238}\text{U}_{\text{sec}}$	^{234}Th , $^{234\text{m}}\text{Pa}$, ^{234}U , ^{230}Th , ^{226}Ra , ^{222}Rn , ^{218}Po , ^{214}Pb , ^{214}Bi , ^{214}Po , ^{210}Pb , ^{210}Bi , ^{210}Po
$^{232}\text{Th}_{\text{sec}}$	^{228}Ra , ^{228}Ac , ^{228}Th , ^{224}Ra , ^{220}Rn , ^{216}Po , ^{212}Pb , ^{212}Bi , ^{212}Po , ^{208}Tl

TAB. 1.3: Équilibres séculaires à considérer.

Le signe « + » utilisé dans les notations indique que le radionucléide représente aussi ses éléments fils à vie courte, tandis que l'indice « sec » signale que le radionucléide représente également l'ensemble de ses éléments fils à l'équilibre séculaire. La prise en compte des équilibres conduit à majorer le coefficient de dose du radionucléide « tête de chaîne » des coefficients de dose de ses descendants [17].

1.5 Le rayonnement gamma

1.5.1 Caractéristiques du rayonnement gamma

La découverte du rayonnement gamma a eu lieu en 1900 par le physicien Français Paul Villard. Ce rayonnement n'était pas dévié par des champs électriques ou magnétiques, contrairement aux rayonnements alpha et bêta. Il était donc porté par des corpuscules électriquement neutres, qui furent plus tard identifiés à des « photons ». La radioactivité gamma se produit quand une désintégration ou un événement comme la capture d'un neutron a laissé le noyau dans un état excité avec un supplément d'énergie. Le noyau excité revient généralement très rapidement à un état plus stable. Les rayonnements gamma sont de même nature que les photons de lumière émis par les atomes, mais leurs énergies sont des centaines de milliers de fois plus grandes. La radioactivité γ accompagne généralement les désintégrations β et α , comme le montre l'exemple du ^{60}Co dans

la figure (1,5). Ce noyau se désintègre par radioactivité bêta en un noyau de ^{60}Ni avec une période de 5,271 ans. La transformation, accompagnée de l'émission d'un électron et d'un antineutrino, aboutit neuf cent quatre-vingt dix neuf fois sur mille à un état excité du ^{60}Ni . Le noyau perd les 2158,80 keV de son énergie d'excitation en émettant un premier photon gamma suivi d'un second. L'émission des deux photons suit de très près celle de l'électron et de l'antineutrino. L'énergie de masse de l'atome de ^{60}Ni a été prise comme zéro de l'échelle d'énergie.

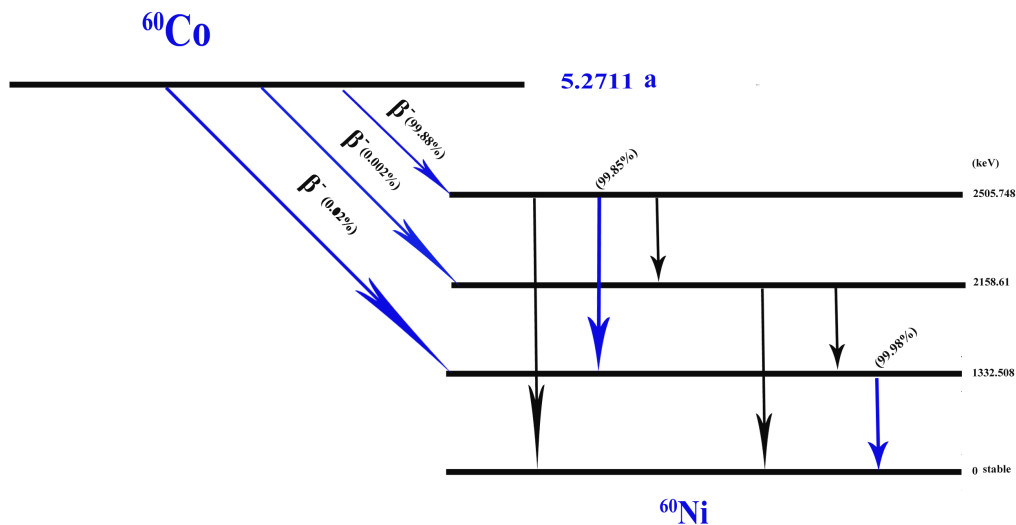


FIG. 1.5: Émission de gamma en cascade.

1.5.2 Les sources du rayonnement γ

Les sources de rayonnement gamma naturel peuvent être divisées en trois parties principales en fonction de leur origine. La première comprend les trois familles radioactives de ^{238}U , ^{235}U et ^{232}Th décrites auparavant, plus l'élément primordial ^{40}K , tous avec une demi-vie du même ordre que l'âge de la Terre ($5 \cdot 10^9$ années). Le deuxième comprend des isotopes radioactifs descendants du premier groupe. Ceux-ci ont des demi-vies allant de petites fractions de seconde à 10^4 - 10^5 ans. Le troisième groupe comprend des isotopes créés par des causes externes, tels que l'interaction des rayons cosmiques avec la Terre et son atmosphère.

1.5.3 Les transitions γ

La transition gamma est presque toujours immédiate ($\tau < 10^{-13}$ s). Elle peut exceptionnellement se produire avec un retard, tel est le cas d'un état excité du technétium qui dure plusieurs heures et qui laisse le temps de l'utiliser dans les hôpitaux comme une source pure de rayonnements gamma. Comme l'atome, le noyau possède des états d'énergie bien définis. Le saut d'un état d'énergie à un autre se fait en émettant un gamma d'énergie unique, caractéristique de la transition et du noyau. La mesure de l'énergie des photons gamma constitue ainsi un moyen d'identification de la nature du noyau émetteur. L'interaction électromagnétique est responsable de l'émission gamma qui respecte les lois de conservation du moment angulaire et de la parité comme suit :

$$E_\gamma = E_i - E_f \quad (1.8)$$

$$\pi_i \pi_f \pi_\gamma = +1 \quad (1.9)$$

La transition électromagnétique entre des états nucléaires ne peut prendre place que si le gamma émis emporte un moment angulaire total L qui inclut son spin intrinsèque et son moment orbital, tel que :

$$|J_i - J_f| \leq L \leq |J_i + J_f| \quad (1.10)$$

Où J_i , J_f sont les moments angulaires de l'état initial et final respectivement. Les propriétés des transitions électromagnétiques peuvent, en principe, être décrites par les modèles nucléaires et fournissent par conséquent des informations intéressantes sur la validité des fonctions d'ondes calculées des états entre lesquels se font les transitions. Les processus de désintégration électromagnétique des noyaux sont décrits comme le résultat de l'interaction du noyau avec un champ électromagnétique externe, de densité d'énergie proportionnelle à $E_2 + c_2 B_2$. L'interaction s'effectue par l'intermédiaire d'un quadri-potentiel (φ, \mathbf{A}) couplé à la quadri-densité (ρ, \mathbf{j}) composée de deux parties : la partie orbitale due aux charges mobiles des protons, et la partie de spin due aux spins intrinsèques des protons et des neutrons [18]. Le photon est un boson de spin 1 ayant deux projections ± 1 , la valeur 0 étant exclue à cause de la théorie de la relativité [19]. Le moment angulaire L est appelé la multipolarité. Selon la loi de la conservation de la

parité, la parité du photon est :

$$\pi_\gamma = \pi_i \pi_f = (-1)^L \quad (1.11)$$

On parle de transition multipolaire électrique EL ou multipolaire magnétique ML en adoptant les notations suivantes :

transition 2 L polaire électrique pour :

$$\pi_{EL} = (-1)^L \quad (1.12)$$

transition 2 L polaire magnétique pour :

$$\pi_{EM} = (-1)^{L+1} \quad (1.13)$$

Les transitions sont dites dipolaires si $L = 1$, quadru-polaires si $L = 2$, octu-polaires si $L = 3, \dots$

1.6 L'interaction γ -matière

Cette interaction peut être classée selon :

- la nature d'interaction : photon/électron ou photon/noyau ;
- le type de l'événement produit : l'absorption, la diffusion ou la production de paires.

Les rayonnements γ interagissent avec la matière par trois moyens principaux : Pour des énergies inférieures à 3 MeV, ce sont l'effet photoélectrique, la diffusion Compton et la production de paires. Pour des énergies de moins de 1022 keV l'effet photoélectrique et la diffusion Compton sont possibles et plus probables, et pour des énergies supérieures à 1022 keV la production de paires est la plus dominante.

L'importance des trois effets varie en fonction de l'énergie du photon incident et du numéro atomique Z de la matière comme le montre la figure (1.6).

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 [20].

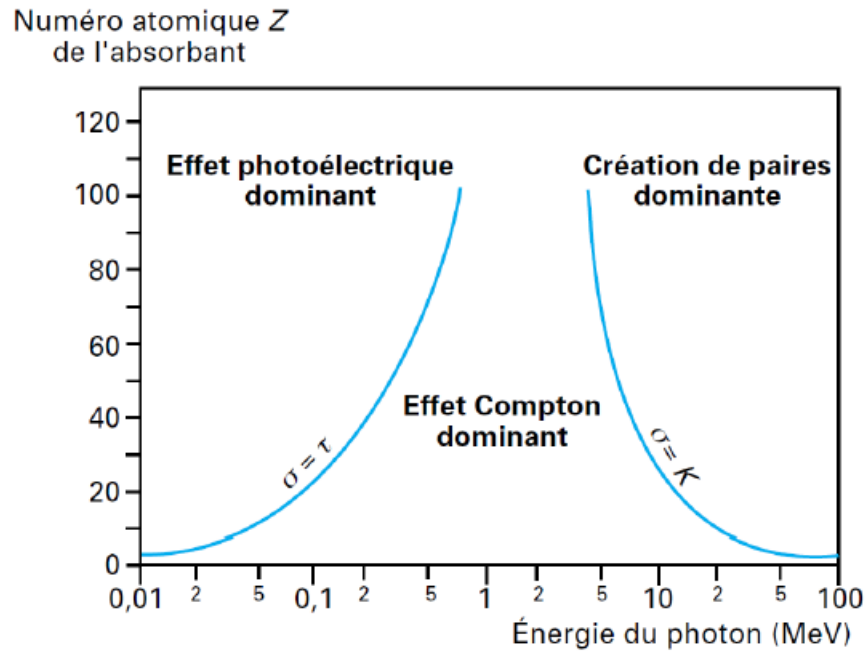


FIG. 1.6: L'interaction photon-matière en fonction d'énergie du photon et du Z .

1.6.1 La diffusion Rayleigh

Lorsque le photon d'énergie $E=h\nu$ rencontre un atome dans un milieu donné, il va interagir avec lui sans aucun transfert d'énergie, mais seulement avec un changement dans la direction du photon incident avec un angle θ , comme illustré dans la figure ci-dessous.

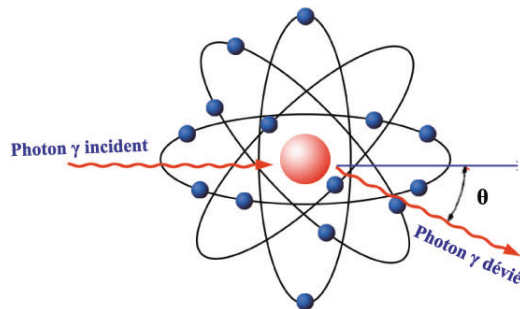


FIG. 1.7: La diffusion Rayleigh.

1.6.2 Effet photoélectrique

Lors de cette interaction, le photon incident est complètement absorbé en cédant toute son énergie à un électron de l'atome cible (figure 1.7 à gauche), c'est l'atome dans son ensemble qui participe à l'interaction. Un électron isolé ne peut pas interagir de cette façon. L'énergie du photon incident E est convertie en énergie de liaison U_i , en énergie cinétique du photoélectron E_e pour les électrons des couches internes et en énergie de recul de l'atome E_r :

$$E = U_i + E_e + E_r \quad (1.14)$$

Pour qu'il y ait ionisation, il faut que l'énergie du photon incident soit supérieure à l'énergie de liaison de l'électron U_i .

1.6.3 Effet Compton

Ce processus consiste en une diffusion élastique d'un photon incident sur un électron faiblement lié. En effet, un photon incident éjecte un électron du cortège électronique des couches externes de l'atome en lui cédant une partie de son énergie (figure 1.7 au milieu). Pour la suite de cette étude on considère que l'électron est libre. Cette approximation se justifie par le fait que l'énergie de liaison des électrons est faible devant l'énergie des photons incidents. L'étude cinématique de cette diffusion, nous donne la relation qui lie l'angle θ de diffusion de l'électron à l'énergie du photon incident E_γ et du photon Compton \acute{E}_γ :

$$\frac{\acute{E}_\gamma}{E_\gamma} = \frac{1}{1 + \alpha(1 - \cos\theta)} \quad (1.15)$$

1.6.4 La création de paires

L'effet de production de paires ou matérialisation consiste à la création d'une paire électron-positron ($\gamma \rightarrow e^+, e^-$) lorsqu'un photon γ pénètre dans le champ coulombien d'un noyau (figure 1.7 à droite). Le photon disparaît et son énergie est utilisée pour créer la paire et communiquer de l'énergie cinétique à l'électron et au positron, d'après la conservation de l'énergie :

$$E = E_- + E_+ + 2E_0 \quad (1.16)$$

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

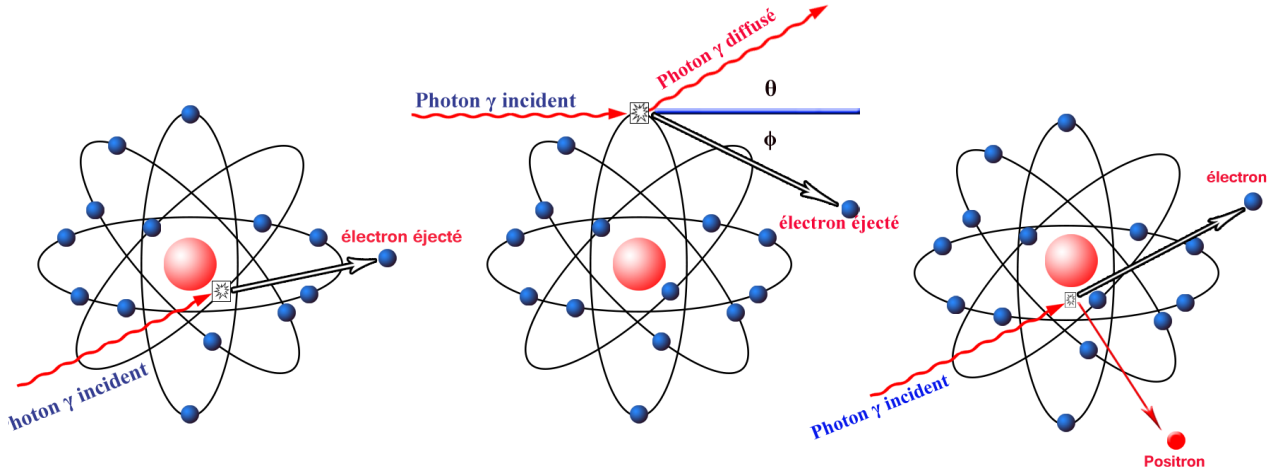


FIG. 1.8: Principales interactions des photons gamma avec la matière : à gauche effet photoélectrique ; au centre effet Compton ; à droite création de paires.

1.7 Atténuation et absorption des photons

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

$$N(x) = N_0 e^{-\mu x} \quad (1.17)$$

Avec μ coefficient d'atténuation total défini par :

$$\mu = n\sigma_{totale} \quad (1.18)$$

Où $n = N_A \rho / M$ avec N_A nombre d'Avogadro, ρ la densité du matériau considéré et M sa masse molaire. Pour des photons traversant un milieu donné, les trois effets peuvent se produire, mais avec diverses probabilités selon l'énergie des photons et la nature du milieu. Schématiquement, l'effet photoélectrique est nettement prépondérant pour des photons γ de basse énergie ($E \lesssim 100$ keV) et la création de paires est l'effet principal pour les photons de haute énergie ($E \gtrsim$ quelques MeV). L'effet Compton se produit

principalement dans le domaine d'énergie intermédiaire. Les limites entre ces domaines énergétiques dépendent des propriétés du matériau traversé (A,Z). On peut définir, pour chacune des interactions mentionnées, un coefficient d'atténuation particulier ; la somme de ces coefficients est égale au coefficient global. De même, il existe un coefficient d'absorption correspondant à l'intensité absorbée par la matière traversée et un coefficient de diffusion correspondant à l'intensité diffusée sans absorption (effet Compton). Pour des photons γ dont l'énergie est inférieure à quelques centaines de keV, les matériaux peuvent être divisés en deux familles, selon l'importance relative des réactions produites par effet Compton par rapport à l'effet photoélectrique. Dans les matériaux diffusifs, l'effet Compton l'emporte sur l'effet photoélectrique. Il s'agit d'éléments simples dont les numéros atomiques sont petits (éléments dits légers), comme l'aluminium ($Z=13$), et de matériaux composites riches en éléments légers tels le verre et les résines. Les matériaux absorbants, ceux où les réactions par effet photoélectrique dominent celles par effet Compton, sont au contraire des éléments simples à Z élevés, comme le plomb ($Z=82$) et des cristaux incorporant des éléments lourds tels l'iode ($Z=53$) ou le bismuth ($Z=83$). Les contributions respectives de l'effet photoélectrique et de l'effet Compton au coefficient massique d'atténuation sont représentées sur la figure (1.9) dans le cas du matériau à la fois peu diffusif et absorbant qu'est le germanium (Ge, $Z=32$). En raison de leur transparence, les matériaux diffusifs sont rarement choisis comme milieux détecteurs. Ils n'en jouent pas moins un rôle déterminant dans la mise en œuvre des télescopes gamma, dans la mesure où ils constituent la grande majorité de l'environnement immédiat des surfaces sensibles. Ils sont ainsi en mesure de diffuser vers les milieux détecteurs les photons ayant traversé sans interagir les couches détectrices, contribuant ainsi à accroître un bruit de fond déjà préoccupant. Que les matériaux soient diffusifs ou absorbants, on constate (Fig1.9) que l'effet Compton l'emporte largement dans la bande spectrale qui s'étend de quelques centaines de keV à quelques MeV. Comme dans le cas de l'absorption photoélectrique, un photon est également émis par recombinaison de l'atome. Mais, dans la mesure où la diffusion Compton intervient sans distinction sur toutes les couches de l'atome, ce photon est généralement de basse énergie et a donc moins de chance de s'échapper du milieu détecteur.

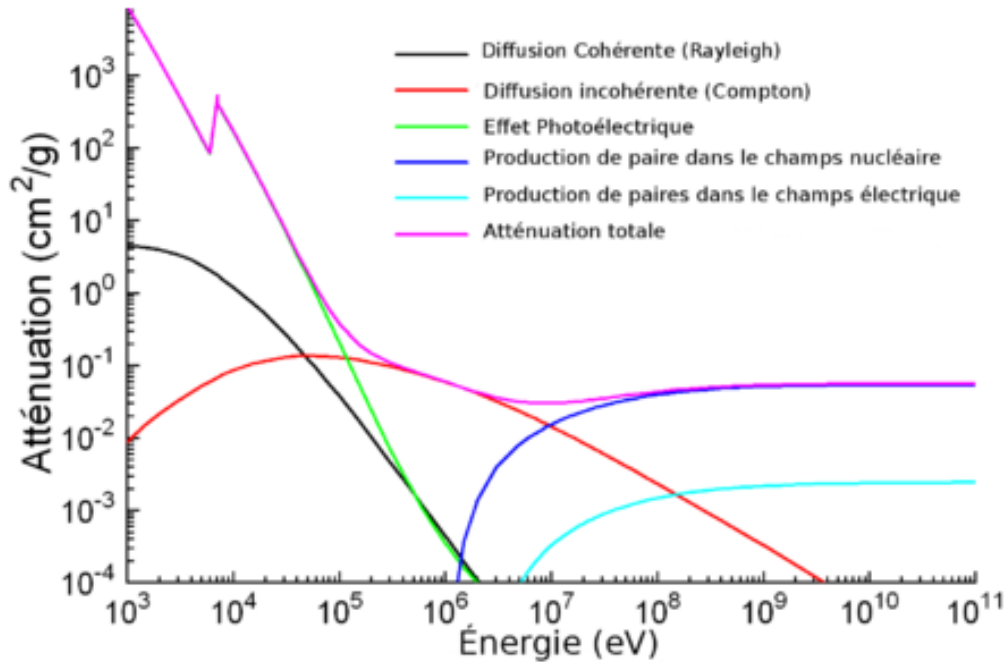


FIG. 1.9: Coefficient d'atténuation linéaire des photons avec le germanium.

1.8 Détection des photons gamma

La détection des particules subatomiques est basée plutôt sur leurs interactions avec la matière, où en général une partie de l'énergie d'une particule déposée signalant sa présence. Les moyens de détection de ces particules sont les détecteurs qui ont vraiment joué un rôle déterminant dans le développement de la physique nucléaires et de la physique des particules. Le principe de détection des rayonnements directement et indirectement ionisants est de mesurer la perte d'énergie dans une interaction entre la particule et le milieu de détection.

Suivant les effets produits par les rayonnements gamma qui viennent d'être décrits, on peut citer trois types de détecteur : Chambres à ionisation, scintillateurs, détecteurs à semi-conducteurs. Les détecteurs électroniques de type semi-conducteur occupent une place importante en métrologie des rayonnements : ils exploitent la création de paires électron-trou lors de l'interaction des photons avec la matière [21].

1.9 Types de détecteurs gamma

On s'intéresse dans notre cas à la caractérisation de l'activité et de l'énergie d'échantillons émettant des rayonnements γ . On utilise des spectromètres γ qui ont pour but de convertir le rayonnement à étudier en un signal électrique tout en conservant les propriétés énergétique et quantitative du rayonnement incident.

1.9.1 Détecteurs à scintillation

Un détecteur à scintillation, également appelé compteur à scintillation ou plus souvent scintillateur, est un instrument composé d'un matériau qui émet de la lumière à la suite d'un dépôt d'énergie par interaction d'un rayonnement. Il existe deux grandes familles de scintillateurs : des scintillateurs organiques (à base de composés benzéniques : anthracène, naphthalène, stilbène, terphényle, etc.) que l'on retrouve sous forme de plastiques ou en solution liquide et des scintillateurs inorganiques qui sont utilisés en monocristaux ou en poudre (principalement des halogénures alcalins). Les scintillateurs sont utilisés en général de deux manières :

- sous la forme d'un écran fluorescent, permettant la visualisation à l'œil nu ; cet écran est maintenant souvent couplé à une caméra numérique (type CCD) qui permet une acquisition informatique ;
- sous la forme d'un détecteur à scintillation : la lumière (photons) émise par le matériau scintillant est convertie en électrons (photocathode) qui sont ensuite amplifiés par un photomultiplicateur (PM). On estime ainsi le flux de photons dans le scintillateur. Une relation simple existant entre la quantité de lumière produite et l'énergie déposée étant à l'origine du phénomène de scintillation permet en outre de déterminer l'énergie du rayonnement détecté (technique de spectroscopie ou spectrométrie).

1.9.2 Détecteurs à gaz

Ce type de détecteur de particules utilise un milieu gazeux (H_2 , CH_4 , $Ar-CH_4$, 3H) pour la détection de rayonnement par ionisations. En instrumentation nucléaire, les détecteurs à gaz sont utilisés selon leur régime dépendant de la haute tension : soit en compteurs proportionnels, soit en chambre d'ionisation soit en compteur Geiger.

1.9.3 Détecteurs à semi-conducteurs

Dans les années 50, on a observé la détection de particules au moyen d'une jonction dans un cristal de germanium. Dès lors, de nombreux laboratoires ont consacré leurs recherches au développement de détecteurs semi-conducteurs. Ceux-ci sont environ mille fois plus denses que les détecteurs à gaz. Ils ont d'excellentes capacités pour la détection des particules de haute énergie. S'il faut 20 eV au minimum d'énergie déposée pour créer un photon dans un scintillateur et environ 30 eV dans un gaz pour créer une paire électron-ion, environ 3 eV sont suffisants pour créer une paire électron-trou dans un semi-conducteur. Les semi-conducteurs sont donc des détecteurs sensibles pour la spectrométrie. Ainsi, si avec un scintillateur en NaI(Tl) on obtient une résolution de 6% à 660 keV, la résolution avec du germanium (refroidi) atteint le keV, soit moins de 0,2%. Cette différence est due à l'erreur statistique relativement plus faible sur le plus grand nombre d'ionisations produites. Il existe plus d'une vingtaine de semi-conducteurs susceptibles d'être utilisés pour la détection des particules ionisantes. Les plus couramment utilisés sont le silicium(Si), le germanium (Ge), la famille du tellure de cadmium (CdTe et $Cd_xZn_{1-x}T$ alias CZT) et l'arsénure de gallium (GaAs). On trouve aussi quelques détecteurs à base d'iodure de mercure (HgI_2). Les potentialités de ces matériaux pour la détection des photons γ dépendent des paramètres suivants (Tableau 1.4) : le numéro atomique, l'énergie d'activation intrinsèque (la largeur de la bande interdite, ou gap), l'énergie de création de paires électron-trou, la mobilité et le temps de vie des porteurs, la résistivité. Ces paramètres vont influencer sur les propriétés du substrat : la résistivité(R), l'efficacité et le temps de collecte, et enfin l'efficacité de détection [22].

Afin de mettre en évidence les effets qui influent sur la résistivité, nous allons aborder

Semi-conducteur	Z	ρ (g.cm ⁻³)	Gap (eV)	E_{paire} (MeV)	μ_{e^-}	μ_{t^+}	R à 25 °C
Ge	32	5.33	0.67	2.96	3900	1900	50
Si	14	2.33	1.12	3.62	1400	480	106
CdTe	48/52	6.2	1.44	4.43	1100	100	109
CdZnTe	48/30/52	6	1.5	5	1350	120	1011
HgI ₂	80/53	6.4	2.13	4.2	100	4	1013
GaAs	31/33	5.32	1.43	4.2	8000	400	107

TAB. 1.4: Les caractéristiques des principaux semi-conducteurs.

rapidement la physique des semi-conducteurs. Dans la structure cristalline d'un semi-

conducteur, les niveaux d'énergie se composent d'une succession de bandes d'énergie interdites et de bandes d'énergies permises totalement peuplées à l'exception de la dernière, la bande de conduction, dont le remplissage partiel varie en fonction de la nature du semi-conducteur et de la température. La bande de valence (l'avant dernière bande permise) et la bande de conduction sont séparées par une bande interdite dont la hauteur correspond au gap. Au zéro absolue (0 K), la bande de valence est entièrement peuplée, le semi-conducteur est isolant. Lorsque la température croît, les électrons sont excités par agitation thermique et peuvent ainsi acquérir une énergie suffisante pour sauter la bande interdite. Ils passent alors de la bande de valence à la bande de conduction, il y a génération d'électrons libres et de trous libres qui sont les porteurs de charge responsables de la conduction. La probabilité par unité de temps $p(T)$ de la génération d'une paire électron-trou dépend de l'agitation thermique, donc de la température T . Elle est donnée par :

$$p(T) \propto T^{3/2} \exp\left(-\frac{E_{gap}}{2kT}\right) \quad (1.19)$$

avec E le gap de la bande interdite et k la constante de Boltzmann. Un matériau de faible gap, comme le germanium, a une faible résistivité à température ambiante. Les fluctuations du courant d'obscurité sont alors trop importantes pour qu'il soit utilisé comme détecteur sans être refroidi.

Le modèle des bandes décrit précédemment correspond au cas idéal d'un matériau intrinsèque et pur. Théoriquement on peut décrire les propriétés d'un tel matériau, mais en pratique, elles dépendent fortement des défauts présents dans le matériau. Ces défauts de structure ou d'impuretés, engendrent la création d'états d'énergie discrets localisés dans la bande interdite. Ces niveaux forment des pièges qui agissent sur le processus de transport des charges. Ces défauts peuvent être introduits volontairement dans le cas d'un dopage [23].

Si on introduit des niveaux accepteurs proches de la bande de valence (semi-conducteur dopé P) à l'aide d'atomes trivalents en position interstitielle dans le réseau, les porteurs majoritaires sont alors les trous. On peut aussi introduire des niveaux donneurs près de la bande de conduction à l'aide d'atomes pentavalents (semi-conducteur dopé N) : les porteurs majoritaires sont alors les électrons. Un dopage revient en fait à créer un semi-conducteur avec un gap réduit. Le dopage permet de créer des structures à jonction couramment utilisées pour les détecteurs de rayonnements. Ces structures P-N polarisées en inverse présentent une haute résistivité apparente, supérieure à celle du matériau de base. D'autres structures permettent d'obtenir des effets similaires :

détecteur semi-conducteur à barrière de surface, à jonction diffusée. La résistivité d'un semi-conducteur va donc être liée à son gap, à la structure employée et à la température. Une forte résistivité est recherchée pour les détecteurs de rayonnements afin de minimiser le bruit lié aux fluctuations du courant d'obscurité.

Le CdTe, le GaAs, le Si et le HgI₂ ont un gap suffisant pour être utilisés à température ambiante. Le Si, de plus faible, gap est généralement utilisé dans une structure à jonction (P N, P I N, ...). Pour les particules chargées, α , p, deutons et ion-lourds, on utilise des détecteurs au silicium, de volume assez faible, ne dépassant pas 5 cm³ (quelques mm d'épaisseur suffisant pour arrêter des particules de plusieurs dizaines de MeV). On peut également les utiliser pour les rayons X dans le domaine de 1 à 50 keV ou les rayonnements γ de basse énergie jusqu'à 100keV. Nous avons vu avant que la section efficace de l'effet photoélectrique dépendait de Z^2 , alors la détection des rayonnements γ s'effectuera avec une meilleure efficacité si l'on utilise l'homologue supérieur du Si qui est le Germanium ($Z=32$, au lieu de $Z=14$ pour Si).

Ces détecteurs sont très efficaces pour la détection des rayonnements électromagnétiques

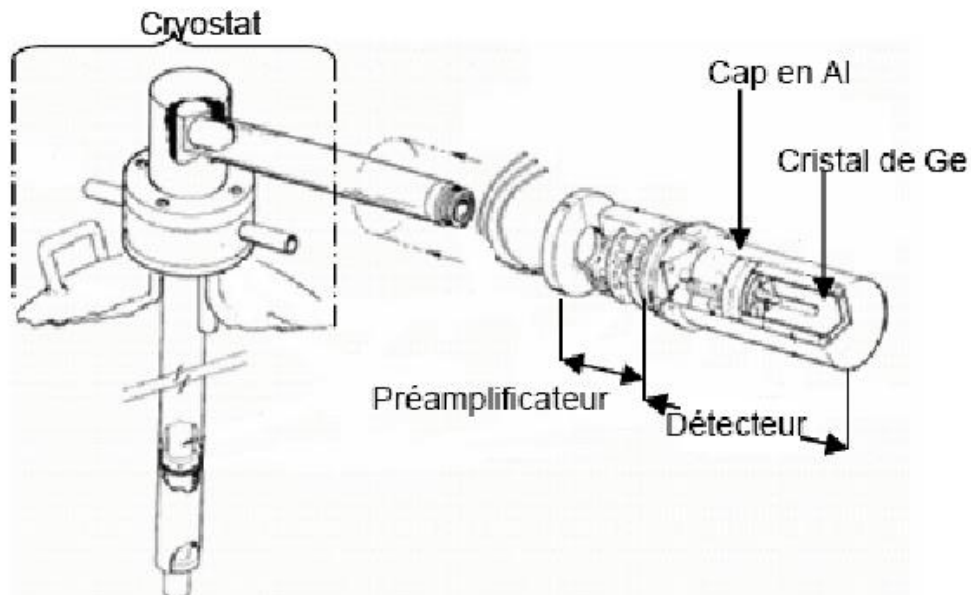


FIG. 1.10: Schéma d'un détecteur Ge(Hp) de rayonnement γ .

de faible énergie, ils sont maintenus dans une enceinte sous vide de 10^{-3} Pa et refroidis à la température de l'azote liquide (77 K) pour diminuer le bruit thermique (passage des électrons à travers le gap). Leur volume peut aller jusqu'à 1000 cm³, la haute tension de polarisation de ces détecteurs étant comprise entre 1500 à 4000 V.

1.9.3.1 Propriétés des semi-conducteurs

Les électrons dans un matériau (isolant, semi-conducteur, métal) peuvent se situer sur deux bandes d'énergie (niveaux d'énergie) :

- la bande de valence : à l'intérieur de laquelle il y a les électrons responsables des liaisons covalentes, qui ne sont pas responsables de la conduction (dans l'isolant tous les électrons se situent dans la bande de valence) ;
- la bande de conduction ; où se trouvent les électrons périphériques libres de se déplacer permettant ainsi la conduction. Entre ces deux bandes, il y a un gap (barrière) énergétique appelé bande interdite de valeur E_g , ou il ne peut y avoir d'électrons.

Dans les semi-conducteurs, E_g est suffisamment faible pour qu'un électron de la bande de valence puisse passer dans la bande de conduction via un apport énergétique et ainsi permettre l'établissement d'un courant électrique, c'est pour cela que l'on utilise des semi-conducteurs : le rayonnement gamma, issu de l'élément radioactif que l'on veut étudier, va interagir avec le semi-conducteur en lui cédant l'énergie nécessaire pour qu'il migre vers la bande de conduction [24].

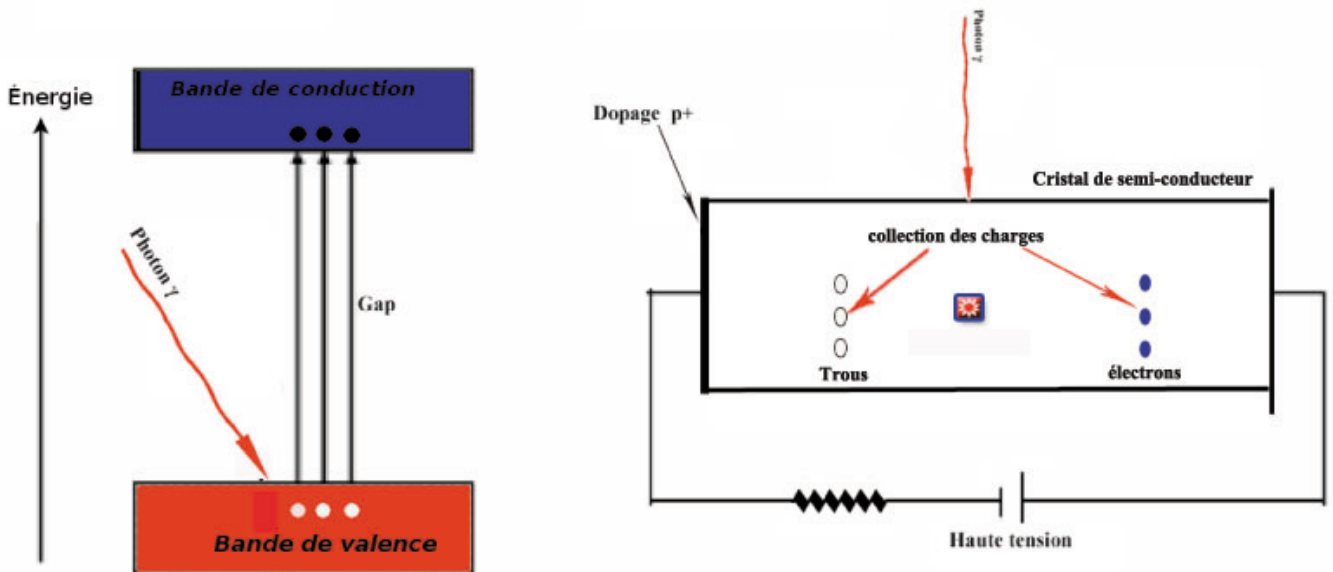


FIG. 1.11: Principe du semi-conducteur : structure des bandes et fonctionnement.

1.9.3.2 Les détecteurs germanium

Le Ge est un élément chimique tétravalent (quatre électrons périphérique, groupe IV) de structure cristalline type diamant. Il existe sous forme de cinq isotopes stables ou de très longues durées de vie : ^{74}Ge (35.94 %), ^{72}Ge (27.66 %), ^{70}Ge (21.23 %), ^{73}Ge (7.73 %) et ^{76}Ge (7.44 %).

Il possède une très grande résistivité : $53 \Omega \cdot \text{cm}$ à 25°C contrairement au Cu avec $1.7 \times 10^{-6} \Omega \cdot \text{cm}$.

Il existe deux types de détecteurs germanium : les détecteurs compensés au lithium et les détecteurs au germanium ultra pur. Les détecteurs germanium compensés au lithium sont fabriqués de la même façon que les détecteurs silicium compensés au lithium. Ce type de 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 [25].

1.9.3.3 Les différentes configurations géométriques (GeHP)

Les cristaux GeHP en spectrométrie γ existent sous forme de trois types qui sont : planaire, coaxiaux et puits (fig 1.13). Chacun de ces détecteurs est adapté à un type d'échantillon ou de radionucléide donnée.

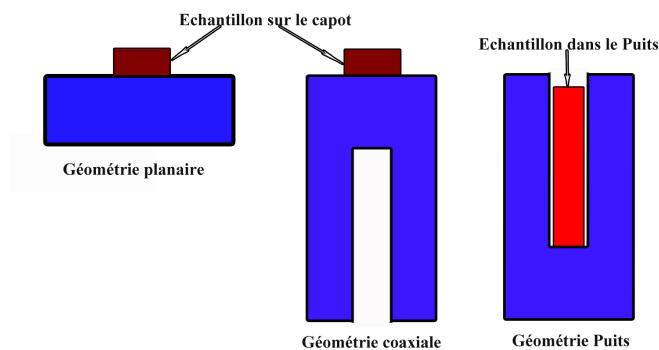


FIG. 1.12: Les différentes configurations géométriques des détecteurs germanium.

1.9.3.3.1 Détecteur planaire

La géométrie planaire permet d'avoir une réponse du détecteur à basse énergie (de 1 keV à 1 MeV) avec une efficacité d'environ 30% : ces détecteurs sont adaptés pour des échantillons minces et cette configuration permet d'avoir la meilleure résolution. L'épaisseur du volume actif peut aller jusqu'à 1 ou 2 cm et des fois plus, ce qui donne un volume de 10 à 30 cm³, ce qui est relativement faible.

1.9.3.3.2 Détecteur coaxial

La géométrie coaxiale permet de contourner ce problème : le volume actif peut atteindre 750 cm³. Par contre, la réponse en énergie se trouve décalée vers les hautes énergies : de 10 keV à 10 MeV, avec une efficacité de l'ordre de 15%. De plus, la résolution est moins bonne qu'avec la géométrie planaire.

1.9.3.3.3 Détecteur puits

Avec la géométrie puits, 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 grandement l'angle solide de détection.

La résolution avec la géométrie puits à basse énergie est moins bonne qu'avec une géométrie coaxiale, mais à haute énergie elle est la meilleure [26, 27].

Le tableau suivant regroupe les différentes résolutions en énergie pour les trois configurations possibles d'un détecteur germanium données à 122 keV (¹⁵²Eu) et à 1332 keV (⁶⁰Co) :

Énergie (keV)	Géométrie		
	Planaire	Coaxiale	puits
122	0.65	0.80	1.20
1332	2.00	3.40	2.00

TAB. 1.5: La résolution (en keV) d'un détecteur germanium pour les trois configurations.

La figure ci-dessous montre les différentes configurations des détecteurs semi-conducteurs avec leurs domaines d'énergie :

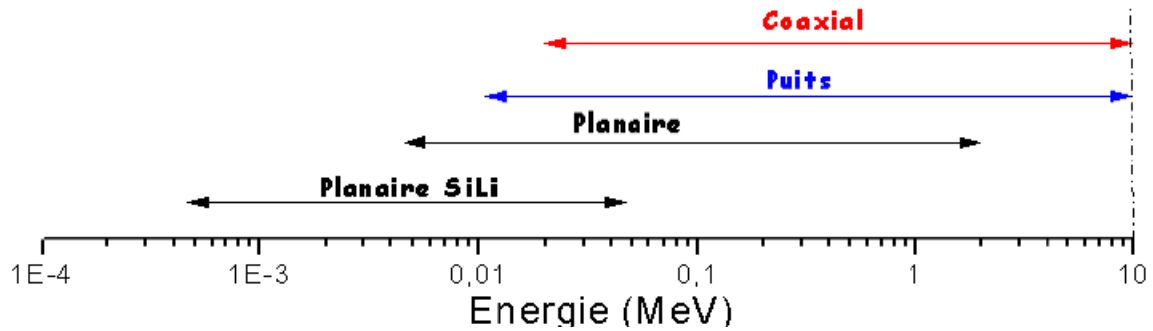


FIG. 1.13: Les différentes configurations géométriques des détecteurs germanium.

1.9.3.4 Avantages et inconvénients des détecteurs GeHP

On peut résumer les inconvénients et les avantages des détecteurs GeHP dans le tableau ci-dessous :

Avantages	Inconvénients
1) Pouvoir de résolution en énergie d'une qualité exceptionnelle (très faible). 2) Bon rapport signal/bruit. 3) La linéarité de la réponse en fonction de l'énergie est très bonne. 4) Le temps de montée de l'impulsion est très court. 5) Le fonctionnement est d'une grande simplicité. 6) La masse volumique relativement élevée assure des (dE/dx) importants.	1) Maintenance à basse température à l'aide d'azote liquide. 2) Usage limité aux laboratoires ou dans les bâtiments convenablement équipés ou proches d'une alimentation régulière et faible en neige carbonique.

TAB. 1.6: Avantages et inconvénients d'un détecteur HPGe [28].

Chapitre 2

La spectrométrie γ & simulation Monte-Carlo

Sommaire

2.1	La spectrométrie gamma	29
2.1.1	Le principe de la spectrométrie gamma.	29
2.1.2	Les caractéristiques principales des spectromètres	30
2.2	Chaîne de mesure et ses différentes composantes	31
2.2.1	Le détecteur	32
2.2.2	Electronique associée	32
2.3	L'analyse des échantillons par spectrométrie γ	34
2.3.1	Etalonnage en énergie	35
2.3.2	Etalonnage en efficacité	35
2.3.3	Résolution en énergie	37
2.4	Spectrométrie gamma à bas bruit de fond	38
2.4.1	La limite de détection LD	38
2.4.2	Le seuil de décision SD	39
2.4.3	L'origine du bruit de fond	39
2.4.4	Les principes de réduction du bruit de fond	40
2.4.5	Les types d'incertitude en spectrométrie γ	42
2.5	La simulation Monte-Carlo	43
2.6	Le fonctionnement de la méthode Monte-Carlo	44
2.6.1	Principe de la méthode Monte-Carlo	44
2.6.2	Méthodes de simulation adaptée au type de particules	45

2.6.3	Estimation des incertitudes	46
2.6.4	Fiabilité de la simulation	47
2.6.5	Efficacité de la simulation Monte-Carlo	48
2.6.6	Réduction de la variance	48
2.7	Le code MCNP	49
2.7.1	Architecture du code MCNP	49

2.1 La spectrométrie gamma

La spectrométrie gamma est une technique non destructive de mesure nucléaire utilisée pour identifier et quantifier des éléments radioactifs par la mesure de l'énergie et du nombre des photons gamma émis par la source.

2.1.1 Le principe de la spectrométrie gamma.

Cette technique consiste à détecter les photons gamma émis en convertissant l'énergie qu'ils déposent dans le matériau adapté en un signal électrique. Le traitement de ces signaux permet d'obtenir un histogramme ou spectre. A partir du spectre, il est alors possible d'identifier les différents radioéléments (analyse qualitative) et de déterminer leurs concentrations (analyse quantitative) dans l'échantillon étudié.

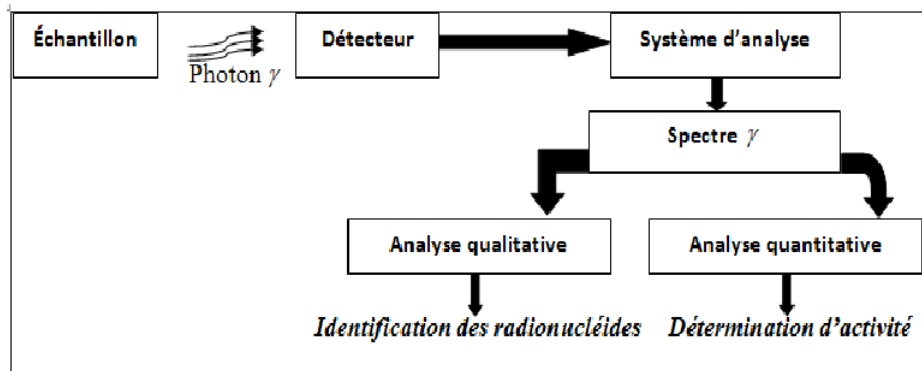


FIG. 2.1: Principe de base de spectrométrie gamma.

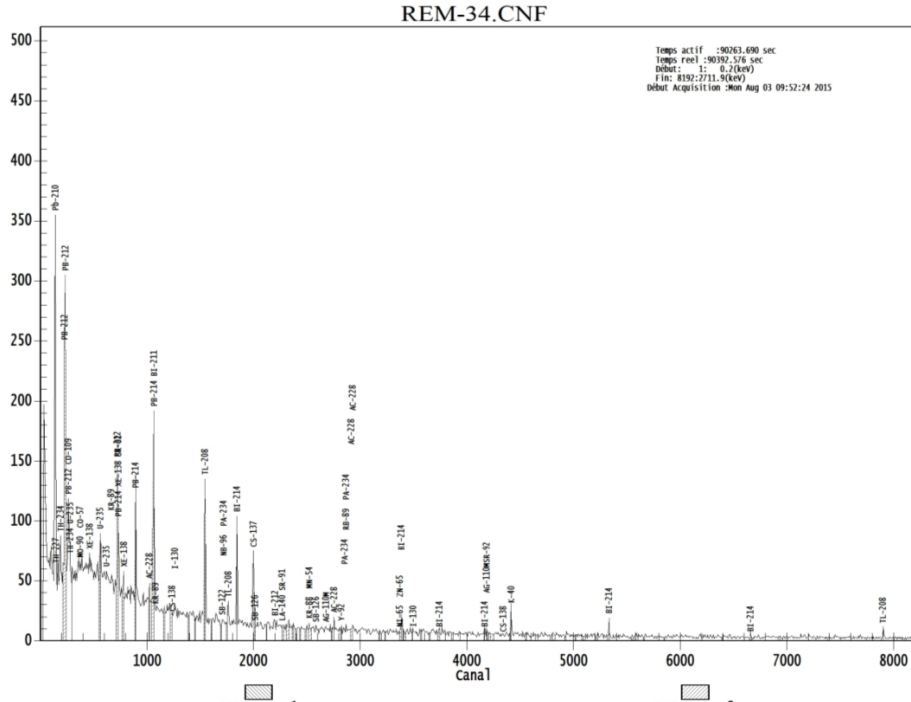


FIG. 2.2: Spectre de radioactivité naturelle obtenu après plusieurs jours de comptage.

2.1.2 Les caractéristiques principales des spectromètres

2.1.2.1 L'efficacité relative

Elle dépend de nombreux facteurs comme le type et l'énergie du rayonnement incident, la géométrie du cristal (volume), la densité et le numéro atomique du matériau utilisé et les éventuelles zones mortes dues aux propriétés de transport des porteurs et au mécanisme d'induction de signal. Les cristaux de détection étant principalement de formes cylindriques, l'efficacité de détection varie en fonction de l'angle d'incidence des photons avec l'axe de révolution du cylindre.

2.1.2.2 La résolution en énergie

La résolution en énergie est un terme utilisé notamment dans le domaine de la spectrométrie. Il s'agit de la précision avec laquelle est mesurée l'énergie d'une raie dans le spectre. Les raies se matérialisent sous forme de pics dans l'histogramme du spectre. La résolution obtenue à une énergie donnée représente la largeur du pic à mi-hauteur centré sur cette énergie.

Dans les semi-conducteurs, une paire d'électron-trou est créée par quelques eV, ceci est environ 10 fois moins que l'ionisation d'un gaz, et 100 fois moins qu'avec l'excitation

dans un scintillateur. Cela se traduit par une meilleure résolution en énergie, puisque la statistique sur le nombre de charges élémentaires créées est plus favorable.

2.1.2.3 La linéarité de conversion énergétique

Elle correspond au passage entre l'énergie déposée par le rayonnement et l'énergie à laquelle celui-ci est enregistré. L'énergie enregistrée doit être proportionnelle à l'énergie déposée. La linéarité des détecteurs à semi-conducteur est bonne, dans la mesure où le seuil de perte d'énergie est très faible.

2.1.2.4 Le bruit intrinsèque

Il correspond aux événements enregistrés en l'absence de rayonnement. Pour les spectromètres à semi-conducteurs, il correspond au courant de fuite. Celui-ci existe faiblement (\sim nA) et il n'est pas gênant en lui-même, mais ses fluctuations le sont. Celles-ci sont causées par la nature discrète des phénomènes élémentaires aléatoires (agitation thermique). C'est pour ça que les semi-conducteurs sont refroidis [30].

2.2 Chaîne de mesure et ses différentes composantes

En spectrométrie γ , une chaîne de mesure est constituée d'un détecteur, d'un préamplificateur, d'un amplificateur, d'un convertisseur analogique/numérique, d'une électronique d'acquisition et d'un logiciel d'analyse.

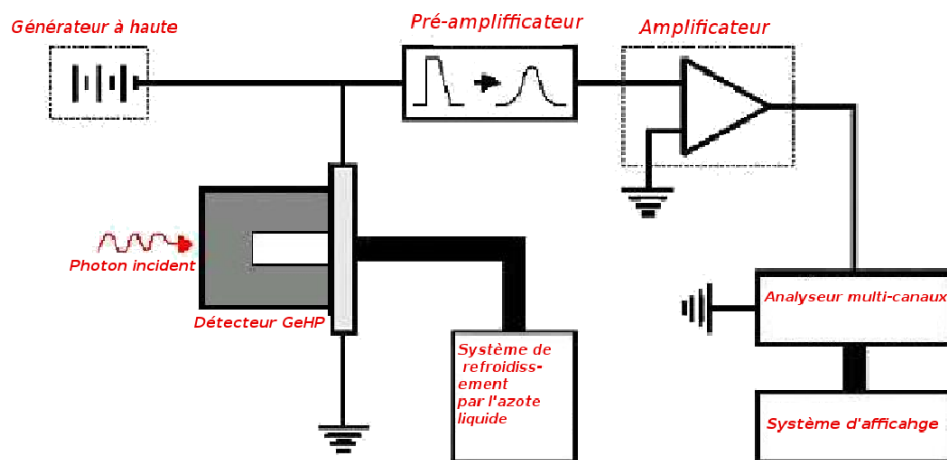


FIG. 2.3: Chaîne de mesure associée aux détecteurs Ge.

2.2.1 Le détecteur

Les détecteurs semi-conducteurs utilisés dans la spectroscopie nucléaire travaillent dans la gamme d'énergie entre 1 keV et 10 MeV. Une fraction des rayonnements γ émis par l'échantillon placé devant le détecteur frappent celui-ci et transmettent leur énergie à un ou plusieurs électrons dans le cristal de germanium, qui excite à son tour d'autres électrons, en provoquant une avalanche des électrons secondaires. L'énergie des électrons primaires est utilisée pour la production d'une paire électron-trous qui sera par la suite collectée. Cette énergie est convertie en courant électrique dont l'amplitude est proportionnelle à l'énergie du rayonnement incident [31].

2.2.2 Electronique associée

Le rôle essentiel de l'électronique est d'assurer l'amplification, la mise en forme et l'acquisition du signal délivré par le spectromètre gamma.

2.2.2.1 Alimentation à haute tension

Tous les détecteurs de rayonnement gamma exigent une alimentation à haute tension pour fournir le champ électrique qui collecte la charge produite par l'interaction de rayons gamma dans le détecteur. Les alimentations électroniques utilisées doivent remplir les conditions suivantes :

- être réglables pour les tensions imposées par les détecteurs (jusqu'à 5000 volts pour certaines jonctions) ;
- pouvoir supporter sans chute de tension le courant débité par le détecteur (1 à 15 mA selon le détecteur) ;
- être stabilisées à hauteur de l'exigence des détecteurs ;
- ne pas présenter de dérives au cours du temps ;
- avoir un bruit très faible.

2.2.2.2 Le préamplificateur

Il est en général placé à proximité du cristal de germanium sous le même capot, de cette manière les composants sensibles à la température sont refroidis et le bruit thermique généré par ces composants est minimisé. Dans le cas de l'utilisation d'un détecteur bas-bruit, le préamplificateur est déporté à l'extérieur du blindage pour diminuer le bruit

de fond que peuvent apporter ses éléments constitutifs. Le rôle du préamplificateur est de mettre en forme une impulsion de tension qui peut être traitée par l'amplificateur, à partir des charges collectées sur les électrodes du détecteur.

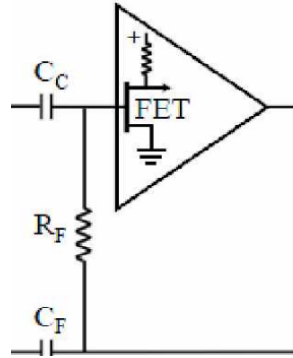


FIG. 2.4: Circuit équivalent d'un préamplificateur.

2.2.2.3 Amplificateur

L'amplificateur porte l'impulsion fournie par le préamplificateur à plusieurs volts sous une forme quasi gaussienne qui permettra au codeur de quantifier très précisément sa hauteur. De plus, il permet de filtrer bon nombre de parasites de fréquences élevées. Les caractéristiques essentielles d'un amplificateur sont :

- la valeur du gain maximal en tension ;
- la plage de réglage des filtres (constantes de temps) ;
- la dynamique du signal de sortie (amplitude maximale) ;
- le temps de restitution de la valeur de gain en cas de surcharge du signal d'entrée.

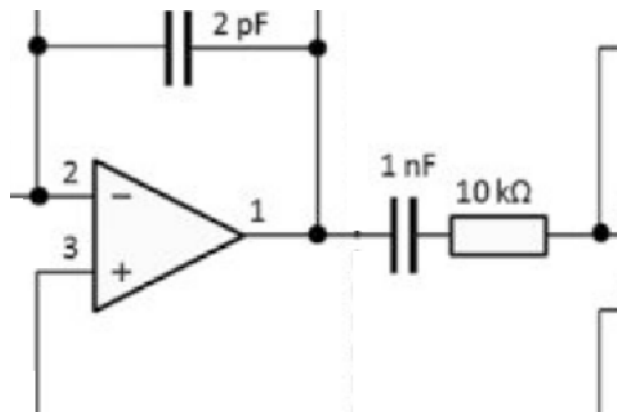


FIG. 2.5: Circuit équivalent d'un amplificateur.

2.2.2.4 Codeur ou convertisseur analogique-numérique

Le monde physique est par nature analogique (dans la quasi-totalité des cas). Il est perçu via des signaux analogiques (son, ondes visuelles, etc.) qui peuvent être traités par des systèmes analogiques. Depuis une vingtaine d'années, le traitement numérique des données prend le pas sur les approches purement analogiques. Le recours au numérique permet en effet un stockage aisé de l'information, une excellente reproductibilité des traitements, la possibilité de développer relativement aisément des fonctionnalités complexes, une réduction des coûts de production, etc. Un convertisseur analogique-numérique (CAN) est un dispositif électronique permettant la conversion d'un signal analogique en un signal numérique. La conversion de la valeur d'un pic dans un spectre en une valeur numérique se fait à l'aide de ce dispositif. Cette valeur est l'adresse à laquelle l'électronique d'acquisition incrémentera le contenu d'un canal de l'analyseur. Les principales caractéristiques d'un CAN sont :

- le domaine de mesure (0-5 V ou 0-10 V) ;
- le nombre de pas de conversion (1024, 2048, 4096, 8192 ou 16384) ;
- la linéarité intégrale et différentielle ;
- le temps de conversion (temps mort).

2.2.2.5 Analyseur multicanaux

Un analyseur multi-canaux comprend un codeur analogique numérique, une mémoire divisée en segments, aussi appelée canal et un écran de visualisation : ces éléments permettent respectivement de convertir les tensions électriques en nombre, de classer ces nombres dans les canaux de mémoire et de visualiser le contenu de l'ensemble des canaux. Cette visualisation finale s'effectue grâce à un système incorporé ou bien en liaison avec un micro-ordinateur.

2.3 L'analyse des échantillons par spectrométrie γ

L'analyse d'un échantillon par spectrométrie gamma passe par trois étapes principales : la préparation des échantillons, l'étalonnage de la chaîne de mesure et le traitement des données en fin d'acquisition. Pour l'étalonnage d'un détecteur en spectrométrie γ , on peut distinguer deux parties : étalonnage en énergie et en efficacité.

2.3.1 Etalonnage en énergie

Chaque canal du spectre correspond à une énergie. Il s'agit ensuite de trouver cette corrélation. L'étalonnage en énergie consiste donc à établir une relation polynômiale entre le numéro du canal et l'énergie correspondante. Pour ce faire, on utilise une source de référence émettant des énergies gamma bien connues. Pour chaque pic du spectre des sources de référence, on relève le numéro de canal C d'accumulation maximum de coups du pic et on lui associe l'énergie E correspondante. Etant donné que le reste de la chaîne est linéaire, l'approximation est donnée par :

$$E = a.C + b \quad (2.1)$$

- E : l'énergie en keV.
- C : le numéro de canal d'accumulation maximum de coups.
- a : le coefficient directeur de la courbe ou gain en keV/canal.
- b : l'énergie du premier canal.

Cette relation conduit à une droite comme le montre la figure (2.4) :

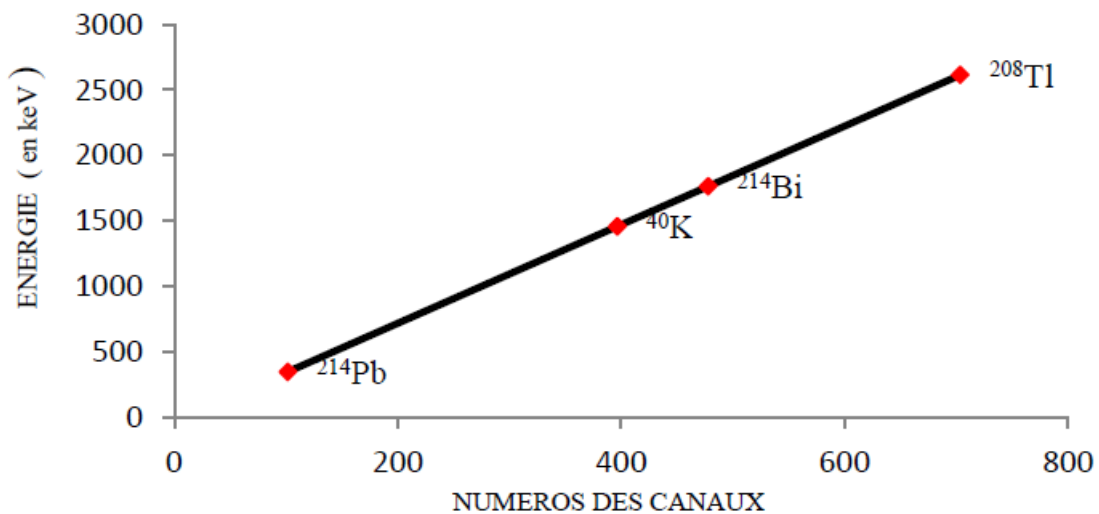


FIG. 2.6: Exemple d'une courbe d'étalonnage en énergie.

2.3.2 Etalonnage en efficacité

L'étalonnage en efficacité peut se faire par de nombreuses sources « étalons » adaptées à la géométrie de mesure de l'échantillon. Il comporte trois étapes :

- Analyse des spectres des sources étalons, dont les pics correspondent à des radionucléides d’activités connues et la détermination de la surface nette de chaque pic aussi que l’activité de chaque radionucléide.
- Calcul de l’efficacité de détection comme étant le rapport du nombre de photons gamma détectés par le nombre de photons gamma émis par l’échantillon durant le temps de mesure.
- Traçage de la courbe représentative de l’efficacité en fonction de l’énergie.

L’efficacité est déterminée à partir de la relation suivante :

$$\varepsilon(E) = \frac{S}{I(\%).A(Bq).t_{acq}} \quad (2.2)$$

- S : surface nette du pic d’énergie donnée (nombre d’impulsion).
- A : activité du radionucléide à la date de mesure (en Bq).
- I : Probabilité d’émission gamma de la raie d’énergie donnée
- t_{acq} : Temps de mesure (en seconde).

L’efficacité de détection est déterminante dans l’analyse quantitative d’un échantillon.

On distingue deux types d’efficacité : absolue ou intrinsèque.

L’efficacité absolue (ε_{abs} dépend de la géométrie et de la probabilité d’interaction du photon dans le détecteur, elle est calculée avec l’équation [32] :

$$\varepsilon_{abs} = \frac{\text{nombre d'événements enregistrés}}{\text{nombre de particules émises par la source}} \quad (2.3)$$

L’efficacité intrinsèque dépend des propriétés du détecteur et elle peut être calculée par la relation suivante :

$$\varepsilon_{int} = \frac{\text{nombre d'événements enregistrés}}{\text{nombre de particules interagissant dans le détecteur}} \quad (2.4)$$

L’efficacité absolue est reliée à l’efficacité intrinsèque par la relation suivante :

$$\varepsilon_{abs} = \frac{\Omega}{4\pi} \varepsilon_{int} \quad (2.5)$$

Où Ω est l’angle solide défini comme étant la surface du détecteur vue par la source définie comme ponctuelle, elle est donnée par l’équation suivante :

$$\Omega = 2\pi \left(1 - \frac{d}{\sqrt{d^2 + a^2}}\right) \quad (2.6)$$

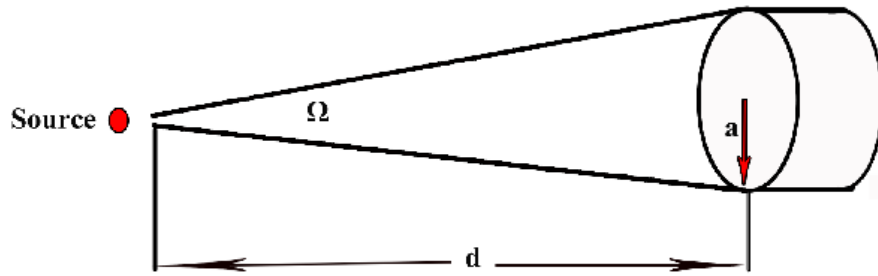


FIG. 2.7: La notion élémentaire d'angle solide

2.3.3 Résolution en énergie

La résolution en énergie mesure la capacité d'un détecteur à séparer les raies dans le spectre, qui est reflétée par la largeur à mi-hauteur des pics FWHM (full width at half maximum), fixée par :

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

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 $\sigma(E)$ de la distribution [24] :

$$\delta E = \sqrt{8 \ln 2} \sigma_E = 2,35 \sigma_E \quad (2.7)$$

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 :

$$R(E) = \frac{\delta E}{E} \quad (2.8)$$

Tout comme l'efficacité, la résolution δE 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 de l'électronique, la dispersion dans la collection des charges (semi-conducteurs) ou des photons (scintillateur), etc. Afin de caractériser la forme du pic, il est également d'usage de spécifier la pleine largeur au dixième de la hauteur du pic, notée FWTM (full width at tenth

maximum). Dans le cas d'un pic gaussien, la résolution FWTH est reliée à l'écart-type $\sigma(E)$ et à la résolution FWHM selon :

$$FWHM = \sqrt{8 \ln 10} \sigma(E) = 1.823 \delta E \quad (2.9)$$

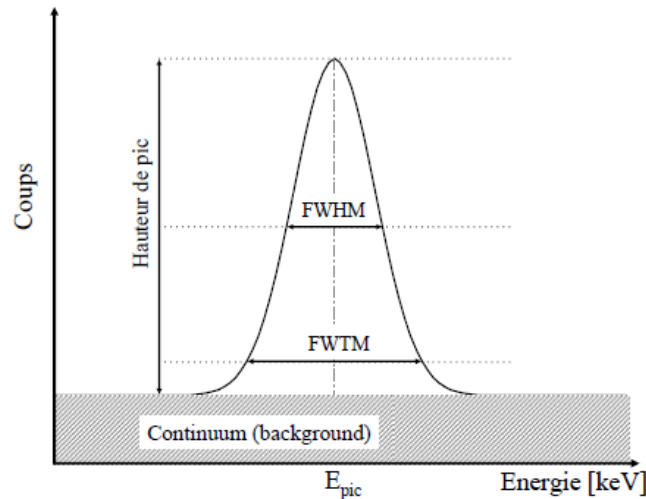


FIG. 2.8: Distribution gaussienne du pic.

2.4 Spectrométrie gamma à bas bruit de fond

Le problème commun à toutes les expériences de la radioactivité est d'éviter, ou tout au moins de minimiser les événements de bruit de fond dus aux impuretés radioactives en provenance du détecteur lui-même, de son blindage et de l'environnement. Les mesures environnementales sont des mesures de faible niveau de la radioactivité, ce qui nous conduit à parler de mesures à bas bruit de fond, dont nous allons introduire des notions tels que la limite de détection et le seuil de décision.

2.4.1 La limite de détection LD

La limite de détection (LD) selon la norme NF T90-210-2012 \ll est la plus petite valeur vraie du mesurande qui garantit une probabilité spécifiée qu'il soit détectable par la méthode de mesure \gg .

Compte tenu du caractère aléatoire du processus de désintégration radioactive, un

résultat très légèrement supérieur au bruit de fond mesuré ne donne pas l'assurance totale d'une présence de radioactivité, pas plus qu'un résultat très légèrement inférieur à ce même bruit de fond ne garantit l'absence de cette radioactivité. La limite de détection est la valeur minimale de l'activité mesurée qui peut être détectée. Si le radionucléide recherché est un émetteur multi-gamma, sa limite de détection est égale à la plus faible valeur des limites de détection calculées sur ses différentes raies γ . Cette valeur est exprimée de la façon suivante :

$$L_{\alpha} = \frac{\sqrt{LTMH.B}}{\varepsilon.\Delta t} \quad (2.10)$$

Avec B est le bruit de fond de détecteur. Pour améliorer la limite de détection, le bruit de fond doit être réduit au maximum.

2.4.2 Le seuil de décision SD

Selon la norme ISO/NF 11929-2010 « *Le seuil de décision (SD) correspond à la valeur de l'estimateur du mesurande telle que, quand le résultat d'une mesure réelle utilisant une procédure de mesure donnée d'un mesurande quantifiant le phénomène physique lui est supérieur, on décide que le phénomène physique est présent* ».

Le seuil de décision est alors la valeur avec laquelle on estime que c'est un comptage supérieur à cette valeur et qui révèle effectivement la présence de la radioactivité dans l'échantillon analysé [33]. La limite de détection est déterminée par rapport au seuil de décision (SD). Selon les techniques de mesure, LD est approximativement égale à 2SD.

2.4.3 L'origine du bruit de fond

Le spectre de bruit de fond est dû à la combinaison de différentes composantes : la radioactivité des matériaux constituant le détecteur et les rayonnements cosmiques.

2.4.3.1 La radioactivité des matériaux

Elle a trois origines essentielles :

- une radioactivité naturelle qui regroupe les trois filiations (^{232}Th , ^{235}U , ^{238}U) ;
- une radioactivité artificielle (produits des retombées des expérimentations d'engins nucléaires atmosphériques et de l'accident de Tchernobyl pour l'hémisphère

- nord, produit de l'utilisation de sources industrielles. . .) ;
- une radioactivité cosmogénique créée par le rayonnement cosmique qui est composé principalement de muons (75%), d'électrons, de photons (25%) et de neutrons (quelques%) ; il est à l'origine de particules secondaires créées essentiellement dans le blindage et détectées par le spectromètre. Pour minimiser le bruit de fond du détecteur, il convient donc de sélectionner au mieux les matériaux constituant le détecteur.

2.4.4 Les principes de réduction du bruit de fond

Quel que soit le niveau du bruit de fond que l'on cherche à atteindre, les caractéristiques des différents éléments (blindage, matériaux, laboratoire) doivent être cohérents. Cette cohérence est hiérarchisée ci-après. Par exemple, le choix d'un matériau de faible niveau radioactif n'a pas d'intérêt si le blindage n'a pas été optimisé.

2.4.4.1 Sélection des matériaux

Dans le cas où l'on souhaite avoir un bruit de fond le plus bas possible dans l'installation, il est possible de s'équiper d'un détecteur bas bruit dont les matériaux ont été sélectionnés pour leur haute pureté radiologique.

2.4.4.2 Sélection de la configuration du détecteur

Dans la configuration du cryostat type canne coudée, l'éloignement du tamis moléculaire constitué de zéolithe riche en Thorium 232 et uranium, permet de réduire très sensiblement le bruit de fond du détecteur. Par ailleurs, les composants du préamplificateur contiennent en général des taux d'impuretés importants en U/Th/Ra. Un positionnement à l'extérieur du blindage du préamplificateur, sauf le premier étage, est fortement recommandé. Dans ce cas, les effets microphoniques peuvent être plus importants ; ce problème est généralement résolu par les constructeurs.

2.4.4.3 Protection contre le radon

Afin de limiter le dégagement de radon émanant des matériaux des murs, il est possible d'enduire ceux-ci d'une peinture adaptée limitant fortement sa diffusion dans le laboratoire. Un balayage du détecteur par un flux d'azote gazeux (exempt de radon) peut être mis en place afin d'éviter une accumulation du radon à proximité de celui-ci.

2.4.4.4 Diminution des rayonnements cosmiques

2.4.4.4.1 Le blindage

Afin de minimiser au maximum le bruit de fond dû aux différents rayonnements γ (naturels ou artificiels) venant de l'entourage de la chaîne de mesure, les matériaux utilisés pour la réalisation du blindage contre le rayonnement γ externe doivent avoir un nombre atomique et une densité élevés. Les plus usités sont essentiellement : le plomb, le fer, le cuivre, le mercure, le béton, . . . Par classification, on élimine tout de suite le béton, trop radioactif et le mercure liquide qui est difficile à manipuler et qui nécessite l'utilisation de containers spéciaux. De même on élimine le fer et le cuivre qui possèdent des sections efficaces importantes aux neutrons. En général on utilise un blindage en plomb qui protège le détecteur et l'échantillon. Pour faire une optimisation du blindage, on joue sur les paramètres : choix, qualité et épaisseur des matériaux, rôle d'un blindage neutron.

2.4.4.4.2 Spectromètre équipé d'un veto anti-cosmique

Une protection de 2,5 m de béton est suffisante pour atténuer la composante hadronique (protons, neutrons) des rayonnements cosmiques. On peut réduire la composante des rayons cosmiques par installation du détecteur dans des laboratoires profonds, c'est-à-dire des laboratoires souterrains mais cette solution est très chère. C'est pourquoi, la mise en place d'un nouveau type de blindage est nécessaire pour minimiser les effets des muons et des neutrons rapides induits par les réactions de spallation des hadrons résiduels sur le plomb. Nous rappelons ici pour fixer les idées qu'un muon laisse en moyenne une énergie de 7,5 MeV par centimètre de germanium et 1,7 MeV par centimètre de scintillateur plastique. On entoure le blindage du Pb par des plaques de scintillateur plastique en anti coïncidence avec le détecteur GeHP : on parle alors de veto anti-cosmique [34].

2.4.4.4.3 Laboratoire souterrain

L'installation d'un détecteur germanium dans un laboratoire souterrain profond permet de baisser considérablement le bruit de fond engendré par les rayonnements cosmiques. Dans le spectre de bruit de fond d'un laboratoire souterrain, on peut noter l'absence de pics résultants de l'activation du cristal de germanium par la composante neutronique ; ce qui n'est pas le cas avec un détecteur équipé d'un veto cosmique [35].

2.4.4.4 Dispositif de suppression du fond Compton

La réduction du bruit de fond peut être envisagée avec un détecteur équipé d'un système à suppression du fond Compton, consistant à équiper le germanium d'une protection active. Toutefois, bien que cette technique permette une réduction sensible du bruit de fond, elle est surtout utilisée afin de diminuer le bruit de fond, apporté par l'échantillon lui-même, dû aux interactions Compton du rayonnement gamma issu des radionucléides présent dans l'échantillon [36].

2.4.5 Les types d'incertitude en spectrométrie γ

Le tableau (2.1) analyse les diverses causes d'incertitude inhérentes à un mesurage au moyen d'une installation de spectrométrie gamma [33].

Grandeur	Analyse de l'incertitude
Comptage	L'incertitude est déterminée au moyen d'une méthode de type B (loi de Poisson)
Surface du pic	Elle dépend principalement de la forme du fond sous le pic, des bornes adoptées pour définir les pics, des F. Compton des différents pics, de la présence d'interférences.
Intensité d'émission photonique	La donnée de base pour ce calcul est l'incertitude extraite de la bibliothèque de données NUCLEIDE.
Rendement d'absorption totale	La courbe de rendement d'absorption totale est obtenue selon la méthode d'ajustement par les moindres carrés.
Activité	L'incertitude de l'étalon utilisé est fournie avec sa valeur d'activité et dépend de la méthode utilisée pour le caractériser
Correction de décroissance	La correction de décroissance entre la date de référence et la date de mesure s'exprime : $C_T = e^{-\ln(2)\frac{t}{T}}$ où t est temps écoulé entre la date de référence et mesure, et T est la période du radionucléide. Incertainitude relative : $\frac{\Delta C_T}{C_T} = \frac{\ln 2 \cdot t}{T} \frac{\Delta T}{T}$ Dans le cas d'un radionucléide de T courte devant la durée de mesure, il faut corriger la surface nette mesurée pendant la durée d'acquisition t_m , par C_{dec} pour tenir compte de la décroissance pendant la mesure : $C_{dec} = \frac{\ln(2)\frac{t_m}{T}}{1 - \exp(-\ln(2)\frac{t_m}{T})}$
Correction de coïncidences γ - γ , γ -X et X-X	Elle dépend du schéma de désintégration et des rendements totaux et d'absorption totale
Correction d'atténuation	La correction d'atténuation des photons à travers un écran d'épaisseur x est : $C_{att} = e^{-\mu x}$

	où μ est le coefficient d'atténuation linéique (cm^{-1}).
Correction d'autoabsorption	La correction d'auto-absorption dans un échantillon d'épaisseur x est donnée par l'expression : $C_{aut} = \frac{1 - e^{-\mu x}}{\mu x}$ où μ représente le coefficient d'atténuation linéique. Ces termes correctifs dépendent de la nature et de l'épaisseur de l'échantillon et des écrans entre l'échantillon et le détecteur

TAB. 2.1: Les diverses causes d'incertitude en spectrométrie gamma.

D'autres corrections aux incertitudes liées à un mesurage par spectrométrie gamma tels que la correction d'empilement et de temps mort et correction de géométrie. On peut apprécier l'importance de la première correction, en étudiant l'influence d'un taux d'impulsions sur le comptage d'un pic de référence en fonction du temps mort. L'écart observé entre les résultats à taux de comptage élevé et faible est représentatif de la correction à apporter.

2.5 La simulation Monte-Carlo

Historiquement la première utilisation connue des méthodes Monte-Carlo date du 18^{ème} siècle, plus précisément de l'année 1777, date à laquelle le Comte de Buffon estima la valeur de π [37].

L'émergence de la méthode Monte-Carlo est historiquement attribuée à Stanislaw Ulam. Ce mathématicien, travailla avec John Von Neumann sur le projet Manhattan relatif aux recherches sur la fabrication de la bombe atomique durant la Seconde Guerre mondiale. Ces travaux consistaient à modéliser les trajectoires des neutrons et des rayons gamma produits par une explosion nucléaire.

En 1946, Ulam proposa la méthode Monte-Carlo. Il profita de l'apparition de l'ordinateur et de sa collaboration avec Von Neumann et Nicholas Metropolis, pour développer des algorithmes Monte-Carlo implémentables, dont l'exécution permet de rendre des problèmes non aléatoires en formes stochastiques pouvant être ainsi traitées facilement par un échantillonnage statistique.

Ce fut Metropolis qui donna le nom de Monte-Carlo à ces méthodes par analogie avec le caractère aléatoire de la roulette du célèbre Casino de Monte-Carlo à Monaco [38]. Après la guerre, grâce au développement de nouveaux moyens informatiques, les méthodes de Monte-Carlo permettront notamment l'évaluation d'intégrales multidimensionnelles complexes et la résolution d'équations intégrales pour lesquelles les solutions analytiques

faisaient défaut. Il semblerait que la première application de la méthode de Monte-Carlo concernant le transport de photons ait été réalisée par Hayward et Hubbell en 1954 en générant 67 histoires [37].

2.6 Le fonctionnement de la méthode Monte-Carlo

La méthode Monte Carlo est un type d'algorithme stochastique utilisé pour simuler la réaction d'un système mathématique ou physique. C'est une méthode numérique basée sur l'utilisation d'un grand nombre de chiffres aléatoires.

Le principe de base d'une simulation Monte-Carlo est d'utiliser un nombre aléatoire dans une série d'équations probabilistes décrivant un système. L'idée d'utiliser les simulations aléatoires est directement liée à la complexité des interactions radiatives dans un milieu donné [39].

2.6.1 Principe de la méthode Monte-Carlo

Nous venons de voir que l'interaction rayonnement-matière est un processus aléatoire. Le traitement de ce dernier peut donc s'effectuer en faisant appel aux principes des méthodes Monte-Carlo.

Les méthodes Monte-Carlo consistent à corrélérer un processus aléatoire avec un processus physique. De manière plus précise, on cherche à reproduire un phénomène physique en supposant qu'il est le résultat d'une succession d'évènements probabilistes. Chaque évènement peut donc être obtenu selon sa probabilité d'occurrence, permettant ainsi de déterminer le prochain. Physiquement, on interprète cela comme une suite d'évènements microscopiques qui se manifestent par le déroulement du phénomène physique. Le caractère aléatoire permet d'envisager l'ensemble des possibilités pour chacun des évènements, ce qui rend la méthode comme une des plus précises quant à la reproduction d'un phénomène.

Dans la méthode Monte-Carlo, il est nécessaire que chaque interaction soit décrite par une fonction mathématique issue d'un modèle physique. Cette fonction est dénommée « fonction densité de probabilité » car elle régit l'occurrence de l'interaction concernée. Le phénomène de transport de la particule est reproduit en réalisant, comme dans la réalité, une succession de ces interactions. Cela revient, pour la méthode Monte-Carlo,

à effectuer une multitude d'échantillonnages selon la fonction densité de probabilité associée à chaque interaction. Cependant pour qu'un échantillonnage soit correct, deux choses sont nécessaires. D'abord, le nombre de tirages réalisés doit être grand afin de couvrir l'ensemble des probabilités offertes par la fonction densité de probabilité. Ensuite, il est nécessaire que ces tirages soient tous indépendants, c'est-à-dire issus d'un processus unique d'échantillonnage. C'est donc sur la génération des nombres aléatoires que repose l'intégrité de l'échantillonnage, et plus précisément sur l'unicité de chacun des nombres ainsi générés [40].

Pour simuler les histoires des particules, il est nécessaire de posséder un modèle de diffusion défini par l'équation de Boltzman constitué principalement d'un ensemble de sections efficaces différentielles (SED) qui déterminent les distributions de probabilité des variables aléatoires représentant une trajectoire :

- le libre parcours moyen entre deux événements ;
- le type d'interaction ;
- l'énergie perdue et la déflexion angulaire subie au cours de l'interaction [41].

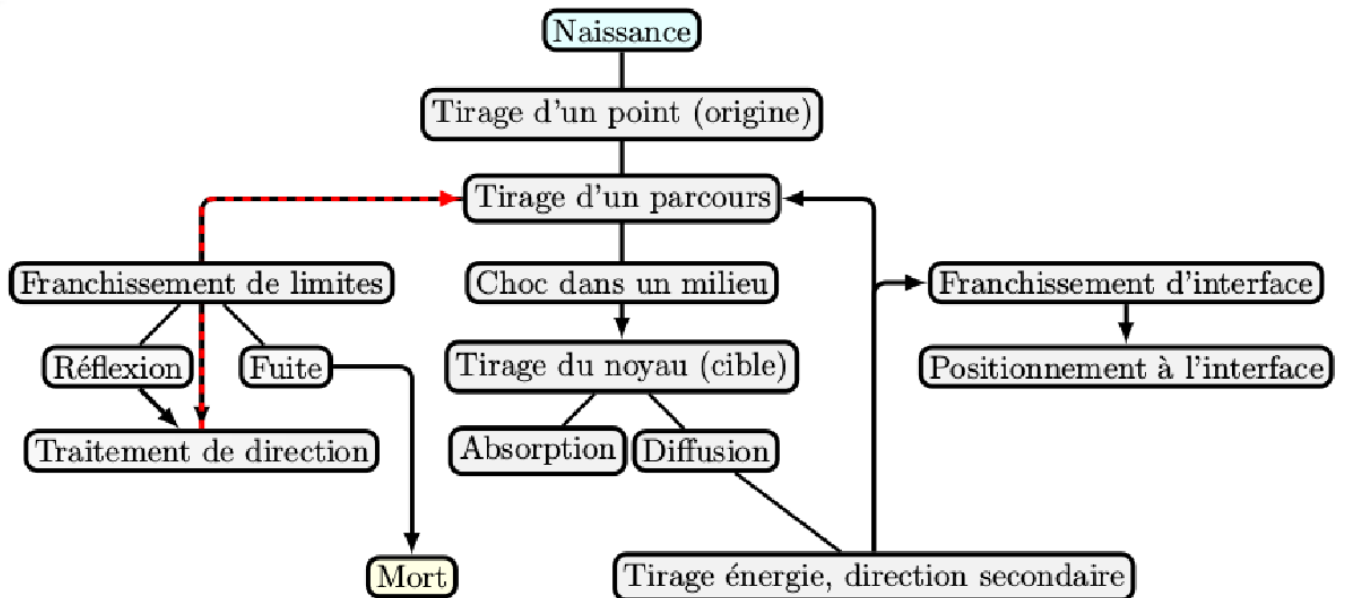


FIG. 2.9: Organigramme de l'histoire d'une particule par la méthode Monte Carlo [42].

2.6.2 Méthodes de simulation adaptée au type de particules

Le nombre d'interactions que provoque un photon au cours de son histoire est faible. Dans certains cas, il peut traverser de grandes distances sans interagir, ou encore en

transférant la totalité de son énergie en une fois et disparaître définitivement. Comme le nombre d'événements à reproduire est modéré, le transport des photons peut être aisément suivi pas à pas, selon la méthode «détaillée» appelée aussi méthode du «coup par coup». Celle-ci consiste à prendre en compte la totalité des événements générés lors du transport de la particule dans un ordre chronologique, à savoir : échantillonnage de la distance à la prochaine interaction appelée «libre parcours », transport rectiligne de la particule jusqu'à ce point, puis échantillonnage à partir des sections efficaces différentielles et totales, du type d'interaction, du changement de direction et/ou de la perte d'énergie occasionnés par l'interaction. Notons que le transport des électrons est très différent. À chaque interaction, ils perdent une petite partie de leur énergie et leur changement de direction est fréquent. Ils effectuent beaucoup de collisions avant d'être absorbés dans le milieu. À titre d'exemple, pour passer d'une énergie de 1 MeV à 1 keV dans un matériau donné, un électron peut subir plus de 10^4 collisions. La simulation de la trajectoire de telles particules, en considérant chaque événement individuellement, engendre des temps de calcul très vite prohibitifs malgré les performances actuelles qu'offrent les ordinateurs. Ainsi, une méthode détaillée (histoire analogue) ne pourra être appliquée que si l'énergie incidente de l'électron est relativement faible ($<100\text{keV}$) [43].

2.6.3 Estimation des incertitudes

Toute valeur mesurée ou calculée, à l'exception du décompte d'éléments, possède une certaine imprécision. La prise en compte de cette imprécision est essentielle pour l'interprétation 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.

2.6.3.1 Des incertitudes dites « systématiques » classées en catégorie B

Elles se caractérisent par une déviation par rapport à la valeur la plus précise, obtenue chaque fois que le calcul est effectué. Ce genre d'incertitudes peut être lié aux paramètres du code de simulation (choix et interpolation des sections efficaces, générateur de nombres pseudo aléatoires...) et/ou être induit par une mauvaise utilisation du code.

2.6.3.2 Des incertitudes dites « statistiques » classées en catégorie A

Elles proviennent d'une déviation aléatoire et différente, à chaque fois que le calcul est réitéré. Dans la pratique, les incertitudes de catégorie B sont difficiles à évaluer. La comparaison de codes Monte-Carlo, différents de par leurs sections efficaces ou leur modèle de diffusion pour le transport des électrons, est une façon de les estimer. En revanche, les incertitudes de catégorie A associées aux calculs de type Monte-Carlo sont fournies par le code [47]. Soit Q une grandeur que l'on souhaite évaluer au cours de la simulation de N histoires, la valeur moyenne \bar{Q} est donnée par la relation :

$$\bar{Q} = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^n q_i \quad (2.11)$$

où q_i est la valeur calculée à la $i^{\text{ème}}$ histoire.

Cette grandeur présente, compte tenu de la nature stochastique de l'évaluation, une incertitude statistique $\sigma_{\bar{Q}}$ appelée écart-type et définie par :

$$\sigma_{\bar{Q}} = \sqrt{\frac{\text{var}(q)}{N}} \quad (2.12)$$

avec $\text{var}(q)$ est la variance [44].

Selon une distribution gaussienne, la probabilité que la valeur exacte de la grandeur calculée soit dans l'intervalle est de 68%, dans l'intervalle $Q \pm 2\sigma$ de 95%, dans l'intervalle $Q \pm 3\sigma$ de 99,7%, ce dernier intervalle de confiance étant le plus fréquemment utilisé dans les codes Monte Carlo modernes [43]. L'incertitude globale s'exprime par [45] :

$$\sigma = \sqrt{\sigma_A^2 + \sigma_B^2} \quad (2.13)$$

2.6.4 Fiabilité de la simulation

Pour un calcul de simulation, plusieurs grandeurs statistiques sont estimées, testées et affichées dans le fichier de sortie (résultat) Ces grandeurs renseignent sur la précision du résultat du calcul Monte-Carlo. À 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 [46]. Le tableau (2.2) donne la fiabilité d'un calcul Monte-Carlo en fonction de l'erreur relative R :

Erreur relative (%)	Fiabilité du calcul
50 à 100	Nulle
20 à 50	Faible
10 à 20	Discutable
$\prec 10$	Généralement fiable
$\prec 5$	Fiable

TAB. 2.2: Fiabilité d'un calcul Monte Carlo en fonction de l'erreur relative [47].

2.6.5 Efficacité de la simulation Monte-Carlo

L'efficacité ε d'une simulation permet de comparer les performances de deux méthodes différentes et d'estimer le gain de temps apporté par une méthode pour obtenir une variance donnée (ou à l'inverse, estimer la réduction de l'incertitude statistique associée à la grandeur simulée pour un temps de calcul donné). L'efficacité est définie par la relation :

$$\varepsilon = \frac{1}{\sigma^2 T} \quad (2.14)$$

où σ^2 représente la variance sur l'estimation et T le temps de calcul. À l'exception du début de calcul, où l'on doit s'attendre à des fluctuations statistiques, σ^2 varie approximativement comme $1/N$, N étant le nombre d'histoires simulées. Ce dernier étant proportionnel à T , ε devrait donc rester à peu près constante au cours du temps. Pour un temps de calcul donné, l'erreur relative σ varie comme $1/\sqrt{\varepsilon}$ et pour la diviser d'un facteur 2, il faudra accroître ε ou le temps de calcul d'un facteur 4 [45].

2.6.6 Réduction de la variance

On a vu que 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 [48] :

- 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 modification 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 [47].

2.7 Le code MCNP

Le code MCNP (Monte-Carlo N-Particle) est l’un des codes de calcul de transport de particules et d’interaction avec la matière les plus utilisés pour les calculs de modélisation. Ce code a été développé par le laboratoire de Los Alamos aux Etats-Unis [49]. Que ce soit dans la radioprotection, la dosimétrie, l’imagerie médicale ou les calculs neutroniques, ses domaines d’applications sont variés. Les calculs de simulation s’appuient sur le transport des neutrons, des photons et des électrons seuls ou combinés dans des géométries complexes composées de matériaux divers [50]. Ce code est un exécutable en Fortran qui n’est pas modifiable [47], un fichier d’entrée (input file) écrit avec un éditeur de texte permet d’introduire les détails de notre modèle à simuler.

2.7.1 Architecture du code MCNP

Le code MCNP s’exécute à partir un fichier d’entrée qui se compose de trois grandes parties principales séparées par une ligne vide (voir annexe A). Les deux premières

parties sont réservées à la définition de la géométrie et la troisième est pour les détails de la source, la physique utilisée (modèles, seuil de coupure, ...), les matériaux utilisés et le type de comptage à simuler. On peut aussi introduire des commentaires dans notre fichier d'entrée par une lettre c au début de la ligne et par un \$ à la fin.

```

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

FIG. 2.10: Structure du fichier input MCNP.

2.7.1.1 Les cellules

Les cellules sont des boîtes définies à partir des surfaces décrites dans la deuxième partie. Elles constituent la géométrie à simuler et généralement sont de forme simple, homogène. Pour définir correctement une cellule on doit utiliser la forme suivante : n_c m d geom params_c Avec : n_c : le numéro de la cellule, entre 1 et 99999 donné.

m : le numéro du matériau constituant la cellule.

d : la densité en g/cm³ (précédé par le signe '-') ou en 10²⁴ at/cm³ (précédé par le signe '+')

Geom : spécifie la géométrie de la cellule définie par des surfaces définies. Params_c : les paramètres, comme l'importance, le volume ...etc. Les particules propagées dans une cellule ont un poids généralement égal à 1. Ce poids statistique intervient dans toutes les formules comme élément de pondération. L'importance d'une particule est définie par la carte IMP : X=imp avec X la particule (n, p ou e). Cette définition peut se faire sur la même ligne que la déclaration de la cellule.

2.7.1.1.1 Le sens des surfaces

Pour construire une cellule à partir des surfaces, on doit respecter le sens qui est défini par un signe '+' ou un signe '-' devant le numéro de surface. Le signe '+' désigne le côté de la surface orienté dans le même sens que l'axe de coordonnées correspondant. Pour une surface fermée de type sphère ou cylindre, le signe '+' désigne l'extérieur, alors que le signe '-' désigne l'intérieur.

2.7.1.1.2 Les opérateurs booléens

La combinaison entre les surfaces se fait à l'aide des opérateurs booléens :

- Intersection : dans la logique c'est « & » qui l'on peut avoir avec un simple espace « » entre les surfaces.
- Union : Logique c'est « ou », l'union de cellule se fait par le caractère « : » entre les surfaces.
- Exclusion : que l'on peut avoir par le symbole « # »

2.7.1.2 Les surfaces

Pour définir une surface, on utilise la notation suivante : N type paras Avec : N : le numéro de la surface, entre 1 et 99999 . type : le type de surface, l'abréviation d'une surface reconnue par le programme. paras : les paramètres, rayon et coordonnées. A titre d'exemple, pour représenter une sphère centrée de rayon égale à 30 cm, il faut écrire : 1 so 30. Les types de surfaces avec leurs coordonnées associées sont bien déterminés dans le manuel de MCNP à la partie «MCNP cards» [51].

2.7.1.3 La partie physique

Dans cette partie, on s'engage à définir la source, le type de comptage, les matériaux ainsi que le mode de transport de particules...etc.

2.7.1.3.1 Le mode

Dans un fichier MCNP, il faut définir le mode de transport de particules par n pour les neutrons, p pour les photons et e pour les électrons. On peut aussi utiliser des combinaison de modes comme suit : mode x avec x=n, p, e , np, pe, npe.

2.7.1.3.2 Définition de source

Une carte essentielle pour définir la source, il s'agit de la carte SDEF selon la forme suivante : SDEF source variable = specification. Il existe de nombreux variables pour définir la source et on peut citer :

- CEL : précise la cellule contient la source ;
- SUR : définit la surface de la source ;
- ERG : définit l'énergie en MeV de la source ;
- POS : donne le point de référence du centre de la source ou la position ;
- RAD : définit le rayon de la source ;
- PAR : type de particule (n, p ou e).

Pour des géométries un peu complexe, on peut introduire d'autres paramètres comme DIR qui représente le cosinus de l'angle entre le vecteur directeur de la particule source et le vecteur VEC.

2.7.1.3.3 Les distributions

Une distribution permet à une variable de prendre plusieurs valeurs au lieu d'une valeur fixe entrée par l'utilisateur. Elles sont définies tout d'abord par Dn (avec n le numéro de la distribution) en remplaçant la valeur numérique. Chaque distribution utilisée est ensuite décrite par une ou plusieurs cartes : SI (Source Information Card), SP (Source Probability Card) et SB (Source Bias Card).

2.7.1.3.4 Les tallies (estimateurs ou compteurs)

On utilise la carte Fn ou Tallies où n représente le numéro (type) de tally pour étudier un problème donné. L'utilisateur choisit le tally selon l'observable à étudier.

Les tallies se présentent de la manière suivante : Fkn : X C₁ C₂ ... C_i

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 de tally calculé.

X : le type de la particule.

C_i : une cellule sur laquelle on veut calculer le tally.

Le tableau ci-dessous regroupe les différents types de tally pour les particule propagées dans la cellule d'intérêt :

Tallies	Spécification	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	Energie moyenne déposée dans une cellule	n, p, e
F7	Energie moyenne de fission dans une cellule	n
F8	« pulse height tally »	n, p, e, pe

TAB. 2.3: Différents types de tallies utilisés par MCNP.

2.7.1.3.5 Définition des matériaux

Comme il a été cité précédemment, dans la définition des cellules, on donne un numéro mn au matériau qui constitue la cellule. Ce numéro n est repris dont la formulation simplifiée :

$$mn \ ZA_1 \text{ frac}_1 \ ZA_2 \text{ frac}_2 \dots ZA_i \text{ frac}_i$$

avec n est le numéro du matériau donné par l'utilisateur.

ZA_i : indique le numéro et la masse atomique des éléments présents dans le matériau.

frac_i : la fraction de l'élément constituant le matériau.

Chapitre 3

Etalonnage d'un détecteur puits en vue de mesures environnementales

Sommaire

3.1	Introduction	55
3.2	Matériels et méthodes	55
3.2.1	Le détecteur GeHP à configuration Puits	55
3.3	La simulation Monte-Carlo	57
3.4	Le standard IAEA-447 (Moss-Soil)	58
3.4.1	Origine et préparation du matériau	58
3.4.2	Étude de caractérisation	59
3.4.3	Procédure de certification	60
3.4.4	Calcul des activités pour des filiations radioactives	60
3.5	Les standards IAEA-RGU1 et IAEA-Th1	62
3.5.1	Préparation de l'IAEA-RG-U1	62
3.5.2	Préparation de l'IAEA-RG-Th1	63
3.5.3	Les activités des standards IAEA-RG-U1 et IAEA-Th1	64
3.6	Protocole expérimental	64
3.7	Résultats et discussion	65
3.7.1	Efficacité du pic d'absorption totale (FEPE)	65
3.7.2	Effet de pic-somme	70
3.7.3	Correction du pic-somme	75
3.7.4	Effet de la densité sur TCS	78
3.8	Influence de la hauteur de l'échantillon sur FEPE	79

3.1 Introduction

L'étalonnage d'un détecteur en efficacité à partir du pic d'absorption totale (Full Energy Peak Efficiency) représente un sujet d'un intérêt considérable, qui est toujours nécessaire pour atteindre des mesures précises en spectrométrie γ [52–61]. La fonction d'efficacité (FEP) doit être déterminée théoriquement avec une source d'étalonnage similaire à l'échantillon à analyser en géométrie et en composition pour avoir les mêmes effets de matrice. Dans cette partie, les mesures ont été effectuées à l'aide d'un détecteur GeHP à configuration Puits installé dans le laboratoire souterrain à Modane (LSM, situé le long du tunnel routier de Fréjus en Savoie, à la frontière franco-italienne) où la sensibilité accessible dépend d'un ultra bas bruit de fond. Cet étalonnage est destiné aux mesures environnementales [52–55, 58, 59, 61], principalement la détermination de radioéléments dans les sédiments lacustres comme le ^{210}Pb (demi-vie de 22.3 ans) et le ^{137}Cs (demi-vie de 30.05 ans) afin de les utiliser comme méthodes de datation.

Dans le but de réaliser le processus d'étalonnage, nous avons utilisé des matériaux de référence comme IAEA-447 (sol moussu), RG-Th1 (minerai de Thorium) et RG-U1 (minerai d'Uranium).

Pour la configuration Puits du détecteur, une correction importante est liée à l'effet de coïncidence ou pic-somme des rayonnements γ (TCS), qui se produit lorsque deux (ou plus) photons γ émis par un même noyau sont simultanément détectés dans le temps de résolution du système de spectrométrie gamma. L'amplitude du processus dépend de l'efficacité du détecteur (γ compris la géométrie spécifique source-détecteur) et les paramètres du schéma de désintégration et de desexcitation du noyau considéré. Le TCS se produit généralement avec des pics à faibles surfaces. Afin de compenser la perte ou le gain de comptage, une correction appropriée doit être effectuée.

3.2 Matériels et méthodes

3.2.1 Le détecteur GeHP à configuration Puits

Dans ce travail, le spectromètre du LCE utilisé est un GeHP à configuration Puits délivré par Canberra, modèle GCW4021 sous un numéro de série : b07035, avec une effi-

efficacité relative de 40%, un volume actif de 238 cm³ et une résolution nominale (FWHM) de 1,27 keV à 122 keV (⁵⁷Co) et de 2,3 keV à 1,33 MeV (⁶⁰Co). Ces caractéristiques sont fournies par le fabricant. Le détecteur fonctionne couplé à un analyseur multicanaux de Canberra DSA-1000, avec une grande efficacité pour des échantillons de faible quantité, car ce dernier est presque entouré par le volume actif du détecteur.

Le détecteur puits de Canberra est fabriqué avec un trou borgne au lieu d'un trou traversant, en laissant au moins 15 mm d'épaisseur de détecteur actif au fond du puits. La géométrie de comptage se rapproche donc de 4π sr.

Le cristal de Ge est disposé à l'intérieur d'un capot d'aluminium à bas bruit de fond (LB) avec des parois de 1,5 mm d'épaisseur et 1 mm d'épaisseur au fond. Le contact lateral du détecteur a été réalisé par implantation d'ions bore et constitue une couche d'épaisseur négligeable en comparant à celle de 0,5 mm d'aluminium. Ce type de détecteur a une bonne réponse à basse énergie, inférieure à 20 keV [62]. Le détecteur est placé dans un château faisant office de blindage avec une feuille de cuivre électrolytique (3 mm d'épaisseur) et du plomb (12 cm de plomb de basse activité $\prec 50$ Bq.kg⁻¹ et 3 cm de plomb de très basse activité $\prec 10$ Bq.kg⁻¹).

Une description complète du modèle de détecteur équivalent est représentée figure (3.1), dont les dimensions sont prises à partir du document de dessin fourni par Canberra.

Le tableau (3.1) résume les valeurs spécifiées données par le fabricant, ainsi que les caractéristiques géométriques du détecteur Puits (figure 3.1).

Paramètre	Valeur (mm)
épaisseur de l'électrode externe	0,9
épaisseur de l'électrode interne	$0,3 \times 10^{-3}$
épaisseur de la fenêtre de l'électrode	0,9
diamètre du cristal	68
longueur du cristal	68
diamètre du trou	17
profondeur du trou	35
trou du capot	11 mm de diamètre et 40 mm de profondeur
matériau de la fenêtre du cryostat	1 mm d'épaisseur d'aluminium LB
matériau du capot	1,5 mm d'épaisseur d'aluminium LB
Holder du cristal	3 mm d'épaisseur du cuivre LB

TAB. 3.1: Les paramètres du détecteur Puits du LCE.

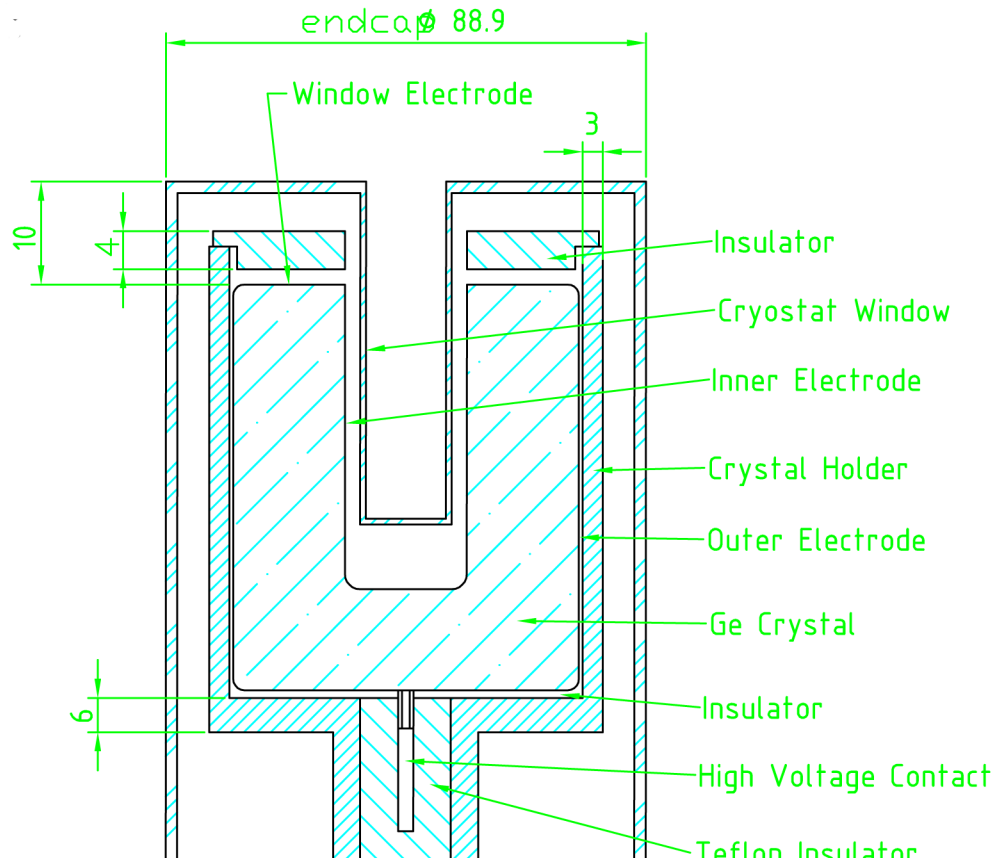


FIG. 3.1: Coupe longitudinale du détecteur Puits.

3.3 La simulation Monte-Carlo

La caractérisation d'un détecteur en spectrométrie γ se base généralement sur des méthodes semi-expérimentales où les résultats expérimentaux sont combinés avec ceux issus de simulation Monte-Carlo, afin de déterminer avec précision l'efficacité de détection. Dans ce travail nous avons utilisé le code de simulation MCNP6 pour modéliser notre détecteur, en exploitant les dimensions nominales et les caractéristiques fournies par le fabricant [54].

Ce modèle doit être vérifié par la comparaison de la courbe d'efficacité établie par MCNP6 avec celle obtenue expérimentalement, en fonction de la géométrie source-détecteur donnée et des matériaux de référence standards pour une large gamme d'énergie.

Le modèle du détecteur sera approuvé si les efficacités simulées sont en bon accord avec les valeurs expérimentales pour un niveau d'incertitude acceptable.

Comme MCNP6 ne prend pas intrinsèquement en compte l'effet de coïncidence, alors si les autres effets sont négligeable, nous pouvons estimer les facteurs de correction de pic-somme par comparaison entre les résultats expérimentaux de l'efficacité et ceux issus de la simulation à l'aide du code MCNP6. La résolution du détecteur est prise en compte à travers la carte GEB (Gaussian Energy broadening).

La figure (3.2) montre une coupe longitudinale du modèle de détecteur construit par MCNP6.

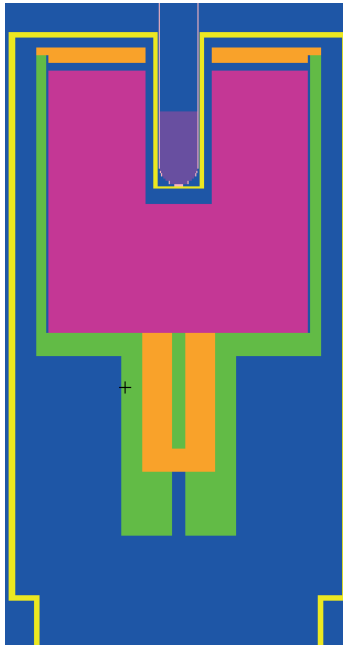


FIG. 3.2: Modèle 2D du détecteur puits défini avec MCNP6.

3.4 Le standard IAEA-447 (Moss-Soil)

3.4.1 Origine et préparation du matériau

En été 2007, un échantillon de trois cents kg de sol moussu a été recueilli à partir d'une mine de marbre rouge abandonnée dans la montagne de Gerecse située au nord-ouest de la Hongrie, par le personnel du Laboratoire radio-analyse, division de la sûreté de l'alimentation humaine et animale (Hongrie) en coopération avec le Laboratoire de l'environnement terrestre de IAEA, (International Atomic Energy Agency). Les rainures dans les grandes surfaces en pierre de marbre ont permis la croissance de la mousse au repos pendant les 40 dernières années, de sorte que la couche fraîche

épaisse de 3-5 cm du sol a été mélangée avec la mousse. Ce mélange a accumulé des retombées de radionucléides et représente ainsi l'histoire ou une fiche de mémoire de ces retombées radioactives. La mousse du sol nettoyé a été séchée pendant une nuit dans un four à 80 °C et ensuite broyée dans un moulin à cylindre en céramique de grand volume. Le matériau broyé est tamisé pour obtenir une distribution de taille maximale de particules de 150 μm . Le volume final du matériau traité est d'environ 180 kg. La densité du matériau a été mesurée sur 5 échantillons, soit $1,03 \pm 0,05 \text{ g cm}^{-3}$. Des quantités de 150 g ont été mis dans des bouteilles en plastique, scellées par des bouchons en polyéthylène et étiquetées avec le code IAEA-447. Après la mise en bouteille, le matériel a été stérilisé par irradiation aux rayons gamma avec une dose totale de 25 kGy, en utilisant une source de ^{60}Co selon la norme EN ISO 13485 : 2003, pour assurer la stabilité à long terme de la matière en inhibant l'action microbienne [63].

3.4.2 Étude de caractérisation

L'IAEA-447 certifié a été caractérisé sur la base des résultats rapportés par le Laboratoire d'environnement terrestre de IAEA. En outre, la matière a été analysée par deux laboratoires experts (Laboratoire de radio-analyse, Division de la sûreté de l'alimentation humaine et animale, Budapest, Hongrie, et Laboratoire de mesures radiologiques, Jožef Institut Stefan, Ljubljana, Slovénie). Chaque laboratoire a déterminé les mesurandes d'intérêt sur trois bouteilles différentes.

Les résultats obtenus par les laboratoires ont été utilisés pour confirmer les valeurs certifiées de l'IAEA. Au total, 30 bouteilles ont été analysées durant la caractérisation de l'IAEA-447. Les valeurs de référence de l'IAEA dérivées étaient en accord avec les résultats des autres laboratoires.

Les méthodes suivantes ont été utilisées pour la caractérisation du matériau de référence : spectrométrie gamma pour la mesure des radionucléides émetteurs gamma ; comptage à scintillation liquide après une séparation radiochimique pour la mesure du ^{90}Sr , ^{210}Pb et ^{241}Pu ; spectrométrie alpha pour ^{210}Po , ^{226}Ra , ^{234}U , ^{238}U , ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$, ^{241}Am après une séparation radiochimique ; spectrométrie de masse avec plasma à couplage inductif pour la mesure du ^{232}Th [64, 65].

^{228}Ra n'a pas été déterminée indépendamment, sa valeur est dérivée de ^{228}Ac à l'équilibre séculaire.

3.4.3 Procédure de certification

Les valeurs certifiées attribuées ont été établies sur la base des résultats rapportés par le Laboratoire d'environnement terrestre IAEA de Seibersdorf, en Autriche et confirmée par deux laboratoires experts [66].

L'information des valeurs ont été établies par des mesures réalisées dans ce laboratoire.

Les détails concernant tous les résultats présentés, ainsi que les critères de certification peuvent être trouvés dans le rapport «Worldwide Open Proficiency Test : Determination of Natural and Artificial Radionuclides in Moss-Soil and Water», IAEA-CU-2009-03, IAEA, Vienna, 2012 [66], qui peut être téléchargé gratuitement à partir de l'adresse suivante :

http://nucleus.iaea.org/rpst/Documents/IAEA-AQ-22_web.pdf.

Les radionucléides présents dans cet échantillon et leurs activités certifiées à la date de référence du 15 Novembre 2009 sont représentés dans le tableau suivant :

Radionucléide	Valeur Certifiée (Bq/kg)	Incertitude (Bq/kg)
^{137}Cs	425	10,0
^{210}Pb	420	$0,2 \times 10^2$
^{210}Po	423	10,0
^{212}Pb	37	1,5
^{226}Ra	25,1	2,0
^{228}Ac	37	2,0
^{234}U	21,8	0,8
^{238}U	22,2	0,8
^{238}Pu	0,15	0,02
$^{239+240}\text{Pu}$	5,3	0,2
^{40}K	550	$0,2 \times 10^2$
^{90}Sr	5	0,3
^{232}Th	37,3	20
^{241}Am	2,2	0,2
^{241}Pu	8	1,0

TAB. 3.2: Valeurs certifiées des activités pour l'IAEA-447 à la date de référence.

3.4.4 Calcul des activités pour des filiations radioactives

Le logiciel DARWIN 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 noyau peut figurer dans plusieurs familles. C'est le processus physique de sa formation qui décide de sa famille d'appartenance [67].

Les grandeurs d'intérêt dérivées associées à la formation des noyaux actifs sont :

- les activités ;
- les masses ;
- les puissances résiduelles α , β , γ ;
- les spectres α , β , γ ou les nombres de particules émises par groupe d'énergie (sources de rayonnements) ;
- les productions de neutrons par réactions (α ,n) et fission spontanée ;
- la radiotoxicité.

Dans notre cas, nous allons exploiter ce logiciel pour déterminer les activités ou concentrations des radioéléments d'une filiation radioactive.

L'évolution en fonction du temps des concentrations des noyaux radioactifs est régie par des équations différentielles appelées équations de Bateman (voir chapitre 1). Les activités des radioéléments présents dans le standard IAEA-447 estimées par le logiciel Darwin à la date de notre expérience sont regroupées dans le tableau ci-dessous :

Radionucléide	Activité à la date de l'expérience (Bq/kg)	Incertitude (Bq/kg)
¹³⁷ Cs	383,46	10,00
²¹⁰ Pb	378,65	0,02 × 10 ³
²¹⁰ Po	378,65	10,00
²¹² Pb	8,28	1,50
²²⁶ Ra	25,05	2,00
²²⁸ Ac	15,49	2,00
²³⁴ U	21,80	0,80
²³⁸ U	22,20	0,80
²³⁸ Pu	0,15	0,02
^{239–240} Pu	5,30	0,20
⁴⁰ K	550	0,02 × 10 ³

^{90}Sr	4,50	0,30
^{232}Th	37,30	20
^{241}Am	2,20	0,20
^{241}Pu	6,45	1,00

TAB. 3.3: Activités des radionucléides présents dans l'IAEA-447 à la date de mesure.

3.5 Les standards IAEA-RGU1 et IAEA-Th1

Les deux matériaux de référence, l'IAEA-RGU1 et l'IAEA-RGTh1 sont préparés au nom de l'Agence internationale de l'énergie atomique par le Centre canadien de technologie des minéraux et de l'énergie, en diluant un minerai d'Uranium BL-5 (7,09% U) et un minerai de Thorium OKA-2 (Th 2,89%, 219 μg U/g) avec de la poudre de silice de distribution granulométrique similaire. Aucun signe d'une inhomogénéité inter-bouteilles a été détectée après le mélange et la mise en bouteille des matériaux. BL-5 a été certifiée pour l'uranium, ^{226}Ra et ^{210}Pb confirmant qu'il est en équilibre radioactif. L'accord entre les mesures radiométriques et chimiques du thorium et du l'uranium dans OKA-2 montre les deux séries en équilibre radioactif [68].

3.5.1 Préparation de l'IAEA-RG-U1

La composition chimique approximative (montrée dans le tableau 3.5) est basée sur la composition du BL-5 et l'analyse semi-quantitative par émission optique du diluant de la silice et de l'uranium [69]. La concentration d'uranium dans l'IAEA-RG-U1 calculée (uniquement par le rapport du silica sur BL-5) est de 400 $\mu\text{g/g}$.

Le standard IAEA-RG-U1 a été préparé en deux lots. Pour le premier, une quantité de 245,8 kg de silice a été mélangée avec 1,395 kg de BL-5 dans un mixeur de 570-L pendant 8h. Le deuxième consiste en un mélange de 253,8 kg de silice avec 1,440 kg de BL-5 traité de même façon. Après, les deux lots ont été divisés presque à moitié et chaque partie de chaque lot a été mélangée avec une partie de l'autre lot durant 3h, donnant ainsi deux nouveaux lots. La procédure est répétée encore deux fois pour assurer l'homogénéité des lots obtenus.

Elément	Masse (%)
Si	46,4
U	0,04
Al	0,1
Fe	0,03
Ca	0,03
Na	0,02
C, total	0,01
Mg	0,01
Pb	0,008
K	0,002
Ti	0,008
S	0,002
Th	$< 1 \mu\text{g/g}$

TAB. 3.4: Composition chimique approximative du IAEA-RG-U1.

3.5.2 Préparation de l'IAEA-RG-Th1

Le IAEA-RG-Th1 a été préparé par dilution d'une quantité de OKA-2 avec moins de 240 mailles de silice pour produire un mélange ayant $800 \mu\text{g/g}$ du thorium. Le tableau (3.5) montre la composition chimique approximative de OKA-2, le constituant principal du IAEA-RG-Th1 :

Composant	Masse (%)
$\text{RE}_2\text{O}_3 + \text{Y}_2\text{O}_3$	35,5
CaO	25,3
SiO_2	14,7
P_2O_5	8,9
Fe_2O_3	5,8
ThO_2	3,29
F	1,3
MgO	1,2
Al_2O_3	0,8
SrO	0,7
MnO	0,5
ZnO	0,5
NiO	0,2

TiO ₂	0,6
Na ₂ O	0,4
K ₂ O	0,41
C	0,3
U ₃ O ₂	0,0258

TAB. 3.5: Composition chimique approximative de OKA-2.

3.5.3 Les activités des standards IAEA-RG-U1 et IAEA-Th1

Les activités à la date de référence de 1984 des radionucléides de l'IAEA-RG-Th1 et de l'IAEA-RG-U1 sont présentés dans le tableau suivant :

IAEA-RG-Th1		IAEA-RG-U1	
Radionucléide	Activité (Bq/kg)	Radionucléide	Activité (Bq/kg)
²³² Th	3250	²³² Th	<4
²³⁵ U	3.6	²³⁵ U	238
²³⁸ U	78	²³⁸ U	4940
⁴⁰ K	6.3	⁴⁰ K	<0.68

TAB. 3.6: Valeurs certifiées des activités pour IAEA-RG-U1 et IAEA-RG-Th1.

3.6 Protocole expérimental

Dans notre travail, toutes les mesures ont été effectuées au laboratoire souterrain à Modane, qui est protégé du rayonnement cosmique par 1700 m de roche, ce qui équivaut à 4400 m d'eau, ainsi le taux du bruit de fond entre 20 keV et 2 MeV est de 23 coups.h⁻¹. Les trois matériaux de référence cités précédemment sont disposés dans des conteneurs avec les caractéristiques suivantes :

- IAEA-447 dans un tube de polyéthylène avec une hauteur de 28 mm et une quantité de 1,341 g ;
- IAEA-RG-U1 dans un tube de polyéthylène avec une hauteur de 28 mm et une quantité de 1,849 g ;

- IAEA-RG-Th1 dans un tube de polyéthylène avec une hauteur de 28 mm et une quantité de 1,4 g.

Les échantillons sont scellés pour assurer leur étanchéité à l'air, ce qui fait que l'équilibre radioactif entre ^{226}Ra et le ^{210}Pb peut être atteint au bout de 20 jours à 95%. Dans les mesures environnementales, les niveaux d'activité sont faibles, donc des résultats statistiquement significatifs nécessitent des périodes de comptage longues, qui peuvent aller jusqu'à plusieurs jours comme le montre le tableau suivant :

Standard	Durée de comptage (en seconde)	Durée de comptage (en jour)
IAEA-447	508841,51	5,89
IAEA-RG-U1	255046,43	2,95
IAEA-RG-Th1	339310,11	3,93

TAB. 3.7: Durées de comptage pour les trois standards.

3.7 Résultats et discussion

3.7.1 Efficacité du pic d'absorption totale (FEPE)

3.7.1.1 La déconvolution des pics en interférence

Dans l'analyse par spectrométrie gamma, il est assez fréquent que certains radionucléides recherchés aient des émissions photoniques gamma d'énergies voisines donnant lieu à des interférences. C'est par exemple, le cas des émissions gamma de 121 keV du ^{57}Co et du ^{152}Eu ou pour les radionucléides naturels ^{226}Ra et ^{235}U à 186 keV. La déconvolution de tels pics "complexes" est effectuée par la plupart des logiciels de spectrométrie gamma, soit à partir de l'observation des caractéristiques du pic complexe (largeur,...), soit à partir de corrélation entre raies émises par un même radionucléide. Un autre type d'interférences souvent rencontré et plus délicat à traiter est celui d'une raie gamma émise par un radionucléide recherché en interférence avec une raie du bruit de fond, d'énergie voisine. C'est par exemple le cas de l'émission gamma de 511 keV du ^{106}Rh en interférence avec la raie d'annihilation à 511 keV. En effet, dans le bruit de fond d'un ensemble de spectrométrie gamma, de nombreux pics se superposent au fond continu. La plupart des pics peuvent être attribués à la radioactivité ambiante, notamment celle due au plomb et autres matériaux utilisés pour le 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 de spectrométrie (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, l'analyse des standards utilisés peut générer des pics en interférence, alors des facteurs correctifs sont requis pour déterminer la surface nette du pic d'intérêt. Le tableau (3.8) énumère les principaux facteurs de correction pour certains pics des radionucléides présents dans les standards.

Radionucléide	Nucléides dans le pic	Energie (keV)	Proportion dans le pic (%)
^{234}Th	^{234}Th	63,28	98,2
	^{232}Th	63,81	1,8
^{226}Ra	^{226}Ra	186,21	57,1
	^{235}U	185,72	42,8
^{212}Pb	^{212}Pb	238,63	62,4
	^{214}Pb	242,00	31,7
	^{224}Ra	240,99	5,9
^{40}K	^{40}K	1460,82	94,8
	^{228}Ac	1459,14	5,2

TAB. 3.8: Facteurs d'interférence pour certains radionucléides [70].

Concernant l'émission gamma du ^{234}Th à 92,38 keV, il y a un pic unique dans la région spectrale 92-93 keV qui résulte de deux énergies (92,56 keV et 92.78 keV), où la probabilité d'émission totale a été prise en compte (le rapport d'embranchement). La surface nette du pic total de ce multiplet est calculée sans déconvolution.

3.7.1.2 Identification des pics γ

Le logiciel d'acquisition utilisé est Genie2000, logiciel commercialisé par la société Canberra. Ce logiciel permet de visualiser en temps réel la sortie de l'analyseur multi-canaux. De manière à pouvoir identifier les désintégrations radioactives mises en jeu, le spectre doit être étalonné en énergie. Cela consiste à établir une relation polynômiale entre le numéro de canal et l'énergie déposée dans le cristal. L'énergie du pic corre-

pond à l'énergie du photon incident pour l'identification des pics gamma par Génie 2000 requiert une bibliothèque nucléide avec des informations sur les énergies des points pour tous les radionucléides concernés [71]. L'étalonnage en énergie et l'étalonnage en résolution se font en une seule étape mais il existe plusieurs méthodes pour le réaliser :

- En visualisant le spectre à étalonner, il faut placer le curseur sur le sommet d'un pic. Le logiciel calcule automatiquement le centroïde pour une fonction gaussienne ajustée à la forme du pic et la résolution en canaux. Il faut alors rentrer la correspondance en énergie ;
- sur le spectre, il faut placer des marqueurs qui entourent le pic servant à l'étalonnage. Comme précédemment, le logiciel calcule le centroïde du pic et sa résolution en canaux et il faut entrer l'énergie correspondante du pic ;
- il y a aussi la possibilité de faire une recherche automatique de pics. Le logiciel fournit une liste de pics avec leur centroïde et leur résolution exprimés en canaux. Il faut indiquer l'énergie de chacun des pics.

Il est possible au logiciel d'identifier le radioélément responsable d'un pic par comparaison avec des tables et de calculer directement l'activité. Cela nécessite d'avoir réalisé un étalonnage en efficacité. L'identification des pics se fait à partir des bibliothèques dans Génie2000 contenant toutes les informations sur les radioéléments (énergie, probabilité d'émission...). La bibliothèque utilisée dans ce travail est Lib-Sediment.NLB qui contient les descendants de ^{238}U et ^{232}Th et l'élément primordial ^{40}K . La figure (3.3) montre le spectre pour le standard IAEA-447 avec des pics identifiés.

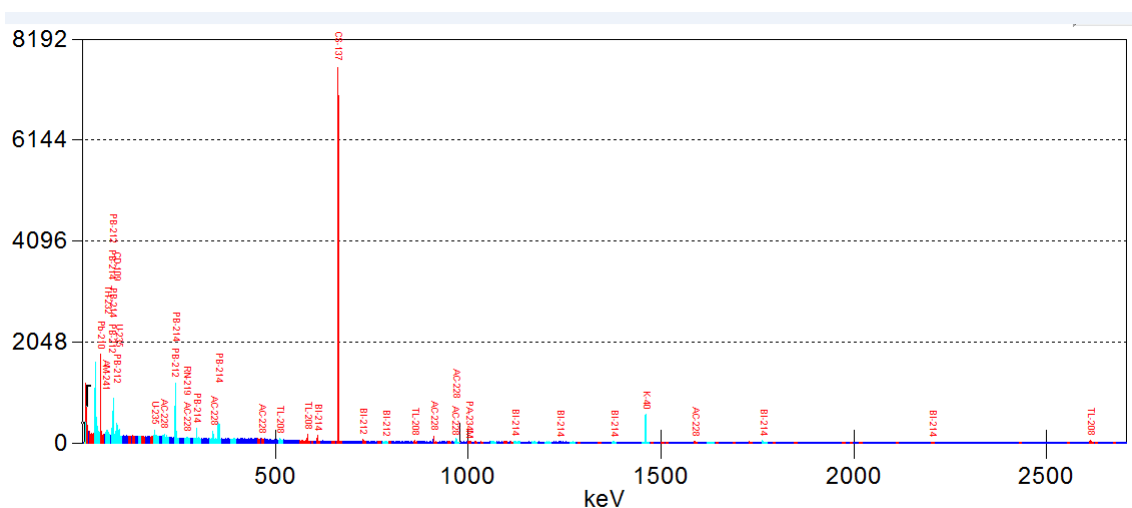


FIG. 3.3: Spectre γ pour IAEA-447 sur 8192 canaux.

3.7.1.3 Calcul d'efficacité

Pour calculer l'efficacité de détection du détecteur GeHP, on a utilisé la formule suivante :

$$\varepsilon = \frac{N_{net}}{A(Bq) \times I_{\gamma} \times t(s)} \quad (3.1)$$

avec :

A : l'activité initiale au moment de l'acquisition.

N_{net} : le nombre de coups sous l'aire du pic (la surface nette).

I_{γ} : la probabilité d'émission γ appelée également rapport d'embranchement.

t : le temps d'acquisition.

L'incertitude associée à l'efficacité est donnée par la formule suivante :

$$\frac{\Delta\varepsilon}{\varepsilon} = \frac{\Delta A}{A} + \frac{\Delta N}{N} + \frac{\Delta I}{I} + \frac{\Delta t}{t} \quad (3.2)$$

Le tableau (3.9) compare les efficacités expérimentales et simulées pour le standard IAEA-447, on tenant compte des pics les plus intenses des isotopes présents :

Radionucléide	Energie (keV)	Intensité (%)	ε_{exp}	ε_{sim}	Rapport ($\varepsilon_{exp}/\varepsilon_{sim}$)
^{210}Pb	46,54	4,25	0,422±0,006	0,457±0,001	0,90±0,01
^{241}Am	59,54	35,90	0,482±0,060	0,536±0,044	0,91±0,23
^{234}Th	63,28	4,80	0,492±0,040	0,539±0,068	0,91±0,22
	92,37	2,81	0,531±0,02	0,561±0,067	0,95±0,16
^{226}Ra	186,21	3,55	0,450±0,02	0,474±0,038	0,95±0,12
^{212}Pb	238,63	43,60	0,375±0,005	0,384±0,069	0,98±0,19
^{214}Pb	295,22	18,5	0,294±0,010	0,311±0,025	0,95±0,11
	351,93	35,6	0,253±0,008	0,263±0,021	0,96±0,11
^{208}Tl	583,19	85,00	0,144±0,007	0,149±0,025	0,97±0,22
^{214}Bi	609,31	45,49	0,077±0,007	0,142±0,011	0,54±0,17
	1120,29	14,90	0,039±0,010	0,071±0,005	0,55±0,32
^{137}Cs	661,66	84,99	0,125±0,001	0,130±0,004	0,96±0,04
^{228}Ac	911,20	25,80	0,095±0,004	0,093±0,012	1,02±0,17
^{40}K	1460,82	10,60	0,053±0,001	0,052±0,002	1,02±0,18
^{208}Tl	2614,51	99,75	0,026±0,001	0,027±0,004	1,09±0,05

TAB. 3.9: Efficacités expérimentales et simulées pour le standard IAEA-447.

Une courbe générale d'efficacité est obtenue par l'ajustement d'une expression polynomiale (par exemple) aux valeurs expérimentales obtenues au moyen des étalons. Un

certain nombre de fonctions analytiques décrivant la dépendance de l'efficacité du pic d'absorption totale en fonction de l'énergie a été proposé par plusieurs auteurs [72, 73]. L'ajustement utilisé dans notre cas est une fonction d'un polynôme d'ordre 4 réalisé sur les valeurs logarithmiques des efficacités, avec la forme suivante [74, 75] :

$$\ln \varepsilon = a_0 + a_1 \ln E + a_2 \ln E^2 + a_3 \ln E^3 + a_4 \ln E^4 \quad (3.3)$$

On a utilisé cet ordre parce qu'il est l'ordre adéquat qui regroupe les meilleurs paramètres statistiques tels que le facteur de confiance et le résidu, qui doit être le plus petit dans le sens de la méthode des moindres carrés.

La figure (3.3) montre les efficacités expérimentales et simulées en fonction de l'énergie, toutes deux ajustées sans les valeurs du ^{214}Bi .

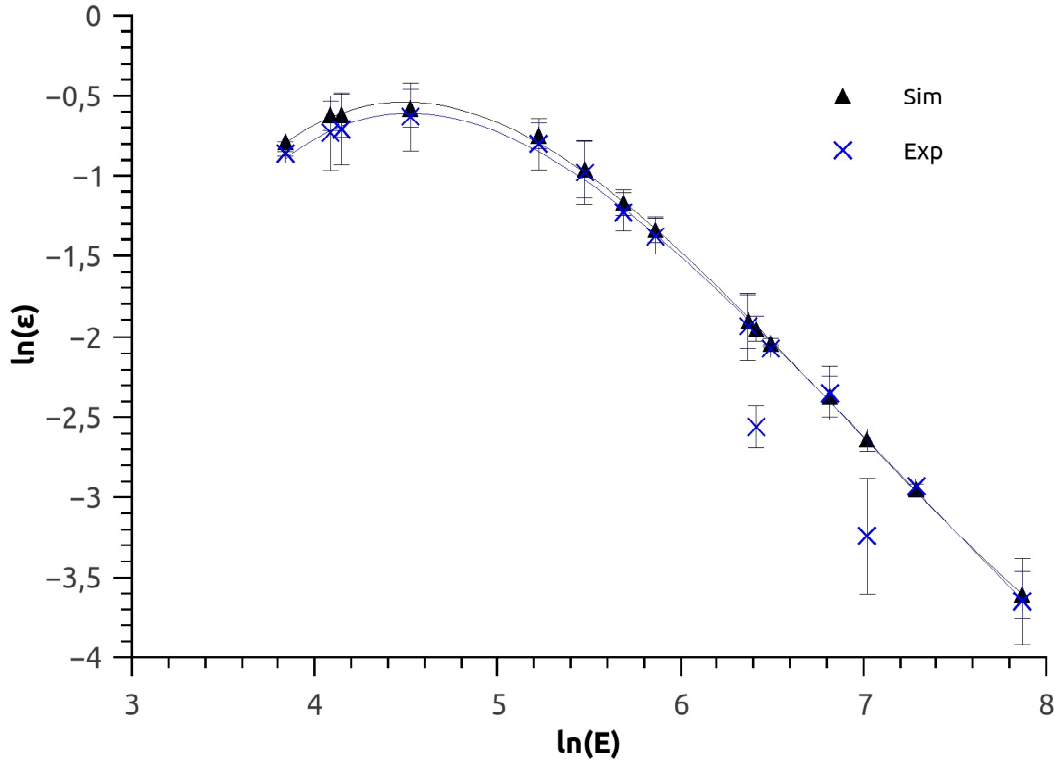


FIG. 3.4: Comparaison entre les efficacités expérimentales et simulées pour IAEA-447.

D'après le tableau (3.9) et la figure (3.3), nous pouvons voir 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. Un bon accord est trouvé,

à moins de 10% entre quasiment toutes les valeurs expérimentales et simulées, comme indiqué dans le tableau (3.9) et Fig.(3.3) : les valeurs des efficacités expérimentales et simulées sont très proches, à partir de la raie 92,37 keV du ^{234}Th avec un rapport de $(0,95 \pm 0,16)$. Dans la gamme à basse énergie où le phénomène d'auto-atténuation est influent, une correction dans ce cas doit être appliquée. Pour certaines raies avec un faible taux de comptage, les incertitudes sont importantes, en raison du comportement du logiciel d'analyse vers des pics à faible taux de comptage. Les différences les plus importantes sont constatées pour les deux raies du ^{214}Bi à 609,31 keV et 1120,29 keV, où seulement 54-55% des émissions γ ont été détectés. Dans ce cas, l'effet du pic-somme (TCS) diminue le nombre de comptage, en additionnant ces énergies avec d'autres émises en succession.

3.7.2 Effet de pic-somme

3.7.2.1 Généralités

Cet effet apparaît lorsque qu'un isotope émet des photons en cascade : Deux photons arrivent sur le détecteur et déposent leur énergie dans un temps court par rapport au temps de résolution du détecteur (ou de l'électronique associée). Un pic dont l'énergie est la somme des énergies de photons en cascade apparaît dans le spectre. Ce processus de sommation ne crée pas seulement un nouveau pic mais retire des événements aux deux pics considérés. Pour illustrer ce phénomène, prenons l'exemple du ^{60}Co dont le schéma des niveaux est présenté dans le premier chapitre. La désintégration β^- du ^{60}Co vers un état excité du ^{60}Ni est suivie par une émission en cascade de deux rayonnements γ_1 d'énergie 1173 keV et γ_2 d'énergie 1332 keV, avec des intensités voisinant 100 % pour les deux transitions. Les durées de vie des niveaux sont de l'ordre de la picoseconde. La détection des deux raies γ donne lieu à un des trois cas suivant :

- Deux pics séparées dans le spectre correspond aux énergie 1,17 MeV et 1,33 MeV du ^{60}Co ;
- l'absorption totale des deux γ simultanément donne un pic-somme à 2,50 MeV ;
- l'absorption totale d'un photon γ avec une absorption partielle d'un autre, un fond continu apparaît entre la raie à 1,33 MeV et le pic à 2,50 MeV.

Ce phénomène se traduit alors par deux sortes d'effet : une perte de comptage dans les pics d'absorption totale correspondants, et l'apparition d'impulsions supplémentaires

dans le fond continu et de pics « somme » d'énergie égale à la somme des énergies cédées au détecteur.

3.7.2.2 Effet des coïncidences sur un spectre γ

On va s'intéresser dans cette étude principalement aux coïncidences $\gamma\gamma$.

3.7.2.2.1 Problème à 2 niveaux

Prenons l'exemple d'un schéma de désintégration en cascade à 2 niveaux γ_{10} et γ_{21} . Pour une transition donnée, on prend les notations suivantes [76, 77] :

A : activité de la source (Bq).

i : niveau initial de la transition.

j : niveau final de la transition.

E_{ij} : énergie de la transition.

I_{ij} : probabilité de la transition (rapport d'embranchement).

I_i : somme des probabilités des transitions arrivant sur le (ou partant du) niveau i.

ε_{ij} : efficacité du pic d'absorption totale pour l'énergie E_{ij} .

ε_{ij}^T : efficacité totale pour l'énergie E_{ij} .

N_{ij} : nombre d'impulsions résultant de l'absorption totale pour E_{ij} .

N'_{ij} : nombre d'impulsions réellement enregistrées dans le pic d'absorption totale. Les trois possibilités d'absorption des deux photons γ citées auparavant se traduisent comme suit en remplaçant les variables dans l'équation (3.1) :

Le nombre d'impulsions enregistré dans le pic d'absorption totale de γ_{10} par unité de temps en l'absence du pic-somme est :

$$N_{10} = A \cdot I_{10} \cdot \varepsilon_{10} \quad (3.4)$$

Le nombre d'impulsions correspondant à l'énergie E_{21} s'obtient en suivant le même raisonnement. La détection simultanée de γ_{10} et γ_{21} totalement absorbés donne lieu à un pic de coïncidence γ_{20} . Le nombre de coups enregistré dans la surface du pic γ_{20} est supérieur au nombre réel correspond à un gain d'impulsions lié à l'absorption simultanée des photons en cascade :

$$N'_{20} = A \cdot I_{20} \cdot \varepsilon_{20} + A \cdot I_{10} \cdot \varepsilon_{10} \cdot I_{21} \cdot \varepsilon_{21} \quad (3.5)$$

Alors le facteur correctif pour la surface du pic peut être écrit comme le rapport N_{20}/N'_{20} :

$$C_{20} = \left(1 + \frac{I_{10}I_{21}}{I_1I_{20}} \frac{\varepsilon_{10}\varepsilon_{21}}{\varepsilon_{20}}\right)^{-1} \quad (3.6)$$

Dans la pratique, la possibilité de sommation entre la raie γ_{21} et la raie γ_{10} conduit à une perte d'impulsions dans le pic à l'énergie E_{10} . La somme entre deux émissions γ peut être présentée dans le pic de sommation par une absorption totale des deux photons (efficacité du pic d'absorption totale ε_{ij} ou dans le plateau Compton par absorption partielle de l'un des photons) qui nous conduit à parler de l'efficacité totale ε_{ij}^T (nombre de coups dans le spectre divisé par le nombre de photons émis par la source), afin de tenir compte de cette perte. Cette perte s'exprime par :

$$N'_{10} = A.I_{10}.\varepsilon_{10} - \underbrace{A.I_{10}.\varepsilon_{10}.\frac{I_{21}}{I_1}\varepsilon_{21}^T}_{\text{perte}} \quad (3.7)$$

avec I_1 dans ce cas la somme de I_{10} pour le photon qui part du niveau 1 et I_{21} de celui qui arrive au niveau 1.

Le rapport entre le nombre réel des impulsions et le nombre enregistré dans le pic donne le facteur de correction de l'effet de PS. Le facteur de correction permettant de retrouver la surface vraie du pic correspondant à l'énergie E_{10} s'écrit donc :

$$C_{10} = \left(1 - \frac{I_{21}}{I_1}.\varepsilon_{21}^T\right)^{-1} \quad (3.8)$$

La perte d'impulsions dans le pic à l'énergie E_{21} et le facteur de correction s'obtiennent par le même raisonnement.

La figure (3.5) montre l'effet de pic-somme à l'énergie 2502 keV (1332 keV + 1170 keV) pour l'exemple du ^{60}Co , réalisé à l'aide du code de simulation FLUKA avec une source sur le capot d'un détecteur à configuration planaire. Les différents cas d'absorption des photons γ sont bien illustrés sur la figure :

- absorption totale pour les deux énergie 1,33 MeV et 1,17 MeV, ce qui donne les deux raies à ces énergies dans le spectre ;
- absorption partielle de l'un de ces photons ou la somme des deux, donnant lieu à des enregistrements dans le fond Compton ;
- absorption simultanée des deux photons, donnant lieu à un pic-somme à l'énergie 2,50 MeV.

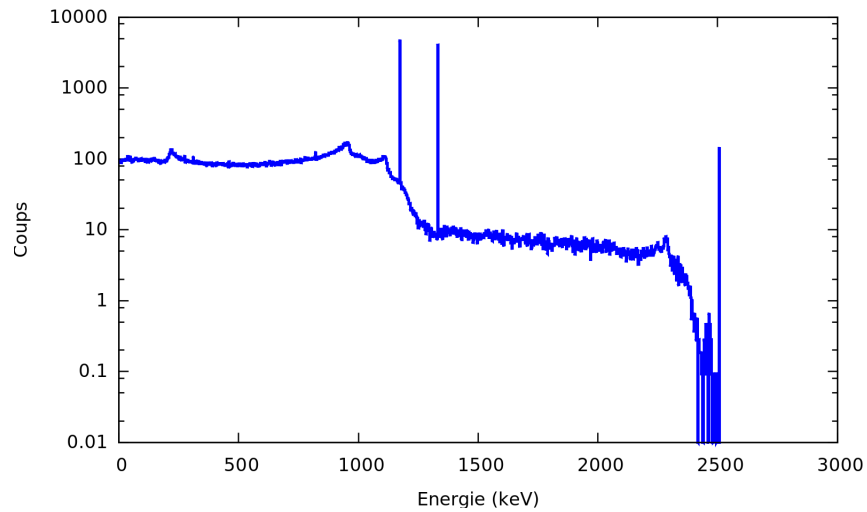


FIG. 3.5: TCS avec une distance de 0 cm entre la source et le capot du détecteur.

L'effet de pic-somme peut être réduit, en jouant sur la distance source-détecteur comme le montre la figure (3.6), où la source est placée à une distance de 5 cm du capot d'aluminium. On constate que l'intensité du pic-somme à l'énergie 2502 keV est réduite.

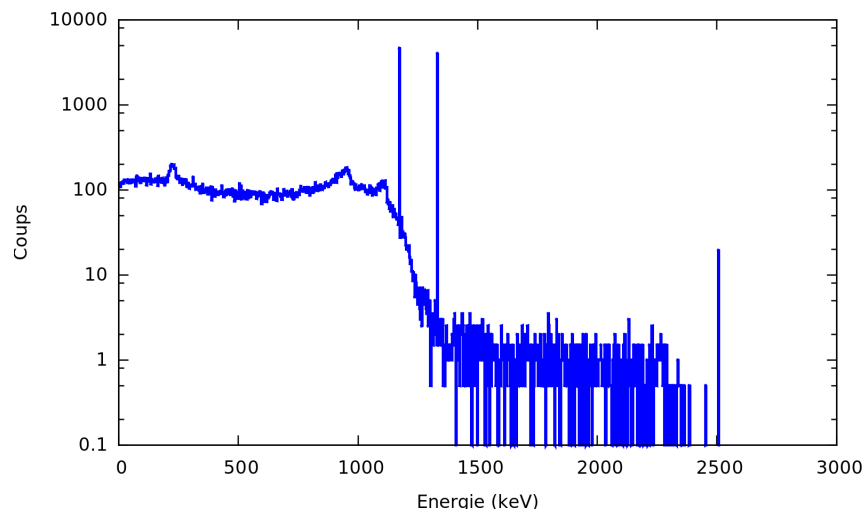


FIG. 3.6: TCS avec une distance de 5 cm entre la source et le capot du détecteur.

3.7.2.2.2 Généralisation du problème

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 [76, 77] :

$$C_{\gamma_{ij}}/\gamma = A.B.C \quad (3.9)$$

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 énergies est égale à E_{ij} .

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

$$A = \prod_{l=i}^{n-1} \left[\prod_{k=l+1}^n a_{kl}^{-1} \right] \quad (3.10)$$

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

$$B = \prod_{p=1}^j \left[\prod_{m=0}^{p-1} b_{pm}^{-1} \right] \quad (3.11)$$

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

$$C = \prod_{g=j+1}^{i-j} c_{gj}^{-1} \quad (3.12)$$

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

$$c_{gj} = 1 + \frac{I_{gj} \times I_{ig}}{I_{ij}} \times \frac{\varepsilon_{gj} \times \varepsilon_{ij}}{\varepsilon_{ij}} \quad (3.13)$$

La figure (3.7) illustre l'effet de pic-somme pour le ^{214}Bi qui possède plusieurs niveaux de désintégration (80 niveaux) avec un TCS à l'énergie 1167 keV (1120 keV + 36,8 keV) et un autre à 1181 keV (1120 keV + 61 keV) toujours réalisé par FLUKA, où la distance source-détecteur est de 0 cm. Ces pic-somme conduisent à des pertes de comptage pour les surfaces des pics d'absorption totale, comme le montre le cas du pic à 1120 keV. D'autre part, dans le cas du ^{214}Bi , des gains vont être enregistrés dans les pic-somme qui sont de par leur nature des pics d'absorption totale. C'est le cas du pic à 1167 keV, qui est à la fois un pic photoélectrique (PE) et un pic-somme entre le pic

PE à 1120 keV et le pic à 36,8 keV. Ce pic est surreprésenté car son intensité PE n'est que 0,012%.

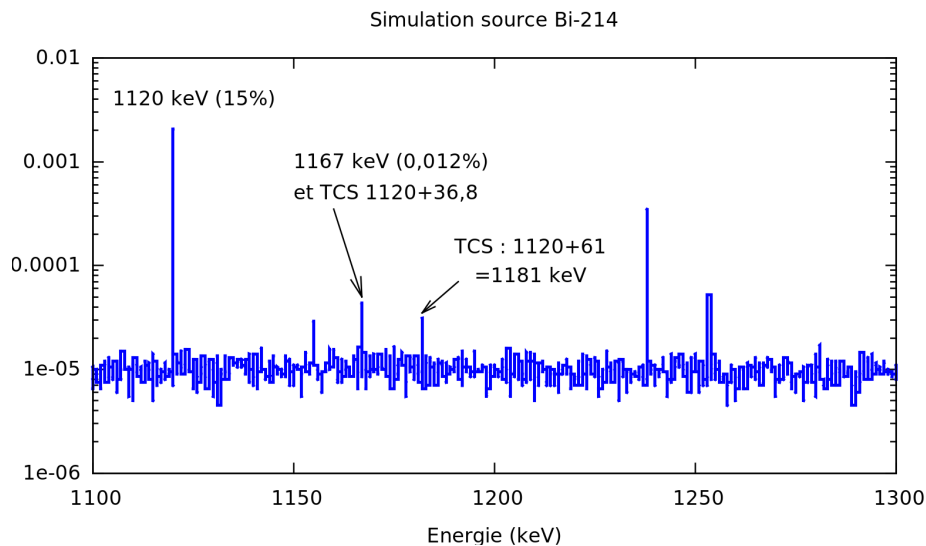


FIG. 3.7: Exemple de TCS avec une distance de 0 cm entre la source et le capot du détecteur.

L'effet de la distance source-détecteur est montré figure (3.8), toujours avec 5 cm entre le capot et la source sur les même TCS aux énergies 1167 keV et 1181 keV pour le ^{214}Bi . On remarque également que le TCS est très atténué dans le pic PE à 1167 keV.

Un autre cas représenté dans la figure (3.9) est un TCS dans la surface des pics à 1729 keV et 1764 keV du ^{214}Bi , ce qui montre un gain sur la surface réelle des pics.

3.7.3 Correction du pic-somme

Plusieurs méthodes ont été développées pour déterminer des facteurs correctifs de ce phénomène [54, 78–81]. On s'intéresse dans ce travail à la correction des raies γ du ^{214}Bi en vue d'utiliser son activité pour la détermination de celle du ^{226}Ra , nécessaire dans la méthode de datation des sédiments lacustres par le ^{210}Pb . On suppose que ^{226}Ra est en équilibre séculaire avec ses descendants, ce qui implique qu'ils ont la même activité. On compare l'activité du ^{214}Bi avec celle du ^{214}Pb , sachant que ce dernier est exempt de TCS à l'énergie 351,9 keV et légèrement affecté avec 1,9% à 295,38 keV [59]. Le tableau (3.10) regroupe les facteurs de correction de TCS calculés pour les raies les plus intenses du ^{214}Bi , ceci de trois différentes façons [54] :

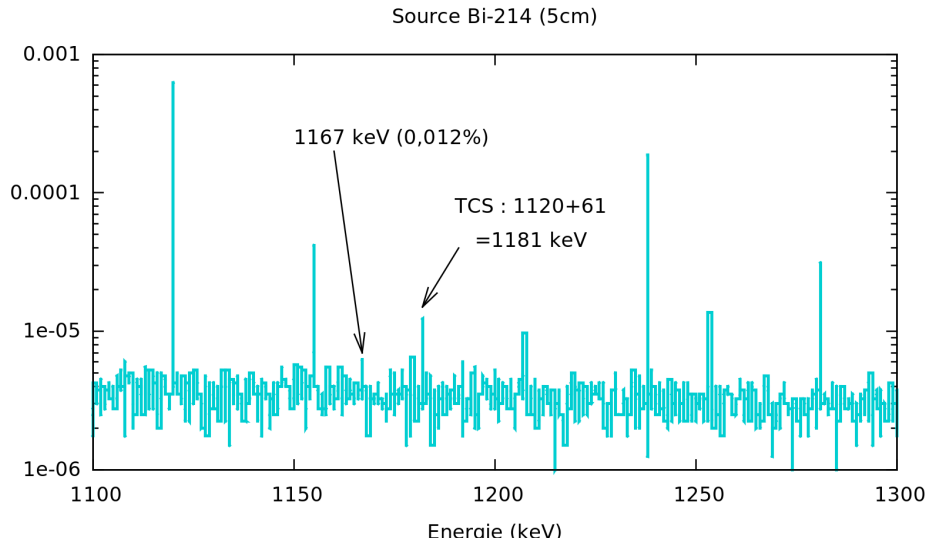


FIG. 3.8: Exemple de TCS pour avec une distance de 5 cm entre la source et le capot du détecteur.

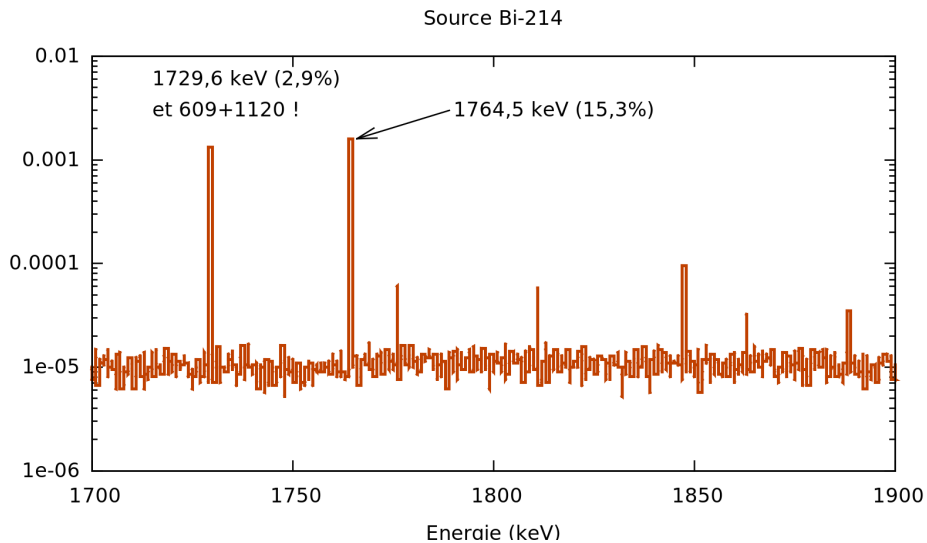


FIG. 3.9: Effet de TCS sur les surfaces des pics du ^{214}Bi .

- 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 (Génie2000) : 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 ($\varepsilon_{exp}/\varepsilon_{sim}$) : le rapport entre l'efficacité expérimentale et l'efficacité simulée

à partir des simulations Monte-Carlo avec le code MCNP6.

Energie (keV)	Intensité (%)	Activité (Bq/kg)	Correction de l'activité	facteurs TCS (Genie2000)	ratio ($\varepsilon_{exp}/\varepsilon_{sim}$)
609,31	45,49	12,72±0,02	0,53	0,58	0,53
1120,29	14,91	8,91±0,06	0,37	0,57	0,52
1238,1	5,83	13,05±0,11	0,55	0,56	0,55
1377,7	3,97	32,07±0,18	1,34	1,40	1,27
1729,5	2,84	75,07±0,27	3,14	3,07	2,78
1764,5	15,31	40,70±0,09	1,70	1,75	1,61
1847,42	2,11	69,94±0,29	2,93	2,15	1,76
2204,1	4,91	53,99±0,23	2,26	2,38	2,20

TAB. 3.10: Facteurs de correction du TCS pour le ^{214}Bi .

On peut observer une importante sous-estimation pour la raie 609,31 keV et 1120,29 keV, parce que ces deux raies sont les plus impliquées dans les sommations par coïncidence (TCS) avec les autres photons émis par ^{214}Bi , conduisant ainsi à une perte importante d'impulsions de ces pics. La différence entre le facteur de correction de l'activité obtenu à 1120,29 keV, le facteur de TCS (Génie2000) et le ratio ($\varepsilon_{exp}/\varepsilon_{sim}$) est due au taux de comptage faible dans cette raie et le comportement du logiciel Génie2000 avec les pics à faible taux de comptage. La figure (3.10) montre les valeurs d'efficacité après la correction du TCS pour ^{214}Bi à 609,31 keV et 1120,29 keV :

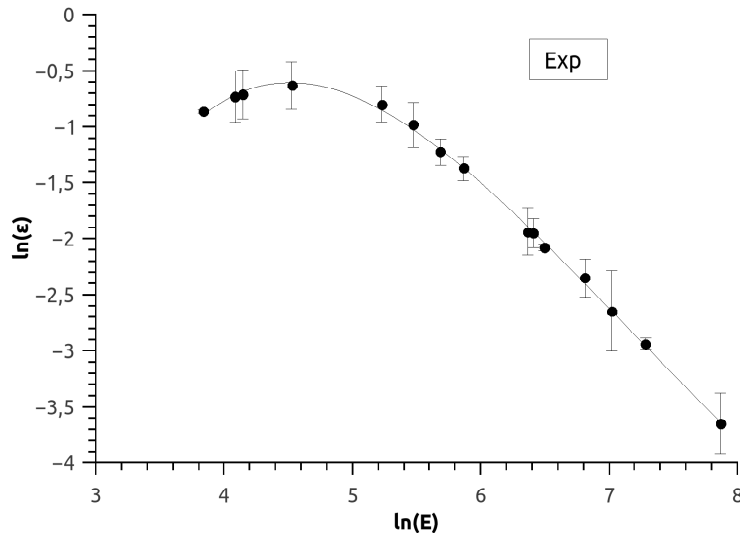


FIG. 3.10: Valeurs expérimentales d'efficacité pour IAEA-447 corrigées de TCS.

Les facteurs de correction déterminés par les trois méthodes sont en bon accord et sont proches de ceux obtenus dans la littérature pour la plupart des valeurs [59, 82]. Pour les deux raies à 1764,5 keV et 2204,1 keV, il existe des différences significatives par rapport aux valeurs de la littérature.

3.7.4 Effet de la densité sur TCS

Nous allons comparer dans cette partie les résultats d'efficacité obtenus par l'analyse de IAEA 447, IAEA-RG-U1 et IAEA-RG-Th1 avec les raies principales communes des descendants de ^{238}U et ^{232}Th . Les résultats sont indiqués dans le tableau (3.11), où les rapports d'efficacité entre deux standards sont indiqués dans la dernière colonne avec leurs incertitudes pour les raies de même énergie pour les trois matériaux de référence :

Radionucléide	Energie (keV)	$\varepsilon_{(IAEA-447)}$	$\varepsilon_{(RG-U1)}$	$\varepsilon_{(RG-Th1)}$	Rapport entre efficacités
^{210}Pb	46,54	$0,422\pm 0,006$	$0,403\pm 0,006$	—	$0,92\pm 0,01$
^{234}Th	63,28	$0,492\pm 0,040$	$0,485\pm 0,007$	—	$0,98\pm 0,10$
	92,37	$0,531\pm 0,020$	$0,518\pm 0,008$	—	$0,97\pm 0,05$
^{226}Ra	186,21	$0,450\pm 0,020$	$0,425\pm 0,006$	—	$0,94\pm 0,06$
^{212}Pb	238,63	$0,375\pm 0,005$	—	$0,369\pm 0,020$	$0,98\pm 0,07$
^{214}Pb	295,22	$0,294\pm 0,010$	$0,290\pm 0,004$	—	$0,98\pm 0,05$
	351,93	$0,253\pm 0,008$	$0,241\pm 0,003$	—	$0,95\pm 0,04$
^{208}Tl	583,19	$0,144\pm 0,007$	—	$0,103\pm 0,006$	$0,71\pm 0,10$
^{214}Bi	609,31	$0,077\pm 0,007$	$0,062\pm 0,001$	—	$0,80\pm 0,10$
	1120,29	$0,039\pm 0,01$	$0,003\pm 0,001$	—	$0,69\pm 0,27$
^{228}Ac	911,2	$0,095\pm 0,004$	—	$0,082\pm 0,005$	$0,86\pm 0,10$
^{208}Tl	2614,51	$0,026\pm 0,001$	—	$0,014\pm 0,001$	$0,54\pm 0,10$

TAB. 3.11: Comparaison entre les résultats de IAEA-447, IAEA-RG-U1 et IAEA-RG-Th1.

Les valeurs des efficacités pour les radionucléides présents dans l'IAEA-447 sont toujours supérieures à celles obtenues pour l'IAEA-RG-Th1 et de l'IAEA-RG-U1, parce que l'effet TCS augmente en fonction de l'activité, où les radionucléides IAEA-RG ont une activité plus élevée que celle de l'IAEA-447. Les résultats montrent une légère différence entre les raies communes des trois matériaux de référence, inférieure à 10% à basse énergie. Ceci est dû à la différence de densité entre les échantillons de l'IAEA, où les éléments lourds, tels que le thorium et l'uranium, sont présents dans IAEA-RG,

ce qui conduit à une densité plus élevée que celle de IAEA-447. Cet impact de densité est présenté pour toutes les énergies. La différence entre l'efficacité est faible pour la gamme d'énergie intermédiaire [83]. Pour des énergies plus élevées, principalement celles correspondantes au ^{208}Tl et ^{228}Ac , les différences sont plus grandes et varient entre 14% pour la raie à 911,2 keV du ^{228}Ac et atteignent 46% pour le ^{208}Tl à 2614,51 keV. Pour de telles matrices environnementales qui contiennent des éléments de Z élevé (par exemple le thorium, l'uranium, le plomb,...) en quantités importantes, le seuil à partir duquel les effets de matrice ont lieu est déplacé vers des énergies plus élevées [83].

3.8 Influence de la hauteur de l'échantillon sur FEPE

Nous avons en outre utilisé le code MCNP6 pour calculer l'efficacité pour le standard IAEA-447 en fonction de la hauteur de remplissage de l'échantillon. Les hauteurs des échantillons à étudier sont : 1, 1.5, 2, 2.8 et 3 cm [54]. Les résultats des efficacité obtenues pour chaque hauteur sont présentés dans la figure (3.11) :

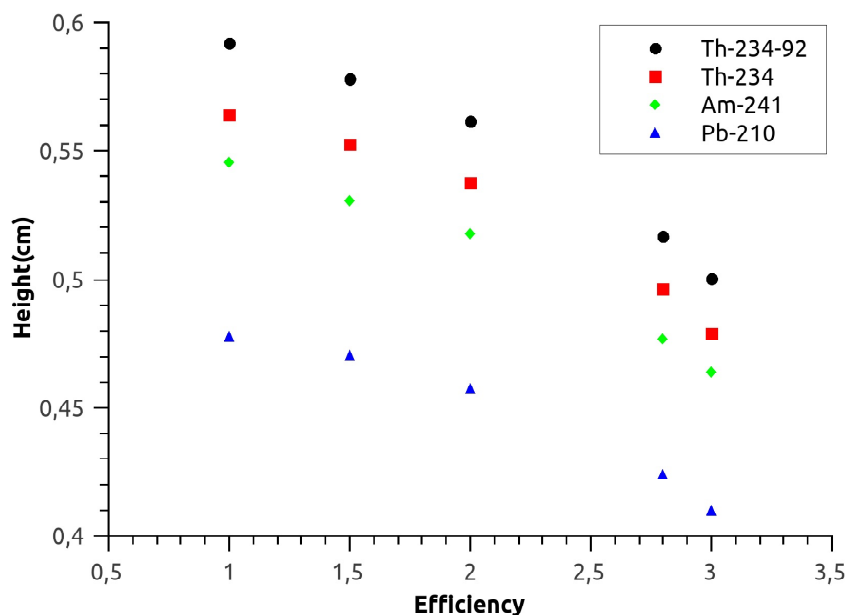


FIG. 3.11: Valeurs simulées d'efficacité FEPE pour plusieurs hauteurs d'IAEA-447.

L'impact de la hauteur d'échantillon sur l'efficacité est montrée sur la figure (3.12) pour les basses énergies (correspondant au ^{210}Pb , ^{241}Am et ^{234}Th) et pour les plus

hautes énergies (correspondant au ^{40}K et ^{208}Tl à 2614,51 keV).

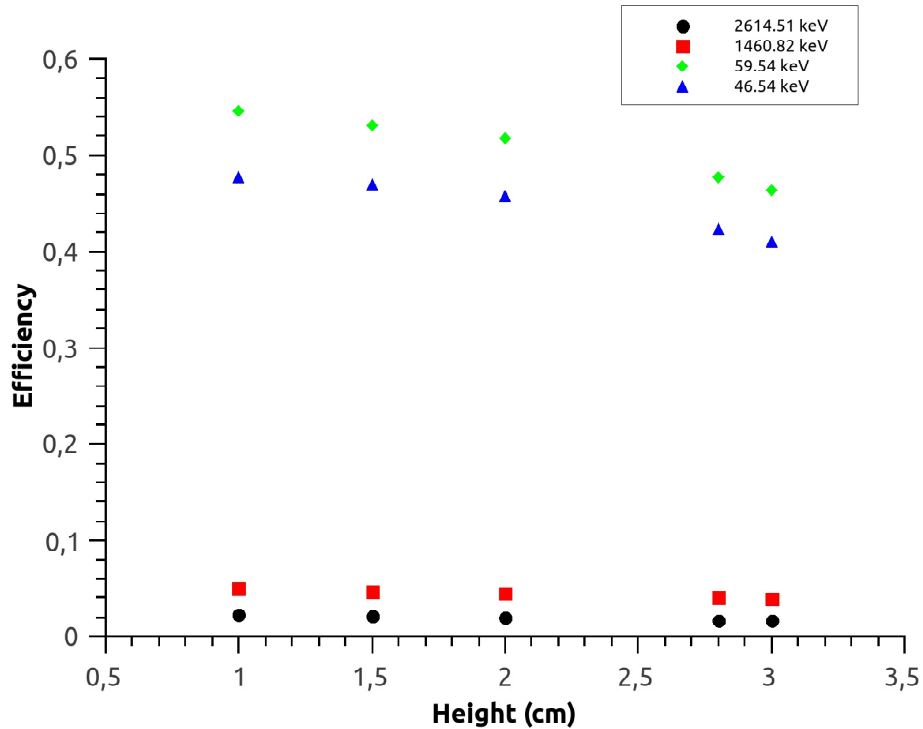


FIG. 3.12: Impact des hauteurs d'IAEA-447 sur l'efficacité FEPE.

Les résultats montrent que l'impact de la hauteur de remplissage de l'échantillon est très important dans la gamme à basse énergie par rapport à la gamme d'énergie élevée. L'efficacité diminue avec l'augmentation de la hauteur de remplissage de l'échantillon. Par conséquent, pour nos futures mesures, on doit prendre en compte la hauteur de l'échantillon à travers une FEPE spécifique en fonction de la hauteur de remplissage.

3.9 Conclusion

L'étalonnage en efficacité d'un détecteur GeHP de type puits a été réalisé en vue de ses applications aux mesures environnementales, en particulier pour déterminer les activités des retombées radioactives dans des sédiments lacustres utilisés dans les méthodes de datation, tels que le ^{210}Pb , ^{241}Am et le ^{137}Cs . Nous avons utilisé l'IAEA-447 (sol moussu), un matériau de référence en tant que standard afin de s'approcher au mieux des effets de la matrice dus à la composition chimique des échantillons. Un modèle de détecteur de puits a été mis en oeuvre à l'aide du code MCNP6. Les valeurs

simulées de l'efficacité sont supérieures à celles obtenues expérimentalement pour la plupart des énergies des radionucléides présents dans le standard. Ces résultats sont en bon accord et les écarts sont inférieurs à 10%. Cela nous permet de déterminer la courbe d'étalonnage de l'efficacité sans un travail expérimental, et peut être considéré comme un modèle de transfert d'efficacité, qui peut être utilisé dans d'autres études telles que l'auto-absorption dans les échantillons. Nous avons également calculé les facteurs de correction des pic-somme pour les raies émises dans la chaîne de désintégration complexe du ^{214}Bi de trois manières, qui ont montré un bon accord avec les valeurs de la littérature. Afin de montrer les effets de matrice tels que l'influence de la densité, nous avons comparé les résultats de l'efficacité (FEPE) obtenu par trois matériaux de référence : IAEA-447, IAEA-RG-Th1 et IAEA-RG-U1. Nous avons étudié l'impact de la hauteur de remplissage de l'échantillon. Il est remarquable pour les basses énergies, où l'efficacité diminue avec l'augmentation de la hauteur de remplissage. Une réduction de la hauteur de remplissage réduirait les effets de la matrice [56]. Enfin, la courbe d'efficacité peut être utilisée dans l'évaluation des activités pour les mesures environnementales, mais pour améliorer la précision, d'autres corrections doivent être effectuées telles que l'auto-absorption, les effets de la densité et de la hauteur de remplissage de l'échantillon.

Chapitre 4

Datation des sédiments lacustres

Sommaire

4.1	Introduction	82
4.2	Datation au ^{210}Pb	84
4.2.1	Modèle CFS (Constant Flux and sedimentation)	85
4.2.2	Modèle CRS (Constant Rate of Supply)	85
4.2.3	Modèle CIC (Constant Initial Concentration)	86
4.3	Datation au ^{137}Cs	86
4.4	Les sites étudiés	87
4.4.1	Lac de Longemer et Gérardmer	87
4.4.2	Lac du Brévent	89
4.5	L'échantillonnage	90
4.6	Analyse des échantillons	91
4.7	Étude Géochronologique	92
4.7.1	Le lac de Longemer	92
4.7.2	Le lac de Gérardmer	97
4.7.3	Le lac du Brévent	101
4.8	Conclusion	106

4.1 Introduction

Bien que l'accumulation de Pb anthropique ait été décelée et étudiée dans de nombreux milieux naturels [85, 86], les sédiments lacustres offrent potentiellement une

sédimentation continue et donc un enregistrement plus continu dans le temps. Ce travail étudie la possibilité de lier les retombées atmosphériques comme le ^{210}Pb et ^{137}Cs à l'échelle du temps avec l'accumulation sédimentaire dans les lacs. Les sédiments sont définis comme un dépôt de matériaux de nature variée d'origine minéralogique ou biologique [87]. Les particules minéralogiques proviennent de roches émergées qui sont érodées par des processus d'altération physique, chimique et biologique [88]. Les débris organiques constituent un composant ubiquiste des sédiments qui peut conduire à différentes couleurs des dépôts, noire ou gris foncée [88]. On étudie dans les environnements lacustres la colonne sédimentaire pour reconstituer l'historique des apports terrigènes et anthropiques. La chronologie est le plus souvent déterminée à l'aide du radio-isotope ^{210}Pb [89–91]. Afin d'appliquer cette méthode, on suppose que la colonne sédimentaire est conservée et on doit respecter certaines hypothèses des conditions de dépôt telles que la vitesse de sédimentation, le flux en ^{210}Pb et l'activité en surface. Comme seconde méthode, on mesure l'activité du ^{137}Cs qui présente l'avantage de fournir deux dates absolues (1963-1964 et 1986). Dans le cadre de cette étude, une datation par des retombées radioactives, reposant sur la méthode au ^{210}Pb et au ^{137}Cs a été effectuée sur des carottes de sédiments lacustres provenant de trois lacs en France : Gérardmer, Longemer et Brévent. Afin de déterminer les activités des radio-éléments étudiés, on a exploité le spectromètre à configuration Puits situé au LSM pour analyser les échantillons des sédiments lacustres et dont l'étalonnage a été déjà réalisé.

4.2 Datation au ^{210}Pb

Le ^{210}Pb est un élément radioactif naturel avec une demi-vie de 22,3 ans qui provient de la chaîne de désintégration de ^{238}U ($T_{1/2}=4.5\times 10^9$ ans). ^{238}U présent dans la croûte terrestre donne lieu au ^{226}Ra ($T_{1/2}=1620$ ans). Le ^{226}Ra se désintègre vers le ^{222}Rn ($T_{1/2}=3,8$ jours) sous forme d'un gaz inerte qui s'échappe en permanence vers l'atmosphère. L'émission de ^{222}Rn dépend de la nature du sol, de la couverture végétale, de la teneur des sols en ^{226}Ra . Dans l'atmosphère, le ^{222}Rn se désintègre en ^{210}Pb qui s'adsorbe sur des aérosols [92]. Le ^{210}Pb reste dans l'atmosphère de 1 à 10 jours [93], il atteint la surface terrestre sous forme de précipitations sèches et humides [94]. Cet apport atmosphérique va alors constituer un excès à la quantité de ^{210}Pb déjà présente dans le sédiment et dont l'activité radioactive est en équilibre avec les autres nucléides de la chaîne de désintégration. Cette quantité est produite par décroissance du ^{226}Ra contenu dans le sédiment. Depuis les travaux de Goldber (1963), l'utilisation du $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ (Plomb en excès) pour la datation des sédiments est maintenant une technique bien établie. Actuellement, il est largement utilisé dans d'autres domaines pour l'élaboration des modèles d'âge et notamment en milieu lacustre. La datation au ^{210}Pb est basée sur la détermination de l'activité du radio-isotope $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ qui n'est présent que dans les sédiments récents (dont l'âge est inférieur à 4 ou 5 fois sa période radioactive c'est-à-dire environ 100 ans). L'activité de ^{210}Pb total que l'on mesure dans le sédiment est la somme de l'activité du $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ et à l'activité du ^{210}Pb produit par la décroissance in situ du ^{226}Ra contenu dans le sédiment, appelé le ^{210}Pb supporté.

$$A_{\text{totale}} = A_{\text{supporté}} + A_{\text{excés}} \quad (4.1)$$

La décroissance de l'activité du $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ dans la colonne sédimentaire subit la loi de désintégration radioactive suivante :

$$A_{\text{excés}}(t) = A_{o(\text{excés})}e^{-\lambda t} \quad (4.2)$$

À partir de cette valeur de l'activité, on peut alors déduire l'âge du sédiment en question. Pour déterminer le taux de sédimentation et l'âge des sédiments, on peut distinguer trois modèles, en se basant sur l'équation (4.2).

4.2.1 Modèle CFS (Constant Flux and sedimentation)

Dans ce modèle, les facteurs gouvernant la sédimentation sont considérés constants, un flux constant de matériel et donc un flux de ^{210}Pb constant. Ce modèle a été proposé par Goldberg [95] et ensuite développé par Robbins [91], où le profil de ^{210}Pb est une droite continue en fonction de la profondeur dans l'échelle logarithmique. L'âge est déterminé à partir de la pente de la droite. La vitesse de sédimentation peut être exprimée par :

$$\omega(\text{cm.an}^{-1}) = \frac{x}{t} \quad (4.3)$$

avec x (en cm) la profondeur dans la colonne sédimentaire et t (en année), le temps écoulé depuis le dépôt.

4.2.2 Modèle CRS (Constant Rate of Supply)

Les apports de ^{210}Pb sont supposés être constants dans le temps pour ce modèle. Ainsi, la concentration de ^{210}Pb diminue avec l'augmentation des apports de matière et du taux de sédimentation. Ce modèle se base ainsi sur l'inventaire de toute la colonne sédimentaire. L'inventaire (en mBq.cm^{-2}) du $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ sous une tranche sédimentaire d'épaisseur x jusqu'au fond de la colonne sédimentaire est défini selon l'équation suivante :

$$A(x) = \int_0^\infty F e^{-\lambda t} dt = A(0) e^{-\lambda x} \quad (4.4)$$

où $A(0)$ est l'inventaire complet du $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ sur l'ensemble de la colonne sédimentaire exprimé en Bq.m^{-2} .

F est le flux constant du $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$. On peut alors déduire que :

$$A(0) = \frac{F}{\lambda} \quad (4.5)$$

L'âge de la couche x est donné par :

$$t = \frac{1}{\lambda} \ln \frac{A(0)}{A(x)} \quad (4.6)$$

où $A(x)$ est l'inventaire intégré à partir de la couche x jusqu'au fond de la colonne sédimentaire.

4.2.3 Modèle CIC (Constant Initial Concentration)

Dans plusieurs environnements, l'accumulation de matière varie dans le temps, naturellement ou par cause d'activités humaines qui favorisent ou diminuent l'apport de cette matière ; par conséquent, les profils du ^{210}Pb ne sont plus exponentiels en profondeur. Dans ce modèle, on suppose que les sédiments ont une concentration initiale de $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ constante dans chaque couche de la colonne [89, 91, 96]. On peut déterminer l'âge dans ce modèle par l'équation suivante :

$$A(x) = A(0)e^{-\lambda t} \quad (4.7)$$

où $A(0)$ en Bq.kg^{-1} est l'activité massique du $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ en surface et $A(x)$ l'activité du $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ dans l'horizon x .

Parmi ces 3 modèles, le modèle CRS appliqué à des sédiments de lacs par Appleby et Oldfield [97] est le plus adapté aux conditions environnementales auxquelles nous sommes confrontés.

4.3 Datation au ^{137}Cs

Le césium ^{137}Cs est un isotope radioactif artificiel de 30,17 ans de période. Il s'agit d'un produit de fission et introduit en grande quantité dans l'atmosphère. Les sources principales de cet isotope radioactif sont les essais de bombes nucléaires atmosphériques et les accidents nucléaires. La période de 1954 à 1962 est celle d'un maximum des émissions : environ $5,18 \times 10^{17}$ Bq de ^{137}Cs ont été diffusés dans l'atmosphère et répandus à l'échelle globale. Un autre maximum des émissions est le 26 avril 1986, date de l'accident de Tchernobyl qui a eu des conséquences plus régionales. 79 % de ces retombées ont touché l'Europe [98]. La représentation graphique de l'activité du ^{137}Cs en fonction de la profondeur présentent deux pics dont le plus important est généralement attribué à l'année 1963, date du maximum de rejets atmosphériques par les essais nucléaires et l'autre pour l'accident de Tchernobyl en 1986. Avec une période proche de celle du ^{210}Pb , ^{137}Cs permet de dater les séquences sédimentaires sur une même échelle temporelle [91]. En effet, l'utilisation conjointe de différents radioéléments tels que le ^{210}Pb et le ^{137}Cs permet de confirmer ou non les datations des séquences sédimentaires [99].

4.4 Les sites étudiés

Dans ce travail, trois sites en France ont été choisis : deux lacs proches (Gérardmer et Longemer) avec une distance d'environ 9 km entre eux et un autre plus éloigné qui est le lac du Brévent, dans les Alpes.

4.4.1 Lac de Longemer et Gérardmer

Au cours du Quaternaire, le massif vosgien a connu des glaciations successives, mais c'est pendant la dernière phase, celle de la glaciation de Würm (80000 à 10000 ans av. J.-C. environ) que sont nés les trois lacs [100] :

- le premier, le lac de Retournemer est un lac de cirque glaciaire ;
- le deuxième, le lac de Longemer, occupe un bassin dans l'ancien lit d'alluvions fluvio-glaciaires laissées par le glacier ;
- le troisième, le lac de Gérardmer est retenu par une moraine terminale bloquant définitivement la vallée vers l'aval.

Dans ce travail, nous avons choisi les deux derniers sites pour effectuer notre étude.

4.4.1.1 Lac de Longemer

Le lac de Longemer est l'un des hauts lieux du tourisme vert dans le département des Vosges, sur la commune de Xonrupt. Le lac de Longemer est un lac de barrage morainique, donc formé par des amas rocheux à la fois fins et grossiers d'origine glaciaire, traversé par la Vologne. Il a une surface plus de 76 ha dans le sens de la vallée. Ses dimensions maximales sont de 1950 m de longueur sur 550 m de largeur. Sa profondeur dépasse 30 mètres. Il se situe aux coordonnées 48° 04 Nord et 6° 57 Est, à une altitude de 736 m.



FIG. 4.1: Lac de Longemer.

4.4.1.2 Lac de Gérardmer

Le lac de Gérardmer se situe sur la commune de Gérardmer. Il se déverse dans la Vologne par l'intermédiaire d'un court émissaire, la Jamagne. C'est un des lacs européens qui ont fait l'objet d'immersion d'armes et de munitions susceptibles de relarguer des produits toxiques. Les autres lacs les plus touchés semblent être les lacs suisses, mais dont les munitions sont plus récentes et donc moins corrodées. Selon l'office de tourisme et sous réserve de changements de réglementation ou d'interdictions locales, la baignade est autorisée, en respectant certaines conditions, et la pêche est autorisée dans le domaine piscicole de la Vallée des Lacs, avec carte journalière ou permis vacances. Au sud du lac, une station de pompage prélève de l'eau pour alimenter le réseau d'eau potable.



FIG. 4.2: Lac de Gérardmer.

4.4.1.3 Caractéristiques du lac

Le lac de Gérardmer a une forme elliptique étirée et orientée est-ouest. Le tour du lac avoisine 5500 mètres. On peut citer quelques caractéristiques de ce lac comme suit [101] :

- longitude : $06^{\circ} 93'$ E - Latitude : $48^{\circ} 04'$ N ;
- altitude : 660 m ;
- surface : 115,5 ha ;
- longueur maximale : 2020 m ;
- largeur maximale : 750 m ;
- profondeur maximale : 38,40 m (entre Kattendycke et Croix Meyon) ;

– volume : 19510000 m³.

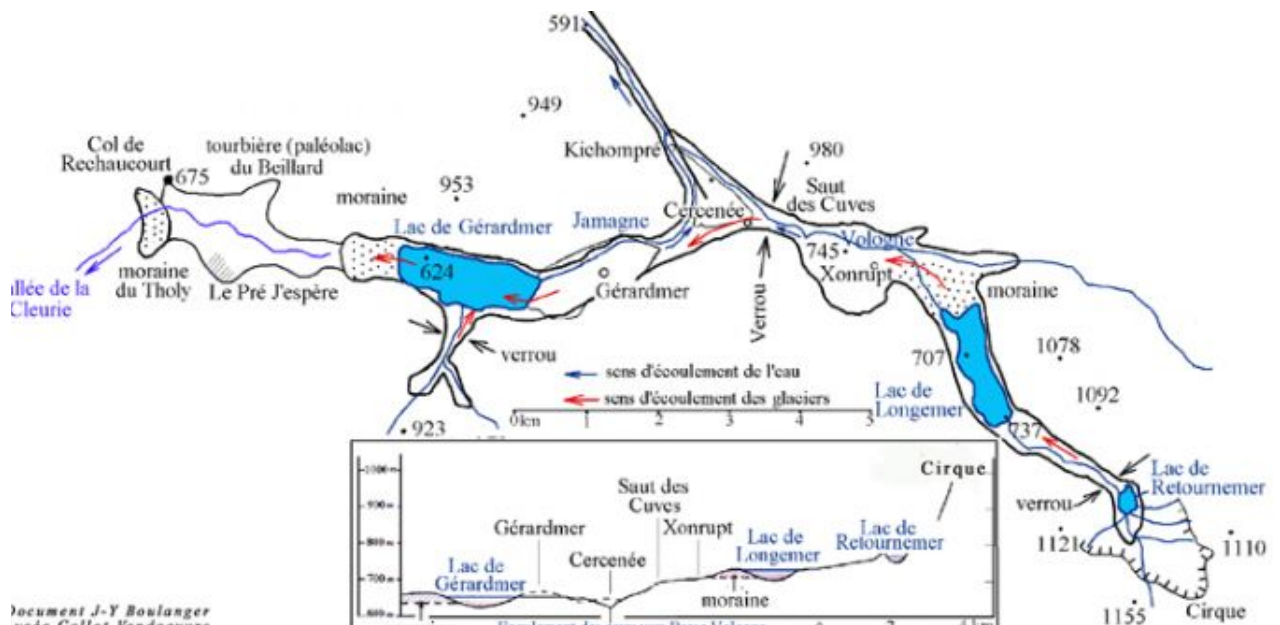


FIG. 4.3: Localisation du lac de Longemer par rapport au lac de Gérardmer.

4.4.2 Lac du Brévent

Le lac du Brévent est un lac de France situé dans les Alpes, en Haute-Savoie, sur la commune de Chamonix. D'origine glaciaire, il se trouve à 2 125 mètres d'altitude, au pied du Brévent. Le lac a une surface de plus de 2,41 ha et un volume de 230000 m³. Ses dimensions maximales sont de 230 m de longueur sur 150 m de largeur. Sa profondeur dépasse 20 mètres. Le lac se situe à 45° 55 Nord et 6° 49 Est [102].



FIG. 4.4: Lac du Brévent.



FIG. 4.5: Vue aérienne du lac de Brévent.

4.5 L'échantillonnage

L'échantillonnage des sédiments lacustres s'est fait par un carottage afin de pouvoir reconstruire l'histoire des sites étudiés. Le carottier utilisé permet de récupérer une carotte sédimentaire d'une longueur de 2 m en moyenne (1 m dans notre cas) et d'un diamètre de 8,5 cm dans un tube en PVC transparent. Ce type de carottier fonctionne à l'aide d'un piston afin de ne pas perdre de sédiment. Les carottes sont ensuite fermées par des bouchons aux deux cotés et des abréviations telles que le nom du lac et la date de prélèvement sont marquées afin de pouvoir différencier les échantillons.



FIG. 4.6: Carotte sédimentaire.



FIG. 4.7: Carottes sédimentaires caractérisées par des abréviations.

Les carottes sont découpées longitudinalement en deux parties. Ensuite, un découpage en tranches de 1 cm d'épaisseur, de la surface de la carotte jusqu' à 10 cm de profondeur, a été effectué en laboratoire. Ces échantillons sont congelés avant de les sécher et broyer pour obtenir une poudre fine et homogène.



FIG. 4.8: Découpage des carottes sédimentaires en laboratoire.

4.6 Analyse des échantillons

Les échantillons à analyser sont mis dans des tubes en polyéthylène d'une hauteur de 28 mm bien scellés et stockés pendant 21 jours pour obtenir l'équilibre séculaire entre les descendants du ^{226}Ra . Le comptage a été effectué au laboratoire souterrain à Modane au moyen du détecteur HPGe à configuration Puits spécifique aux faibles énergies et des mesures à bas bruit de fond. Le comptage est effectué pour des périodes relativement longues, quelques jours pour chaque échantillon.

4.7 Étude Géochronologique

4.7.1 Le lac de Longemer

4.7.1.1 Distribution du $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$

Les activités sont déterminées à l'aide du logiciel d'analyse des spectres Génie2000 par réalisation des séquences, en se basant toujours sur la courbe d'efficacité du détecteur Puits déterminée dans le chapitre 3. Dans cette partie, l'activité du ^{226}Ra est évaluée à partir de celle du ^{214}Pb pour les deux énergies 295,22 keV et 351,93 keV, lesquelles ne sont pas affectées par le phénomène de pic-somme. Le modèle CRS est utilisé pour déterminer l'âge correspondant à chaque profondeur de la colonne sédimentaire, ainsi que le taux de sédimentation. La figure (4.9) montre le profil du $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ en fonction de la profondeur, où ce profil est la base de la détermination des inventaires sédimentaires.

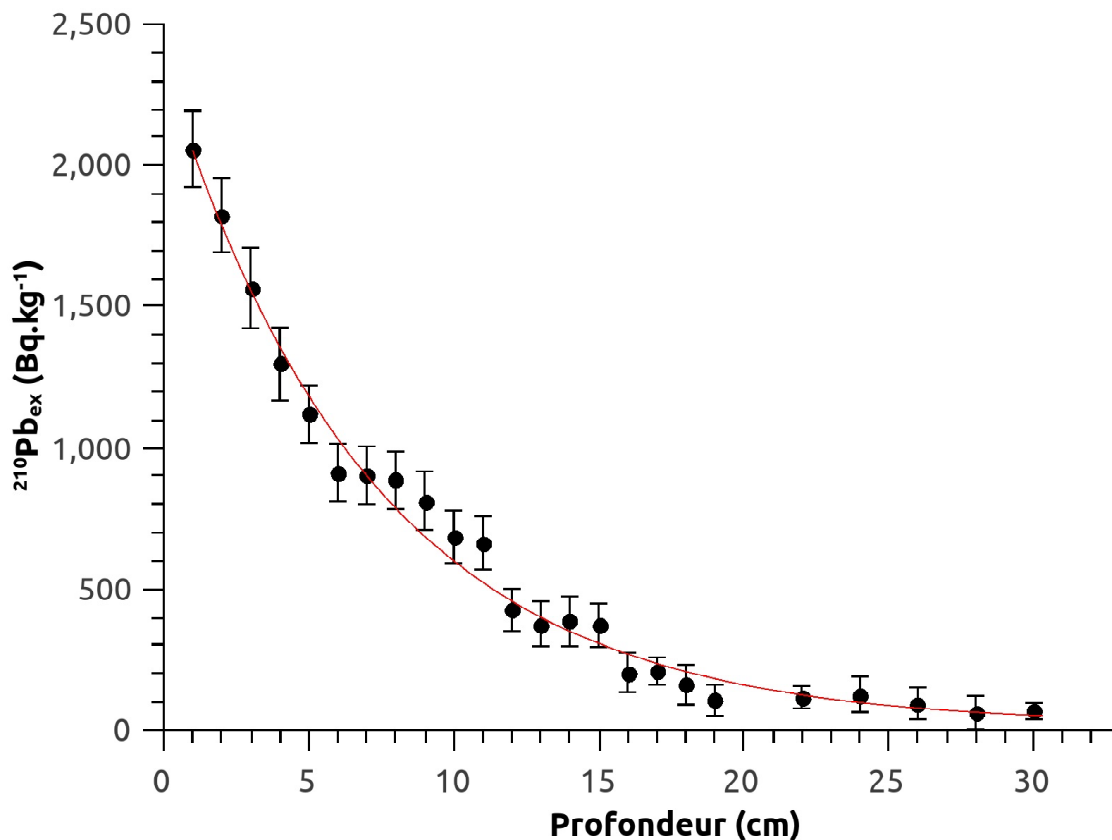


FIG. 4.9: Activités massiques du $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ dans la carotte du lac Longemer.

Les profils du $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ en fonction de la profondeur sont classiques avec des activités massiques plus importantes en surface ($2057,998 \text{ Bq.kg}^{-1}$ à $1823,908 \text{ Bq.kg}^{-1}$). Ensuite une diminution progressive en fonction de la profondeur jusqu'à que l'activité massique devienne négligeable avec des valeurs inférieures à 100 Bq.kg^{-1} . Le profil peut être ajusté comme une décroissance exponentielle au premier ordre.

La représentation en échelle logarithmique des activités massiques du $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ montre que le profil peut être ajusté par une fonction linéaire, comme il est indiqué dans la figure (4.10). La vitesse de sédimentation apparente V_{sed} est estimée à partir de la droite de régression $\ln^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ en fonction de la profondeur.

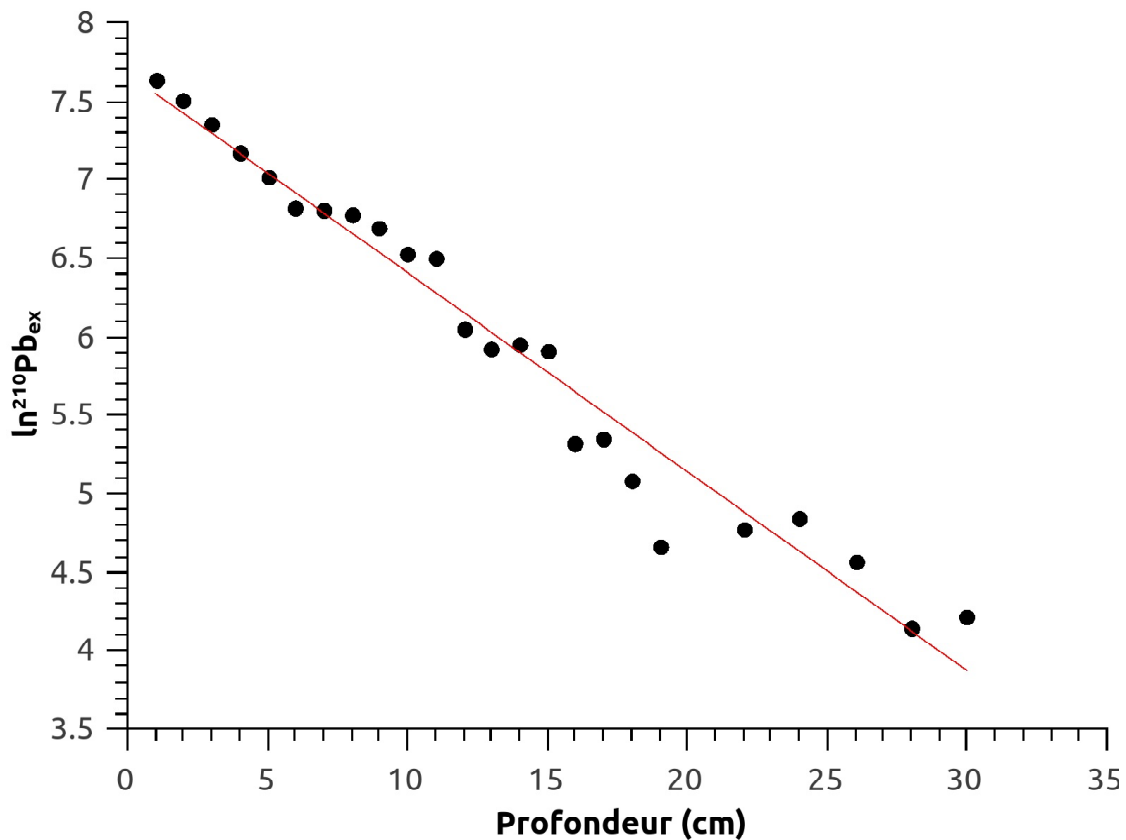


FIG. 4.10: Profil du $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ de la carotte du lac Longemer.

On constate pour les profondeurs au-delà de 19 cm que les valeurs s'éloignent plus de la droite moyenne. Les âges obtenus jusqu'à cette profondeur peuvent couvrir l'intervalle du temps à chercher (100 ans).

Les valeurs des activités massiques du $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ sont plus grandes que celles du ^{226}Ra ou $^{210}\text{Pb}_{\text{supp}}$.

CHAPITRE 4. DATATION DES SÉDIMENTS LACUSTRES

Les résultats des activités massiques (en Bq.kg^{-1}) du $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ en fonction de la profondeur donnés par l'équation (4.1) sont présentés dans le tableau (4.1), en utilisant toujours le modèle CRS.

Profondeur (cm)	activité du ^{226}Ra	activité du $^{210}\text{Pb}_{\text{total}}$	activité du $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$
1	105,29	2163,28	2057,99±134,79
2	160,46	1984,37	1823,91±130,06
3	176,71	1743,33	1566,62±141,87
4	170,54	1467,46	1296,92±128,69
5	180,10	1300,45	1120,35±101,74
6	157,81	1070,62	912,81±101,40
7	172,48	1075,35	902,91±102,68
8	165,61	1050,64	885,03±102,04
9	139,96	952,91	812,95±102,15
10	139,93	824,29	684,36±93,23
11	134,99	799,23	664,24±94,05
12	106,86	534,48	427,62±75,13
13	151,88	528,57	376,69±79,81
14	136,84	522,57	385,73±87,60
15	137,06	508,62	371,56±77,10
16	143,59	348,76	205,17±70,54
17	141,31	351,56	210,25±46,92
18	122,41	284,98	162,57±70,79
19	114,91	220,89	105,98±56,60
22	104,38	222,22	117,84±39,68
24	96,36	224,32	127,96±63,38
26	108,48	204,88	96,40±57,56
28	89,27	152,72	63,45±59,56
30	77,60	145,76	68,16±29,93

TAB. 4.1: Inventaires du $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ dans le lac de Longemer.

La chronologie ainsi que les taux de sédimentation du lac de Longemer sont regroupés dans le tableau (4.2) en fonction de la profondeur dans la colonne sédimentaire, dont le sommet de la carotte correspond à la date de prélèvement en 2013.

Le taux de sédimentation est calculé par l'équation suivante :

$$r = \lambda \frac{A(0)}{A(x)} \quad (4.8)$$

Profondeur (cm)	chronologie		taux de sédimentation (cm.an ⁻¹)
	Date (DM)	Âge (an)	
1	2013	0	0,23
2	2008	5	0,23
3	2003	10	0,23
4	1999	14	0,24
5	1994	19	0,24
6	1990	23	0,26
7	1986	27	0,23
8	1981	32	0,20
9	1976	37	0,19
10	1970	43	0,18
11	1964	49	0,16
12	1957	56	0,20
13	1951	62	0,19
14	1946	67	0,15
15	1938	73	0,13
16	1929	82	0,17
17	1923	88	0,14
18	1915	96	0,14
19	1907	104	0,17
22	1901	110	0,12
24	1891	120	0,09
26	1877	134	0,07
28	1859	152	0,06
30	1838	173	0,03

TAB. 4.2: Chronologie de la colonne sédimentaire du lac de Longemer.

4.7.1.2 Profil du ^{137}Cs

Les profils du ^{137}Cs sont utiles pour la validation des datations effectuées par le ^{210}Pb , en comparant les résultats obtenus par les deux méthodes de datation. L'analyse du ^{137}Cs a été réalisée simultanément avec le ^{210}Pb par spectrométrie γ . Le profil de la distribution de cet isotope est représenté dans la figure (4.11). Ce profil montre des horizons qui marquent l'historique de la contamination des sédiments par le ^{137}Cs .

La distribution présente deux pics dont le premier est important avec des activités

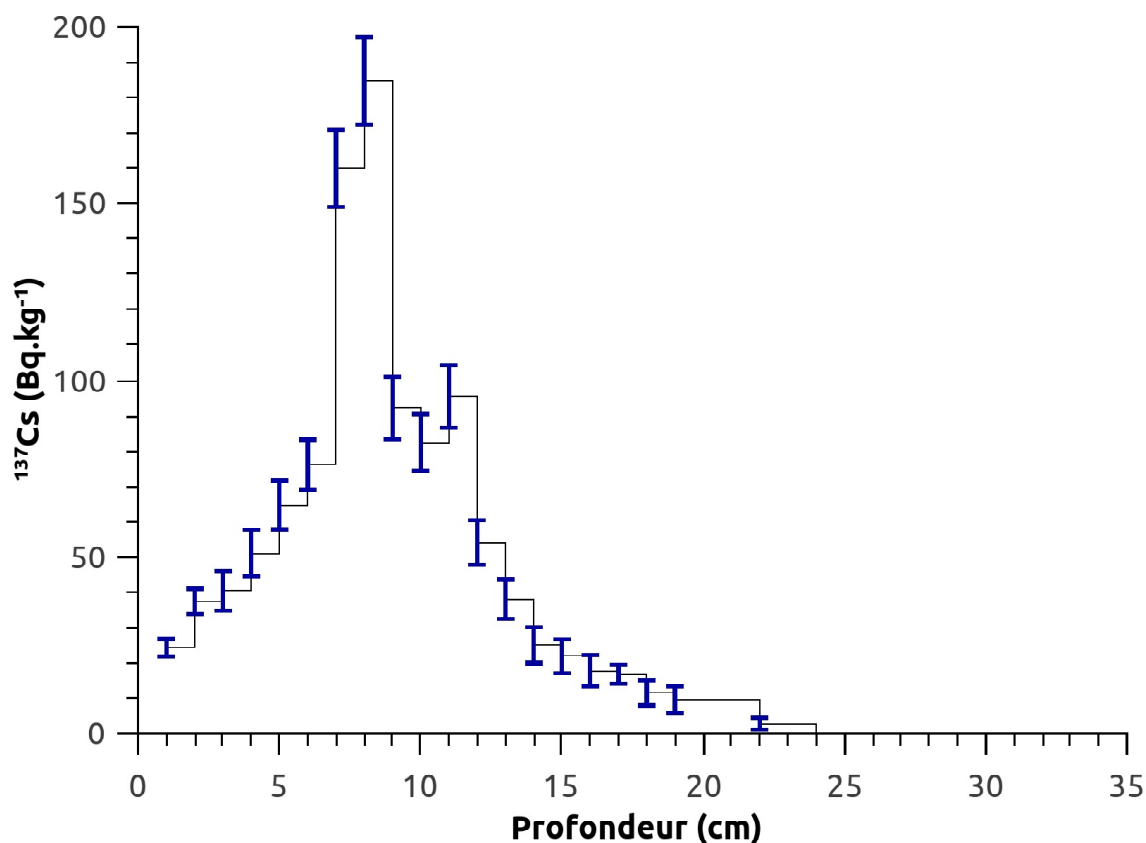


FIG. 4.11: Profil du ^{137}Cs dans le lac du Longemer.

massiques allant de 160,09 jusqu'à 184,79 Bq.kg^{-1} entre 7 à 8 cm de profondeur, qui peut être associé à la période de 1986. Le deuxième est plus faible, d'une activité massique de 95,54 Bq.kg^{-1} , qui peut être associé à la période de 1963. Les résultats obtenus par les deux techniques montrent un bon accord, en comparant les profondeurs correspondantes à ces dates dans les deux cas.

4.7.2 Le lac de Gérardmer

4.7.2.1 Distribution du $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$

Le profil $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ est présenté dans les figures (4.12) et (4.13) qui montrent la distribution du $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ en fonction de la profondeur dans la carotte sédimentaire du lac de Gérardmer.

La figure (4.12) montre que le profil du $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ peut être représenté avec un ajustement d'une fonction de décroissance exponentielle. La représentation en échelle logarithmique des activités massiques du $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ en fonction de la profondeur dans la colonne sédimentaire est l'ajustement par une droite.

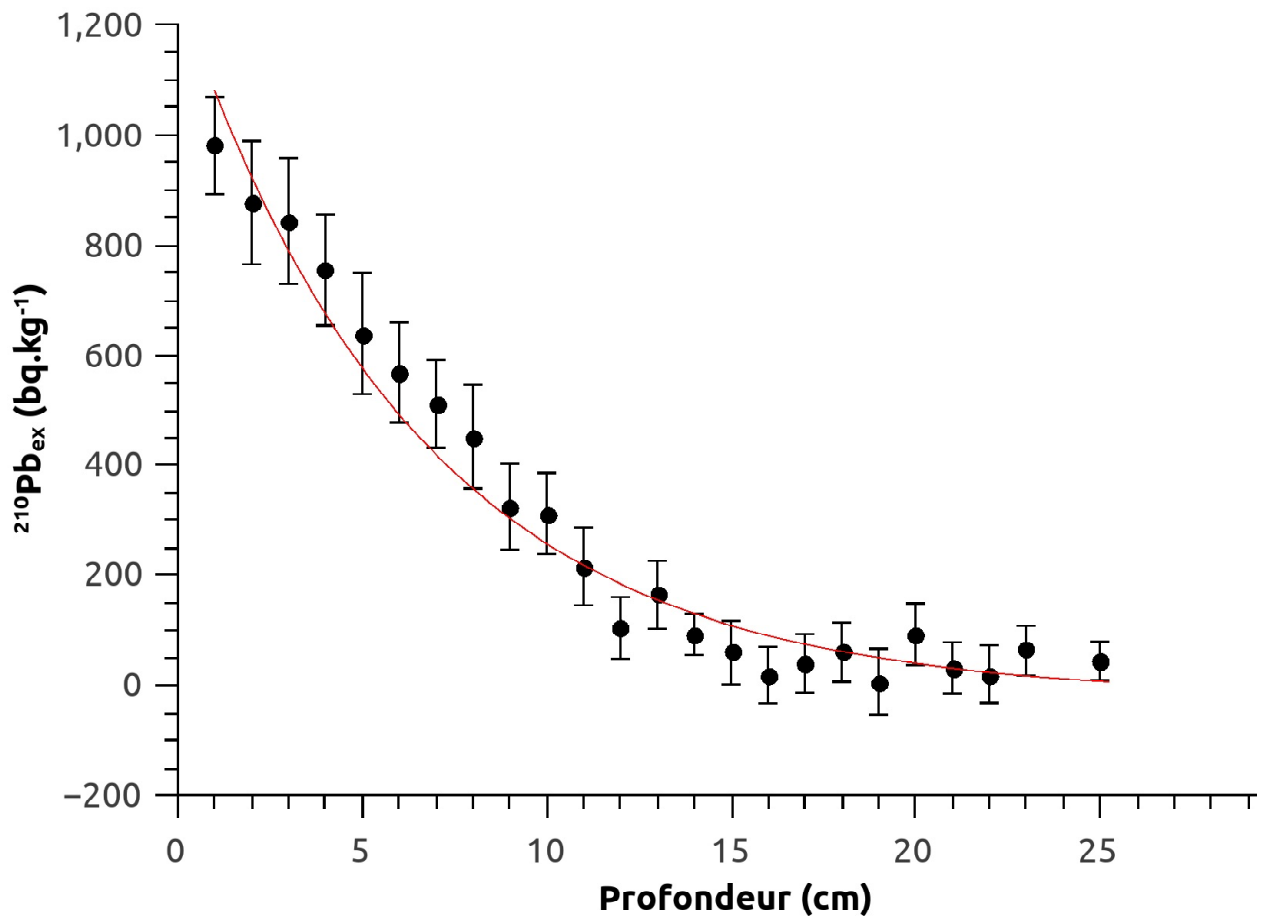


FIG. 4.12: Profil du $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ dans le lac de Gérardmer.

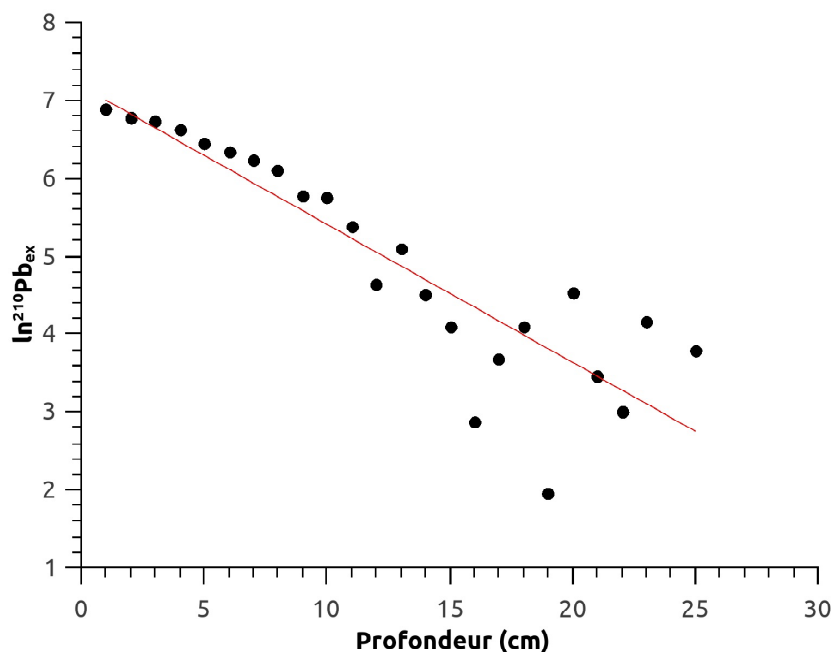


FIG. 4.13: Profil du $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ dans le lac de Gérardmer.

Les résultats des activités massiques (en $\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$) du $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ en fonction de la profondeur sont regroupés dans le tableau suivant :

Profondeur (cm)	activité du ^{226}Ra	activité du $^{210}\text{Pb}_{\text{total}}$	activité du $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$
1	172,61	1153,11	$980,50 \pm 88,36$
2	185,73	1062,53	$876,80 \pm 112,06$
3	174,88	1017,86	$842,98 \pm 114,35$
4	166,78	921,36	$754,58 \pm 100,66$
5	183,97	823,02	$639,05 \pm 110,19$
6	154,48	722,75	$568,27 \pm 90,13$
7	146,24	657,03	$510,79 \pm 79,85$
8	145,45	597,00	$451,55 \pm 94,9$
9	134,36	459,58	$325,22 \pm 77,93$
10	124,03	436,44	$312,14 \pm 73,79$
11	131,68	347,12	$215,44 \pm 70,44$
12	119,44	223,60	$104,16 \pm 56,09$
13	123,33	287,95	$164,62 \pm 61,06$
14	110,39	202,26	$91,87 \pm 37,37$
15	107,82	167,49	$59,67 \pm 57,75$

16	105,88	123,60	17,72±51,53
17	96,74	136,46	39,72±53,92
18	102,43	163,03	60,60±54,16
19	91,65	98,68	7,03±59,41
20	98,14	190,65	92,51±56,24
21	78,14	109,82	31,68±46,6
22	85,83	106,04	20,21±52,96
23	66,87	130,74	63,87±45,57
25	65,50	110,03	44,53±34,61

TAB. 4.3: Inventaires du $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ dans le lac de Gérardmer.

La chronologie et les taux de sédimentation du lac de Gérardmer sont montrés dans le tableau (4.4) en fonction de la profondeur dont le dessus de la carotte correspond à la date de prélèvement en 2013 :

Profondeur (cm)	chronologie		taux de sédimentation (cm.an ⁻¹)
	Date (DM)	Âge (an)	
1	2013	0	0,23
2	2008	5	0,22
3	2003	10	0,20
4	1998	15	0,19
5	1992	21	0,19
6	1986	27	0,17
7	1980	33	0,16
8	1973	40	0,14
9	1965	48	0,16
10	1958	55	0,13
11	1949	64	0,15
12	1942	71	0,24
13	1937	76	0,13
14	1928	85	0,18
15	1922	91	0,23
16	1918	95	0,66
17	1916	97	0,28

18	1912	101	0,16
19	1906	107	1,15
20	1905	108	0,08
21	1890	123	0,16
22	1883	130	0,20
23	1877	136	0,05
25	1849	164	0,03

TAB. 4.4: Chronologie de la colonne sédimentaire du lac de Gérardmer.

4.7.2.2 Profil du ^{137}Cs

La distribution présente deux pics dont le premier est important avec des activités massiques allant de 161,11 jusqu'à 159,02 Bq.kg^{-1} vers 3 à 7 cm de profondeur que l'on peut associer à la période de 1986. Le deuxième est tout petit, d'une activité massique maximale de 131 Bq.kg^{-1} à 8 cm jusqu'à une valeur minimale de 49,59 Bq.kg^{-1} , correspondant à la profondeur qu'on associe à la période de 1963.

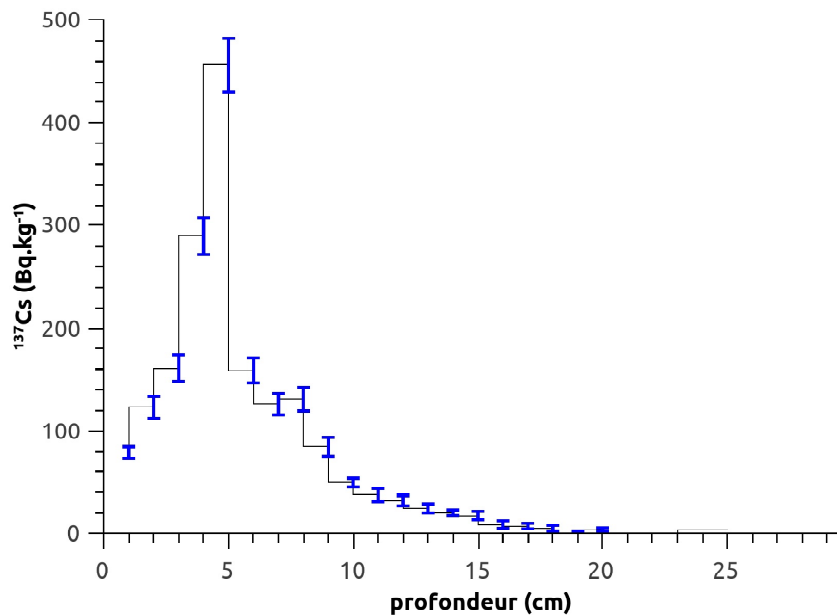


FIG. 4.14: Profil du ^{137}Cs dans le lac de Gérardmer.

Les résultats obtenus par les deux techniques montrent un bon accord, dont les dates estimées sont presque à la même profondeur. Les résultats des dates et des taux

de sédimentation pour les deux lacs montrent un accord avec des carottes prélevées dans la même année 2013, ainsi que les taux de sédimentation. Des différences importantes apparaissent dans les couches à 19 cm, d'une valeur de $1,15 \text{ cm.an}^{-1}$ et à 16 cm d'une valeur de $0,66 \text{ cm.an}^{-1}$. On peut conclure que ces résultats sont attendus en raison de la localisation des deux lacs dans la même région.

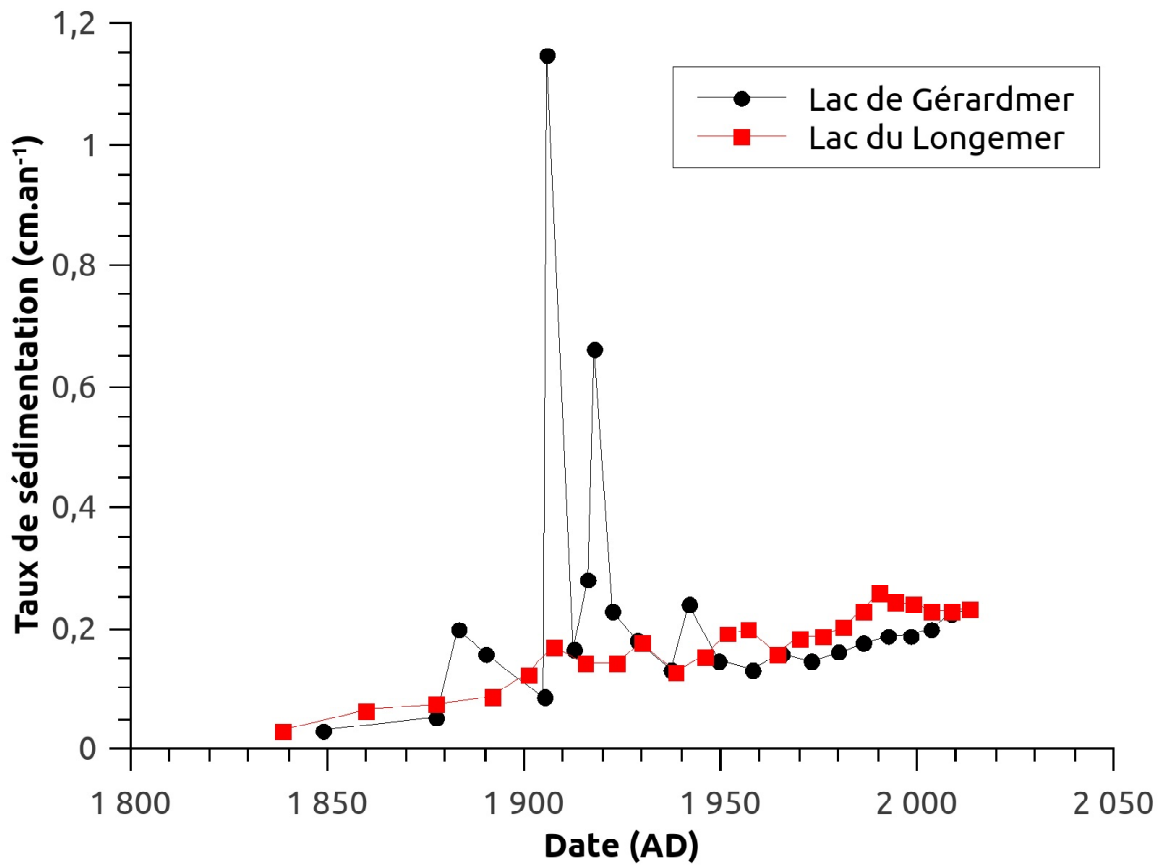


FIG. 4.15: Comparaison des taux de sédimentation des lacs Longemer et Gérardmer.

4.7.3 Le lac du Brévent

4.7.3.1 Distribution du $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$

De la même manière, les activités massiques du $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ ont été déterminées en fonction de la profondeur de la colonne sédimentaire.

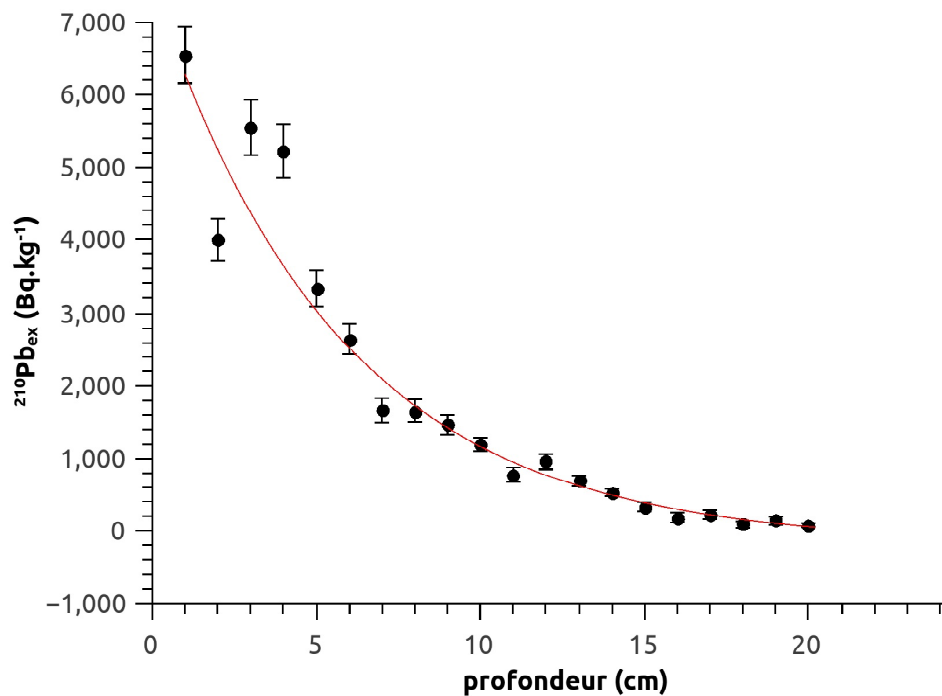


FIG. 4.16: Présentation logarithmique du profil de ^{210}Pb dans le lac du Brévent.

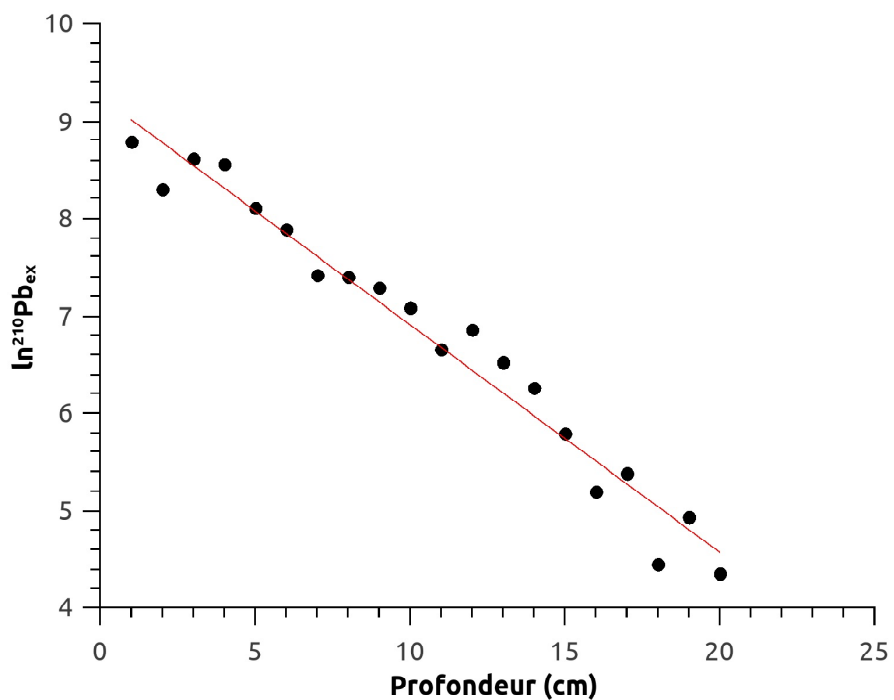


FIG. 4.17: Profil du ^{210}Pb dans le lac du Brévent.

Les résultats obtenus sont montrés dans le tableau (4.5) :

Profondeur (cm)	activité du ^{226}Ra	activité du $^{210}\text{Pb}_{\text{total}}$	activité du $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$
1	23,64	6577,49	6553,85±392,91
2	35,25	4038,26	4003,01±289,64
3	22,30	5574,38	5552,08±377,75
4	15,03	5245,99	5230,96±368,21
5	21,41	3359,57	3338,16±247,26
6	28,09	2670,74	2642,65±213,1
7	37,27	1696,97	1659,70±165,79
8	30,77	1684,90	1654,13±152,84
9	24,48	1481,81	1457,33±136,8
10	31,83	1225,36	1193,53±90,1
11	27,76	800,11	772,35±102,2
12	23,12	979,78	956,66±107,15
13	26,69	711,58	684,89±72,32
14	30,34	551,60	521,26±52,24
15	26,54	352,82	326,28±65,41
16	30,54	209,91	179,37±70,87
17	24,66	243,18	218,52±58,41
18	33,86	118,84	84,98±43,53
19	27,86	166,45	138,59±56,04
20	35,82	112,98	77,16±25,43

TAB. 4.5: Inventaires du $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ dans le lac du Brévent.

On constate que l'activité massique du ^{226}Ra de ce lac est plus faible comparée à celles obtenues pour les deux lacs précédents. D'autre part le taux du $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ est plus important, notamment au sommet de la carotte sédimentaire du lac de Brévent. Ces valeurs des activités massiques obtenues pour le $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ peuvent être expliquées par rapport à la situation ou l'emplacement du lac, dont les précipitation et le dépôt des radioéléments atmosphériques sont plus importants comparés à ceux des deux lacs précédents.

Les dates et les âges ainsi que les taux de sédimentation correspondants aux profondeurs dans la carotte sont calculés à partir du modèle CRS.

Les calculs sont toujours basés sur les équations (4.4), (4.6) et (4.8) de ce modèle

pour obtenir les inventaires sous les couches à une profondeur donnée, les âges ainsi que les taux de sédimentation.

Dans le tableau (4.6), on regroupe les résultats obtenus :

Profondeur (cm)	chronologie		taux de sédimentation (cm.an ⁻¹)
	Date (DM)	Âge (an)	
1	2013	0	0,18
2	2007	6	0,24
3	2002	11	0,15
4	1995	18	0,13
5	1985	28	0,15
6	1978	35	0,15
7	1970	43	0,19
8	1964	49	0,16
9	1957	56	0,14
10	1949	64	0,13
11	1940	73	0,16
12	1934	79	0,10
13	1922	91	0,10
14	1910	103	0,09
15	1897	116	0,10
16	1885	128	0,12
17	1875	138	0,07
18	1858	155	0,11
19	1847	166	0,05
20	1814	199	0,03

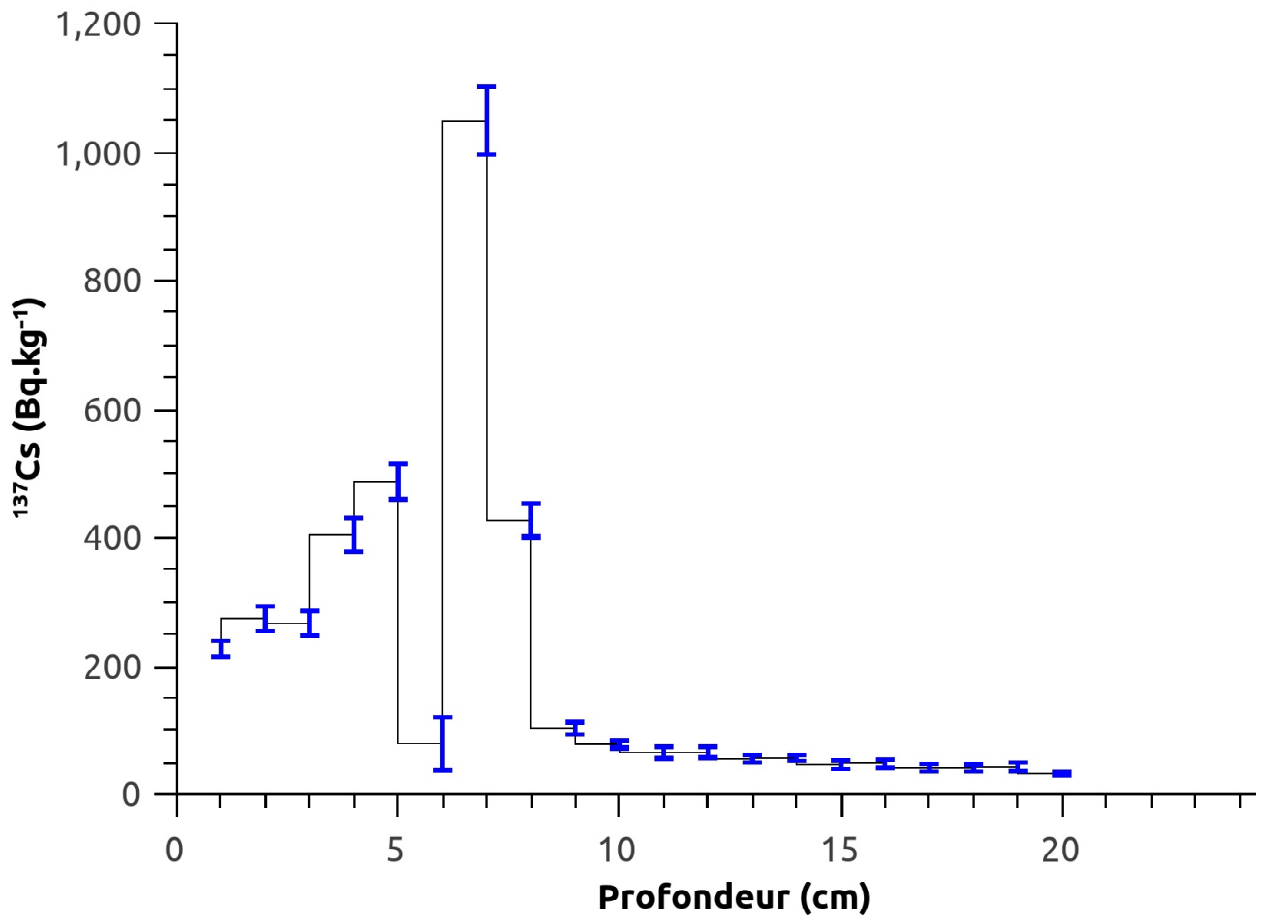
TAB. 4.6: Chronologie de la colonne sédimentaire du lac de Brévent.

4.7.3.2 Profil du ¹³⁷Cs

La figure (4.18) du profil de ¹³⁷Cs montre un dépôt important dans le lac du Brévent, qui atteint une concentration jusqu'à 1049,41 Bq.kg⁻¹ à la profondeur de 7 cm.

Le profil montre toujours une présence de deux pics, mais le plus important est celui correspondant à la période des essais nucléaires de 1963, avec des valeurs d'activité massique de 79,21 Bq.kg⁻¹ à 6 cm et de 102,88 Bq.kg⁻¹ à 9 cm passant par un maximum de 1049 Bq.kg⁻¹ à 7 cm.

Le dépôt du ¹³⁷Cs dans ce lac est plus important par rapport aux deux premiers, ce qui peut être expliqué par la position du lac par rapport aux endroits d'émission et de dépôt de cet isotope.

FIG. 4.18: Profil du ^{137}Cs dans le lac du Brévent.

La comparaison entre les valeurs des dates obtenues par les deux méthodes de datation montre toujours un bon accord.

La figure (4.19) montre la comparaison entre les taux de sédimentation pour les trois sites étudiés.

Les résultats des taux de sédimentation pour les trois lacs montrent une augmentation avec une même cadence, en faisant abstraction des deux valeurs importantes trouvées pour le lac de Gérardmer ; ce qui est dû peut être à des événements extrêmes comme des tempêtes par exemple ou à l'influence des bassins versants et ruisseaux. Les courbes des taux de sédimentation sont croissantes, ce qui conduit à des vitesses de sédimentation variables. Cette remarque nous conduit à valider le choix du modèle utilisé CRS qui ne suppose pas des vitesses de sédimentation constantes dans les systèmes lacustres.

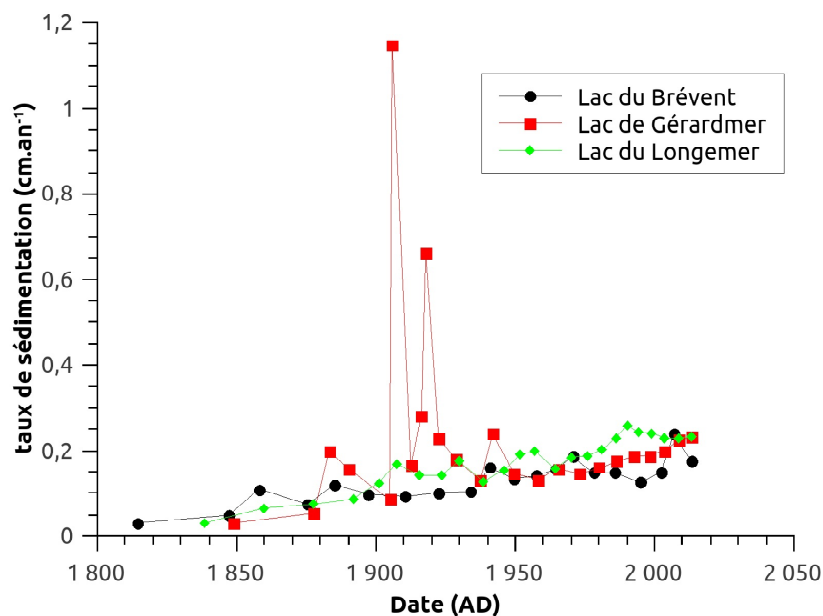


FIG. 4.19: Comparaison entre les taux de sédimentation pour les trois sites étudiés.

4.8 Conclusion

La détermination des activités massiques des retombées atmosphériques, concernant le ^{210}Pb et le ^{137}Cs dans les sédiments lacustres, nous a permis de reconstituer l'histoire des apports terrigènes ou anthropiques. Dans ce cadre, on a étudié trois sites de lacs situés en France : Longemer, Gérardmer et Brévent. Le modèle de datation au ^{210}Pb CRS (Constant Rate of Supply) est le plus adapté à l'étude des environnements lacustres. La datation des sédiments au ^{210}Pb est souvent couplée avec la méthode de datation au ^{137}Cs qui présente l'avantage de fournir deux dates absolues (1963-1964 et 1986). Les résultats de datation montrent un bon accord entre les deux méthodes utilisées pour les trois lacs. La détermination des taux de sédimentation montre une augmentation avec une même cadence, en faisant abstraction des deux valeurs importantes trouvées pour le lac de Gérardmer.

Conclusion générale

La spectrométrie γ 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 γ pour une gamme d'énergie allant de 20 keV à 3 MeV. Des étalonnages qualitatifs (en énergie) et quantitatifs (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 de retombées radioactives dans des sédiments lacustres, utilisées en méthodes de datation, tels que le ^{210}Pb , ^{241}Am et le ^{137}Cs . 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. L'étalonnage en efficacité a été utilisé pour des analyses au sein des carottes sédimentaires prélevées dans les lacs de Longemer, Gérardmer et du Brévent. Les radionucléides artificiels ou d'origine naturelle, en particulier le ^{137}Cs et ^{210}Pb , ont été également exploités dans cette étude comme outils de datation des colonnes sédimentaires afin de reconstituer l'historique des apports terrigènes ou anthropiques. Les âges obtenus par le modèle CRS (Constant Rate Supply) et la technique de datation au ^{137}Cs sont en bon accord. Les taux de sédimentation apparents déterminés dans les enregistrements sédimentaires étudiés présentent une grande variabilité pour les trois sites, soulignant l'hétérogénéité des processus d'accumulation et d'érosion. L'analyse des sédiments lacustres ainsi que ceux des estuaires et des rivières apportent de nombreuses informations : changements

d'hydrologie, pollutions anthropiques et écosystèmes... jusqu'au climat régional. Le couplage des méthodes de datation, basé sur les activités des retombées atmosphériques avec des analyses par méthodes physico-chimiques des sédiments lacustres, permet de lier les phénomènes enregistrés dans les sédiments qui sont considérés comme archives aux périodes déterminées en fonction de la profondeur. Dans le cadre général, on peut traduire l'impact de l'homme sur l'environnement par l'étude de la matière sédimentaire dans les lacs et voir le changement apporté en fonction de temps.

Dans cette perspective, ce travail sera suivi par l'étude de la bioturbation dans les lacs en utilisant l'isotope ^7Be , un radioélément cosmogénique, à l'aide d'un spectromètre à configuration planaire. Nous projetons également d'élargir cette étude à d'autres sites pour estimer et évaluer l'impact des retombées atmosphériques.

Bibliographie

- [1] Brookhaven National Laboratory. National Nuclear Data Center (2011).
www.nndc.bnl.gov/chart/help/glossary.jsp#nucleardecay.
- [2] Rutherford E. et al., (1903); A penetrating from the Earth's Surface; Phys Rev 16 183.
- [3] Hess V.F., (1912); Penetrating radiation in seven free balloon flights; PZ, 13, 1084.
- [4] Rossi B.B. et Staub H. H., (1949); Ionization chambers and counters; New York : McGraw-hill.
- [5] Knoll G.F. (1989); Radiation Detection and measurement ; 2d ed, New York : John Wiley Sons.
- [6] Hofstadter R. (1948); Alkali halide Scintillation counters; Physical Review 74(1) :100-101.
- [7] Wilkinson D.H., (1950); Ionization chambers and counters; Cambridge university, Press.
- [8] Johansson S.A.E., (1950); Measurements of energy of beta and gamma rays with scintillation counters : Nature 165 :396.
- [9] Johansson S.A.E., (1950); A scintillation counter for high energy gamma rays; Nature 166 : 794-795.
- [10] Mather, (1962); G-radiation field above fallout contaminated ground ; Health Phys. 8, 245-260.
- [11] Adams J. A. S. et Fryer G. E., (1964); Portable gamma ray spectrometer for field determination of thorium, uranium and potassium; The natural radiat environ- ment University of Chicago Press pp. 577-596.
- [12] Pell E. M. (1960); Ion drift in a n-p junction; J. Appl. Phys. 31 : 291-302.
- [13] Beck H. L. and al. (1971); In situ external environmental gamma ray measurement utilizing Ge(Li) and NaI(Tl) spectrometry and pressurized ionization chambers.

- Proceeding of international Atomic Energy Agency Symposium on Rapid methods of measuring radioactivity in the environment ; IAEC-SM-148/2 : 499-513.
- [14] Phels et al. (1972) ; A portable Ge(Li) detector for field measurement of radionuclides in the environment ; IEEE Trans Nucl Sci NS-19(1) : 199-210.
- [15] Lemerrier M. (2007) ; Développement d'une méthode analytique pour quantifier par spectrométrie gamma in-situ les radionucléides présents dans les sol ; L'université de PARIS XI.
- [16] Evans R.D., (1955) ; The atomic nucleus. McGraw-Hill New-York.
- [17] Cazala C. ODILE P. Chapalain E. and Roy L., (2011) ; Gestion des sites potentiellement pollués par des substances radioactives ; Instit Radiopro et Sûreté Nuc IRSN.
- [18] Suhonen J., (2007) ; Theoretical and Mathematical Physics, From Nucleons to Nucleus, Springer .
- [19] Christian Ngô Claude Le Sech. (2010) ; Physique nucléaire : Des quarks aux applications. Dunod.
- [20] Cohen-Tannoudji C., Dupont-Roc J., G. Grunberg. (1988) ; Processus d'interaction entre photons et atomes. Savoirs Actuels .
- [21] Gilbert le petit Guy Garnier. (2002) ; livre de spectrométrie gamma appliquée aux échantillons de l'environnement ; Université de Paris sud, France.
- [22] Fernandez-Vera J.M., et al., (2003) ; Code for System for Monte Carl Simulation of Electron and Photon Transport. Issy-les-Moulineaux, France.
- [23] Wiley J. and Knoll G.F., (2000) ; Radiation detection and measurement, 3rd edition.
- [24] Pirard B., (2006) ; Etude et validation d'un spectromètre gamma pour la mesure de la composition chimique des surfaces planétaires : Application à une mission vers Mercure, thèse de Doctorat de l'Université Toulouse 3.
- [25] Courtine F., (2007) ; Etalonnage d'une spectrométrie gamma en vue de la mesure de la radioactivité naturelle : Mesures Expérimental et Modélisation par technique de Monte-Carlo, université Blaise Pascal.
- [26] Benoit P., (2006) ; Etude et validation d'un spectromètre gamma pour la mesure de la composition chimique des surfaces planétaires, thèse de doctorat, université de

-
- [27] Gasser E., (2014) ; Spectrométrie gamma au laboratoire et in situ. Développements et applications environnementales, université Strasbourg, thèse de doctorat.
- [28] Turki F., (2010) ; Détermination de la radioactivité naturelle dans les matériaux de construction par spectrométrie gamma ; Université du 7 novembre à Carthage.
- [29] Ene-Parent J., (2000) ; Analyse par activation neutronique de la chapie de sécheuses, université de Montréal.
- [30] Debertain K., et Helmer R.G., (1988) ; Gamma-and x-ray spectrometry with semicon-ductor detectors. Elsevier science publishing company.
- [31] Glenn F., Knoll., (1999) ; Radiation detection and measurement. Wiley Son, Ltd.
- [32] Buform N., (1992) ; Force de Coriolis et déformation nucléaire : résultats dans les isotopes de Cadmium et de Plomb avec le multi-détecteur γ EUROBALL, Univ. Lyon I.
- [33] Lépy M.C., Plangnard P., Moune J., Verdeau E. et Damoy F., (2008) ; La spectrométrie de photons au LNHB : Principes et applications. Note technique, no. 5.
- [34] <http://www.cenbg.in2p3.fr/-Les-tres-basses-radioactivites->
- [35] http://www-lsm.in2p3.fr/activites/basses_activ/basses_activ_Principe.htm
- [36] Grenier G., Poussier C., (1968) ; Centre d'Etudes de Limeil :Rapport CEA-R-3562.
- [37] Ben Hdeych Y., (2011) ; Contrôle de qualité dosimétrique des systèmes de planification des traitements par radiothérapie externe à l'aide d'Objets-Tests Numériques calculés par simulations Monte-Carlo PENELOPE , thèse de Doctorat, université de Nantes, .
- [38] Badel J.N., (2009) ; Contrôle dosimétrique des traitements de radiothérapie par simulation Monte Carlo de l'image de dose portale transmise, thèse de doctorat de l'école doctorale : EEA.
- [39] Vincent H.T, (2006) ; Elaboration des éléments d'une simulation Monte Carlo permettant l'évaluation d'une planification de traitement en radiothérapie externe Compression d'images DICOM à l'aide d'un octree et modélisation de la tête d'un accélérateur linéaire, mémoire de Maître es Sciences.
- [40] Franchisseur E.,(2007) ; Modélisation et validation de l'accélérateur PRIMUS de SIEMENS par le code Monte Carlo PENELOPE dans le cadre de la Radiothérapie du Cancer, Université de Nice-Sophia Antipolis.

- [41] Cheick Oumar T., (2007); Dosimétrie en radiothérapie et curiethérapie par simulation Monte-Carlo GATE sur grille informatique, thèse de doctorat Université Blaise Pascal, Clermont-Ferrand 2.
- [42] Nachab A. (2003); Etude expérimentales et modélisations monte carlo de l'auto-absorption gamma et de la dosimétrie active par capteur cmos. Ph.D. thesis, Université Louis Pasteur, Strasbourg, France.
- [43] Meynard K., (2009); Polymérisation radio-induite : calcul de dose et modélisation dans le cas d'irradiations prolongées de sources non-scellées, thèse de doctorat de l'université de Toulouse.
- [44] Foos J., (2009); manuel de la radioactivité, Hermann éditeurs paris.
- [45] Habib B., (2009); étude numérique et expérimentale d'un système de planification de traitement pour la radiothérapie intégrant un calcul monte Carlo – applications aux hétérogénéités et petits faisceaux, thèse de doctorat de l'université de paris-sud11.
- [46] Gerardy I., (2011); Evaluation d'un système de planification pour un traitement de brachythérapie gynécologique en utilisant des techniques monte carlo et des mesures expérimentales, thèse de doctorat, Université Polytechnique de Valencia, Spain.
- [47] Pelowitz D.B. et al., (2008); MCNPX user's manual, version 2.6.0. Los Alamos National Laboratory, LA-CP, pages 07–1473.
- [48] Los Alamos laboratory, (1994); A Monte Carlo for Particle Transport. Los Alamos Science, vol. 22.
- [49] Imbert L., (2012); Analyse et modélisation des performances d'un nouveau type de détecteur en médecine nucléaire : du détecteur Anger au détecteur semi-conducteur, thèse de doctorat de l'université de lorraine.
- [50] Mesradi M.R., (2009); Mesures expérimentales et simulation Monte Carlo de la fonction de réponse d'un détecteur Si(Li) : application à l'analyse quantitative multi-élémentaire par XRF et PIXE, thèse de doctorat, université de Strasbourg.
- [51] Shultis J. K. and Faw R. E., (2004); AN MCNP PRIMER, Université de Manhattan
- [52] Bochud F., Bailat C.J., Buchillier T., Byrde F., Schmid E., Laedermann J.P., (2006); Simple Monte-Carlo method to calibrate well-type HPGe detectors. Nucl.Instrum. Methods Phys. Res. A 569, 790.

- [53] Pilleyre T., Sanzelle S., Miallier D., Fan J., Courtine F., (2006); Theoretical and experimental estimation of self-attenuation corrections in determination of ^{210}Pb by $\gamma\gamma$ spectrometry with well Ge detector Radiat. Meas. 41, 323.
- [54] Tedjani A., Mavon C., Belafrites A., Degrelle D., Boumala D., Rius D., Groetz J.-E., (2016); Well GeHP detector calibration for environmental measurements using reference materials. Nucl.Instrum. Methods Phys. Res. A 838, 12-17.
<http://dx.doi.org/10.1016/j.nima.20...>
- [55] Courtine F., Pilleyre T., Sanzelle S., Miallier D., (2008); Ge well detector calibration by means of a trial and error procedure using the dead layers as a unique parameter in a Monte Carlo simulation. Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A 596, 229.
- [56] Dziri S., Nourredine A., Sellam A., Pape A., Baussan E., (2012); Appl. Radiat. Isotopes 70, 1144.
- [57] Dziri S., Nachab A., Nourreddine A., Sellam A., Pape A., (2014); Elemental composition effects on self-absorption for photons below 100 keV in gamma-ray spectrometry. Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B 330, 1.
- [58] Adekola S., Colaresi J., Douwen J., Mueller W.F., Yocum K.M., (2015) Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A 784, 124.
- [59] Jderstrm H., Mueller W.F., Atrashkevich V., Adekola A.S., (2015); Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A 784, 264.
- [60] Degrelle D., Mavon C., Groetz J.-E., (2016); Determination of mass attenuation coefficient by numerical absorption calibration with Monte-Carlo simulations at 59.54 keV. Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A 816, 47.
- [61] Morera-Gómez Y., Cartas-Aguila H.A., Alonso-Hernández C.M., Nuñez-Duartes C., (2016); Validation of an efficiency calibration procedure for a coaxial n-type and a well-type HPGe detector used for the measurement of environmental radioactivity. Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A 818, 51.
- [62] <http://www.canberra.com/fr/produits/detectors/germanium-detectors.asp>
- [63] IAEA : <https://nucleus.iaea.org/rpst/referenceproducts/referencematerials/>
- [64] Duewer D.L., (2004); A Robust Approach for the Determination of CCQM Key Comparison Reference Values and Uncertainties, Working document CCQM/0415, BIPM.

-
- [65] INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY, Worldwide Open Proficiency Test : Determination of Natural and Artificial Radionuclides in Mosssoil and Water, IAEA/CP/RSF/T-1003, IAEA, Vienna (2012).
- [66] Shakhashiro A., et al., IAEA447 : A new certified reference material for environmental radioactivity measurements, *Appl. Rad. Isot.* 70 (2012) 1632–1643.
- [67] Tsilanizara A., Diop C.M., Huynh T.D., (2006); Darwin software SERMA/LEPP/RT/05-3772/A CEA, .
- [68] Report-IAEA/RL/148, (1987) Preparation of Gamma-ray spectrometry Reference Materials RGU-1, RGTh-1 and RG-K-1, Vienna.
- [69] Steger H.F. (1985) The preparation of RGU-1, Division Report MRP/MSL. Canada.
- [70] G.R. Gilmore, (2008); *Practical Gamma-ray Spectrometry*, 2nd edition, Nuclear Training Services Ltd., Warrington.
- [71] Genie 2000 3.3, (2013); Canberra Industries Inc.
- [72] Debertin K., Helmer R.G., (2001); *Gamma-and X-ray Spectrometry with Semiconductor Detectors*, North-Holland, Amsterdam.
- [73] Sanchezreyes A., Febrian M., Baro J., Tejada J., (1987); Absolute efficiency calibration function for the energy range 63–3054 keV for a coaxial Ge(Li) detector. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B* 28-123.
- [74] Gray P.W., Ahmad A., (1985); Linear classes of Ge(Li) detector efficiency functions. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A* 237-577.
- [75] Hammed M.A., Gray P.W., Naboulsi A.H., Mac Mahon T.C., (1993); Analytical peak fitting for gamma-ray spectrum analysis with Ge detectors. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A* 334-543.
- [76] Lépy M-C., Bé M-M., Piton F., (2001); ETNA (Efficiency Transfer for Nuclide Activity measurements); LNHB Note Technique no. LNHB/01/09/F.
- [77] Dziri S. (2013); *Etudes expérimentales et simulations Monte Carlo en spectrométrie γ : Correction des effets de cascade et de matrice pour des mesures environnementales*. Université de Strasbourg.
- [78] Ramos-Lerate I., Barrera M., Ligeró R.A. et Casas-Ruiz M., (1997); A new summing-correction method for gamma-efficiency calibration with multi-gamma-ray radionuclides. *Nucl Instrum and Meth in Phy Res A*, 2 (395) 202-206.

-
- [79] Begoña Q. et Francisco F., (1995) ; An empirical method to determine coincidence-summing corrections in gamma spectrometry. *Appl. Rad. and Isot*, 9 (46) 961-964.
- [80] Hurtado S., Garcia-Tenorio R. et Garcia-Leon M., (2009) ; Coincidence Summing Corrections in Gamma-Ray Spectrometry Using GEANT4 Code. *Nuclear Science, IEEE Transactions on*, 3 (56) 1531-1536.
- [81] Moens L., De Donder J., Xi-Lei L., De Corte F., De Wispelaere A., Simonits A. et Hoste J., (1981) ; Calculation of the absolute peak efficiency of gamma-ray detectors for different counting geometries. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, 2-3 (187) 451-472.
- [82] Laborie J.-M., Le Petit G., Abt D., Girard M., (2000) ; Monte Carlo calculation of the efficiency calibration curve and coincidence-summing corrections in low-level gamma-ray spectrometry using well-type HPGe detectors. *Appl. Radiat. Isotopes* 53-57.
- [83] Kaminski S., Jakobi A., Wilhelm C., (2014) ; Uncertainty of gamma-ray spectrometry measurement of environmental samples due to uncertainties in matrix composition, density and sample geometry. *Appl. Radiat. Isotopes* 94-306.
- [84] Pacyna J. M., Arne S. and Jan E. H., (1984) ; Emission and long-range transport of trace elements in Europe, *Tellus* (364) 163-178
- [85] Shirahata H., Elias R. W., Patterson C.C., and Koide M. (1980) ; Chronological variations in concentrations and isotopic compositions of anthropogenic atmospheric lead in sediments of a remote subalpine pond, *Geochim. Cosmochim. Acta* 44, 149-162.
- [86] Petit D. (1984). ^{210}Pb et isotopes stables du plomb dans les sédiments lacustres. *Earth Planet. Sci Let.*, 23, 199-205.
- [87] Ramade F., (2002) *De l'écologie et des sciences de l'environnement*. Dunod 2eme édition.
- [88] Chamley H., (2000) ; *Bases de sédimentologie*. Dunod, Paris, 2^{ème} édition.
- [89] Krishnaswami S., Lal D., Martin J. M. and Meybeck M. (1971) ; Geochronology of lake sediments. *Earth and Planet. Sci. Let.*, 11, 407-414.
- [90] Koide M., Soutar A. and Goldberg E. D. (1972) ; Marine geochronology with Pb-210. *Earth Planet. Sci. Lett.* 14, 442-446.

-
- [91] Robbins J. A. and Edgington D. N. (1975). Determination of recent sedimentations rates in lake Michigan using Pb-210 and Cs-137. *Geochim. Cosmochim. Acta*, 39, 285-304.
- [92] Gillette D. A., Blifford I. H., Fenster C. R. (1972). Measurements of the aerosols size distribution and vertical fluxes of aerosols on land subject to wind erosion. *J. Applied Meteorology*, 11, 977-987.
- [93] Moore, H. E., Poet, S. E., and Martell, E. A. (1973). ^{222}Ra , ^{210}Pb , ^{210}Bi , and ^{210}Po profiles and aerosol residence times versus altitude. *Journal of Geophysical Research*, 78 (30) 7065-7075.
- [94] Heyraud, M., et Cherry, R. D. (1983). Correlation of ^{210}Po and ^{210}Pb enrichments in the sea-surface microlayer with neuston biomass. *Continental Shelf Research*, 1 (3) 283-293.
- [95] Goldberg, E. (1963). Geochronology with lead-210, International Atomic Energy Agency, 121–131.
- [96] Pennington, W., Cambray, R., Eakins, J., and Harkness, D. (1976). Radionuclide dating of the recent sediment in Blelham Tarn. *Freshwater Biology*, (6) 317–331.
- [97] Appleby, P. G., and Oldfield, F. (1978). The calculation of lead-210 dates assuming a constant rate of supply of unsupported ^{210}Pb to the sediment. *Catena*, 5(1), 1-8.
- [98] Anspaugh, L. R., Catlin, R. J., and Goldman, M. (1988); The global impact of the Chernobyl reactor accident. *Science*, 242 (4885) 1513-1519
- [99] Kirchner G., Bossew P., De Cort M., (2012); Radioactivity from Fukushima Dai-ichi in air over Europe; part 2 : what can it tell us about the accident ?, *Journal of Environmental Radioactivity*, (114) 35-40.
- [100] Flageollet J-C., (2002), *Sur les traces des glaciers vosgiens*, CNRS éditions, page 212.
- [101] Office de Tourisme Gérardmer Monts et Vallées, Gérardmer, France.
- [102] [http ://pbil.univ-lyon1.fr/R/pps/pps013.pdf](http://pbil.univ-lyon1.fr/R/pps/pps013.pdf). Etudes du lac du Brévent par D. Chessel.

Annexe A

Code MCNP6

Exemple de script MCNPX utilisé pour simuler les interactions des photons avec le cristal de Germanium à configuration Puits. Le détecteur est simulé ici avec une géométrie dont les caractéristiques sont fournies par le fabricant. La source représentée est placée dans le puits.

On repère bien les trois blocs caractéristiques de MCNPX : Les volumes (cellules), les surfaces et la physique employée. Les lignes précédées d'un "c" sont commentées et non prises en compte dans le code. Le signe "\$ " commente la fin d'une ligne.

A.0.0.2.1 Dans la partie Cellules :

Chaque volume est caractérisé par un matériau en indiquant sa masse volumique en g.cm^3 , car ici la valeur est négative. Si elle était positive, l'unité serait 10^{24} atomes. cm^3 . Le volume est ensuite caractérisé selon les surfaces définies dans la partie Surfaces. Pour les surfaces négatives, le volume est à l'intérieur de celles-ci, et pour les positives il est à l'extérieur. Le signe "" indique qu'un volume considéré est exclu du volume que l'on construit, et le signe ":" réunit les surfaces. Un poids statistique est finalement donné pour les particules mises en jeu (e : électron, p : photon) selon les volumes.

A.0.0.2.2 Dans la partie Surfaces :

Chaque surface est numérotée. C'est cette numérotation qui est utilisée pour construire les volumes dans la partie Cellules. On utilise des macrobodies pour construire les différentes géométries : le cylindre (RCC), le tore selon l'axe des z (TZ), le parallélépipède (RPP) et la sphère (SPH). Les coordonnées spatiales x,y et z permettent

de définir l'origine de la surface et les directions d'orientation donnent les dimensions de la surface.

A.0.0.2.3 Dans la partie Physique :

- "mode p e" indique que l'on travaille avec des électrons et des photons.
- "sdef" permet de donner les caractéristiques de la source ; notamment, l'indication de la cellule caractérisant la résine, la position de la source, et le choix de la particule incidente.
- "si1" indique les énergies des pics photoélectriques que l'on veut simuler et la commande "sp1" les intensités associées à ces énergies "si2" et "si3" donne les dimensions de la source, respectivement son rayon et sa hauteur.
- "f18 :p 1", le comptage utilisé est un comptage F8 permettant d'avoir la distribution en énergie des hauteurs d'impulsions créées par les photons. Le comptage se fait dans la cellule 1 (résine de la source).
- "geb" donne les caractéristiques de la résolution du détecteur selon l'équation $a + b\sqrt{E + cE^2}$, avec E est l'énergie.
- "e18" donne la valeur en énergie d'un canal, le nombre d'intervalles sur la gamme d'énergie et l'énergie maximale.
- de "m1" à "m7", les différents matériaux utilisés sont caractérisés par leur formule brute ou leur composant.
- "nps" donne le nombre d'histoires (particules) exécutées dans la simulation. Ici, 10^9 particules sont simulés.

Le fichier d'entrée pour le détecteur Puits DEMON à Modane : Spectrometre Germanium (DEMO)

c modelisation cristal Ge avec zone morte

c Cellules

```

1 1 -5.32 -12 13      imp : p,e=1 $ Ge actif
11 1 -5.32 -1 2 #1    imp : p,e=1 $ ZM
2 2 1.25e-9 (-3 42 #1 #11 #8 #9 #20 #22) :-28    imp : p,e=1 $ air int capot
3 3 -2.7 (-4 41 28 #2 #1 #11 #8 #9 #20 #22) :(-27 28) imp : p,e=1 $ capot Al
4 2 1.25e-9 -5 #2 #1 #11 #3 #8 #9 #20 #22 #23 #24 imp : p,e=1 $ air Al/Cu
5 4 -8.92 -6 5 imp : p,e=0 $ cylindre Cu
7 5 -11.34 -7 6      imp : p,e=0 $ chateau plomb
6 2 -0.0012 -10 7    imp : p,e=1 $ air piece

```

8 4 -8.92 -8 imp : p,e=1 \$ canule Cu
 9 8 -2.16 -9 8 imp : p,e=1 \$ teflon
 20 4 -8.92 (-20 21 #9 #8) :(-22 23 #8 #9) imp : p,e=1 \$ holder
 22 8 -2.16 (-24 25) :(-26 24) imp : p,e=1 \$ teflon sup
 23 6 -0.9 (-32 31) :(-34 33) #24 imp : p,e=1 \$ PE
 24 7 -1.15 -35 :-36 imp : p,e=1 \$ source
 10 0 10 imp : p,e=0 \$ reste du monde

c Surfaces ou macrobodies

1 rcc 0 0 0 0 0 6.8 3.4 \$ cristal Ge total
 12 rcc 0 0 0 0 0 6.71 3.31 \$ ZM laterale et superieure
 2 rcc 0 0 3.3 0 0 3.5 0.85 \$ canule dans cristal
 13 rcc 0 0 3.29997 0 0 3.5 0.85003 \$ ZM interne
 3 rcc 0 0 -6.85 0 0 14.5 4.295 \$ capot alu interne
 4 rcc 0 0 -7 0 0 14.8 4.445 \$ capot alu externe
 41 rcc 0 0 3.8 0 0 4 0.55 \$ trou Al ext
 42 rcc 0 0 3.7 0 0 4.1 0.65 \$ trou Al int
 5 rcc 0 0 -13.3 0 0 40 15 \$ cylindre cuivre interne
 6 rcc 0 0 -13.5 0 0 40.4 15.2 \$ cylindre cuivre exterieur
 7 rcc 0 0 -15.5 0 0 45 17.2 \$ cylindre plomb
 8 rcc 0 0 -3 0 0 3 0.16 \$ hight voltage contact Cu
 9 rcc 0 0 -3.6 0 0 3.55 0.93 \$ teflon inf
 20 rcc 0 0 -0.65 0 0 7.85 3.75 \$ Holder Cu ext
 21 rcc 0 0 -0.05 0 0 7.25 3.45 \$ Holder Cu int
 22 rcc 0 0 -5.3 0 0 4.65 1.52 \$ holder ext inf
 23 rcc 0 0 -5.3 0 0 4.65 0.16 \$ holder int inf
 24 rcc 0 0 7 0 0 0.4 3.4 \$ teflon sup
 25 rcc 0 0 7 0 0 0.4 0.85 \$ teflon sup
 26 rcc 0 0 7.2 0 0 0.2 3.75 \$ teflon sup
 27 rcc 0 0 -13.2 0 0 6.35 3.8 \$ capot ext inf
 28 rcc 0 0 -13.05 0 0 6.35 3.65 \$ capot int inf
 31 rcc 0 0 4.31 0 0 6.33 0.49 \$ PE interne
 32 rcc 0 0 4.31 0 0 6.33 0.502 \$ PE externe
 33 sph 0 0 4.31 0.49 \$ sphere interne

```

34 sph 0 0 4.31 0.502      $ sphère externe
35 rcc 0 0 4.31 0 0 0.8 0.49
36 sph 0 0 4.31 0.49
10 rpp -50 50 -50 50 -50 50
c fin des surfaces

      c debut definition physique, source, comptage, matériaux...
mode p e
sdef par=p erg=d1 cel=19 pos=0 0 5.39 axs=0 0 1 rad=d2 ext=d3
c ENDF
si1 l 0.1217817 0.2446974 0.2959392 0.329425 0.3442784 0.367789 0.4111163
0.4160480 0.4439649 0.4886791 0.5034739 0.56399 0.5664389 0.5862647
0.6564869 0.6746750 0.6786230 0.6866099 0.688669 0.719349 0.7648999
0.7789039 0.8104510 0.84157 0.8673729 0.9193299 0.9263169 0.9640789
1.005272 1.085869 1.089737 1.109173 1.112069 1.212948 1.249938
1.292778 1.29914 1.408005 1.457643 1.528103 sp1 d 0.286679 0.076066 0.004481 0.001289
0.26558 0.008619 0.022372 0.001104
0.031576 0.004202 0.001487 0.004908 0.001294 0.0046 0.001453 0.001899
0.004719 0.00019332 0.008592 0.003383 0.002151 0.129603 0.003206
0.001665 0.042584 0.00428 0.002784 0.146494 0.006476 0.102379 0.017297
0.001859 0.136855 0.014263 0.001888 0.001055 0.016254 0.210692 0.005034
0.002822
si2 0 5.543
si3 6.8
c tmesh
rmesh1 :e pedep
cora1 -3.5 10i 3.5
corb1 -3.5 10i 3.5
corc1 0 47i 4.6
endmd
m1 32000.04p 1      $ germanium HP
m2 6000 -0.0125 7000 -75.5267 8000 -23.1781 18000 -1.2827      $ air
m3 13027 1      $ aluminium
m4 29000 1      $ cuivre

```

m5 82000 1 \$ plomb
m8 6000 0.33 9000 0.67 \$ Teflon
m6 1000 0.67 6000 0.33 \$ PE
m7 1000 0.4 6000 0.5 8000 0.1 \$ résine
prdmp 2j 1 nps 1e9 print 110

Liste des tableaux

1.1	Statistiques relatives aux isotopes stables et radioactifs [1].	4
1.2	Les caractéristiques des trois familles radioactives naturelles.	8
1.3	Équilibres séculaires à considérer.	11
1.4	Les caractéristiques des principaux semi-conducteurs.	21
1.5	La résolution (en keV) d'un détecteur germanium pour les trois configurations. 26	
1.6	Avantages et inconvénients d'un détecteur HPGe [28].	27
2.1	Les diverses causes d'incertitude en spectrométrie gamma.	43
2.2	Fiabilité d'un calcul Monte Carlo en fonction de l'erreur relative [47].	48
2.3	Différents types de tallies utilisés par MCNP.	53
3.1	Les paramètres du détecteur Puits du LCE.	56
3.2	Valeurs certifiées des activités pour l'IAEA-447 à la date de référence.	60
3.3	Activités des radionucléides présents dans l'IAEA-447 à la date de mesure. 62	
3.4	Composition chimique approximative du IAEA-RG-U1.	63
3.5	Composition chimique approximative de OKA-2.	64
3.6	Valeurs certifiées des activités pour IAEA-RG-U1 et IAEA-RG-Th1.	64
3.7	Durées de comptage pour les trois standards.	65
3.8	Facteurs d'interférence pour certains radionucléides [70].	66
3.9	Efficacités expérimentales et calculées pour le standard IAEA-447.	68
3.10	Facteurs de correction du TCS pour le ^{214}Bi	77
3.11	Comparaison entre les résultats de IAEA-447, IAEA-RG-U1 et IAEA-RG-Th1. 78	
4.1	Inventaires du $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ dans le lac de Longemer.	94
4.2	Chronologie de la colonne sédimentaire du lac de Longemer.	95
4.3	Inventaires du $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ dans le lac de Gérardmer.	99
4.4	Chronologie de la colonne sédimentaire du lac de Gérardmer.	100
4.5	Inventaires du $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ dans le lac du Brévent.	103

4.6 Chronologie de la colonne sédimentaire du lac de Brévent. 104

Table des figures

1.1	La charte nucléaire.	5
1.2	Les trois chaînes radioactives naturelles.	8
1.3	Etablissement de l'équilibre séculaire dans le cas de la chaîne de filiation du ^{232}Th	10
1.4	Etablissement de l'équilibre séculaire dans le cas de la chaîne de filiation du ^{238}U	10
1.5	Émission de gamma en cascade.	12
1.6	L'interaction photon-matière en fonction d'énergie du photon et du Z.	15
1.7	La diffusion Rayleigh.	15
1.8	Principales interactions des photons gamma avec la matière : à gauche effet photoélectrique; à droite effet Compton.	15
1.9	Coefficient d'atténuation linéaire des photons avec le germanium.	19
1.10	Schéma d'un détecteur Ge(Hp) de rayonnement γ	23
1.11	Principe du semi-conducteur : structure des bandes et fonctionnement.	24
1.12	Les différentes configurations géométriques des détecteurs germanium.	25
1.13	Les différentes configurations géométriques des détecteurs germanium.	27
2.1	Principe de base de spectrométrie gamma.	29
2.2	Spectre de radioactivité naturelle obtenu après plusieurs jours de comptage.	30
2.3	Chaîne de mesure associée aux détecteurs Ge.	31
2.4	Circuit équivalent d'un préamplificateur.	33
2.5	Circuit équivalent d'un amplificateur.	33
2.6	Exemple d'une courbe d'étalonnage en énergie.	35
2.7	La notion élémentaire d'angle solide	37
2.8	Distribution gaussienne du pic.	38
2.9	Organigramme de l'histoire d'une particule par la méthode Monte Carlo [42].	45
2.10	Structure du fichier input MCNP.	50
3.1	Coupe longitudinale du détecteur Puits.	57
3.2	Modèle 2D du détecteur puits défini avec MCNP6.	58

3.3	Spectre γ pour IAEA-447 sur 8192 canaux.	67
3.4	Comparaison entre les efficacités expérimentales et calculées pour IAEA-447.	69
3.5	TCS avec une distance de 0 cm entre la source et le capot du détecteur.	73
3.6	TCS avec une distance de 5 cm entre la source et le capot du détecteur.	73
3.7	Exemple de TCS avec une distance de 0 cm entre la source et le capot du détecteur.	75
3.8	Exemple de TCS pour avec une distance de 5 cm entre la source et le capot du détecteur.	76
3.9	Effet de TCS sur les surfaces des pics du ^{214}Bi	76
3.10	Valeurs expérimentales d'efficacité pour IAEA-447 corrigées de TCS.	77
3.11	Valeurs simulées d'efficacité FEPE pour plusieurs hauteurs d'IAEA-447.	79
3.12	Impact des hauteurs d'IAEA-447 sur l'efficacité FEPE.	80
4.1	Lac de Longemer.	87
4.2	Lac de Gérardmer.	88
4.3	Localisation du lac de Longemer par rapport au lac de Gérardmer.	89
4.4	Lac du Brévent.	89
4.5	Vue aérienne du lac de Brévent.	90
4.6	Carotte sédimentaire.	90
4.7	Carottes sédimentaires caractérisées par des abréviations.	91
4.8	Découpage des carottes sédimentaires en laboratoire.	91
4.9	Activités massiques du $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ dans la carotte du lac Longemer.	92
4.10	Profil du $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ de la carotte du lac Longemer.	93
4.11	Profil du ^{137}Cs dans le lac du Longemer.	96
4.12	Profil du $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ dans le lac de Gérardmer.	97
4.13	Profil du $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ dans le lac de Gérardmer.	98
4.14	Profil du ^{137}Cs dans le lac de Gérardmer.	100
4.15	Comparaison des taux de sédimentation des lacs Longemer et Gérardmer.	101
4.16	Présentation logarithmique du profil de ^{210}Pb dans le lac du Brévent.	102
4.17	Profil du ^{210}Pb dans le lac du Brévent.	102
4.18	Profil du ^{137}Cs dans le lac du Brévent.	105
4.19	Comparaison entre les taux de sédimentation pour les trois sites étudiés.	106