

ECOLE DOCTORALE
DE PHYSIQUE ET CHIMIE PHYSIQUE

THÈSE

Présentée par
Estelle Gasser

pour obtenir le grade de
Docteur de l'Université de Strasbourg
Spécialité : Physique Subatomique

Spectrométrie γ au laboratoire et in situ : Développements et applications environnementales

Soutenue le 08 avril 2014

Membres du jury

<i>Directrice de thèse :</i>	Mme ROY Christelle	Directrice de laboratoire, IPHC Strasbourg
<i>Encadrant :</i>	M. NACHAB Abdellatif	Ingénieur de recherches, IPHC Strasbourg
<i>Rapporteurs externes :</i>	Mme AUGIER Corinne M. MAKOVICKA Libor	Professeur, Université de Lyon Professeur, Université de Franche-Comté
<i>Examineurs :</i>	M. NOURREDDINE Abdel-Mjid M. GONTIER Gilles	Professeur, Université de Strasbourg Chargé de mission Division Environnement, EDF-DPI-DIN CIDEN, Lyon

Remerciements

Mes remerciements vont tout d'abord à Corinne Augier et à Libor Makovicka pour avoir accepté d'être les rapporteurs mais également à Gilles Gontier pour avoir bien voulu être membre du jury.

Un grand merci à Jean-Pierre Bucher pour son soutien et son aide et à Christelle Roy pour avoir accepté d'être ma directrice de thèse.

Je tiens à remercier particulièrement Abdel-Mjid Nourreddine pour m'avoir permis de réaliser ce travail de recherche dans son groupe en moins de deux ans. Je lui suis extrêmement reconnaissante de la confiance et du soutien qu'il m'a accordé.

Je souhaite exprimée toute ma gratitude envers Abdellatif Nachab, mon encadrant, qui a été un acteur majeur de ma réussite. Comme il me le disait : « L'étudiant est comme une page blanche et c'est avec celui qui l'encadre qui doit la remplir ».

Un immense merci pour son implication surtout dans les moments difficiles, pour la qualité de ses commentaires, pour ses critiques constructives et pour sa disponibilité.

La bonne réalisation de ma thèse a reposé également sur la collaboration de toute l'équipe. Je tiens ainsi à remercier Addil Sellam pour ses nombreuses aides en programmation. Je n'oublierai jamais son humour et son dynamisme.

Mais aussi mille et un mercis à Nicolas Spanier un ami, jeunot du groupe et à Youbba Ould Salem.

Un remerciement à Séverine Chefson pour son aide en ionométrie, à Dominique Gelus pour la préparation des échantillons et aux deux « vieux compères » Abderrahim Bensaida et Eric Schaeffer pour leur complicité.

Je tiens également à remercier Jean-Pierre Engel et François Begin pour leurs remarques et leurs explications et Arthur Pape pour sa contribution à l'élaboration des articles.

Merci à Issiaka Traoré, Grégoire Dougniaux et Gregory Beck, mes collègues de bureau.

Je terminerai en adressant à mes parents mes remerciements pour leur soutien indéfectible et Julien Kayser pour sa patience.

Et un grand merci aussi à mes amis Marie Vanstalle, Mauricio Torres et à tous ceux que j'ai pu oublier.

Une pensée à ma grand-mère Eliane décédée l'année du début de ma thèse et qui serait fière de sa petite fille.

Sommaire

Introduction	19
Interactions photon-matière et spectrométrie γ	23
I. Caractéristiques des rayonnements ionisants	23
II. Interactions photons-matière	25
II.1. Effet photoélectrique	25
II.2. Diffusion Compton.....	26
II.3. Création de paire	28
III. Section efficace totale d'interaction et coefficient d'atténuation	28
IV. Détection des photons	30
IV.1. Caractéristiques du cristal Ge.....	30
IV.2. Détecteurs semi-conducteurs.....	30
IV.3. Système de refroidissement.....	31
IV.4. Chaîne de mesure	31
V. Résolution en énergie	34
VI. Efficacité de détection	34
VII. Activité d'un échantillon	35
VIII. Seuil et limite de détection	37
Effets de matrice.....	39
I. Le pic-somme	39
II. L'auto-absorption γ	40
III. Correction d'auto-absorption γ	40
IV. Méthode de transmission.....	41
V. Dispositif expérimental	43
V.1. Détecteur ISOCS	43
V.2. Détecteur BEGe.....	43
V.3. Conteneurs d'échantillons	44
V.4. Efficacités de détection des trois géométries.....	44
VI. Optimisation du dispositif expérimental	46
VI.1. Effet de la longueur du collimateur	47
VI.2. Effet du diamètre du collimateur.....	48
VI.3. Effet de l'épaisseur x du conteneur FP80 sur l'atténuation linéique μ	50
VI.4. Effet de la statistique de comptage sur l'atténuation μ	51
VII. Validation par des tests d'inter-comparaison	52
VIII. Validation de la simulation de l'efficacité FP80 par l'utilisation d'une solution de chlorure de potassium.....	56
La dosimétrie appliquée aux mesures environnementales	59
I. La radioprotection	59
II. Historique de la radioprotection pour les travailleurs	59
III. Surveillance dosimétrique des travailleurs du nucléaire.....	60
IV. Exposition de l'homme aux rayonnements ionisants	60
IV.1. Exposition externe.....	60
IV.2. Exposition interne	61
V. Grandeurs dosimétriques	61
V.1. Dose absorbée.....	61
V.2. Dose transférée	62

VI. Grandeurs de protection	62
VI.1. Dose équivalente	62
VI.2. Dose efficace	63
VII. Différentes sources d'exposition pour l'homme	63
VIII. Grandeurs opérationnelles	64
IX. Dosimétrie des matériaux de construction : applications	65
IX.1. Activités des échantillons de construction	66
IX.2. Radium équivalent (Raeq)	67
IX.3. Indices de risques interne et externe	69
IX.4. Débit de dose absorbée et dose efficace annuelle	70
X. Simulations MCNPX.....	72
X.1. Simulations des débits de dose absorbée et de dose efficace annuelle.....	72
X.2. Influence des probabilités d'émission γ	75
X.3. Facteurs de conversion de dose	77
XI. Amélioration de la simulation	80
XI.1. Diminution du volume actif	80
XII. Prise en compte de différents matériaux	82
XIII. Comparaison des débits de dose absorbée.....	85
XIII.1. Déterminés avec les facteurs de conversion de dose	85
XIII.2. Déterminés avec le radium équivalent.....	85
XIV. Comparaison des doses efficaces annuelles	86
XIV.1. Déterminés avec les facteurs de conversion de dose	86
XIV.2. Déterminés avec le radium équivalent.....	87
XV. Dosimétrie sur des rayonnements ionisants dans les sols alsaciens	88
XV.1. Effet de la profondeur du sol	88
XV.2. Effet de la distance	89
XV.3. Effet de la composition du sol	90
XV.4. Résultats des prélèvements de sol.....	92
La spectrométrie γ in situ	99
I. Matériels.....	99
II. Détecteur FALCON	99
III. Pré-étude à l'IPHC	100
III.1. Source posée à la surface du sol	100
III.2. Source enterrée	101
IV. Etudes de l'efficacité de détection in situ par MCNPX	103
IV.1. Effet de la composition du sol.....	103
IV.2. Effet des dimensions de la source	104
IV.3. Effet de l'humidité du sol	106
V. Résultats des analyses effectuées autour du CNPE de Dampierre	108
V.1. Résultats pour le ^{137}Cs	110
V.2. Résultats pour les radioéléments naturels.....	112
VI. Comparaison entre spectrométries γ en laboratoire et in situ.	113
VII. Comparaison de la radioactivité des sols.....	114
VII.1. Sols de Dampierre versus sols d'Alsace	114
VII.2. Sols français versus sols européens	115
VIII. Spectrométries γ in situ auprès de la société CRISTAL.....	116
Conclusion générale & perspectives	123
Bibliographie	127

Table des figures

Figure I-1 : Schéma représentant l'effet photoélectrique.....	25
Figure I-2 : Schéma représentant la diffusion Compton.....	27
Figure I-3 : Représentation de la section efficace différentielle en fonction de l'angle de diffusion pour cinq énergies [6].	27
Figure I-4 : Schéma représentant la création de paire.	28
Figure I-5 : Coefficient d'atténuation massique en fonction de l'énergie des photons pour les différentes interactions dans le cas du Ge obtenu par XCOM [7].	29
Figure I-6 : Schéma des différents types de détecteurs.	31
Figure I-7 : Les différents types de détecteur et leur domaine d'énergie [9].	31
Figure I-8 : Exemple d'un spectre γ d'une source mono-énergétique.....	33
Figure I-9 : Exemple d'un spectre multi- γ . Identification de plusieurs radionucléides naturels (^{212}Pb , ^{214}Pb , ^{214}Bi , ^{208}Tl , ^{228}Ac et ^{40}K) et artificiel (^{137}Cs).....	33
Figure I-10 : Représentation schématique d'un détecteur.	34
Figure I-11 : Représentation schématique de la limite de détection et du seuil de détection.	37
Figure II-1 : Schéma de décroissance du ^{60}Co	39
Figure II-2 : Schéma pour une source étendue.....	40
Figure II-3 : Schéma représentant la méthode de transmission.....	42
Figure II-4 : Photographie du dispositif expérimental ISOCS. Des anneaux en plomb entourent le nez du détecteur. Un ensemble comprenant un collimateur de plomb (longueur 6 cm - diamètre 0,5 cm), un conteneur (FP80) et deux sources radioactives est utilisé.	43
Figure II-5 : Différents conteneurs utilisés.....	44
Figure II-6 : Comparaison des efficacités des trois géométries de conteneurs utilisées dans le groupe RaMSEs.....	45
Figure II-7 : Schéma du dispositif expérimental. d indique la variation de la longueur du collimateur.	46
Figure II-8 : Atténuation totale des photons dans le plomb obtenue par le logiciel XMUDAT.	46
Figure II-9 : Résultats des simulations pour deux longueurs de collimateur.	47
Figure II-10 : Effet de la longueur du collimateur en Pb sur le rapport $\mu_{\text{simulé}}/\mu_{\text{eau}}$ simulé par le code MCNPX.....	48
Figure II-11 : Résultats des simulations en fonction du diamètre de trou du collimateur.....	48
Figure II-12 : Effet du diamètre du trou du collimateur en Pb simulé à l'aide du code MCNPX.....	49
Figure II-13 : Comparaison entre les coefficients d'atténuation massique théorique et expérimentale de l'eau.....	50
Figure II-14 : Variation de l'épaisseur du conteneur FP80 sur le ratio.	51
Figure II-15 : Simulation du coefficient d'atténuation linéique μ_{Ech} pour 10^5 générations. La courbe rouge représente la moyenne. A gauche : Incertitude relative de 2% sur N_{air} et N_{Ech} pour $E_{\gamma} = 50$ keV. A droite : Incertitude relative de 2% sur N_{air} et N_{Ech} pour $E_{\gamma} = 350$ keV.....	52
Figure II-16 : Comparaison du coefficient d'atténuation linéique pour les deux tests d'inter-comparaison par rapport à celui de l'eau.	53
Figure II-17 : Zoom sur les coefficients d'atténuation linéiques pour les deux échantillons d'inter-comparaison et celui de l'eau.	54

Figure II-18 : Graphique représentant la correction CF pour deux matrices de densités différentes	55
Figure II-19 : Courbes représentant les polynômes d'efficacité d'ordre 5 pour le conteneur SG500. Le point vert désigne l'efficacité expérimentale provenant de la solution de KCl.	57
Figure II-20 : Courbe représentant le polynôme d'efficacité d'ordre 5 pour le conteneur FP80. Le point vert indique l'efficacité expérimentale obtenue avec la solution de KCl.	58
Figure III-1 : Familles radioactives naturelles de l' ²³⁸ U, de l' ²³⁵ U et du ²³² Th.....	64
Figure III-2 : Liens entre les grandeurs physiques, les grandeurs de protection et les grandeurs opérationnelles.....	65
Figure III-3 : Spectre expérimental de la brique rouge.	66
Figure III-4 : Les indices de risque pour les échantillons du Maroc.	70
Figure III-5 : Radium équivalent obtenu avec les facteurs de conversion de dose d'UNSCEAR et pour une pièce simulée sans porte et fenêtre pour différents échantillons marocains.	74
Figure III-6 : Représentation de la probabilité d'émission des photons pour le ²²⁶ Ra et ses descendants avec des seuils d'intensité.	75
Figure III-7 : Représentation de la probabilité d'émission des photons pour le ²²⁶ Ra, le ²³⁸ U et leurs descendants.....	76
Figure III-8 : Représentation de la somme des probabilités d'émission des photons pour le ²²⁶ Ra, le ²³⁸ U et leurs descendants.	77
Figure III-9 : Facteurs de conversion de dose en fonction de différents seuils d'intensité sur les γ pour les radioéléments ²²⁶ Ra (a) et ²³² Th (b) et leurs descendants.....	78
Figure III-10 : Facteurs de conversion de dose en fonction de différents seuils d'intensité sur les γ pour les radioéléments ²²⁶ Ra (a) et ²³² Th (b) et leurs descendants.....	82
Figure III-11 : Exemple de différentes sources simulées avec MCNPX pour le radionucléide ⁴⁰ K.	84
Figure III-12 : Représentation schématique de la modélisation réalisée dans par MCNPX pour un sol volumique.....	88
Figure III-13 : Facteurs de conversion de dose en fonction de la profondeur du sol pour différents éléments naturels dans la simulation [67].	89
Figure III-14 : Représentation schématique de la modélisation du découpage du sol par pas de 1 m. .	89
Figure III-15 : Facteur de conversion de dose en fonction du rayon de sol pour le ⁴⁰ K, le ²²⁶ Ra et le ²³² Th et leurs descendants.....	90
Figure III-16 : Localisation des points de prélèvements en Alsace.....	93
Figure III-17 : Activités du ⁴⁰ K (Bq/kg). La droite symbolise la moyenne des activités.	94
Figure III-18 : Activités du ²²⁶ Ra (Bq/kg). La droite symbolise la moyenne des activités.	94
Figure III-19 : Activités du ²³² Th (Bq/kg). La droite symbolise la moyenne des activités.	95
Figure III-20 : Activités du ¹³⁷ Cs (Bq/kg). La droite symbolise la moyenne des activités.....	95
Figure III-21 : Dose efficace annuelle obtenue avec les facteurs de conversion de dose simulés par MCNPX et ceux utilisés par UNSCEAR-2000 pour les échantillons en provenance d'Alsace.....	97
Figure IV-1: Représentation schématique du FALCON 5000 [71].	99
Figure IV-2 : Représentation schématique de l'expérience.....	100
Figure IV-3 : Superposition des spectres expérimentaux obtenus avec l'ISOCS pour trois distances pour une source de ¹³⁷ Cs ponctuelle placée à la surface du sol.	101
Figure IV-4 : Représentation schématique de l'expérience. La source ponctuelle de ¹³⁷ Cs est enterrée et à 1 m des détecteurs.....	101
Figure IV-5 : Superposition des spectres expérimentaux obtenus avec l'ISOCS pour une source de ¹³⁷ Cs ponctuelle placée à la surface du sol puis enterrée sous 7 cm de terre pour une distance source-détecteur de 1 m.	102

Figure IV-6 : Comparaison expérience et simulation pour une source ponctuelle de ^{137}Cs enterrée sous 7 cm et se situant à 1 m du détecteur ISOCS.	102
Figure IV-7 : Taux de comptage des pics d'absorption totale en fonction de chaque composition de sol simulé par MCNPX pour le détecteur ISOCS.	103
Figure IV-8 : Représentation schématique du dispositif expérimental pour le détecteur ISOCS.	104
Figure IV-9 : Efficacité de détection simulée par MCNPX pour une source surfacique pour le détecteur ISOCS.....	104
Figure IV-10 : Représentation schématique du dispositif expérimental avec introduction d'un sol volumique pour le détecteur ISOCS.....	105
Figure IV-11 : Efficacité de détection simulée par MCNPX pour une source volumique d'épaisseur 5 cm pour le détecteur ISOCS.....	105
Figure IV-12 : Efficacité de détection simulée par MCNPX pour différentes sources volumiques pour le détecteur ISOCS. A gauche, zoom pour un rayon de sol entre 0 et 10 m. A droite, zoom pour un rayon de sol entre 10 et 50 m.....	106
Figure IV-13 : Spectre représentant le nombre de coups en fonction du taux d'humidité pour un pic d'absorption totale d'énergie 100 keV obtenu par MCNPX pour un rayon de sol de 1 m et d'une profondeur de 20 cm.....	107
Figure IV-14 : Spectre représentant le nombre de coups en fonction du taux d'humidité pour un pic d'absorption totale d'énergie 662 keV obtenu par MCNPX pour un rayon de source de 1 m et de 20 cm de profondeur.....	108
Figure IV-15 : Situation des mesures autour du CNPE de Dampierre.....	109
Figure IV-16 : Zoom sur un spectre énergétique pendant une mesure in situ de 1800 s.....	109
Figure IV-17 : Photographie représentant deux types de terrain rencontrés pendant l'expertise autour du CNPE de Dampierre. A gauche, terrain non remanié, à droite, terrain remanié.	110
Figure IV-18 : Efficacités simulées correspondant à trois profondeurs de sol pour la détermination des activités des radioéléments par le détecteur ISOCS à l'aide de MCNPX.	110
Figure IV-19 : Exemple d'un point de mesure zone boisée avec les deux détecteurs.....	111
Figure IV-20 : Comparaison des activités du ^{137}Cs (Bq/kg) obtenues par spectrométrie γ en laboratoire et in situ pour une profondeur de sol simulée de 20 cm.	114
Figure IV-21 : Dépôts de ^{137}Cs en France consécutifs à l'accident nucléaire de Tchernobyl en mai 1986 [72].	115
Figure IV-22 : Photographie du site de mesure : FALCON à gauche et ISOCS à droite du Big-Bag.....	117
Figure IV-23 : Représentation 3D avec « Geometry Composer » d'un Big-Bag et du détecteur ISOCS avec son collimateur.....	118

Table des tableaux

Tableau I-1 : Classification des rayonnements ionisants.....	23
Tableau I-2 : Résumé des différents processus d'interaction rayonnement- matière [2].	24
Tableau II-1: Effet de l'incertitude relative de comptage sur le coefficient d'atténuation de l'échantillon.....	52
Tableau II-2 : Rapport des coefficients d'atténuation linéiques obtenus pour les tests d'inter-comparaison par rapport à ceux de l'eau.	54
Tableau II-3 : Tests d'inter-comparaison des activités [24].	55
Tableau II-4 : Conditions sur les écarts relatifs et normalisés d'après NF ISO/CEI 43-1.....	56
Tableau III-1: Valeurs des facteurs de pondération radiologiques.....	62
Tableau III-2 : Raies γ utilisées pour déterminer les activités du ^{226}Ra , du ^{232}Th et du ^{40}K	66
Tableau III-3: Les activités ^{226}Ra , ^{232}Th et ^{40}K obtenues pour les matériaux de construction du Maroc.	67
Tableau III-4 : Valeurs de Ra_{eq} pour les matériaux de construction du Maroc.	68
Tableau III-5 : Ra_{eq} dans les différents matériaux de construction en provenance d'autres pays du monde.	69
Tableau III-6 : Débit de dose absorbée pour les échantillons de provenance du Maroc.	71
Tableau III-7 : Dose efficace annuelle pour les échantillons marocains.	71
Tableau III-8 : Facteurs de conversion de dose obtenus par simulations avec MCNPX pour une pièce constituée de brique ou de béton de même densité (2,35).....	73
Tableau III-9 : Valeurs de Ra_{eq1} pour les matériaux de construction du Maroc.....	75
Tableau III-10 : Facteurs de conversion de dose [64]	77
Tableau III-11 : Rapports d'embranchement pour les énergies les plus importantes des chaînes du ^{226}Ra , du ^{232}Th et du ^{40}K	79
Tableau III-12 : Facteurs de conversion de dose obtenus par simulations avec MCNPX pour une pièce contenant une porte et une fenêtre en vis-à-vis. Cette pièce est constituée de brique ou de béton de même densité (2,35).	80
Tableau III-13 : Valeurs de Ra_{eq1} pour les matériaux de construction du Maroc.....	81
Tableau III-14 : Facteurs de conversion de dose obtenus pour une pièce contenant une porte et une fenêtre en vis-à-vis. Cette pièce est constituée de brique et de béton de différentes densités pour les murs, le sol et le plafond.	83
Tableau III-15 : Facteurs de conversion de dose obtenus par simulations avec MCNPX pour une pièce de dimensions $4 \times 4 \times 3 \text{ m}^3$ contenant une porte et une fenêtre en vis-à-vis avec application de seuils d'intensité 1%, 5% et 10% sur les γ	83
Tableau III-16 : Débits de dose absorbée calculés avec les facteurs de conversion de dose donnés par le rapport UNSCEAR et ceux simulés pour les échantillons marocains.	85
Tableau III-17 : Débits de dose absorbée calculés avec les radiums équivalents décrit dans le rapport UNSCEAR 2000 et ceux simulés pour les échantillons marocains.	86
Tableau III-18 : Comparaison des doses efficaces annuelles obtenues avec les facteurs de conversion de dose provenant du rapport UNSCEAR 2000 et ceux obtenus par simulations de pièces avec et sans ouverture.....	87

Tableau III-19 : Comparaison des doses efficaces annuelles obtenues avec le radium équivalent défini dans le rapport UNSCEAR 2000 et ceux obtenus par simulations de pièces avec et sans ouvertures..	87
Tableau III-20 : Facteurs de conversion de dose pour différentes compositions de sol [68] avec une densité 1,7.....	91
Tableau III-21 : Facteurs de conversion de dose pour différentes compositions de sol [68] de densité 1,3.....	91
Tableau III-22 : Facteurs de conversion de dose pour la dosimétrie des prélèvements de sol.....	92
Tableau III-23 : Débits de dose absorbée obtenus avec les facteurs de conversion de dose simulés par MCNPX et ceux utilisés par UNSCEAR-2000 pour les échantillons en provenance d'Alsace.....	96
Tableau IV-1 : Pourcentage massique des éléments contenus dans les sols selon le taux d'humidité.	107
Tableau IV-2 : Efficacité perdue suivant la profondeur du sol et le taux d'humidité.	108
Tableau IV-3 : Activités surfaciques (Bq/m ²) obtenues pour les points 14 et 23, zones boisées.	111
Tableau IV-4 : Activités du ¹³⁷ Cs (Bq/kg) pour des efficacités associées à des profondeurs de sol simulées de 5 et 20 cm.	112
Tableau IV-5 : Activités massiques pour le ⁴⁰ K, le ²³² Th et le ²²⁶ Ra obtenues par spectrométrie γ in situ pour Dampierre.....	113
Tableau IV-6 : Activités massiques (Bq/kg) des éléments naturels ⁴⁰ K, ²³² Th, ²²⁶ Ra obtenues par spectrométrie γ en laboratoire pour Dampierre.	115
Tableau IV-7 : Activités massiques (Bq/kg) pour les éléments ⁴⁰ K, ²³² Th, ²²⁶ Ra et ¹³⁷ Cs obtenues par spectrométrie γ en laboratoire pour Dampierre et l'Alsace.....	115
Tableau IV-8 : Activités massiques moyennes (Bq/kg) pour les éléments ⁴⁰ K, ²³² Th, ²²⁶ Ra pour différents pays.	116
Tableau IV-9 : Caractéristiques des Big-Bag analysés.	117
Tableau IV-10 : Activités moyennes mesurées par ISOCS et FALCON pour les Big-Bag.....	118
Tableau IV-11 : Activités massiques (Bq/kg) des éléments naturels obtenues par spectrométrie γ en laboratoire pour le Big-Bag n°11 Rouge.....	119
Tableau IV-12 : Activités massiques (Bq/kg) des éléments naturels obtenues par spectrométrie γ en laboratoire pour le Big-Bag n°12 Rouge.....	119
Tableau IV-13 : Activités massiques (Bq/kg) des éléments naturels obtenues par spectrométrie γ en laboratoire pour le Big-Bag n°12 Bleu.....	120

Glossaire

GeHP	Germanium Hyper Pur
S_{tot}	Pouvoir d'arrêt total
E_e	Energie cinétique du photo-électron
E_γ	Energie du photon
B_e	Energie de liaison de l'électron dans l'atome
Z	Numéro atomique de la cible
r_0	rayon classique de l'électron
E_0	Energie de l'électron au repos
$\sigma_{\text{E.P}}$	Section efficace de l'effet photoélectrique
E'_γ	Energie du photon diffusé
$\sigma_{\text{D.C}}$	Section efficace de la diffusion Compton
θ	Angle de diffusion
Ω	Angle solide
$\sigma_{\text{C.P}}$	Section efficace de création de paire
α	Constante de structure fine
σ_{Total}	Section efficace totale
μ	coefficient d'atténuation linéique
n	Nombre atomes par unité de volume
ρ	Masse volumique du matériau
M_A	Masse molaire du matériau
N_A	Nombre d'Avogadro
C	Numéro du canal
a,b,c	Constantes
σ_E	Ecart-type
ε_{abs}	Efficacité absolue
x_d	Distance parcourue dans le détecteur
ε_{tot}	Efficacité totale
ε_{int}	Efficacité intrinsèque
A	Activité de l'échantillon
$n_{\text{N,E}}$	Nombre de coup net dans le pic d'absorption totale à une énergie donnée
t_g	Temps de comptage
P_E	Probabilité d'émission d'un rayonnement γ à une énergie donnée
ε_E	Efficacité de détection à une énergie donnée

σ_A	Incertitude absolue de l'activité
K_c	Facteur de correction du temps de décroissance durant l'acquisition
$T_{1/2}$	Temps de demi-vie du radioélément
t_c	Temps réel de l'acquisition
K_w	Facteur de correction du temps de décroissance du radioélément entre l'instant où l'échantillon a été prélevé et le début de l'acquisition
t_w	Temps de début de l'acquisition
SD	Seuil de détection
LD	Limite de détection
k_α	Facteur d'élargissement correspondant au niveau de confiance (1- α)
σ_0	Ecart-type en rapport avec la surface nette du pic dans laquelle il n'y a pas de coup signal
k_β	Facteur d'élargissement correspondant au niveau de confiance (1- β)
σ_D	Ecart-type en rapport avec la surface nette du pic lorsque la surface est égale à la LD
N_0	Nombre de photon émis
S	Section associée à dx de la source
V	Volume de la source
C_F	Facteur de correction de l'auto-absorption
h	Hauteur du conteneur
N_{Air}	Nombre de coups nets dans le pic d'absorption totale de l'air
N_{Ech}	Nombre de coups nets dans le pic d'absorption totale de l'échantillon
μ_{Air}	Coefficient d'atténuation linéique de l'air
μ_{Ech}	Coefficient d'atténuation linéique de l'échantillon
ISOCS	In Situ Object Counting System
BEGe	Broad Energy Germanium
SG500	Spectrométrie Gamma 500 cm ³
FP80	Face Plastique 80 cm ³
E_R	Erreur relative
R	Ecart type de la variable y
\bar{y}	Valeur moyenne de la variable y
N_n	Nombre d'histoire traitée
μ_m	Coefficient d'atténuation massique
Z_{eff}	Z effectif
μ_1	Coefficient d'atténuation linéique échantillon de d=1,2
μ_2	Coefficient d'atténuation linéique échantillon de d=1,6
A_{ref}	Activité de référence
A_{ssCF}	Activité sans C_F
A_{CF}	Activité avec C_F
e	Ecart relatif

E	Ecart normalisé
E_{Nerst}	Potentiel mesuré
E_{ind}	Potentiel électrode indicatrice
E_{ref}	Potentiel électrode de référence
D_{abs}	Dose absorbée
κ	Kerma
H_T	Dose équivalente
W_R	Facteur de pondération affecté au rayonnement
$D_{T,R}$	Dose absorbée dans le tissu T
W_T	Facteur de pondération tenant compte de la radiosensibilité relative des tissus
\dot{H}_T	Débit d'équivalent de dose
H^*	Equivalent de dose ambiant
H'	Equivalent de dose directionnel
H_p	Equivalent de dose individuelle
Ra_{eq}	Radium équivalent
A_{Ra}	Activité ^{226}Ra
A_{Th}	Activité ^{232}Th
A_K	Activité ^{40}K
H_{ex}	Indice de risque externe
H_{in}	Indice de risque interne
\dot{D}	Débit de dose absorbée
F_{Ra}	Facteur de conversion de dose pour la chaîne du ^{226}Ra
F_{Th}	Facteur de conversion de dose pour la chaîne du ^{232}Th
F_K	Facteur de conversion de dose pour ^{40}K
\dot{E}	Dose efficace annuelle
\dot{E}_T	Dose efficace annuelle totale
\dot{D}_T	Débit total de dose absorbée
ϕ	Fluence
$F_{\text{béton}}$	Facteur de conversion de dose pour le béton
$F_{\text{modèle}}$	Facteur de conversion de dose du modèle
Ra_{eq1}	Radium équivalent simulé pour une pièce sans ouverture
Ra_{eq2}	Radium équivalent simulé pour une pièce avec ouverture
F_c	Facteur de conversion de dose

Introduction

L'exposition des êtres humains aux rayonnements ionisants à partir de sources naturelles est un élément permanent et incontournable de la vie sur la Terre. Pour la plupart des individus, cette exposition est supérieure à celle de toutes les sources artificielles combinées. Les deux principaux contributeurs à l'exposition aux rayonnements naturels sont les rayons cosmiques de haute énergie et les radioéléments provenant de l'écorce terrestre (^{40}K , familles ^{232}Th , ^{235}U et ^{238}U) qui sont présents dans l'environnement y compris dans le corps humain. La population mondiale est également exposée aux rayonnements résultant des rejets dans l'environnement de matières radioactives provenant de sources artificielles et de l'utilisation des combustibles ou des matières contenant naturellement des radionucléides.

Au siècle dernier, l'humanité a produit de manière significative des radionucléides artificiels. Cet accroissement est principalement lié au milieu médical, aux essais atmosphériques de bombes nucléaires et à l'utilisation des réacteurs nucléaires. Les radionucléides provenant des essais sont les ^{131}I , ^{133}I , ^{137}Cs , ^{134}Cs , ^{95}Zr , ^{141}Ce , ^{95}Nb , ^{132}Te [1]. Ce sont les retombées des accidents nucléaires (Tchernobyl en 1986 et Fukushima en 2011) comme ^{131}I et ^{137}Cs [1] qui contribuent majoritairement à l'exposition humaine aux rayonnements. Au niveau mondial, la contribution moyenne de l'exposition humaine aux sources artificielles est d'un ordre de grandeur inférieur à celle liée à la radioactivité naturelle. Cependant, à l'échelle régionale, les débits de doses artificielles peuvent être plus élevés [1].

Ainsi selon le type de rayonnement et la dose reçue, les effets peuvent être plus ou moins nuisibles pour la santé. L'exposition à la radioactivité se manifeste ainsi de deux manières : expositions externes et expositions internes.

La radioprotection décrit l'ensemble des mesures prises par les pouvoirs publics pour assurer la protection de l'homme et de son environnement contre les effets néfastes de ces rayonnements. La dosimétrie occupe une place importante dans ce domaine, car elle permet d'évaluer et de quantifier le risque lié à l'exposition aux rayonnements en adéquation avec les limites réglementaires.

Avec la baisse des niveaux tolérables de la radioactivité, il est nécessaire de développer et d'améliorer constamment les techniques d'analyses existantes. Dans ce cadre, le groupe de Radioprotection et Mesures Environnementales (RaMsEs) de l'Institut Pluridisciplinaire Hubert Curien (IPHC) de Strasbourg améliore régulièrement la sensibilité de détection de ses moyens de mesure pour répondre aux nouvelles exigences réglementaires et pour étendre sa gamme de mesure aux faibles radioactivités.

C'est dans ce contexte que mon sujet de thèse s'inscrit. Il s'agit du développement de méthodes d'analyses fines par spectrométrie γ dans le cadre de mesures de la radioactivité dans l'environnement. La première partie porte sur l'application de la spectrométrie γ sur des échantillons de matériaux de construction et de sols avec optimisation du dispositif expérimental existant. La deuxième partie utilise ce nouveau dispositif afin d'établir les grandeurs de protections de ces échantillons. La troisième partie traite la spectrométrie γ in situ pour la caractérisation de sites.

La spectrométrie γ , à l'aide de détecteurs en Germanium Hyper Pur (GeHP), permet d'identifier en une seule mesure plusieurs radioéléments émetteurs γ présents dans un échantillon. Dans le processus d'analyse de la radioactivité par spectrométrie γ , l'étalonnage en rendement de détection de la chaîne

est primordial à l'aide d'un étalon le plus approchant possible de l'échantillon (géométrie, matrice, etc.). Pour des échantillons volumineux, l'auto-atténuation des photons dans l'échantillon et les interférences dues aux pics-sommes sont deux facteurs d'importance fondamentale.

L'auto-absorption γ conduit à une variation du nombre d'impulsions dans l'aire du pic d'absorption totale impactant ainsi la valeur de l'activité de l'échantillon. Ce phénomène dépend à la fois de la densité et de la composition de l'échantillon et de l'énergie du photon. Pour évaluer cet effet, divers travaux expérimentaux et/ou théoriques ont été réalisés. Dans ce travail, nous avons appliqué la méthode de transmission pour déterminer le coefficient d'atténuation massique de l'échantillon afin d'évaluer la correction due à l'auto-absorption. Le dispositif expérimental a été optimisé au préalable par des simulations Monte Carlo. Cette étude a permis de déterminer les activités des radioéléments dans différents échantillons solides (matériaux de construction, sols et résidus).

Outre son utilisation en laboratoire, la spectrométrie γ peut être appliquée à des mesures in situ. Compte tenu de la taille infinie de la source et de l'indisponibilité de l'étalon, des simulations Monte Carlo ont été indispensables. Dans cette optique, une étude approfondie sur l'efficacité de détection en fonction des dimensions et de la composition de la source a été effectuée.

Le présent manuscrit est scindé en quatre chapitres. Le premier, consacré à la spectrométrie γ , décrit la méthode et son application. Diverses notions sont rappelées concernant l'interaction des photons avec la matière et le principe de la spectrométrie γ .

Le deuxième chapitre traite l'effet de l'auto-absorption γ et l'optimisation du dispositif expérimental mis en place en introduisant un nouveau conteneur type FP80. Cette étude a été validée par des tests d'inter-comparaison.

Dans le troisième chapitre, une application directe de la correction de l'auto-absorption a été réalisée pour finaliser la dosimétrie des rayonnements ionisants dans des matériaux de construction en provenance du Maroc et dans des sols alsaciens. Dans ce cadre, le radium équivalent ainsi que les grandeurs de radioprotection ont été évalués. Les résultats obtenus ont été complétés par des simulations Monte Carlo.

Le quatrième chapitre est consacré à la spectrométrie γ in situ. Plusieurs paramètres (répartition des photons surfaciques et volumiques, la composition du sol et l'impact de l'humidité) influençant l'efficacité de détection ont donc été étudiés. Comme applications, cette étude a permis de réaliser une cartographie radiologique autour d'un Centre National de Production d'Electricité (CNPE) et d'estimer le risque radiologique de la radioactivité naturelle renforcée auprès de l'usine CRISTAL (Haut-Rhin).

Chapitre 1 :

Interactions photon-matière et spectrométrie γ

I. Caractéristiques des rayonnements ionisants

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

Un rayonnement est dit ionisant quand il est susceptible d'arracher des électrons à la matière. L'équivalent en énergie correspond à 12,4 eV. Parmi ces rayonnements, on distingue ceux qui sont directement ionisants, particules chargées (α , β , ions, etc.), de ceux qui sont dits indirectement ionisants car n'étant pas chargés (γ , n) ; ils n'ionisent la matière que par l'intermédiaire de particules chargées ionisantes qu'ils créent dans le milieu. Dans le tableau I-1 sont classés les différents types de rayonnements selon leurs natures et spectres caractéristiques.

	Spectres de raies	Spectres continus
Rayonnements indirectement ionisants	γ , X de fluorescence	X de freinage, neutrons
Rayonnements directement ionisants	α , électrons Auger	β^- , β^+

Tableau I-1 : Classification des rayonnements ionisants.

L'ionisation est le phénomène au cours duquel un électron est arraché à l'atome à la suite d'un transfert d'une énergie supérieure à son énergie de liaison ; il crée un ion positif et un électron susceptible d'ioniser à son tour si son énergie est suffisante. Après l'ionisation, l'ion positif subit généralement un réarrangement de son cortège électronique, aboutissant à l'émission de rayons X de fluorescence ou plus rarement à l'expulsion d'électrons Auger. Lorsque le transfert d'énergie n'est pas suffisant pour provoquer le départ d'un électron, il s'agit d'excitation ; cet état est transitoire et ultérieurement, l'atome subit un réarrangement analogue à celui décrit pour l'ionisation.

Le tableau I-2 résume les différents processus d'interaction rayonnement matière et leurs conséquences.

Rayonnement	Type du processus	Conséquence après interaction
Particules chargées α, β	Ionisation	Mise en mouvement d'électrons du matériau absorbant.
	Excitation	Réorganisation du cortège électronique: émission de rayons X et/ou e^- Auger
	Rayonnement de freinage (β)	Emission d'un rayon X de freinage (spectre continu)
	Cas particulier en fin de parcours des (β^+) : annihilation de la matière	Emission de 2 photons de 511 keV en sens opposé
photons γ, X	Effet photoélectrique (faible énergie)	Absorption totale du photon incident et émission d'un photoélectron Réorganisation du cortège électronique: émission de rayons X et/ou e^- Auger.
	Effet Compton (énergies intermédiaires)	Diffusion du photon incident et éjection d'un électron Compton Réorganisation du cortège électronique: émission de rayons X et/ou e^- Auger
	Effet de production de paires ($E > 1,022$ MeV)	Absorption totale du photon incident et mise en mouvement d'une paire e^-/e^+ Emission de 2 photons de 511 keV en sens opposé après annihilation
Neutrons	Absorption (n thermiques)	Emission d'un rayonnement de type : n, p, α, γ
	Diffusion (n rapides)	Diffusion du n incident / projection du noyau de recul

Tableau I-2 : Résumé des différents processus d'interaction rayonnement- matière [2].

Lors de leur traversée dans la matière, les rayonnements directement ionisants subissent deux sortes d'interaction : avec les électrons du milieu, la force coulombienne conduit à une "collision" au cours de laquelle une partie de l'énergie incidente est transférée à la cible. Avec les noyaux du milieu, la force d'attraction ou de répulsion entraîne une déviation par rapport à la direction initiale et ce changement conduit à l'émission d'un rayonnement X de freinage. La matière agit donc comme un ralentisseur caractérisé par un pouvoir d'arrêt : un écran d'une épaisseur convenablement calculée, arrêtera donc toutes les particules chargées incidentes. On définit le pouvoir d'arrêt total exprimé généralement en MeV/cm :

$$S_{\text{tot}} = \frac{dE}{dx} = \left(\frac{dE}{dx}\right)_{\text{elec}} + \left(\frac{dE}{dx}\right)_{\text{nucl}} \quad 1.1$$

Le pouvoir d'arrêt dépend du type de la particule, de son énergie et des propriétés de la matière traversée (densité et nombre de charge).

A l'inverse des particules chargées, les rayonnements indirectement ionisants ne sont pas soumis à des interactions de caractère obligatoire : l'interaction d'un photon, par exemple, avec la matière, obéit au hasard et aura une probabilité non nulle de traverser sans interaction une épaisseur de matière aussi grande soit-elle. On ne parlera plus de pouvoir d'arrêt mais de coefficient d'atténuation μ .

En 1900, Paul Villard [1860-1934], physicien français [3], a mis en évidence le rayonnement γ provenant du radium. Ce rayonnement capable de traverser une faible épaisseur de plaque de Pb est insensible aux champs magnétiques. De même nature physique que le rayonnement X, il se différencie par son origine. Contrairement au rayon X qui est émis lors d'une transition entre couches électroniques d'un atome, le rayon γ est produit par une transition nucléaire.

Grâce à son pouvoir ionisant et sa capacité à pénétrer profondément dans la matière, le rayonnement γ est utilisé dans de nombreuses applications : en radiothérapie (traitement des tissus cancéreux), en stérilisation (domaine pharmaceutique), en ionisation (conservation des aliments), pour l'étude du vieillissement et la tenue aux radiations des matériaux pour les différentes activités nucléaires, etc.

II. Interactions photons-matière

Les principales interactions des photons avec la matière sont : l'effet photoélectrique, la diffusion Compton et la création de paires électron-positron.

D'autres interactions moins importantes peuvent également se produire : la diffusion Rayleigh avec un électron lié (photon diffusé possédant la même énergie que le photon incident mais avec un changement de direction) et la diffusion Thomson avec un électron libre.

Ces effets sont régis par des probabilités d'interactions traduites par des sections efficaces σ .

II.1. Effet photoélectrique

Heinrich Rudolph Hertz [1857-1894], ingénieur et physicien allemand [4], découvre en 1886 l'effet photoélectrique. Une plaque de métal soumise à un rayonnement lumineux peut émettre des électrons, dont la quantité dépend entre autres de l'intensité lumineuse.

Ses travaux, poursuivis par Wilhelm Hallwachs, joueront un rôle important dans l'hypothèse des quantas de lumière formulée par Max Planck et développée par Albert Einstein.

Un photon complètement absorbé par un électron lié lui transmet toute son énergie. L'électron est alors éjecté de son atome (figure I-1). L'énergie cinétique de ce photoélectron (E_e) correspond à l'énergie du photon (E_γ) moins l'énergie de liaison de l'électron (B_e) dans l'atome :

$$E_e = E_\gamma - B_e \quad 1.2$$

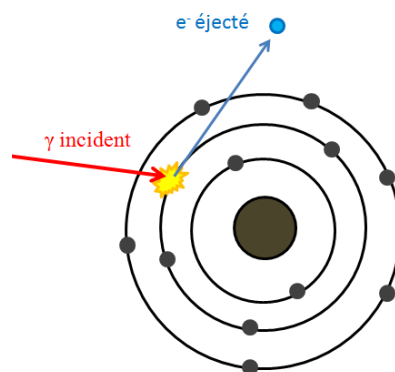


Figure I-1 : Schéma représentant l'effet photoélectrique.

La section efficace ($\sigma_{E,P}$) de cette interaction qui traduit la probabilité qu'une réaction ait lieu, dépend du numéro atomique de la cible (c'est-à-dire de la taille du nuage électronique) et de l'énergie du photon incident. Cet effet est prépondérant pour les rayons γ de basse énergie ($E \leq 0,2$ MeV). La section efficace de l'effet photoélectrique pour la couche K est donnée par la relation suivante :

$$\sigma_{E,P} = \frac{Z^2}{(137)^4} \frac{8\pi r_0^2}{3} 4\sqrt{2} \left(\frac{E_\gamma}{E_0}\right)^{-7/2} \quad 1.3$$

avec Z : numéro atomique de la cible,
 r_0 : rayon classique de l'électron (2,818 fm),
 $E_0 = m_e c^2 = 0,511$ MeV : énergie de l'électron au repos,
 E_γ : énergie du photon incident.

De façon générale, quelle que soit la couche, une approximation par atome peut se faire :

$$\sigma_{E,P} \propto \frac{Z^{4,35}}{E_\gamma^3} \quad 1.4$$

L'effet photoélectrique est suivi d'un réarrangement du cortège électronique. Un électron d'une couche supérieure vient ainsi combler l'orbite vacante du photoélectron. Ceci peut se traduire soit par l'émission d'un ou de plusieurs photons dans le domaine des rayons X (en-dessous de 100 keV), soit par capture de ce photon par l'atome et l'éjection d'un électron périphérique (émission Auger).

II.2. Diffusion Compton

Arthur Compton [1892-1962], physicien américain [4], étudie la diffusion des rayons X en utilisant le graphite. Il met en évidence, en 1922, l'augmentation de la longueur d'onde (λ) d'un rayonnement électromagnétique de grande énergie lors de sa diffusion par les électrons des atomes. La découverte de cet effet et l'explication qu'il en donne confirment que le rayonnement électromagnétique peut, dans certaines circonstances, présenter un comportement corpusculaire (γ).

Ce phénomène se manifeste par une absorption partielle de l'énergie E_γ du photon incident par un électron lié ou peu lié. Cette interaction peut être représentée comme une collision élastique (figure I-2), où l'électron recule avec une énergie cinétique E_e et le photon γ est diffusé avec une énergie E'_γ . Les grandeurs E'_γ et $E_e = E_\gamma - E'_\gamma$ sont obtenues par les relations de conservation de l'énergie et de l'impulsion. E'_γ est définie par l'équation suivante :

$$E'_\gamma = \frac{E_\gamma}{1 + \frac{E_\gamma}{E_0}(1 - \cos \theta)} \quad 1.5$$

avec θ : l'angle de diffusion du photon γ .

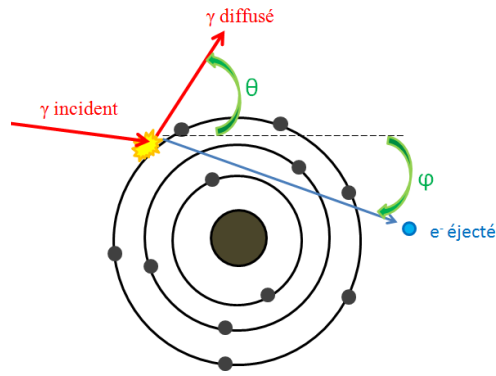


Figure I-2 : Schéma représentant la diffusion Compton.

Au contraire de l'effet photoélectrique, la section efficace ($\sigma_{D,C}$) de l'effet Compton est proportionnelle au numéro atomique Z de l'atome cible. Elle se comporte à haute énergie par atome comme :

$$\sigma_{D,C} \propto \frac{Z}{E_\gamma} \quad 1.6$$

La distribution angulaire des photons diffusés est décrite par la formule de Klein Nishina. La section efficace différentielle par angle solide et par électron en fonction de l'énergie du photon incident et de l'angle de diffusion θ est donnée par l'équation 1.7 :

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \frac{1}{2} r_0^2 \left(\frac{1}{(1+\epsilon(1-\cos\theta)^2)} \left(1 + \cos^2\theta + \frac{\left(\frac{E_\gamma}{E_0}\right)^2 (1-\cos\theta)^2}{1+\frac{E_\gamma}{E_0}(1-\cos\theta)^2} \right) \right) \quad 1.7$$

La figure I-3 représente la distribution angulaire des photons diffusés pour plusieurs énergies obtenue par le logiciel Mathematica [5]. La figure montre que plus l'énergie incidente est importante, plus la diffusion des photons s'effectue vers l'avant.

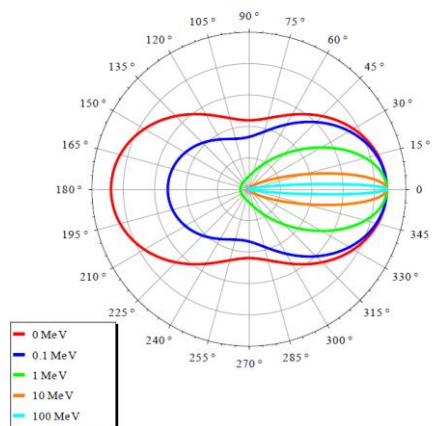


Figure I-3 : Représentation de la section efficace différentielle en fonction de l'angle de diffusion pour cinq énergies [6].

A faibles énergies, la section efficace Compton est proportionnelle à la section efficace Thomson.

II.3. Création de paire

Ce phénomène, appelé aussi matérialisation, a été découvert en 1933 par Patrick Maynard Stuart Blackett [1897-1974] physicien britannique [4]. Il consiste en la création d'une paire électron-positron lorsqu'un photon interagit avec le champ coulombien d'un noyau. Il n'est possible que si l'énergie du photon est supérieure à deux fois la masse de l'électron au repos soit 1,022 MeV. Cet effet donne lieu à l'émission de rayonnements secondaires. En effet, en fin de ralentissement, le positron s'annihile avec un électron au repos du milieu, en émettant deux photons d'annihilation d'énergie 511 keV. La section efficace de ce processus ($\sigma_{C,P}$) est donnée par :

$$\sigma_{C,P} = \alpha r_0^2 Z^2 \left[\frac{28}{9} \ln \left(\frac{2E_\gamma}{E_0} \right) - \frac{218}{27} \right] \quad \text{si } 2E_0 < E_\gamma < \frac{E_0}{\alpha} Z^{-\frac{1}{3}} \quad 1.8$$

$$\sigma_{C,P} = \alpha r_0^2 Z^2 \left[\frac{28}{9} \ln \left(183Z^{-\frac{1}{3}} \right) - \frac{2}{27} \right] \quad \text{si } E_\gamma > \frac{E_0}{\alpha} Z^{-\frac{1}{3}} \quad 1.9$$

La section efficace de matérialisation se comporte à haute énergie par atome comme :

$$\sigma_{C,P} \propto Z^2 \ln \left(\frac{2E_\gamma}{E_0} \right) \quad 1.10$$

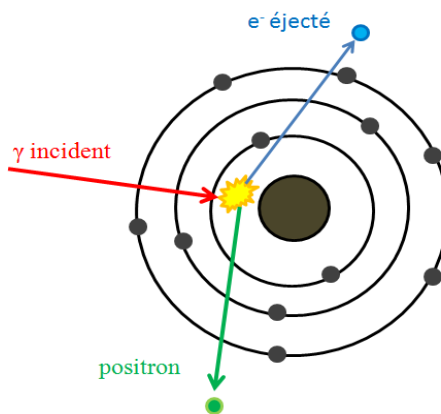


Figure I-4 : Schéma représentant la création de paire.

III. Section efficace totale d'interaction et coefficient d'atténuation

Pour un photon incident, la probabilité de déposer partiellement ou totalement son énergie dans la matière par un processus donné est liée à la section efficace atomique mesurée en barns ($= 10^{-24} \text{ cm}^2$). La section efficace totale σ_{Total} pour un photon d'énergie donnée correspond à la somme des sections efficaces $\sigma_{E,P}$, $\sigma_{D,C}$ et $\sigma_{C,P}$:

$$\sigma_{\text{Total}} = \sigma_{E,P} + \sigma_{D,C} + \sigma_{C,P} \quad 1.11$$

L'atténuation des photons est exprimée par le coefficient d'atténuation linéique μ qui représente la fraction des photons incidents interagissant par unité de longueur. Ce coefficient tenant compte de la section efficace totale est donné par la formule suivante :

$$\mu = \sigma_{\text{Total}} n = \sigma_{\text{Total}} \frac{\rho N_A}{M_A} \quad 1.12$$

avec n : nombre atomes par unité de volume,
 ρ : la masse volumique,
 M_A : la masse molaire du matériau,
 N_A : le nombre d'Avogadro.

Il est aussi possible de définir le coefficient d'atténuation massique noté μ/ρ en cm^2/g . La figure I-5 représente le coefficient d'atténuation massique des photons dans le germanium (Ge) calculé avec le programme XCOM[7]. On constate une prédominance de l'effet photoélectrique dans les basses énergies, de la création de paire électron-positron dans les hautes énergies et de la diffusion Compton pour les moyennes énergies.

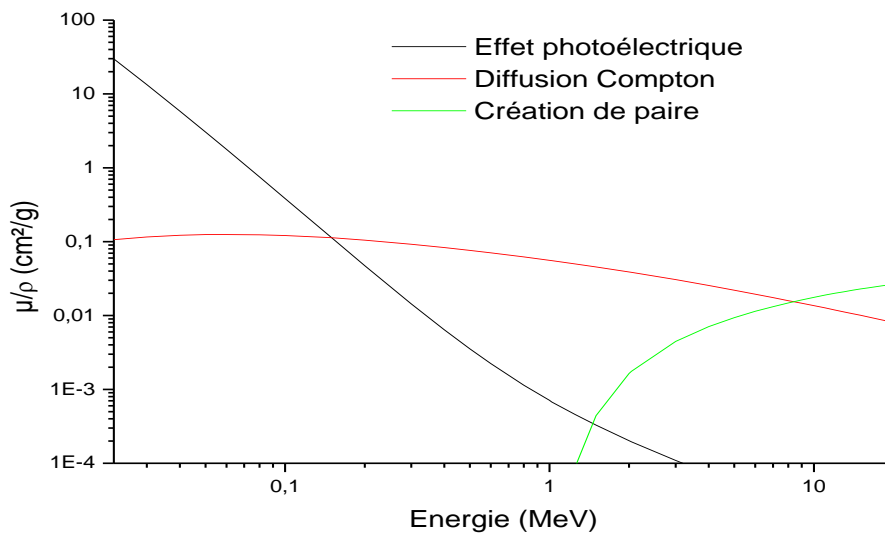


Figure I-5 : Coefficient d'atténuation massique en fonction de l'énergie des photons pour les différentes interactions dans le cas du Ge obtenu par XCOM [7].

La gamme d'énergie des photons qui nous intéresse se situe entre 30 keV et 3 MeV.

IV. Détection des photons

La détection des rayonnements directement et indirectement ionisants est basée sur l'interaction de ces derniers avec la matière constituant le détecteur. Les détecteurs électroniques de type semi-conducteurs occupent une place importante en métrologie des rayonnements. Ils exploitent l'ionisation ou l'excitation atomique lors de l'interaction des photons avec la matière pour une analyse électronique de leurs énergies.

La spectrométrie γ à base des cristaux GeHP offre un outil performant pour la détection des photons. C'est avec cette technique que les travaux de recherche de cette thèse ont été réalisés.

IV.1. Caractéristiques du cristal Ge

Le Ge est un élément chimique tétravalent (quatre électrons périphériques - 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 ($1,7 \cdot 10^{-6} \Omega \cdot \text{cm}$).

Pour obtenir un GeHP, le Ge sous forme de barre est raffiné par fusion en passant dans des bobines inductrices [8]. La barre fond alors localement et les impuretés se concentrent dans la zone fondue avant que celle-ci se resolidifie. Ainsi les impuretés vont s'accumuler à l'extrémité de la barre. Elles sont supprimées par cisaillement avant retraitement. Puis les lingots obtenus sont fusionnés dans un bain avec des dopants pour ralentir la croissance cristalline et permettre ainsi d'obtenir de gros cristaux. Les techniques d'affinage ont conduit à la production de Ge de pureté 10^{-9} soit 0,1 ppb (partie par milliard) d'impureté.

IV.2. Détecteurs semi-conducteurs

Les cristaux GeHP, en spectrométrie γ , existent sous forme de trois types qui sont : planaires, coaxiaux et puits. Chacun de ces détecteurs est adapté à un type d'échantillon ou de radionucléides donné.

Les détecteurs planaires ont une forme de galette dont le schéma est représenté sur la figure I-6 (gauche). Ces détecteurs, dont l'épaisseur maximale du cristal est d'environ 3 cm, associés à une fenêtre d'entrée en carbone, sont utilisés pour la détection de photons de faibles énergies (figure I-7) avec une efficacité d'environ 30%. Ces détecteurs sont adaptés pour des échantillons minces.

Concernant les échantillons volumineux, il est préférable d'utiliser des détecteurs coaxiaux (figure I-6 -centre). De forme cylindrique avec une partie centrale creuse, ce type de détecteur possède une fenêtre en béryllium ou en aluminium. Ils sont adaptés aux mesures des photons de hautes énergies (figure I-7) avec une efficacité de l'ordre de 15%.

Si l'échantillon est en très faible quantité, il est souhaitable de le mesurer avec un détecteur puits, qui permet ainsi d'obtenir une grande efficacité géométrique (~80%). Les détecteurs puits (figure I-6-droite) ont la même configuration que les détecteurs coaxiaux mais contrairement à ces derniers, le trou central sert à réceptionner l'échantillon d'un volume maximal de 5 cm^3 . La fenêtre d'entrée est en aluminium.

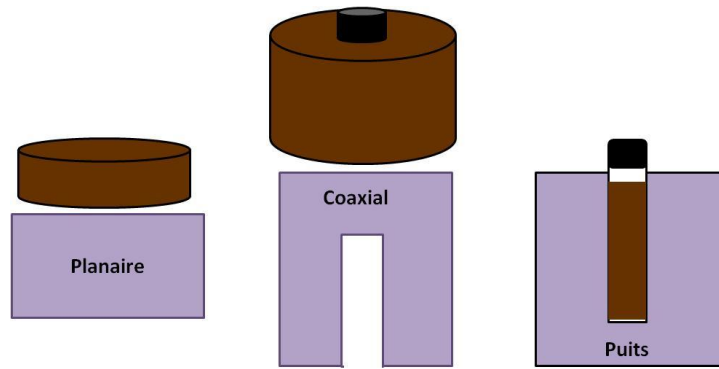


Figure I-6 : Schéma des différents types de détecteurs.

La figure I-7 récapitule, en fonction des gammes d'énergie employées, les types de détecteur utilisés. La gamme énergétique des détecteurs plans de constitution SiLi est représentée à titre indicatif.

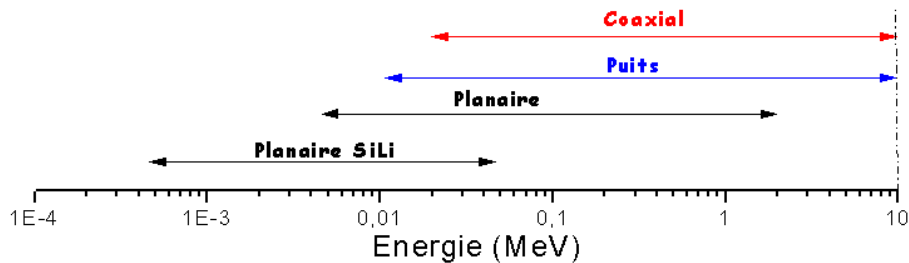


Figure I-7 : Les différents types de détecteur et leur domaine d'énergie [9].

IV.3. Système de refroidissement

Le refroidissement à température cryogénique est indispensable pour effectuer des mesures fines. Les détecteurs de type GeHP doivent être refroidis de manière à réduire l'agitation thermique des porteurs de charge. Dans le cas contraire, le courant de fuite induit un bruit qui influence la résolution en énergie du détecteur. Tout détecteur GeHP nécessite un apport d'azote liquide pour le maintenir à une température très basse. L'azote liquide est stocké dans un dewar à une température de 77 K soit -196 °C.

Il est aussi possible d'utiliser un refroidissement par des cryogénérateurs, ne nécessitant ni azote ni hélium liquide. Ils produisent du froid par compression et détente de gaz (hélium).

IV.4. Chaîne de mesure

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.

Au moyen d'une haute tension délivrée au détecteur, une quantité de charges électriques proportionnelle à l'énergie déposée par le photon dans le cristal est recueillie. Les porteurs de charge sont collectés en utilisant un préamplificateur de charge dont les fonctions sont la conversion de la

charge en tension électrique et une première amplification. La mise en forme du signal et une seconde amplification sont réalisées par l'amplificateur.

L'analyse de l'amplitude de l'impulsion est réalisée par un analyseur multi-canaux. Le choix du nombre de canaux nécessaire pour l'acquisition dépend de la résolution du détecteur et de la plage d'énergie. Pour un détecteur GeHP, une haute résolution en énergie requiert généralement un codage sur 13 bits soit 8192 canaux ou 14 bits soit 16384 canaux pour couvrir une gamme d'énergie comprise entre 0 et 8 MeV.

Un PC d'acquisition, associé à un analyseur, enregistre l'énergie de l'événement en incrémentant le canal correspondant. Un spectre est ainsi collecté et analysé par le logiciel GENIE 2000 [10].

Pour pouvoir traiter le spectre obtenu, il est nécessaire de l'étalonner en énergie, c'est-à-dire de transformer le numéro du canal en énergie. Pour effectuer cet étalonnage, une source radioactive, dont les raies sont bien connues, est utilisée. Ainsi, une loi de calibration est établie sous la forme d'une fonction polynômiale :

$$E_{\gamma} = a + bC + cC^2 \quad 1.13$$

où C : le canal,

a,b,c : des constantes.

Un exemple de spectre d'une source mono-énergétique, après l'étalonnage en énergie, est illustré sur la figure I-8; plusieurs phénomènes apparaissent :

- le pic d'absorption totale correspondant à l'énergie totale déposée par les photons dans la partie active du détecteur par effet photoélectrique.

- le front Compton dû aux électrons résultant de la diffusion Compton. L'énergie des électrons est donnée par l'équation (1.14).

$$E_e = E_{\gamma} \left(1 + \frac{1}{1 + \frac{E_{\gamma}}{E_0}(1 - \cos \theta)} \right) \quad 1.14$$

- le pic à une énergie de 511 keV correspondant à la détection de deux photons provenant de l'annihilation d'un positron avec un électron du milieu traversé.

- les pics appelés pics de premier et second échappement associés aux énergies $E_1 = E_{\gamma} - 511 \text{ keV}$ et $E_2 = E_{\gamma} - 1022 \text{ keV}$. Ils sont dus au photon primaire qui a subi une matérialisation en une paire électron-positron. Ces deux particules à faible parcours, sont stoppées dans le cristal du GeHP en déposant leur énergie cinétique ($E - 1022 \text{ keV}$).

- le pic de rétrodiffusion correspond à la collection d'un photon rétrodiffusé dans les matériaux entourant le Ge (capot d'Al).

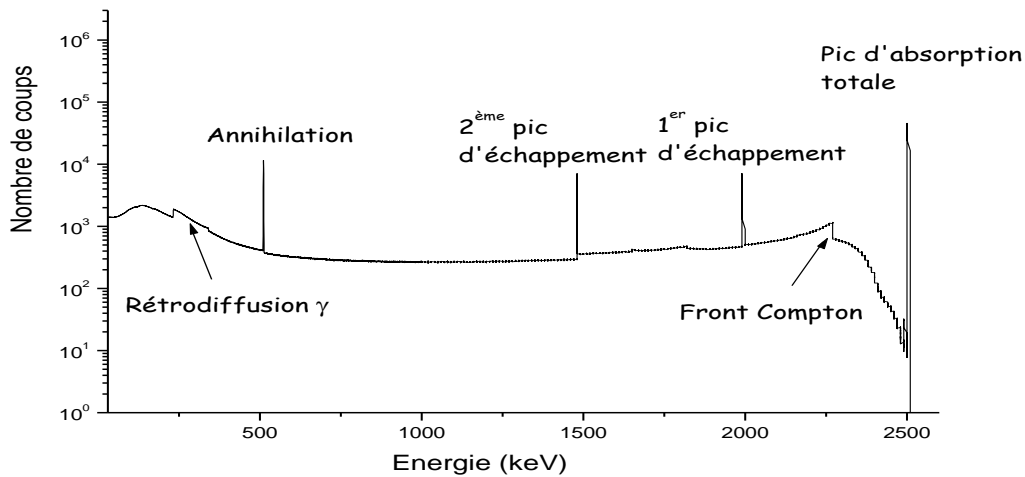


Figure I-8: Exemple d'un spectre γ d'une source mono-énergétique.

En pratique, les échantillons rencontrés lors des analyses environnementales contiennent divers radioéléments. La figure I-9 représente un exemple d'un spectre multi- γ . A partir des informations enregistrées, il est possible d'identifier différents radioéléments (analyse qualitative) et de déterminer leur activité (analyse quantitative).

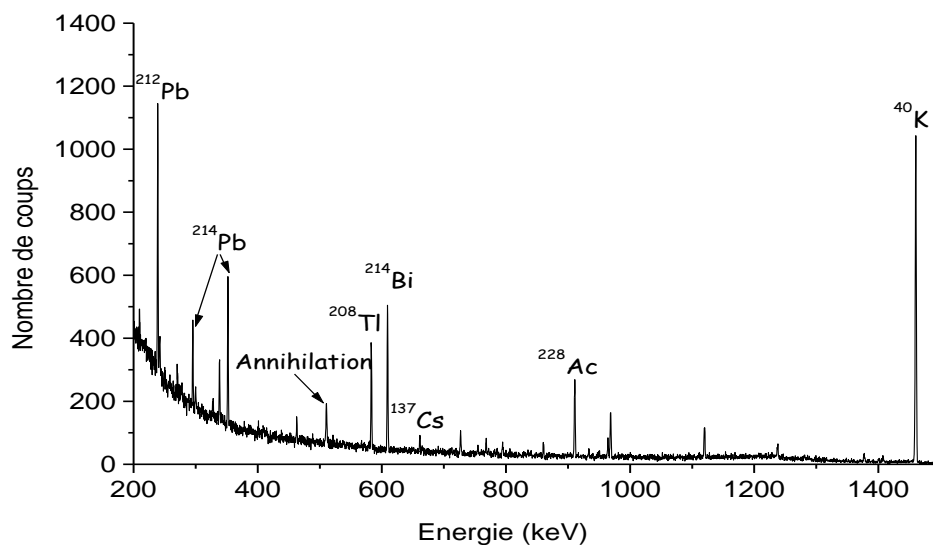


Figure I-9 : Exemple d'un spectre multi- γ . Identification de plusieurs radionucléides naturels (^{212}Pb , ^{214}Pb , ^{214}Bi , ^{208}Tl , ^{228}Ac et ^{40}K) et artificiel (^{137}Cs).

Dans le processus d'analyse de la radioactivité par spectrométrie γ , l'étalonnage en énergie et en efficacité de détection de la chaîne est une étape essentielle. En effet, la qualité d'un spectromètre γ dépend de sa capacité à détecter des raies (critère d'efficacité) et à les différencier entre elles (critère de résolution).

V. Résolution en énergie

La résolution en énergie détermine la capacité d'un détecteur à séparer les raies. Elle tient compte de la largeur à mi-hauteur du pic (FWHM = full width at half maximum). Dans le cas idéal, la forme du pic est gaussienne et la résolution est liée à l'écart-type σ_E de la distribution :

$$\delta E = \sqrt{8 \ln 2} \sigma_E \approx 2,35 \sigma_E \quad 1.15$$

VI. Efficacité de détection

L'efficacité de détection est déterminante dans l'analyse quantitative d'un échantillon. Elle est définie de différentes manières : absolue, 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 1.15 :

$$\epsilon_{\text{abs}} = \frac{\text{nombre d'évènements enregistrés}}{\text{nombre de particules émises par la source}} \quad 1.16$$

L'efficacité absolue varie en fonction de l'énergie des photons émis par une source. Son évaluation s'effectue en utilisant des sources étalons dont les activités sont connues. Sa variation est déterminée à l'aide du taux de comptage issu de l'aire du pic d'absorption totale qui est valable uniquement pour des conditions expérimentales (géométrie de la source et distance source-détecteur) bien définies.

Une source étendue peut être considérée comme un ensemble de sources ponctuelles remplissant un volume. Ainsi pour déterminer ϵ_{abs} , il est nécessaire d'intégrer la totalité du volume.

Un exemple d'un détecteur de forme cylindrique avec une source se trouvant à une distance d sur l'axe de détection permettant d'évaluer l'efficacité totale (ϵ_{tot}), est représenté sur la figure I-10 :

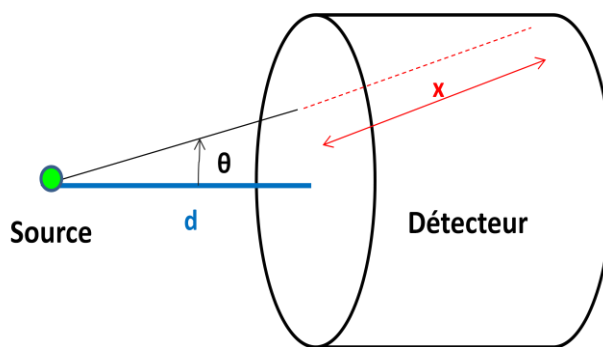


Figure I-10 : Représentation schématique d'un détecteur.

Si la source émet de manière isotrope, la probabilité que la particule soit émise à un angle θ est donnée par la relation suivante :

$$P(\theta)d\Omega = \frac{d\Omega}{4\pi} \quad 1.17$$

Si la particule interagit avec le détecteur, la probabilité est donnée par :

$$P_{in}(x) = 1 - e^{-\mu x_d} \quad 1.18$$

avec μ : le coefficient d'atténuation linéique du détecteur,
 x_d : la distance parcourue dans le détecteur.

Après combinaison des deux relations

$$d\varepsilon_{tot} = (1 - e^{-\mu x_d}) \frac{d\Omega}{4\pi} \quad 1.19$$

ε_{tot} s'exprime en intégrant la dernière relation, en fonction de l'efficacité géométrique ($\varepsilon_{geo} = \frac{\Omega}{4\pi}$) et intrinsèque (ε_{int}). Ainsi elle peut être écrite :

$$\varepsilon_{tot} \cong \varepsilon_{geo} \varepsilon_{int} \quad 1.20$$

ε_{int} dépend du type de radiation, de son énergie et du matériau constituant le détecteur.

$$\varepsilon_{int} = \frac{\text{nombre d'évènements enregistrés}}{\text{nombre de particules arrivant sur le détecteur}} \quad 1.21$$

Une fois que l'efficacité de détection est connue, il est possible de déterminer l'activité des radioéléments d'un échantillon.

VII. Activité d'un échantillon

L'activité d'un radioélément est proportionnelle au nombre d'évènements dans le pic d'absorption totale. Cette activité est définie par la norme internationale (Organisation Internationale de normalisation) NF ISO 18589-3 de 2007 [11] qui comprend plusieurs parties, notamment la mesure des radionucléides émetteurs γ dans les sols. Cette activité est exprimée en becquerel par kg et est définie suivant l'équation (1.22) :

$$A = \frac{n_{N,E}/t_g}{P_E \varepsilon_E m f_E} \quad 1.22$$

avec $n_{N,E}$: le nombre de coups net dans le pic d'absorption totale,
 t_g : le temps de comptage exprimé en seconde,
 P_E : la probabilité d'émission d'un rayonnement γ d'énergie E par désintégration,
 m : la masse de l'échantillon en kg,
 ε_E : l'efficacité de détection pour une énergie E donnée,
 f_E : les facteurs de correction dépendant de l'énergie E.

L'incertitude absolue sur cette activité est définie comme suit :

$$\sigma_A = A \sqrt{\left(\frac{\sigma_{n_{N,E}}}{n_{N,E}}\right)^2 + \left(\frac{\sigma_{t_g}}{t_g}\right)^2 + \left(\frac{\sigma_{P_E}}{P_E}\right)^2 + \left(\frac{\sigma_{\epsilon_E}}{\epsilon_E}\right)^2 + \left(\frac{\sigma_m}{m}\right)^2 + \left(\frac{\sigma_{f_E}}{f_E}\right)^2} \quad 1.23$$

où σ représente l'incertitude sur chaque paramètre de l'équation (1.21).

Si un radionucléide possédant plusieurs raies n'interfère pas avec un autre radioélément, le résultat du calcul de l'activité correspond alors à une moyenne pondérée sur ses raies [10] soit :

$$A = \frac{\sum_{i=1}^n \frac{A_i}{\sigma_{A_i}^2}}{\sum_{i=1}^n \frac{1}{\sigma_{A_i}^2}} \quad \text{avec} \quad \sigma_A = \sqrt{\frac{1}{\sum_{i=1}^n \frac{1}{\sigma_{A_i}^2}}} \quad 1.24$$

La mesure de l'activité d'un échantillon est affectée de plusieurs phénomènes (f_E) qu'il ne faut pas négliger, liés au radioélément lui-même et à la technique de mesure.

Le facteur de correction du temps de décroissance de l'échantillon durant l'acquisition (K_C) défini par l'équation (1.25) [10], tient compte du temps de demi-vie du nucléide ($T_{1/2}$) mais aussi du temps réel de l'acquisition (t_c).

$$K_C = \frac{T_{1/2}}{\ln(2) \cdot t_c} \left(1 - e^{-\frac{\ln(2) \cdot t_c}{T_{1/2}}}\right) \quad 1.25$$

Le facteur de correction (K_w) du temps de décroissance du radioélément entre l'instant où l'échantillon a été prélevé et le début de l'acquisition (t_w) est donné suivant l'équation (1.26) [10] :

$$K_w = e^{-\frac{\ln(2) t_w}{T_{1/2}}} \quad 1.26$$

D'autres facteurs de correction sont importants comme celui dû aux interférences sur les pics-sommes et notamment l'auto-absorption γ . Ces facteurs sont expliqués dans le chapitre 2.

VIII. Seuil et limite de détection

Lors de la mesure d'un échantillon de très faible activité, le résultat peut être très proche de celui obtenu lors de la détermination du bruit de fond (signal détecté en l'absence d'un radionucléide recherché).

Compte tenu du caractère aléatoire du processus de désintégration radioactive, un résultat légèrement supérieur au bruit de fond mesuré ne donne pas l'assurance de la présence d'un radionucléide, pas plus d'ailleurs qu'un résultat légèrement inférieur à ce même bruit de fond ne garantit l'absence de ce radioélément. Les notions de limite de détection ainsi que de seuil de détection caractérisant la technique de mesure sont définies par la norme NF ISO 11929 pour la métrologie [12].

Cette norme évalue les possibilités de détection d'une grandeur que l'on souhaite mesurer (appelée mesurande) ainsi que l'effet physique quantifié. Pour cela, elle spécifie que « le seuil de détection permet de décider si l'effet physique quantifié par le mesurande est présent ou non », que « la limite de détection indique la plus petite valeur vraie du mesurande qui peut encore être détectée par la procédure de mesurage utilisée » et que « les extrémités de l'intervalle de confiance comprennent, si l'effet physique est reconnu comme présent, un intervalle de confiance comprenant la valeur vraie du mesurande avec une probabilité spécifiée ».

Pendant une mesure, si les valeurs du signal et du bruit de fond sont trop proches, ils risquent de se confondre à cause des fluctuations statistiques. Un signal supérieur au bruit de fond est désigné par la notation « pic ». Lorsqu'il est identifiable dans un spectre énergétique, une valeur minimale d'activité appelée limite de détection (LD) lui est attribuée.

La limite LD se trouve entre les événements détectables non quantifiables et quantifiables tandis que le seuil de détection (SD) est la limite entre les événements non détectables et détectables mais non quantifiable. La figure I-11 schématise de manière simplifiée ces définitions. Ces notions formulées par Currie [13] sont encore employées aujourd'hui par les laboratoires.

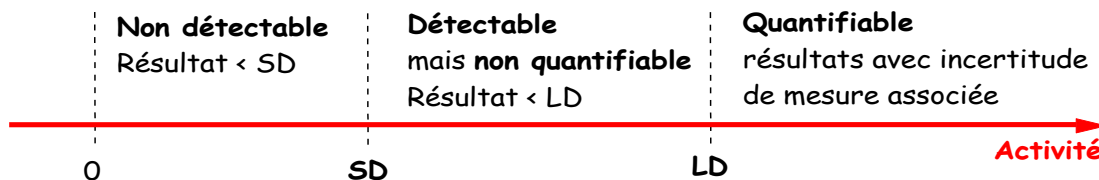


Figure I-11 : Représentation schématique de la limite de détection et du seuil de détection.

Basés sur la théorie du test d'hypothèse, le seuil SD et la limite LD sont quantifiés respectivement, par la probabilité du risque α , risque de première espèce, et par la probabilité du risque β , risque de deuxième espèce.

Le risque α , c'est l'affirmation que le signal est réel avec une probabilité α alors qu'il est engendré par les fluctuations statistiques du bruit de fond. Le risque β , c'est l'affirmation que le signal est lié à la fluctuation statistique du bruit de fond alors qu'il s'agit d'un signal réel.

SD est défini dans l'algorithme d'analyse du logiciel GENIE 2000 [10] par l'expression suivante :

$$SD = k_{\alpha}\sigma_0 \quad 1.27$$

avec k_{α} : le facteur d'élargissement correspondant au niveau de confiance $(1-\alpha)$ de la loi de probabilité,

σ_0 : l'écart-type en rapport avec la surface nette du pic considéré dans laquelle il n'y a aucun coup signal.

La norme précise que la limite LD correspond à la contribution minimale de l'échantillon pouvant être détectée avec une probabilité d'erreur donnée. Elle dépend des conditions de mesure (temps d'acquisition, statistique dans la région d'intérêt) et doit donc être réalisée pour chaque spectre [14]. Son expression, introduite dans le logiciel GENIE 2000, est donnée par la formule suivante:

$$LD = SD + k_{\beta}\sigma_D \quad 1.28$$

avec k_{β} : le facteur d'élargissement correspondant au niveau de confiance $(1-\beta)$ de la loi normale de probabilité,

σ_D : l'écart-type en rapport avec la surface nette du pic considéré lorsque la surface est équivalente à LD.

Lorsqu'il y a présence d'un pic, la procédure prévoit que l'expérimentateur choisisse deux niveaux de confiance $(1-\alpha$ et $1-\beta)$, généralement de 95 % avec des valeurs pour $k_{\alpha} = k_{\beta} = 1,645$.

Pour simplifier, sachant que σ_0 et σ_D sont du même ordre de grandeur, on considère que $k = k_{\alpha} = k_{\beta}$. L'expression de la LD dans GENIE 2000 devient alors :

$$LD = 2SD \quad 1.29$$

Chapitre 2 :

Effets de matrice

L'atténuation des photons dans l'échantillon c'est-à-dire l'auto-absorption γ et les interférences dues aux pics sommes [15], [16] sont les deux facteurs déterminants dans l'analyse quantitative par spectrométrie γ des échantillons volumineux.

I. Le pic-somme

Dans le cas où le radioélément présente un schéma de désintégration complexe, les durées de vie des niveaux excités sont le plus souvent très inférieures au temps de résolution nécessaire à la chaîne électronique. Ainsi, des transitions en cascade peuvent provoquer une détection simultanée d'impulsions ce qui crée deux effets :

- une perte de comptage à la fois dans les spectres et dans les pics d'absorption totale,
- un gain d'impulsions supplémentaires dans le fond continu et l'apparition de pics-sommes qui se superposent aux autres comptages. L'énergie correspond à la somme des énergies cédée au détecteur.

Pour illustrer le phénomène du pic-somme, le schéma des niveaux du ^{60}Co est présenté sur la figure II-1. La désintégration du ^{60}Co vers un état excité du ^{60}Ni se réalise par une émission en cascade des principaux rayonnements d'énergie 1173 keV et 1332 keV ayant des intensités d'émission proches de 100% avec des durées de vie de l'ordre de la picoseconde. Ainsi le pic-somme peut-être la détection simultanée d'un pic d'absorption totale correspondant à la somme de 1173 et 1332 keV soit 2505 keV ou bien au pic d'absorption totale de l'un et au fond Compton de l'autre (ou vis versa) faisant ainsi apparaître un fond entre les raies 1332 et 2505 keV entraînant une sous ou surestimation du comptage qu'il est nécessaire de corriger.

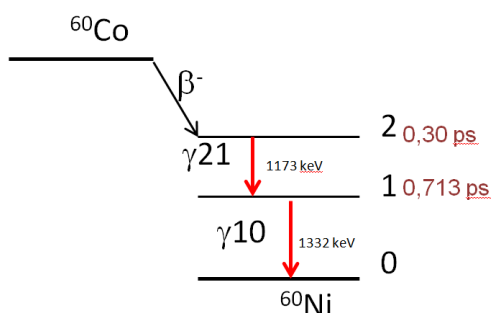


Figure II-1 : Schéma de décroissance du ^{60}Co .

II. L'auto-absorption γ

L'auto-absorption se manifeste par des pertes d'impulsion qui entraînent une sous ou surestimation de l'efficacité, variable suivant l'énergie incidente du photon. Elle dépend également du volume, de la charge effective et de la densité, sachant que les échantillons environnementaux analysés ont généralement des densités différentes de celle de l'eau [16], [17], [18], [19], [20], [21].

III. Correction d'auto-absorption γ

Le parcours des photons dépend à la fois de leur énergie et du milieu traversé, caractérisé par sa densité et sa charge effective [15]. Il est donc important de corriger l'efficacité de détection pour cet effet. Pour pouvoir déterminer cette correction, il est nécessaire que l'échantillon soit conditionné dans la même géométrie que celle de l'étalon.

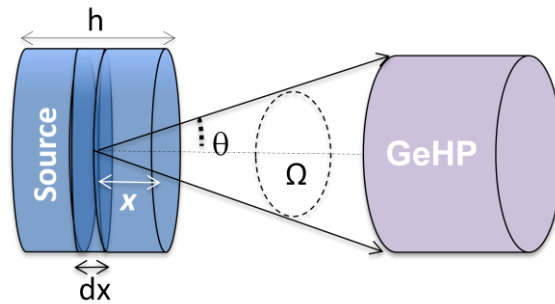


Figure II-2 : Schéma pour une source étendue.

Si le nombre de photons N_0 est émis dans un angle solide de détection (Ω), le nombre de photons dN incidents émis dans une partie ($x, x+dx$) arrivant à la surface du détecteur (figure II-2) est défini suivant l'équation (2.1) :

$$dN = N_0 \frac{S \times dx}{V} \frac{\Omega}{4\pi} e^{-\mu x} \quad 2.1$$

avec μ : le coefficient d'atténuation linéique de l'échantillon,

ρ : la masse volumique de l'échantillon,

S : la section associée à dx de la source,

V : le volume de la source.

Ainsi, le nombre total de photons incidents sortant de la source avec un angle solide de détection est :

$$N = \int_0^h N_0 e^{-\mu x} \frac{S \times dx}{V} \frac{\Omega}{4\pi} \quad 2.2$$

Sans atténuation, le nombre de photons incidents est :

$$N_\gamma = \frac{N_0}{V} S \frac{\Omega}{4\pi} h \quad 2.3$$

Avec atténuation dans la source, le nombre de photons incidents est :

$$N = \frac{N_0}{V} S \frac{\Omega}{4\pi} \left(\frac{1-e^{-\mu h}}{\mu} \right) \quad 2.4$$

Dans ce cas, la fraction atténuée dans la source est définie comme suit :

$$\frac{N}{N_\gamma} = \frac{1-e^{-\mu h}}{\mu h} \quad 2.5$$

Si l'échantillon est sujet aux effets d'auto-absorption, le facteur de correction lié à l'auto-absorption (C_F) dépend de la hauteur (h) du conteneur et est donné par la formule 2.6 [16] :

$$C_F = \frac{\mu_{\text{Eta}}(1-e^{-\mu_{\text{Ech}}h})}{\mu_{\text{Ech}}(1-e^{-\mu_{\text{Eta}}h})} \quad 2.6$$

Le facteur C_F tient compte des coefficients d'atténuation linéiques de l'échantillon (μ_{Ech}) et de l'étalon (μ_{Eta}). Ce dernier est tabulé (XMUDAT [22]) puisque l'étalon possède une matrice équivalente à l'eau. Il reste à déterminer le coefficient d'atténuation μ_{Ech} .

IV. Méthode de transmission

Cette méthode expérimentale permet de déterminer la fraction atténuée dans un échantillon par rapport à un échantillon dont l'absorption est presque négligeable (l'air). L'avantage de cette technique est de connaître le coefficient d'atténuation de l'échantillon sans passer par une analyse multi-élémentaire de l'échantillon nécessitant un temps conséquent.

La méthode de transmission prenant en compte la loi de Beer-Lambert (équation 2.7) est basée sur le principe d'atténuation des photons dans la matière.

$$N = N_0 e^{-\mu x} \quad 2.7$$

avec N_0 : le flux de photons incidents émis par la source,

x : l'épaisseur du conteneur,

N : le flux de photons sortant du collimateur et détecté par le GeHP,

μ : le coefficient d'atténuation linéique.

Pour pouvoir appliquer la loi de Beer-Lambert, il est nécessaire d'obtenir un faisceau quasi-parallèle. L'utilisation d'un collimateur est donc essentielle. Un collimateur est un cylindre habituellement en plomb (Pb) dans lequel un trou cylindrique ou conique est percé suivant un axe déterminé. Ainsi une direction est privilégiée, la plus courante étant la perpendiculaire au cristal du détecteur (figure II-3). Les photons n'empruntant pas le passage du trou sont fortement atténués par le collimateur avant d'atteindre le cristal.

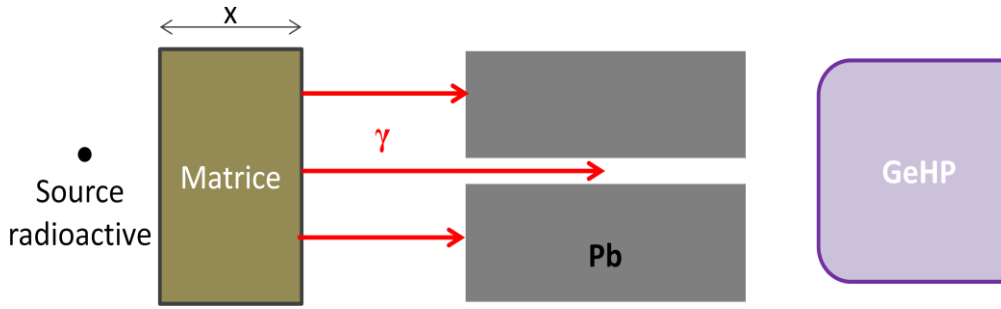


Figure II-3 : Schéma représentant la méthode de transmission.

Les échantillons ayant des densités différentes par rapport à celle de l'eau, μ_{Ech} est à évaluer par rapport à une matrice air de géométrie identique à celle de l'échantillon. A partir de la loi de Beer-Lambert, il est possible de déterminer pour une énergie donnée, le nombre de photons détectés provenant de la matrice air (équation (2.8)) et de celle de l'échantillon (équation (2.9)):

$$N_{\text{Air}}(E) = N_0 e^{-\mu_{\text{Air}}(E)x} \quad 2.8$$

$$N_{\text{Ech}}(E) = N_0 e^{-\mu_{\text{Ech}}(E)x} \quad 2.9$$

avec N_{air} : le nombre de coups nets dans le pic d'absorption totale de l'air,
 N_{Ech} : le nombre de coups nets dans le pic d'absorption totale de l'échantillon.

Admettant l'égalité de N_0 des équations 2.8 et 2.9, l'équation 2.10 est obtenue :

$$N_{\text{Ech}}(E) e^{\mu_{\text{Ech}}(E)x} = N_{\text{Air}}(E) e^{\mu_{\text{Air}}(E)x} \quad 2.10$$

μ_{Air} étant connu (XMUDAT) pour chaque énergie de photon, μ_{Ech} est ainsi défini :

$$\mu_{\text{Ech}}(E) = \mu_{\text{Air}}(E) + \frac{1}{x} \ln \left(\frac{N_{\text{Air}}(E)}{N_{\text{Ech}}(E)} \right) \quad 2.11$$

avec l'incertitude

$$\sigma^2_{\mu_{\text{Ech}}}(E) = \sigma^2_{\mu_{\text{Air}}}(E) + \frac{1}{x^2} \left[\frac{\sigma^2_{N_{\text{Air}}(E)}}{N_{\text{Air}}^2(E)} + \frac{\sigma^2_{N_{\text{Ech}}(E)}}{N_{\text{Ech}}^2(E)} + \frac{\sigma^2_x}{x^2} \ln^2 \left(\frac{N_{\text{Air}}(E)}{N_{\text{Ech}}(E)} \right) \right] \quad 2.12$$

où σ est l'incertitude de chaque paramètre donnée dans l'équation (2.11).

Les expériences réalisées ont nécessité l'utilisation de deux détecteurs GeHP fabriqués par la société CANBERRA. Les échantillons analysés ont été conditionnés dans différents conteneurs. L'étalon employé est une résine homogène contenant différents radionucléides tels que ^{241}Am ($E_\gamma = 59$ keV), ^{109}Cd ($E_\gamma = 88$ keV), ^{57}Co ($E_\gamma = 122$ keV), ^{139}Ce ($E_\gamma = 165$ keV), ^{51}Cr ($E_\gamma = 320$ keV), ^{113}Sn ($E_\gamma = 391$ keV), ^{85}Sr ($E_\gamma = 514$ keV), ^{137}Cs ($E_\gamma = 662$ keV), ^{60}Co ($E_\gamma = 1173$ et 1332 keV) et ^{88}Y ($E_\gamma = 898$ et 1896 keV). Sa densité est proche de celle de l'eau.

Pour appliquer la méthode de transmission, deux sources radioactives sont utilisées : de ^{133}Ba dont l'activité était de 795 kBq au 30 mai 2007 et d' ^{152}Eu avec une activité de 383 kBq au 1^{er} novembre

2005. Ces deux sources ont été retenues car elles possèdent une multitude d'émissions de photons bien répartis dans la gamme d'énergie allant de 30 keV à 1408 keV.

Un comptage à l'aide du détecteur ISOCS (figure II-4) a été effectué sur un conteneur d'une épaisseur notée x rempli d'air (N_{Air}). Un second comptage a été réalisé en remplaçant l'air par un échantillon (N_{Ech}) conditionné dans la même géométrie. Le coefficient d'atténuation linéique de l'échantillon a pu ainsi être défini suivant l'équation (2.11).

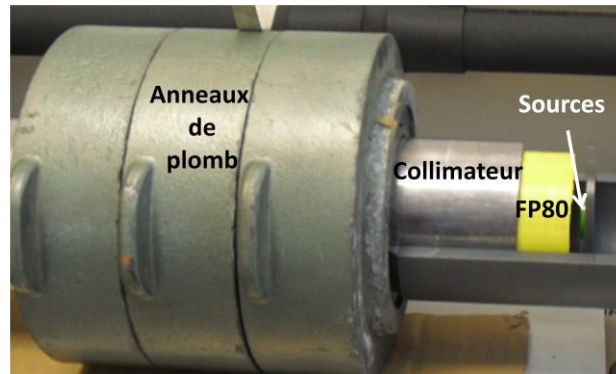


Figure II-4 : Photographie du dispositif expérimental ISOCS. Des anneaux en plomb entourent le nez du détecteur. Un ensemble comprenant un collimateur de plomb (longueur 6 cm - diamètre 0,5 cm), un conteneur (FP80) et deux sources radioactives est utilisé.

V. Dispositif expérimental

V.1. Détecteur ISOCS

Le détecteur appelé dans la suite In Situ Object Counting System (ISOCS) est un détecteur Ge coaxial de type XtRa. Il est utilisé pour déterminer l'auto-absorption. Le domaine de mesure en énergie est de 30 à 3000 keV avec une résolution de 0,897 keV à 122 keV et 1,77 keV à 1332 keV. On lui associe comme électronique "l'InSpector 2000".

Le module "l'InSpector 2000" est un analyseur multicanaux portable à haute tension réglable par logiciel. Il est constitué d'un amplificateur de spectrométrie, d'un stabilisateur digital et d'un convertisseur digital/analogique (ADC) de 8192 canaux. La mémoire des données est sauvegardée grâce à une batterie indépendante, ce qui permet d'éviter la perte éventuelle des données acquises.

Un logiciel permet de changer la polarité de la haute tension sans avoir besoin d'ouvrir l'appareil et de manipuler les connecteurs.

V.2. Détecteur BEGe

Le détecteur Broad Energy Germanium (BEGe) est un détecteur Ge de type planaire. Il est utilisé pour analyser les échantillons. Son domaine de mesure en énergie est identique à celui de l'ISOCS mais sa résolution est de 0,633 keV à 122 keV et de 1,934 keV à 1332 keV. Un amplificateur et un codeur programmable sont associés au BEGe. L'amplificateur utilisé est un modèle ICB 9615. Il est composé d'entrées différentielles, d'une gamme de gain, d'une mise en forme soit de type semi-gaussienne ou semi-triangulaire, d'un rejet d'empilement, d'une restauration des lignes de base et d'une correction du temps actif.

Le codeur employé est un modèle ICB 9633. Il est utilisé pour de moyen et de fort taux de comptage avec une bonne résolution. Il est entièrement programmable avec le logiciel GENIE 2000. Il possède un gain programmable. Il a une interface de réjection d'empilement et de correction du temps actif. La conversion pour l'analyse des impulsions peut être programmée en automatique ou retardée (jusqu'à 100 μ s).

V.3. Conteneurs d'échantillons

Il existe plusieurs conteneurs que l'on trouve facilement dans le commerce : SG500 (Spectrométrie Gamma 500 cm^3), SG50 ainsi que la nouvelle géométrie FP80 (figure II-5).

Le conteneur SG500 a un diamètre de 79,7 mm, rempli jusqu'à une hauteur de 71 mm contrairement à la géométrie SG50 de diamètre 39,5 mm et dont la hauteur du remplissage est de 46 mm. Ces deux géométries sont en polyéthylène de densité 0,93.

Le nouveau conteneur FP80 a un diamètre de 80 mm, une hauteur de 23 mm et entièrement rempli. Il est constitué de plexiglas de densité 1,18.



Figure II-5 : Différents conteneurs utilisés.

V.4. Efficacités de détection des trois géométries

L'activité d'un échantillon est déterminée entre autre par l'efficacité de détection. Il est donc intéressant de comparer l'efficacité de détection pour ces trois conteneurs. La figure II-6 représente les efficacités mesurées après corrections des pics-sommes par le logiciel GESPECOR (Germanium-Spectra-Correction) [23] pour SG500, SG50 et les efficacités de FP80 et SG500 simulées avec le code MCNPX.

Pour obtenir l'efficacité mesurée, une matrice étalon de densité proche de l'eau, a été utilisée. Elle contient plusieurs radionucléides émetteurs γ tels que ^{241}Am , ^{109}Cd , ^{57}Co , ^{139}Ce , ^{51}Cr , ^{113}Sn , ^{85}Sr , ^{137}Cs , ^{60}Co et ^{88}Y . Pour réaliser la simulation, la matrice utilisée est une matrice eau conditionnée dans un SG500 et dans un FP80 à l'intérieur de laquelle les différents radioéléments de l'étalon sont présents.

La figure II-6 montre également l'excellent accord entre l'efficacité mesurée et l'efficacité simulée pour le conteneur SG500. Ainsi la simulation reproduit bien l'expérience corrigée des pics-sommes.

Ce résultat a permis de valider la simulation MCNPX pour le SG500 et donc également l'environnement du détecteur.

La meilleure efficacité est obtenue avec la géométrie FP80 quelle que soit l'énergie.

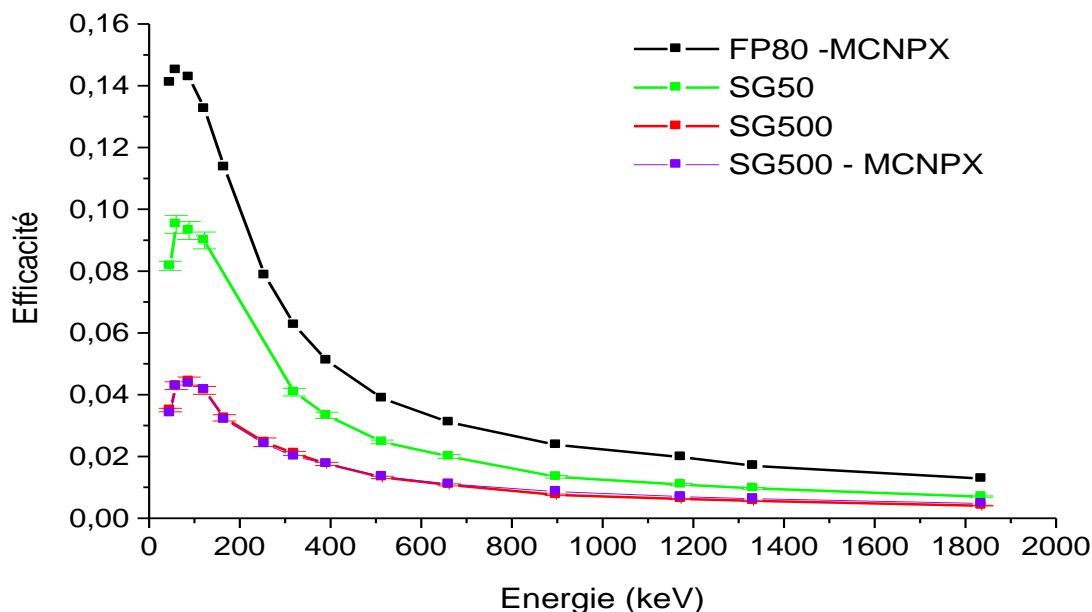


Figure II-6 : Comparaison des efficacités des trois géométries de conteneurs utilisées dans le groupe RaMSEs.

Dans le code MCNPX, pour chaque calcul, une incertitude est associée au résultat qui dépend du nombre de particules émises. Il s'agit d'une incertitude statistique vérifiant ainsi la bonne convergence du calcul. La valeur d'incertitude donnée par le code MCNPX n'est pas représentative de l'incertitude totale de la grandeur simulée. Elle dépend de l'incertitude sur chaque donnée d'entrée utilisée lors du calcul comme les paramètres liés au détecteur (géométrie du cristal, zone morte, densité des matériaux, etc.), les paramètres liés à la source (activité, probabilité d'émission γ , géométrie, densité, etc.) et les paramètres liés à l'environnement (diffusion γ sur les murs, plafond, sol et autre objet se situant au alentour, etc.).

Pour chaque résultat, MCNPX définit une incertitude statistique comme une erreur relative estimée E_R tel que :

$$E_R = \frac{R}{\bar{y}\sqrt{N_n}} \quad \text{avec } R = \sqrt{\bar{y}^2 - \bar{y}^2} \quad 2.13$$

Avec R : l'écart-type de la variable y ,
 \bar{y} : la valeur moyenne de la variable y ,
 N_n : le nombre d'histoires traitées.

L'erreur relative E_R est proportionnelle à l'inverse de la racine carré du nombre d'histoires. Pour la réduire, il faut augmenter le nombre de particules émises. Le résultat est jugé fiable lorsqu' E_R prend une valeur inférieure à 0,05.

Sur la figure II-5, les erreurs relatives obtenues pour les simulations de SG500 et de FP80 sont respectivement de l'ordre de 0,004% et 0,002%.

VI. Optimisation du dispositif expérimental

La mise en place d'une nouvelle géométrie de conditionnement (FP80) sur l'ISOCS a nécessité d'apporter des améliorations au dispositif expérimental existant. Ce nouveau dispositif utilise un collimateur en Pb. A l'aide du logiciel MCNPX, des simulations ont permis de définir les dimensions optimales du collimateur, c'est-à-dire les longueur et diamètre du trou sachant qu'il est important de limiter le temps de comptage.

La simulation a été réalisée avec un dispositif comprenant le détecteur ISOCS, un collimateur en Pb et un conteneur FP80 (figure II-7).

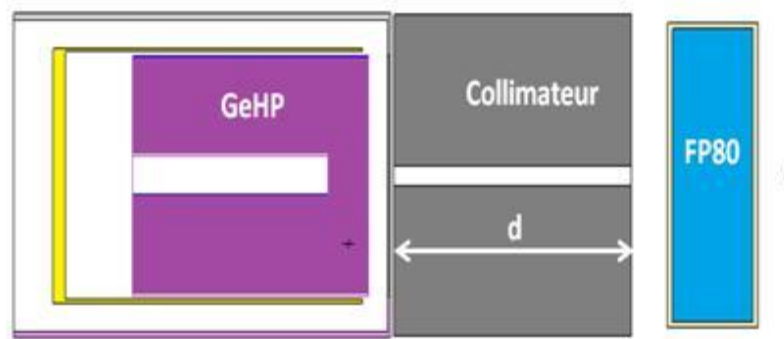


Figure II-7 : Schéma du dispositif expérimental. d indique la variation de la longueur du collimateur.

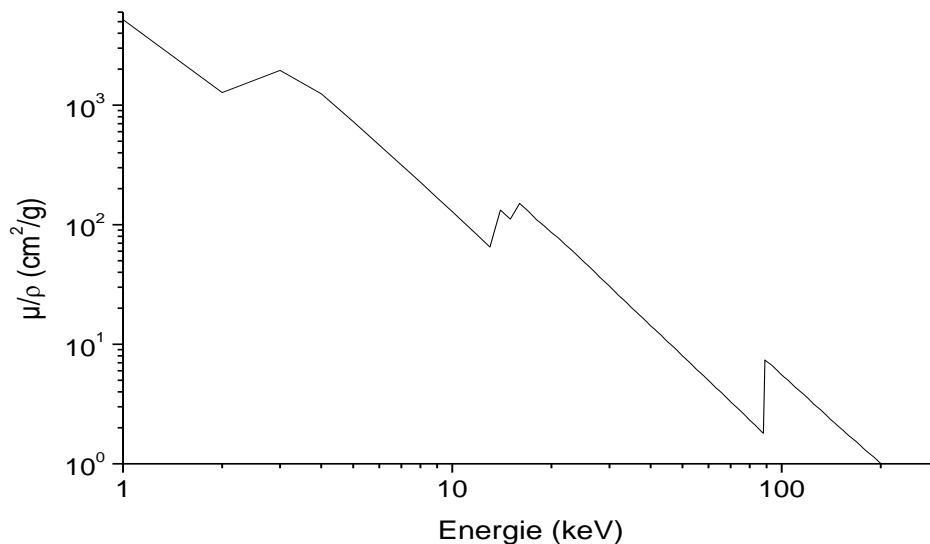


Figure II-8 : Atténuation totale des photons dans le plomb obtenue par le logiciel XMUDAT.

L'atténuation des photons dans la matière varie en fonction de leur énergie. La figure II-8 montre que moins l'énergie des photons est élevée, plus les photons seront atténués par le Pb.

L'optimisation a consisté à définir le diamètre du trou et la longueur optimale du collimateur en Pb pour un temps de comptage raisonnable ($2 \cdot 10^5$ s).

Pour toutes les simulations présentées sur les différentes figures qui suivent, plusieurs énergies de photons allant de 50 keV à 350 keV ont été simulées. Le conteneur utilisé est un FP80 rempli d'eau. Notre intérêt s'est porté principalement sur des photons de faibles énergies (en dessous de 400 keV) car la correction de l'efficacité liée à l'effet d'auto-absorption est la plus importante dans ce domaine d'énergie.

VI.1. Effet de la longueur du collimateur

Pour définir la longueur idéale du collimateur, la source radioactive est pour toutes les mesures placée à 10 cm de la fenêtre en carbone du détecteur et le diamètre du trou du collimateur est fixé à 0,5 cm.

La figure II-9 représente une superposition de deux spectres en énergie de photons obtenus par le logiciel MCNPX correspondant à un changement de la longueur du collimateur. La courbe de couleur noire indique la simulation effectuée avec un collimateur de longueur 1 cm et celle de couleur rouge pour un collimateur de longueur 6 cm. Le collimateur de faible longueur se laisse traverser plus facilement par les photons au lieu de les absorber ce qui contribue à une augmentation du bruit de fond (fond Compton).

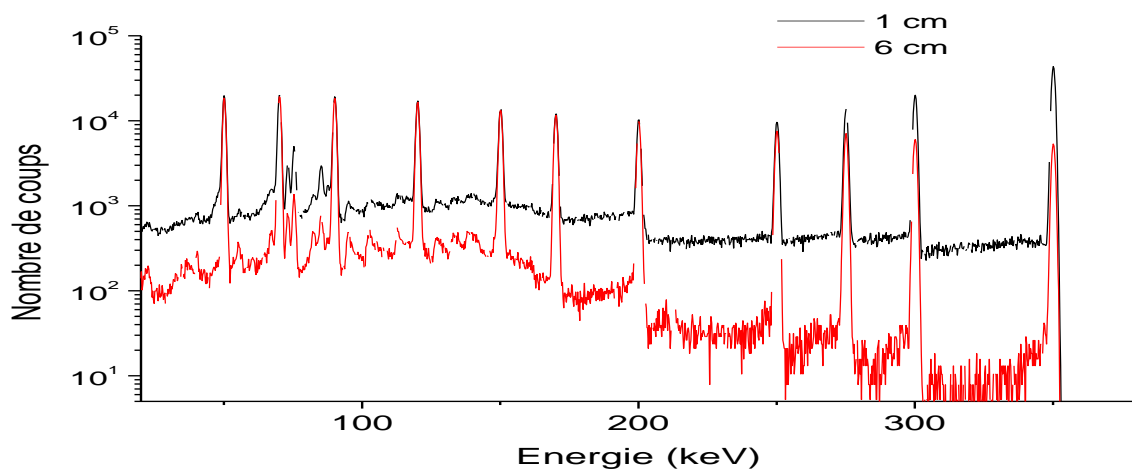


Figure II-9 : Résultats des simulations pour deux longueurs de collimateur.

Six longueurs différentes de collimateurs (1 cm à 6 cm par pas de 1 cm) ont été simulées. On définit le ratio comme le rapport du coefficient d'atténuation linéique simulé (calculé avec la formule (2.11)) à celui théorique de l'eau (obtenu par le logiciel XMUDAT). La figure II-10 montre ce ratio en fonction des longueurs de collimateur et des énergies de photons. C'est pour les longueurs supérieures ou égales à 4 cm que le ratio s'approchant de 1 devient satisfaisant nécessitant ainsi une correction moins importante surtout pour l'énergie 50 keV.

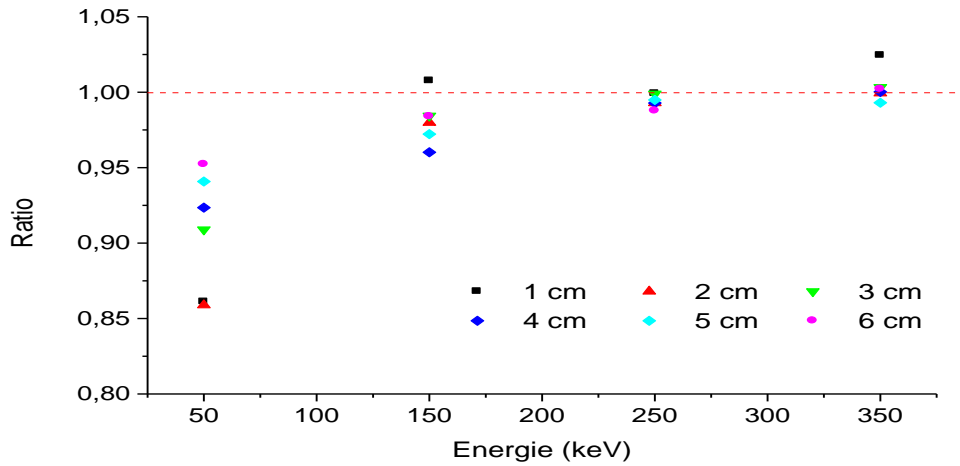


Figure II-10 : Effet de la longueur du collimateur en Pb sur le rapport $\mu_{\text{simulé}}/\mu_{\text{eau}}$ simulé par le code MCNPX.

VI.2. Effet du diamètre du collimateur

La longueur du collimateur a été fixée à 6 cm. Quatre diamètres de trou ont été simulés : 4 mm, 6 mm, 8 mm et 10 mm. La figure II-11 montre les variations du nombre de coups en fonction du diamètre du trou soit 4 mm, 6 mm et 10 mm.

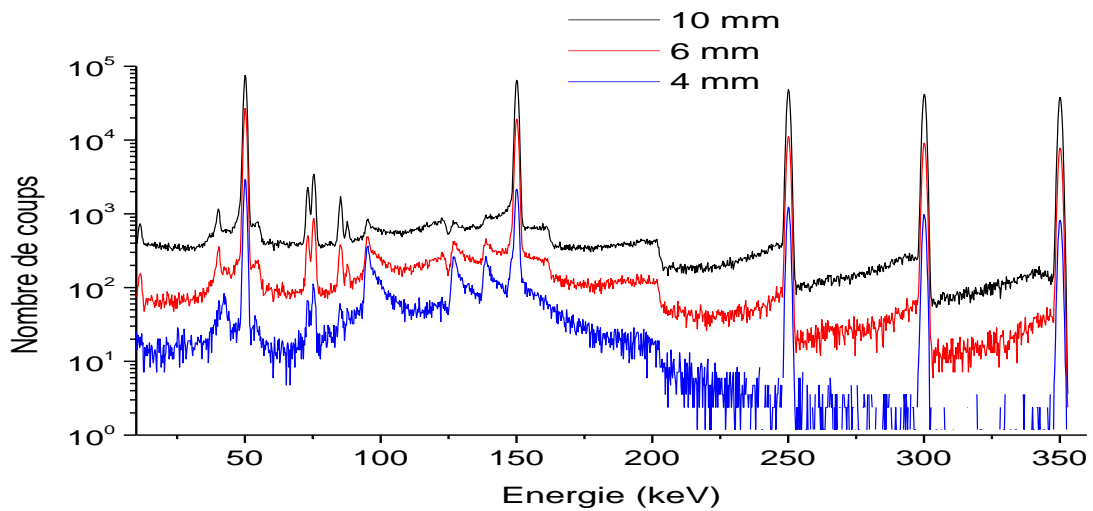


Figure II-11 : Résultats des simulations en fonction du diamètre de trou du collimateur.

Plus le diamètre du collimateur est réduit, plus la statistique est défavorable. Cela ne peut être compensé que par une augmentation du temps de comptage qui rallonge ainsi la durée d'analyse de l'échantillon. Par contre, un diamètre réduit permet d'obtenir un faisceau quasi-parallèle entraînant une atténuation du bruit de fond due à la diminution de la rétrodiffusion des photons sur le Pb.

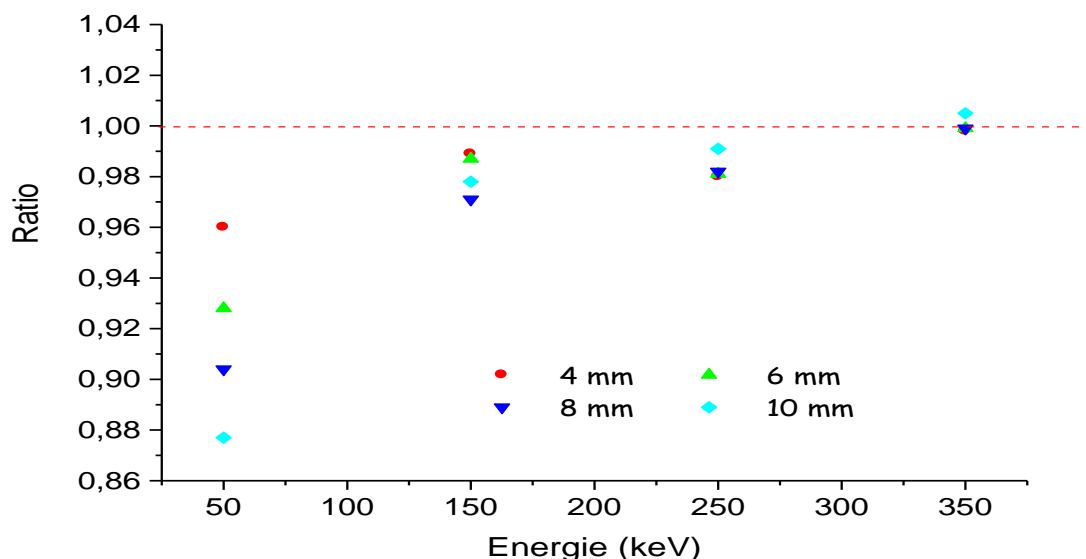


Figure II-12 : Effet du diamètre du trou du collimateur en Pb simulé à l'aide du code MCNPX.

Le diamètre idéal du trou a été défini en utilisant une longueur de collimateur de 6 cm.

Dans cette configuration, la figure II-12 indique que plus le diamètre est petit, plus le ratio est favorable mais au détriment d'un temps de comptage réduit. Pour un diamètre de trou plus grand, il est nécessaire d'apporter une correction au ratio. Un diamètre compris entre 4 et 5 mm est un bon compromis.

Après optimisation par simulations, les dimensions du collimateur expérimental ont été fixées à 6 cm de longueur et le diamètre du trou à 5 mm. C'est avec ces dimensions qu'une comparaison des coefficients massiques d'atténuation (μ_m) expérimental et théorique (donné par XMUDAT) pour l'eau, a été effectuée. Pour réaliser l'expérience, deux sources radioactives sont utilisées : de ^{133}Ba et de ^{152}Eu dont les activités sont données dans le paragraphe II. Un comptage à l'aide du détecteur ISOCS a été effectué avec un conteneur FP80 rempli d'eau.

La figure II-13 illustre les résultats obtenus et montre le bon accord entre la théorie et l'expérience.

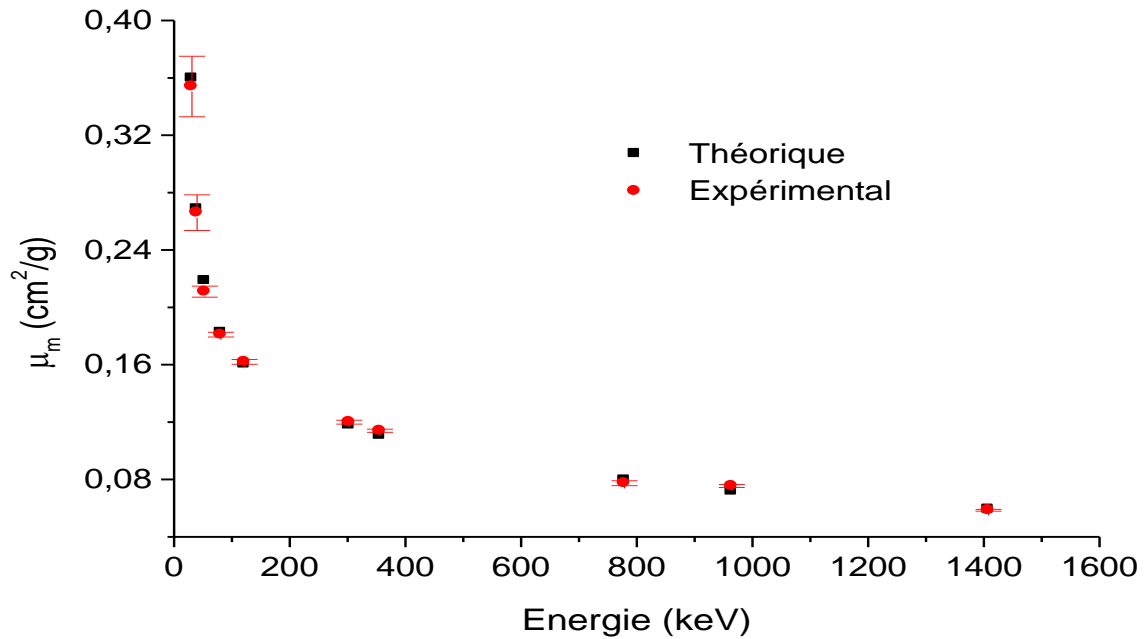


Figure II-13 : Comparaison entre les coefficients d'atténuation massique théorique et expérimentale de l'eau.

VI.3. Effet de l'épaisseur x du conteneur FP80 sur l'atténuation linéique μ

Lors d'un conditionnement d'un échantillon dans un conteneur FP80, il est important de connaître l'épaisseur du conteneur. En pratique, cette épaisseur varie entre 1,96 cm et 2,02 cm. Une étude de l'effet de l'épaisseur sur l'atténuation linéique a été réalisée.

La figure II-14 présente l'évolution du ratio obtenu à partir du $\mu_{\text{simulé}}/\mu_{\text{eau}}$ pour trois énergies : 31, 356 et 1408 keV en fonction de l'épaisseur de FP80. Il est intéressant de voir la variation du ratio aussi bien pour les faibles énergies que les hautes. D'après la figure, plus l'épaisseur de FP80 augmente, plus le ratio diminue, ce qui nécessite d'apporter une correction plus importante sur le facteur de l'auto-absorption (C_F équation 2.6).

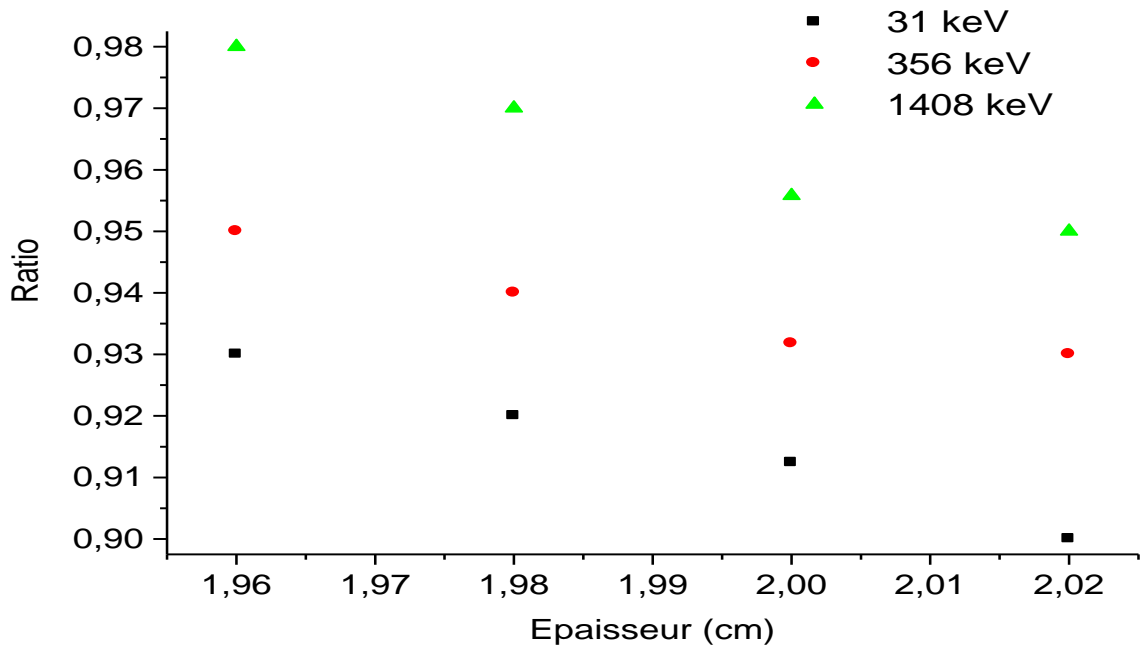


Figure II-14 : Variation de l'épaisseur du conteneur FP80 sur le ratio.

VI.4. Effet de la statistique de comptage sur l'atténuation μ

Il est important de connaître l'influence de l'incertitude sur le coefficient d'atténuation linéique de l'échantillon car elle impacte la détermination de l'incertitude de la correction C_F , conséquente pour les faibles énergies de photon.

Dans ce paragraphe, une étude sur l'effet de l'incertitude sur le coefficient d'atténuation linéique a donc été réalisée. Pour déterminer les incertitudes relatives et absolues du coefficient d'atténuation linéique (μ), des calculs Monte Carlo ont été effectués.

D'après la formule 2.11, tous les paramètres sont fixés et donnés par le logiciel GENIE 2000. Le nombre de coups en fonction du temps de comptage pour chaque raie a été normalisé. Puis, une variation sur l'incertitude relative de N_{Air} et N_{Ech} a été effectuée. Nous estimons ainsi la moyenne des différents paramètres et leur écart type associé. Une loi appelée « loi normale centrée réduite » est utilisée pour N_{Air} , N_{Ech} et μ_{Air} . Concernant l'épaisseur du conteneur, une loi uniforme est utilisée.

La figure II-15 représente une simulation du coefficient d'atténuation linéique de l'échantillon pour deux énergies de photons (50 keV et 350 keV) avec une incertitude relative de 2% sur N_{Air} et N_{Ech} . Les valeurs des μ_{Ech} sont respectivement de 0,22 et 0,11 cm^{-1} pour 50 et 350 keV. La moyenne de μ_{Ech} est représentée en couleur rouge sur la figure. Nous pouvons constater que la représentation de la distribution de μ_{Ech} est une gaussienne. Les résultats sur l'incertitude relative par rapport à la moyenne sont présentés dans le tableau II-1.

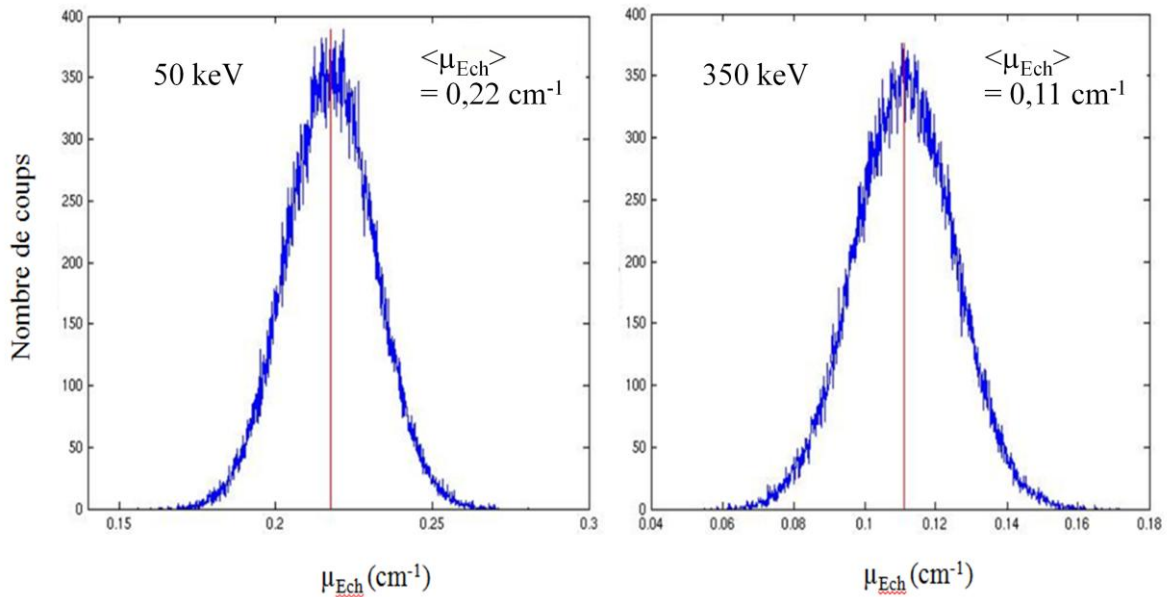


Figure II-15 : Simulation du coefficient d'atténuation linéique μ_{Ech} pour 10^5 générations. La courbe rouge représente la moyenne. A gauche : Incertitude relative de 2% sur N_{air} et N_{Ech} pour $E_{\gamma} = 50$ keV. A droite : Incertitude relative de 2% sur N_{air} et N_{Ech} pour $E_{\gamma} = 350$ keV.

Incertitudes sur N_{Air} et N_{Ech}	50 keV	250 keV	350 keV
2%	6,4%	11,3%	12,6%
1%	3,2%	5,6%	6,3%
0,5%	1,6%	2,8%	3,1%

Tableau II-1: Effet de l'incertitude relative de comptage sur le coefficient d'atténuation de l'échantillon.

Une incertitude relative de 2% sur N_{Air} et N_{Ech} entraîne une incertitude relative importante sur le coefficient d'atténuation linéique quand l'énergie croît d'après le tableau II-1. Pour les faibles énergies de photon (< 100 keV), le coefficient d'atténuation linéique augmente conduisant ainsi à une diminution de l'incertitude relative sur ce paramètre ceci dans le cas de notre gamme d'énergie et du matériau en question.

D'après les résultats du tableau, nous pouvons conclure qu'il est significatif d'avoir une incertitude relative inférieure ou égale à 1% sur N_{Air} et N_{Ech} pour obtenir une faible valeur d'incertitude sur le coefficient d'atténuation linéique de l'échantillon.

VII. Validation par des tests d'inter-comparaison

Pour valider le nouveau protocole expérimental (ISOCS, collimateur de longueur 6cm et de diamètre de trou 5 mm et FP80), deux échantillons de sédiments avec un Z_{eff} supérieur à celui de l'eau ($Z_{\text{eff}} \approx 7,5$), issus de deux tests d'inter-comparaison fournis par l'Institut de Radioprotection et de Sécurité Nucléaire (IRSN), ont été analysés. Chaque échantillon a été conditionné dans un conteneur FP80 avec

des densités apparentes de 1,2 et de 1,6. Les radionucléides recherchés représentant une auto-absorption importante dans la matrice sont ^{210}Pb , ^{241}Am , ^{238}U , ^{230}Th et ^{235}U identifiables par leurs énergies respectives de 46, 59, 63, 67 et 163 keV.

Dans une première étude, les coefficients d'atténuation linéiques pour les deux sédiments ont été déterminés expérimentalement afin de les comparer à celui de l'eau. La figure II-16 montre les résultats obtenus.

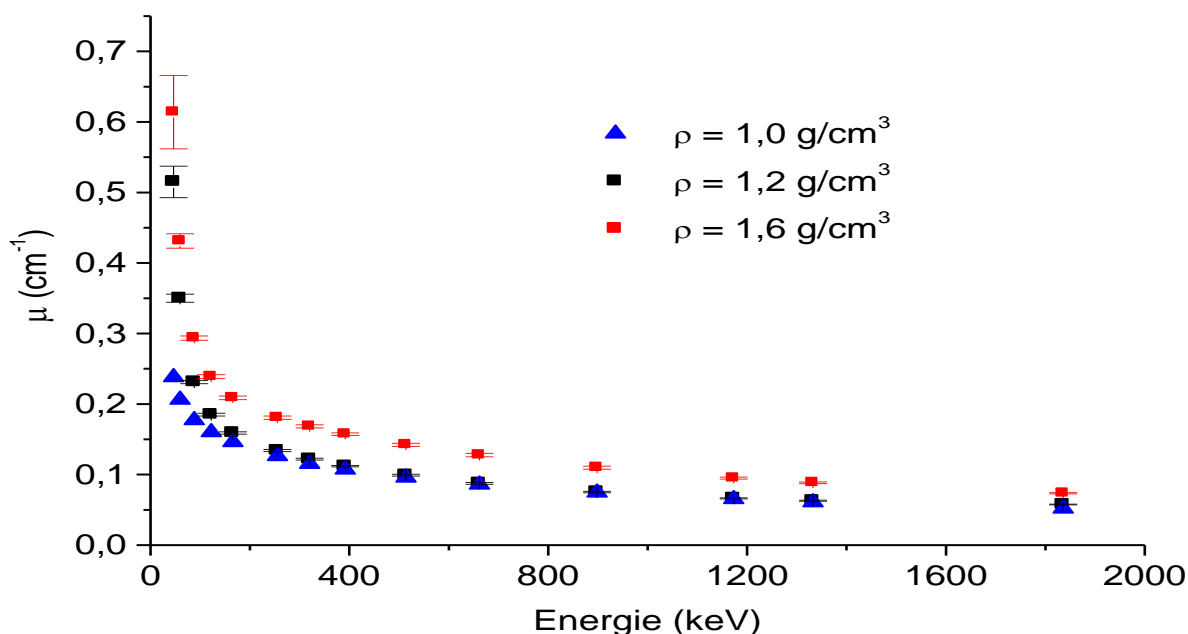


Figure II-16 : Comparaison du coefficient d'atténuation linéique pour les deux tests d'inter-comparaison par rapport à celui de l'eau.

Les points bleus, noirs et rouges correspondent respectivement, au coefficient d'atténuation linéique théorique de l'eau, au coefficient d'atténuation linéique expérimental de l'échantillon de densité apparente 1,2 et à celui de l'échantillon de densité apparente 1,6.

La courbe noire reproduit le coefficient d'atténuation linéique de l'eau en fonction de l'énergie sauf pour les faibles énergies de photons ($E_\gamma \leq 200 \text{ keV}$).

La figure II-17 est un zoom sur la partie représentant les photons de basse énergie. Cette figure permet de montrer l'influence du Z effectif (Z_{eff}) et de la densité sur le coefficient d'atténuation linéique des échantillons.

Le tableau II-2 présente les résultats des différents rapports des atténuations μ des tests d'inter-comparaison avec μ_1 pour le coefficient d'atténuation linéique de l'échantillon de densité 1,2 et μ_2 pour le coefficient d'atténuation linéique de l'échantillon de densité 1,6. Ce rapport variant très peu, cela signifie que les compositions des deux échantillons sont très proches. La figure montre bien un écart quasi-constant entre les courbes rouge et noire, quelle que soit l'énergie des photons.

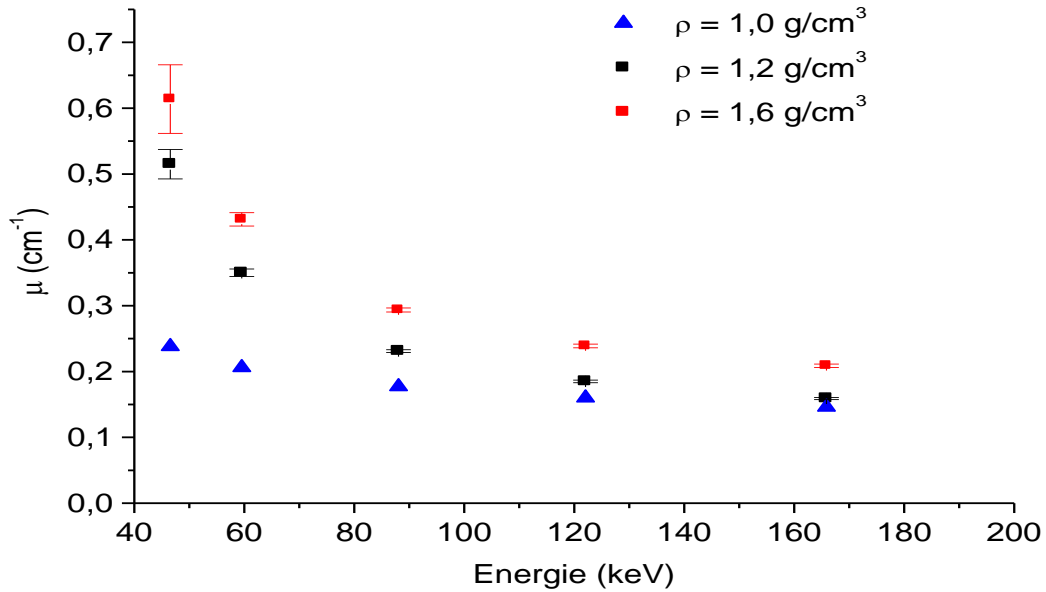


Figure II-17 : Zoom sur les coefficients d'atténuation linéiques pour les deux échantillons d'inter-comparaison et celui de l'eau.

Energie (keV)	μ_1/μ_{eau}	μ_2/μ_{eau}	μ_2/μ_1
46,54	216%	258%	119%
59,54	170%	209%	123%
88,03	131%	166%	127%
122,06	116%	149%	129%
165,85	109%	143%	131%

Tableau II-2 : Rapport des coefficients d'atténuation linéiques obtenus pour les tests d'inter-comparaison par rapport à ceux de l'eau.

Après ces calculs et en utilisant la formule (2.6), la correction C_F de chaque échantillon a été déterminée. La figure II-18 représente C_F pour les deux tests d'inter-comparaison. Elle indique que l'échantillon de densité 1,2 ne nécessite pas de correction à l'exception des faibles énergies de photons (inférieures à 100 keV) contrairement à la densité de 1,6 où le facteur de correction de l'auto-absorption est important pour ces énergies.

Pour une énergie de photon de 46 keV, des valeurs de C_F de $0,79 \pm 0,04$ et de $0,73 \pm 0,07$ respectivement pour les échantillons de densité 1,2 et 1,6 ont été trouvées. Tandis que pour une énergie de 59 keV, des valeurs de C_F de $0,88 \pm 0,02$ et $0,82 \pm 0,03$ sont obtenues respectivement. Ces résultats permettent de montrer que la densité et la composition de l'échantillon sont des paramètres qui ont une influence importante sur l'efficacité de détection.

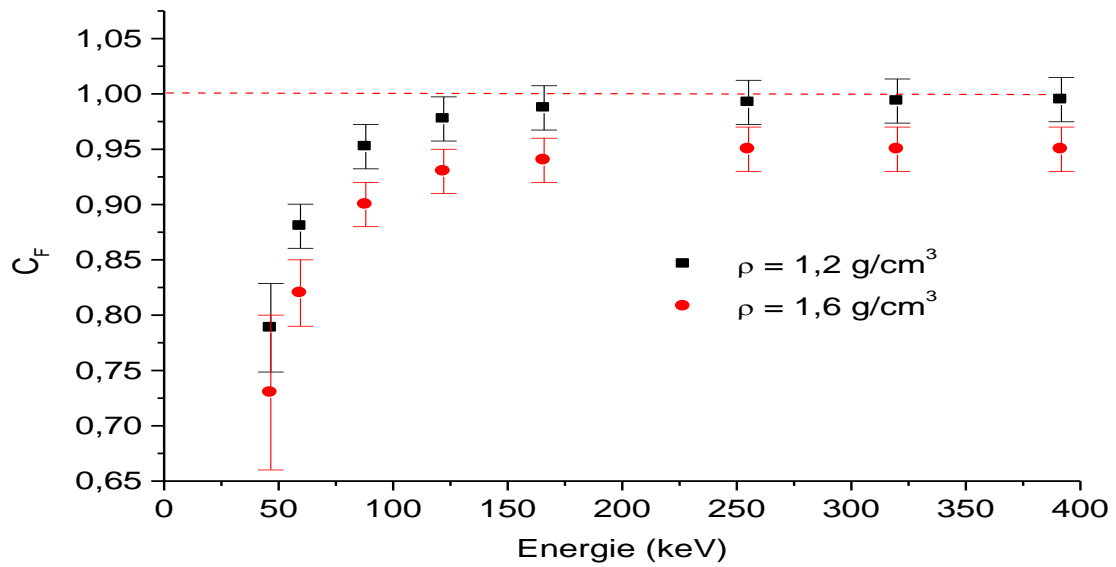


Figure II-18 : Graphique représentant la correction CF pour deux matrices de densités différentes.

En appliquant les facteurs de correction d'auto-absorption (équation 2.6) déterminés sur l'efficacité de détection, l'activité corrigée de l'effet de l'auto-absorption peut être calculée.

Les activités de différents radionucléides émetteurs γ ainsi obtenues ont pu être comparées à celles fournies par l'IRSN (tableau II-3). On constate que plus l'énergie des photons est élevée moins il est nécessaire de corriger l'activité de l'effet d'auto-absorption. Pour chaque échantillon, le Z_{eff} est différent suivant l'énergie des photons et de l'importance de la correction sur l'auto-absorption.

Par inter-comparaison, les résultats des deux tests ont permis de valider cette nouvelle géométrie. Une démarche en vue de l'obtention de futurs agréments de l'Autorité de Sûreté Nucléaire (ASN) pourra ainsi être effectuée.

E et e désignent les écarts normalisés et relatifs et sont définis par les formules (2.14) et (2.15).

	E_γ (keV)	C_F	Activité de référence (A_{ref} en Bq/kg)	Notre activité sans C_F (A_{ssCF} en Bq/kg)	A_{ref} / A_{ssCF}	Notre activité avec C_F (A_{CF} en Bq/kg)	A_{ref} / A_{CF}	e (%)	E
$^{241}\text{Am}^*$	59	0,82	537 ± 36	424 ± 28	1,27	512 ± 48	1,05	4,6	0,55
$^{210}\text{Pb}^{**}$	46	0,79	1455 ± 98	1075 ± 12	1,35	1522 ± 222	0,96	4,6	0,28
^{238}U (^{234}Th) **	63	0,90	1229 ± 44	1109 ± 24	1,11	1235 ± 133	0,99	0,5	0,04
$^{235}\text{U}^{**}$	163	0,99	63 ± 6	62 ± 3	1,02	$63,1 \pm 9,9$	1,00	0,2	0,01
$^{230}\text{Th}^{**}$	67	0,91	1960 ± 260	1716 ± 201	1,14	1881 ± 532	1,04	4,0	0,13

* Test densité 1,6

**Test densité 1,2

Tableau II-3 : Tests d'inter-comparaison des activités [24].

$$e = \frac{A_{\text{ref}} - A_{\text{mesuré}}}{A_{\text{ref}}} \quad 2.14$$

$$E = \frac{A_{\text{ref}} - A_{\text{mesuré}}}{\sqrt{\Delta^2 A_{\text{ref}} + \Delta^2 A_{\text{mesuré}}}} \quad 2.15$$

Les valeurs mesurées sont comparées aux conditions données dans le tableau II-4 (NF ISO/CEI 43-1 [25]). Le tableau II-3 montre que les tests sur e et E sont tous satisfaisants. Par conséquent, la simulation de l'efficacité de la nouvelle géométrie FP80 a pu être validée par ces tests d'inter-comparaison.

	Test e	Test E
Satisfaisant (S)	$e \leq 15\%$	$E \leq 1$
Discutable (D)	$15\% \leq e \leq 20\%$	$1 < E \leq 1,3$
Non Satisfaisant (NS)	$e > 20\%$	$E > 1,3$

Tableau II-4 : Conditions sur les écarts relatifs et normalisés d'après NF ISO/CEI 43-1.

VIII. Validation de la simulation de l'efficacité FP80 par l'utilisation d'une solution de chlorure de potassium.

Actuellement, la détermination du facteur de correction de l'auto-absorption s'effectue avec le détecteur ISOCS tandis que l'analyse de l'échantillon avec le détecteur BEGe. Pour éviter cela, l'introduction d'un nouveau support sur le détecteur BEGe est en cours d'étude afin de supporter le conteneur FP80 et le collimateur. Il est donc nécessaire de valider l'environnement de ce détecteur.

De plus, ne disposant pas à ce jour d'étalon conditionné dans un conteneur FP80, une solution de chlorure de potassium (KCl) a donc été employée. Cette solution est saturée à 38% et de masse volumique $1,2 \text{ g/cm}^3$. Le ^{40}K émettant un photon d'énergie de 1461 keV, l'efficacité de détection a été calculée et a donc permis de valider l'efficacité simulée pour le conteneur FP80 pour les hautes énergies. Cette solution a pour avantage de ne pas produire de déchets radioactifs.

La technique appelée "ionométrie" a permis de déterminer la concentration des ions K^+ de la solution soit 136 g/L à 2%. Pour mesurer le potentiel, cette technique nécessite l'utilisation d'une électrode de verre (indicatrice) et d'une électrode de référence plongées dans la solution à 25°C (créant ainsi une pile galvanique). Le potentiel de l'électrode de verre indique les variations de la concentration à mesurer tandis que le potentiel de l'électrode de référence reste constant. La différence de potentiel mesurée est définie par la loi de Nernst (formule 2.16) :

$$E_{\text{Nerst}} = E_{\text{ind}} - E_{\text{ref}} \quad 2.16$$

où E_{Nerst} : le potentiel mesuré (mV),

E_{ind} : le potentiel de l'électrode indicatrice (mV),

E_{ref} : le potentiel de l'électrode de référence (mV).

Au préalable, un étalonnage des électrodes est effectué. Des solutions dont la valeur de la concentration est parfaitement connue sont préparées pour étalonner le système. La solution mère utilisée est une solution de NaCl de concentration 1,2 mol/L.

Après détermination de la concentration par cette méthode et de son activité, la solution de KCl a été conditionnée dans les conteneurs SG500 et FP80. Ils ont été analysés par spectrométrie γ avec le détecteur BEGe. La déconvolution effectuée sur le pic à 1461 keV a permis d'obtenir le nombre de coups net nécessaire pour calculer l'efficacité. Ainsi, l'efficacité trouvée pour FP80 à une énergie d'un photon de 1461 keV est de $(1,60 \pm 0,05) \cdot 10^{-2}$ et pour SG500 de $(5,6 \pm 0,1) \cdot 10^{-3}$.

Afin de valider la simulation obtenue par le code MCNPX (figure II-19) pour le conteneur SG500, une comparaison entre l'efficacité simulée et l'efficacité expérimentale corrigée des pics-sommes [26] a été nécessaire. Pour réaliser l'expérience pour ce conteneur, une matrice étalon de densité proche de l'eau contenant plusieurs radionucléides émetteurs γ tels que ^{241}Am , ^{109}Cd , ^{57}Co , ^{139}Ce , ^{51}Cr , ^{113}Sn , ^{137}Cs , ^{60}Co et ^{88}Y a été utilisée. La matrice utilisée pour effectuer la simulation est une matrice eau à l'intérieur de laquelle les différents radioéléments de l'étalon sont présents.

C'est à partir d'un polynôme d'ordre 5 que les valeurs de l'efficacité simulée pour SG500 a été déterminée. Elle vaut $(5,7 \pm 0,1) \cdot 10^{-3}$ pour $E_\gamma=1461$ keV.

La figure II-18 montre que la simulation reproduit bien l'expérience corrigée des pics-sommes. Les écarts trouvés entre les valeurs de l'efficacité obtenues pour SG500 par l'expérience par la solution de KCl et par la simulation sont satisfaisants.

Ce résultat a permis de valider la simulation MCNPX pour le conteneur SG500 et également l'environnement du détecteur BEGe.

La figure II-20 représente l'efficacité simulée d'une matrice eau FP80 à l'intérieur de laquelle les différents radioéléments de l'étalon indiqué précédemment ont été modélisés. Un polynôme d'ordre 5 a été réalisé. La valeur obtenue pour FP80 est de $(1,61 \pm 0,01) \cdot 10^{-2}$ pour $E_\gamma=1461$ keV. Cette valeur d'efficacité correspond à la valeur trouvée avec la solution KCl. Ainsi, la simulation pourra être utilisée pour la nouvelle géométrie (FP80) dès lors que l'étalon sera disponible.

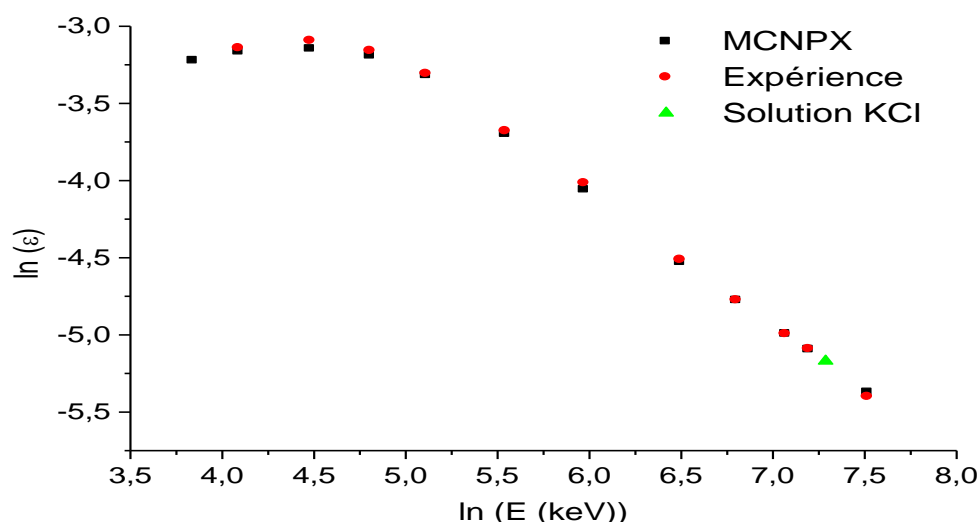


Figure II-19 : Courbes représentant les polynômes d'efficacité d'ordre 5 pour le conteneur SG500. Le point vert désigne l'efficacité expérimentale provenant de la solution de KCl.

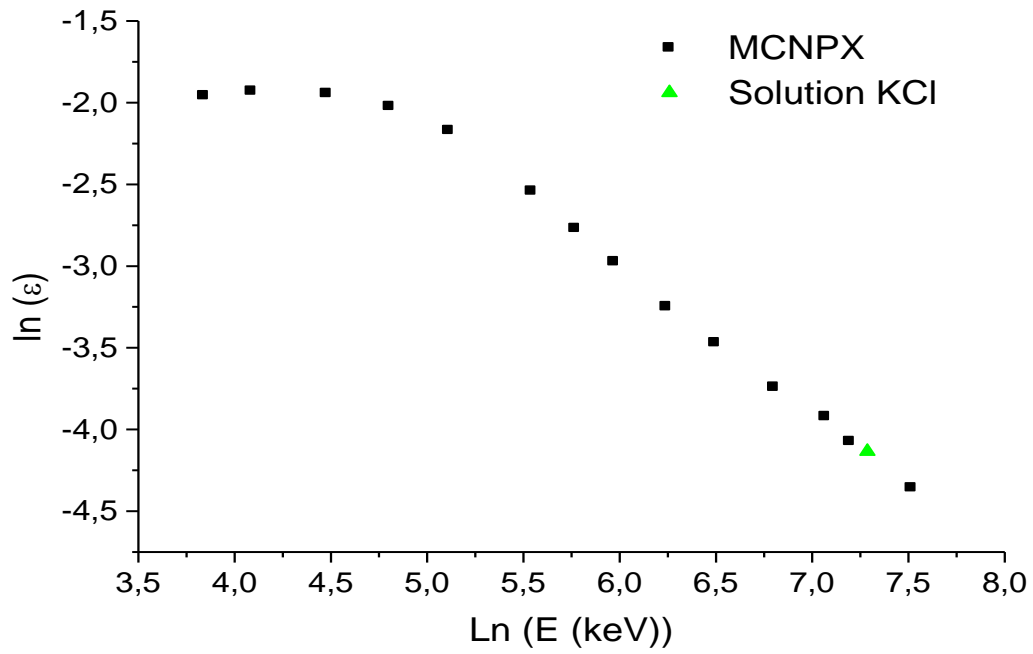


Figure II-20 : Courbe représentant le polynôme d'efficacité d'ordre 5 pour le conteneur FP80. Le point vert indique l'efficacité expérimentale obtenue avec la solution de KCl.

Chapitre 3 :

La dosimétrie appliquée aux mesures environnementales

La dosimétrie est importante en métrologie des rayonnements ionisants. Elle quantifie et estime le risque engendré par l'utilisation de ces rayonnements. Ainsi pour chaque grandeur physique sont associés un concept et une unité définie par l'ICRU. Les grandeurs radiométriques permettent de caractériser le champ de rayonnement tandis que le dépôt d'énergie du rayonnement dans la matière est traduit par les grandeurs dosimétriques.

Ce chapitre décrit les concepts fondamentaux utilisés en radioprotection. Une étude plus détaillée sur la dosimétrie des matériaux de construction notamment sur l'intérêt du radium équivalent a été réalisée. Une attention particulière sur les facteurs de conversion de dose a été faite sur les dosimétries des matériaux de constructions et des rayonnements ionisants dans des sols.

I. La radioprotection

Les radiologues, ayant pris conscience des lésions causées par les rayons X et par le radium sur l'homme, ont créé en 1928 un organisme international appelé CIPR (Commission Internationale de Protection Radiologique) qui a permis de définir les normes de radioprotection. L'objectif principal de cette commission est de gérer et de contrôler les expositions aux rayonnements ionisants pour éviter des effets déterministes et de réduire au maximum les risques des effets aléatoires. La radioprotection évolue en fonction des connaissances scientifiques obtenues par des études épidémiologiques et biologiques.

A ce jour, pour les doses inférieures à 100 mSv [27], des incertitudes concernant les risques éventuels liés aux expositions chroniques subsistent. Les données sont donc extrapolées à partir de doses plus fortes et de débits élevés.

II. Historique de la radioprotection pour les travailleurs

Pour les professionnels, la première limite de dose (500 mSv par an) a été établie en 1938. Elle devait garantir l'absence totale de risque contre les effets des rayonnements ionisants. Lorsqu'il s'est avéré que les rayonnements ionisants aggravaient l'apparition de cancers, la CIPR a conseillé un abaissement des limites de dose.

C'est en 1959 qu'est apparue la première publication officielle fixant une limite moyenne de dose pour les travailleurs. Cette dose a été fixée à 50 mSv par année, pouvant dépasser exceptionnellement 120 mSv par an. Ces recommandations ont été légiférées en France en juin 1966 [28] pour les principes généraux, puis en mars 1967 [29] pour la protection des travailleurs. La dernière publication datant de

2007, CIPR 103[30], fixe la limite annuelle de dose des travailleurs à 20 mSv par année, avec cumul maximal de 100 mSv sur 5 ans.

III. Surveillance dosimétrique des travailleurs du nucléaire en France

En France, des décrets publiés le 20 juin 1966 [28] et le 15 mars 1967 [29], stipulent en outre que des zones contrôlées doivent être instaurées.

Les décrets précisent également que toute personne directement affectée à des travaux sous rayonnements (irradiation externe et contamination interne) fera l'objet d'une surveillance permettant d'évaluer les doses reçues. Pour chaque travailleur, un dossier médical est tenu par le médecin du travail. Il doit contenir une fiche de nuisance, les résultats des examens obligatoires (examens clinique, radiographie, radiotoxicologie) et les résultats des différents relevés dosimétriques.

La protection contre l'excès des rayonnements ionisants est assurée principalement par la surveillance dosimétrique. Les travailleurs sont classés en deux catégories :

- Catégorie A : dose cumulée supérieure à 6 mSv par an,
- Catégorie B : dose inférieure à 6 mSv par an.

Les travailleurs peuvent être exposés à des rayonnements ionisants par voies externe et interne.

La dosimétrie est individuelle et externe avec éventuellement une dosimétrie complémentaire interne ou d'ambiance. Elle est adaptée au poste de travail en fonction des expositions et des contraintes présentes.

En radioprotection, l'évaluation de la dose reçue prend en compte les interactions des rayonnements avec la matière, la durée du temps d'exposition et le type de source.

IV. Exposition de l'homme aux rayonnements ionisants

L'exposition aux rayonnements qui atteignent le corps peut être soit externe ou soit interne.

L'exposition externe aux rayonnements provoque une irradiation externe. Elle cesse dès que l'organisme n'est plus sur la trajectoire des rayonnements.

Lorsque des substances radioactives se trouvent à l'intérieur de l'organisme, il y a exposition interne. La contamination interne cesse lorsque les substances radioactives ont disparu de l'organisme après un temps plus ou moins long. La suppression de la contamination peut se faire soit par décroissance radioactive, soit par élimination naturelle, soit par traitement.

IV.1. Exposition externe

Une personne se trouvant dans un champ de rayonnements ionisants provenant d'un appareil ou de substances radioactives, est soumise à une exposition externe. Ces rayonnements ionisants peuvent atteindre la personne directement ou par réflexion sur les éléments constituant l'environnement. Une partie ou l'ensemble de l'organisme peut être affecté par le rayonnement (irradiation globale ou partielle). Les vêtements ou la peau contaminés peuvent constituer une source d'exposition externe.

La dosimétrie externe mesure les doses reçues par une personne présente dans un champ de rayonnements produit par une source extérieure tels que les rayons X, γ , β , neutrons... Suivant le type de rayonnement, des dosimètres individuels adaptés sont portés par les travailleurs pour connaître la dose reçue sur la totalité du corps (dosimètre poitrine) ou sur une partie (dosimètre poignet). La

dosimétrie opérationnelle permet d'indiquer la dose reçue en temps réel tandis que la dosimétrie passive, après lecture du badge dans un laboratoire agréé [31], révèle la dose en temps différé.

IV.2. Exposition interne

Lorsque les substances radioactives pénètrent dans l'organisme d'une personne, il y a exposition interne. Elles peuvent s'introduire dans l'organisme, soit par inhalation si les substances radioactives sont contenues dans l'air respiré, soit par ingestion si les substances radioactives sont présentes dans les aliments, les liquides ou sur des objets en contact avec la bouche, soit par blessure avec un objet contaminé, soit par absorption cutanée variable en fonction du caractère lipophile de la substance radioactive.

Les substances radioactives se répartissent alors dans l'organisme. En fonction de leur nature physico-chimique, ces substances peuvent s'accumuler dans les organes ou les tissus qu'elles irradient lors de leur désintégration.

La dosimétrie interne s'effectue lorsqu'il y a eu incorporation dans l'organisme de substances radioactives. Elle est réalisée à l'aide d'examen anthroporadiométriques (mesure de la contamination interne corporelle) ou d'analyses radiotoxicologiques (dosages réalisés sur des excréta).

V. Grandeurs dosimétriques

Les grandeurs dosimétriques caractérisent l'effet «physique» des rayonnements sur la matière en termes d'énergie transférée ou de dépôt d'énergie.

V.1. Dose absorbée

L'activité d'une source radioactive s'exprime en becquerel (Bq) soit le nombre de noyaux qui se transforment spontanément par seconde.

Lorsque le rayonnement interagit avec la matière, il lui transmet de l'énergie. Ce transfert est défini par la dose absorbée dont l'unité est le gray (Gy) soit le dépôt d'1 joule par kilogramme.

L'énergie déposée en un point permet de définir l'importance d'une irradiation. La dose absorbée D_{abs} ou de rayonnement en un point, correspond à l'énergie qui y est déposée (dE) par unité de masse (dm).

La dose absorbée est donnée par la relation suivante :

$$D_{\text{abs}} = \frac{dE}{dm} \quad 3.1$$

L'activité d'une source n'est pas liée directement à la dose absorbée car D_{abs} varie en fonction des radioéléments donc de la nature du rayonnement émis.

Suivant le type de rayonnement, il est possible d'obtenir des effets biologiques différents à dose absorbée équivalente. Par exemple, lorsque les rayonnements α pénètrent dans la matière, ils sont freinés plus rapidement que les rayonnements γ ou X. Ils sont donc plus perturbateurs car ils étalent moins leur dépôt d'énergie.

Pour tenir compte de la nature du rayonnement émis, il est donc nécessaire d'utiliser une dose équivalente.

V.2. Dose transférée

Le Kerma (pour Kinetic Energy Released in Matter) est utilisé pour caractériser les rayonnements indirectement ionisants comme les photons et les neutrons. Il définit le transfert d'énergie aux particules secondaires chargées directement ionisantes et la somme des énergies cinétiques initiales des particules chargées mises en mouvement par les rayonnements incidents en un volume de masse dm .

$$K = \sum \frac{dE}{dm} \quad 3.2$$

L'unité du Kerma est le gray (Gy).

VI. Grandeurs de protection

La dose équivalente à l'organe et la dose efficace sont les deux grandeurs de protection qui ne sont pas directement mesurables. Elles sont associées aux doses absorbées dans l'organisme suite à une exposition externe ou interne. C'est sur ces grandeurs de protection que s'appliquent les limites réglementaires concernant les doses reçues annuellement par les travailleurs et la délimitation des zones de travail [32].

VI.1. Dose équivalente

La dose équivalente H_T prend en compte la dose absorbée avec un facteur de pondération affecté à la caractéristique du rayonnement W_R . L'unité de la dose équivalente est le sievert (Sv) :

$$H_T = \sum_R W_R D_{abs,R} \quad 3.3$$

où $D_{T,R}$ est la dose absorbée dans le tissu T due au rayonnement R.

En 2007, la CIPR a défini des valeurs de W_R qui sont regroupées dans le tableau III-1.

Particule	Energie (E)	W_R (E en MeV)
X et γ	Toutes énergies	1
n	< 1MeV	$2,5 + 18,2e^{-\ln(E)^2/6}$
	1 à 50 MeV	$5 + 17e^{-\ln(2E)^2/6}$
	> 50 MeV	$2,5 + 3,25e^{-\ln(0,04E)^2/6}$
α , fragments de fission ...	Toutes énergies	20
e^-	Toutes énergies	1
p	Toutes énergies	2

Tableau III-1: Valeurs des facteurs de pondération radiologiques.

Le débit d'équivalent de dose (\dot{H}_T) est la dose équivalente ramenée au temps d'exposition soit des Sv/an.

VI.2. Dose efficace

La dose efficace E correspond à la somme des doses absorbées par les différents tissus pour tenir compte de leur radiosensibilité relative (W_T). La dose efficace est pondérée à la fois par les facteurs W_R et W_T . Elle s'exprime en Sv et intègre donc le risque total.

$$E = \sum_T W_T H_T = \sum_T W_T \sum_R W_R D_{T,R} \quad 3.4$$

Le débit d'équivalent de dose efficace (\dot{E}) est également la dose efficace ramenée au temps d'exposition (Sv/an).

VII. Différentes sources d'exposition pour l'homme

L'homme est soumis en permanence à de faibles doses de radioactivité naturelle et artificielle. En France, la dose efficace reçue est en moyenne de 4 mSv par personne et par an [33].

L'origine principale des sources d'exposition naturelle provient :

- de la radioactivité issue de la croûte terrestre (rayonnements telluriques : 0,5 mSv par an et par personne),
- des rayonnements cosmiques principalement du Soleil (0,3 mSv par an et par personne),
- des éléments radioactifs absorbés par l'organisme (exemple : radon respiré 1,5 mSv par an et par personne).

Les principales sources d'exposition artificielle proviennent :

- des irradiations médicales : 1,3 mSv par an et par personne,
- des activités industrielles non nucléaires : 0,01 mSv par an et par personne,
- des activités industrielles nucléaires : 0,002 mSv par an et par personne.

Les valeurs peuvent différer fortement d'un individu à un autre suivant son régime alimentaire, les moyens de transport utilisés, le lieu de résidence, les examens médicaux (radiologiques, radiothérapie) subis ainsi que les expositions professionnelles.

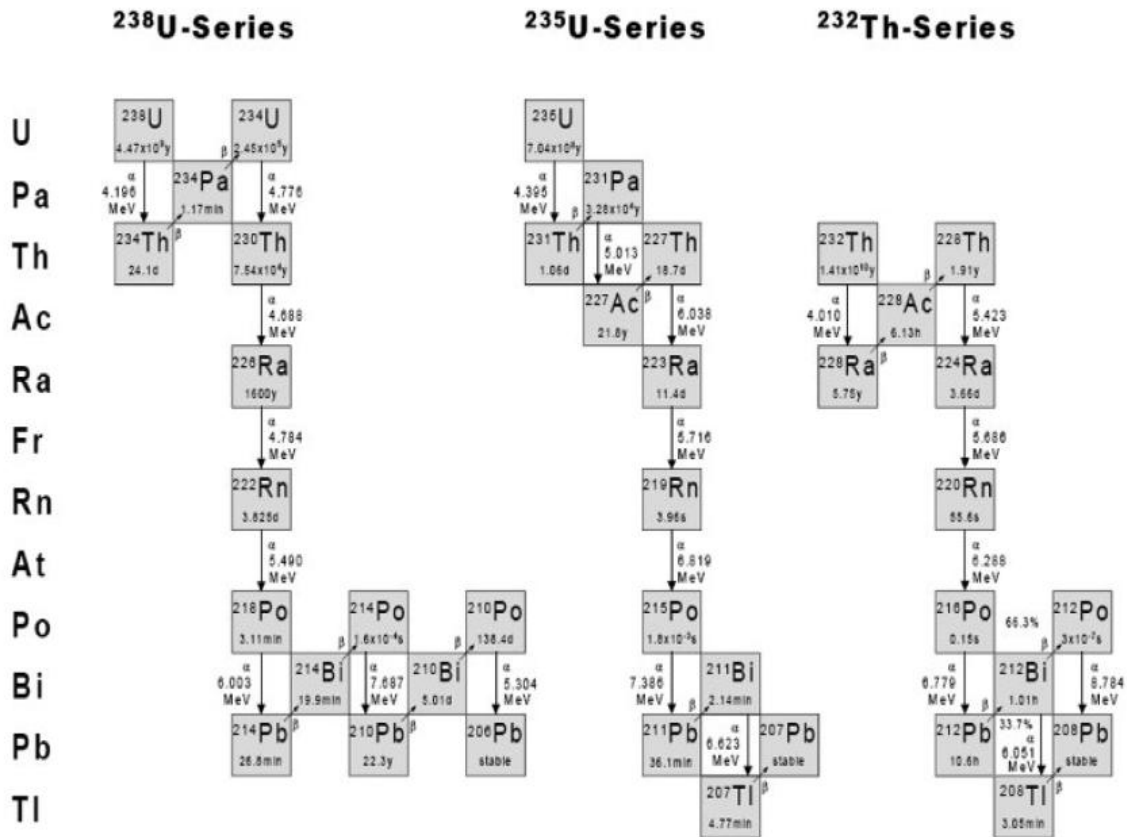


Figure III-1 : Familles radioactives naturelles de l' ^{238}U , de l' ^{235}U et du ^{232}Th .

VIII. Grandeurs opérationnelles

Les grandeurs opérationnelles sont utilisées pour la surveillance de zone et la surveillance individuelle vis-à-vis de l'exposition externe aux rayonnements.

Les différentes grandeurs de protection (dose absorbée, dose efficace) n'étant pas mesurables, la notion de grandeurs opérationnelles a été introduite. Les grandeurs opérationnelles nécessitent l'utilisation de détecteurs de rayonnements externes. Ce sont des estimateurs de la dose efficace et des doses équivalentes aux organes. Les valeurs de chacune de ces grandeurs sont additionnables pour des angles d'incidence, des énergies et des rayonnements différents.

Pour la surveillance de zone ou d'ambiance, les grandeurs opérationnelles appropriées sont **l'équivalent de dose ambiant $H^*(d)$** ainsi que **l'équivalent de dose directionnel $H'(d,\Omega)$** alors que pour la surveillance individuelle, **l'équivalent de dose individuelle $H_p(d)$** est utilisé.

Ces grandeurs, dépendant de l'énergie du rayonnement ainsi que de l'orientation de l'exposition, correspondent à la dose absorbée évaluée en un point situé à une profondeur d dans le corps.

Dans la dosimétrie d'ambiance, la grandeur de référence pour les rayonnements fortement pénétrants, est l'équivalent de dose ambiant $H^*(d)$. Elle permet d'estimer la dose efficace E . La profondeur d recommandée est de 10 mm. Pour les rayonnements faiblement pénétrants, la grandeur utilisée est l'équivalent de dose directionnel $H'(d,\Omega)$ et correspond à un estimateur de la dose équivalente de la peau H_{peau} . La profondeur d recommandée étant de 0,07 mm, il est possible d'écrire $H'(0,07,\Omega)$.

Dans le cas de la dosimétrie individuelle, l'équivalent de dose individuel $H_p(d)$ est employé. Pour les rayonnements très pénétrants, la profondeur conseillée est de 10 mm donc $H_p(10)$ est un bon estimateur de la dose efficace. Pour les rayonnements faiblement pénétrants, la profondeur est de 0,07 mm, $H_p(0,07)$ est un bon estimateur de la dose équivalente de la peau H_{peau} . La figure III-2 représente les corrélations entre les grandeurs physiques (grandeurs dosimétriques et radiométriques), les grandeurs opérationnelles et les grandeurs de protection.

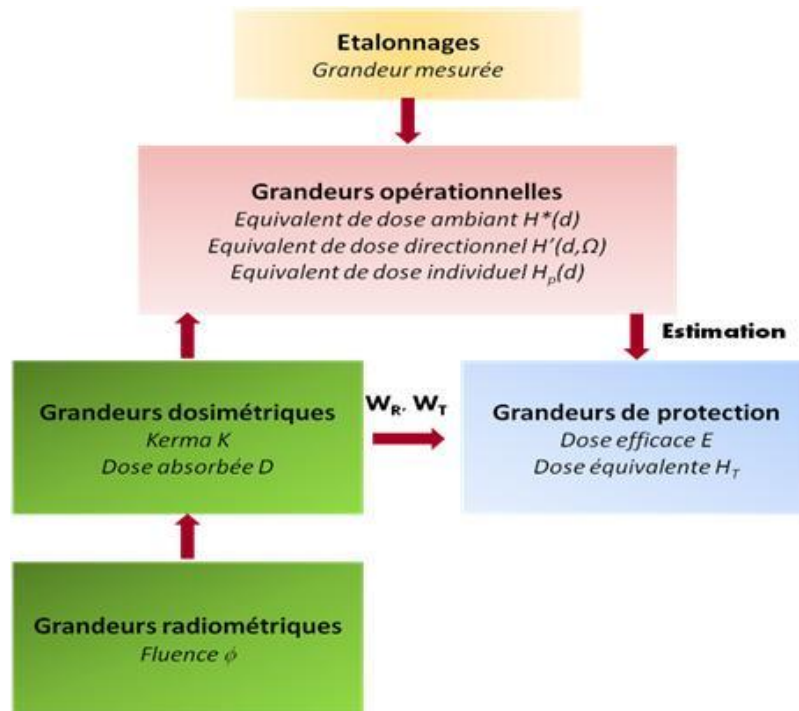


Figure III-2 : Liens entre les grandeurs physiques, les grandeurs de protection et les grandeurs opérationnelles.

IX. Dosimétrie des matériaux de construction : applications

Les matériaux de construction représentent une source de rayonnement non négligeable [34] car ils sont produits à partir de roches et de sols qui contiennent de la radioactivité à des niveaux variables en fonction de leur origine [35]. La valeur moyenne pondérée mondiale du débit de dose absorbée dans l'habitation est de 84 nGy/h [36]. Les humains passant près de 80% de leur temps dans leur logement sont donc exposés très souvent à la radioactivité naturelle ambiante liée aux rayons cosmiques et telluriques. La connaissance de la dose de radioactivité naturelle reçue pour chaque individu est donc nécessaire dans l'évaluation des risques radiologiques.

Le rapport UNSCEAR 2000 [36] propose des modèles pour définir certaines grandeurs dosimétriques comme le radium équivalent, les indices de risque interne/externe, le débit de la dose absorbée et de dose efficace annuelle. Certaines limites à ne pas dépasser sont recommandées.

Les radionucléides principalement présents dans les matériaux de construction sont le ^{226}Ra , le ^{232}Th et le ^{40}K . Plusieurs échantillons de matériaux de construction (brique rouge, parpaing, sable, gravier, gypse, marbre, ciment) ont été collectés dans différentes régions du Maroc. Ils ont été analysés par spectrométrie γ en appliquant les grandeurs dosimétriques définies par le rapport UNSCEAR 2000.

IX.1. Activités des échantillons de construction

Les échantillons de forme et de géométrie différentes, dont l'activité sera déterminée, présentent une distribution de radioactivité hétérogène. Les radioéléments recherchés sont le ^{226}Ra , le ^{232}Th et le ^{40}K . Pour obtenir des échantillons homogènes [37], les matériaux sont séchés à 40°C pendant 24 h, puis broyés et tamisés ($< 200 \mu\text{m}$). Avant toute mesure, les échantillons ont été conditionnés dans des conteneurs FP80 étanches au radon pendant un mois, pour obtenir l'équilibre séculaire correspondant à sept demi-vies de ^{222}Rn (3,8 j) entre les radionucléides. L'analyse a été effectuée par spectrométrie γ avec le détecteur BEGe avec un temps d'acquisition moyen de 2.10^5s . La correction de l'auto-absorption calculée avec l'ISOCS a été appliquée sur chaque échantillon.

Le ^{226}Ra est difficile à différencier du ^{235}U car en émettant un photon d'énergie très proche de celui-ci (186,1 keV et 185,72 keV respectivement), une interférence est créée. Pour pouvoir déterminer l'activité du ^{226}Ra , les radionucléides ^{214}Pb et ^{214}Bi sont donc utilisés car ils font partie de la même chaîne de décroissance du radium. Les raies du ^{214}Pb et du ^{214}Bi indiquées dans le tableau III-2 ont été choisies pour leur forte intensité d'émission.

Le ^{232}Th est mesuré à l'aide des raies du ^{228}Ac et du ^{212}Pb (tableau III-2). La courte période de désintégration du ^{220}Rn de 56 s fait que l'équilibre séculaire est atteint rapidement pour la famille du thorium. C'est pour leur forte intensité d'émission que les raies choisies ont été retenues.

Le ^{40}K est déterminé à partir de la raie 1461 keV d'intensité d'émission 10,55%.

Element	Energie (keV)	Intensité d'émission(%)
^{214}Pb	295	18,4
	352	35,6
^{214}Bi	609	45,5
	1120	14,9
	1764	15,3
^{228}Ac	911	25,8
	969	15,8
^{212}Pb	239	43,6
^{40}K	1461	10,55

Tableau III-2 : Raies γ utilisées pour déterminer les activités du ^{226}Ra , du ^{232}Th et du ^{40}K .

La figure III-3 représente le spectre en énergie typique obtenu pour la brique. Les raies correspondant aux radioéléments ^{226}Ra , ^{232}Th et ^{40}K de l'échantillon sont identifiables sur le spectre.

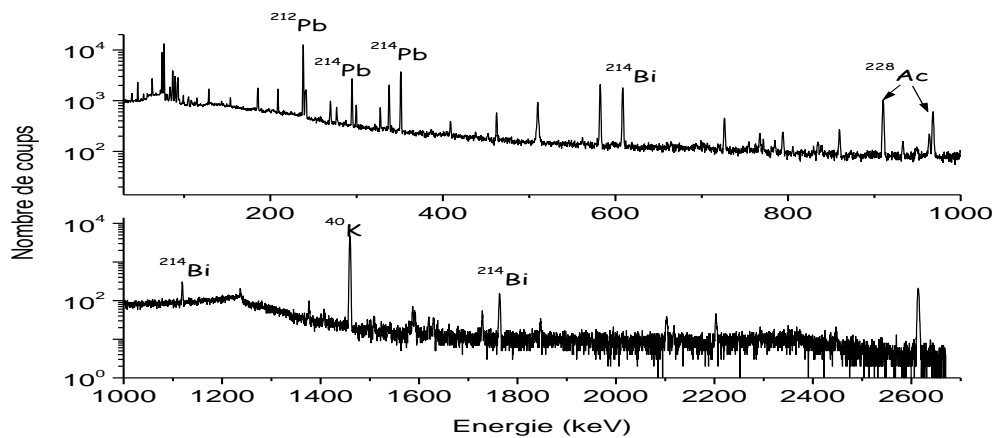


Figure III-3 : Spectre expérimental de la brique rouge.

Les activités spécifiques corrigées du ^{226}Ra , du ^{232}Th et du ^{40}K , pour les différents matériaux de construction, sont données dans le tableau III-3. A l'exception du sable de mer, le radioélément ^{40}K est celui qui contribue le plus à l'activité spécifique de tous les échantillons.

Echantillons	Activité (Bq/kg)		
	^{226}Ra	^{232}Th	^{40}K
Brique rouge	31 ± 3	46 ± 4	1167 ± 108
Parpaing	20 ± 2	18 ± 2	275 ± 26
Gravier	15 ± 3	12 ± 2	319 ± 55
Sable de mer	48 ± 6	< 1,6	27 ± 4
Sable de rivière	19 ± 1	8,4 ± 0,8	196 ± 19
Marbre	3,8 ± 0,5	1,3 ± 0,3	59 ± 6
Ciment noir	54 ± 4	20 ± 2	298 ± 53
Ciment blanc	22 ± 2	< 1,7	118 ± 11
Gypse	1,0 ± 0,2	0,7 ± 0,3	7,5 ± 2,3

Tableau III-3: Les activités ^{226}Ra , ^{232}Th et ^{40}K obtenues pour les matériaux de construction du Maroc.

En raison d'une distribution non uniforme des radionucléides (^{40}K , ^{226}Ra et ^{232}Th) dans les matériaux de construction, l'exposition aux rayonnements γ est définie par l'activité du radium équivalent (Ra_{eq}).

IX.2. Radium équivalent (Ra_{eq})

Le terme Ra_{eq} a été utilisé pour définir l'activité d'un radionucléide ayant un effet biologique équivalent à 1 mg de ^{226}Ra . En pratique, les sources de radium sont souvent mesurées en milligrammes plutôt qu'en millicuries [38] car le « curie » a été défini en fonction de l'activité de 1g de radium. Le Ra_{eq} a permis depuis 40 ans [39], [40], [41], [42] d'évaluer les risques radiologiques dus à la radioactivité dans les matériaux de l'environnement.

Les tables de dose, les plans de traitement, les protocoles, etc, sont exprimés en radium [43], car à l'origine la curiethérapie, appelée aussi brachythérapie, technique de radiothérapie mise au point à l'Institut Curie où la source radioactive scellée est placée à l'intérieur ou à proximité immédiate de la zone à traiter, a été réalisée avec le ^{226}Ra . La production de sources anthropogéniques a été exprimée en Ra_{eq} afin de faciliter l'utilisation des connaissances institutionnelles existantes [38]. La notion de Ra_{eq} est également employée pour évaluer les risques radiologiques des composants environnementaux [44][45].

Selon Beretka [40], la radioactivité naturelle des matériaux de construction est généralement déterminée à partir des familles du ^{226}Ra et du ^{232}Th , ainsi qu'à partir du ^{40}K . Il a été observé que 98,5% [46] des effets radiologiques des éléments de la série de l'uranium (^{238}U) sont dus au ^{226}Ra et à ses descendants. Pour cette raison, la contribution des précurseurs entre le ^{238}U et le ^{226}Ra peut être négligée. La dose de rayonnement est définie en prenant en compte l'activité mesurée du radionucléide et les modèles de conversion de débit de dose [44].

Le modèle de Krisiuk [39] prévoit qu'une concentration d'activité du ^{226}Ra de 370 Bq/kg (1 $\mu\text{Ci/g}$) répartie uniformément dans un matériau, donne une dose annuelle de 1,5 mGy [47], [48] à une distance de 1 m de ce matériau.

Krisiuk considère une maison comme une cavité avec des murs d'épaisseur infinie pour obtenir une formule qui combine le débit de dose à l'intérieur avec le contenu de la radioactivité des matériaux de construction. Ainsi le Ra_{eq} est donnée par l'équation suivante :

$$Ra_{eq} = \frac{370}{370} A_{Ra} + \frac{370}{259} A_{Th} + \frac{370}{4810} A_K \quad 3.5$$

Dans cette équation, les activités du ^{226}Ra (370 Bq/kg), du ^{232}Th (259 Bq/kg) et du ^{40}K (4810 Bq/kg) représentent la même dose efficace de rayonnement γ .

Les valeurs de Ra_{eq} pour les matériaux de construction en provenance du Maroc ont été calculées après avoir déterminé les activités des différents radionucléides. Le tableau III-4 récapitule les valeurs de Ra_{eq} pour chaque échantillon. Toutes les valeurs sont en dessous de la valeur maximale soit 370 Bq/kg définie par le rapport UNSCEAR 2000 [36].

Echantillons	Ra_{eq} (Bq/kg)
Brique rouge	186,6 ± 26,9
Parpaing	66,9 ± 11,2
Gravier	56,7 ± 16,2
Sable de mer	52,3 ± 6,9
Sable de rivière	46,1 ± 5,9
Marbre	10,2 ± 3,1
Ciment noir	105,5 ± 15,7
Ciment blanc	33,5 ± 3,1
Gypse	2,6 ± 1,4

Tableau III-4 : Valeurs de Ra_{eq} pour les matériaux de construction du Maroc.

Les différentes valeurs de Ra_{eq} obtenues sont comparées aux valeurs des matériaux de construction en provenance d'autres pays, notamment de France. Les valeurs de Ra_{eq} pour les matériaux d'origine française ont été reprises de [26]. La recherche bibliographique a porté sur divers matériaux de construction. Le tableau III-5 indique les résultats obtenus en fonction de leur origine. Comme le montre le tableau, Ra_{eq} pour les matériaux de construction varie en fonction du pays. Ces valeurs ne correspondent bien sûr qu'à une zone de prélèvement limitée dans chaque pays. Pour le gravier et le parpaing, les valeurs de Ra_{eq} obtenues quelle qu'en soit l'origine sont relativement proches.

Matériaux	Ra _{eq} (Bq/kg)	Pays	Références
Gypse	5,0	FRANCE	[49]
	107,6	ARABIE SAOUDITE	[50]
	2,6	MAROC	Ce travail
Marbre	72,6	ALGERIE	[41]
	36,5	ARABIE SAOUDITE	[50]
	10,2	MAROC	Ce travail
Gravier	45,5	FRANCE	[49]
	64,3	ARABIE SAOUDITE	[50]
	56,7	MAROC	Ce travail
Brique rouge	247,4	FRANCE	[49]
	118,2	TURQUIE	[50]
	186,6	MAROC	Ce travail
Sable	90,1	FRANCE	[49]
	60,5	ARABIE SAOUDITE	[50]
	49,2*	MAROC	Ce travail
Ciment	103,1	FRANCE	[49]
	109,8	ARABIE SAOUDITE	[50]
	69,5**	MAROC	Ce travail
Parpaing	66	FRANCE	[49]
	66,9	MAROC	Ce travail

* Moyenne des valeurs Ra_{eq} pour les sables de mer et de rivière

**Moyenne des valeurs Ra_{eq} pour les ciments noir et blanc

Tableau III-5 : Ra_{eq} dans les différents matériaux de construction en provenance d'autres pays du monde.

Il est aussi nécessaire d'évaluer les risques interne et externe propres à l'homme qui sont dus à la contribution des radionucléides émettant des rayonnements γ présents dans les matériaux de construction. La limite des doses efficaces de rayonnement pour les matériaux de construction fixée par le rapport UNSCEAR 2000[36] est de 1 mSv/an.

IX.3. Indices de risques interne et externe

Les indices de risques sont définis par un modèle [39], [51], [52], tenant compte de l'activité maximale du Ra_{eq} (370 Bq/kg). L'indice de danger externe (H_{ex}) est défini par l'équation suivante :

$$H_{ex} = \frac{A_{Ra}}{370} + \frac{A_{Th}}{259} + \frac{A_K}{4810} \leq 1 \quad 3.6$$

Les organes respiratoires sont menacés en raison de la décroissance du ²²⁶Ra en ²²²Rn et ses descendants. L'activité maximale admissible pour le ²²⁶Ra est donc réduite de moitié soit 185 Bq/kg. Ce risque interne (H_{in}) doit être quantifié [47] :

$$H_{in} = \frac{A_{Ra}}{185} + \frac{A_{Th}}{259} + \frac{A_K}{4810} \leq 1 \quad 3.7$$

avec les activités du ^{226}Ra , du ^{232}Th et du ^{40}K exprimées en Bq/kg dans les équations (3.5) à (3.7).

La figure III-4 montre les indices de risque interne et externe des échantillons de matériaux marocains étudiés. Les valeurs du risque interne suivant les matériaux varient entre 0,01 et 0,59 tandis que pour l'indice de risque externe, elles sont comprises entre 0,007 et 0,504. Les valeurs sont maximales pour la brique rouge et minimales pour le gypse. Aucune des valeurs ne dépasse 1.

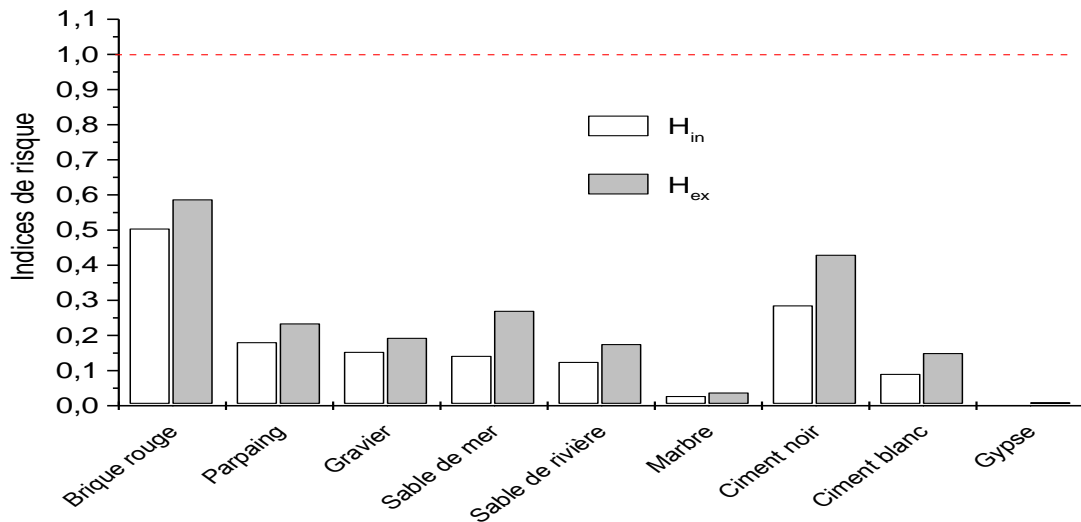


Figure III-4 : Les indices de risque pour les échantillons du Maroc.

IX.4. Débit de dose absorbée et dose efficace annuelle

L'expression du débit de dose absorbée \dot{D} (nGy/h) est donnée par la formule (3.8) :

$$\dot{D} = F_{Ra}A_{Ra} + F_{Th}A_{Th} + F_KA_K \quad 3.8$$

où $F_{Ra} = 0,92$, $F_{Th} = 1,10$ et $F_K = 0,08$ (nGy/h) \times (Bq/kg) $^{-1}$ sont les facteurs de conversion de dose donnés dans le rapport UNSCEAR 2000 [36]. Suivant la directive de la Commission Européenne [53], le taux de dose absorbée totale dû à l'activité des radionucléides naturels dans l'air est défini à 1 m de hauteur [48].

Cette équation (3.8) reprise dans le rapport [53] est basée sur un modèle développé par Koblinger [54]. Il définit un modèle de pièce sans porte et fenêtre de dimensions externes $4 \times 5 \times 2,8$ m³ avec des murs, plafond et sol de 20 cm d'épaisseur en béton de densité 2,35.

Le tableau III-6 indique le débit de dose absorbée dans l'air pour les matériaux de construction marocains. La valeur la plus importante est obtenue pour la brique rouge soit $(172,5 \pm 10,1)$ nGy/h alors que celle du gypse est seulement de $(2,3 \pm 0,4)$ nGy/h.

Echantillons	\dot{D} (nGy/h)
Brique rouge	172,5 ± 10,1
Parpaing	60,2 ± 3,5
Gravier	52,5 ± 5,6
Sable de mer	48,1 ± 5,5
Sable de rivière	42,4 ± 2,0
Marbre	9,6 ± 0,7
Ciment noir	95,5 ± 6,0
Ciment blanc	31,6 ± 2,0
Gypse	2,3 ± 0,4

Tableau III-6 : Débit de dose absorbée pour les échantillons de provenance du Maroc.

La dose reçue par la population est appelée dose efficace annuelle et elle est calculée (en mSv/an) suivant la formule :

$$\dot{E} = 0,8 \times \dot{D} \times T \times 0,7 \cdot 10^{-6} \quad 3.9$$

où \dot{D} représente le débit de dose absorbée dans l'air en nGy/h,
T est le temps en heures soit 24h x 365,25 jours = 8766 heures,
0,8 est le facteur d'occupation du logement.

Pour calculer l'exposition externe d'un adulte se situant à l'intérieur d'une habitation, le coefficient 0,7 Sv/Gy recommandé par l'UNSCEAR 2000 [36] permet de convertir le débit de dose absorbée dans l'air en dose efficace. Pour un enfant, ce coefficient est de 0,8 Sv/Gy.

Pour chaque échantillon, la dose efficace annuelle est calculée avec l'équation (3.9) et présentée dans le tableau III-7. La dose pour la brique rouge est de (0,847 ± 0,049) mSv/an et seulement de (0,011 ± 0,002) mSv/an pour le gypse. Les valeurs ne dépassent pas la limite annuelle de dose efficace fixée à 1 mSv/an.

Echantillons	\dot{E} (mSv/an)
Brique rouge	0,847 ± 0,049
Parpaing	0,296 ± 0,017
Gravier	0,258 ± 0,028
Sable de mer	0,236 ± 0,027
Sable de rivière	0,208 ± 0,010
Marbre	0,047 ± 0,004
Ciment noir	0,469 ± 0,030
Ciment blanc	0,155 ± 0,010
Gypse	0,011 ± 0,002

< 1 mSv/an
Limite de dose

Tableau III-7 : Dose efficace annuelle pour les échantillons marocains.

Il est également possible de définir la dose efficace annuelle avec le radium équivalent Ra_{eq} .
Suivant les équations (3.8) et (3.9) :

$$\dot{D}_{Ra} = F_{Ra}A_{Ra}, \quad \dot{D}_{Th} = F_{Th}A_{Th}, \quad \dot{D}_K = F_KA_K \quad 3.10$$

sachant que la dose efficace annuelle totale maximale est :

$$\dot{E}_T = \dot{E}_{Ra} + \dot{E}_{Th} + \dot{E}_K = 1\text{mSv/an} \quad 3.11$$

il est possible d'écrire :

$$F_{Ra}A_{Ra} = F_{Th}A_{Th} = F_KA_K \quad 3.12$$

$$F_{Th} = F_{Ra} \frac{A_{Ra}}{A_{Th}} \quad \text{et} \quad F_K = F_{Ra} \frac{A_{Ra}}{A_K} \quad 3.13$$

$$\begin{aligned} \dot{E}_T &= c[F_{Ra}A_{Ra} + F_{Th}A_{Th} + F_KA_K] \quad 3.14 \\ &= cF_{Ra} \left[A_{Ra} + \frac{A_{Ra}}{A_{Th}} A_{Th} + \frac{A_{Ra}}{A_K} A_K \right] \end{aligned}$$

$$\dot{E}_T = cF_{Ra}Ra_{eq} \quad 3.15$$

avec $c=0,8 \times T \times 0,7 \times 10^{-6}$, $F_{Ra}=0,92$, Ra_{eq} en Bq/kg et \dot{E}_T en mSv/an.

En utilisant les équations (3.9) et (3.15), le débit total de dose absorbée (\dot{D}_T) peut aussi être défini avec le radium équivalent :

$$\dot{D}_T = F_{Ra}Ra_{eq} \quad 3.16$$

X. Simulations MCNPX

X.1. Simulations des débits de dose absorbée et de dose efficace annuelle

Au cours de cette thèse, des simulations MCNPX ont été réalisées pour chaque matériau de construction afin de comparer les valeurs de débit de dose absorbée obtenues à celles calculées avec les formules données dans le rapport UNSCEAR 2000.

Les simulations MCNPX effectuées ont aussi permis de déterminer les facteurs de conversion de dose afin de calculer la dose efficace annuelle et de la comparer avec celle donnée par le modèle de Koblinger [54] (voir tableau III-7). Ces simulations ont été réalisées pour différentes caractéristiques de salle.

Le calcul d'un débit de dose par simulations MCNPX nécessite d'introduire les facteurs de conversion utilisés en protection radiologique (irradiation externe) définis par la CIPR 74. La CIPR 74 exprime l'équivalent de dose individuel $H_p(10)$ en fonction du Kerma (K) pour les photons. Par conséquent, une conversion est nécessaire afin d'obtenir $H_p(10)$ en fonction de la fluence (ϕ) soit Sv.cm²/h.γ :

$$\frac{H_p(10)}{\phi} = 3600 \frac{H_p(10) K}{K \phi} \quad 3.17$$

Pour étudier la physique du problème d'une manière exhaustive, nous employons des tallies définis dans le code MCNPX. Les tallies sont des observables, dans notre cas le tally « F5 » est utilisé. Il représente le flux en un point pour 1s.

La conversion donnée par l'équation 3.17 est ainsi intégrée dans les simulations.

Une pièce de dimensions externes de $4 \times 5 \times 2,8 \text{ m}^3$ a d'abord été simulée avec des murs d'épaisseur 20 cm en brique de densité 2,35 (très répandue dans les constructions alsaciennes) puis en béton de même densité. L'équivalent de dose ainsi que les facteurs de conversion sont présentés dans le tableau III-7. Dans le cas des photons, le facteur de pondération affecté à la caractéristique du rayonnement W_R est égal à 1, par conséquent le débit de dose exprimé en nSv/h est équivalent à la dose absorbée \dot{D} . Les facteurs de conversion de dose sont obtenus grâce à l'équation (3.10) dont les valeurs des activités trouvées proviennent des échantillons marocains (paragraphe VIII.1).

Le tableau III-8 montre, en adéquation avec l'étude réalisée dans le chapitre sur l'auto-absorption, que la composition des matériaux n'affecte presque pas les facteurs de conversion ($\sim 2\%$ de différence). Cependant, en comparant les facteurs de conversion de dose trouvés avec ceux donnés par le modèle, des différences sont constatées (écarts relatifs de 7,5%, 10% et 4% pour F_K , F_{Ra} et F_{Th}). Une étude a été réalisée sur ces facteurs pour expliquer ces différences dans la section « **Facteur de conversion de dose** », présentée au paragraphe VIII-7.

		Brique	Béton	Modèle [54]	$F_{\text{béton}} / F_{\text{modèle}}$ (%)
^{40}K	\dot{D} (nGy/h)	87,9	86,4	-	-
	F_K (nGy/h par Bq/kg)	0,07	0,07	0,08	7,5
Famille ^{226}Ra	\dot{D} (nGy/h)	26,0	25,7	-	-
	F_{Ra} (nGy/h par Bq/kg)	0,84	0,83	0,92	10
Famille ^{232}Th	\dot{D} (nGy/h)	49,6	48,5	-	-
	F_{Th} (nGy/h par Bq/kg)	1,07	1,06	1,10	4

Tableau III-8 : Facteurs de conversion de dose obtenus par simulations avec MCNPX pour une pièce constituée de brique ou de béton de même densité (2,35).

En utilisant les facteurs de conversion de dose obtenus pour le béton et en partant de l'équation (3.9) avec une dose efficace annuelle de 1 mSv/an, il est possible de calculer les activités correspondantes du ^{226}Ra , du ^{232}Th et du ^{40}K . Mais il est nécessaire de soustraire le bruit de fond qui est de 50 nGy/h [36].

$$\dot{D} = F \cdot (A - 50) \cdot 10^{-9} = \frac{\dot{E}}{0,7 \times 0,8 \times 8766} = 2,037 \cdot 10^{-7} \text{ Gy/h} \quad 3.18$$

Par conséquent d'après l'équation (3.10) :

$$A_{Ra} = \frac{D_{Ra}}{F_{Ra}} + 50 = \frac{2,037 \cdot 10^{-7}}{0,83 \cdot 10^{-9}} + 50 = 295,4 \text{ Bq/kg} \quad 3.19$$

$$A_{Th} = \frac{D_{Th}}{F_{Th}} + 50 = \frac{2,037 \cdot 10^{-7}}{1,06 \cdot 10^{-9}} + 50 = 242,2 \text{ Bq/kg} \quad 3.20$$

$$A_K = \frac{D_K}{F_K} + 50 = \frac{2,037 \cdot 10^{-7}}{0,07 \cdot 10^{-9}} + 50 = 2960 \text{ Bq/kg} \quad 3.21$$

Pour définir Ra_{eq1} dans l'équation (3.5), les activités du ^{226}Ra (370 Bq/kg), du ^{232}Th (259 Bq/kg) et du ^{40}K (4810 Bq/kg) deviennent 295 Bq/kg pour le ^{226}Ra , 242 Bq/kg pour le ^{232}Th et 2960 Bq/kg pour le ^{40}K .

$$Ra_{eq1} = \frac{295}{295} A_{Ra} + \frac{295}{242} A_{Th} + \frac{295}{2960} A_K \quad 3.22$$

La figure III-5 indique les variations de Ra_{eq1} en fonction des différents échantillons. Le radium équivalent est déterminé d'une part avec les facteurs de conversion de dose donnés par UNSCEAR et d'autre part, par ceux obtenus par MCNPX pour une pièce sans porte et fenêtre. En général, Ra_{eq1} de MCNPX surestime Ra_{eq} de UNSCEAR notamment pour la brique rouge. La valeur obtenue par UNSCEAR est de $(186,6 \pm 26,9)$ Bq/kg contre $(203,6 \pm 28,2)$ Bq/kg pour MCNPX. Le tableau III-9 montre les valeurs de Ra_{eq1} . Les valeurs ne dépassent pas la limite de 370 Bq/kg.

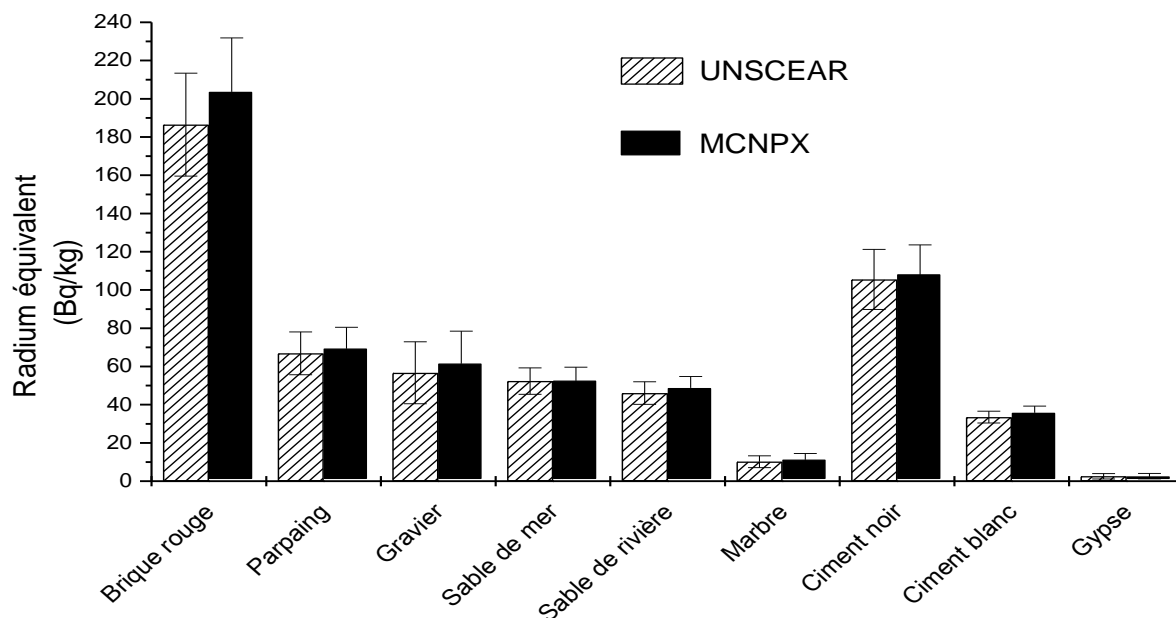


Figure III-5 : Radium équivalent obtenu avec les facteurs de conversion de dose d'UNSCEAR et pour une pièce simulée sans porte et fenêtre pour différents échantillons marocains.

Echantillons	Ra _{eq1} (Bq/kg)
Brique rouge	203,6 ± 28,2
Parpaing	69,4 ± 11,1
Gravier	61,5 ± 17,0
Sable de mer	52,6 ± 7,0
Sable de rivière	48,8 ± 5,9
Marbre	11,3 ± 3,2
Ciment noir	108,2 ± 15,4
Ciment blanc	35,9 ± 3,4
Gypse	2,6 ± 1,4

Tableau III-9 : Valeurs de Ra_{eq1} pour les matériaux de construction du Maroc.

Une recherche approfondie a été nécessaire afin de trouver une explication aux différences constatées entre les valeurs obtenues par le modèle et celles obtenues par simulation.

X.2. Influence des probabilités d'émission γ

Une première piste a consisté à étudier l'impact des probabilités d'émission des photons sur les facteurs de conversion de dose. La figure III-6 représente la probabilité d'émission des rayonnements γ pour le ^{226}Ra et ses descendants avec et sans seuils. Pour déterminer le facteur de conversion de dose pour la famille du ^{226}Ra , la base de données de la simulation intègre 223 énergies de photons en l'absence de seuil. Lorsqu'une coupure de 1% est réalisée sur l'intensité des rayonnements, la simulation ne prendra en compte que 32 énergies et pour un seuil de 3%, seulement 17 énergies. Il en résulte que la présence d'un seuil influence les valeurs des facteurs de conversion de dose.

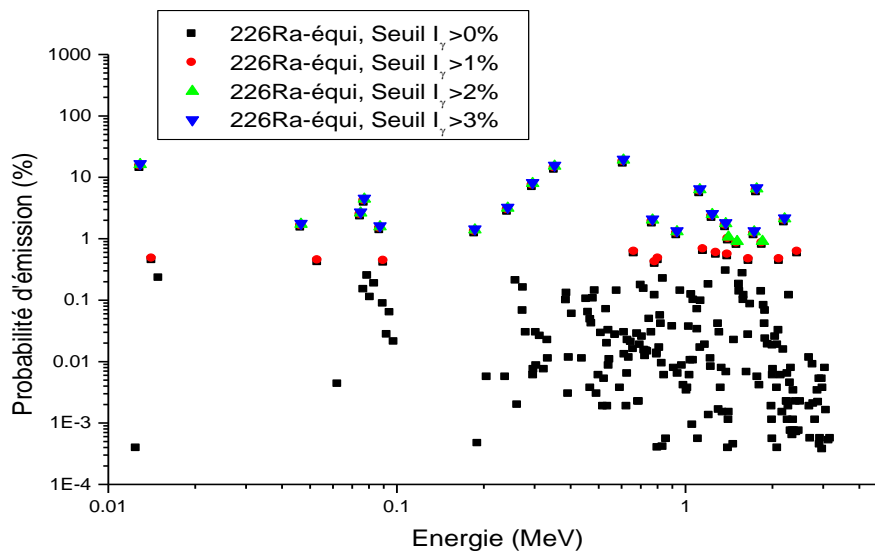


Figure III-6 : Représentation de la probabilité d'émission des photons pour le ^{226}Ra et ses descendants avec des seuils d'intensité.

Dans certains articles [55], [56], [57], l'activité du ^{238}U étant employée dans l'expression de Ra_{eq} au lieu de celle du ^{226}Ra , une étude utilisant la base de données du LNHB [58] a été nécessaire pour vérifier si dans la chaîne de décroissance de l' ^{238}U , le ^{226}Ra et ses descendants ont été pris en compte. La figure III-7 représente d'une part les probabilités d'émission des photons pour le radionucléide ^{226}Ra et ses descendants, et d'autre part les probabilités d'émission des photons pour le ^{238}U et ses descendants. Des différences notables apparaissent entre les probabilités d'émission de ces deux radioéléments. On constate que les probabilités du ^{226}Ra et du ^{238}U ne se superposent pas. La représentation des probabilités d'émission des photons pour l' ^{238}U n'intègre donc pas ses descendants et plus particulièrement pour la famille du ^{226}Ra car sa contribution aux effets radiologiques [59] est supérieure à 98,5%. La base de données ne tient donc pas compte de la totalité de la chaîne de décroissance du ^{238}U .

La figure III-8 présente la somme des probabilités d'émission des chaînes du $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ et celle du ^{226}Ra . Les probabilités d'émission de la famille du ^{226}Ra se confondant avec la somme des probabilités d'émission des chaînes $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$, il y a donc bien la nécessité d'incorporer la totalité de la chaîne de décroissance du ^{238}U .

Pour être le plus réaliste possible, l'intégralité de la chaîne de décroissance du ^{238}U doit être prise en compte dans la simulation. La base de données associée doit donc être complétée en sommant les probabilités d'émission des familles du ^{238}U et du ^{226}Ra .

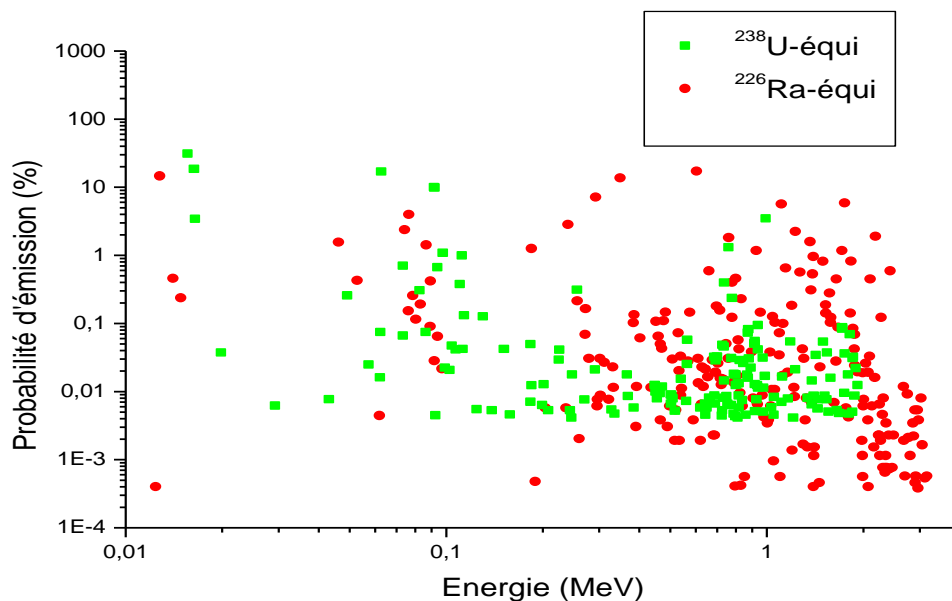


Figure III-7 : Représentation de la probabilité d'émission des photons pour le ^{226}Ra , le ^{238}U et leurs descendants.

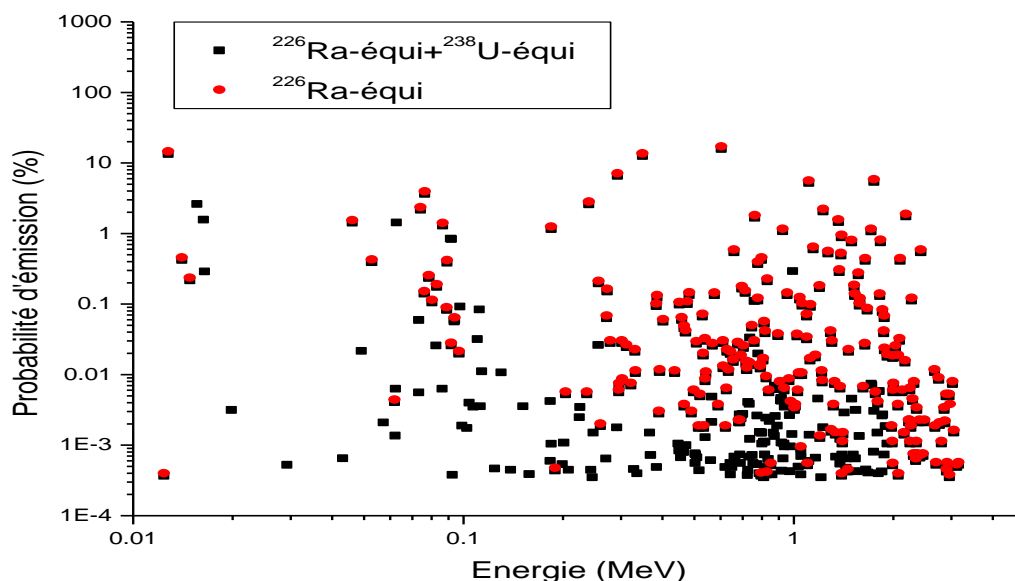


Figure III-8: Représentation de la somme des probabilités d'émission des photons pour le ^{226}Ra , le ^{238}U et leurs descendants.

X.3. Facteurs de conversion de dose

Par comparaison avec la littérature, des différences ont été observées sur les facteurs de conversion de dose pour une pièce sans porte et fenêtre en béton de densité 2,35. Le tableau III-8 indique ces variations. Les valeurs des facteurs obtenues pour le ^{40}K , le ^{226}Ra et le ^{232}Th ainsi que leurs descendants sont présentées dans le tableau III-10.

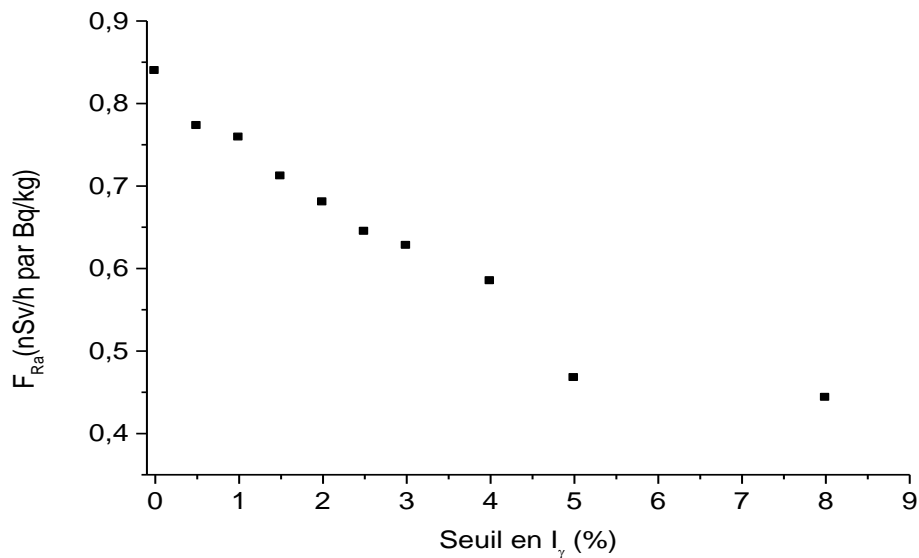
Références	Facteur de conversion de dose (nGy/h par Bq/kg)		
	^{40}K	^{226}Ra & descendants	^{232}Th & descendants
[54] - 1978	0,078	0,92	1,02
[60] - 1979	0,078	0,92	1,11
[61] - 1984	0,078	0,89	1,05
[62] - 1998	0,081	0,95	1,21
[63] - 2004	0,072	0,70	0,92
Ce travail	0,074	0,83	1,06

Tableau III-10 : Facteurs de conversion de dose [64]

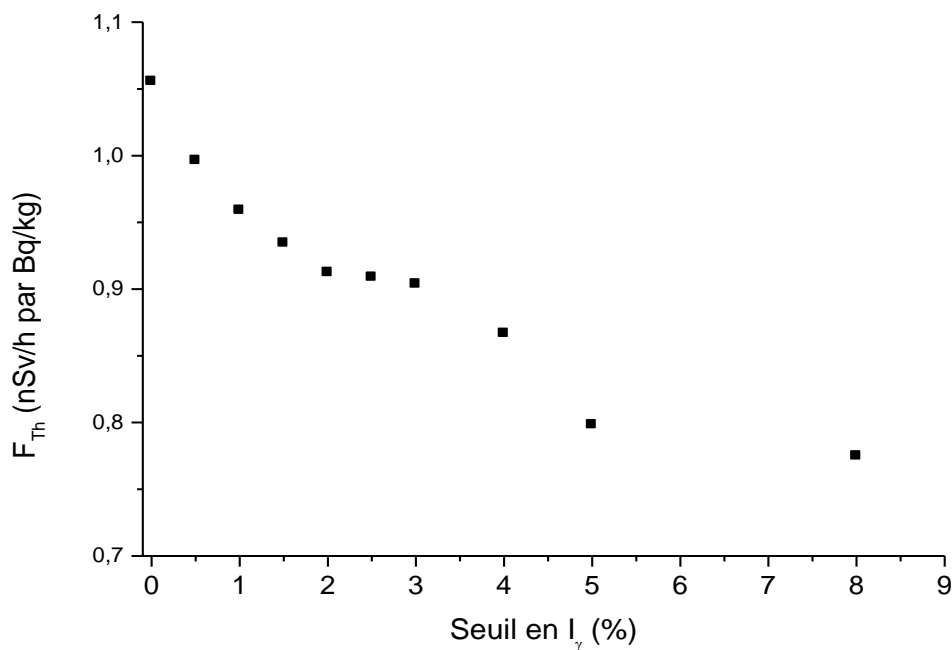
Il y a peu de différence entre le facteur de conversion de dose pour le ^{40}K obtenu par simulation et ceux fournis par la littérature (tableau III-8). L'existence d'une seule raie γ pour le ^{40}K à une énergie de 1461 keV explique cette convergence des résultats. On note plus d'écarts pour les familles ^{226}Ra et ^{232}Th .

Pour ces radioéléments émetteurs de plusieurs γ , la littérature ne précise pas les raies utilisées. Donc pour les chaînes du ^{226}Ra et du ^{232}Th possédant de multiples raies, des seuils sur l'intensité des rayonnements γ ont été appliqués lors de nouvelles simulations de pièce sans ouvertures afin d'obtenir des valeurs de facteur de conversion de dose proches de celles fournies par la littérature.

Sur la figure III-9, les graphiques présentent les valeurs des facteurs de conversion de dose obtenues avec des seuils de 0 à 3% par pas de 0,5% puis des seuils de 4%, 5% et 8% pour les radionucléides ^{226}Ra (a) et ^{232}Th (b) et leurs descendants.



a) Modèle d'une pièce de $4 \times 5 \times 2,8 \text{ m}^3$ sans ouvertures pour la famille du ^{226}Ra .



b) Modèle d'une pièce de $4 \times 5 \times 2,8 \text{ m}^3$ sans ouvertures pour la famille du ^{232}Th .

Figure III-9 : Facteurs de conversion de dose en fonction de différents seuils d'intensité sur les γ pour les radioéléments ^{226}Ra (a) et ^{232}Th (b) et leurs descendants.

Pour faire correspondre les facteurs de conversion de dose obtenus par simulation pour une pièce sans porte et fenêtre à ceux définis par Maduar [63], il est nécessaire d'appliquer un seuil d'environ 1% et 2% respectivement sur les valeurs de F_{Ra} et de F_{Th} .

Les différentes études sur les seuils montrent que les simulations effectuées initialement sans seuil d'intensité sur les photons représentent la situation la plus réaliste mais ne permettent pas de reproduire les valeurs des facteurs de conversion de dose de la littérature (tableau III-10).

Les disparités constatées peuvent s'expliquer par des différences sur le modèle de simulation utilisé mais aussi par une détermination plus précise, à l'heure actuelle des probabilités d'émission des photons.

D'autres simulations de la même pièce en béton sans porte et fenêtre ont été réalisées pour le ^{226}Ra , le ^{232}Th et leurs descendants et pour le ^{40}K . Une sélection a été faite uniquement pour les énergies de 186, 295, 351, 609, 1120 et 1764 keV avec leurs rapports d'embranchement (I) correspondant à l'année 1967 [65] et actuels [58] indiqués dans le tableau III-11 pour la famille du ^{226}Ra . Des écarts relatifs allant de 3 à 35% sont constatés entre les rapports d'embranchement de 1967 et ceux d'aujourd'hui.

Pour la chaîne du ^{232}Th , les énergies 238, 911 et 969 keV (tableau) sont utilisées avec des écarts sur les intensités allant de 2 à 7% par comparaison entre 1967 et aujourd'hui.

Pour le ^{40}K , le rapport d'embranchement en 1967 était de 11% alors qu'aujourd'hui il est de 10,55%, soit un écart relatif de 4,5%.

	E (keV)	I ₁₉₆₇ (%)	I _{aujourd'hui} (%)	Ecart relatifs (%)
Famille ^{226}Ra	186	5,4	3,5	35,2
	295	21	18,4	12,4
	351	38	35,6	6,3
	609	47	45,5	3,2
	1120	16	14,9	6,9
	1764	17	15,3	10,0
Famille ^{232}Th	238	47	43,6	7,2
	911	27	26,2	2,9
	969	16,2	15,9	1,8
^{40}K	1461	11	10,5	4,5

Tableau III-11 : Rapports d'embranchement pour les énergies les plus importantes des chaînes du ^{226}Ra , du ^{232}Th et du ^{40}K .

Les débits de doses absorbées simulés pour une activité de 40 Bq/kg de ^{226}Ra et ses descendants, en utilisant les rapports d'embranchement correspondant à l'année 1967 et à aujourd'hui, sont respectivement de 20,2 et 14,6 (nGy/h) soit une diminution relative de 27,7%.

Les débits de doses absorbées pour une activité de béton de 215 Bq/kg de ^{40}K sont de 16,6 nGy/h en 1967 et de 15,9 nGy/h de nos jours.

Pour une activité de 11 Bq/kg de béton pour la famille du ^{232}Th , les débits de doses absorbées sont 2,59 et 2,51 nGy/h respectivement pour 1967 et aujourd'hui.

Les écarts obtenus expliquent en partie (prise en compte seulement des raies les plus intenses) les différences entre les valeurs des facteurs de conversion de dose simulées dans ce travail et ceux notifiés dans la littérature (tableau III-10).

XI. Amélioration de la simulation

XI.1. Diminution du volume actif

Une autre pièce de caractéristiques identiques mais comprenant cette fois-ci une porte de dimension $0,9 \times 2,4 \text{ m}^2$ et en vis-à-vis une fenêtre de $1,4 \times 1,4 \text{ m}^2$, diminuant le volume actif, a été modélisée. Le bilan des doses absorbées et des facteurs de conversion de dose est fourni dans le tableau III-12 pour les matériaux de construction brique et béton. Les valeurs des facteurs de conversion de dose obtenues sont moins importantes que celles établies pour les différents modèles présentés dans le tableau III-10. Le tableau montre que la composition des matériaux affecte très peu les facteurs de conversion.

		Brique	Béton
^{40}K	\dot{D} (nGy/h)	82,9	81,9
	F_{K} (nGy/h par Bq/kg)	0,071	0,070
Famille ^{226}Ra	\dot{D} (nGy/h)	24,5	24,2
	F_{Ra} (nGy/h par Bq/kg)	0,79	0,78
Famille ^{232}Th	\dot{D} (nGy/h)	46,7	45,8
	F_{Th} (nGy/h par Bq/kg)	1,01	0,99

Tableau III-12 : Facteurs de conversion de dose obtenus par simulations avec MCNPX pour une pièce contenant une porte et une fenêtre en vis-à-vis. Cette pièce est constituée de brique ou de béton de même densité (2,35).

Les activités ont été également calculées à partir de l'équation (3.18) pour une pièce ayant une porte et une fenêtre dont les valeurs des facteurs de conversion de dose sont respectivement 0,07 – 0,78 – 0,99 pour le ^{40}K , le ^{226}Ra et le ^{232}Th obtenus pour le béton (tableau III-12).

$$A_{\text{Ra}} = \frac{\dot{D}_{\text{Ra}}}{F_{\text{Ra}}} + 50 = \frac{2,037 \cdot 10^{-7}}{0,78 \cdot 10^{-9}} + 50 = 311 \text{ Bq/kg} \quad 3.23$$

$$A_{\text{Th}} = \frac{\dot{D}_{\text{Th}}}{F_{\text{Th}}} + 50 = \frac{2,037 \cdot 10^{-7}}{0,99 \cdot 10^{-9}} + 50 = 256 \text{ Bq/kg} \quad 3.24$$

$$A_{\text{K}} = \frac{\dot{D}_{\text{K}}}{F_{\text{K}}} + 50 = \frac{2,037 \cdot 10^{-7}}{0,07 \cdot 10^{-9}} + 50 = 2960 \text{ Bq/kg} \quad 3.25$$

Pour définir la valeur du radium équivalent Ra_{eq2} , les activités du ^{226}Ra (370 Bq/kg), du ^{232}Th (259 Bq/kg) et du ^{40}K (4810 Bq/kg) sont respectivement remplacées dans l'équation (3.5) par 311 Bq/kg, 256 Bq/kg et 2960 Bq/kg.

$$Ra_{eq2} = \frac{311}{311} A_{Ra} + \frac{311}{256} A_{Th} + \frac{311}{2960} A_K \quad 3.26$$

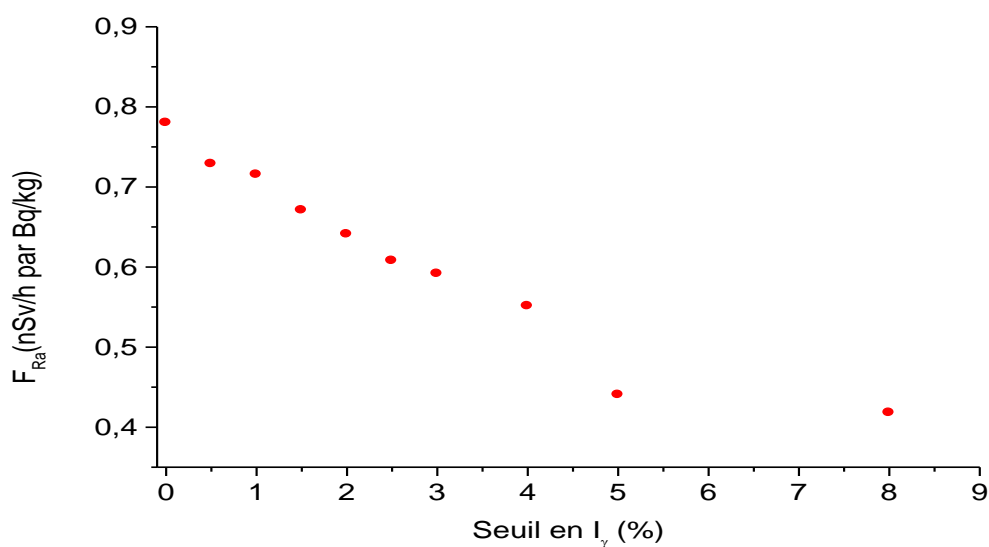
Après avoir déterminé les activités des différents radionucléides pour les matériaux de construction, le radium équivalent Ra_{eq2} a été calculé.

Le radium équivalent Ra_{eq2} a été déterminé avec les facteurs de conversion de dose obtenus par MCNPX pour une pièce avec porte et fenêtre. Le tableau III-13 montre les valeurs obtenues pour le Ra_{eq2} . Pour la brique rouge, la valeur obtenue est $(209,5 \pm 26,1)$ Bq/kg. Pour le gypse, elle est de $(2,6 \pm 1,3)$ Bq/kg. Les valeurs de Ra_{eq2} ne dépassent pas la limite recommandée soit 370 Bq/kg.

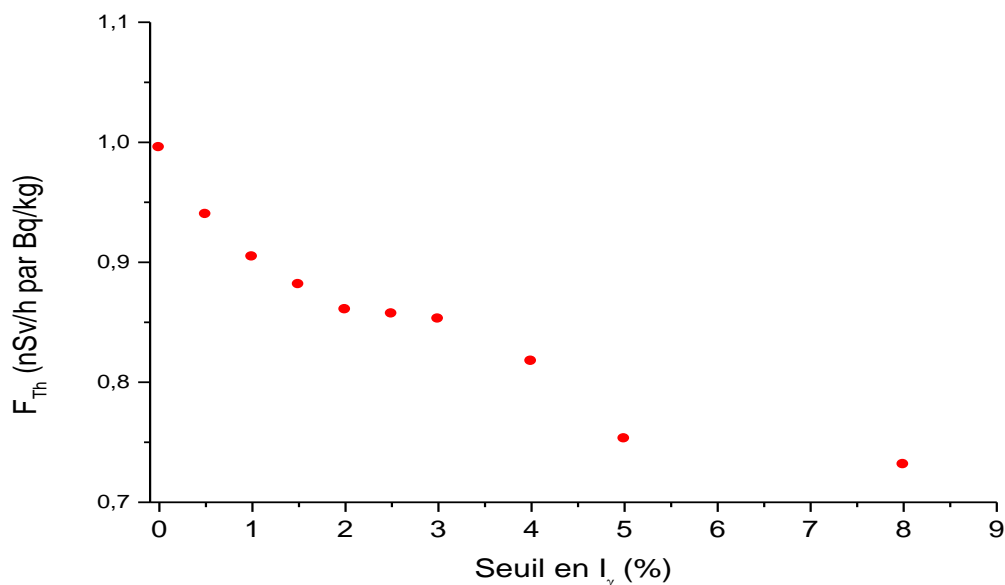
Echantillons	Ra_{eq2} (Bq/kg)
Brique rouge	209,5 ± 26,1
Parpaing	70,8 ± 10,5
Gravier	63,1 ± 15,8
Sable de mer	52,8 ± 7,0
Sable de rivière	49,8 ± 5,6
Marbre	11,6 ± 3,0
Ciment noir	109,6 ± 15,0
Ciment blanc	36,5 ± 3,3
Gypse	2,6 ± 1,3

Tableau III-13 : Valeurs de Ra_{eq1} pour les matériaux de construction du Maroc.

Des seuils sur l'intensité des rayonnements γ ont été également appliqués sur la pièce avec ouvertures. Les figures III-10 représente les valeurs des facteurs de conversion de dose obtenus avec des seuils de 0 à 3% par pas de 0,5% puis des seuils de 4%, 5% et 8% pour les familles du ^{226}Ra (a) et du ^{232}Th (b). En comparant ces figures aux figures III-9 a et b, l'écart entre les facteurs de conversion de dose sans et avec ouvertures est constant. Cette variation est liée au volume effectif de la pièce.



a) Modèle d'une pièce de $4 \times 5 \times 2,8 \text{ m}^3$ avec ouvertures pour la famille du ^{226}Ra .



b) Modèle d'une pièce de $4 \times 5 \times 2,8 \text{ m}^3$ avec ouvertures pour la famille du ^{232}Th .

Figure III-10 : Facteurs de conversion de dose en fonction de différents seuils d'intensité sur les γ pour les radioéléments ^{226}Ra (a) et ^{232}Th (b) et leurs descendants.

XII. Prise en compte de différents matériaux

Une autre pièce de dimensions identiques, avec une porte et en vis-à-vis une fenêtre, a été modélisée. Les murs (en brique), le sol et le plafond (en béton) ont des densités différentes. Les trois sources émettrices de rayonnements γ ont été séparées. La prise en compte de plusieurs sources émettrices nécessite, dans le code MCNPX, de compléter la carte « sdef » par la fonction « fcel » (functions of the source cells) comme présenté sur la figure III-11.

Il est nécessaire de calculer la proportion des γ émis par les murs, le sol et le plafond. A partir du tableau III-3, en effectuant le produit des activités massiques des matériaux par leur densité et par le volume de la pièce, les activités obtenues sont exprimées en Bq. Une fois l'activité déterminée en Bq et à l'aide d'une macro (appelant la base de données du LNHB[58]) permettant d'introduire l'élément émetteur γ souhaité, la distribution énergétique et l'importance (« wgt ») de chaque source sont données. La commande « wgt » prend en compte les activités de chaque radionucléide, leur intensité d'émission et le temps de comptage (dans notre cas 1s).

La figure III-11 illustre l'exemple pour une source de ^{40}K . Dans l'exemple, la proportion déterminée des γ émis pour chaque source est représentée par la distribution 1 (« d1 ») de la figure. Cette distribution tient compte du numéro des cellules correspondant aux différentes sources soit respectivement 2, 5 et 6 pour les murs, le sol et le plafond. Elle est notée « SII L » (Source Information n°1 with discrete source variable). La proportion de chaque source est représentée par la notation « SP1 » (Source Probability n°1). Les coordonnées x, y, z de chaque source sont désignées respectivement par les distributions « d2, d3, d10 ». La distribution énergétique du ^{40}K est symbolisée par « d17 ». La valeur affichée du poids (wgt) de la carte « sdef » dans l'exemple, correspond à la somme des intensités des « wgt » des cellules 2, 3 et 5. La fonction fcel est bien sûr également utilisée pour le ^{226}Ra et le ^{232}Th et leurs descendants.

Les débits de dose absorbée simulés obtenus ainsi que les facteurs de conversion de dose sont représentés dans le tableau III-14 pour deux dimensions de pièces : $4 \times 5 \times 2,8 \text{ m}^3$ et $4 \times 4 \times 3 \text{ m}^3$. L'écart relatif entre les pièces a été déterminé pour chaque débit de dose et pour chaque facteur. Ainsi pour le ^{40}K , une différence de 8% entre les valeurs des facteurs de conversion est constatée, 6% pour la famille du ^{226}Ra et 7% pour la chaîne du ^{232}Th . Ceci est lié au volume de la pièce qui affecte donc les résultats.

Les valeurs des facteurs de conversion obtenues pour une pièce de $4 \times 5 \times 2,8 \text{ m}^3$ constituée de matériaux de densité différente sont beaucoup plus faibles pour le ^{40}K et pour les familles du ^{226}Ra et du ^{232}Th par comparaison aux valeurs des facteurs indiquées dans le tableau III-12. Une différence d'environ 3% est constatée entre les deux valeurs de F_{K} , la densité des matériaux de construction ayant un rôle prépondérant pour les valeurs des facteurs de conversion de dose.

		MCNPX $d_{\text{mur}}=2,35$; $d_{\text{sol}}=2,2$; $d_{\text{plafond}}=1,375$ $4 \times 5 \times 2,8$	MCNPX $d_{\text{mur}}=2,35$; $d_{\text{sol}}=2,2$; $d_{\text{plafond}}=1,375$ $4 \times 4 \times 3$	Ecart relatif Pièce $4 \times 5 \times 2,8$ / Pièce $4 \times 4 \times 3$
^{40}K	\dot{D} (nGy/h)	76,4	81,8	7%
	F_{K} (nGy/h par Bq/kg)	0,068	0,074	8%
Famille ^{226}Ra	\dot{D} (nGy/h)	33,4	35,9	7%
	F_{Ra} (nGy/h par Bq/kg)	1,00	1,06	6%
Famille ^{232}Th	\dot{D} (nGy/h)	44,4	47,6	7%
	F_{Th} (nGy/h par Bq/kg)	1,02	1,10	7%

Tableau III-14 : Facteurs de conversion de dose obtenus pour une pièce contenant une porte et une fenêtre en vis-à-vis. Cette pièce est constituée de brique et de béton de différentes densités pour les murs, le sol et le plafond.

Des seuils d'intensité sur les rayonnements γ de 1%, 5% et 10% ont été appliqués sur les débits de dose et sur les facteurs de conversion de dose (tableau III-15). La mise en place de seuils sur l'intensité des rayonnements γ , comme lors des études réalisées préalablement, confirme que les seuils influencent la valeur des facteurs de conversion de dose. Il en résulte que tous les γ émis sont importants dans la détermination des facteurs de conversion de dose.

		MCNPX $d_{\text{mur}}=2,35$; $d_{\text{sol}}=2,2$; $d_{\text{plafond}}=1,375$ $4 \times 4 \times 3$		
		$I_{\gamma} > 1\%$	$I_{\gamma} > 5\%$	$I_{\gamma} > 10\%$
^{40}K	\dot{D} (nGy/h)	81,8		
	F_{K} (nGy/h par Bq/kg)	0,074		
Famille ^{226}Ra	\dot{D} (nGy/h)	32,3	20,7	18,7
	F_{Ra} (nGy/h par Bq/kg)	0,96	0,61	0,55
Famille ^{232}Th	\dot{D} (nGy/h)	43,0	35,7	33,8
	F_{Th} (nGy/h par Bq/kg)	0,99	0,83	0,78

Tableau III-15 : Facteurs de conversion de dose obtenus par simulations avec MCNPX pour une pièce de dimensions $4 \times 4 \times 3 \text{ m}^3$ contenant une porte et une fenêtre en vis-à-vis avec application de seuils d'intensité 1%, 5% et 10% sur les γ .

```

sdef cel=d1 x=fcel d2 y=fcel d3 z=fcel d10 par=2 erg= fcel d17 wgt=3203408,166
c
SI1 L 2 5 6          $ n° des cellules correspondante aux sources
SP1  0,76 0,12 0,12  $ proportion des sources
c
DS2 S 4 5 7
SI4 -220 220        $ coordonnée x pour la cellule 2
SP4  0 1
SI5 -220 220        $ coordonnée x pour la cellule 5
SP5  0 1
SI7 -220 220        $ coordonnée x pour la cellule 6
SP7  0 1
c
DS3 S 8 9 18
SI8 -270 270        $ coordonnée y pour la cellule 2
SP8  0 1
SI9 -270 270        $ coordonnée y pour la cellule 5
SP9  0 1
SI18 -270 270       $ coordonnée y pour la cellule 6
SP18 0 1
c
DS10 S 11 12 13
SI11 -160 160       $ coordonnée z pour la cellule 2
SP11 0 1
SI12 -160 -140      $ coordonnée z pour la cellule 5
SP12 0 1
SI13 140 160        $ coordonnée z pour la cellule 6
SP13 0 1
c
c
DS17 S 14 15 16
c K-40 (Ig>0%) A=26711463 Bq pour les murs avec wgt=2818593,229
SI14 L 5,110000E-01 1,460820E+00
SP14 D 5,342293E+02 2,818059E+06
c
c
c K-40 (Ig>0%) A=2244211,2 Bq pour le sol avec wgt=236809,1842
SI15 L 5,110000E-01 1,460820E+00
SP15 D 4,488422E+01 2,367643E+05
c
c K-40 (Ig>0%) A=1402632 Bq pour le plafond avec wgt=148005,7526
SI16 L 5,110000E-01 1,460820E+00
P16 D 2,805264E+01 1,479777E+05

```

Figure III-11 : Exemple de différentes sources simulées avec MCNPX pour le radionucléide ⁴⁰K.

XIII. Comparaison des débits de dose absorbée

XIII.1. Déterminés avec les facteurs de conversion de dose

Il est intéressant de comparer les débits de dose absorbés en utilisant l'équation (3.8) en modifiant les facteurs de conversion de dose (F_c). Le tableau III-16 indique, pour différents matériaux de construction, le débit de dose absorbée calculé avec les facteurs de conversions de dose du rapport UNSCEAR 2000 et les débits de dose absorbée obtenus avec les facteurs de conversion de dose pour une pièce de dimension $4 \times 5 \times 2,8 \text{ m}^3$ avec et sans porte/fenêtre. La comparaison des valeurs de débit de doses montre des différences pour l'ensemble des matériaux. Le rapport UNSCEAR 2000 utilise les facteurs de conversion de dose datant des années 70 tandis que les simulations utilisent les facteurs de conversion de dose actuels qui tiennent compte d'une détermination plus précise des rapports d'embranchement des photons.

Les rayonnements γ étant issus des murs, une pièce sans porte et sans fenêtre engendre donc un débit de dose plus important qu'une pièce avec porte et fenêtre.

Le débit de dose absorbée maximal obtenu pour la brique rouge est de $(172,5 \pm 10,1) \text{ nGy/h}$ pour UNSCEAR contre $(156,2 \pm 9,0)$ et $(151,4 \pm 8,8) \text{ nGy/h}$ pour la pièce sans et avec porte/fenêtre. Le débit de dose absorbée minimal est lié au gypse avec des valeurs respectives de $(2,3 \pm 0,4) \text{ nGy/h}$, $(2,1 \pm 0,4) \text{ nGy/h}$ et $(2,0 \pm 0,4) \text{ nGy/h}$ pour les \dot{D} avec F_c UNSCEAR, F_c sans ouvertures et F_c avec ouvertures.

En moyenne, les écarts relatifs des débits de dose absorbée obtenus pour une pièce sans et avec ouvertures par rapport à ceux calculés avec les facteurs d'UNSCEAR sont respectivement de 9% et de 13%.

Echantillons	\dot{D} avec F_c UNSCEAR (nGy/h)	\dot{D} avec F_c sans ouvertures (nGy/h)	\dot{D} avec F_c avec ouvertures (nGy/h)
Brique rouge	$172,5 \pm 10,1$	$156,2 \pm 9,0$	$151,4 \pm 8,8$
Parpaing	$60,2 \pm 3,5$	$54,9 \pm 3,2$	$52,7 \pm 3,1$
Gravier	$52,5 \pm 5,6$	$47,5 \pm 5,1$	$45,9 \pm 4,9$
Sable de mer	$48,1 \pm 5,5$	$43,4 \pm 5,0$	$40,9 \pm 4,7$
Sable de rivière	$42,4 \pm 2,0$	$38,4 \pm 1,8$	$36,9 \pm 1,7$
Marbre	$9,6 \pm 0,7$	$8,7 \pm 0,7$	$8,4 \pm 0,6$
Ciment noir	$95,5 \pm 6,0$	$86,9 \pm 5,4$	$82,8 \pm 5,2$
Ciment blanc	$31,6 \pm 2,0$	$28,3 \pm 1,8$	$27,1 \pm 1,7$
Gypse	$2,3 \pm 0,4$	$2,1 \pm 0,4$	$2,0 \pm 0,4$

Tableau III-16 : Débits de dose absorbée calculés avec les facteurs de conversion de dose donnés par le rapport UNSCEAR et ceux simulés pour les échantillons marocains.

XIII.2. Déterminés avec le radium équivalent

En utilisant l'équation (3.16), le débit de dose absorbée a été calculé avec le Ra_{eq} (équation 3.5), le Ra_{eq1} (équation 3.22) et le Ra_{eq2} (équation 3.26). Les valeurs des différents radiums équivalents se trouvent respectivement dans les tableaux III-4, 9 et 13.

Les résultats des débits sont indiqués dans le tableau III-17. Les valeurs de débits de dose obtenus avec le Ra_{eq} sont supérieures à celles obtenues avec Ra_{eq1} et Ra_{eq2} . La valeur de débit de dose absorbée la plus importante est obtenue pour la brique rouge soit $(171,7 \pm 24,7)$ nGy/h avec Ra_{eq} , $(169,0 \pm 23,4)$ nGy/h avec Ra_{eq1} et $(163,4 \pm 20,3)$ nGy/h avec Ra_{eq2} . Tandis que pour le gypse, le débit de dose absorbée est le plus faible avec des valeurs de $(2,4 \pm 1,3)$ nGy/h, $(2,2 \pm 1,1)$ nGy/h et $(2,1 \pm 1,0)$ nGy/h obtenues respectivement avec Ra_{eq} , Ra_{eq1} et Ra_{eq2} .

Echantillons	\dot{D} avec Ra_{eq} (nGy/h)	\dot{D} avec Ra_{eq1} (nGy/h)	\dot{D} avec Ra_{eq2} (nGy/h)
Brique rouge	$171,7 \pm 24,7$	$169,0 \pm 23,4$	$163,4 \pm 20,3$
Parpaing	$61,5 \pm 10,3$	$57,6 \pm 9,2$	$55,2 \pm 8,2$
Gravier	$52,2 \pm 14,9$	$51,0 \pm 14,1$	$49,2 \pm 12,3$
Sable de mer	$48,1 \pm 6,3$	$43,7 \pm 5,8$	$41,2 \pm 5,5$
Sable de rivière	$42,4 \pm 5,4$	$40,5 \pm 4,9$	$38,8 \pm 4,4$
Marbre	$9,4 \pm 2,9$	$9,4 \pm 2,7$	$9,0 \pm 2,3$
Ciment noir	$97,1 \pm 14,4$	$89,8 \pm 12,8$	$85,5 \pm 11,7$
Ciment blanc	$30,8 \pm 2,9$	$29,8 \pm 2,8$	$28,4 \pm 2,6$
Gypse	$2,4 \pm 1,3$	$2,2 \pm 1,1$	$2,1 \pm 1,0$

Tableau III-17 : Débits de dose absorbée calculés avec les radiums équivalents décrit dans le rapport UNSCEAR 2000 et ceux simulés pour les échantillons marocains.

XIV. Comparaison des doses efficaces annuelles

XIV.1. Déterminés avec les facteurs de conversion de dose

La dose effective annuelle a été aussi calculée avec l'équation (3.9) en utilisant le débit de dose \dot{D} déterminé avec les facteurs de conversion de dose donnés par le rapport UNSCEAR 2000 et ceux obtenus par simulation de pièces avec et sans ouvertures. Les valeurs obtenues sont indiquées dans le tableau III-18.

Un écart relatif d'environ 9% est constaté entre les valeurs $\dot{E}_{avec Fc \text{ sans ouvertures}}$ et celles $\dot{E}_{avec Fc \text{ UNSCEAR}}$, ceci est dû aux différentes intensités relatives des photons. L'écart résulte de la détermination plus précise des rapports d'embranchement des photons suite à l'amélioration de la technologie.

La différence entre les doses efficaces annuelles des deux pièces simulées est liée aux volumes actifs des deux pièces soit environ 4%. Le volume de la pièce sans porte et fenêtre est de $20,032 \text{ m}^3$ et celui de la pièce avec porte et fenêtre est de $19,244 \text{ m}^3$.

Echantillons	\dot{E} avec Fc UNSCEAR (mSv/an)	\dot{E} avec Fc sans ouvertures (mSv/an)	\dot{E} avec Fc avec ouvertures (mSv/an)	$\frac{\dot{E} \text{ avec Fc sans ouvertures}}{\dot{E} \text{ avec FC UNSCEAR}}$	$\frac{\dot{E} \text{ avec Fc avec ouvertures}}{\dot{E} \text{ avec Fc sans ouvertures}}$
Brique rouge	0,8468 ± 0,0496	0,7668 ± 0,0442	0,7432 ± 0,0432	9%	3%
Parpaing	0,2955 ± 0,0172	0,2695 ± 0,0157	0,2587 ± 0,0152	9%	4%
Gravier	0,2577 ± 0,0275	0,2332 ± 0,0250	0,2253 ± 0,0241	10%	3%
Sable de mer	0,2361 ± 0,0270	0,2130 ± 0,0245	0,2008 ± 0,0231	10%	6%
Sable de rivière	0,2081 ± 0,0098	0,1885 ± 0,0088	0,1811 ± 0,0083	9%	4%
Marbre	0,0471 ± 0,0034	0,0427 ± 0,0034	0,0412 ± 0,0029	9%	3%
Ciment noir	0,4688 ± 0,0295	0,4266 ± 0,0265	0,4065 ± 0,0255	9%	5%
Ciment blanc	0,1551 ± 0,0098	0,1389 ± 0,0088	0,1330 ± 0,0083	10%	4%
Gypse	0,0113 ± 0,0020	0,0103 ± 0,0020	0,0098 ± 0,0020	9%	5%

Tableau III-18 : Comparaison des doses efficaces annuelles obtenues avec les facteurs de conversion de dose provenant du rapport UNSCEAR 2000 et ceux obtenus par simulations de pièces avec et sans ouverture.

XIV.2. Déterminés avec le radium équivalent

Pour les différents matériaux de construction, la dose efficace annuelle \dot{E} a été déterminée suivant l'équation (3.15) en utilisant le débit de dose \dot{D} déterminé avec le radium équivalent. Les valeurs de \dot{E} sont indiquées dans le tableau III-19.

Un écart relatif d'environ 14% est observé entre les valeurs des doses de la pièce sans fenêtre sans porte et celles calculés avec le Ra_{eq} . Cette différence plus importante par rapport à celle constatée dans le tableau III-18 est due également aux différentes intensités relatives des photons mais aussi aux incertitudes plus substantielles sur Ra_{eq} .

Les différences entre les doses efficaces annuelles des deux pièces simulées sont liées aux volumes actifs des deux pièces soit environ 10% et au cumul des incertitudes contenues dans Ra_{eq1} et dans Ra_{eq2} .

Echantillons	\dot{E} avec Ra_{eq} (mSv/an)	\dot{E} avec Ra_{eq1} (mSv/an)	\dot{E} avec Ra_{eq2} (mSv/an)	$\frac{\dot{E} \text{ avec } Ra_{eq1}}{\dot{E} \text{ avec } Ra_{eq}}$	$\frac{\dot{E} \text{ avec } Ra_{eq2}}{\dot{E} \text{ avec } Ra_{eq1}}$
Brique rouge	0,7754 ± 0,1116	0,6886 ± 0,0953	0,6257 ± 0,0777	11%	9%
Parpaing	0,2777 ± 0,0465	0,2347 ± 0,0375	0,2114 ± 0,0314	16%	10%
Gravier	0,2357 ± 0,0673	0,2078 ± 0,0574	0,1884 ± 0,0471	12%	9%
Sable de mer	0,2172 ± 0,0285	0,1781 ± 0,0236	0,1578 ± 0,0211	18%	11%
Sable de rivière	0,1915 ± 0,0244	0,1650 ± 0,0200	0,1486 ± 0,0168	14%	10%
Marbre	0,0425 ± 0,0131	0,0383 ± 0,0110	0,0345 ± 0,0088	10%	10%
Ciment noir	0,4385 ± 0,0650	0,3659 ± 0,0522	0,3274 ± 0,0448	17%	11%
Ciment blanc	0,1391 ± 0,0131	0,1214 ± 0,0114	0,1087 ± 0,0100	13%	10%
Gypse	0,0108 ± 0,0059	0,0090 ± 0,0045	0,0080 ± 0,0038	17%	10%

Tableau III-19 : Comparaison des doses efficaces annuelles obtenues avec le radium équivalent défini dans le rapport UNSCEAR 2000 et ceux obtenus par simulations de pièces avec et sans ouvertures.

Les facteurs de conversion de dose se trouvant dans le rapport UNSCEAR 2000 se basent sur des valeurs obtenues des années 70. Cette étude a montré qu'il était important de mettre à jour les probabilités d'émission des rayonnements γ car ils interviennent dans les valeurs des facteurs de conversion de dose. De plus, des améliorations de configuration de pièce ont été apportées notamment l'introduction d'une porte et d'une fenêtre ainsi que différentes densités de matériaux de construction afin de reproduire une pièce la plus réaliste possible.

XV. Dosimétrie sur des rayonnements ionisants dans les sols alsaciens

Il est intéressant d'étudier la dosimétrie sur des prélèvements de sol car la terre est un des principaux constituants des matériaux de construction.

Avant de présenter les résultats obtenus pour les sols en Alsace (pour des raisons géographiques), une étude approfondie a été effectuée à l'aide du code MCNPX sur les facteurs de conversion de dose pour l'exposition externe aux rayonnements γ émis par le sol.

Les différentes simulations ont été réalisées avec le détecteur ISOCS se situant à 1 m par rapport au sol suivant la norme NF M 60-810 [66]. La composition d'un sol sur un rayon de 40 m a été modélisée. Compte tenu des petites dimensions du détecteur utilisé, ce rayon de 40 m est considéré comme une dimension infinie.

Les études ont été réalisées en plusieurs étapes, par variation de la profondeur du sol, de la distance par rapport au détecteur et de la composition du sol.

XV.1. Effet de la profondeur du sol

L'impact de la profondeur du sol sur la valeur des facteurs de conversion de dose a été étudié pour les radionucléides ^{226}Ra et ^{232}Th ainsi que leurs descendants et pour le ^{40}K . Différentes épaisseurs de sol ont donc été simulées : 5 cm, 10 cm, 20 cm, 50 cm et 100 cm. La figure III-12 illustre la modélisation effectuée. Les résultats obtenus sont représentés sur la figure III-13.

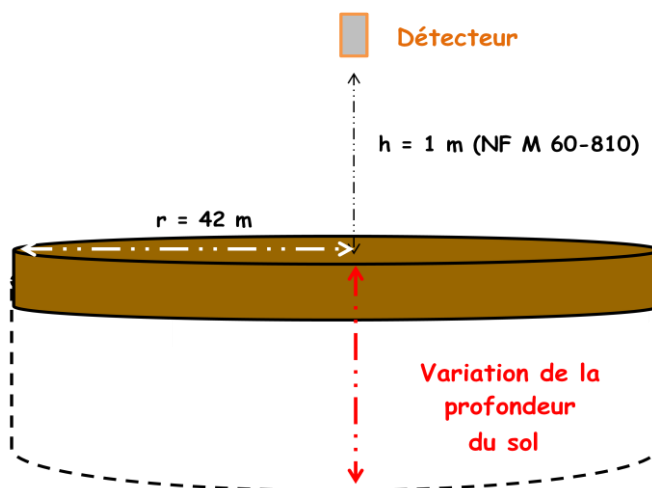


Figure III-12 : Représentation schématique de la modélisation réalisée dans par MCNPX pour un sol volumique.

L'évolution du facteur de conversion de dose en fonction de la profondeur du sol modélisé est représentée sur la figure III-13. Pour les profondeurs variant entre 5 cm et 200 cm, le facteur de

conversion de dose pour le ^{40}K varie entre 0,014 et 0,036 (nGy/h par Bq/kg), pour la chaîne du ^{226}Ra , la valeur est comprise de 0,16 à 0,36 (nGy/h par Bq/kg) et pour la chaîne du ^{232}Th , le facteur varie de 0,20 à 0,48 (nGy/h par Bq/kg). A partir d'une profondeur de 50 cm, la valeur des facteurs de conversion atteint quasiment son maximum soit 0,036, 0,36 et 0,48 (nGy/h par Bq/kg) pour respectivement le ^{40}K , le ^{226}Ra et le ^{232}Th .

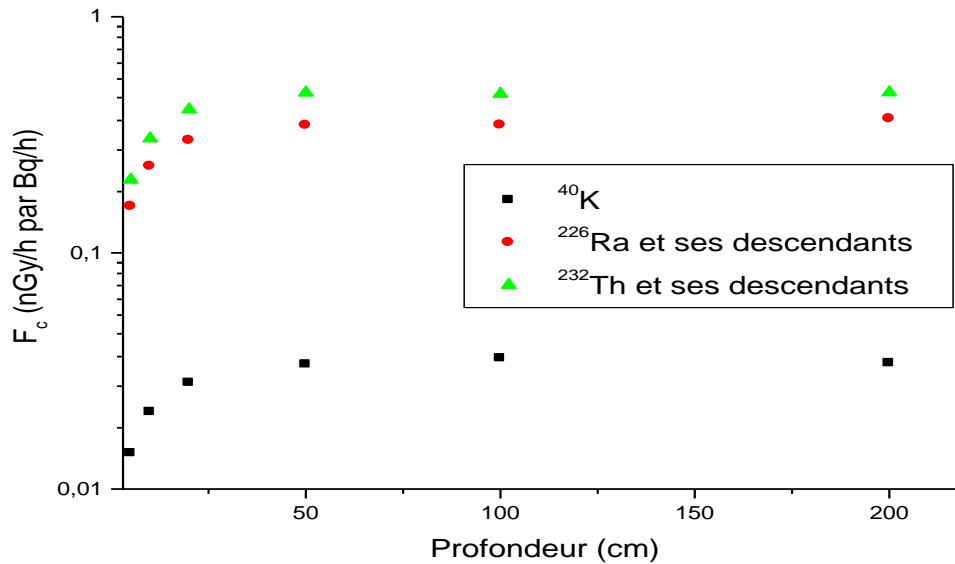


Figure III-13 : Facteurs de conversion de dose en fonction de la profondeur du sol pour différents éléments naturels dans la simulation [67].

XV.2. Effet de la distance

La variation du facteur de conversion de dose a été analysée en fonction d'un rayon de sol variant de 0 à 42 m par pas de 1 m (figure III-14). Les dimensions du sol simulé sont de 1 m pour la profondeur et de 84 m pour le diamètre.

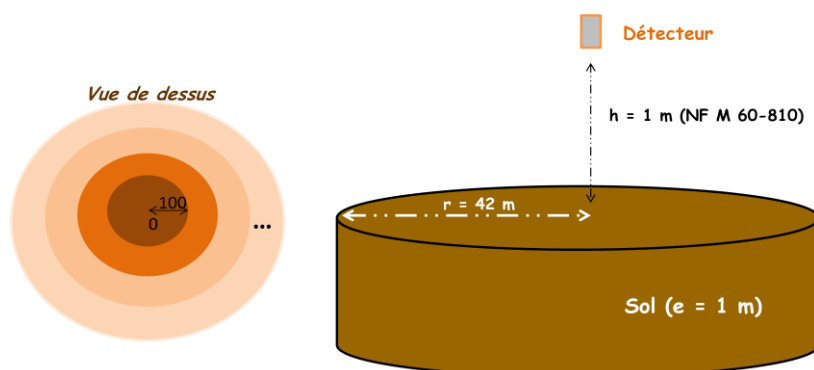


Figure III-14 : Représentation schématique de la modélisation du découpage du sol par pas de 1 m.

Les résultats obtenus pour le ^{226}Ra , le ^{232}Th et ses descendants et le ^{40}K sont indiqués sur la figure III-15. Pour un rayon variant de 0 à 15 m, le facteur de conversion de dose augmente pour les trois isotopes. Il se situe entre 0,009 et 0,034 (nGy/h par Bq/kg) pour le ^{40}K , et pour les familles ^{232}Th et ^{226}Ra , les valeurs varient respectivement de 0,13 à 0,48 et de 0,10 à 0,36 (nGy/h par Bq/kg).

Pour un rayon égal ou supérieur à 15 m, le facteur de conversion de dose pour les différents radioéléments est constant et les moyennes des facteurs du ^{40}K , du ^{226}Ra et du ^{232}Th sont respectivement de 0,036, 0,36 et de 0,48 (nGy/h par Bq/kg).

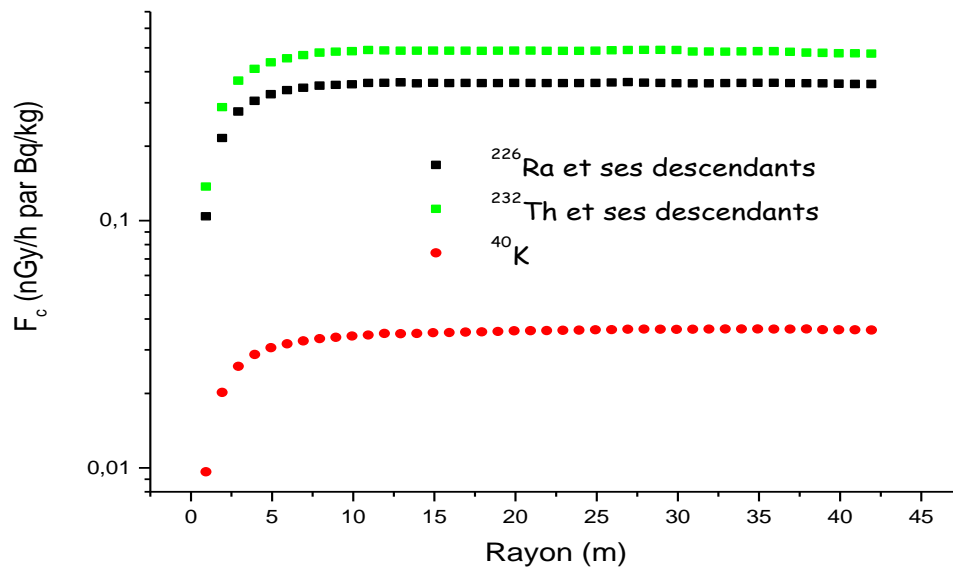


Figure III-15 : Facteur de conversion de dose en fonction du rayon de sol pour le ^{40}K , le ^{226}Ra et le ^{232}Th et leurs descendants.

XV.3. Effet de la composition du sol

Les 5 types de sols définis dans le rapport ICRU-53 ont été modélisés avec une densité de 1,7. Le tableau III-20 présente les valeurs des facteurs de conversion de dose pour le ^{40}K , pour les chaînes du ^{232}Th et du ^{226}Ra . La composition influence peu les facteurs de conversion de dose (voir le tableau). Pour le ^{40}K , les valeurs fluctuent entre 0,032 et 0,035 (nGy/h par Bq/kg). Tandis que pour les chaînes du ^{226}Ra et du ^{232}Th , les facteurs de conversion de dose varient respectivement de 0,343 à 0,364 (nGy/h par Bq/kg) et de 0,465 à 0,480 (nGy/h par Bq/kg). Les quelques variations observées notamment pour les sols 4 et 5 ne sont pas dues à l'atténuation des photons dans la matière car les énergies moyennes pour les chaînes du ^{232}Th et du ^{226}Ra sont de 660 keV et 605 keV, donc du même ordre de grandeur, mais causées par un Z effectif différent. La composition n°4 est un sol organique humide [68] et celle du n°5 est un sol très minéralisé.

	Facteur de conversion de dose (nGy/h par Bq/kg)		
	⁴⁰ K	²²⁶ Ra & descendants	²³² Th & descendants
sol 1	0,034	0,358	0,471
sol 2	0,034	0,360	0,475
sol 3	0,034	0,363	0,480
sol 4	0,032	0,343	0,465
sol 5	0,035	0,364	0,491
Ecart type	0,11%	0,85%	0,98%

Tableau III-20 : Facteurs de conversion de dose pour différentes compositions de sol [68] avec une densité 1,7.

La même étude a été faite pour un sol de densité 1,3 en ajoutant la comparaison avec un sol minéral. Les résultats sont présentés dans le tableau III-21. Les mêmes observations sont constatées. Pour le ⁴⁰K, les valeurs varient entre 0,033 et 0,036 (nGy/h par Bq/kg). Tandis que pour les familles du ²²⁶Ra et du ²³²Th, les facteurs de conversion de dose varient respectivement de 0,347 à 0,360 (nGy/h par Bq/kg) et entre 0,457 et 0,471 (nGy/h par Bq/kg). La composition a peu d'influence sur les facteurs de conversion de dose pour les différents radioéléments émetteurs γ .

	Facteur de conversion de dose (nGy/h par Bq/kg)		
	⁴⁰ K	²²⁶ Ra & descendants	²³² Th & descendants
sol 1	0,035	0,358	0,462
sol 2	0,035	0,359	0,465
sol 3	0,035	0,357	0,466
sol 4	0,033	0,352	0,457
sol 5	0,036	0,360	0,471
Sol minéral*	0,036	0,347	0,471
Ecart type	0,11%	0,50%	0,54%

*Sol minéral composé de 50,1% O, 32,7% Si, 7,3% Al, 3,9% Fe, 2,1% C, 1,4% Ca, 0,6% Na, 0,5% Mg, 0,4% Ti.

Tableau III-21 : Facteurs de conversion de dose pour différentes compositions de sol [68] de densité 1,3.

En conclusion, il s'avère que les différentes densités affectent peu les facteurs de conversion de dose, les faibles variations étant principalement liées au Z effectif des sols.

Par comparaison à la littérature, des disparités ont été observées sur les facteurs de conversion de dose pour la dosimétrie in situ. Le tableau III-22 indique ces variations. Elles peuvent s'expliquer par une détermination actuelle plus précise des probabilités d'émission des photons et peut-être par un modèle de simulation utilisé différent.

Le tableau III-22 illustre une comparaison entre les travaux effectués dans cette thèse et ceux de Beck [69] et Saito [70] dont le rapport UNSCEAR 2000 utilise [36]. Des différences sont observées entre les facteurs de conversion de dose déterminés. Pour comprendre ces écarts, de nouvelles simulations Monte Carlo ont été réalisées avec prise en compte de l'évolution de l'intensité relative. Des vérifications ont été faites en simulant un sol avec les énergies de 186, 295, 351, 609, 1120 et 1764 keV de la chaîne du ²²⁶Ra pour différentes intensités figurant dans le tableau III-9. Avec ces énergies

et une activité de 0,24 MBq, les valeurs obtenues pour le débit de dose absorbée sont de 7,3 nGy/h pour l'intensité relative donnée en 1967 et 6,7 nGy/h pour ceux d'aujourd'hui soit un écart relatif de 8,2%.

Une autre simulation avec les mêmes caractéristiques est réalisée mais avec une activité de 0,51 MBq pour le ^{40}K . L'intensité relative donnée en 1967 est de 11% et celle d'aujourd'hui est de 10,55%. Les valeurs du débit de dose absorbée sont respectivement de 29,3 nGy/h et de 28,1 nGy/h pour 1967 et aujourd'hui, soit un écart de de 4%.

Les énergies 238, 911 et 969 keV avec différents rapports d'embranchement pour la famille du ^{232}Th ont été simulées avec une activité de 0,35 MBq. En 1967, les intensités des photons étaient de 47%, 27% et 16,2% respectivement pour 238, 911 et 969 keV tandis qu'aujourd'hui, ces intensités sont de 43,6, 26,2 et 15,9%. Les valeurs de débit de dose absorbée obtenues sont 6,63 Gy/h pour 1967 et 5,00 nGy/h de nos jours soit un écart relatif de 24%.

Ces écarts expliquent une partie des différences obtenues lors de la comparaison de nos résultats avec ceux de la littérature. En effet, dans le tableau III-22, l'intégralité des rayonnements γ des familles du ^{226}Ra et du ^{232}Th a été prise en compte. Par conséquent, les différences constatées sont dues à l'évolution des intensités de rayonnement γ pour chaque γ -émetteur.

Facteur de conversion de dose (nGy/h par Bq/kg)			
	^{40}K	^{226}Ra & descendants	^{232}Th & descendants
[69]	0,042	0,430	0,666
[70]	0,042	0,463	0,604
Ce travail	0,036	0,357	0,482

Tableau III-22 : Facteurs de conversion de dose pour la dosimétrie des prélèvements de sol.

XV.4. Résultats des prélèvements de sol

Une expertise dans toute l'Alsace a été réalisée. La figure III-16 indique la localisation de différents prélèvements de sol effectués par carottage. Avant d'être conditionnés dans des conteneurs FP80, les échantillons ont été séchés pendant 24 h. Une vingtaine d'échantillons a pu ainsi être analysée par spectrométrie γ .

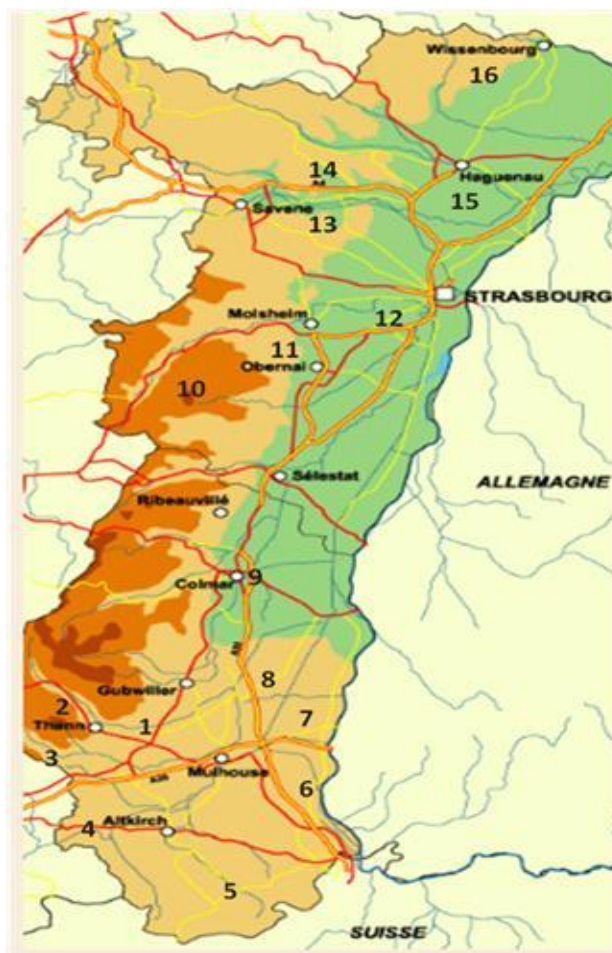


Figure III-16 : Localisation des points de prélèvements en Alsace.

Pour calculer l'activité du ^{40}K , la raie à 1461 keV avec une intensité relative de 10,55% est utilisée. Les activités des radionucléides ^{214}Pb et ^{214}Bi sont déterminées avec les rayonnements γ aux énergies et intensités données dans le tableau III-2. Ce sont les activités moyennes du ^{214}Pb et du ^{214}Bi qui ont permis de déterminer l'activité du ^{226}Ra . Le ^{232}Th est identifié par la mesure de l' ^{228}Ac . Les énergies utilisées pour calculer l'activité du ^{228}Ac sont aussi celles du tableau III-2.

L'activité du ^{40}K est la plus importante et varie de (257 ± 18) Bq/kg et (828 ± 59) Bq/kg, la valeur moyenne est (526 ± 10) Bq/kg (figure III-17). Les activités maximale (point 2) et minimale (point 7) pour le ^{226}Ra sont (75 ± 5) Bq/kg et (14 ± 1) Bq/kg, alors que pour le ^{232}Th , ces activités sont (118 ± 8) Bq/kg et (15 ± 1) Bq/kg (figures III-18 et 19). Les valeurs moyennes de ces isotopes sont respectivement (33 ± 1) et (42 ± 1) Bq/kg.

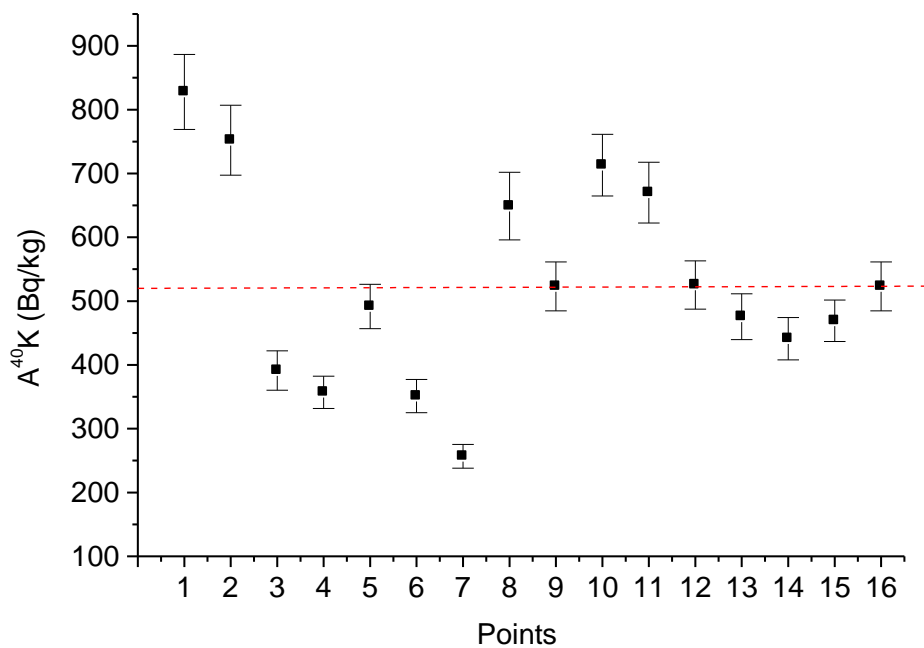


Figure III-17 : Activités du ^{40}K (Bq/kg). La droite symbolise la moyenne des activités.

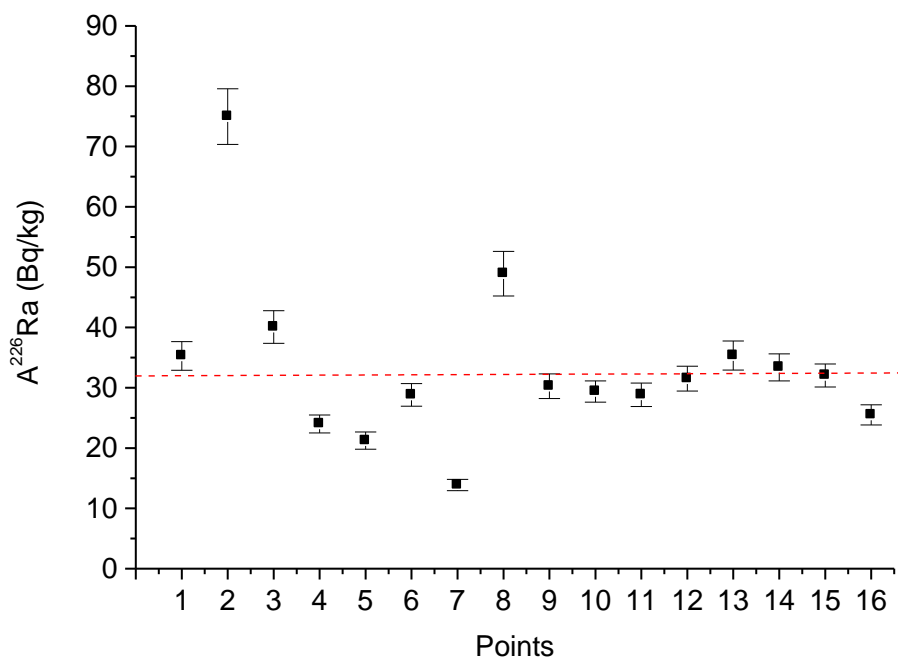


Figure III-18 : Activités du ^{226}Ra (Bq/kg). La droite symbolise la moyenne des activités.

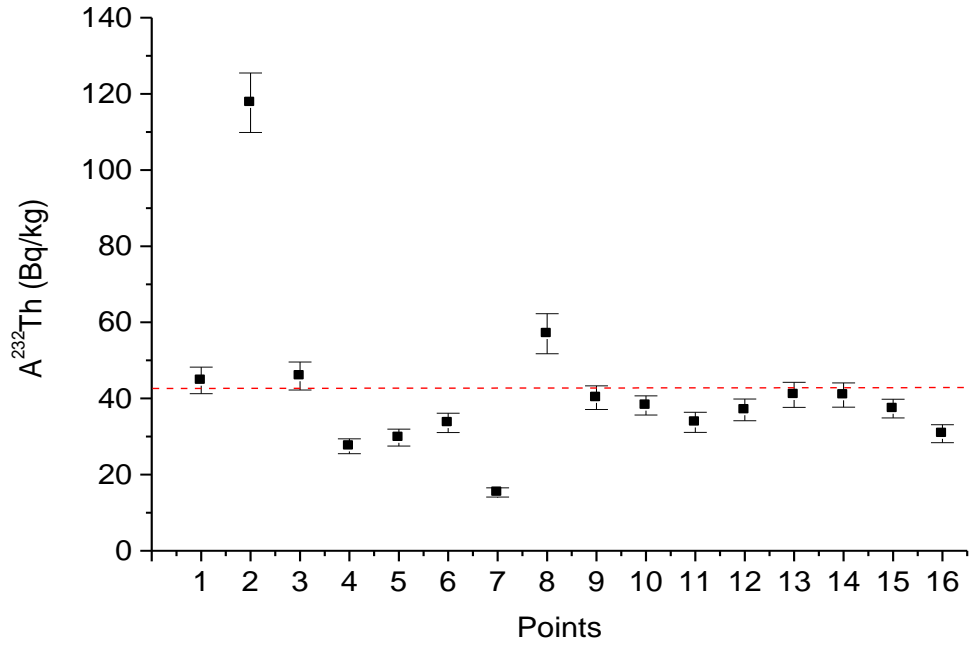


Figure III-19 : Activités du ^{232}Th (Bq/kg). La droite symbolise la moyenne des activités.

Pour information, la figure III-20 indique les activités en ^{137}Cs . La valeur de l'activité du point 15 correspond à une limite de détection. Les valeurs d'activité maximale et minimale sont respectivement (34 ± 2) Bq/kg pour le point 5 et $0,5$ Bq/kg pour le point 15. La moyenne de ces activités est $(12 \pm 0,3)$ Bq/kg.

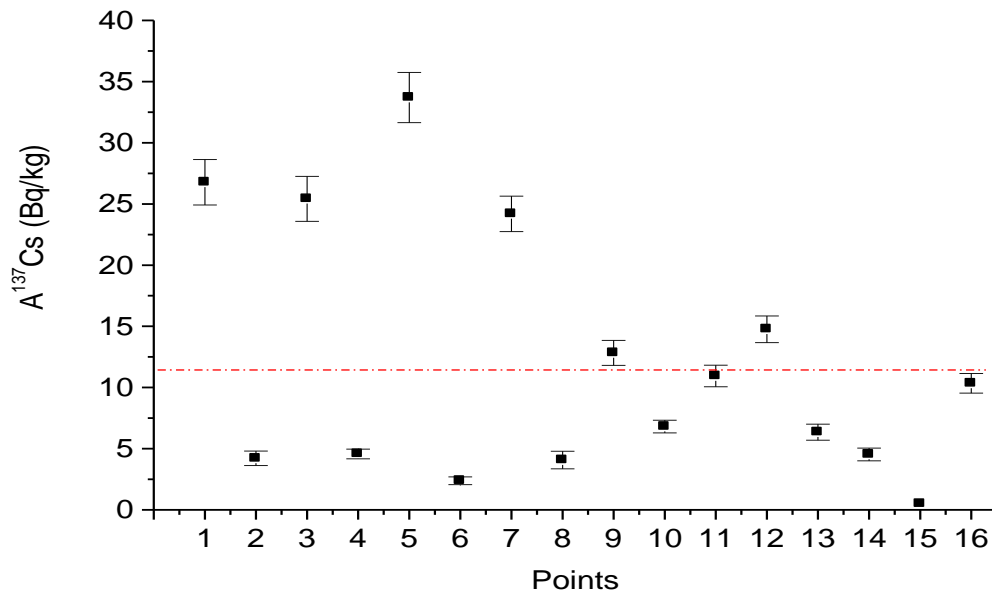


Figure III-20 : Activités du ^{137}Cs (Bq/kg). La droite symbolise la moyenne des activités.

Le débit de dose absorbée pour chaque prélèvement a été déterminé à partir de l'équation (3.8). Le tableau III-23 représente les débits de dose absorbée calculés avec les facteurs de conversion de dose fournis par le rapport [36] et les facteurs de conversion indiqués dans le tableau III-22. Ces derniers facteurs, correspondant à une simulation d'un sol de densité 1,3 et de composition minérale, ont été aussi utilisés pour déterminer le débit de dose absorbée. Les valeurs obtenues par MCNPX varient de $(21,3 \pm 0,04)$ nGy/h à $(108,5 \pm 0,04)$ nGy/h tandis que celles calculées avec le modèle du rapport UNSCEAR varient de $(26,4 \pm 0,05)$ nGy/h à $(137,1 \pm 0,09)$ nGy/h.

Le point 2 présente une valeur de débit de dose importante s'expliquant par la situation géographique particulière du sol, le piémont vosgien, tandis que le point 7 indique une valeur de débit de dose faible. Les débits de dose obtenus avec les facteurs de conversion MCNPX sont sous-estimés par rapport à ceux calculés avec les facteurs de conversion UNSCEAR qui datent des années 70. Les écarts obtenus sont néanmoins cohérents par rapport à l'étude menée sur les différences de rapports d'embranchement entre 1967 et aujourd'hui.

Points	Đ avec F_c UNSCEAR (nGy/h)	Đ avec F_c MCNPX (nGy/h)
1	77,9 ± 0,05	63,1 ± 0,04
2	137,1 ± 0,09	108,5 ± 0,04
3	62,6 ± 0,08	49,6 ± 0,04
4	42,6 ± 0,05	34,1 ± 0,04
5	48,3 ± 0,05	39,1 ± 0,04
6	48,3 ± 0,07	38,5 ± 0,04
7	26,4 ± 0,05	21,3 ± 0,04
8	84,1 ± 0,07	67,2 ± 0,05
9	60,1 ± 0,06	48,3 ± 0,04
10	66,4 ± 0,04	53,8 ± 0,04
11	61,6 ± 0,05	50,0 ± 0,04
12	58,8 ± 0,05	47,3 ± 0,04
13	60,9 ± 0,06	48,7 ± 0,04
14	58,5 ± 0,07	46,7 ± 0,04
15	56,9 ± 0,05	45,6 ± 0,04
16	52,2 ± 0,05	42,2 ± 0,04

Tableau III-23 : Débits de dose absorbée obtenus avec les facteurs de conversion de dose simulés par MCNPX et ceux utilisés par UNSCEAR-2000 pour les échantillons en provenance d'Alsace.

Les doses efficaces annuelles calculées pour les sols alsaciens sont présentées dans la figure III-21. La dose efficace annuelle pour l'échantillon 2 est la plus importante avec 0,17 mSv/an contrairement au point 7 avec une valeur 0,03 mSv/an. La dose efficace annuelle moyennée en Alsace de 76,8 mSv/an calculée avec les facteurs de conversion de dose donnés par UNSCEAR, est 10% plus élevée que l'exposition moyenne mondiale (70 mSv/an). La dose efficace annuelle moyenne avec les facteurs obtenus par MCNPX est 61,6 mSv/an soit 12% plus faible que l'exposition moyenne mondiale. Les

valeurs maximales et minimales obtenues avec MCNPX et d'après UNSCEAR sont respectivement de 0,133 – 0,026 mSv/an et 0,168 – 0,032 mSv/an.

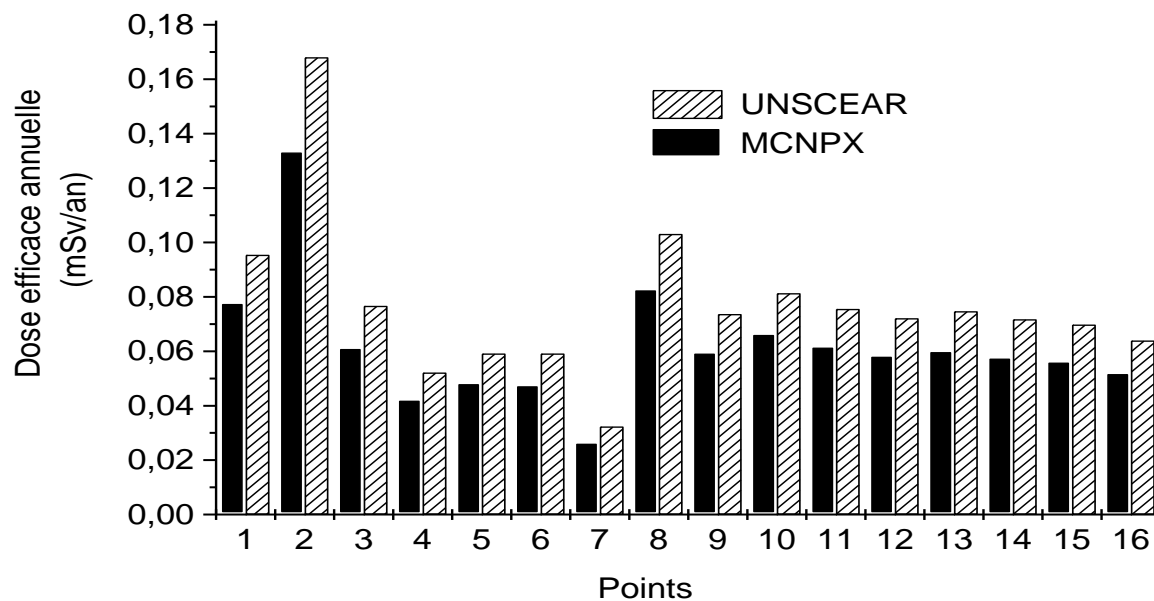


Figure III-21 : Dose efficace annuelle obtenue avec les facteurs de conversion de dose simulés par MCNPX et ceux utilisés par UNSCEAR-2000 pour les échantillons en provenance d'Alsace.

Chapitre 4 :

La spectrométrie γ in situ

La spectrométrie γ in situ à haute résolution est de plus en plus employée pour la caractérisation radio-écologique des sites (détermination de l'impact sur l'environnement) et pour les opérations de démantèlement. Elle nécessite l'utilisation de spectromètres portables pour mesurer le flux de photons émanant du terrain. Elle est différente de celle pratiquée en laboratoire car le sol analysé est considéré comme une source infinie nécessitant une modélisation de l'efficacité de détection.

I. Matériels

Les détecteurs ISOCS et le FALCON sont utilisés pour cette expertise. Positionnés à 1 m de la surface du sol [66], ils ont pour fonction de caractériser les radioéléments émetteurs γ . Contrairement au FALCON, l'ISOCS nécessite un refroidissement à l'azote liquide mais son efficacité relative est deux fois plus importante. Ces détecteurs enregistrent des spectres γ qui, par la suite, sont analysés afin d'estimer l'activité du ^{137}Cs et des radioéléments naturels.

II. Détecteur FALCON

Le FALCON 5000 est un détecteur GeHP de type planaire (figure IV-1) associé à un refroidissement électrique à faible bruit de technologie Pulse Tube pour ne pas détériorer la résolution des mesures. Le refroidissement doit être sûr et endurant, il utilise de l'hélium qui élimine les gaz inflammables du système. Le compresseur du doigt froid est isolé du détecteur pour réduire les bruits microphoniques. Le temps de refroidissement est de trois heures à 25°C.

Ce détecteur est équipé d'un compteur Geiger-Muller (GM) interne (figure IV-1) permettant de surveiller le débit de dose, d'un GPS, d'un système de gestion de batterie et d'un réseau de communication. Le domaine de mesure en énergie pour le GeHP est de 20 keV à 3 MeV avec une résolution de 1 keV à 122 keV et 2 keV à 1332 keV.

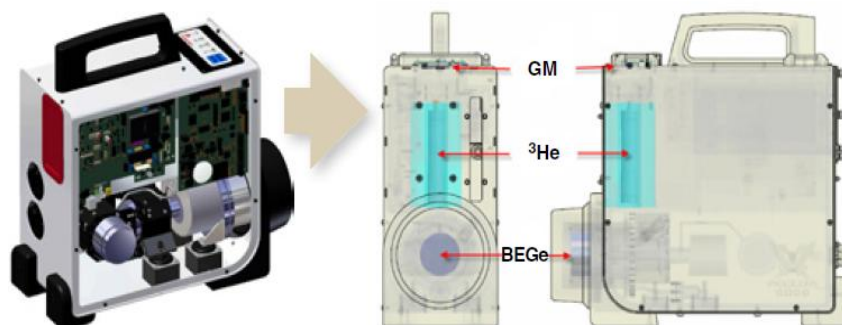


Figure IV-1: Représentation schématique du FALCON 5000 [71].

III. Pré-étude à l'IPHC

Pour définir l'activité d'un radioélément, il est nécessaire d'évaluer l'efficacité de détection. En laboratoire, cette efficacité est connue en utilisant un étalon de même géométrie que l'échantillon. Par contre, en spectrométrie in situ, les dimensions des détecteurs étant négligeables par rapport au sol, il est impossible de posséder un étalon de même géométrie. En conséquence, l'efficacité de détection doit être simulée. Pour pouvoir s'assurer que les résultats obtenus sont valables, il est nécessaire de valider la simulation avec le code MCNPX en la comparant à une expérience.

Une expérience a donc été effectuée à l'IPHC. Les deux détecteurs GeHP (ISOCS et FALCON) ainsi qu'une source ponctuelle de ^{137}Cs (d'activité 10 μCi en 1973) ont été utilisés pour réaliser plusieurs scénarii.

III.1. Source posée à la surface du sol

La source a été placée à la surface du sol à différentes distances des détecteurs soit 1 m, 3 m et 10 m comme l'indique la figure IV-2.

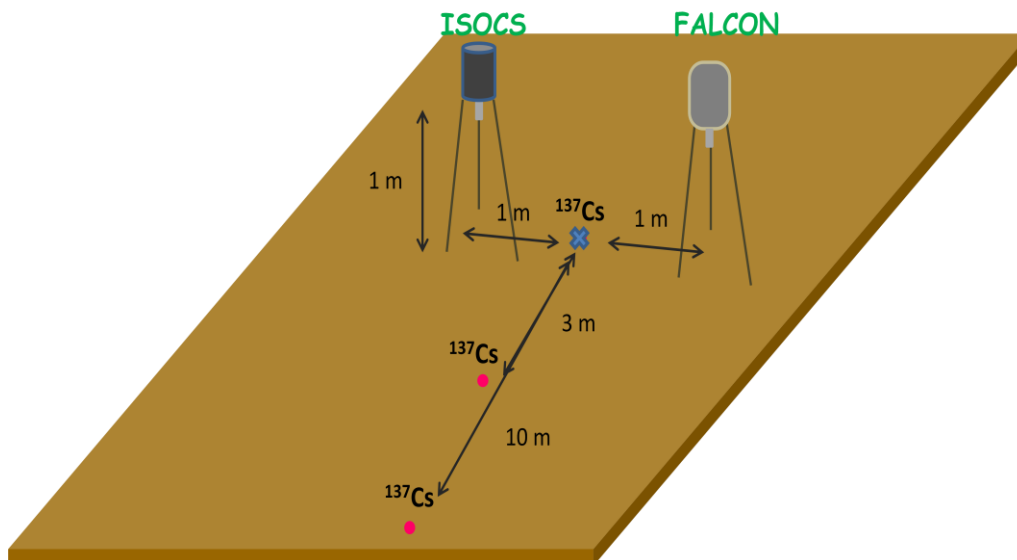


Figure IV-2 : Représentation schématique de l'expérience.

Les spectres expérimentaux obtenus par le détecteur ISOCS pour un temps d'acquisition de 411 s, temps de référence à 1 m, sont représentés sur la figure IV-3. Pour les distances de 3 m et 10 m, les temps de comptage étant supérieurs, les données acquises ont été normalisées, c'est-à-dire ramenées au temps de référence qui correspond. Le nombre de coups dans le pic d'absorption totale du ^{137}Cs diminue en fonction de l'accroissement de la distance. Pour les distances de 1 m, 3 m et 10 m, les nombres de coups mesurés sont respectivement (2555 ± 50) , (660 ± 26) et (335 ± 18) coups. Par contre, le nombre de coups du pic d'absorption totale correspondant au ^{214}Bi ne varie pas en fonction de la distance car c'est un radioélément naturel présent dans le sol contrairement au ^{137}Cs , élément artificiel.

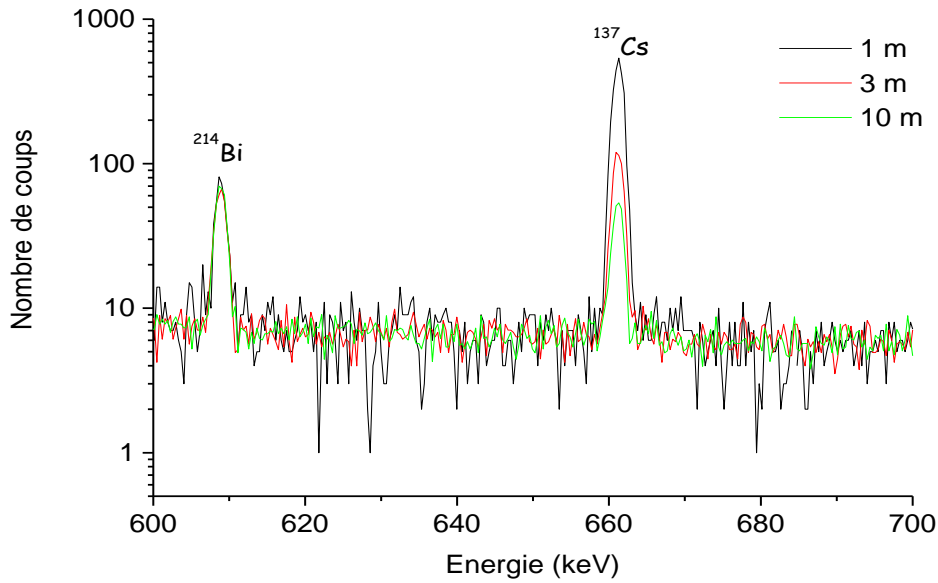


Figure IV-3 : Superposition des spectres expérimentaux obtenus avec l'ISOCS pour trois distances pour une source de ^{137}Cs ponctuelle placée à la surface du sol.

III.2. Source enterrée

La source a été ensuite enterrée sous 7 cm de terre pour une distance source-détecteur de 1 m, comme représenté schématiquement sur la figure IV-4.

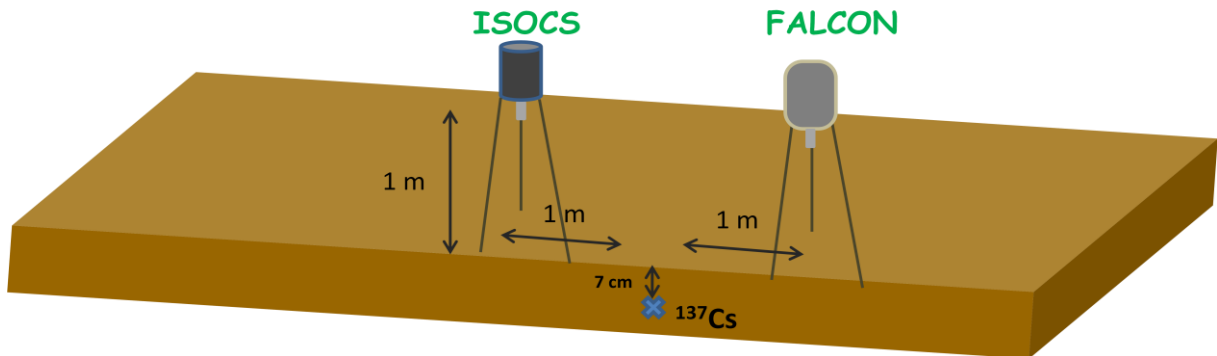


Figure IV-4 : Représentation schématique de l'expérience. La source ponctuelle de ^{137}Cs est enterrée et à 1 m des détecteurs.

Les spectres expérimentaux de la source située à une distance du détecteur de 1 m obtenus par le détecteur ISOCS sont indiqués sur la figure IV-5. Ils correspondent à la source surfacique et à la source enterrée. Le nombre de coups obtenus pour la source surfacique est de (2310 ± 50) coups et pour l'enfouissement de (1600 ± 40) coups pour un temps de comptage équivalent de 411 s.

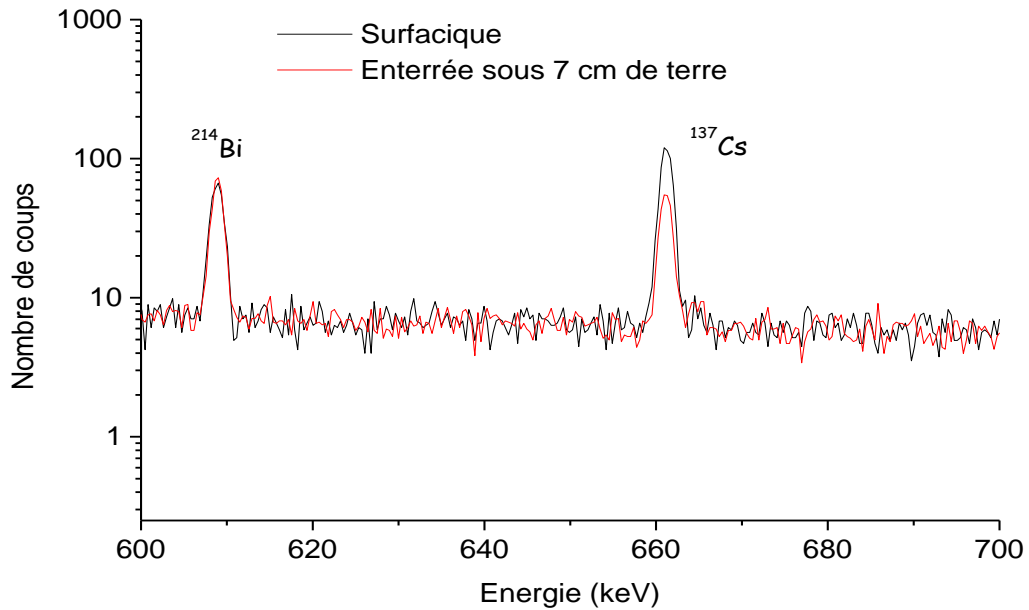


Figure IV-5 : Superposition des spectres expérimentaux obtenus avec l'ISOCS pour une source de ^{137}Cs ponctuelle placée à la surface du sol puis enterrée sous 7 cm de terre pour une distance source-détecteur de 1 m.

Une simulation MCNPX a été réalisée en utilisant les conditions de l'expérience. Pour la modélisation, le détecteur ISOCS est placé à 1 m de hauteur, le rayon du sol considéré est limité à 50 m et la source ponctuelle de ^{137}Cs est enterrée sous 7 cm à une distance de 1 m du détecteur.

La figure IV-6 montre le bon accord entre l'expérience et la simulation, superposition des pics d'absorption totale et forme du fond avant le pic. Le nombre de coups dans le pic du ^{137}Cs est de (3567 ± 60) pour l'expérience, bruit de fond déduit et (3441 ± 59) coups pour MCNPX. Cette comparaison valide la méthode de simulation pour déterminer l'efficacité de détection.

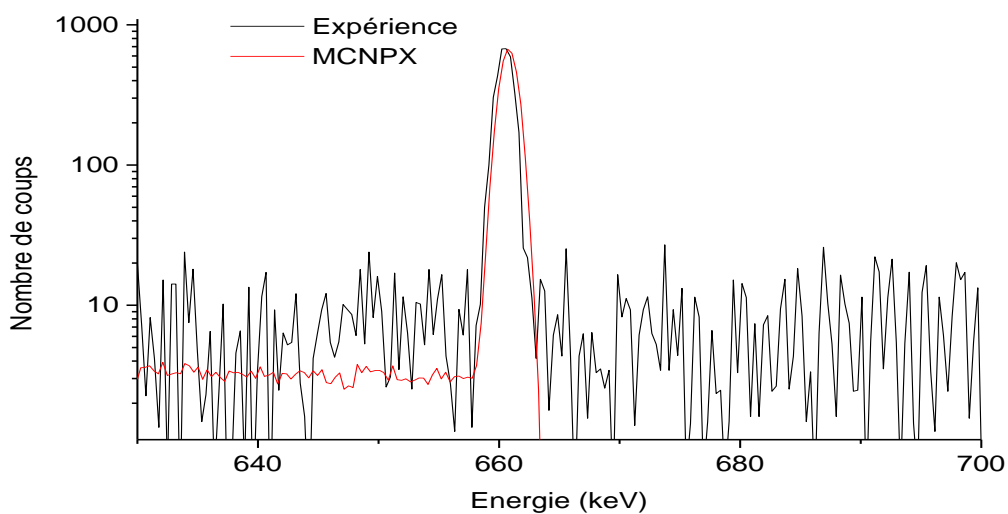


Figure IV-6 : Comparaison expérience et simulation pour une source ponctuelle de ^{137}Cs enterrée sous 7 cm et se situant à 1 m du détecteur ISOCS.

N'étant pas en possession du plan détaillé du détecteur FALCON, sa simulation n'a pu être réalisée par MCNPX. La modélisation de l'efficacité de détection a été possible par « Geometry Composer » du logiciel LabSOCS (Laboratory Sourceless Calibration Software) développé par CANBERRA. Ce logiciel basé sur le code MCNP simule les interactions des rayonnements avec la matière. Ainsi le nombre de coups obtenus dans le pic d'absorption total pour l'expérience et pour la simulation dont la source ponctuelle est enterrée sous 7 cm à une distance de 1 m du détecteur sont respectivement de (1985 ± 42) et (1864 ± 39) coups.

IV. Etudes de l'efficacité de détection in situ par MCNPX

Comme indiqué au préalable, le sol est considéré comme une source de dimensions infinies, il est donc nécessaire de modéliser l'efficacité de détection. Dans cette partie, plusieurs études sur différents facteurs influençant l'efficacité de détection ont été menées.

IV.1. Effet de la composition du sol

Il est nécessaire tout d'abord d'évaluer l'effet de la composition du sol sur le taux de comptage du pic d'absorption totale. Un sol de densité 1,4 et de différentes compositions données par le rapport ICRU [68] ainsi qu'une gamme d'énergie 50 à 3000 keV pour les photons ont donc été simulés. La figure IV-7 regroupe les résultats obtenus pour chaque pic d'énergie en tenant compte des différentes compositions du sol et montre que l'effet de la composition n'a aucune incidence pour des énergies supérieures à 100 keV. Pour les énergies inférieures à 100 keV, le Z effectif joue un rôle prépondérant dans la détermination du nombre de coups dans les pics d'absorption totale.

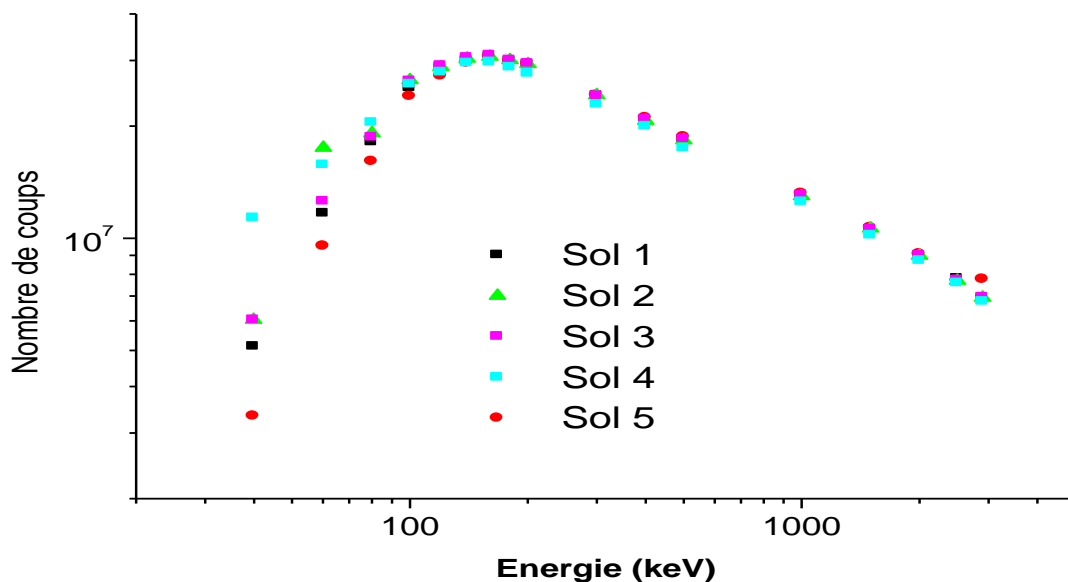


Figure IV-7 : Taux de comptage des pics d'absorption totale en fonction de chaque composition de sol simulé par MCNPX pour le détecteur ISOCS.

IV.2. Effet des dimensions de la source

Par rapport aux dimensions du détecteur, un rayon de 50 m de sol est considéré comme une dimension infinie. Un sol minéral sol n°5 de la référence ICRU [68], a été simulé avec le logiciel MCNPX. L'efficacité surfacique a été déterminée pour plusieurs dimensions de sol allant par pas de 1 m jusqu'à un rayon maximal de 50 m (figure IV-8). Le code MCNPX ne permettant pas de simuler un sol d'épaisseur nulle, une profondeur négligeable (0,01 cm) a donc été introduite.

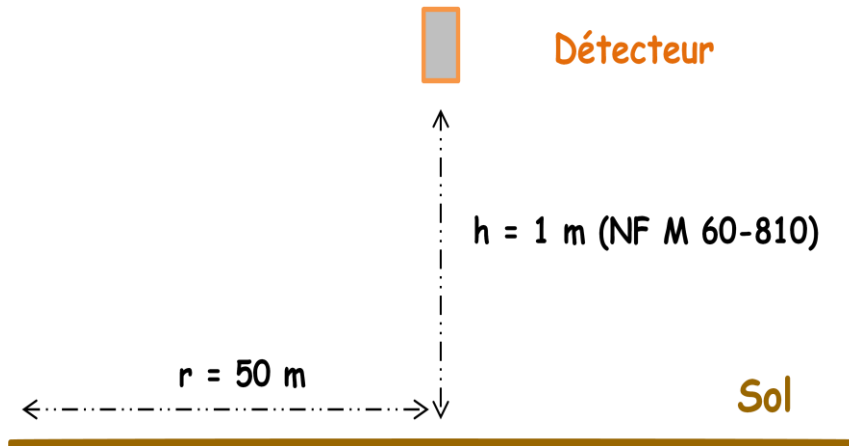


Figure IV-8 : Représentation schématique du dispositif expérimental pour le détecteur ISOCS.

En calculant le rapport de l'efficacité surfacique de la zone considérée sur le total de l'efficacité surfacique, il en résulte que 64% des photons sont détectés par le cristal de Ge entre 0 et 10 m et qu'au-delà de 10 m ce ne sont plus que 36% des photons qui sont détectés (figure IV-9).

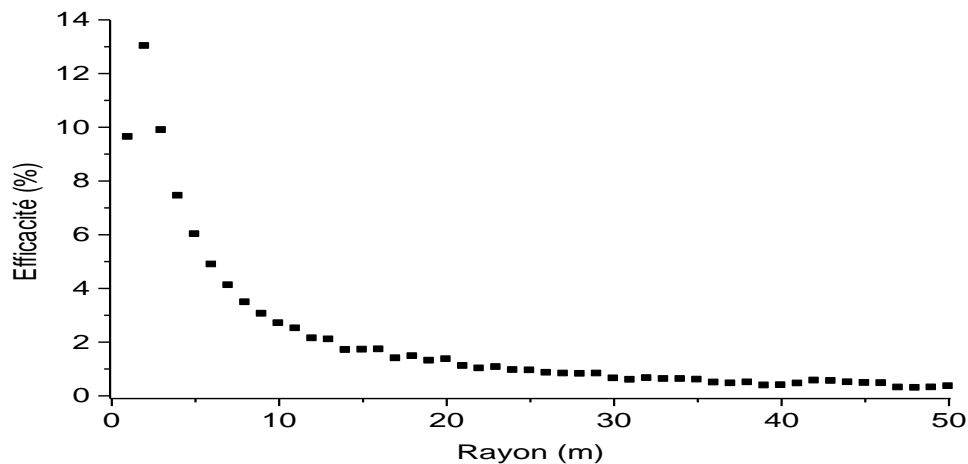


Figure IV-9 : Efficacité de détection simulée par MCNPX pour une source surfacique pour le détecteur ISOCS.

Pour déterminer l'efficacité de détection volumique, plusieurs profondeurs de sol ont été prises en compte (figure IV-10).

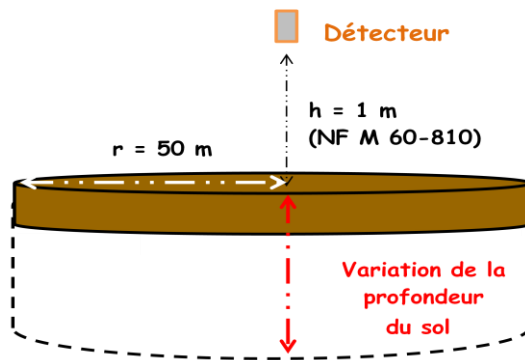


Figure IV-10 : Représentation schématique du dispositif expérimental avec introduction d'un sol volumique pour le détecteur ISOCS.

La figure IV-11 présente une efficacité volumique pour une profondeur de sol de 5 cm. Elle a été déterminée pour un rayon de sol allant de 0 à 50 m par pas de 1 m.

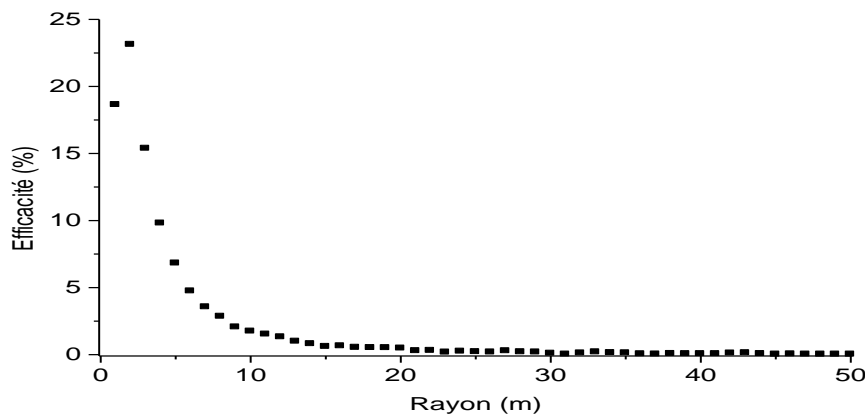


Figure IV-11 : Efficacité de détection simulée par MCNPX pour une source volumique d'épaisseur 5 cm pour le détecteur ISOCS.

En calculant le rapport de l'efficacité volumique de la zone considérée sur le total de l'efficacité volumique, on constate que 89% des photons sont détectés par le cristal de Ge entre 0 et 10 m et qu'au-delà de 10 m ce sont seulement 11% des photons qui sont détectés (figure IV-11).

Plusieurs autres épaisseurs de sol ont été simulées. Les différents résultats pour des profondeurs allant de 0 à 5, 0 à 10, 0 à 20, 0 à 50 puis de 0 à 100 cm sont présentés sur la figure IV-12.

La figure IV-12 représente pour chacune des cinq profondeurs, le rapport des efficacités volumiques de la zone considérée sur le total des efficacités volumiques. Plus l'épaisseur du sol est importante, plus les photons perçus par le détecteur proviennent de la zone proche du détecteur.

Pour une épaisseur de 5 cm et pour un rayon de 0 à 10 m, le détecteur détecte 89% des photons et au-delà de 10 m, 11%.

Pour 10 cm de profondeur, 91% de photons sont détectés sur un rayon de 0 à 10 m et au-delà seulement 9%.

Pour 20 cm d'épaisseur et pour un rayon de 0 à 10 m, 93% des photons sont détectés et 7% au-delà de 10 m.

Pour 50 cm et pour un rayon de 0 à 10 m, seulement 93% des photons sont perçus, au-delà 7%.

Et enfin pour 100 cm d'épaisseur, 93% des photons sont détectés pour un rayon de 0-10 m et au-delà seulement 7%.

Lorsque la profondeur passe de 5 cm à 10 cm, la détection des photons augmente de 2% pour un rayon de 0 à 10 m. Au-delà de 10 cm de profondeur, l'augmentation de la détection n'est plus significative.

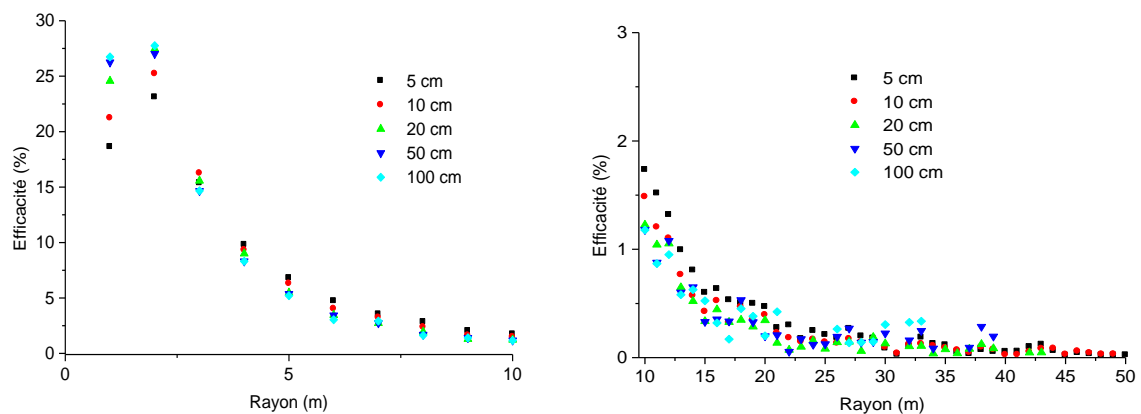


Figure IV-12 : Efficacité de détection simulée par MCNPX pour différentes sources volumiques pour le détecteur ISOCS. A gauche, zoom pour un rayon de sol entre 0 et 10 m. A droite, zoom pour un rayon de sol entre 10 et 50 m.

Dans les travaux suivant, trois profondeurs de sol ont été utilisées : surfacique pour une zone boisée, 5 cm et 20 cm pour des zones non remaniées et remaniées.

IV.3. Effet de l'humidité du sol

L'humidité du terrain diminue la densité du sol. Jouant un rôle de diluant, elle a un impact sur la détection des photons. Dans ce cadre, des simulations à l'aide de MCNPX ont permis d'étudier son effet.

La composition du sol modélisée correspondant au sol 3 est définie par le rapport [68]. Ce sol est désigné par le terme « sol sec ».

La composition du sol varie en fonction du taux d'humidité. L'incorporation d'eau provoque donc l'augmentation du pourcentage massique de l'O et de l'H entraînant la diminution du pourcentage massique des autres éléments. La nouvelle densité correspond à la somme des densités du sol sec et de l'eau proportionnellement à leur présence dans le produit final. Par exemple, pour une humidité de 20% ajoutée à un sol sec, la nouvelle densité du sol est de :

$$1,4 \times 0,8 + 1 \times 0,2 = 1,32$$

Le tableau IV-1 récapitule les différentes compositions de sol en fonction du taux d'humidité pris en compte dans les simulations.

	Humidité	Sol sec	5%	10%	20%	40%
	Nouvelle densité	1,4	1,38	1,36	1,32	1,24
Pourcentage massique des éléments (%)	H	1,1	1,60	2,10	3,10	5,10
	O	55,8	57,45	59,11	62,42	69,04
	Al	7,2	6,84	6,48	5,76	4,32
	Si	31,6	30,02	28,44	25,28	18,96
	C	1,2	1,14	1,08	0,96	0,72
	Fe	3,1	2,95	2,79	2,48	1,86

Tableau IV-1 : Pourcentage massique des éléments contenus dans les sols selon le taux d'humidité.

La figure IV-13 présente le nombre de coups en fonction des différents taux d'humidité pour une énergie de photon de 100 keV : à basse énergie, le fond Compton varie.

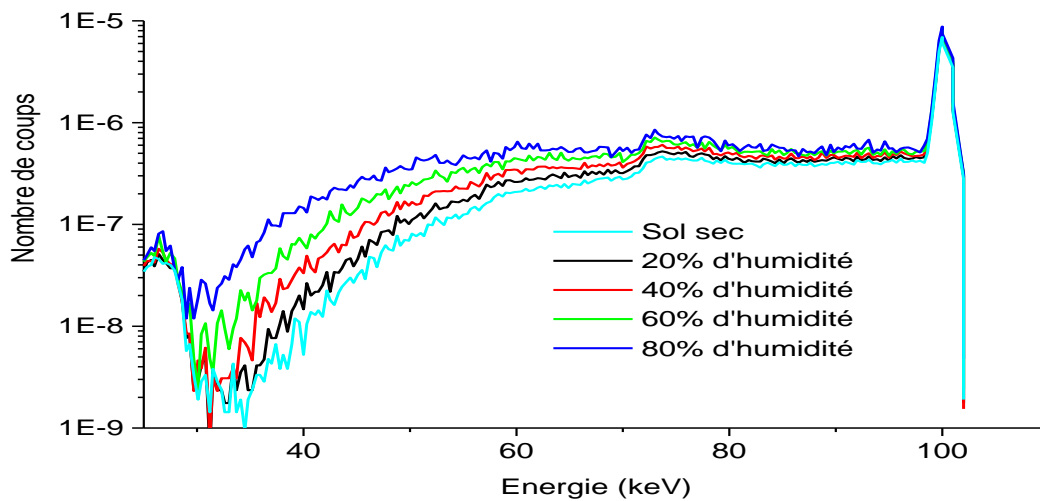


Figure IV-13 : Spectre représentant le nombre de coups en fonction du taux d'humidité pour un pic d'absorption totale d'énergie 100 keV obtenu par MCNPX pour un rayon de sol de 1 m et d'une profondeur de 20 cm.

D'autres simulations avec les mêmes taux d'humidité ont été réalisées mais pour des photons d'énergie 662 keV. Les différents spectres représentatifs sont illustrés sur la figure IV-14. L'énergie étant plus importante que celle illustrée par la figure IV-13, le fond Compton varie légèrement.

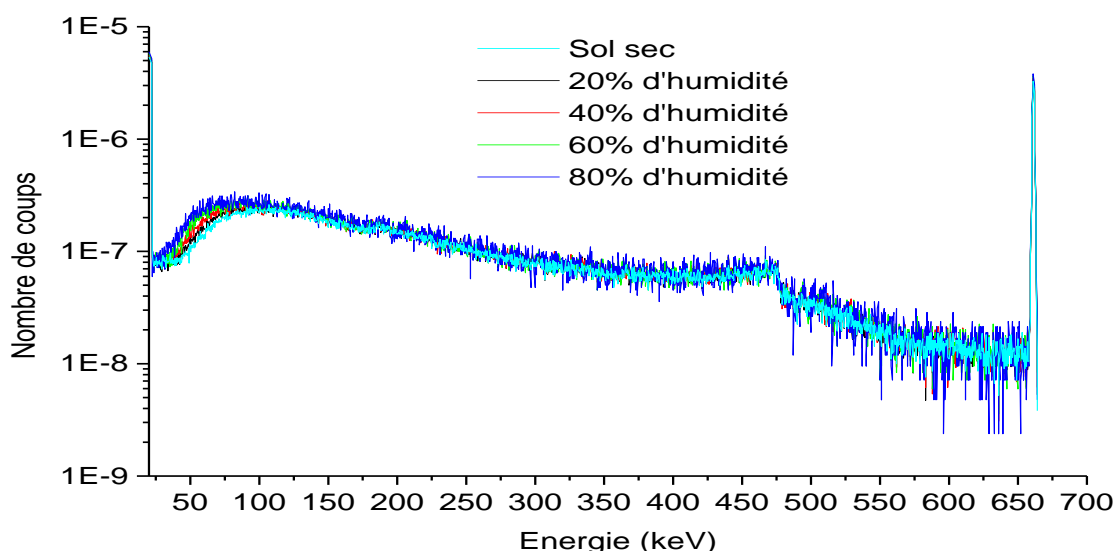


Figure IV-14 : Spectre représentant le nombre de coups en fonction du taux d'humidité pour un pic d'absorption totale d'énergie 662 keV obtenu par MCNPX pour un rayon de source de 1 m et de 20 cm de profondeur.

Les compositions de sol étant différentes suivant le taux d'humidité, le rapport entre le nombre de photons détectés et celui émis permet de déterminer l'efficacité simulée. Le tableau IV-2 indique les variations de perte d'efficacité en fonction de l'énergie des photons, de la profondeur du sol et des taux d'humidité. Pour une humidité de 5% et une profondeur de sol de 5 cm, la perte d'efficacité est en moyenne de 7% quelle que soit l'énergie. La perte est de 10% pour un sol d'épaisseur 20 cm. A partir de 40% d'humidité, la perte d'efficacité devient trop importante, environ 77, et 81% en moyenne pour les profondeurs de sol de 5 et 20 cm. L'humidité influence donc l'efficacité de détection et la détermination des activités des différents radionucléides.

Energie (keV)	Profondeur (cm)	Humidité			
		5%	10%	20%	40%
100	5	9%	15%	30%	79%
	20	13%	19%	36%	84%
661	5	6%	12%	28%	72%
	20	9%	16%	34%	86%
1461	5	7%	14%	30%	81%
	20	8%	17%	33%	73%

Tableau IV-2 : Efficacité perdue suivant la profondeur du sol et le taux d'humidité.

V. Résultats des analyses effectuées autour du CNPE de Dampierre

Suite à la demande d'EDF pour la réalisation de cartographies radiologiques autour des Centres Nationaux de Production d'Electricité (CNPE) en France, des mesures in situ ont été réalisées aux alentours du CNPE de Dampierre situé dans le département du Loiret à 45 km au sud-est d'Orléans. Vingt-six points de mesures (figure IV-15) ont été effectués en périphérie du CNPE, l'objectif est de

déterminer l'activité du ^{137}Cs , point de référence depuis Fukushima sur d'éventuels risques de contamination mais aussi de réaliser le bilan décennal du CNPE.

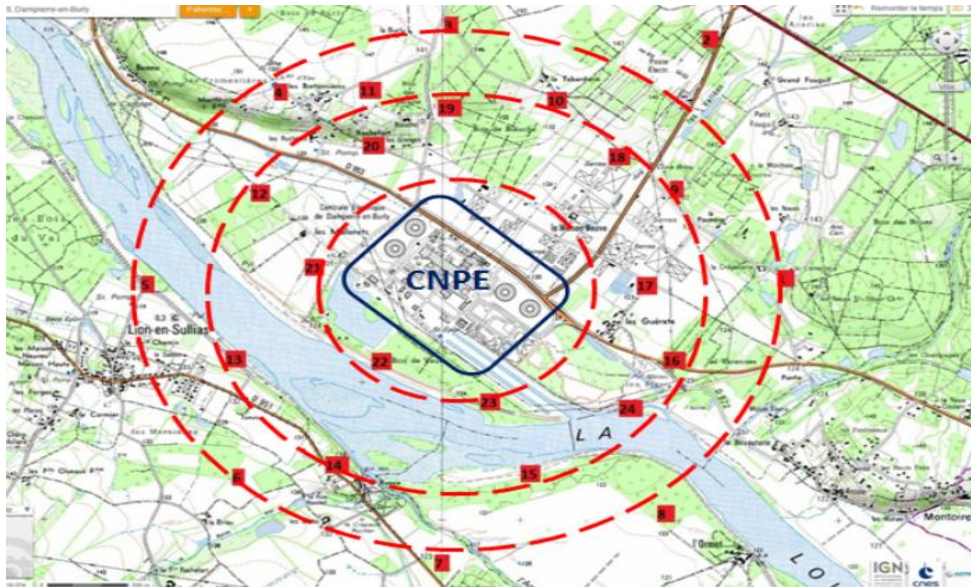


Figure IV-15 : Situation des mesures autour du CNPE de Dampierre.

Les points d'analyses se situent à des distances comprises entre 500 m et 2 km autour du CNPE. Pour chaque spectre obtenu, le temps d'acquisition a été limité à 1800 s. Un des spectres est illustré sur la figure IV-16. Le spectre représente la radioactivité naturelle des descendants de la chaîne du thorium (^{212}Pb , ^{208}Tl), de la chaîne de l'uranium (^{214}Pb , ^{214}Bi) et du produit de fission ^{137}Cs provenant des accidents nucléaires et des essais nucléaires dans l'atmosphère.

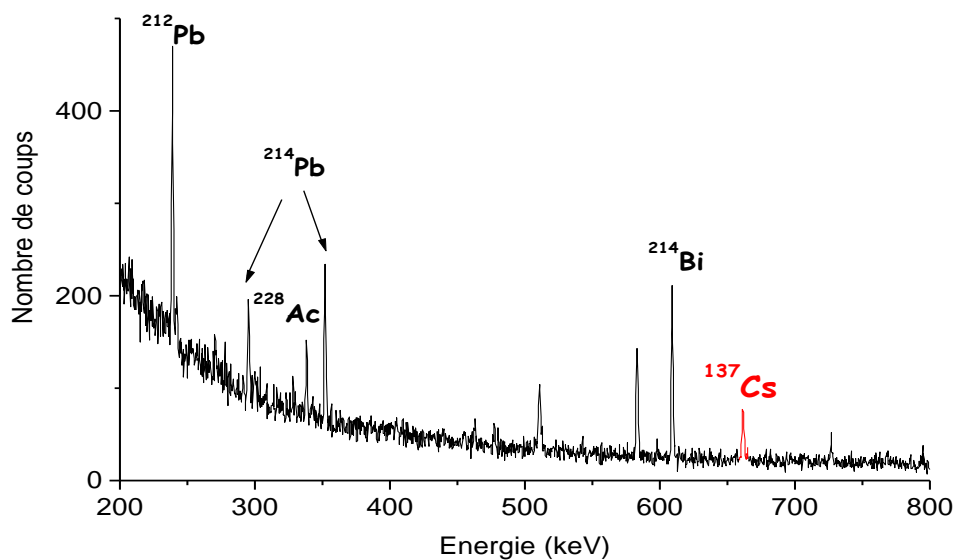


Figure IV-16 : Zoom sur un spectre énergétique pendant une mesure in situ de 1800 s.

La profondeur de pénétration du ^{137}Cs dans le sol variant en fonction des terrains, une classification des terrains en trois catégories a été établie : en terrain remanié (suite à une activité agricole), non remanié (terrain en friche), zones boisées. La figure IV-17 présente une photographie de deux catégories.



Figure IV-17 : Photographie représentant deux types de terrain rencontrés pendant l'expertise autour du CNPE de Dampierre. A gauche, terrain non remanié, à droite, terrain remanié.

Pour évaluer les activités des radioéléments, nous avons utilisé des efficacités simulées et trois profondeurs de sol ont été modélisées. La figure IV-18 présente la variation de l'efficacité de détection de l'ISOCS en fonction de l'énergie des photons. L'efficacité obtenue pour une profondeur de sol de 20 cm est beaucoup plus faible que celle pour un sol surfacique.

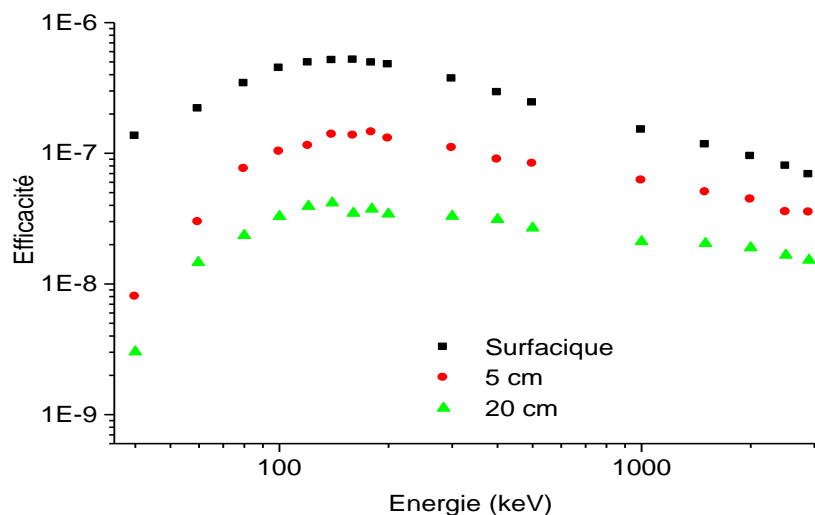


Figure IV-18 : Efficacités simulées correspondant à trois profondeurs de sol pour la détermination des activités des radioéléments par le détecteur ISOCS à l'aide de MCNPX.

N'ayant aucune information sur le type de sol, il a été nécessaire d'étudier les activités pour trois types d'efficacité correspondant à un sol surfacique et deux sols de profondeurs de 5 cm et de 20 cm. Une simulation d'un sol surfacique a été utilisée pour déterminer l'activité de deux points. Ces points (14 et 23) correspondent à une zone boisée. La figure IV-19 illustre un exemple de ce type de terrain rencontré. L'analyse de ces points a été réalisée à l'aide des deux détecteurs (ISOCS et FALCON) ainsi que les points 1 et 17.



Figure IV-19 : Exemple d'un point de mesure zone boisée avec les deux détecteurs.

Le tableau IV-3 indique les activités surfaciques mesurées pour ces deux points. Le point 14 correspond à une limite de détection. La moyenne des activités pour le point 23 est de l'ordre de 142 Bq/m² compatible avec la figure IV-26 qui donne la distribution du ¹³⁷Cs au niveau du territoire français.

Point	Détecteur	A ¹³⁷ Cs (Bq/m ²)
14	ISOCS+FALCON	< 42
23	ISOCS+FALCON	142 ± 13

Tableau IV-3 : Activités surfaciques (Bq/m²) obtenues pour les points 14 et 23, zones boisées.

Pour les 24 autres points, les activités ont été déterminées avec des courbes d'efficacité pour un sol de profondeur 5 cm et 20 cm. Le tableau IV-4 regroupe les valeurs de l'activité massique du ¹³⁷Cs. Pour les terrains non remaniés, la moyenne des activités est de (3,7 ± 0,1) Bq/kg, la valeur maximale étant pour le point 18, la minimale pour le point 6.

Pour les terrains remaniés, la valeur maximale d'activité obtenue est pour le point 7 tandis que la valeur minimale est pour le point 6. La moyenne des activités est de (2,5 ± 0,1) Bq/kg.

Point	Détecteur	A ¹³⁷ Cs (Bq/kg)			
		Profondeur de sol 5 cm Terrains non remaniés		Profondeur de sol 20 cm Terrains remaniés	
1	ISOCS + FALCON	4,1	± 0,5	3,0	± 0,4
3	FALCON	< 3,3		< 2,2	
4	ISOCS	2,6	± 0,3	2,0	± 0,3
5	ISOCS	2,7	± 0,4	2,2	± 0,3
6	ISOCS	< 2,0		< 1,3	
7	FALCON	5,5	± 0,7	3,7	± 0,5
8	FALCON	5,3	± 0,9	3,6	± 0,6
10	ISOCS	2,7	± 0,4	2,1	± 0,3
11	ISOCS	2,7	± 0,4	2,3	± 0,3
12	ISOCS	3,0	± 0,4	2,3	± 0,3
13	FALCON	< 3,7		< 3,7	
15	ISOCS	4,5	± 0,4	3,5	± 0,3
16	FALCON	4,5	± 0,8	1,1	± 0,2
17	FALCON	3,4	± 0,6	2,3	± 0,4
18	FALCON	6,0	± 0,8	1,5	± 0,2
19	FALCON	4,3	± 0,7	2,9	± 0,5
20	FALCON	< 3,6		< 2,4	
21	FALCON	< 5,3		< 3,6	
24	ISOCS	2,6	± 0,4	2,0	± 0,3
25	ISOCS	3,1	± 0,3	2,4	± 0,3
26	FALCON	4,0	± 0,7	2,7	± 0,4
Moyenne		3,7	± 0,1*	2,5	± 0,1*

* Somme quadratique des incertitudes sur le nombre total de point

Tableau IV-4 : Activités du ¹³⁷Cs (Bq/kg) pour des efficacités associées à des profondeurs de sol simulées de 5 et 20 cm.

Ne possédant pas d'historique sur la transformation éventuelle de la nature des sols depuis trois décennies, mais sachant qu'il est fort probable que la zone autour du CNPE soit principalement des terres agricoles depuis de nombreuses années, les valeurs d'activité retenues sont celles données pour une profondeur de sol simulée de 20 cm correspondant à un type de terrain remanié.

V.2. Résultats pour les radioéléments naturels

Nous nous sommes aussi intéressés aux radionucléides naturels ⁴⁰K, ²³²Th et ²²⁶Ra. Sachant qu'ils se trouvent dans les sols depuis l'origine de la Terre, nous avons utilisé la courbe d'efficacité correspondant à un sol de profondeur 20 cm. Le tableau IV-5 récapitule les activités obtenues pour ces radioéléments. La moyenne des activités est de (596 ± 5) Bq/kg pour le ⁴⁰K, (30 ± 0,4) Bq/kg pour le ²³²Th et (26 ± 0,3) Bq/kg pour le ²²⁶Ra. L'activité du ⁴⁰K est la plus conséquente par rapport aux deux autres éléments.

Point	A ⁴⁰ K (Bq/kg)	A ²³² Th (Bq/kg)	A ²²⁶ Ra (Bq/kg)
1	586 ± 20	20 ± 2	17 ± 1
3	728 ± 34	24 ± 2	28 ± 2
4	539 ± 10	40 ± 1	46 ± 1
5	698 ± 12	33 ± 1	26 ± 1
6	365 ± 8	25 ± 1	21 ± 1
7	656 ± 31	22 ± 2	19 ± 1
8	694 ± 32	59 ± 3	33 ± 2
10	590 ± 10	16 ± 1	19 ± 1
11	747 ± 12	20 ± 1	26 ± 1
12	744 ± 12	55 ± 2	43 ± 1
13	550 ± 26	31 ± 2	26 ± 2
14	426 ± 9	18 ± 1	15 ± 1
15	545 ± 8	37 ± 1	25 ± 1
16	343 ± 16	11 ± 1	9 ± 1
17	741 ± 34	29 ± 2	19 ± 1
18	209 ± 10	9 ± 1	8 ± 1
19	621 ± 29	26 ± 2	38 ± 2
20	803 ± 37	37 ± 2	34 ± 2
21	927 ± 42	59 ± 3	43 ± 3
23	569 ± 11	30 ± 1	20 ± 1
24	474 ± 9	37 ± 1	30 ± 1
25	437 ± 9	18 ± 1	18 ± 1
26	512 ± 25	22 ± 2	49 ± 3
Moyenne	587 ± 5*	29,0 ± 0,4*	27,0 ± 0,3*

* Somme quadratique des incertitudes sur le nombre total de point

Tableau IV-5 : Activités massiques pour le ⁴⁰K, le ²³²Th et le ²²⁶Ra obtenues par spectrométrie γ in situ pour Dampierre.

VI. Comparaison entre spectrométries γ en laboratoire et in situ.

Des prélèvements ont été réalisés en quelques points lors des mesures in situ autour du CNPE de Dampierre. Une masse de 112 g de chaque échantillon brut a été conditionnée dans un conteneur FP80 pour obtenir une densité apparente de 1,4 identique à celle utilisée dans les précédentes simulations puis mesurée, à l'aide du détecteur BEGe, pendant un temps d'acquisition de $2 \cdot 10^5$ s.

La figure IV-20 compare les activités en différents points du ¹³⁷Cs données par spectrométrie γ in situ pour la profondeur de sol retenue par rapport à celles obtenues par spectrométrie en laboratoire. Les activités mesurées en laboratoire sont légèrement supérieures à celles obtenues in situ. Ceci peut être expliqué par une perte d'humidité entre la collecte et l'analyse de l'échantillon. En effet, un laps de temps important s'est écoulé entre le moment des prélèvements et le conditionnement entraînant une

évaporation possible. La figure présente aussi les résultats des activités in situ corrigées pour un taux d'humidité de 10 %. Les valeurs sont très proches de celles obtenues en laboratoire. Par conséquent, il est important de connaître le taux d'humidité du sol pour chaque mesure.

En conclusion, la spectrométrie γ in situ permet d'obtenir une activité moyenne des radioéléments existants ne nécessitant aucun traitement préalable d'un échantillon.

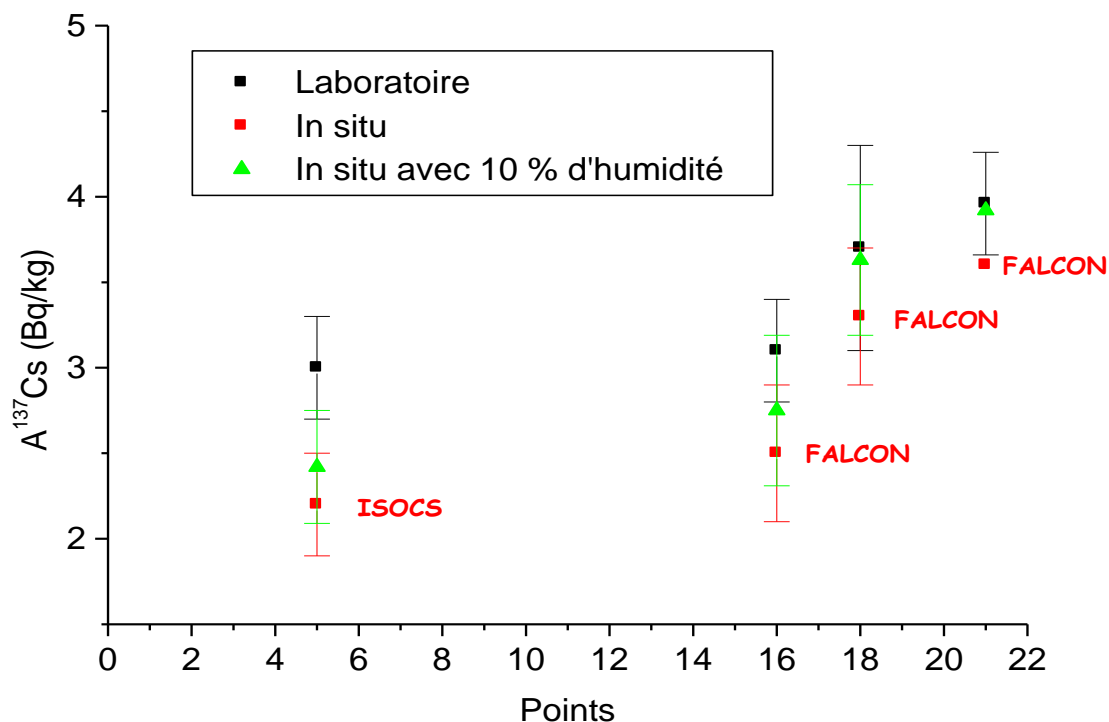


Figure IV-20 : Comparaison des activités du ^{137}Cs (Bq/kg) obtenues par spectrométrie γ en laboratoire et in situ pour une profondeur de sol simulée de 20 cm.

VII. Comparaison de la radioactivité des sols

VII.1. Sols de Dampierre versus sols d'Alsace

Une comparaison de la radioactivité des sols entre Dampierre et la région alsacienne est présentée dans ce paragraphe. Pour Dampierre, les valeurs de l'activité des différents radionucléides obtenues par spectrométrie γ en laboratoire sont regroupées dans le tableau IV-6 ainsi que leurs moyennes. Ces résultats sont comparés avec ceux des analyses des sols de l'Alsace (section XIII, chapitre 3). Le tableau IV-7 résume les moyennes des activités obtenues pour Dampierre et l'Alsace pour les radionucléides ^{40}K , ^{232}Th , ^{226}Ra et ^{137}Cs . L'activité du ^{40}K est conséquente pour le site de Dampierre. Par contre, les activités des autres radioéléments obtenues pour Dampierre sont plus faibles par rapport à celles de l'Alsace. L'activité en ^{137}Cs est plus importante en Alsace qu'à Dampierre, la région alsacienne ayant été beaucoup plus impactée par le nuage radioactif en provenance de Tchernobyl (figure IV-21). La moyenne de ces activités n'est toutefois pas représentative des activités des radionucléides de la France. Il serait donc utile d'étendre cette étude sur l'ensemble du territoire.

Points	A ⁴⁰ K (Bq/kg)	A ²³² Th (Bq/kg)	A ²²⁶ Ra (Bq/kg)
5	760 ± 72	32 ± 3	22 ± 2
16	734 ± 59	30 ± 2	21 ± 2
18	599 ± 58	24 ± 3	19 ± 2
21	793 ± 64	52 ± 4	35 ± 2
Moyenne	722 ± 32*	35 ± 2*	24 ± 1*

* Somme quadratique des incertitudes sur le nombre total de point

Tableau IV-6 : Activités massiques (Bq/kg) des éléments naturels ⁴⁰K, ²³²Th, ²²⁶Ra obtenues par spectrométrie γ en laboratoire pour Dampierre.

Lieu	A ⁴⁰ K (Bq/kg)	A ²³² Th (Bq/kg)	A ²²⁶ Ra (Bq/kg)	A ¹³⁷ Cs (Bq/kg)
Dampierre	722 ± 32	35 ± 2	24 ± 1	4 ± 0,2
Alsace	526 ± 10	42 ± 1	33 ± 1	12 ± 0,3
Moyenne	624 ± 17*	39 ± 1*	29 ± 0,7*	8 ± 0,2*

* Somme quadratique des incertitudes sur le nombre total de point

Tableau IV-7 : Activités massiques (Bq/kg) pour les éléments ⁴⁰K, ²³²Th, ²²⁶Ra et ¹³⁷Cs obtenues par spectrométrie γ en laboratoire pour Dampierre et l'Alsace.

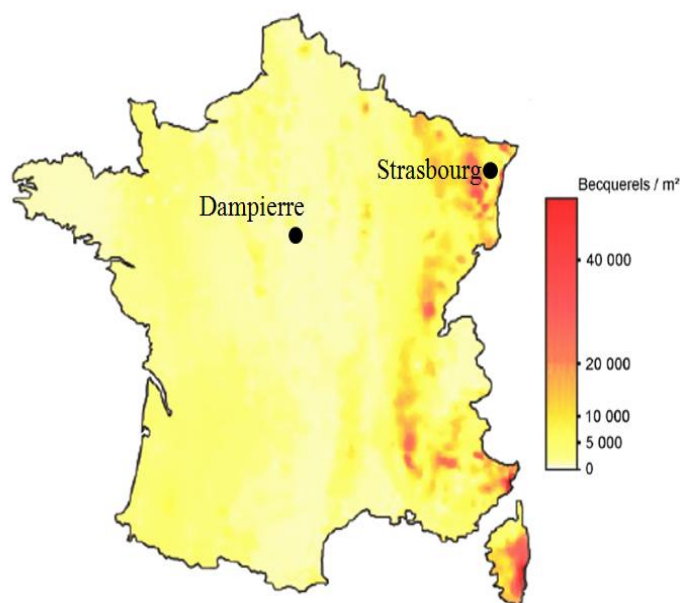


Figure IV-21 : Dépôts de ¹³⁷Cs en France consécutifs à l'accident nucléaire de Tchernobyl en mai 1986 [72].

VII.2. Sols français versus sols européens

Une comparaison de la radioactivité naturelle des sols a été faite entre la France et l'Europe. Dans le rapport UNSCEAR 2000 [36], les activités moyennes en France ne sont pas prises en compte. Nos travaux vont donc pouvoir servir de référence pour ce pays.

Le tableau IV-8 récapitule les moyennes des activités fournies dans le rapport UNSCEAR 2000 et celles obtenues par cette étude. En comparant les différentes activités pour la France à celles des autres pays limitrophes, on constate que la valeur de l'activité moyenne pour le ^{40}K (624 Bq/kg) est proche de celle du Luxembourg soit 620 Bq/kg. L'activité moyenne du ^{232}Th est très légèrement supérieure (39 Bq/kg) à celle de l'Espagne soit 33 Bq/kg. Concernant le ^{226}Ra , l'activité moyenne trouvée est proche de celle donnée pour la Belgique (29 Bq/kg).

Il en résulte que les valeurs moyennes des activités des radioéléments considérés pour les différents pays de l'Europe de l'ouest sont du même ordre de grandeur.

Le tableau montre également que les valeurs de l'activité moyenne de l'Europe de l'ouest pour le ^{40}K (493 Bq/kg) et le ^{232}Th (35 Bq/kg) sont supérieures aux valeurs mondiales soit respectivement 24% et 17% contrairement au ^{226}Ra dont la valeur est de 9% inférieure par rapport à l'activité moyenne mondiale.

Pays	$A^{40}\text{K}$ (Bq/kg)	$A^{232}\text{Th}$ (Bq/kg)	$A^{226}\text{Ra}$ (Bq/kg)
Belgique	380	27	26
Luxembourg	620	50	35
Suisse	370	25	40
Espagne	470	33	32
France (ce travail)	624	39	29
Moyenne Europe de l'ouest	493	35	32
Mondiale	400	30	35

Tableau IV-8 : Activités massiques moyennes (Bq/kg) pour les éléments ^{40}K , ^{232}Th , ^{226}Ra pour différents pays.

VIII. Spectrométries γ in situ auprès de la société CRISTAL

Une deuxième application de la spectrométrie γ in situ a été effectuée auprès de la société CRISTAL située à Thann dans le département du Haut-Rhin. L'objectif est la caractérisation radiologique des déchets de type Big-Bag contenant des résidus de boue de dioxyde de titane des tuyauteries. Pour pouvoir les stocker, les activités des déchets ne doivent pas dépasser les limites d'activités fixées par la société SITA. Celle-ci, filiale de SUEZ ENVIRONNEMENT pour la gestion des déchets [73] exige des limites de 1 Bq/g pour le ^{232}Th et de 5 Bq/g pour l' ^{238}U pour pouvoir les récupérer et les stocker.

La société CRISTAL a été la première usine mondiale à produire dès 1922 du dioxyde de titane (TiO_2). Aujourd'hui, deuxième producteur mondial en TiO_2 , elle produit également du tétrachlorure de titane et du TiO_2 ultrafin. De pigmentation blanche, le TiO_2 permet de blanchir, de rendre opaque et d'augmenter la stabilité des papiers, des élastomères, des peintures et des revêtements en plastique. Le TiO_2 ultrafin est utilisé principalement pour la dépollution de l'air, de l'eau et la réalisation de surfaces

autonettoyantes. Le tétrachlorure de titane est utilisé pour la pigmentation nacréée des peintures pour l'automobile [74].

Une expertise a été réalisée sur le site de stockage de l'usine. Elle a consisté à caractériser par spectrométrie γ in situ trois Big-Bag de 1 m³ environ. Les deux détecteurs ISOCS et FALCON avec leur collimateur ont été utilisés pour réaliser les mesures (voir figure IV-22).



Figure IV-22 : Photographie du site de mesure : FALCON à gauche et ISOCS à droite du Big-Bag.

Ils ont été positionnés en vis-à-vis à environ 50 cm du Big-Bag. Les quatre faces du Big-Bag ont été successivement analysées par les deux détecteurs. Le temps d'acquisition par côté a été de 900 s.

Pour prendre en compte l'inhomogénéité des rayonnements γ émis, le spectre final a été déterminé en sommant les acquisitions obtenues par côté et par détecteur.

Le tableau IV-9 récapitule les différentes caractéristiques des Big-Bag qui ont été utilisées pour réaliser les modélisations de l'efficacité de détection.

Big-Bag	N°11 Rouge	N°12 Rouge	N°12 Bleu
Masse nette (kg)	1420	1391	1379
Hauteur (cm)	75	60	75
Diamètre (cm)	124	127	124
Densité apparente	1,56	1,82	1,52

Tableau IV-9 : Caractéristiques des Big-Bag analysés.

Pour chaque détecteur, les efficacités ont été obtenues par « Geometry Composer » du logiciel LabSOCS. Les modélisations des détecteurs étant déjà introduites par CANBERRA (figure IV-23), il est toutefois nécessaire d'indiquer les matières utilisées et les dimensions pour chaque source. Le logiciel fournit les courbes d'efficacité en fonction de l'énergie de 10 keV à 7 MeV, pour chaque détecteur et pour chaque source.

La figure IV-23 représente une vue modélisée 3D d'un Big-Bag sous forme d'un cylindre et le détecteur ISOCS avec son collimateur. Le cône matérialise le champ de détection du détecteur. L'efficacité de détection a été modélisée en considérant une source homogène contenue dans le Big-Bag.

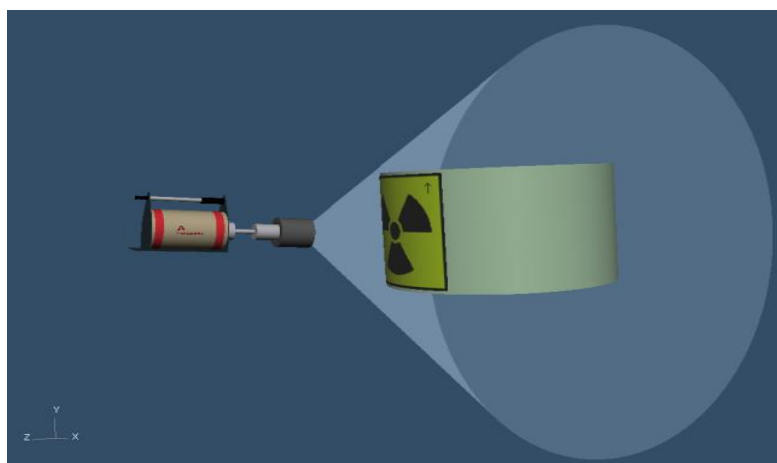


Figure IV-23 : Représentation 3D avec « Geometry Composer » d'un Big-Bag et du détecteur ISOCS avec son collimateur.

Les analyses ont mis en évidence la présence de radioactivité naturelle renforcée à savoir les radionucléides naturels émetteurs γ des familles du ^{232}Th et de ^{238}U mais l'absence de radioéléments artificiels. Les résidus à radioactivité naturelle renforcée sont des résidus générés par la transformation de matière première contenant naturellement des radioéléments mais qui ne sont pas utilisées pour leurs propriétés radioactives.

Les résultats obtenus des deux détecteurs pour les trois Big-Bag sont indiqués dans le tableau IV-10. Dans les trois Big-Bag, l'activité de ^{238}U et celle du ^{40}K sont des limites de détection. Le Big-Bag n°12 Rouge présente des activités plus importantes que celles des deux autres Big-Bag. Les valeurs des activités obtenues sont en dessous de la limite fixée par la société SITA. Ainsi ces Big-Bag peuvent être évacués et stockés.

	Radionucléides	^{40}K	^{232}Th	^{238}U
Big-Bag n°11 Rouge	Activité massique (Bq/g)	< 0,1	$0,55 \pm 0,04$	< 1,1
Big-Bag n°12 Rouge	Activité massique (Bq/g)	< 0,1	$0,70 \pm 0,05$	< 1,2
Big-Bag n°12 Bleu	Activité massique (Bq/g)	< 0,1	$0,19 \pm 0,02$	< 0,9

Tableau IV-10 : Activités moyennes mesurées par ISOCS et FALCON pour les Big-Bag.

Une étude complémentaire a consisté à prélever des échantillons de résidus de boue de ces Big-Bag pour des analyses au laboratoire par spectrométrie γ .

Tous les échantillons ont été conditionnés en conteneur FP80 puis analysés par le détecteur BEGe. Ils ont été étudiés selon différents états :

Etat 1 : échantillon brut sans traitement.

Etat 2 : échantillon brut, non broyé, séché pendant 24 h à 40°C puis passé au tamis de 2 mm.

Etat 3 : récupération des résidus de taille supérieure à 2 mm de l'état 2.

Etat 4 : échantillon brut séché pendant 24 h à 40°C puis broyé et passé au tamis de 2 mm.

Etat 5 : échantillon brut séché pendant 24 h à 40°C puis broyé.

Les tableaux IV-11, IV-12 et IV-13 récapitulent les activités de ^{238}U , du ^{232}Th et du ^{40}K . Pour les trois Big-Bag et pour tous les états, l'activité du ^{40}K est une limite de détection.

Les tableaux montrent que les activités des différents radionucléides naturels varient en fonction des différentes transformations de l'échantillon. Cela montre que les activités des radioéléments ne sont pas réparties uniformément dans l'échantillon. A titre d'exemple, prenons l'activité du ^{232}Th obtenue pour l'état 2 dans le tableau IV-11. Nous constatons que cette activité de (1820 ± 100) Bq/kg est ~3 fois plus importante que celle obtenue pour l'ensemble du Big-Bag (700 ± 50) Bq/kg du tableau IV-9. Ainsi, il serait inenvisageable que la société SITA accepte d'entreposer ce déchet. C'est pour cela que la spectrométrie γ in situ est à privilégier car elle permet de prendre en compte la moyenne des activités en mesurant le Big-Bag entier.

Etat	^{40}K (Bq/kg)	^{232}Th (Bq/kg)	^{238}U (Bq/kg)
1	<14	$1\ 030 \pm 60$	< 232
2	< 33	$1\ 820 \pm 100$	300 ± 90
3	< 24	$1\ 010 \pm 60$	240 ± 70
4	< 24	$1\ 090 \pm 70$	< 419
5	< 22	$1\ 200 \pm 60$	200 ± 60

Tableau IV-11 : Activités massiques (Bq/kg) des éléments naturels obtenues par spectrométrie γ en laboratoire pour le Big-Bag n°11 Rouge.

Etat	^{40}K (Bq/kg)	^{232}Th (Bq/kg)	^{238}U (Bq/kg)
1	< 19	770 ± 40	190 ± 60
2	< 27	$1\ 180 \pm 70$	320 ± 80
3	< 28	$1\ 110 \pm 60$	230 ± 80
4	< 25	$1\ 090 \pm 60$	310 ± 80
5	< 25	$1\ 110 \pm 60$	270 ± 80

Tableau IV-12 : Activités massiques (Bq/kg) des éléments naturels obtenues par spectrométrie γ en laboratoire pour le Big-Bag n°12 Rouge.

Etat	⁴⁰ K (Bq/kg)	²³² Th (Bq/kg)	²³⁸ U (Bq/kg)
1	< 17	360 ± 20	< 251
2	< 21	560 ± 40	190 ± 70
3	< 17	350 ± 20	< 164
4	< 14	330 ± 20	140 ± 50
5	< 15	400 ± 30	110 ± 40

Tableau IV-13 : Activités massiques (Bq/kg) des éléments naturels obtenues par spectrométrie γ en laboratoire pour le Big-Bag n°12 Bleu.

Conclusion générale & perspectives

Le travail présenté dans ce manuscrit se situe dans le cadre recherche et développement de méthodes d'analyses par spectrométrie γ pour des mesures environnementales. La spectrométrie γ est une technique de mesure nucléaire très répandue pour identifier et quantifier des éléments radioactifs en mesurant l'énergie des rayonnements γ émis. Elle est non destructive et permet de doser en une seule mesure l'ensemble des radioéléments émetteurs γ d'énergies comprises entre 20 et 3000 keV, en utilisant des détecteurs à base de cristaux GeHP à haute résolution. Cependant, l'auto-absorption des échantillons à analyser est un phénomène à ne pas négliger lors de la détermination de l'efficacité de détection.

La première partie de la thèse a montré que le phénomène de l'auto-absorption est plus important pour des énergies de photon inférieures à 200 keV et que la variation de la densité et de la composition des échantillons avaient un impact sévère sur la valeur du facteur de correction. La mise en place d'une nouvelle géométrie a nécessité d'apporter des améliorations au dispositif expérimental existant, notamment l'introduction d'un collimateur en plomb. Ce dernier permet d'obtenir un faisceau quasi-parallèle pour pouvoir utiliser la méthode de transmission. Ce nouveau conteneur diminue la correction sur le coefficient d'atténuation conséquente pour les faibles énergies de photons. Des simulations, à l'aide du logiciel MCNPX ont permis de définir les dimensions optimales du nouveau dispositif expérimental, ainsi une longueur de 6 cm et un diamètre du trou de 0,5 cm ont été retenus pour le collimateur.

Une étude sur l'impact des incertitudes de comptage de l'échantillon et de l'air a montré qu'elles affectaient fortement l'incertitude du coefficient d'atténuation linéique des mesures de transmission. Il en ressort que l'incertitude relative sur le taux de comptage doit être inférieure de 1% pour évaluer correctement la détermination de l'atténuation dans la méthode de transmission.

L'exploitation de la nouvelle géométrie et du nouveau collimateur a été validée par deux tests d'inter-comparaison fournis par l'IRSN. Chaque échantillon de densité différente a été conditionné dans une géométrie de conteneur FP80. Les résultats obtenus mettent en évidence deux paramètres importants dans la détermination de l'efficacité de détection : la densité et la composition de l'échantillon.

Ce nouveau protocole expérimental va être prochainement intégré dans la démarche qualité du groupe RaMsEs.

Le facteur de correction de l'auto-absorption est déterminé à ce jour à l'aide d'une chaîne de mesure différente par rapport à celle utilisée pour l'analyse de l'échantillon. Un nouveau support adapté à la géométrie du conteneur FP80 et à son collimateur, en cours d'étude, sera donc mis en place sur le détecteur BEGe. Ainsi, la détermination du facteur d'auto-absorption et l'analyse de l'échantillon pourront alors se faire sur la même chaîne de mesure.

Dans la deuxième partie de la thèse, le dispositif optimisé a été appliqué à la dosimétrie des rayonnements pour les matériaux de construction en provenance du Maroc. Les activités obtenues pour différents isotopes dans les matériaux de construction varient entre $(2,6 \pm 1,4)$ Bq/kg pour le gypse à $(186,6 \pm 26,9)$ Bq/kg pour la brique rouge. Elles ont été comparées aux valeurs des matériaux de construction en provenance d'autres pays notamment de la France.

Les grandeurs de radioprotection, débits de dose absorbée et de dose efficace annuelle, ont été calculées pour les différents matériaux de construction en utilisant le formalisme donné par le rapport UNSCEAR-2000. Les valeurs maximales et minimales obtenues pour les débits de dose absorbée sont

respectivement de $(172,5 \pm 10,1)$ nGy/h et $(2,3 \pm 0,4)$ nGy/h tandis que pour les doses efficaces annuelles elles sont respectivement de $(0,847 \pm 0,049)$ mSv/an et $(0,011 \pm 0,002)$ mSv/an. Les doses efficaces déterminées ne dépassent pas la limite recommandée par la CIPR soit 1 mSv/an. Par conséquent, ces matériaux ne présentant pas de risque pour la santé de l'homme et peuvent effectivement être employés dans la réalisation des bâtiments. Cependant, des disparités existent entre les résultats de débits de doses et ceux obtenus par des simulations Monte Carlo. Ces différences ont nécessité une étude approfondie sur les facteurs de conversion de dose réalisée à l'aide de simulations MCNPX. Elle a mis en évidence l'influence des seuils d'intensité des rayonnements γ sur les facteurs de conversion de dose et à la nécessité de la mise à jour des probabilités d'émission des γ . Des études identiques ont été réalisées en améliorant le modèle de pièce proposé pour l'évaluation de ces grandeurs en ajoutant des ouvertures, porte et fenêtre. En considérant les murs, le sol et le plafond avec des densités différentes, il en résulte que la densité joue un rôle sur les valeurs des facteurs de conversions de dose.

Les études réalisées sur les matériaux de construction marocains, concernant les débits de dose absorbée et de dose efficace, ont été également appliquées sur des prélèvements de sol alsacien. La dose efficace annuelle moyenne en Alsace est d'environ 17% plus élevée que l'exposition moyenne mondiale (UNSCEAR-2000). Des écarts d'environ 20% sur le débit de dose absorbée existent entre ces résultats et ceux obtenus par simulations MCNPX.

Une étude complémentaire sur les facteurs de conversion de dose a été effectuée. L'impact des effets du rayon et de la profondeur du sol dans la modélisation Monte Carlo ainsi que de la composition du sol a été évalué sur les facteurs de conversion de dose pour les radionucléides ^{40}K , ^{226}Ra , ^{232}Th et leurs descendants. Il en résulte que la composition du sol affecte très peu ces facteurs.

Pour la profondeur et le rayon du sol simulés, les valeurs des facteurs sont stables à partir de 50 cm de profondeur et pour un rayon supérieur à 15 m. Pour le ^{40}K , la valeur est de 0,036 nGy/h par Bq/kg, pour les familles du ^{226}Ra et ^{232}Th , elles sont respectivement de 0,357 et 0,482 nGy/h par Bq/kg.

Le groupe a récemment acquis un nouveau système anti-Compton couplé à un veto anti-cosmique pour améliorer la gamme en sensibilité afin de gagner trois ordres de grandeurs. Cela va permettre une meilleure analyse des différentes sources de bruit de fond et leurs contributions dans une mesure de type environnementale. En effet, les rayonnements cosmiques sont principalement constitués de protons, d'atomes d'hélium et d'ions lourds avec des énergies cinétiques importantes qui au contact de l'atmosphère de nombreuses particules secondaires produisent les mésons π , μ , e^- , p , n et les photons électromagnétiques d'énergies pouvant atteindre une centaine de MeV. Une partie de ces radiations atteignant la surface de la Terre, interagit avec le cristal de Ge contribuant ainsi au bruit de fond du détecteur. Le couplage avec un veto anti-cosmique permet de réduire ou de supprimer la contribution des rayonnements cosmiques dans le bruit de fond.

Les énergies supérieures à 1000 keV engendrent la création d'un fond Compton où le signal de provenance des radioéléments est noyé dans le bruit de fond, entraînant une détérioration de la limite de détection. L'emploi d'un anti-Compton va permettre de diminuer la contribution du fond Compton dans le but d'améliorer le rapport signal sur fond (quelques mBq/kg contre Bq/kg actuellement). Cet anti-Compton apportera une amélioration certaine aux problèmes liés aux mesures environnementales et aux démantèlements des centrales nucléaires.

La dernière partie de cette thèse a concerné l'utilisation de la spectrométrie γ in situ pour la caractérisation radiologique. Cette méthode est de plus en plus employée pour la cartographie de la radioactivité des sites. La répartition des photons surfaciques et volumiques, la composition du sol et l'impact de l'humidité sur l'efficacité de détection ont été étudiés à l'aide du code MCNPX. L'effet de la composition influence l'aire des pics d'absorption totale pour les énergies de photons inférieures à 100 keV. Plus l'épaisseur du sol est importante, plus les photons détectés proviennent de la zone

proche du détecteur. Pour une profondeur minimale de sol de 10 cm et pour un rayon allant de 0 à 10 m, environ 92% des photons sont détectés contre 8% au-delà de 10 m. L'impact d'une humidité de 5% entraîne une perte d'efficacité d'environ 9%. A partir de 40%, cette perte devient trop importante environ 79%, ce qui influence fortement la détermination correcte des activités des différents radionucléides.

Deux expertises ont été réalisées. La première était autour du CNPE de Dampierre, pour laquelle les activités du ^{137}Cs et des radionucléides naturels dans les terrains remaniés et non remaniés ont été déterminées. Pour évaluer les activités liées au ^{137}Cs , trois épaisseurs de sol ont été modélisées surfacique, 5 cm et 20 cm par type de terrain. Les activités moyennes du ^{137}Cs obtenues sont $(3,7 \pm 0,1)$ Bq/kg pour une profondeur de 5 cm et $(2,5 \pm 0,1)$ Bq/kg pour un sol de 20 cm. N'ayant pas d'historique sur la nature des sols, une profondeur de sol de 20 cm a été retenue. Ainsi les activités moyennes des radionucléides naturels pour le site de Dampierre sont de (596 ± 5) Bq/kg pour le ^{40}K , de $(30 \pm 0,4)$ Bq/kg pour le ^{232}Th et de $(27 \pm 0,3)$ Bq/kg pour le ^{226}Ra .

Une comparaison entre les activités du ^{40}K , du ^{226}Ra et ^{232}Th en France avec celles de l'Europe de l'ouest et mondiale a été établie. Les valeurs moyennes pour ces radionucléides sont respectivement pour la France de (624 ± 17) Bq/kg pour le ^{40}K , de (39 ± 1) Bq/kg pour le ^{226}Ra et de $(29 \pm 0,7)$ Bq/kg pour ^{232}Th obtenues à partir de ce travail. Pour l'Europe de l'ouest, les activités moyennes sont de 493 Bq/kg pour le ^{40}K , de 35 Bq/kg pour le ^{226}Ra et de 32 Bq/kg pour le ^{232}Th . Les résultats de la France sont supérieurs de 23% et de 17% pour le ^{40}K et le ^{232}Th par rapport aux résultats mondiaux sauf pour l'activité du ^{226}Ra qui est inférieure de 9%.

La deuxième expertise a été effectuée pour la société CRISTAL. Les analyses de trois Big-Bag contenant des résidus de boue de dioxyde de titane des tuyauteries ont révélé la présence de radioactivité naturelle renforcée en provenant des radionucléides naturels des familles du ^{232}Th et de ^{238}U mais l'absence de radioéléments artificiels. Les résidus à radioactivité naturelle renforcée sont des résidus provenant de la transformation de matière première ayant naturellement des radioéléments. Il s'avère que les résultats des activités obtenues sont en dessous de la limite définie par la société SITA chargée du traitement des déchets. Les limites fixées par cette société sont de 1 Bq/g pour le ^{232}Th et de 5 Bq/g pour ^{238}U . Après analyses, il en résulte que les activités des radionucléides de ces résidus de boue ne dépassent pas les limites. Les Big Bag pourront être ainsi évacués et stockés.

Une étude complémentaire a consisté à prélever des échantillons dans ces résidus et à les analyser en laboratoire selon la procédure mise en place. Après différentes préparations, ils ont été conditionnés dans la nouvelle géométrie du conteneur FP80. Les différentes mesures ont montré la variabilité de l'activité mesurée lié à la non uniformité de la répartition des radioéléments dans les échantillons prélevés, ainsi la spectrométrie γ in situ est à privilégier car elle permet de prendre en compte la moyenne des activités.

Le travail accompli sur la spectrométrie γ in situ sera utilisé en 2014 pour les tests d'inter-comparaison programmés par l'IRSN.

Une campagne de mesures autour du CNPE de Blayais est prévue en juin 2014 dans le cadre du bilan décennal. Ce CNPE est implanté sur la commune de Braud-et-Saint-Louis (33) à mi-chemin entre Bordeaux et Royan. Les activités du ^{137}Cs et des radioéléments naturels seront à déterminer.

Bibliographie

- [1] C. Samuelsson, «Radiation at home, outdoors and in the workplace», Oslo, 2001.
- [2] C. Jimonet et H. Métivier, «Principes de radioprotection-réglementaires», Collection EDP Sciences, 2009.
- [3] E. Picard, «La vie et l'œuvre de Paul Villard et de Georges Gouy», vol. 63, pp. 1, 1941.
- [4] K. Siegbain, «Alpha-, Beta- and gamma-ray spectroscopy», vol.1, North-Holland publishing company Amsterdam, 1965.
- [5] W. Research, Mathematica, version 9.
- [6] C. Bourgeois, «Interaction particules-matière» *Technique de l'Ingénieur traité Sciences fondamentales AF 3530*.
- [7] NIST-XCOM, <http://physics.nist.gov/PhysRefData/Xcom/html/xcom1.html>.
- [8] M. Manaa, «Etude de la purification d'un matériau par fusion-solidification « Zone melting » », Thèse en mécanique, Ecole Polytechnique, 2005.
- [9] G. L. Petit et G. Granier, «Spectrométrie gamma appliquée aux échantillons de l'environnement», Tec & Toc, 2002.
- [10] CANBERRA, «Genie 2000 - Logiciel de Spectrométrie version 3.2».
- [11] NF ISO 18589-3, «Mesurage des la radioactivité dans l'environnement-Sol-, Partie 3 : Mesurage des radionucléides émetteurs gamma» AFNOR, 2007.
- [12] NF ISO 11929, «Détermination des limites caractéristiques (seuil de décision, limite de détection et extrémités de l'intervalle de confiance) pour mesurages de rayonnements ionisants» AFNOR, 2010.
- [13] L. Currie, «Limits for qualitative detection and quantitative determination, Application to radiochemistry» *Analytical Chemistry*, vol. 40, n°13, pp. 586-593, 1968.
- [14] M. Lépy, J. Plangnard, J. Moune, E. Verdeau et F. Damoy, «La spectrométrie de photons au LNHB: Principes et applications» 2008.
- [15] S. Dziri, A. Nourreddine, A. Sellam, A. Pape et E. Baussan, «Simulation approach to coincidence summing in γ -ray spectrometry» *Applied Radiation and Isotopes*, vol. 70, pp. 1141-1144, 2012.
- [16] N. H. Cutshall, I. L. Larsen et C. R. Olsen, «Direct analysis of ^{210}Pb in sediment samples: Self-

- absorption corrections» *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, vol. 206, pp. 309, 1983.
- [17] J. Bolivar, R. Garcia-Tenorio et M. Garcia-Leon, «A method for the determination of counting efficiencies in γ -spectrometric measurements with HPGe detectors» *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, vol. A, n°1382, pp. 495-502, 1996.
- [18] F. L. Melquiades et C. R. Appoloni, «Self-absorption correction for gamma spectrometry of powdered milk samples using Marinelli beaker» *Applied Radiation and Isotopes*, vol. 55, n°15, pp. 697–700, 2001.
- [19] A. Nachab, A. Nourreddine, M. Benjelloun, S. Kihel, D. Oster et A. Pape, «Uranium analysis of sediments by γ -ray spectrometry with corrections for self-absorption» *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Material*, vol. 215, n°11-2, pp. 228-234, 2004.
- [20] E. Robu et C. Giovani, «Gamma-ray self-attenuation corrections in environmental samples» *Romanian Reports in Physics*, vol. 61, n°12, pp. 295–300, 2009.
- [21] R. Misiak, R. Hajduk, M. Stobinski, M. Bartyzel, K. Szarlowicz et B. Kubica, «Self-absorption correction and efficiency calibration for radioactivity measurement of environmental samples by gamma-ray spectrometry» *NUKLEONIKA*, vol. 56, n°11, pp. 23–28, 2011.
- [22] R. Nowotny, *XMudat: Photon attenuation data on PC. IAEA-NDS-195 IAEA*, Vienna, 1998.
- [23] C. Media, *Manual GESPECOR*, version 4.2, 2007.
- [24] E.Gasser, A.Nachab, A.Nourreddine, C.Roy et A.Sellam, «Etude des effets de matrice sur l'auto-absorption gamma : applications aux mesures environnementales» *Proceeding-Journées des Jeunes Chercheurs*, pp. 15, 2 au 8 décembre 2013.
- [25] NF ISO/CEI, «Essais d'aptitude des laboratoires par intercomparaison - Partie 1: Développement et mise en oeuvre de systèmes d'essais d'aptitude» 1997.
- [26] S. Dziri, «Etudes expérimentales et simulations Monte Carlo en spectrométrie gamma : Correction des effets de cascade et de matrice pour des mesures environnementales», Thèse en physique subatomique, Université de Strasbourg, 2013.
- [27] BEIR IV, «Committee on Health Risks of Exposure to Radon» 2007.
- [28] «Décret n° 2002-460 du 4/04/02 relatif à la protection générale des personnes contre les dangers des rayonnements ionisants» NOR: MESX0200020DA, <http://www.legifrance.gouv.fr>.
- [29] «Décret n°2003-296 du 31 mars 2003 relatif à la protection des travailleurs contre les dangers des rayonnements ionisants,» NOR: SOCX0200138D, <http://www.legifrance.gouv.fr>.
- [30] CIPR, *The 2007 Recommendations of the International Commission on Radiological Protection*, Publication 103, Elsevier, 2007.

- [31] IRSN, « La radioprotection des travailleurs, Exposition professionnelle aux rayonnements ionisants en France : bilan 2010».
- [32] Rapport DRPH/DIR n°2010-1, « Guide pratique pour l'étude de poste de travail (version 2) 10/49» 2010.
- [33] IRSN, «Rayonnements ionisants et santé» Collection Livrets des professionnels, 2004.
- [34] E. Hamilton, «The relative radioactivity of building materials» *American Industrial Hygiene Association Journal*, vol. 32, n° 16, 1971.
- [35] A. Alaamer, «Measurement of Natural Radioactivity in Sand Samples Collected from Ad-Dahna Desert in Saudi Arabia» *World Journal of Nuclear Science and Technology*, vol. 2, pp. 187-191, 2012.
- [36] UNSCEAR, «Sources and Effects of Ionizing Radiation», United Nation Scientific on the Effects of Atomic Radiation Committee , New York, 2000.
- [37] NF ISO 18589-2, «Mesurage de la radioactivité dans l'environnement -Sol Partie 2 : Lignes directrices pour la sélection de la stratégie d'échantillonnage, l'échantillonnage et le prétraitement des échantillons», AFNOR, 2008.
- [38] F. Khan, «The physics of radiation therapy (4th ed.) », Lippincott Williams & Wilkins, 2010.
- [39] E. Krisiuk, S. Tarasov, V. Shamov, N. Shalk, E. Lisachenkov et L.G. Gomelsky, «A study of radioactivity in building materials» *Research Institue for Radiation Hygiene*, 1971.
- [40] J. Beretka et P.J. Matthew, «Natural radioactivity of Australian building materials, industrial wastes and by-products» *Health Physics*, vol. 48, n° 11, pp. 87, 1985.
- [41] D. Amrani et M. Tahtat, «Natural radioactivity in Algerian building materials» *Applied Radiation and Isotopes*, vol. 54, n° 14, pp. 687-689, 2001.
- [42] F. Otoo, O. Adukpo, E. Darko, G. Emi-Reynolds, A. Awudu, H. Ahiamadjie, J. Tandoh, F. Hasford, S. Adu et O. Gyampo, «Assessment of natural radioactive materials in building materials used along the coast of central region of Ghana» *Research Journal of Environmental and Earth Sciences*, vol. 3, n° 13, pp. 261-268, 2011.
- [43] H. Johns et J. Cunningham, «The physics of radiology (4th ed.) », Springfield: Charles C. Thomas, 1983.
- [44] M. Tufail, Nasim-Akhta et M. Waqar, «Measurement of terrestrial radiation for assessment of gamma dose from cultivated and barren saline soils of Faisalabad in Pakistan» *Radiation Measurements*, vol. 41, pp. 443-451, 2006.
- [45] A. El-Taher, S. Makluf, A. Nossair et A. Halim, «Assessment of natural radioactivity levels and radiation hazards due to cement industry» *Applied Radiation and Isotopes*, vol. 68, pp. 169-174, 2010.

- [46] K. Wesche, «Fly Ash in Concrete: Properties and performance», E & FN Spon, 1991.
- [47] R. Krieger, «Radioactivity of construction materials» *Betonwerk und Fertigteil-Technik*, vol. 47, pp. 468-473, 1981.
- [48] OECD, «Exposure to radiation from the natural radioactivity in building materials», Organization of Economic Cooperation and Development, 1979.
- [49] S. Dziri, A. Nachab, A. Nourreddine, A. Sellam et D. Gelus, «Experimental dans simulated effective dose for some building materials in France» *World Journal of Nuclear and Technology*, vol. 3, pp. 41-45, 2013.
- [50] A. El-Taher, «Assesment of natural radioactivity levels and radiation hazards for building materials used in Qassim area, Saudi Arabia» *Romanian Journal of Physics*, vol. 57, pp. 726-735, 2012.
- [51] E. Straden, «Some aspects on radioactivity of building materials» *Physicy Norvegica*, vol. 8, n°3, 1976.
- [52] R. Hewamanna, C. S. Sumithrarachch, P. Mahawatte, H. L. Nanayakkara et H. C. Ratnayake, «Natural radioactivity and gamma dose Sri Lankan clay bricks used in building construction» *Applied Radiation and Isotopes*, vol. 54, n°12, pp. 365-369, 2001.
- [53] Euratom Directive 96/29, «Directive 96/29/Euratom du Conseil du 13 mai 1996 fixant les normes de base relatives à la protection sanitaire de la population et des travailleurs contre les dangers résultant des rayonnements ionisants» Journal officiel de l'Union européenne n°L-159 du 29 juin 1996.
- [54] L. Koblinger, «Calculation of exposure rates from gamma sources in walls of dwelling rooms» *Health Physics*, vol. 34, pp.459-463, 1978.
- [55] Y. Orgun, N. Altinsoy, S. Sahin, Y. Gungor, A. Gultekin, G. Karahan et K. Z, «Natural and anthropogenic radionuclides in rocks and beach sands from Ezine region (Canakkale), Western Anatolia, Turkey» *Applied Radiation and Isotopes*, vol. 65, pp. 739-747, 2007.
- [56] O. Baykara, S. Karatepe et M. DOgru, «Assessments of natural radioactivity and radiological hazards in construction materials used in Elazig, Turkey» *Radiation Measurements*, vol. 46, pp. 153-158, 2011.
- [57] R. Ravisankar, A. Cahndrasekaran, P. Vijayagopal, B. Venkatraman, G. Senthilkumar, P. Eswaran et A. Rajalakshmi, «Natural radioactivity in soil samples of Yelagiri Hills, Tamil Nadu, India and the associated radiation hazards» *Radiation Physics and Chemistry*, vol. 81, pp. 1789-1795, 2012.
- [58] Nucleide-Lara. Les rapports d'embranchement pour la chaîne ^{226}Ra datent de 2008 et ceux de la chaîne du ^{232}Th de 2009. Pour ^{40}K , en 2009, <http://laraweb.free.fr/>.
- [59] USNRC, «Natural and man-made radiation sources», United States National Radiological Commission, New-York: United Nations, 2010.

- [60] E. Stranden, «Radioactivity in building materials and the gamma radiation in dwellings» *Physics in Medicine and Biology*, vol. 24, pp. 921-930, 1979.
- [61] R. Mustonen, «Methods for evaluation of radiation from building materials» *Radiation Protection Dosimetry*, vol. 7, n°1(1/4), pp. 235-238, 1984.
- [62] N. Ahmad, A. Hussein et A. Aslam, «Radiation doses in Jordanian dwellings due to natural radioactivity in construction materials and soil» *Journal of Environment Radioactivity*, vol. 41, n°12, pp. 127-136, 1998.
- [63] M. Maduar et G. Hiromoto, «Evaluation of indoor gamma radiation dose in dwellings» *Radiation Protection Dosimetry*, vol. 111, n° 12, pp. 221-228, 2004.
- [64] E. Gasser, A. Nachab, A. Nourreddine, C. Roy, A.Sellam et D. Gelus, «Natural radioactivity and effective dose assessment for some Moroccan building materials» *Accepté pour publication - Revue Radioprotection SFRP- référence 130069*, 2014.
- [65] C. Lederer, J. Hollander et I. Perlman, *Table of Isotope*, 6ème édition, John wiley & Sons, 1967.
- [66] NF M 60-810, «Mesure des radionucléides du sol par spectrométrie gamma in situ dans l'environnement» 2006.
- [67] E. Gasser, A. Nachab, A. Nourreddine et C. Roy, «Update of 40K and 226Ra and 232Th series γ -to-dose conversion factors for soil» *Soumis pour publication au Journal of Environmental Radioactivity*, 2014.
- [68] ICRU, «Gamma-Ray Spectrometry in the Environment» International Commission on Radiation Units and Measurements, 1994.
- [69] H. Beck, J. DeCampo et C. Gogolak, «In situ Ge(Li) and NaI(Tl) gamma-ray spectrometry for the measurement of environmental radiation» USAEC Report HASL-258, 1972.
- [70] K. Saito et P. Jacob, «Gamma ray fields in the air due to sources in the ground» *Radiation Protection Dosimetry*, vol. 58, pp. 29-45, 1995.
- [71] CANBERRA, «FALCON,» http://www.canberra.com/products/hp_radioprotection/pdf/Falcon-SS-C38597.pdf.
- [72] IRSN, «Cartographie des retombées radioactives de l'accident de Tchernobyl en France : présentation comparée de différentes approches» http://www.irsn.fr/FR/Larecherche/Organisation/Conseil_scientifique/Documents/cartographie_retombees_accident_tchernobyl_france.pdf.
- [73] SITA - SUEZ ENVIRONNEMENT France, <http://www.sita.fr/fr/sita/>.
- [74] CRISTAL, 2009, www.cristal.com/about-us/Documents/Thann_FR_6_15.pdf.

Résumé

La spectrométrie γ dose en une seule mesure tous les émetteurs γ dans un échantillon. L'auto-absorption des rayonnements γ dans des échantillons se manifeste par des pertes ou des gains d'impulsions. Pour caractériser une nouvelle géométrie de comptage, des améliorations du dispositif existant ont été apportées par des simulations MCNPX. Avec ce nouveau dispositif nous avons pu spécifier les doses absorbées et efficaces annuelles ainsi que les facteurs de conversion de dose des radioisotopes naturels pour des matériaux de construction et des prélèvements de sols. Des simulations ont montré l'influence des seuils de détection des rayonnements γ donc sur les facteurs de conversion de dose et la nécessité d'une mise à jour de ces facteurs. L'analyse par spectrométrie γ in situ du sol fait appel à des efficacités de détection simulées par MCNPX pour une source aux dimensions semi-infinies. Une application a été réalisée autour d'une centrale nucléaire et une autre pour une société.

Mots clés : Spectrométries γ au laboratoire et in situ, auto-absorption, radioprotection, radium équivalent, dose absorbée, dose efficace annuelle, facteur de conversion de dose, simulations MCNPX.

Abstract

γ -ray spectrometry enables determining all γ -ray emitters in a sample with a single measurement. Self-absorption of γ -rays in samples is manifest by a loss or a gain of pulses that results in a poor estimation of the counting efficiency. To characterize a new counting geometry improvements of the existing set-up were made with MCNPX simulations. With the new geometry we could specify absorbed and annual effective doses as well as dose conversion factors for the natural radioisotopes of several building materials and soil samples. Simulations show the influence of detection limits of γ -radiation on dose conversion factors and the need for updating these factors. γ -ray measurements of soil in situ require different counting efficiencies simulated by MCNPX for a semi-infinite source. Two in-situ soil analyses were made, one around a nuclear power and the other for a private company.

Keywords: Laboratory and in situ γ -ray spectrometry, self-absorption, radioprotection, radium equivalent, absorbed dose, annual effective dose, dose conversion factor, MCNPX simulations.