

# Développement d'une méthode analytique pour quantifier par spectrométrie gamma in-situ les radionucléides présents dans les sols.

**Mickael LEMERCIER**

Décembre 2007

ISRN/IRSN-2008/94

Laboratoire de Mesure de la Radioactivité de l'Environnement



Système de management  
de la qualité IRSN certifié

# THESE

Présentée à

**L'université de PARIS XI**

Ecole doctorale Rayonnements et environnement

par

***Mickael LEMERCIER***

POUR OBTENIR LE GRADE DE

**DOCTEUR**

SPECIALITE : Instrumentations et Simulation Monte Carlo

---

**Développement d'une méthode analytique pour quantifier  
par spectrométrie gamma *in-situ* les radionucléides présents  
dans les sols.**

---

**Soutenu le :** 14 décembre 2007

**Après les avis de :**

- M. FRANCK Didier
- M. HUBERT Philippe

**en qualité de rapporteurs**

**Devant la commission d'examen formée de :**

- M. BERTHIER Bernard                      IPNO, président de Jury
- M. FRANCK Didier                          IRSN, rapporteur
- M. GUILLOT Ludovic                      CEA, examinateur
- M. GURRIARAN Rodolfo                  IRSN, encadrant de thèse
- M. HUBERT Philippe                      CENBG, rapporteur
- M. NOURREDDINE AbdelMjjid          IPHC, directeur de thèse

## *Remerciements*

Je tiens à remercier Monsieur B. Berthier pour m'avoir fait l'honneur de présider le jury de cette thèse. Je lui adresse également tous mes remerciements pour m'avoir permis de soutenir dans de bonnes conditions malgré la coupure électrique générale de l'université le matin même.

Je remercie Messieurs D. Franck et Ph. Hubert d'avoir examiné avec soin mon travail en qualité de rapporteurs. Ils ont contribué à l'amélioration de la compréhension de certains points difficiles de ce manuscrit. Je remercie Monsieur L. Guillot pour avoir accepté d'examiner mes travaux de thèse ainsi que pour sa présence à ce jury et pour sa reconnaissance du travail en tant que spécialiste du sujet.

Je remercie Monsieur M. Nourreddine d'avoir été mon directeur de thèse et également d'avoir été à l'origine de ma candidature à cette thèse à l'IRSN.

Je remercie Monsieur P. Bouisset et Monsieur R. Gurriaran pour m'avoir accueilli au sein de ce laboratoire. J'adresse tout particulièrement mes sincères remerciements à ce dernier pour avoir dirigé ce travail durant ces trois années. Leurs conseils, leurs remarques pertinentes et leur soutien scientifique ont été formateurs et bienvenus dans l'avancée de ces travaux.

Je remercie également toutes les personnes de l'équipe gamma du laboratoire LMRE : Xavier, Aline, Sébastien, Djamel, Anne et également toutes les personnes présentes au laboratoire pendant ces trois années de travail pour leur bonne humeur.

Enfin, je terminerai par remercier en particulier une personne qui m'est très chère pour sa présence, sa patience et son soutien tout au long de ce travail.



<b>INTRODUCTION.....</b>	<b>1</b>
<b>1. LA SPECTROMETRIE GAMMA DANS L'ENVIRONNEMENT .....</b>	<b>6</b>
<b>1.1. L'HISTORIQUE .....</b>	<b>6</b>
<b>1.2. LA METHODE D'ANALYSE CLASSIQUE.....</b>	<b>9</b>
<b>1.3. LES METHODES D'ANALYSE RECENTES .....</b>	<b>13</b>
<b>1.4. LA PROBLEMATIQUE .....</b>	<b>15</b>
1.4.1. EURADOS 2002.....	15
1.4.2. ISIGAMMA 2005.....	16
<b>1.5. LA THEORIE MISE EN JEU.....</b>	<b>19</b>
1.5.1. Les interactions photon matière.....	19
1.5.2. Les sections efficaces, les domaines de prépondérance.....	24
1.5.3. L'atténuation du rayonnement.....	27
1.5.4. Quelques éléments de compréhension d'un spectre in-situ.....	28
<b>2. LE DEVELOPPEMENT DE L'OUTIL MONTE CARLO.....</b>	<b>34</b>
<b>2.1. L'OUTIL DE SIMULATION MONTE CARLO.....</b>	<b>34</b>
<b>2.2. LA SIMULATION D'UN CRISTAL DE GE, PROCESSUS MIS EN JEU .....</b>	<b>37</b>
2.2.1. Répartition des interactions en fonction de l'énergie incidente.....	37
2.2.2. Répartition des interactions en fonction de la profondeur.....	38
2.2.3. Répartition du dépôt d'énergie en fonction de l'énergie incidente.....	41
<b>2.3. LA MODELISATION DU DETECTEUR .....</b>	<b>43</b>
2.3.1. Le modèle du détecteur Hannibal.....	43
2.3.2. Validation du modèle Monte Carlo.....	44
<b>2.4. LA MODELISATION DU FLUX INCIDENT .....</b>	<b>48</b>
2.4.1. Les radionucléides naturels et artificiels.....	48
2.4.2. La conception d'un modèle simplifié.....	49
<b>2.5. LA BASE DE DONNEES .....</b>	<b>53</b>
2.5.1. Le principe.....	53
2.5.2. La simulation d'une distribution exponentielle.....	57
<b>LA CONVOLUTION DES MODELES .....</b>	<b>61</b>
<b>3. EXPLOITATION : COMPREHENSION DU SPECTRE IN-SITU.....</b>	<b>68</b>
<b>3.1. L'ORIGINE ET LE PARCOURS DES PHOTONS.....</b>	<b>68</b>
3.1.1. Rayon et profondeur d'origine.....	69
3.1.2. La hauteur.....	72
<b>3.2. LES PARAMETRES DE LA MESURE.....</b>	<b>75</b>
3.2.1. La densité du sol.....	75
3.2.2. La composition du sol.....	76
3.2.3. L'humidité du sol.....	77
3.2.4. La distribution exponentielle des radionucléides artificiels.....	79
<b>3.3. ETUDES DES DIFFERENTES COMPOSANTES D'UN SPECTRE IN-SITU .....</b>	<b>82</b>
3.3.1. Les paramètres de simulation.....	82
3.3.2. La composante des chaînes naturelles.....	84

3.3.3.	<i>La composante des autres radionucléides présents</i> .....	86
3.3.4.	<i>La composante des rayonnements cosmiques</i> .....	87
3.3.5.	<i>Le bruit de fond intrinsèque</i> .....	88
<b>3.4.</b>	<b>COMPARAISON SIMULATION ET MESURE IN-SITU</b> .....	<b>90</b>
3.4.1.	<i>Caractéristiques du site d'ORSAY</i> .....	90
3.4.2.	<i>Comparaison</i> .....	91
<b>4.</b>	<b>EXPLOITATION : PREVISION DES EFFETS D'UNE CONTAMINATION</b> .....	<b>98</b>
<b>4.1.</b>	<b>LES FACTEURS DE DOSE</b> .....	<b>98</b>
4.1.1.	<i>Facteurs de dose monoénergétiques</i> .....	99
4.1.2.	<i>Facteurs de dose in-situ</i> .....	100
<b>4.2.</b>	<b>LA METHODE DE DECONVOLUTION D'UN SPECTRE</b> .....	<b>102</b>
4.2.1.	<i>La problématique d'EURADOS 2002</i> .....	102
4.2.2.	<i>Stripping method</i> .....	103
<b>4.3.</b>	<b>LA MESURE DU RAYONNEMENT COSMIQUE</b> .....	<b>108</b>
<b>4.4.</b>	<b>LA COMPREHENSION DES SPECTRES D'ISIGAMMA 2005</b> .....	<b>110</b>
<b>4.5.</b>	<b>LA METHODE « PEAK-TO-VALLEY »</b> .....	<b>113</b>
4.5.1.	<i>L'utilisation de la modélisation</i> .....	113
4.5.2.	<i>La détermination de la profondeur d'une source</i> .....	114
4.5.3.	<i>La détermination de la distribution de <sup>137</sup>Cs à Orsay</i> .....	116
<b>5.</b>	<b>CONCLUSION ET PERSPECTIVES</b> .....	<b>119</b>
<b>REFERENCES</b>	.....	<b>123</b>
<b>ANNEXE 1</b>	.....	<b>128</b>
<b>ANNEXE 2</b>	.....	<b>133</b>
<b>ANNEXE 3</b>	.....	<b>136</b>
<b>ANNEXE 4</b>	.....	<b>143</b>
<b>ANNEXE 5</b>	.....	<b>146</b>
<b>ANNEXE 6</b>	.....	<b>149</b>
<b>ANNEXE 7</b>	.....	<b>156</b>

# Introduction

Cette thèse s'est déroulée au sein du Laboratoire de Mesure de la Radioactivité dans l'Environnement (LMRE) de l'Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire (IRSN) à Orsay. Les travaux de recherche de ce travail concernent le développement d'une méthode analytique par simulation Monte Carlo afin

- de quantifier par spectrométrie gamma *in-situ* les radionucléides présents dans les sols,
- de comprendre les phénomènes physiques mis en jeu avant et pendant la détection,
- d'améliorer et de compléter les résultats rendus, suite à l'analyse des spectres.

La spectrométrie gamma en laboratoire nécessite plusieurs semaines de préparation et de mesure. Elle est généralement réalisée sur quelques centaines de grammes d'échantillon issu de prélèvement. En comparaison, la spectrométrie gamma *in-situ* offre un outil d'analyse performant pour effectuer des mesures environnementales sur site et la possibilité d'obtenir un résultat rapide (quelques dizaines de minutes) avec une bonne statistique car, en effet, l'échantillon lors d'une mesure *in-situ*, fait plusieurs tonnes.

Ces avantages non négligeables font de la spectrométrie gamma *in-situ* un outil de plus en plus utilisé de nos jours, soit pour les mesures de caractérisation environnementale d'un site, soit pour les mesures de démantèlement d'installations nucléaires. C'est un outil opérationnel à l'heure actuelle mais qui, au cours d'intercomparaisons internationales, a donné des résultats différents des résultats cibles. C'est dans ce cadre de compréhension de la physique et d'amélioration de l'analyse que se situe ce travail de thèse.

Le premier chapitre décrit l'évolution de la spectrométrie gamma *in-situ* depuis son apparition : le développement des détecteurs, le principe de mesure *in-situ* et l'évolution du principe d'analyse. Au cours de l'intercomparaison EURADOS 2002, le résultat erroné d'une mesure simple identique à celle d'un étalonnage a montré les limites d'une analyse classique. Cet exercice a montré que la détermination du débit de dose d'une source nécessitait de prendre en compte non plus seulement l'information fournie par le pic d'absorption totale mais également celle fournie dans le fond Compton. L'idée d'utiliser toute l'information présente dans un spectre commençait à se faire sentir. Ce besoin s'est renforcé lors de

l'intercomparaison ISIGAMMA en 2005 dans laquelle des résultats identiques ont été obtenus à partir de spectres ayant un fond Compton totalement différent. Une brève présentation de la physique mise en jeu lors d'une mesure *in-situ* permettra de donner les bases de la compréhension d'un spectre.

La simulation Monte Carlo est un outil qui pourra permettre de comprendre les différents phénomènes mis en jeu lors de la détection *in-situ*. Le chapitre 2 introduit son principe et puis détaille les modèles utilisés. Le modèle du détecteur est présenté dans le contexte du développement de la méthode de déconvolution spectrale (*stripping method*). Cette méthode est développée et validée afin de pallier à la problématique mise en évidence dans l'intercomparaison EURADOS 2002.

Un nouveau modèle de simulation du flux incident sur le détecteur sera développé afin de réduire les temps de calcul prohibitifs du modèle en place. Son étape de validation permettra de calculer les facteurs de conversion de dose nécessaires à l'analyse *in-situ*. La convolution entre le flux incident et le modèle du détecteur est enfin introduite en décrivant au préalable la base de données utilisée comme générateur de flux.

Le chapitre 3 présente la compréhension d'un spectre *in-situ* avec dans un premier temps, la localisation de l'origine des photons incidents jusqu'au détecteur, ensuite l'identification des paramètres de mesure (densité, humidité et composition du sol) influençant la forme du spectre et l'identification des différentes composantes constituant un spectre. Enfin, la comparaison d'un spectre simulé avec des spectres mesurés sur différents sites sera présentée.

Les différents résultats issus de ces modèles de simulation sont présentés dans le dernier chapitre avec le développement de la méthode de déconvolution du spectre effectué pour remédier à la problématique d'EURADOS 2002, et le calcul de facteurs de dose rendus indispensables pour la spectrométrie gamma *in-situ* mais inexistantes dans la littérature. Enfin l'utilisation de la méthode « Peak to Valley » complétée par l'information fournie par la simulation Monte Carlo sera expliquée et utilisée afin de localiser une profondeur de source et de définir la distribution exponentielle de  $^{137}\text{Cs}$  à Orsay.





<b>1. LA SPECTROMETRIE GAMMA DANS L'ENVIRONNEMENT .....</b>	<b>6</b>
<b>1.1. L'HISTORIQUE .....</b>	<b>6</b>
<b>1.2. LA METHODE D'ANALYSE CLASSIQUE.....</b>	<b>9</b>
<b>1.3. LES METHODES D'ANALYSE RECENTES .....</b>	<b>13</b>
<b>1.4. LA PROBLEMATIQUE .....</b>	<b>15</b>
1.4.1. EURADOS 2002.....	15
1.4.2. ISIGAMMA 2005.....	16
<b>1.5. LA THEORIE MISE EN JEU.....</b>	<b>19</b>
1.5.1. Les interactions photons matière .....	19
1.5.2. Les sections efficaces, les domaines de prépondérance .....	24
1.5.3. L'atténuation du rayonnement .....	27
1.5.4. Quelques éléments de compréhension d'un spectre in-situ.....	28

# 1. La spectrométrie gamma dans l'environnement

## 1.1. *L'historique*

La présence de rayonnements ionisants dans l'environnement a été établie quelques années après la découverte de la radioactivité par Henri Becquerel en 1896. En faisant des mesures de ces rayonnements ionisants avec et sans blindage, Rutherford et Cooke (1903) [1] ont émis l'hypothèse que ces rayonnements provenaient de l'environnement. En 1908, McLennan prouve que la majeure partie de ces radiations a comme origine le sol, en observant une diminution de leur intensité sur un lac couvert de glace comparée à celle au dessus d'un sol. Hess, en 1912 [2] accroche des détecteurs à des ballons et mesure l'intensité des radiations en fonction de l'altitude. La diminution attendue avec l'altitude n'est pas mise en évidence, mais au contraire une augmentation pour des altitudes supérieures à 1000 mètres a été observée. Ce comportement a été expliqué par l'existence des rayonnements cosmiques. Depuis ces découvertes pionnières de la radioactivité naturelle, de nombreuses recherches ont été effectuées afin de caractériser chacune des radiations émises dans l'environnement.

Un pas important a été fait par Beck *et al.* en 1966 [3] et 1972 [4] en définissant les pratiques de la mesure *in-situ* et en définissant les méthodes d'analyse et de détermination de l'activité. Cette étude a ensuite été reprise dans le rapport de l'ICRU 53 en 1994 [5] afin d'homogénéiser les pratiques au niveau international pour faire face aux rejets accidentels de la radioactivité et en particulier suite à l'accident de la centrale de Tchernobyl en 1986.

Le développement de matériels et de détecteurs a suivi en parallèle l'évolution de la méthode de mesure.

Les premiers dispositifs pour la détection des rayonnements ionisants étaient des écrans fluorescents et des films photographiques comme par exemple ceux utilisés par Roentgen. Au début du vingtième siècle, trois détecteurs ont été développés et sont encore utilisés de nos jours : la chambre à ionisation, le compteur Geiger-Muller et le compteur proportionnel. Ils sont tous les trois basés sur le principe simple de la mesure du courant résultant (ou impulsion électrique) des paires électron-ion qui sont produites lors d'interactions entre des radiations et le volume sensible du détecteur, principalement du gaz. Ces appareils ont été largement décrits, par exemple par Rossi et Staub en 1949 [6] et Knoll en 1989 [7].

Ces trois types de détecteurs sont toujours utilisés en dosimétrie pour la quantification de la dose totale et du débit de dose total. En 1948, Hofstadter [8] montre que le

crystal de iodure de sodium dopé au thallium (NaI(Tl)) a d'excellentes propriétés de scintillation. Cette découverte, avec le développement d'analyseurs multicanaux (MCA) [9], signe le départ de la spectrométrie gamma moderne. Au cours de la même année, des résultats de mesures avec des systèmes de détection NaI(Tl) apparaissent dans la littérature [10-11].

Les systèmes de spectrométrie de terrain sont développés au cours des années 50 et dans le début des années 60 ; leur usage se généralise avec le développement des MCA à transistor [12, 13, 14, 15]. Aujourd'hui, les systèmes de spectrométrie utilisant des NaI(Tl) sont toujours utilisés pour la spectrométrie gamma *in-situ*.

Par la suite, des détecteurs semi conducteur ont été développés avec le germanium comme matériau principal semi conducteur et dont les premiers ont été produits par processus de dopage au lithium (Ge(Li)) [16]. Comparés aux détecteurs NaI(Tl), les détecteurs Ge(Li) ont une excellente résolution en énergie et permettent donc une meilleure identification des radionucléides. En juillet et septembre 1971, Beck *et al.* [17] et Phelps *et al.* [18] ont procédé aux premières mesures *in-situ* avec des détecteurs Ge(Li). Le principal inconvénient est leur besoin d'être constamment refroidis par de l'azote liquide afin de conserver le lithium correctement distribué. Cette difficulté a été résolue dans le milieu des années 70 lorsque les détecteurs germanium hyper pur (HPGe) ont été développés.

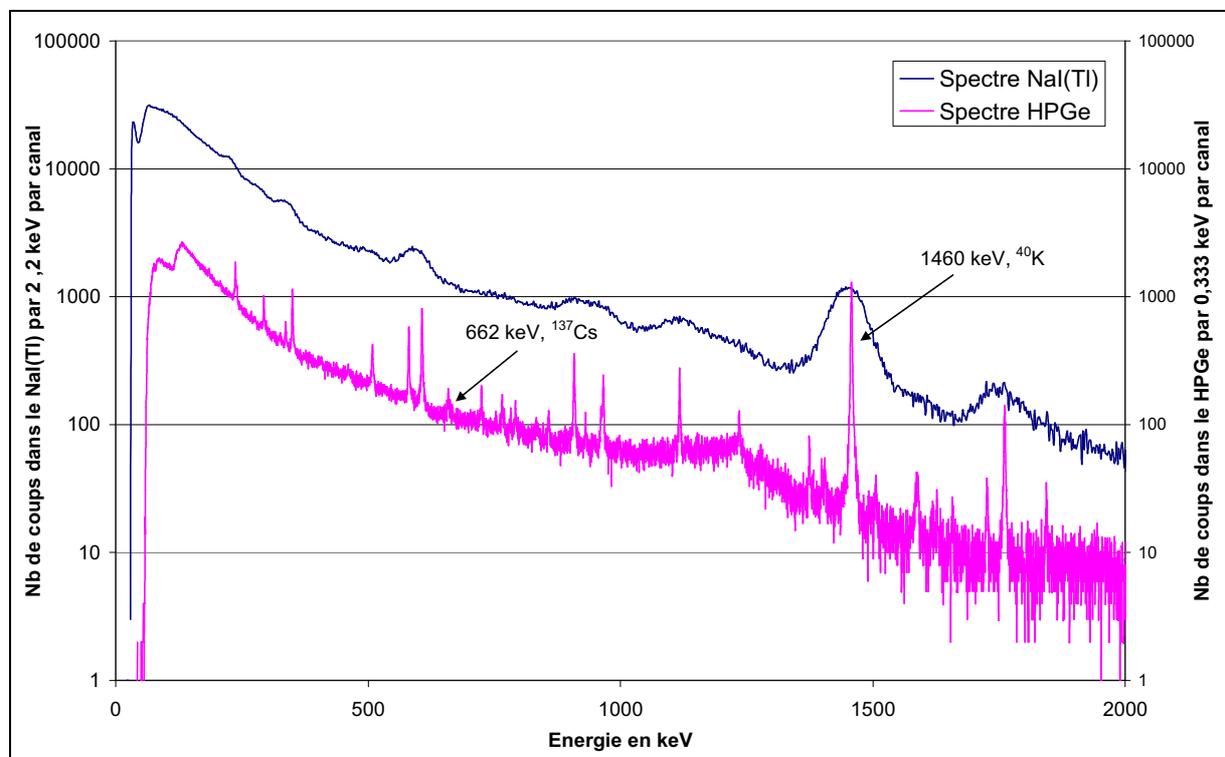


Figure 1.1 : comparaison des spectres *in-situ* de 14 000 s avec un détecteur NaI(Tl) et un détecteur HPGe.

La figure 1.1 compare deux mesures effectuées dans le laboratoire d'Orsay : une mesure a été faite avec un détecteur NaI(Tl) (en bleu) et une seconde avec un détecteur HPGe (en rose). Une nette amélioration de la résolution est remarquée pour le spectre *in-situ* mesuré à l'aide d'un spectromètre HPGe. La présence de pics d'absorption totale plus nombreux permet une meilleure identification des radionucléides.

Ces détecteurs HPGe peuvent être ramenés à température ambiante pour le stockage sans perdre leurs caractéristiques. De nos jours, les mesures de spectrométrie gamma *in-situ* sont généralement réalisées avec des systèmes de détection HPGe.

Aujourd'hui, la spectrométrie gamma *in-situ* est une technique d'analyse éprouvée. Certains pays l'emploient pour la surveillance de leur territoire, pour le contrôle des installations nucléaires [19], en cas d'accident ou en prévention des actes de malveillance [20]. Les opérations d'assainissement industriel suite au démantèlement des installations nucléaires sont une des utilisations en fort développement de ces dernières années. Avec le développement de ces marchés, la méthode est devenue de plus en plus robuste, simplifiée, portable et compacte, au point d'être utilisée de manière routinière dans des opérations douanières [21].

## 1.2. La méthode d'analyse classique

Dans la spectrométrie gamma *in-situ* classique telle que décrite dans l'ICRU 53, le détecteur est placé à un mètre de hauteur au dessus du site à analyser qui doit être plat et dégagé d'obstacles majeurs (figure 1.2). Une mesure complémentaire est effectuée avec une chambre à ionisation afin d'obtenir le débit de dose existant sur le site.

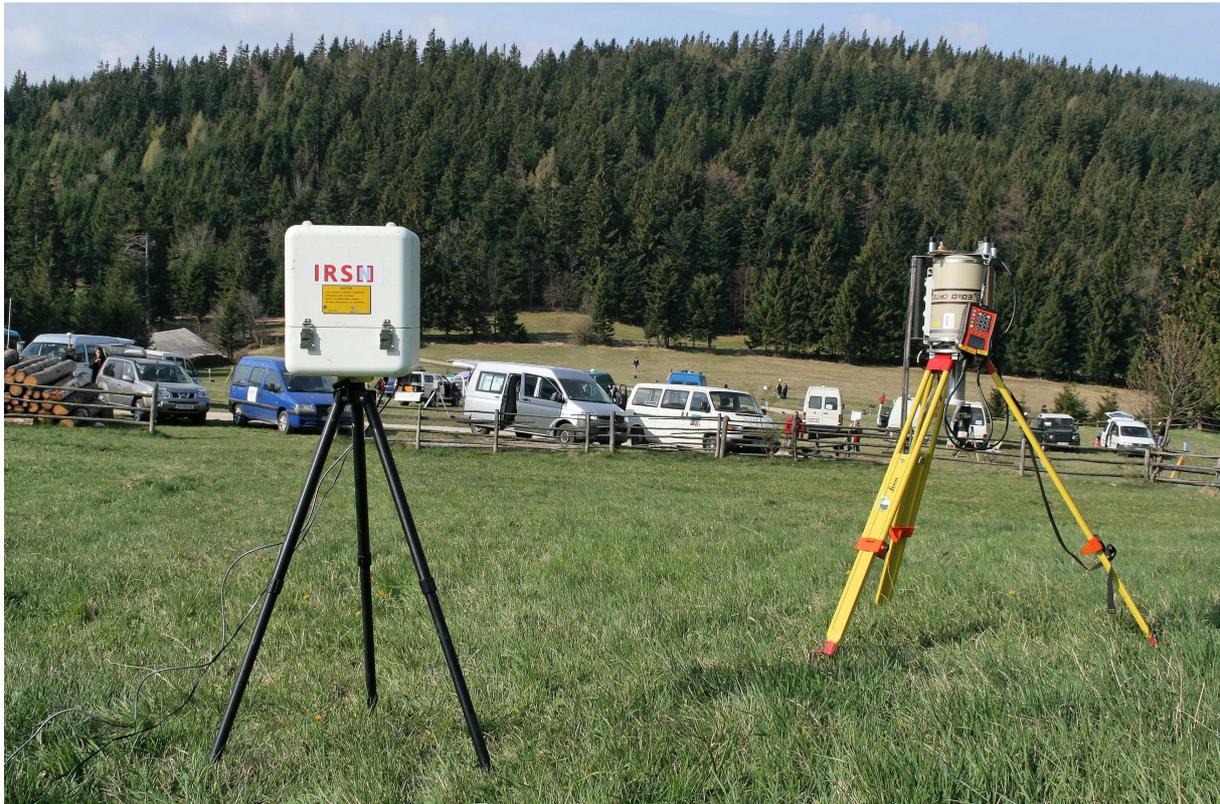


Figure 1.2 : utilisation de la spectrométrie gamma *in-situ* avec le détecteur germanium à droite et la chambre à ionisation à gauche (photo prise lors de l'intercomparaison ISIS 2007).

Les ordres de grandeur du champ de vision du détecteur sont schématisés sur la figure 1.3. La répartition de l'origine des photons détectés par le spectromètre est représentée en cercles concentriques pour un dépôt ancien de  $^{137}\text{Cs}$  : 19 % des photons atteignant le détecteur proviennent d'une distance allant de 0 à 1 mètre, 23 % des photons d'une distance comprise entre 1 et 2 mètres et entre 2 et 4 mètres. Il faut noter que 15 % des photons détectés proviennent d'une distance supérieure à 10 mètres. Ainsi, en considérant une épaisseur de quelques centimètres de profondeur dans la mesure *in-situ*, c'est un échantillon de plusieurs tonnes de terre qui est analysé.

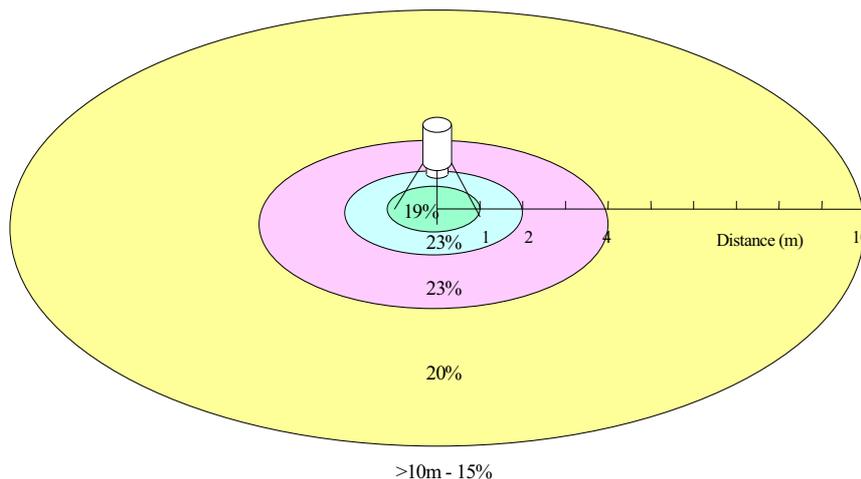


Figure 1.3 : répartition de la contribution des photons arrivant sur le détecteur pour un dépôt ancien de  $^{137}\text{Cs}$  (662 keV).

Les mesures *in-situ* de sol fournissent des résultats comparables en termes de limites de détection à ceux obtenus en laboratoire pour des durées de mesure bien moindres. A noter que la mesure en laboratoire est faite dans une salle blindée bas-bruit protégée du rayonnement cosmique par une dalle de béton boré de 3 mètres d'épaisseur [22]. Le tableau suivant présente la comparaison des caractéristiques de mesures pour des limites de détection similaires obtenues *in-situ* et obtenues dans le laboratoire d'Orsay pour la caractérisation d'un sol en  $^{137}\text{Cs}$ .

	Type de détecteur	Taille de l'échantillon	Durée de mesure (seconde)	Limites de détection ( $\text{Bq.kg}^{-1}$ frais)
<i>In-situ</i>	Type N 50 %	Plusieurs tonnes	3 600	~ 0,5
LMRE (Orsay)	Type N 50 %	400 g	80 000	~ 0,5

Tableau 1.1 : comparaison des paramètres de mesure pour la spectrométrie gamma *in-situ* et en laboratoire pour un résultat identique.

Le tableau met le point sur un avantage sérieux de la mesure *in-situ* par rapport à la mesure en laboratoire, à savoir la taille de l'échantillon et de sa représentativité du terrain : un seul échantillon (prélèvement) de sol peut ne pas être représentatif de l'activité moyenne du sol ce qui implique la nécessité de prélever un nombre important d'échantillons. En comparaison, une seule mesure *in-situ* moyenne les hétérogénéités pouvant être présentes. Enfin, un autre avantage de la mesure *in-situ* est sa rapidité, le résultat est obtenu dès la fin de

la mesure (environ 3 600 s) qu'il faut comparer au temps nécessaire pour l'échantillonnage, la préparation, le conditionnement et enfin la mesure des échantillons en laboratoire. Le rendu du résultat pour les mesures en laboratoire peut prendre plusieurs semaines.

D'un point de vue pratique, la détermination de l'activité en  $^{137}\text{Cs}$  peut être faite en quelques minutes de comptage par la mesure *in-situ*. Il peut être noté que cette limite de détection est très en dessous des niveaux que l'on peut typiquement trouver en France suite aux retombées des essais nucléaires atmosphériques et à l'accident de Tchernobyl (actuellement de quelques  $\text{Bq.kg}^{-1}$ ).

L'utilisation d'hypothèse de distribution de la radioactivité dans le sol lors de l'analyse constitue le principal inconvénient de la spectrométrie gamma *in-situ*. La figure 1.4 schématise le principe de l'analyse *in-situ*.

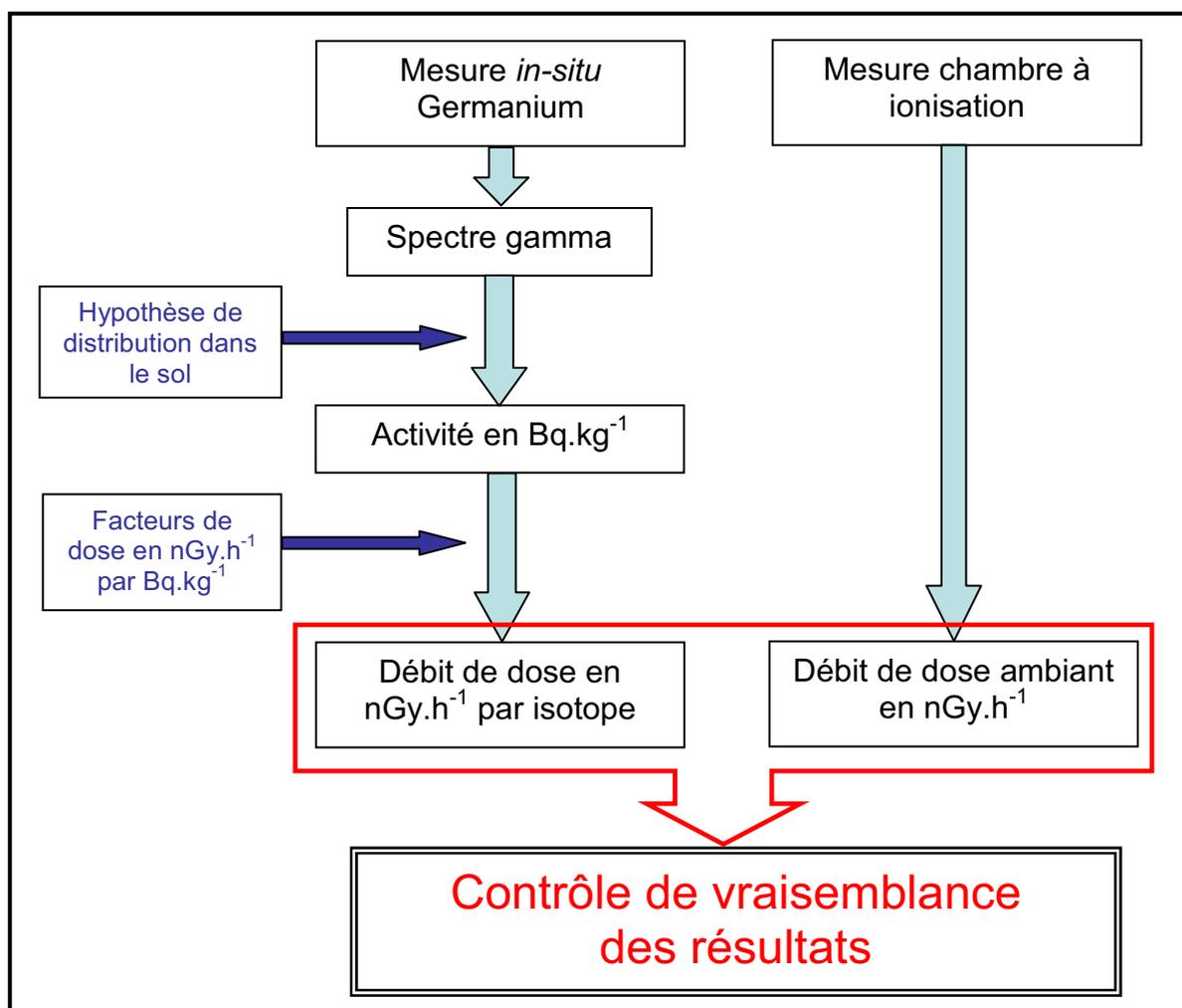


Figure 1.4 : principe d'analyse *in-situ*.

L'activité de chaque radionucléide est déterminée à partir du spectre *in-situ* et plus précisément à partir de l'aire des pics d'absorption totale. Cette détermination utilise l'hypothèse de la distribution de la radioactivité en fonction de la configuration et de l'historique du terrain ainsi que des facteurs d'étalonnage mesurés en laboratoire (annexe 1). Ensuite en appliquant des facteurs de conversion, un avantage majeur de la spectrométrie gamma *in-situ* est de pouvoir déduire le débit de dose par isotope à partir de cette activité (figure 1.4). A partir de la mesure de la chambre à ionisation, le débit de dose ambiant est déterminé. Celui-ci est enfin comparé au débit de dose total calculé à partir du spectre gamma. Cette comparaison permet de vérifier la cohérence de l'hypothèse de distribution utilisée pour l'analyse.

### 1.3. Les méthodes d'analyse récentes

Différentes méthodes ont été proposées pour s'affranchir de l'utilisation de l'hypothèse de distribution. Elles utilisent soit un principe différent de mesure, soit une méthode d'analyse complémentaire à celle utilisée de façon classique.

La figure 1.5 présente les zones d'intérêt du pic  $^{137}\text{Cs}$  pour le calcul du rapport « Peak-to-Valley » dont le principe [23] est d'étudier le rapport entre l'aire du pic d'absorption totale et l'aire C. Cette dernière aire correspond aux photons ayant subi une diffusion Compton dans le sol à faible angle de diffusion, entraînant ainsi une faible perte d'énergie. La détermination de l'aire nette C s'effectue en soustrayant le comptage A du bruit de fond et celui (B) du bruit de fond additionnel produit par le fond Compton hétérogène des photons de plus haute énergie.

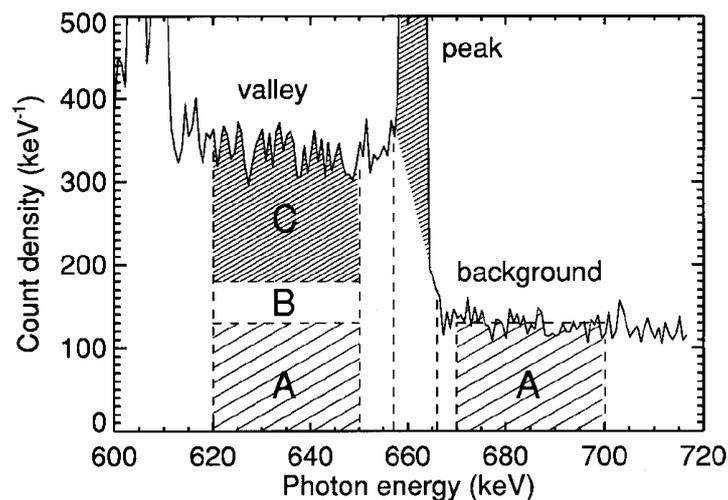
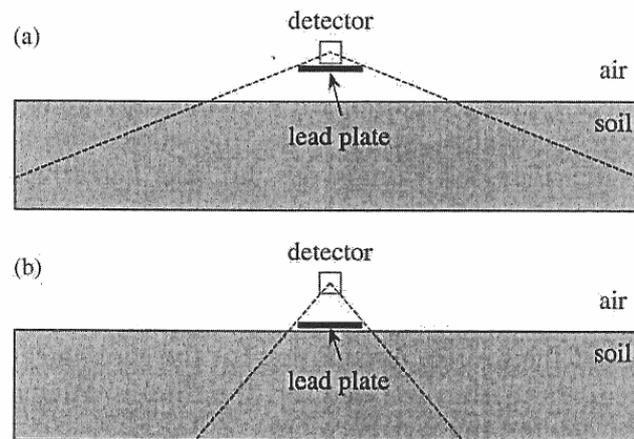


Figure 1.5 : la méthode « Peak to valley » pour  $^{137}\text{Cs}$ . [23]

Il a été montré [24] que le rapport « Peak to Valley » varie en fonction de la profondeur et de la distribution de la source étudiée. Cette méthode d'analyse permet de ne plus utiliser uniquement l'information fournie dans le pic d'absorption totale mais également celle fournie par la zone C.

Une autre méthode, celle de l'étude des pics à des énergies différentes [25], utilise le rapport des taux de comptage de pics issus de même radionucléide. C'est le cas en particulier de l'utilisation du pic de 32 keV et celui de 662 keV pour estimer la profondeur moyenne et la distribution de  $^{137}\text{Cs}$  et également l'activité par unité de surface du radionucléide.

L'utilisation de blindage [26] comme illustré sur la figure 1.6, est une méthode pratique pour s'abstenir de l'utilisation des hypothèses de distribution dans le sol. En effet, le fait de placer un blindage circulaire en dessous du détecteur permet de mesurer les photons émis à partir de différents angles polaires et de profondeur souhaités.



**Figure 1.6 : systèmes de détection avec blindage pour la mesure de zones contaminées. [26]**

Cette méthode permet de déterminer la distribution en fonction de la profondeur de la source et donc de ne plus utiliser d'hypothèses. Un autre avantage de cette mesure est l'utilisation d'un seul pic énergétique pour déterminer la distribution du radionucléide. Son inconvénient est la mise en place du blindage (souvent en plomb) rajoutant du poids au système de mesure.

## 1.4. *La problématique*

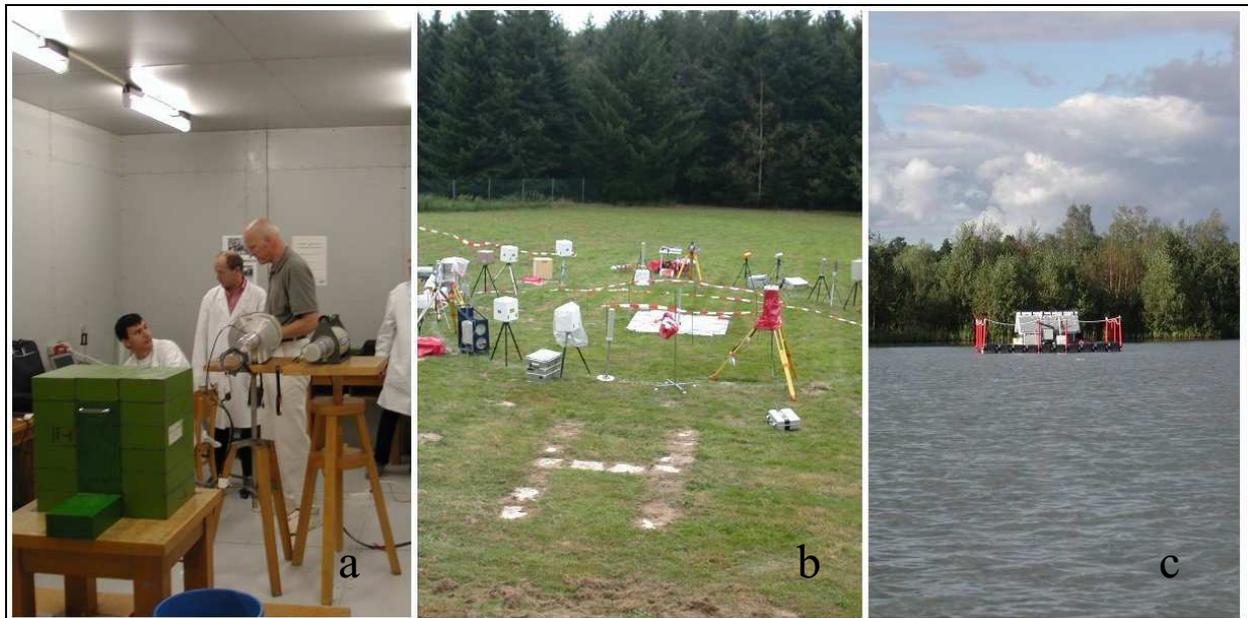
La participation aux intercomparaisons est le moyen de pouvoir comparer les résultats à ceux d'autres équipes internationales et également de pouvoir se rendre compte de l'efficacité des méthodes de mesure. Le laboratoire LMRE a participé à quatre d'entre elles : Nord Cotentin en 2000 pour une utilisation classique de la spectrométrie gamma *in-situ*, EURADOS (European Dosimetry Group) au PTB en Allemagne en 2002, décrite par la suite, ISIGAMMA organisée à Géra en Allemagne en 2005, expliquée en détail avec une participation personnelle, et enfin ISIS qui s'est déroulée en avril 2007 à Vienne en Autriche, dont les résultats ne sont pas encore exploités.

### 1.4.1. *EURADOS 2002*

Le groupe européen de travail sur la dosimétrie environnementale (EURADOS) a organisé deux intercomparaisons. La première s'est déroulée en 1999, la seconde en 2002 [27] et regroupait douze équipes européennes, environ 40 scientifiques et 35 détecteurs de dose. Le but principal était de s'assurer que les résultats donnés en cas d'accident nucléaire étaient comparables entre les différentes équipes et de vérifier la cohérence des résultats au passage des frontières. Cette intercomparaison comprenait trois sites de mesures :

- le laboratoire souterrain bas bruit (UDO situé Braunschweig en Allemagne) (figure 1.7 a) : un site minier localisé à 925 mètres de profondeur où le niveau exceptionnellement bas des radiations est de l'ordre de  $1 \text{ nSv.h}^{-1}$ . En effet, le sel gemme de cette mine, ne contient ni potassium ni familles naturelles et la profondeur du site minimise l'influence du rayonnement cosmique. Ce site a permis de mesurer le bruit de fond intrinsèque des détecteurs, d'examiner la linéarité de la dose avec différentes sources de  $^{137}\text{Cs}$  et de  $^{60}\text{Co}$  et de déterminer la fonction de réponse des spectromètres pour les énergies allant de 60 keV à 1300 keV.
- un site de mesure environnementale (figure 1.7 b) : il a permis d'étudier les réponses des détecteurs à différents champs de radiation en conditions réelles et de simuler un incident nucléaire faisant croître la dose de 10 % à 50 %.
- et un site de mesure de la radiation cosmique (figure 1.7 c) : une plateforme fabriquée avec des matériaux sélectionnés pour leur faible teneur en radioactivité, placée au milieu d'un lac à une centaine de mètres des berges. Cette configuration permet la

mesure de la réponse aux rayons cosmiques sans être perturbé par la composante naturelle considérée ici comme négligeable.



**Figure 1.7 : intercomparaison EURADOS 2002 avec les trois sites de mesures.**

Cette intercomparaison a permis de vérifier globalement le bon fonctionnement de la mesure et de l'analyse qui en découle. Toutefois certaines mesures, comme celles effectuées dans la mine, ont permis de démontrer les limites de la spectrométrie gamma *in-situ* telle qu'elle a été utilisée et de laisser percevoir les développements à effectuer.

En effet, cette mesure avait pour but de mesurer des sources ponctuelles et d'en déterminer l'activité et la dose reçue provoquée par ses rayonnements. L'activité de la source a été déterminée mais un écart de 15 % entre la valeur de dose réelle et celle déduite à partir du spectre est apparu. Le développement effectué pour pallier à ce problème sera expliqué et développé au chapitre 4.

#### *1.4.2. ISIGAMMA 2005*

Une autre intercomparaison effectuée au cours de ce travail se déroulait en Allemagne près de Géra en 2005. Elle rassemblait une centaine d'instituts dont trois français, pratiquant la spectrométrie gamma *in-situ* classique. Cette intercomparaison a concerné différents sites de mesures sur des sols de mines d'uranium à différents stades de réhabilitation :

- un large site minier réhabilité (figure 1.8 a) ;
- un site minier en cours de réhabilitation (figure 1.8 b) : deux terrains de mesures à différents stades de réhabilitation avec un équilibre séculaire non respecté pour les familles naturelles radioactives ;
- un site d'étalonnage avec une source placée à un mètre au-dessus du sol et une deuxième source enterrée dans le sol dont la profondeur devait être déterminée ;
- un dernier site (figure 1.8 c) divisé en trois parcelles de mesures avec des niveaux d'activité élevés.



**Figure 1.8 : intercomparaison ISIGAMMA 2005 avec trois des sites de mesures.**

Toutes les mesures ont été effectuées avec des niveaux radioactifs élevés avec parfois des équilibres séculaires rompus dans les familles radioactives. Elles ont permis de voir le comportement du détecteur aux forts taux de comptage.

Une des parcelles du dernier site de mesure a permis d'effectuer une mesure de radionucléides d'activité similaires à celle pouvant être effectuée sur le site de mesure d'Orsay. La comparaison des spectres *in-situ* issus de mesures sur des terrains similaires ayant des activités identiques montre une nette différence au niveau de la forme du spectre à basse énergie (figure 1.9).

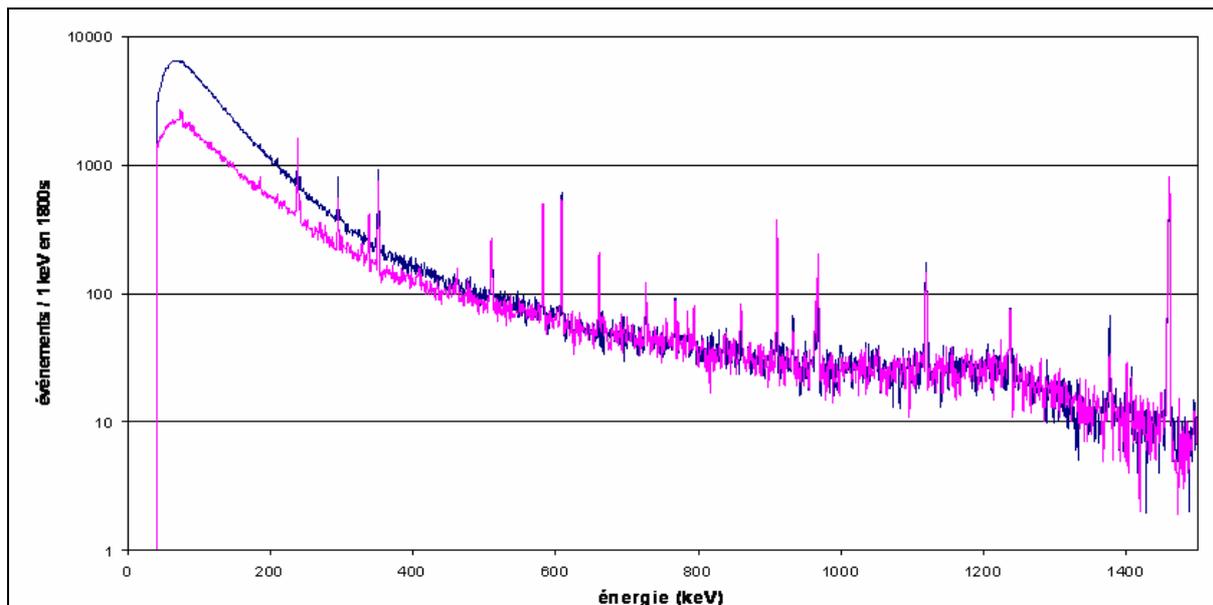


Figure 1.9 : superposition de spectres *in-situ* mesuré lors de l'intercomparaison ISIGAMMA 2005 en bleu et mesuré sur le site d'Orsay en rose.

Le constat de cette différence à basse énergie a initié cette thèse sur l'étude de la compréhension du spectre et de la physique qui intervient pendant une mesure. Cette étude a pour but de développer une méthode d'analyse permettant d'éviter ou de restreindre l'utilisation de l'hypothèse de distribution des sources et permettant également de différencier ces deux spectres au niveau de l'analyse. Pour atteindre ces objectifs, l'utilisation de la simulation Monte Carlo a été nécessaire afin de

- pouvoir comprendre les phénomènes qui se déroulent lors d'une mesure ;
- pouvoir utiliser des informations du spectre autres que celles présentes dans les pics d'absorption totale ;
- et enfin pouvoir se passer le mieux possible de l'hypothèse de distribution des sources utilisées au début de l'analyse.

La méthode utilisée pour parvenir à ces objectifs sera de séparer la simulation en deux parties : une simulation pour le flux et une autre pour sa convolution avec les réponses du détecteur. Ensuite l'utilisation de la méthode « Peak to Valley » combinée avec la connaissance, grâce à la simulation, du taux de comptage présent sous le pic étudié permettra d'approfondir l'analyse classique.

## 1.5. La théorie mise en jeu

### 1.5.1. Les interactions photons matière

Il existe cinq types d'interaction faisant intervenir les photons et la matière environnant la source et le détecteur. Les trois principaux sont l'effet photoélectrique, l'effet Compton et la création de paires, cette dernière étant seulement possible pour des photons d'énergie supérieure à 1,022 MeV. Les deux autres processus possibles sont la diffusion élastique pour les énergies inférieures à 50 keV et les réactions nucléaires à haute énergie (supérieure à 5 MeV). Ce dernier processus ne sera pas développé car l'énergie maximale des photons mesurée en spectrométrie gamma *in-situ* n'excède pas 3 MeV.

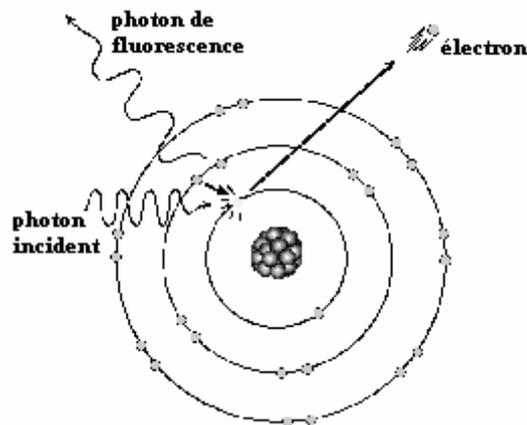


Figure 1.10 : l'effet photoélectrique.

L'effet photoélectrique décrit le phénomène selon lequel toute matière exposée à un rayonnement électromagnétique est susceptible d'émettre des électrons (figure 1.10). Il est directement lié à l'ionisation de la matière par des photons. En effet, en absorbant totalement un photon d'énergie  $E$  supérieure au potentiel d'ionisation  $E_L$  de l'atome, ce dernier libère un électron qui emporte avec lui le surplus d'énergie sous forme d'énergie cinétique  $E_C$  suivant l'équation 1.1 et qui est finalement absorbée par le milieu.

$$E_C = E - E_L$$

Équation 1.1

Lorsque l'énergie du photon incident est égale à l'énergie de libération de l'électron (seuil photoélectrique), l'électron est émis avec une énergie cinétique nulle. Si l'énergie du photon incident, par contre, est inférieure à l'énergie de liaison de l'électron K, l'effet photoélectrique se fait sur l'électron de la couche L, et ainsi de suite... . Après cet événement, l'atome subit un réarrangement au cours duquel soit un photon de fluorescence est émis, soit un électron est éjecté (électron Auger).

*L'effet Compton*, encore nommé diffusion Compton ou diffusion incohérente, décrit la diffusion des photons sur des électrons périphériques de l'atome. Le photon gamma incident d'énergie  $E$  interagit à la manière d'un choc au cours duquel une fraction de son énergie est transmise à l'électron sous forme d'énergie cinétique. L'énergie  $E'$  du photon diffusé varie en fonction de l'angle de déviation  $\theta$  comme décrit dans l'équation suivante :

$$E' = \frac{E}{1 + \frac{E}{E_0}(1 - \cos \theta)} \quad \text{Équation 1.2}$$

où  $E_0$  est la masse de l'électron au repos, soit 511 keV. La direction de propagation du photon diffusé est généralement différente de celle du photon incident et est redistribuée aléatoirement lorsque la diffusion a lieu sur des électrons en équilibre thermique. La figure 1.11 présente la distribution de l'angle de diffusion des photons arrivant de la gauche de la figure pour différentes énergies. Les photons de faibles énergies (1 keV) subissent autant de diffusion vers l'avant que de diffusion vers l'arrière. Cette égalité progresse en faveur des diffusions vers l'avant en même temps que l'énergie du photon augmente. Pour les photons de haute énergie (10 MeV), les diffusions ne se font pratiquement que vers l'avant.

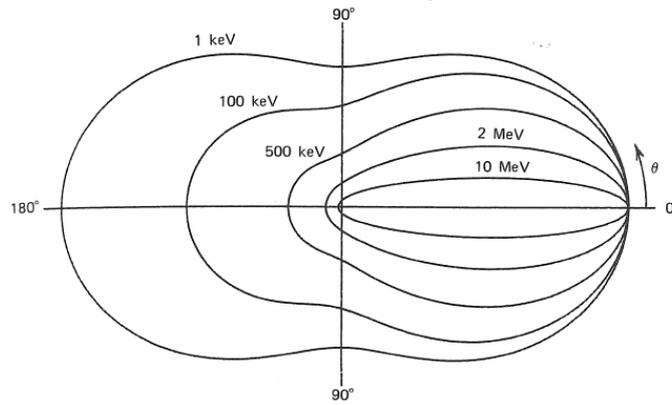


Figure 1.11 : distribution de l'angle de diffusion Compton pour différentes énergies de photons.

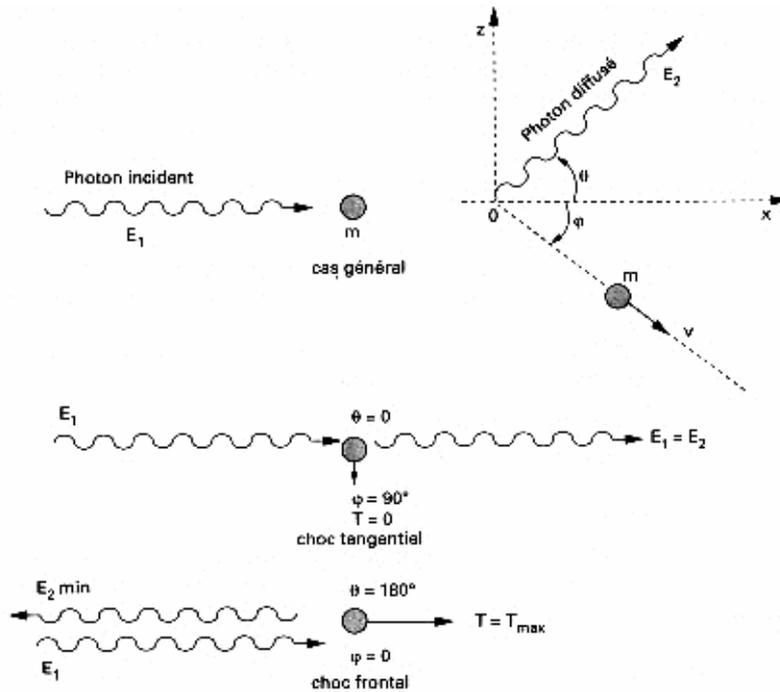


Figure 1.12 : la diffusion Compton.

Différents cas de la diffusion Compton sont représentés sur la figure 1.12 :

- un cas général, permettant de distinguer l'angle de diffusion Compton  $\theta$  et la direction  $\varphi$  prise par l'électron suite à l'interaction du photon incident,
- une diffusion vers l'avant avec un angle  $\theta$  égal à  $0^\circ$  : l'énergie du photon diffusé est égale à celle du photon incident ( $E = E'$ ),
- une rétrodiffusion, l'angle  $\theta$  est égal à  $180^\circ$ . Dans ce cas, l'énergie du photon diffusé  $E'$  peut s'exprimer comme :

$$E' = \frac{E}{1 + 2E/E_0}$$

Équation 1.3

L'énergie du photon rétrodiffusé et celle de l'électron complémentaire sont données en fonction de l'énergie du photon incident dans le tableau 1.2.

$E_{\text{photon initial}}$ (keV)	$E'_{\text{photon diffusé}}$ (keV)	$E_{\text{électron}}$ (keV)
250	126	124
500	169	331
750	191	559
1000	204	796
1500	218	1282
2000	227	1773
3000	235	2765

Tableau 1.2 : énergies du photon diffusé et de son électron pour une rétrodiffusion Compton pour différentes énergies incidentes.

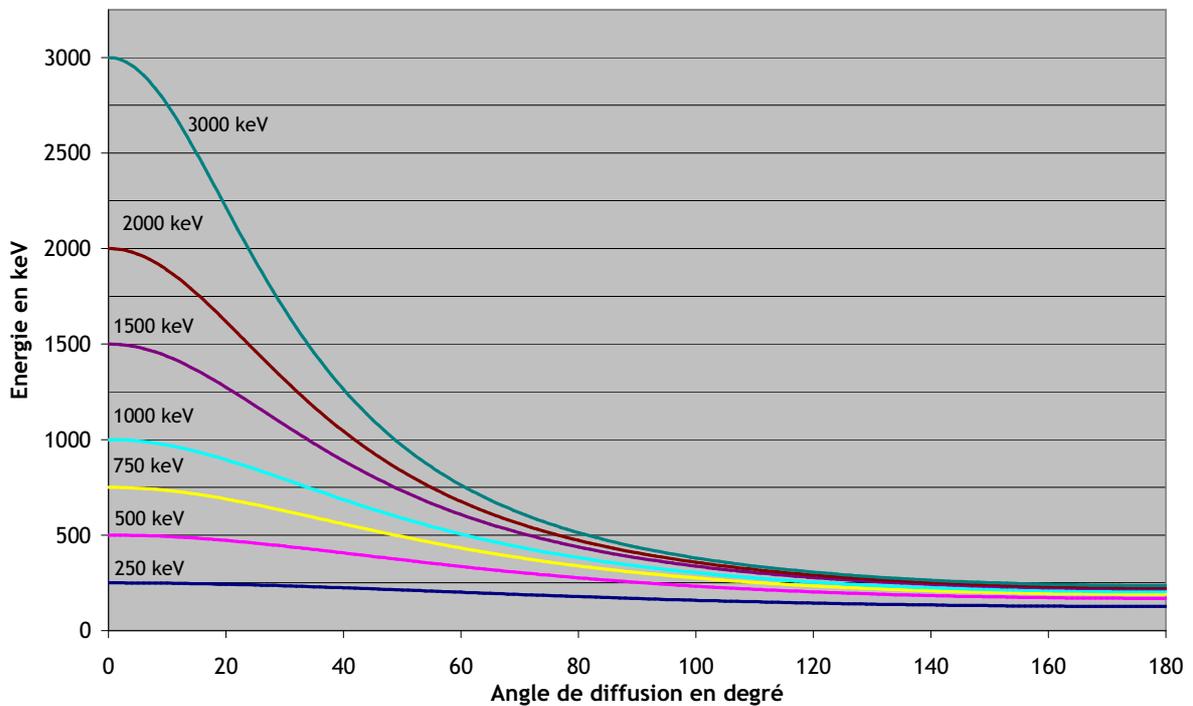
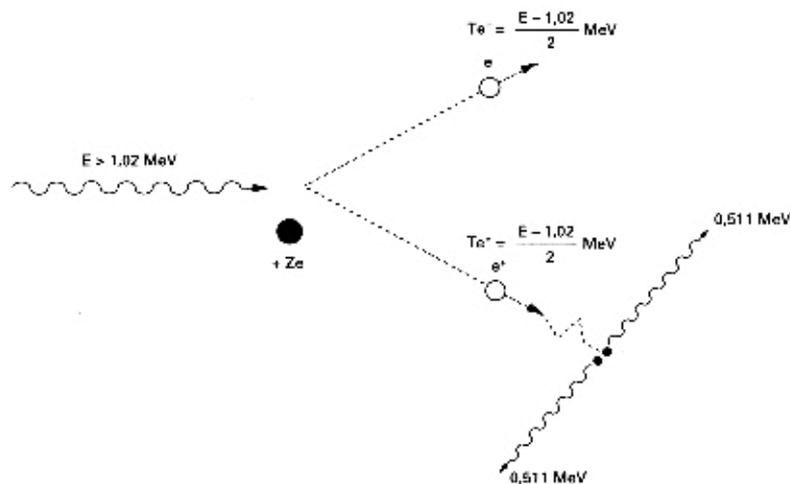


Figure 1.13 : variation de l'énergie du photon diffusé en fonction de l'angle de diffusion.

La figure 1.13 montre la distribution de l'énergie du photon diffusé en fonction de l'angle de diffusion pour différentes énergies dans la gamme 250 keV - 3 MeV. Pour les diffusions avec des angles supérieurs à 90°, il est intéressant de noter que quelle que soit l'énergie du photon incident, l'énergie du photon diffusé se retrouve aux alentours de 200 keV. De même il est facile de se rendre compte que dans l'histoire d'un photon, s'il a subi plusieurs diffusions Compton, l'énergie du photon final se retrouvera également aux alentours de 100 keV. Cette accumulation de photons à basse énergie arrivant sur le détecteur est une caractéristique du spectre *in-situ* qui sera visible dans le chapitre 1.5.4.

*La création de paire* consiste en la matérialisation d'une paire électron-positron lorsqu'un photon disparaît au voisinage d'un noyau ou d'un électron atomique (figure 1.14). Cette création de paire peut se faire seulement si l'énergie du photon incident est supérieure à deux fois la masse d'un électron au repos, soit 1,022 MeV. Ces deux particules vont perdre leur énergie par phénomène d'ionisation du milieu, le positron finira par s'annihiler avec un électron du milieu produisant ainsi l'émission de deux photons d'énergie individuelle de 511 keV émis à 180° l'un de l'autre.



**Figure 1.14 : la création de paire.**

*La diffusion élastique* d'un photon consiste en une collision avec la matière au cours de laquelle le photon ne perd pas d'énergie. La diffusion élastique comporte deux types de diffusion : la diffusion Thomson et la diffusion Rayleigh.

La diffusion Thomson est en fait la diffusion élastique d'un photon par une particule libre chargée, en général un électron. En pratique, la diffusion Thomson concerne les photons de faible énergie qui sont absorbés par un électron atomique. Cet électron est ainsi mis en oscillation forcée et réémet un photon de même énergie que le photon incident, avec une direction aléatoire.

A faible énergie, la longueur d'onde du photon incident est du même ordre de grandeur que la dimension de l'atome. Dans ce cas, au lieu d'interagir avec un seul électron, le photon incident interagit avec tous les électrons de l'atome qui se mettent à osciller en phase avant d'émettre un photon de même énergie que le photon incident. Ce type de diffusion élastique est connu sous le nom de diffusion Rayleigh ou diffusion cohérente.

Du point de vue conceptuel, les diffusions Thomson et Rayleigh sont très semblables et sont souvent considérées de manière globale sous le nom de diffusion Thomson-Rayleigh. La distribution de l'angle d'émission du photon peut s'estimer en considérant que la diffusion de Thomson-Rayleigh est un cas limite de la diffusion Compton lorsque l'énergie du photon incident est basse.

### 1.5.2. *Les sections efficaces, les domaines de prépondérance*

L'importance relative des différents types d'interaction se détermine par la valeur des différentes composantes de la section efficace en fonction de l'énergie de la radiation et du numéro atomique du milieu traversé. Ces sections efficaces exprimées en barn, qui équivaut à  $10^{-24}$  m<sup>2</sup>, sont calculées à l'aide de la mécanique quantique.

Le processus photoélectrique a une section efficace  $\sigma_{ph}$  proportionnelle au numéro atomique élevé à la puissance 5 et inversement proportionnelle à l'énergie du photon élevée à la puissance 3,5 :

$$\sigma_{ph} \propto \frac{Z^5}{E_\gamma^{3,5}}$$

**Équation 1.4**

La section efficace  $\sigma_c$  de l'effet Compton est composée de deux contributions : la première est la section efficace d'absorption représentant la fraction moyenne de l'énergie totale de l'électron diffusé ; la seconde est la section efficace de diffusion représentant l'énergie moyenne transférée à l'électron de recul. En additionnant ces deux composantes, la section efficace pour la diffusion Compton est proportionnelle au numéro atomique du milieu et à l'inverse de l'énergie du photon :

$$\sigma_c \propto \frac{Z}{E_\gamma} \quad \text{Équation 1.5}$$

Le processus de matérialisation a une section efficace  $\sigma_{cp}$  rigoureusement nulle lorsque l'énergie du photon est inférieure à 1,022 MeV et qui est proportionnelle au carré du numéro atomique du milieu :

$$\sigma_{cp} \propto Z^2 \quad \text{Équation 1.6}$$

La diffusion Rayleigh-Thomson a une section efficace  $\sigma_{rt}$  simplement exprimée en fonction du rayon classique de l'électron  $r_e$  :

$$\sigma_{rt} \propto \frac{8\pi}{3} r_e^2 \quad \text{Équation 1.7}$$

Les trois premières sections efficaces permettent de définir trois zones comme montrées sur la figure 1.15, en fonction du Z du milieu et de l'énergie du photon incident :

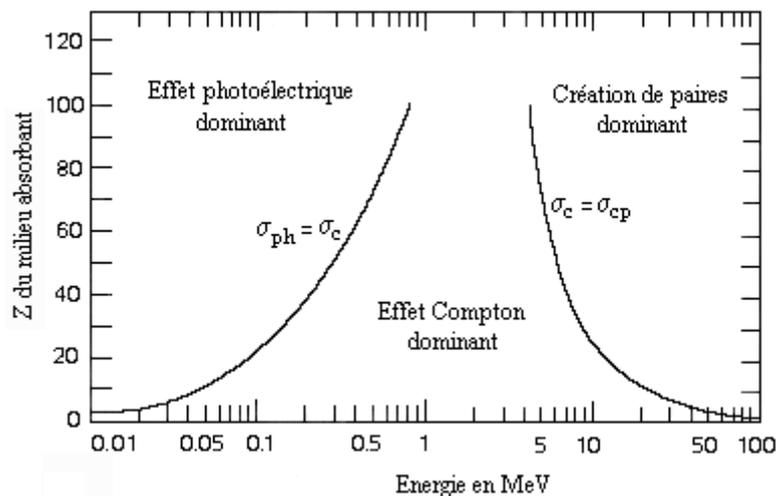


Figure 1.15 : domaine de prépondérance des interactions des photons avec la matière.

- Faible énergie des photons et Z élevé : prédominance de l'effet photoélectrique
- Energie moyenne et Z moyen : prédominance de l'effet Compton
- Energie élevée et Z élevé : prédominance de la production de paires

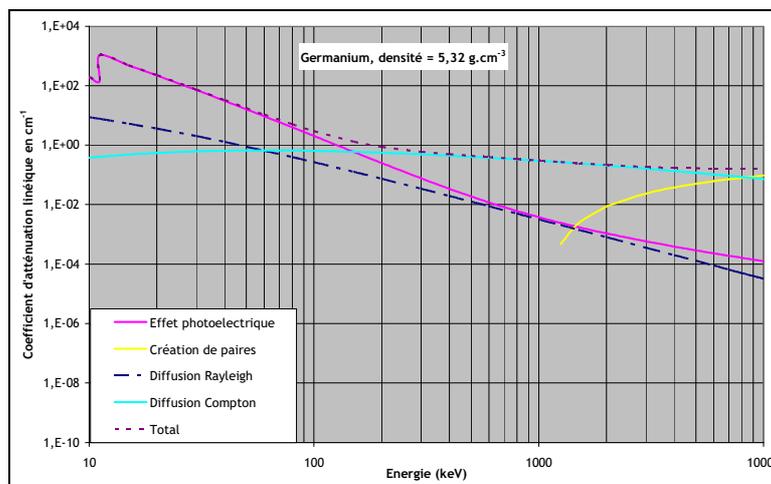
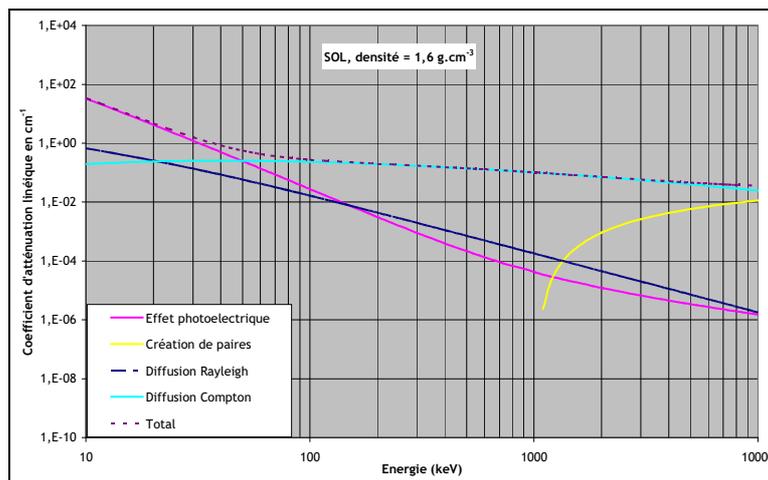
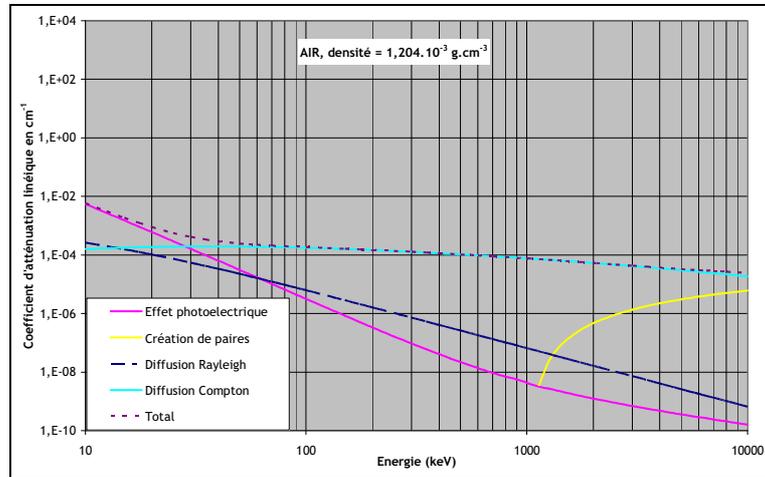


Figure 1.16 : sections efficaces dans l'air, le sol et le germanium.

La figure 1.16 montre la variation des coefficients d'atténuation linéique Rayleigh, Compton, photoélectrique et création de paires dans la gamme d'énergie 10 keV à 10 MeV pour trois matériaux importants dans ce travail : l'air (parcours dans l'air des photons), la terre (sortie des photons de la terre) et le germanium (cristal du détecteur).

Les domaines de prépondérance changent en fonction du milieu traversé : par exemple, la borne inférieure de prédominance de la diffusion Compton commence à 30 keV pour l'air pour atteindre 150 keV pour le germanium : l'interaction subie par un photon d'énergie donnée change en fonction du milieu traversé. De plus, il y a une grande différence de distance moyenne parcourue avant d'interagir : pour un photon de 1 MeV, il faut 1 cm pour interagir dans le germanium alors qu'il faut 100 m dans l'air.

### 1.5.3. L'atténuation du rayonnement

Chaque interaction de photon avec la matière mène à une atténuation et/ou une modification du flux initial. Le flux, s'exprimant en photons par cm<sup>2</sup> par seconde, s'atténue lors de son passage à travers un matériau d'épaisseur  $r$  suivant la fonction exponentielle décrite dans l'équation 1.8 :

$$\Phi = \Phi_0 e^{-\mu \cdot r} \quad \text{Équation 1.8}$$

où  $\Phi$  est le flux de photons ayant gardé leur énergie initiale après la traversée de l'épaisseur  $r$ ,  $\Phi_0$  le flux de photons incident sur le matériau et  $\mu$  le coefficient d'atténuation linéique exprimé en cm<sup>-1</sup>. Pour la description de l'atténuation, au coefficient  $\mu$  est préféré le coefficient d'atténuation massique  $\mu/\rho$  (exprimé en cm<sup>2</sup>.g<sup>-1</sup>), indépendant de la densité  $\rho$  du matériau. Pour un matériau composé de différents éléments, le coefficient d'atténuation massique est obtenu en utilisant l'équation suivante:

$$\mu / \rho = \sum_i W_i (\mu / \rho)_i \quad \text{Équation 1.9}$$

où  $W_i$  est la proportion en masse du  $i^{\text{ème}}$  élément avec le coefficient d'atténuation massique  $(\mu/\rho)_i$ . Hubbell (1982 [28]) a déterminé les coefficients  $\mu/\rho$  pour de nombreux éléments et

compositions, et le programme XCOM (Berger et Hubbell, 1987 [29]) donnant les valeurs de sections efficaces pour les photons, peut être utilisé pour le calcul des coefficients d'atténuation pour des compositions simples de matériau et pour une gamme d'énergie allant de 1 keV à 100 GeV.

#### 1.5.4. Quelques éléments de compréhension d'un spectre *in-situ*

La construction d'un spectre gamma *in-situ* est complexe, suite au transport des photons dans les différents milieux :

- la terre. Suite à une décroissance radioactive, les photons y sont créés. Ils peuvent subir toutes les interactions précédemment décrites, définissant ainsi le « spectre énergétique du flux de photons ».
- l'air. Le parcours dans l'air continue de modifier le spectre énergétique du flux de photons. Juste avant d'arriver jusqu'au détecteur, ce spectre peut être appelé « spectre énergétique du flux de photons incidents » ou plus simplement « spectre du flux incident ».
- le détecteur. Le spectre du flux incident va être modifié par la fonction de réponse du détecteur pour devenir ainsi le spectre *in-situ*<sup>1</sup>. A noter que ce spectre sera calculé par simulation et ce spectre *in-situ* simulé sera parfois comparé au spectre *in-situ* mesuré.

A titre d'illustration, les figures 1.17 et 1.18 présentent l'impact de ces différents phénomènes de transport de photons pour la radioactivité en <sup>40</sup>K (un rayonnement gamma de 1460 keV et une particule beta d'énergie maximale égale à 1131 keV). Ces deux figures sont extraites des résultats obtenus suite au travail du chapitre 2 et 3.

Le spectre du flux incident est présenté sur la figure 1.17 sur lequel sont visibles une accumulation (A) d'évènements aux alentours de 60 keV, explicable par la dégradation de l'énergie du photon initial suite à plusieurs diffusions Compton, un pic de rétrodiffusion (B), le pic caractérisant la création de paires (C) et celui des photons n'ayant subi aucune interaction et gardant leur énergie initiale (D).

---

<sup>1</sup> Ces notions de « spectre du flux incident » et « spectre *in-situ* » se retrouvent tout au long de ce manuscrit et peuvent être source de malentendus. Afin d'éviter ceci, la convention suivante a été adoptée : un fond gris pour la représentation du « spectre du flux incident » et un fond blanc pour la représentation du « spectre *in-situ* ».

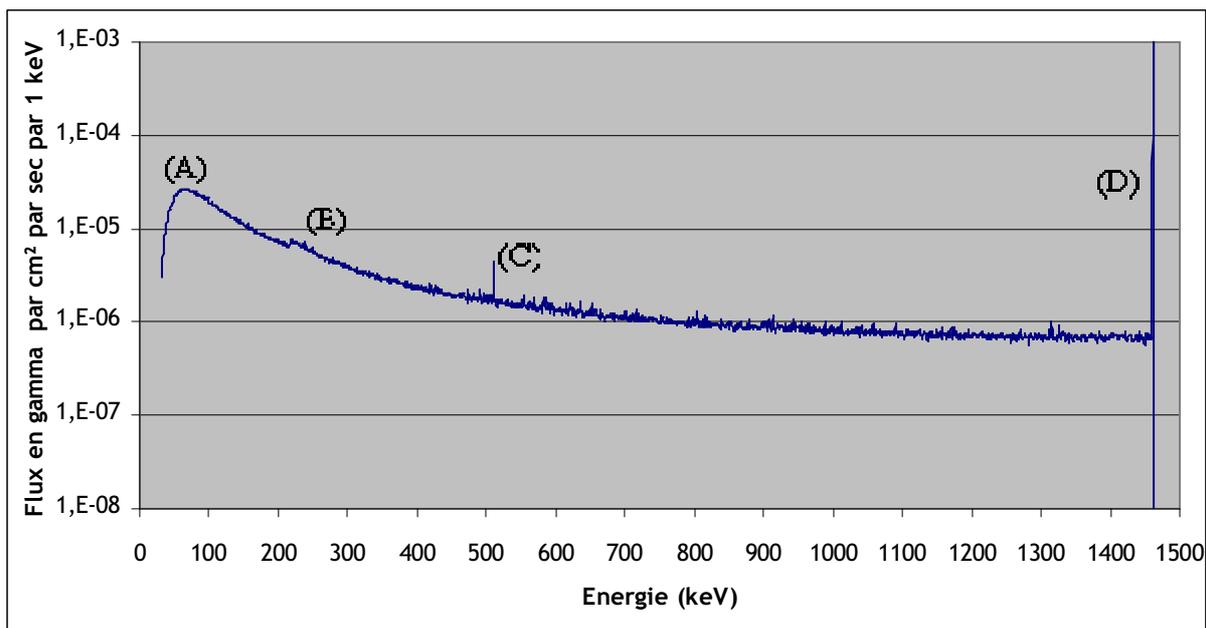


Figure 1.17 : spectre du flux incident d'une source uniforme dans le sol de  $^{40}\text{K}$ .

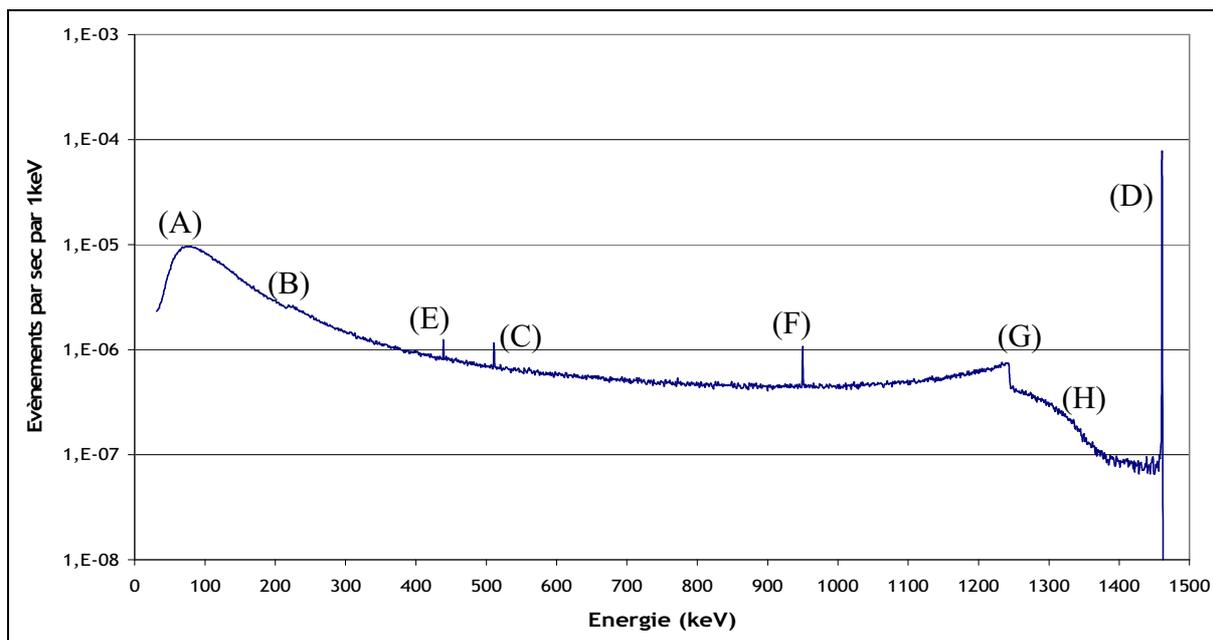


Figure 1.18 : spectre *in-situ* pour une source uniforme de  $^{40}\text{K}$ .

Ce spectre du flux incident est dégradé ensuite par la fonction de réponse du détecteur  $R_V(E)$ , définie comme étant la probabilité qu'un flux de photons incident avec une énergie donnée  $E$  produise une hauteur d'impulsion  $V$  donnée, et s'exprimant suivant l'équation 1.10.

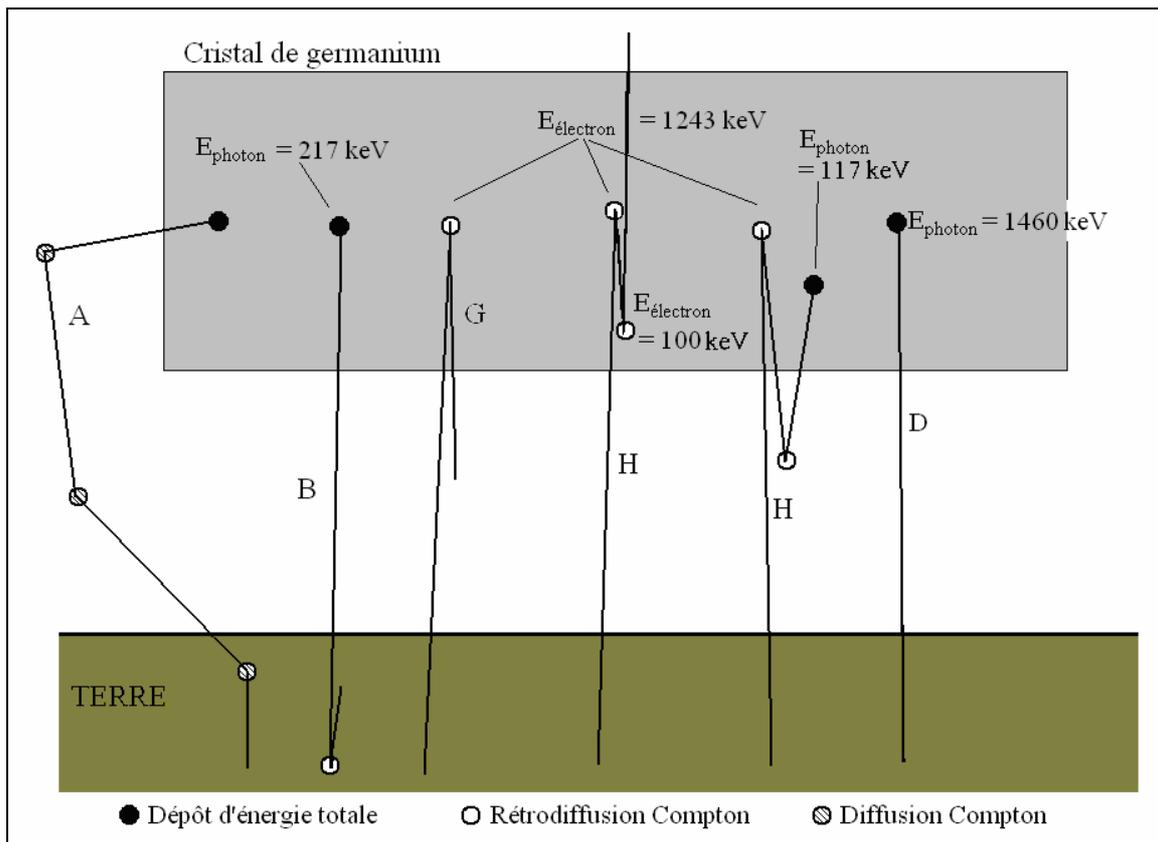
$$R_v(E) = \int D_{E'}(E) \cdot G_v(E') \cdot dE' \quad \text{Équation 1.10}$$

où  $D_{E'}(E)$  est la probabilité qu'un photon d'énergie  $E$  dépose une énergie  $E'$  dans le détecteur et  $G_v(E')$  est la probabilité que l'énergie déposée  $E'$  produise un pic de hauteur  $V$ .

Le spectre *in-situ* est visible sur la figure 1.18 et comporte différents points caractéristiques. Dans l'ordre croissant d'énergie, il y a dans un spectre *in-situ* mesuré :

- les mêmes caractéristiques A B C que dans le spectre du flux incident ;
- un pic E d'énergie égale à  $(1460,8 - (2 \times 511))$ , soit 439 keV correspondant au pic de double échappement suite à la création de paires ;
- un pic F de simple échappement d'énergie égale à  $(1460,8 - 511)$  soit 950 keV suite à la création de paires ;
- le front Compton G à 1243 keV correspondant à l'énergie cédée à l'électron après le phénomène de rétrodiffusion, le photon diffusé sortant du cristal de germanium sans interagir,
- une bosse H aux alentours de 1320 keV avec deux décrochements légèrement visibles à 1360 keV et 1343 keV caractérisant le phénomène de double rétrodiffusion, c'est-à-dire un photon subissant deux rétrodiffusions consécutives. En fonction des angles de diffusion, se retrouvent sur le graphe des distributions continues démarrant à ces deux seuils,
- et le pic d'absorption totale de 1460 keV (D).

Cette énumération est accompagnée de la figure 1.19 sur laquelle est schématisée l'histoire du photon et le dépôt d'énergie pour les différents pics rencontrés sur le spectre *in-situ* mesuré autre que ceux dus à la création de paire.



**Figure 1.19 : principe de dépôt d'énergie dans le cristal de germanium.**

Cette description des spectres montre la complexité de la construction du spectre *in-situ*. C'est à cause de cette complexité que l'utilisation de la simulation Monte Carlo va être nécessaire pour comprendre tous les phénomènes mis en jeu. En effet la simulation Monte Carlo et en particulier la simulation avec le code de GEANT3 permet d'accéder à de nombreuses informations relatives au parcours des particules, à la formation d'un spectre *in-situ* et donc à la compréhension précise d'une mesure *in-situ*.



<b>2. DEVELOPPEMENT DE L'OUTIL MONTE CARLO .....</b>	<b>34</b>
<b>2.1. L'OUTIL DE SIMULATION MONTE CARLO .....</b>	<b>34</b>
2.1.1. <i>l'histoire de la simulation Monte Carlo .....</i>	<i>34</i>
2.1.2. <i>Le code GEANT 3 et son fonctionnement.....</i>	<i>35</i>
<b>2.2. LA SIMULATION D'UN CRISTAL DE GE, PROCESSUS MIS EN JEU .....</b>	<b>37</b>
2.2.1. <i>Répartition des interactions en fonction de l'énergie incidente .....</i>	<i>37</i>
2.2.2. <i>Répartition des interactions en fonction de la profondeur.....</i>	<i>38</i>
2.2.3. <i>Répartition du dépôt d'énergie en fonction de l'énergie incidente .....</i>	<i>41</i>
<b>2.3. LA MODELISATION DU DETECTEUR .....</b>	<b>43</b>
2.3.1. <i>Le modèle du détecteur Hannibal.....</i>	<i>43</i>
2.3.2. <i>Validation du modèle Monte Carlo .....</i>	<i>44</i>
<b>2.4. LA MODELISATION DU FLUX INCIDENT .....</b>	<b>48</b>
2.4.1. <i>Les radionucléides naturels et artificiels .....</i>	<i>48</i>
2.4.2. <i>La conception d'un modèle simplifié.....</i>	<i>49</i>
<b>2.5. LA BASE DE DONNEES .....</b>	<b>53</b>
2.5.1. <i>Le principe .....</i>	<i>53</i>
2.5.2. <i>Le principe d'utilisation de la base de données .....</i>	<i>53</i>
2.5.3. <i>quelques exemples d'utilisation.....</i>	<i>55</i>
2.5.4. <i>La simulation d'une distribution exponentielle de l'activité dans le sol .....</i>	<i>57</i>
<b>2.6. LA CONVOLUTION DES MODELES .....</b>	<b>61</b>
2.6.1. <i>Le principe de convolution.....</i>	<i>61</i>
2.6.2. <i>Les détails du code.....</i>	<i>62</i>
2.6.3. <i>Résumé du principe de fonctionnement du code .....</i>	<i>65</i>

## 2. Développement de l'outil Monte Carlo

Dans le cadre de la spectrométrie gamma *in-situ*, la configuration expérimentale reste assez simple à modéliser comparée par exemple aux dispositifs expérimentaux utilisés en physique des particules. Dans notre cas, il y a un détecteur placé à un mètre au-dessus du sol et une source, ayant une distribution donnée dans le sol, qui serait de dimensions jugées acceptables pour la reproduction de la situation réelle en simulation. Les ordinateurs de nos jours sont de plus en plus performants mais restent tout de même insuffisants pour ce travail de modélisation. En effet, si le calcul Monte Carlo d'une mesure *in-situ* était fait en se basant sur la configuration expérimentale, les temps de calcul pour chaque simulation auraient été trop importants pour pouvoir avoir une étude complète du problème sur la durée de la thèse.

Une simulation se divisant en trois étapes permettant un gain de temps conséquent va donc être préférée avec comme première étape, la simulation du détecteur seul, ensuite la modélisation du flux sortant du sol et arrivant jusqu'au détecteur et enfin l'étape de la convolution du flux avec le détecteur.

### 2.1. L'outil de simulation Monte Carlo

#### 2.1.1. *l'histoire de la simulation Monte Carlo*

La méthode de simulation Monte Carlo doit son nom à Métropolis et Ulam dans les années 1940 [30]. Ces auteurs sont les premiers à avoir décrit cette méthode pour des applications militaires concernant les premières bombes atomiques. Ces techniques sont aujourd'hui introduites dans de nombreux champs d'applications.

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

Dans notre cadre, la méthode Monte Carlo permet de simuler l'*histoire* d'une particule individuelle dans un milieu atténuateur, en tenant compte du caractère probabiliste des différents processus physiques pouvant être rencontrés lors de sa traversée. Cet historique prend en compte les éventuelles particules secondaires et s'arrête dès lors que l'énergie de la particule est en dessous d'un niveau seuil ou atteint une zone de réjection.

### 2.1.2. *Le code GEANT 3 et son fonctionnement*

Plusieurs codes de simulation Monte Carlo sont utilisés en métrologie des rayonnements ionisants dont une comparaison entre les différents codes est disponible dans la littérature [31]. Le choix du code utilisé dans toute cette étude s'est fait par sa présence et son utilisation au sein du laboratoire avant même le début de ce travail.

Le code utilisé est GEANT 3 [32], développé pour le CERN depuis 1974. Pour le CERN, les études Monte Carlo sont devenues essentielles pour la fabrication et l'optimisation des détecteurs, le développement et le test des programmes de reconstitution et d'analyse, et également pour interpréter les résultats expérimentaux. Le code est un système de description des détecteurs et de simulation permettant d'apporter de l'aide dans toutes les études physiques. Son fonctionnement peut se décomposer en plusieurs étapes :

- description du dispositif expérimental : définition des volumes expérimentaux et des matériaux associés. Dans le cadre de cette étude, définition des volumes de terre, d'air et description du détecteur.
- configuration de la source. L'utilisateur doit définir l'origine, le type, le nombre et l'énergie des particules ainsi que la cinématique associée. Une extension du code s'appelant Decay a été utilisée [33]. Elle permet de gérer de manière quasi-transparente pour l'utilisateur ces différents paramètres. De plus, elle permet de générer des décroissances radioactives dans une source en tenant compte de toutes les émissions possibles, les rapports d'embranchement et les effets de somme (génération de la position à l'intérieur de la source, gestion des schémas de décroissance radioactive, impulsion des particules émises).
- sélection des données de sortie. Elle est faite au moment de la programmation en piochant dans l'histoire des particules les informations recherchées (types d'interaction, localisation, énergies déposées, ...).

La figure 2.1 représente un organigramme simplifié de la construction de l'histoire d'une particule. Ces trois étapes d'interaction avec le code apparaissent dans le schéma de fonctionnement global de GEANT ci-après. Une histoire commence par la naissance de la particule (émission à partir d'une source) et se termine par sa mort (absorption par le milieu ou sortie de l'univers).

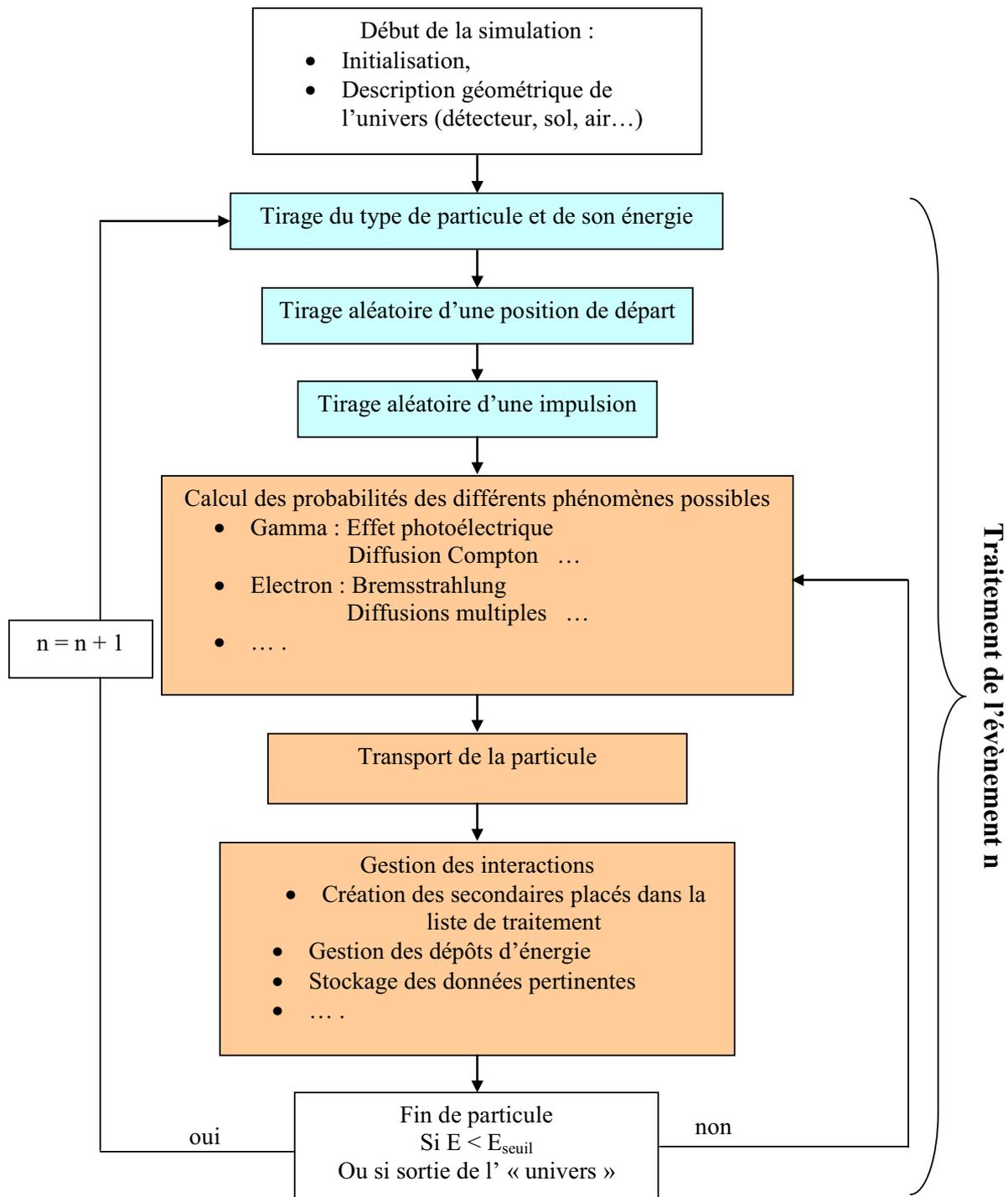


Figure 2.1 : schéma de principe de l'historique d'une particule.

## 2.2. La simulation d'un cristal de Ge, processus mis en jeu

La première étape de la modélisation a été d'établir un modèle simple comprenant simplement le cristal de germanium et une source émettant un flux perpendiculaire à la face avant du cristal. La figure 2.2 montre une vue en coupe du cristal de germanium avec des dimensions proches de celles des détecteurs utilisés actuellement. Cette configuration permet de comprendre dans les grandes lignes le fonctionnement de la fonction de réponse d'un détecteur, de connaître et d'identifier le type et la localisation des interactions entrant en jeu dans la spectrométrie gamma *in-situ*.

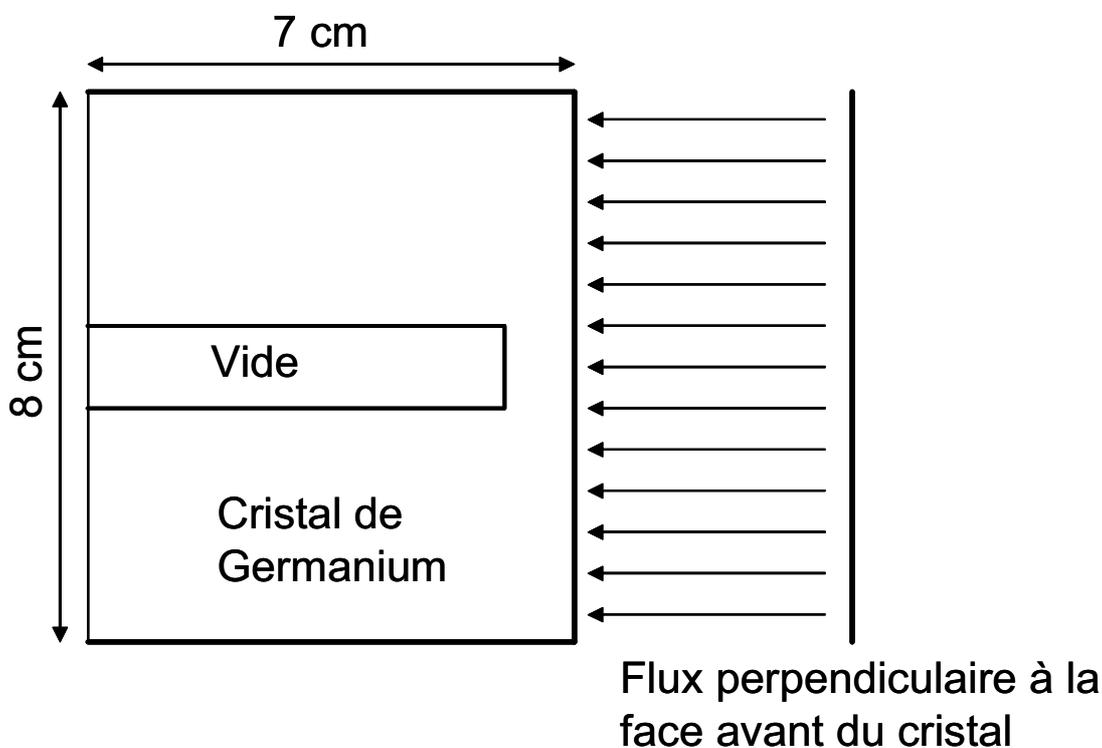


Figure 2.2 : modélisation simplifiée d'un cristal de germanium.

### 2.2.1. Répartition des interactions en fonction de l'énergie incidente

La simulation a été effectuée pour différentes énergies couvrant toute la gamme de mesure et en s'intéressant aux trois principaux mécanismes d'interaction : l'effet photoélectrique, la diffusion Compton et la création de paire. La figure 2.3 montre la répartition de ces différents mécanismes pour différentes énergies de photons incidents. Une

distinction a été faite pour les diffusions Compton en les séparant par le nombre de diffusions successives qui interviennent avant la sortie ou la mort du photon incident. La simulation a été effectuée avec un million de photons incidents.

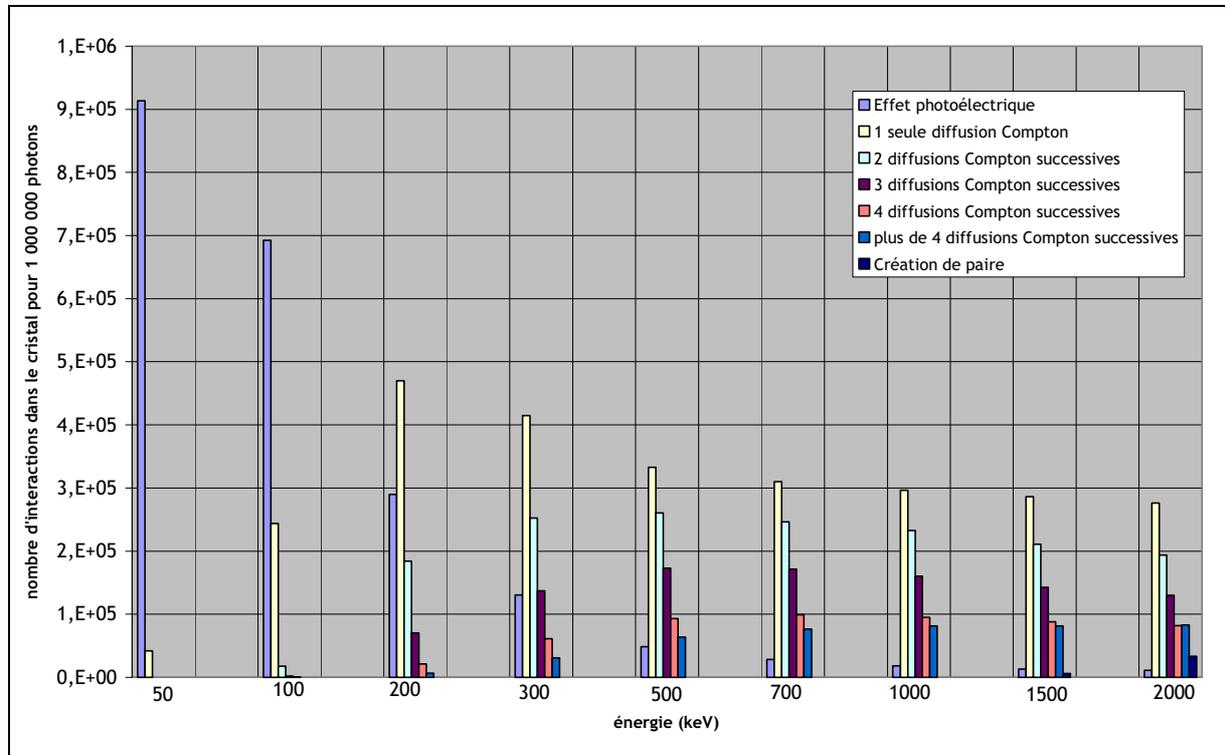


Figure 2.3 : répartition du type d'interactions des photons dans le germanium en fonction de leur énergie.

L'effet photoélectrique est dominant pour les énergies allant de 0 keV à un peu plus de 100 keV, les diffusions Compton prenant le relais un peu avant 200 keV jusqu'à 2000 keV. De plus la présence du processus de création de paire apparaît entre 1000 keV et 1500 keV. Cet histogramme permet de prévoir les interactions qui se produiront dans le cristal de germanium en fonction de l'énergie incidente et montre le caractère potentiellement multi-Compton de la détection du pic d'absorption totale souvent incorrectement appelé pic photoélectrique

### 2.2.2. Répartition des interactions en fonction de la profondeur

Une deuxième partie de cette étude s'est portée sur la localisation de chacun de ces effets. Les trois figures suivantes (2.4, 2.5, 2.6) présentent respectivement la répartition de l'effet photoélectrique, de la diffusion Compton et de la création de paire en fonction de la

profondeur de pénétration dans le cristal pour différentes énergies initiales allant de 50 keV à 2000 keV. Un million de photons incidents ont été simulés.

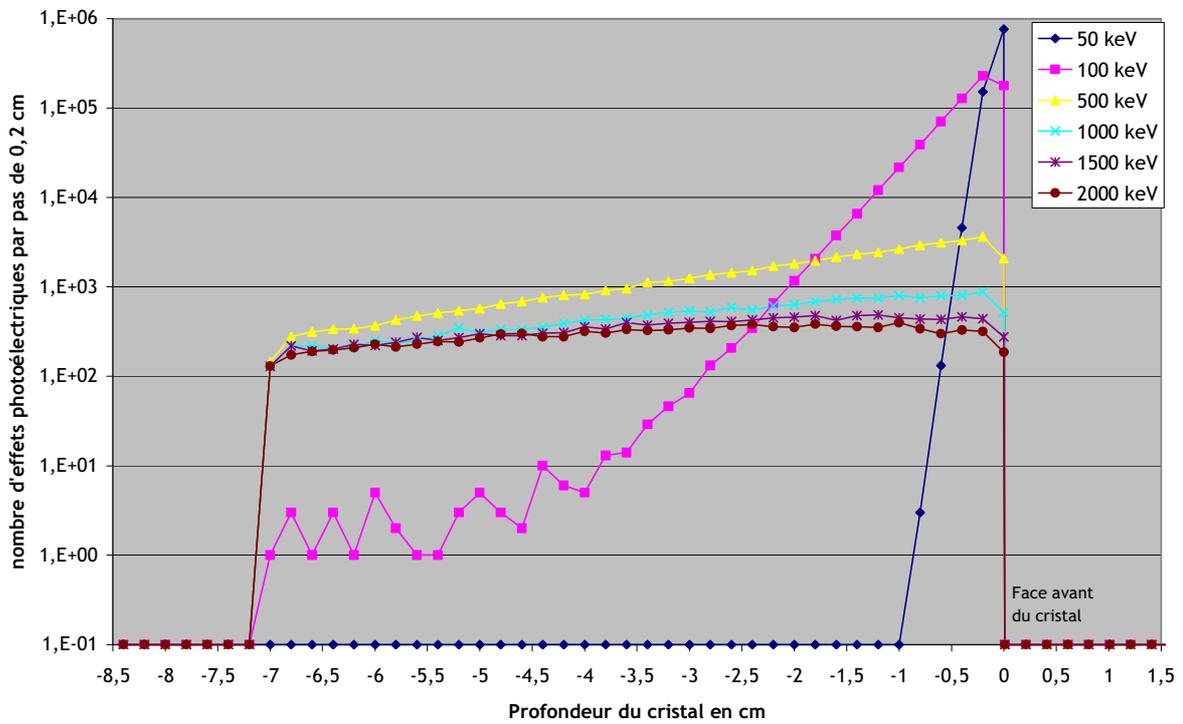


Figure 2.4 : répartition des effets photoélectriques en fonction de la profondeur de parcours dans le cristal pour différentes énergies.

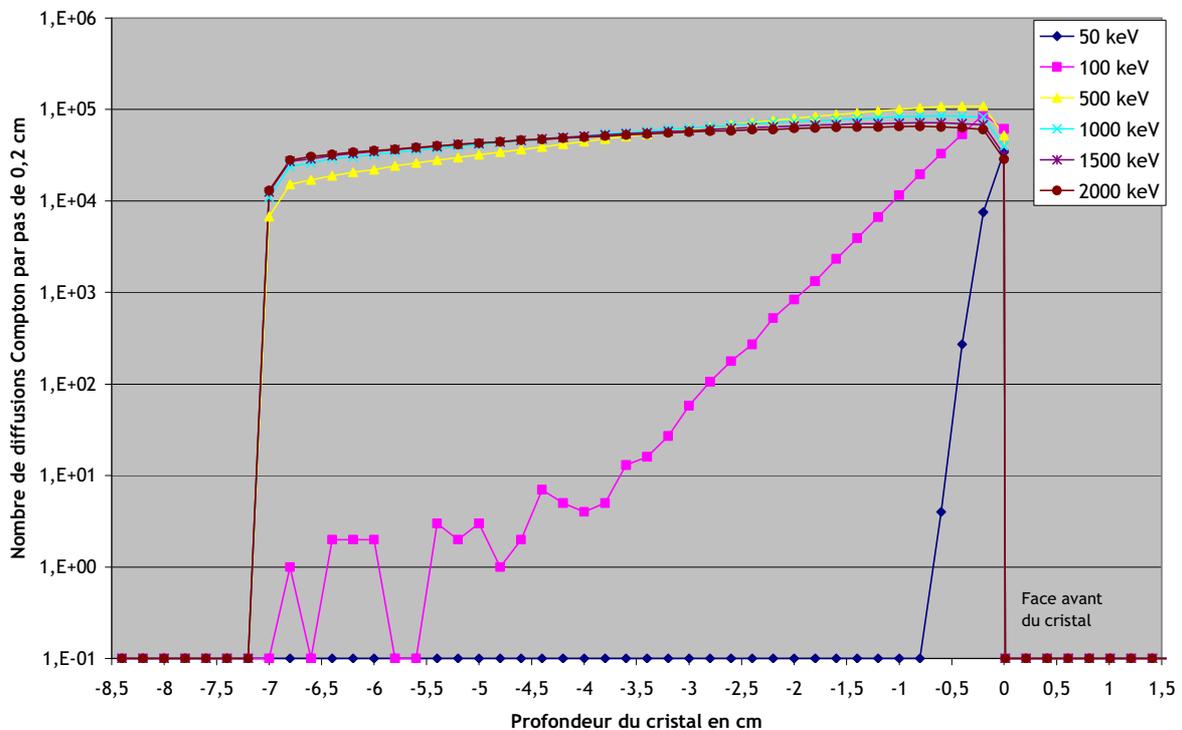
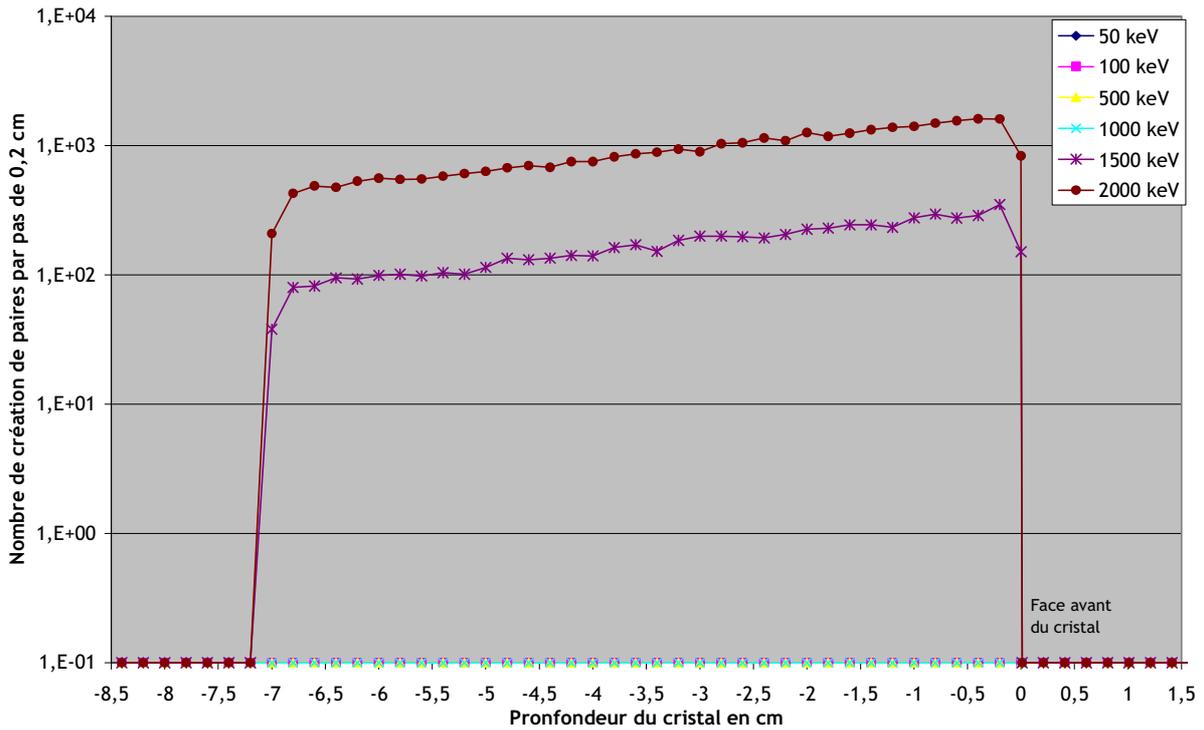


Figure 2.5 : répartition des diffusions Compton en fonction de la profondeur de parcours dans le cristal pour différentes énergies.



**Figure 2.6 : répartition des créations de paire en fonction de la profondeur de parcours dans le cristal pour différentes énergies.**

Sur la figure 2.4, la répartition de l'effet photoélectrique est représentée avec une distribution en face avant du cristal pour les faibles énergies et une distribution devenant uniforme en fonction de la profondeur du cristal pour les hautes énergies. Le nombre total d'effets photoélectriques diminue lorsque l'énergie augmente.

Ce type de répartition est également visible sur la figure 2.5 qui présente la diffusion Compton. Une répartition est également observée proche de la surface du cristal pour les faibles énergies. Pour les hautes énergies, la répartition du nombre de diffusions tend à être uniforme sur l'ensemble du cristal plus l'énergie incidente augmente.

La figure 2.6 présente la répartition des créations de paire ne commençant qu'aux énergies supérieures à 1022 keV. Les deux répartitions représentées sont quasiment uniformes en fonction de l'épaisseur du cristal avec une légère augmentation de la distribution vers la face avant du cristal. Il y a simplement le nombre de paires créées qui augmente avec l'énergie.

Les trois figures précédentes permettent de définir la notion de position médiane d'interaction pour les trois types de phénomènes ; notion utilisée pour l'étalonnage standard des spectromètres germanium *in-situ*. La position médiane est définie comme étant la profondeur à laquelle le nombre cumulé des interactions entre la face avant et cette position est égale à 50 % du nombre total d'interactions effectuées dans le germanium. Dans le

tableau 2.1, la position médiane d'interaction pour les photons de faibles énergies ( $E \leq 100$  keV) se situe dans les premiers millimètres de cristal alors que pour le reste de photons ( $E \geq 500$  keV), la position se situe plus profondément dans le cristal pour se rapprocher du milieu du cristal (3,5 cm) quand l'énergie augmente.

Energie (keV)	50	100	500	1000	1500	2000
Effet photoélectrique	0,1	0,3	1,6	2,2	2,7	3,0
Diffusion Compton	0,1	0,3	2,0	2,5	2,8	2,8
Création de paire					2,2	2,4

**Tableau 2.1 : profondeur médiane d'interaction pour un flux perpendiculaire à la face avant (en cm).**

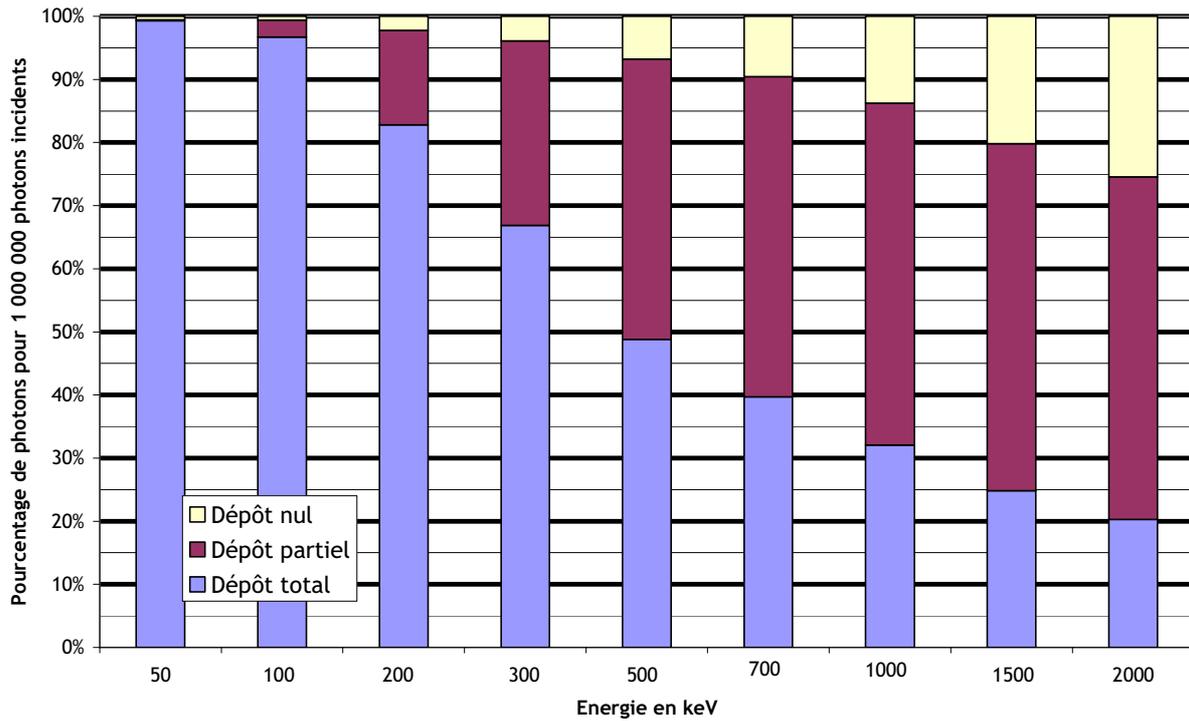
### 2.2.3. Répartition du dépôt d'énergie en fonction de l'énergie incidente

Enfin, une dernière étude s'est portée sur la distribution du dépôt d'énergie effectué dans le cristal en fonction de l'énergie incidente. La simulation a été faite pour différentes énergies couvrant la gamme 0 – 2000 keV et a pris en compte trois types de dépôt :

- le dépôt d'énergie total,
- le dépôt d'énergie partiel avec fuite du photon hors du cristal,
- et le dépôt nul avec un photon traversant entièrement le cristal sans interaction.

La figure 2.7 montre la distribution en pourcentage des trois types de dépôt variant en fonction de l'énergie incidente.

Le dépôt d'énergie total, correspondant à un photon disparaissant dans le cristal, est à son maximum pour les énergies de photons faibles ( $E = 50$  keV) et baisse petit à petit lorsque l'énergie augmente pour atteindre 20 % à 2000 keV. Cette baisse se traduit donc par la sortie des photons incidents qui se divise en deux catégories.



**Figure 2.7 : distribution des différents dépôts d'énergie pour un flux incident parallèle.**

La première est celle des photons déposant partiellement de l'énergie et sortant ensuite du cristal. Sa proportion augmente jusqu'à environ 700 keV et reste constante pour les énergies supérieures.

La deuxième est celle des photons qui traversent en ne subissant aucune interaction donc en gardant leur énergie initiale tout le long de leur parcours. Cette distribution augmente avec l'énergie pour atteindre 25 % des photons traversant pour une énergie incidente de 2000 keV.

## 2.3. La modélisation du détecteur

### 2.3.1. Le modèle du détecteur

La modélisation du détecteur a été effectuée avant le début de ce travail de thèse [34]. Dans une première étape, le modèle géométrique du détecteur a été transcrit dans le code GEANT 3 à partir des éléments fournis par la fiche de spécifications « Monte Carlo » du constructeur (figure 2.8, à gauche). Il est à noter que certaines de ces informations sont incorrectes : le détecteur a en réalité une fenêtre en aluminium (épaisseur 1,3 mm) et non en béryllium comme indiqué sur ce plan. Cette difficulté à obtenir des données fiables se retrouve souvent dans la littérature [35]. Enfin les données constructeur sont incomplètes, ne donnant pas d'informations ni sur la matière située derrière le cristal, ni sur la zone d'implantation à l'intérieur du cristal. Les zones mortes et les volumes sont très mal connus, les distances peuvent changer avec la mise en froid, le cristal n'est pas toujours cylindrique. La variation de la géométrie du détecteur dans la simulation pour reproduire au mieux les données expérimentales est donc un paramètre important de la modélisation.

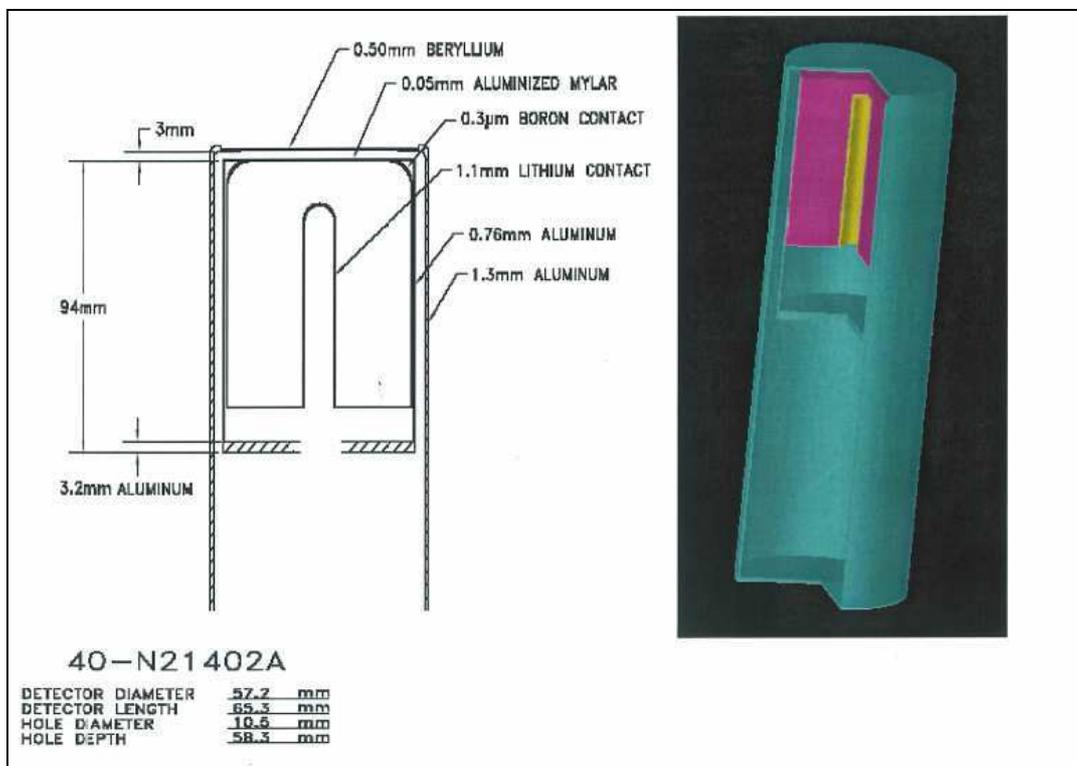


Figure 2.8 : données techniques du constructeur à gauche et modèle Monte Carlo du détecteur à droite (détecteur portable ORTEC de type N, 35 % d'efficacité relative)

La modélisation a été affinée avec l'ajout de la partie arrière du détecteur. Les données ont été soit mesurées directement sur le cryostat, soit extrapolées à partir des données mesurées après ouverture du cryostat d'un spectromètre Ge hors service. Ainsi par exemple, une fine feuille d'indium servant de contact électrique a été rajoutée sur le côté du cristal. Les schémas 3D et 2D de cette nouvelle configuration sont présentés en figure 2.9 à côté de la photo du détecteur utilisé. La configuration comprend maintenant le cryostat, la canne permettant d'établir le contact thermique avec le cristal, et enfin le cache du préamplificateur. Ceci permet de prendre en compte, au mieux des données disponibles, les diffusions qui interviennent dans la partie arrière du détecteur et pouvant déposer de l'énergie dans le cristal.

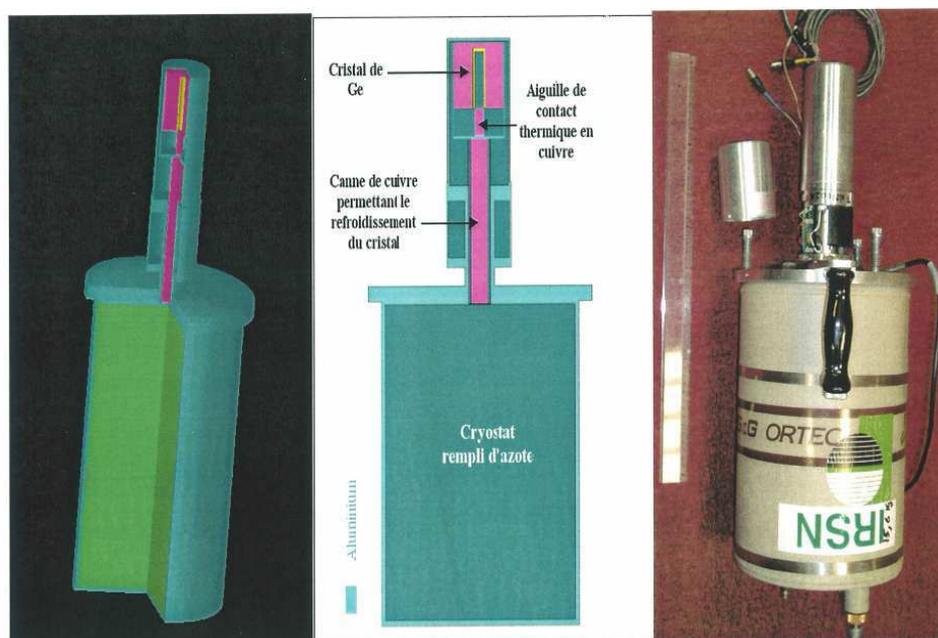


Figure 2.9 : coupe du modèle Monte Carlo amélioré, schéma explicatif et photo du détecteur Hannibal.

### 2.3.2. Validation du modèle Monte Carlo

Afin de valider le modèle Monte Carlo pour le pic d'absorption totale, une comparaison entre une série de mesures expérimentales et les simulations correspondantes a été effectuée pour deux types de mesure, une mesure axiale et une mesure avec une variation angulaire.

L'efficacité de détection pour un flux axial ( $N_0/\Phi$ ) est définie comme le rapport entre le taux de comptage du pic d'absorption totale de la transition gamma considérée et le flux parallèle arrivant sur la face avant du détecteur. Ce rapport peut être facilement calculé à

l'aide de mesures de sources ponctuelles placées à des distances supérieures à 1 mètre du capot afin d'obtenir un flux quasiment parallèle au détecteur. Le flux arrivant sur le détecteur peut être alors exprimé comme étant le nombre de photons émis par seconde par la source divisé par  $4\pi r^2$  de la configuration expérimentale ( $r$  étant la distance source – détecteur).

Le rapport  $N_0/\Phi$  étant fonction de l'énergie, il doit donc être calculé pour toute la gamme d'énergie étudiée (100 keV - 1500 keV). Pour cela, les sources  $^{133}\text{Ba}$  et  $^{152}\text{Eu}$  ont été choisies car elles présentent une multitude d'émissions (photons d'énergie différente) bien réparties dans cette gamme d'énergie. La figure 2.10 présente les résultats de la simulation (ligne et points bleus) et de l'expérience (points mauves) donnant la valeur de  $N_0/\Phi$  en fonction de l'énergie.

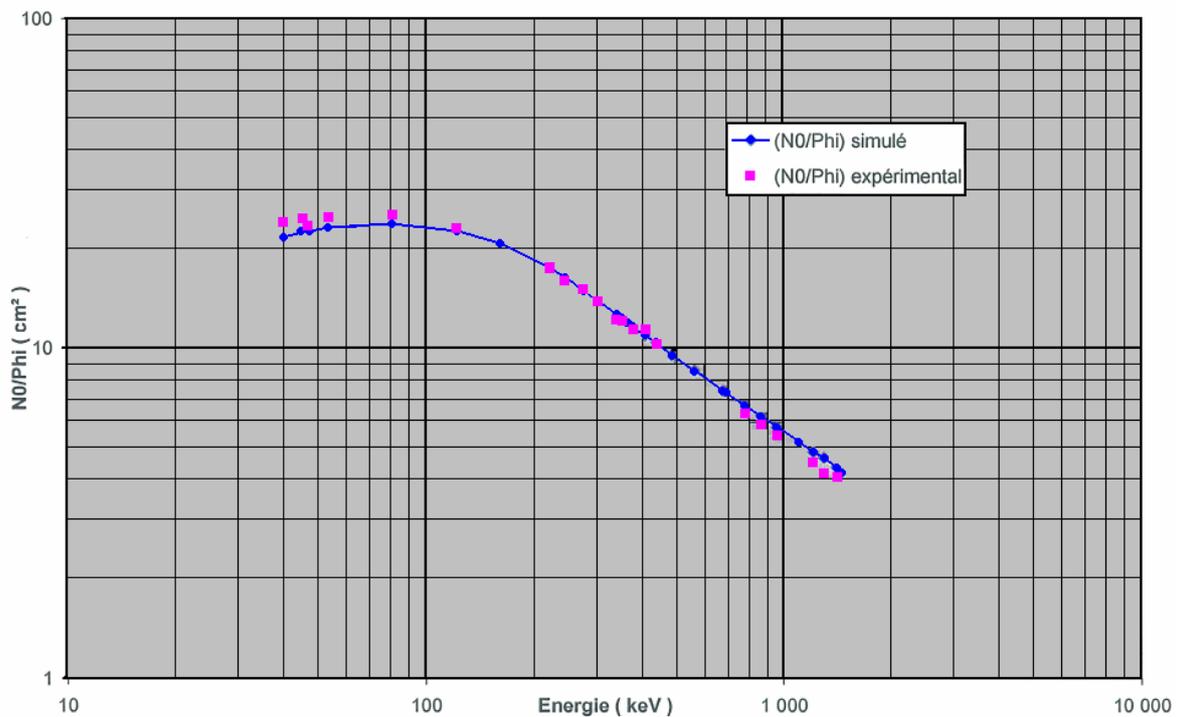


Figure 2.10 : variation de  $N_0/\Phi$  (expérimental et simulé) en fonction de l'énergie.

Un bon accord est observé entre les résultats de la simulation et ceux de la mesure. A 40 keV, l'écart entre l'expérience et la simulation est de l'ordre de 9 %, alors qu'à 1408 keV, il n'est plus que de 3 %. A basse énergie, le modèle est plus sensible aux inexactitudes de la géométrie. En effet dans ce domaine de basse énergie, les interactions des photons avec la matière sont dominées par l'effet photoélectrique. Le flux de photons faiblement énergétiques arrivant sur le cristal de germanium est très sensible à toute variation de l'épaisseur des absorbants éventuels (épaisseur du capot, isolants thermiques).

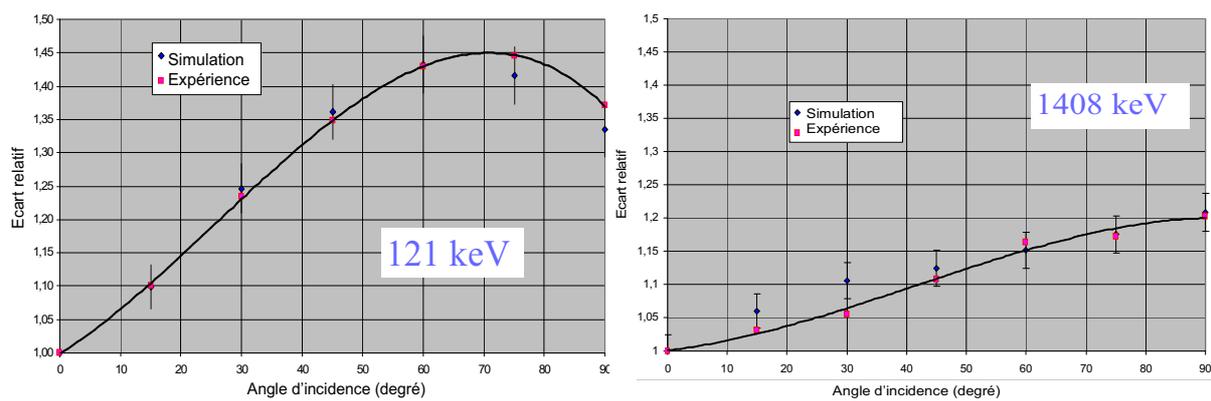
Cette courbe permet de connaître le taux de comptage du détecteur pour un flux donné de photons à une énergie donnée. Par exemple, pour une énergie de 1 MeV,  $N_0/\Phi$  vaut 5,4 cm<sup>2</sup>. Ceci signifie que pour un flux incident de 1 photon par cm<sup>2</sup> et par seconde, on a un taux de comptage de 5,4 évènements détectés par seconde dans le cristal de germanium, sur le pic d'absorption totale.

Un autre paramètre permettant de valider le modèle est la réponse angulaire du détecteur. Il traduit la variation de  $N_0/\Phi$  en fonction de l'angle d'incidence du flux de photons normalisé à l'angle d'incidence normal. Ainsi, pour un angle d'incidence de 90°, il est apparu évident que l'épaisseur d'aluminium était sous-estimée par rapport à la réalité. Le tableau 2.2 présente les résultats de la mesure expérimentale pour un angle de 90° et ceux de la simulation Monte Carlo. Le taux de comptage simulé est trop élevé par rapport au taux de comptage expérimental. La dernière colonne du tableau indique la valeur de l'épaisseur d'aluminium nécessaire pour ramener le taux de comptage Monte Carlo à celui mesuré. Aux vues des valeurs de la dernière colonne, une épaisseur de 0,15 cm d'aluminium a donc été rajoutée sur les faces latérales du support du cristal de germanium et a permis d'obtenir une cohérence satisfaisante pour les comparaisons à 90°. Cette approche est purement pragmatique : elle a été nécessaire d'une part à cause du doute sur la fiabilité des données constructeur et, d'autre part par l'impossibilité de mesurer ces paramètres sans altérer le détecteur et de connaître l'efficacité de la collection des charges lors du passage d'une particule.

Energie (keV)	Coefficient d'atténuation linéique de Al	Résultat Expérimental (coups/s)	Résultat Monte Carlo (coups/s)	Epaisseur (cm) d'absorbant de Al estimée
81	0,539	1,286	1,410 ± 0,009	0,17 ± 0,01
121	0,410	1,371	1,440 ± 0,009	0,12 ± 0,01
1408	0,139	1,203	1,26 ± 0,02	0,3 ± 0,14

**Tableau 2.2 : résultats de la simulation à 90° et estimation de l'épaisseur d'aluminium manquante dans le modèle.**

La figure 2.11 présente la comparaison entre les résultats de l'expérience et ceux de la simulation avec le modèle corrigé pour une énergie de 121 keV à gauche, et, à droite, pour une énergie de 1408 keV. L'axe des ordonnées représente la variation relative de la valeur de  $N_0/\Phi$ , l'axe des abscisses représente la variation de l'angle de mesure.



**Figure 2.11 : variation de la réponse angulaire pour deux énergies.**

Une bonne cohérence est observée pour les deux énergies entre la simulation et la mesure.

## 2.4. La modélisation du flux incident

### 2.4.1. Les radionucléides naturels et artificiels

Avant d'effectuer la simulation du flux incident sur le détecteur, les principaux émetteurs gamma présents dans le sol ont été répertoriés.

Radionucléide	Activité moyenne (Bq.kg <sup>-1</sup> sec)
Famille de <sup>238</sup> U	40
Famille de <sup>232</sup> Th	40
Famille de <sup>235</sup> U	2
<sup>40</sup> K	500

Tableau 2.3 : radionucléides présents dans le sol français avec l'activité moyenne correspondante.

Le tableau 2.3 montre le niveau moyen de la radioactivité sur le territoire français [36] pour la radioactivité naturelle. Il regroupe les chaînes <sup>238</sup>U, <sup>235</sup>U et <sup>232</sup>Th dont les schémas de désintégration sont reportés sur la figure 2.12 ainsi que <sup>40</sup>K. Ces noyaux ont des périodes de décroissance extrêmement longue (~10<sup>9</sup>ans), comparables à l'âge de la Terre.

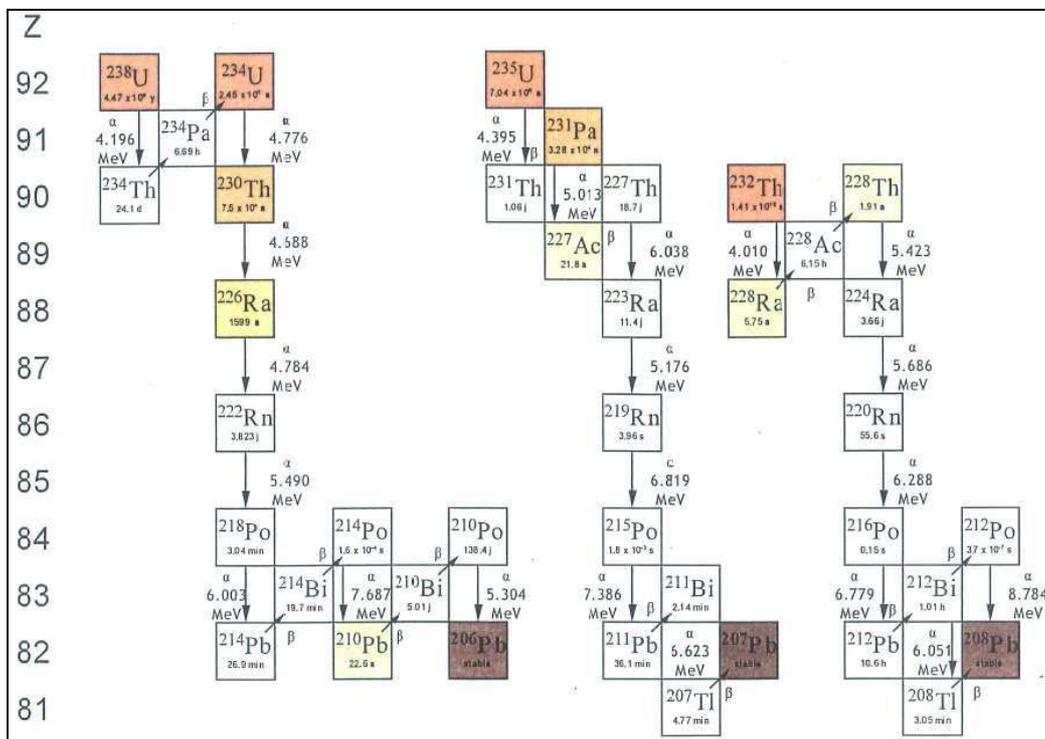
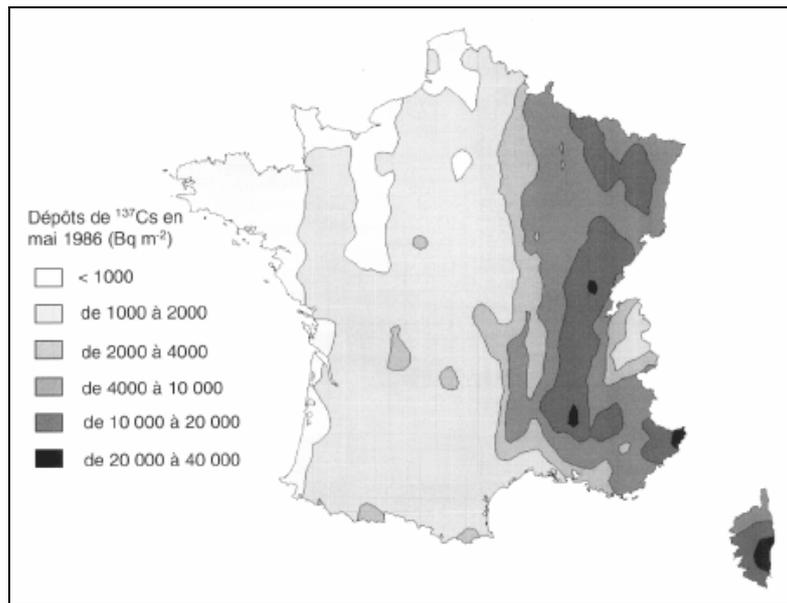


Figure 2.12 : schéma de désintégration des trois familles radioactives naturelles (l'échelle de couleur plus ou moins foncée traduit une plus ou moins longue période radioactive) [6].



**Figure 2.13 : carte des dépôts de  $^{137}\text{Cs}$  sur la France en mai 1986 [7].**

En France, à l'heure actuelle, le seul radioélément artificiel mesurable quasi-systématiquement par spectrométrie gamma *in-situ* est  $^{137}\text{Cs}$ . Il provient des essais atmosphériques et de l'accident de Tchernobyl dont le dépôt a été très hétérogène sur la France. La figure 2.13 présente la carte des dépôts en France en mai 1986 [37].

Tous ces radionucléides ( $^{238}\text{U}$ ,  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{235}\text{U}$ ,  $^{40}\text{K}$  et  $^{137}\text{Cs}$ ) sont à prendre en compte dans la simulation.

#### 2.4.2. La conception d'un modèle simplifié

La seconde étape de la modélisation *in-situ* est la simulation du flux incident sur le détecteur. Au début de ce travail, le modèle utilisé reprenait exactement la configuration expérimentale d'une mesure *in-situ* : un « univers » cylindrique dans lequel étaient placées une source de rayon considéré infini (environ 50 mètres) et de profondeur  $z$  égale à 1 m et une sphère détectrice située à 1 m au-dessus d'un sol. D'après la description du modèle (figure 2.14), l'équation du flux de photons non diffusés  $\Phi$  sortant du sol et arrivant jusqu'au détecteur s'exprime de la façon suivante :

$$\Phi = \rho \cdot \int_{z=0}^{z_{\max}} \int_{R=0}^{\infty} \int_{\varphi=0}^{2\pi} A_v(z) \frac{e^{-\mu_a r_a} \cdot e^{-\mu_s r_s}}{4\pi \cdot (r_a + r_s)^2} \cdot dz \cdot R \cdot dR \cdot d\varphi \quad \text{Équation 2.1}$$

où  $\rho$  est la densité du sol,  $A_v(z)$  est l'activité de la source en  $\text{Bq}\cdot\text{g}^{-1}$ . Le numérateur exprime l'atténuation des photons par la traversée des épaisseurs  $r_a$  et  $r_s$  correspondant respectivement aux épaisseurs d'air et de sol et le dénominateur exprime l'angle solide de la configuration.  $R$  est le rayon défini comme étant la distance entre la position de départ de la particule et la normale par rapport au sol passant par le centre de la sphère détectrice. Le volume source élémentaire  $dV$  est défini comme étant égal à  $R \cdot dR \cdot d\varphi \cdot dz$  ( $\varphi$  étant l'angle azimutal).

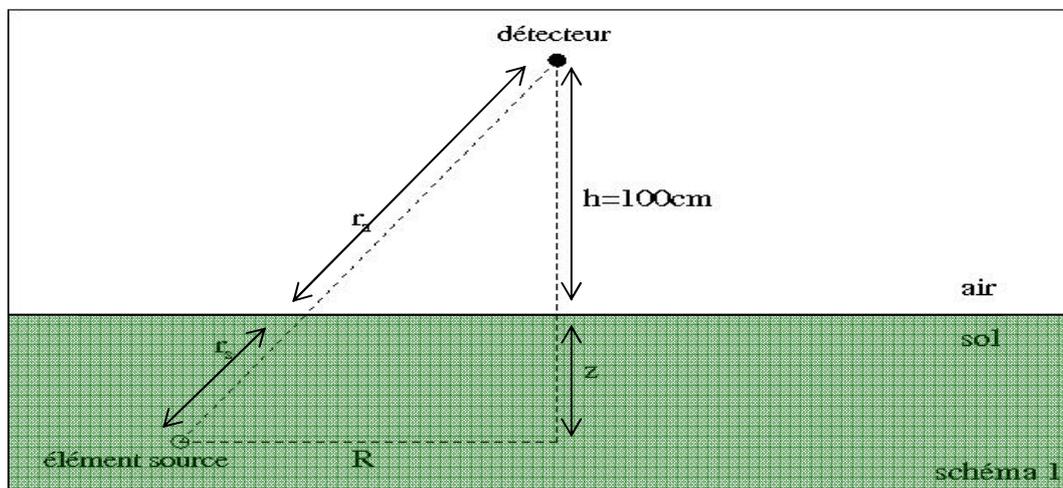


Figure 2.14 : modèle initial de simulation reprenant la configuration expérimentale *in-situ*.

L'utilisation de ce modèle engendre des temps de calcul très importants dus à la faible probabilité qu'un photon sorte du sol et atteigne le détecteur. Le temps de calcul pour la simulation du flux d'une énergie était de l'ordre de la semaine, soit environ 3 ans pour effectuer une simulation complète du flux d'un spectre *in-situ*. La seule méthode pour diminuer le temps de calcul est de diminuer les dimensions des volumes et par conséquent de diminuer la représentativité du modèle de simulation. Le choix s'est donc porté sur le développement et l'utilisation d'une autre modélisation Monte Carlo qui alliera une bonne représentativité du problème et une bonne incertitude statistique.

En utilisant les symétries cylindriques du premier modèle, un second modèle a été développé en se basant sur un élément de la littérature [38]. Le modèle considère maintenant un détecteur plan infini (1500 m de rayon) placé à un mètre au-dessus du sol d'épaisseur 1,5 m

(figure 2.15). Il apporte une probabilité d'interaction des photons avec la surface de détection très importante, permet d'obtenir une meilleure représentativité du problème *in-situ* et enfin permet un gain de temps considérable. Maintenant, les simulations pour une énergie se font en 3 minutes avec des résultats statistiquement plus intéressants. La simulation complète du flux d'un spectre *in-situ* ne prend maintenant que 3 semaines environ.

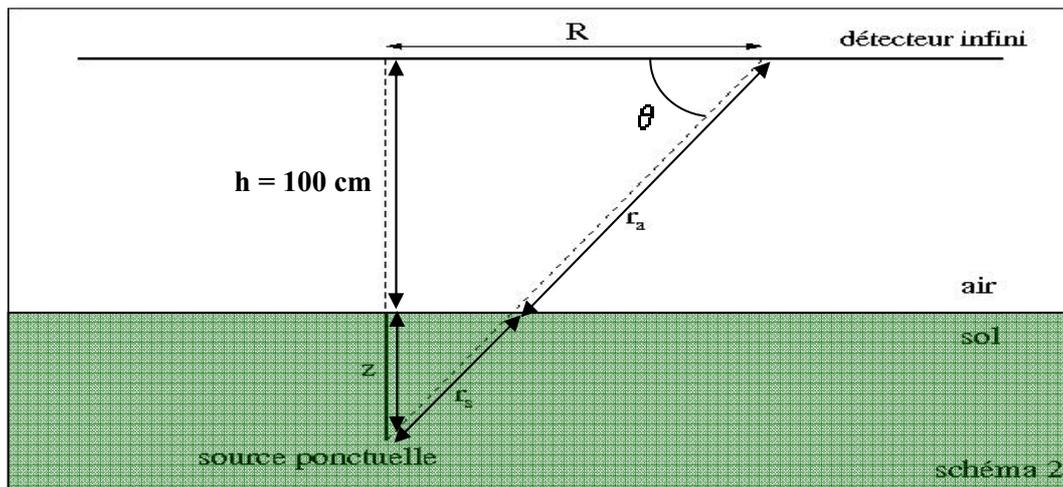


Figure 2.15 : configuration optimisée du problème *in-situ*.

Les dimensions des volumes ont été déterminées à partir de la valeur des coefficients d'atténuation linéiques dans l'air et dans le sol pour les photons les plus énergétiques. L'estimation de 7 fois ce coefficient permet d'obtenir une atténuation du flux d'un facteur 128 (annexe 2).

Dans ce modèle optimisé, l'intérêt est porté non plus sur le flux mais sur le nombre de particules par unité de temps atteignant la surface de détection. L'équation suivante exprime ce nombre de particules non diffusées N :

$$N = \int_{z=0}^{z_{\max}} \int_{R=0}^{\infty} \int_{\varphi=0}^{2\pi} A_l(z) \frac{e^{-\mu_a r_a} \cdot e^{-\mu_s r_s}}{4\pi \cdot (r_a + r_s)^2} \cdot \sin \theta \cdot dz \cdot R \cdot dR \cdot d\varphi \quad \text{Équation 2.2}$$

où  $A_l(z)$  représente l'activité linéaire de la source exprimée en  $\text{Bq} \cdot \text{cm}^{-1}$ . Toutes les autres variables ont la même signification que celles de l'équation 2.1. La variable  $\sin \theta$  a été introduite pour que la surface de détection soit perpendiculaire aux photons incidents et constante quelle que soit sa distance R de la source.

La comparaison des équations des deux modèles montre qu'elles sont semblables du point de vue de leurs variables même si elles définissent deux problématiques différentes. Pour obtenir un flux à partir du nombre de photons atteignant la surface de détection, l'équation suivante est appliquée :

$$\frac{\Phi}{\rho \cdot A_v(z)} = \frac{N}{A_l(z) \cdot \sin \theta} \quad \text{Équation 2.3}$$

Ce travail a été accepté pour publication dans la revue Radiation Protection Dosimetry. Le « preprint » donné en annexe 3 présente dans le détail les différentes étapes du développement et de la validation de ce modèle.

## 2.5. La base de données

### 2.5.1. Le principe

Le temps de simulation a été un facteur limitatif dans cette étude même avec l'utilisation du modèle simplifié permettant une convergence du calcul Monte Carlo plus rapide avec un gain de temps d'environ 50. En effet, le changement du paramètre de la distribution dans le sol a pour conséquence de devoir relancer les calculs. Afin d'éviter d'effectuer une simulation pour chaque configuration de mesure et de sources, une base de données de flux incidents a été construite.

Elle est basée sur la simulation d'une distribution homogène dans le sol pour tous les radionucléides. Cette simulation globale permet de prendre en compte toutes les particules incidentes sur le détecteur et permet de les sélectionner en fonction de différents paramètres. En effet, la base de données est constituée de l'enregistrement des différentes variables définissant le flux arrivant sur le détecteur : il y a, pour chaque particule prise une à une, l'énergie de départ et d'arrivée, l'impulsion et la position de départ et d'arrivée ainsi que le type de particule.

La figure 2.16 présente le principe d'enregistrement des paramètres du flux incident au cours de la simulation. Cette méthode permet d'associer et de conserver la correspondance des paramètres avec la particule simulée.

### 2.5.2. Le principe d'utilisation de la base de données

La mise en situation de la simulation par rapport aux paramètres de mesure est faite à partir d'une requête appropriée de la base de données. En effet, à la suite d'une mesure expérimentale *in-situ*, l'utilisation de la base de données comme un générateur de flux s'effectue en sélectionnant les particules voulues en fonction de la configuration expérimentale, par exemple, par en fonction de leur rayon d'origine, de leur profondeur d'origine, ... .

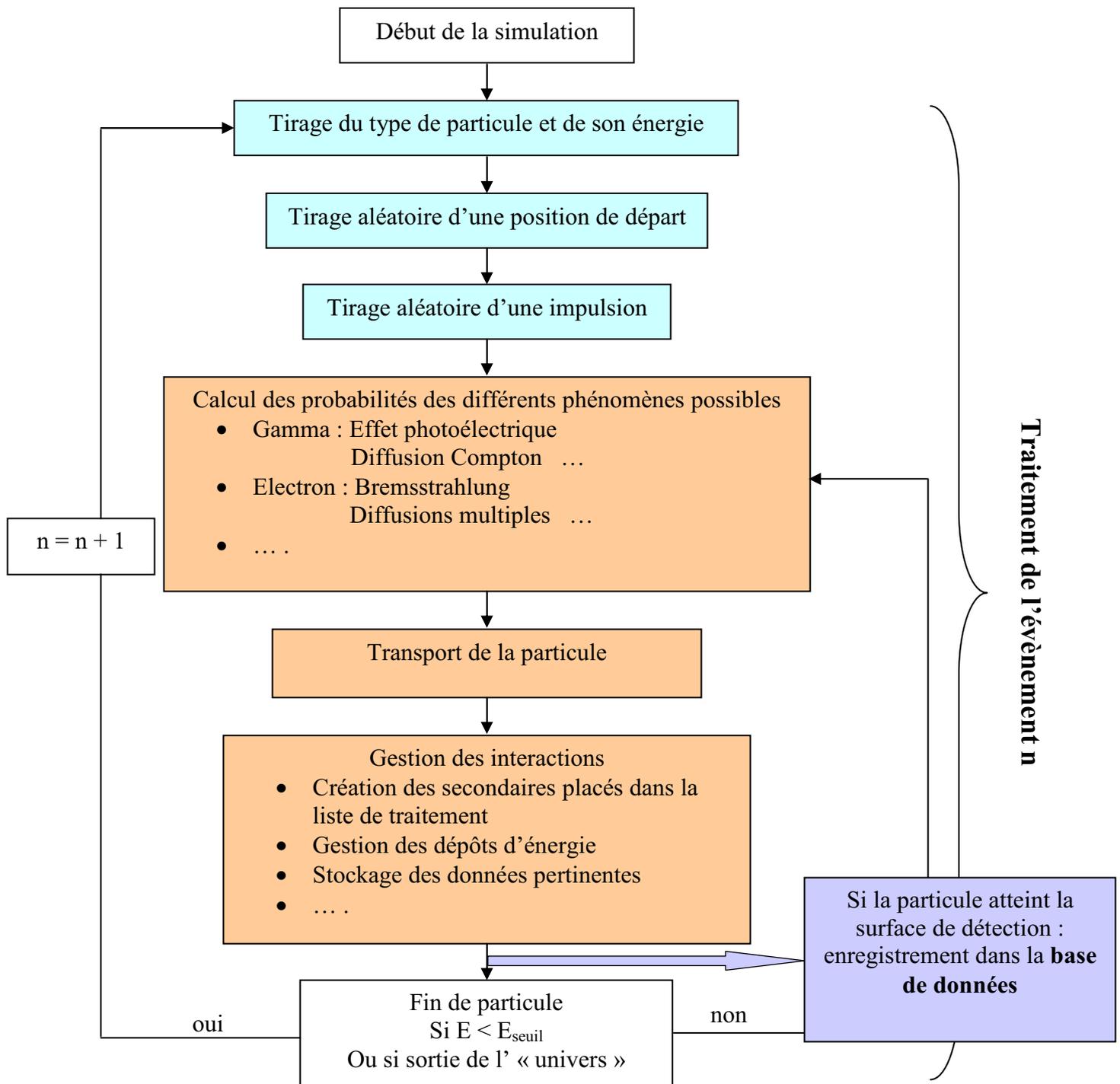


Figure 2.16 : principe de construction de la base de données.

Ensuite, les particules du spectre de flux incident résultant sont introduites dans un code de convolution qui relie le flux incident sur le détecteur avec les réponses du détecteur. Ce code permet d'obtenir un spectre *in-situ* simulé comparable à un spectre *in-situ* mesuré. La figure 2.17 présente la deuxième étape de la base de données permettant la sélection des particules pertinentes faite à partir d'une configuration expérimentale.

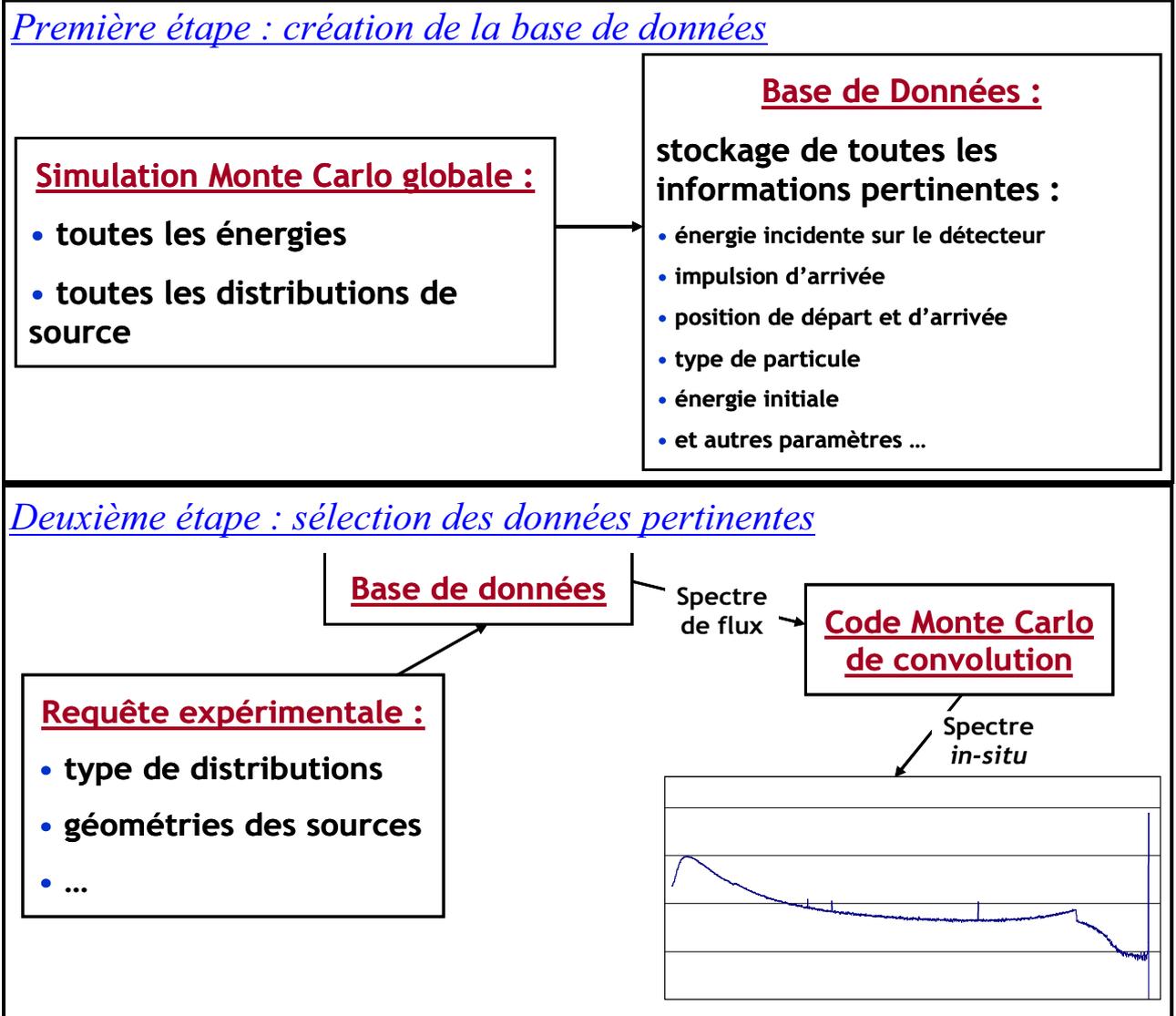


Figure 2.17 : principe de sélection des photons dans la base de données

### 2.5.3. Quelques exemples d'utilisation

La base de données telle qu'elle est construite permet de pouvoir l'utiliser de différentes façons. Dans ce paragraphe, deux exemples d'utilisation seront fournis.

Le premier est l'utilisation de la base de données pour comprendre les phénomènes physiques mis en jeu lors d'une mesure *in-situ*. En effet, la possibilité d'enregistrer n'importe quelle variable des particules dans la base de données permet de pouvoir accéder à l'historique de chaque événement incident sur le détecteur. En fait, connaître l'historique de chaque particule incidente, c'est connaître par exemple, le type d'interactions subies, à quel endroit elles ont été subies, l'énergie qui a été perdue, ... . Un exemple de cette utilisation et de ces résultats

seront présentés dans le chapitre 3.1 pour comprendre la physique mise en jeu dans la mesure *in-situ*.

Une deuxième utilisation possible est de connaître la contribution des différentes sources de radioactivité présentes sur le spectre *in-situ* total. La figure 2.18 schématise une configuration de mesure avec le champ de vision<sup>2</sup> du détecteur et deux zones de contamination de  $^{60}\text{Co}$  et de  $^{137}\text{Cs}$ . Le but de cette utilisation est de déduire le spectre de la zone carré et ronde et de le comparer avec le spectre *in-situ* total. Pour déterminer le spectre de chaque aire, une sélection des particules incidentes du radionucléide présent dans l'aire considérée est effectuée en fonction de la position de départ. Le spectre de flux incident est ainsi obtenu, normalisé à l'activité du radionucléide et enfin comparé avec le spectre de flux incident total.

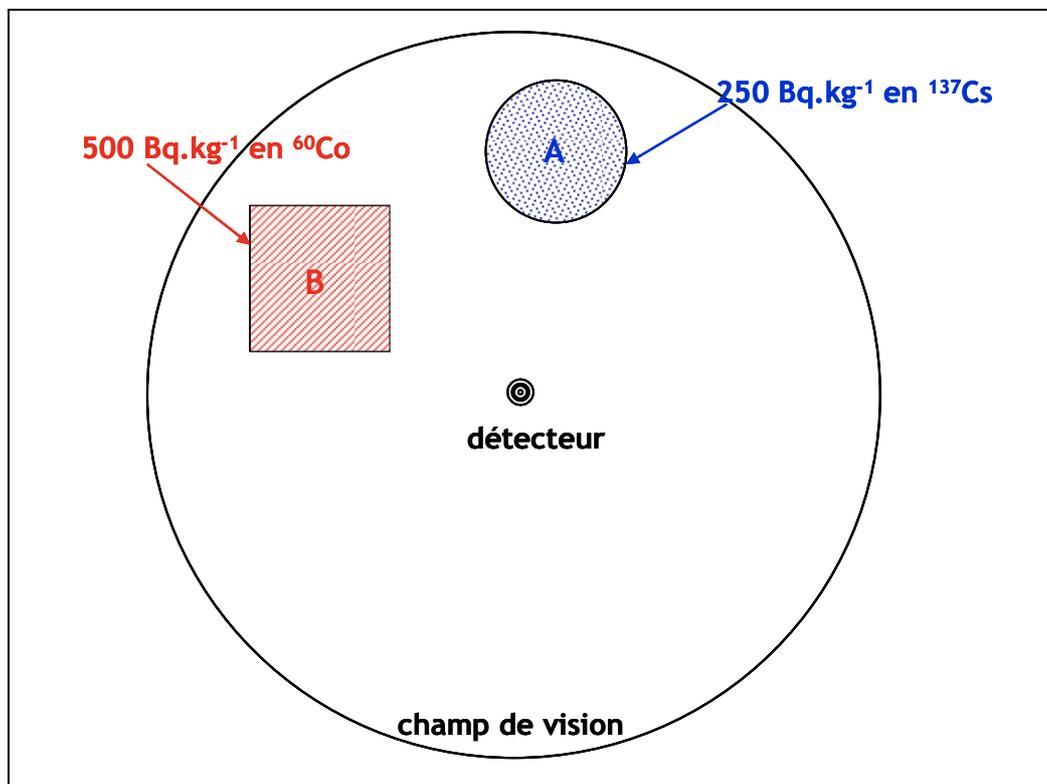


Figure 2.18 : exemple de sélection de surface dans la base de sonnées.

Une utilisation similaire sera présentée dans le chapitre 4.4 pour comprendre la physique d'une mesure effectuée lors de l'intercomparaison ISIGAMMA 2005.

<sup>2</sup> Surface du sol correspondant à 90 % des photons enregistrés.

#### 2.5.4. *La simulation d'une distribution exponentielle de l'activité dans le sol*

La distribution homogène de la base de données peut être utilisée à la construction d'une distribution exponentielle d'équation 2.4 :

$$A(z) = A_0 \cdot \exp\left(-\frac{\zeta(z)}{\beta}\right) \quad \text{Équation 2.4}$$

où  $A_0$  est l'activité par unité de masse à la surface du sol (en Bq.g<sup>-1</sup>) et  $\beta$  est le paramètre de masse de relaxation (en g.cm<sup>-2</sup>) définissant la forme de l'exponentielle. Le paramètre [5]  $\zeta$ , étant la masse par unité de surface (g.cm<sup>-2</sup>) à une profondeur  $z$  (cm) est exprimée comme :

$$\zeta(z) = \int_0^z \rho(z') dz' \quad \text{Équation 2.5}$$

où  $\rho$  est la densité du sol (en g.cm<sup>-3</sup>).

La figure 2.19 présente l'activité en fonction de la profondeur pour une distribution homogène ainsi que pour différentes distributions exponentielles dans le cas où la densité est indépendante de la profondeur et égale à 1,6 g.cm<sup>-3</sup>. La distribution homogène a permis de calculer la réponse impulsionnelle du système. A partir de cette réponse impulsionnelle, pour calculer une réponse à une distribution exponentielle, le système est découpé en tranches de profondeur appropriée à laquelle la valeur de l'exponentielle de chaque tranche est appliquée.

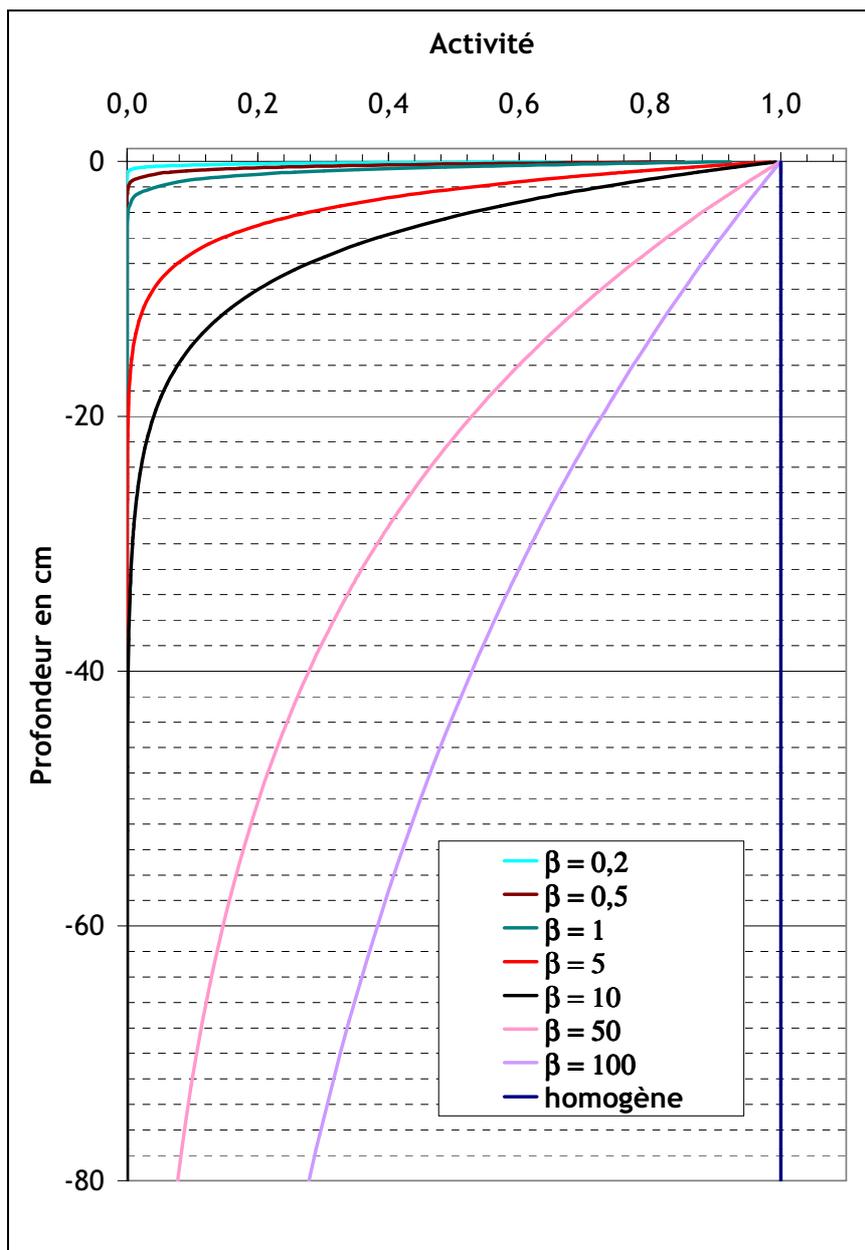


Figure 2.19 : activité unitaire en fonction de la profondeur pour une distribution homogène et pour différentes distributions exponentielles.

L'ensemble est ensuite normalisé par le rapport de l'intégrale de la distribution homogène par celle de la distribution exponentielle. D'un point de vue pratique (figure 2.20), les tranches sont sélectionnées dans la base de données pour obtenir un spectre. Ensuite en appliquant les différents facteurs (tableau 2.4), le spectre d'une distribution exponentielle est obtenu (figure 2.21).

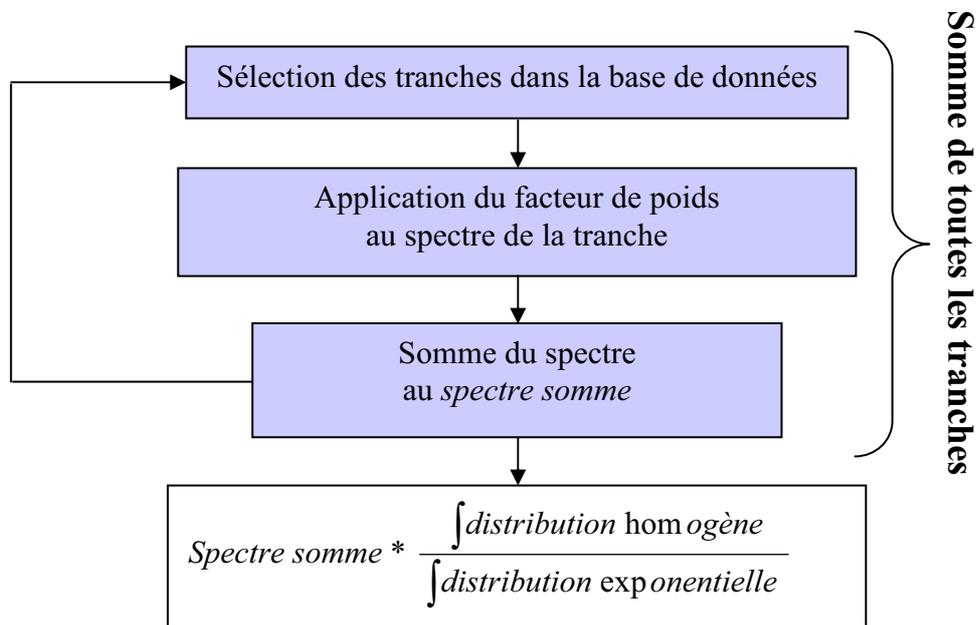
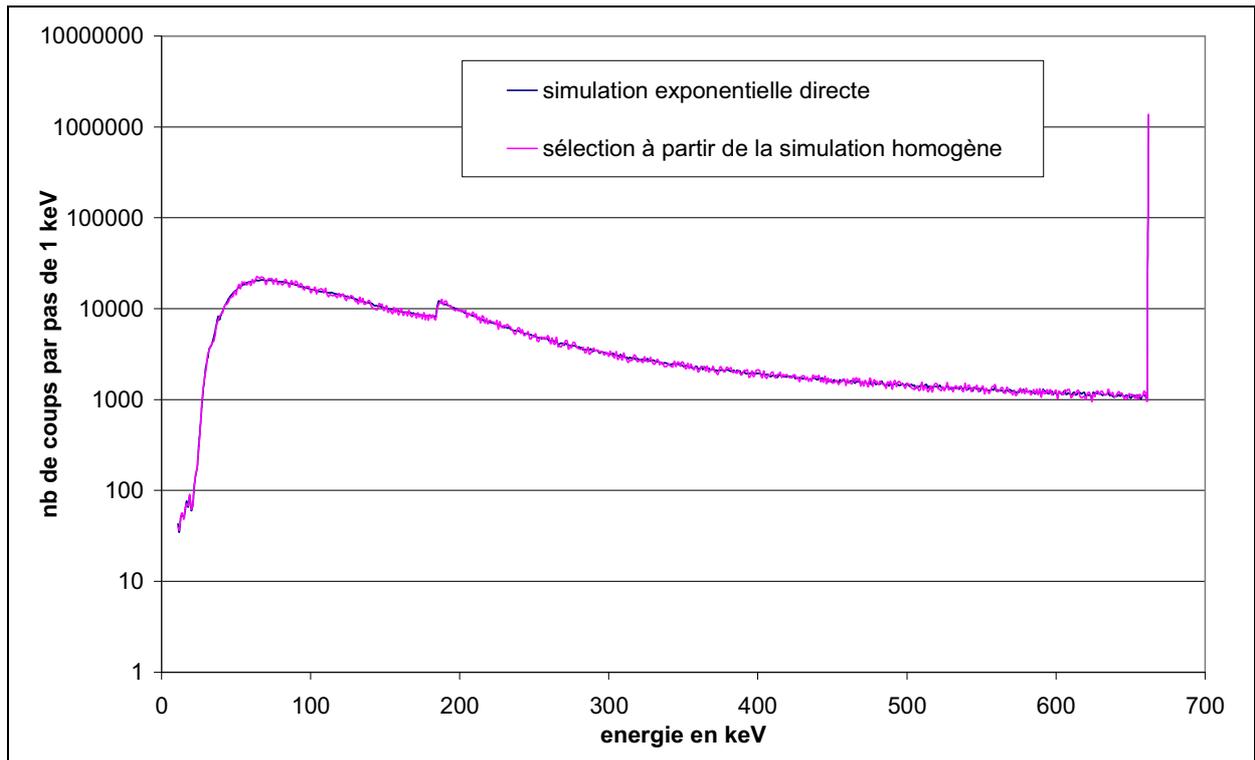


Figure 2.20 : principe de construction d'un spectre d'une distribution exponentielle.

$\beta$ (en g/cm <sup>2</sup> )	Facteur de correction
0,2	1250
0,3	833
0,5	500
1	250
2	125
3	83,33
5	50
10	25
20	12,5
50	5
100	2,5

Tableau 2.4 : facteurs de correction à appliquer au spectre issu de la base de données.



**Figure 2.21 : comparaison du spectre du flux incident issu de la base de données et celui issu de la simulation directe pour une distribution exponentielle de paramètre  $\beta=3 \text{ g.cm}^{-2}$  pour le  $^{137}\text{Cs}$ .**

La validité de cette approche est illustrée sur la figure 2.21 où sont comparés le spectre obtenu par cette méthode (en rose) et celui obtenu par un calcul Monte Carlo direct de la distribution exponentielle dans le sol (en bleu). Il y a une parfaite superposition des deux spectres de flux incident.

## 2.6. La convolution des modèles

Dans cette dernière étape, le flux incident va être convolué avec la fonction de réponse du détecteur par l'intermédiaire d'un nouveau code de simulation Monte Carlo. Pour cela, les particules issues de sélections faites dans la base de données des flux (chapitre 2.4) vont être utilisées comme données d'entrée du code comprenant le modèle géométrique du détecteur (chapitre 2.3). Un nouveau calcul Monte Carlo est ainsi réalisé.

### 2.6.1. Le principe de convolution

Une difficulté subsiste sur la méthode à appliquer un flux calculé en un point infinitésimal sur le modèle géométrique du détecteur. Cette difficulté a été levée en transférant le flux en un point infinitésimal sur une sphère englobant entièrement le détecteur.

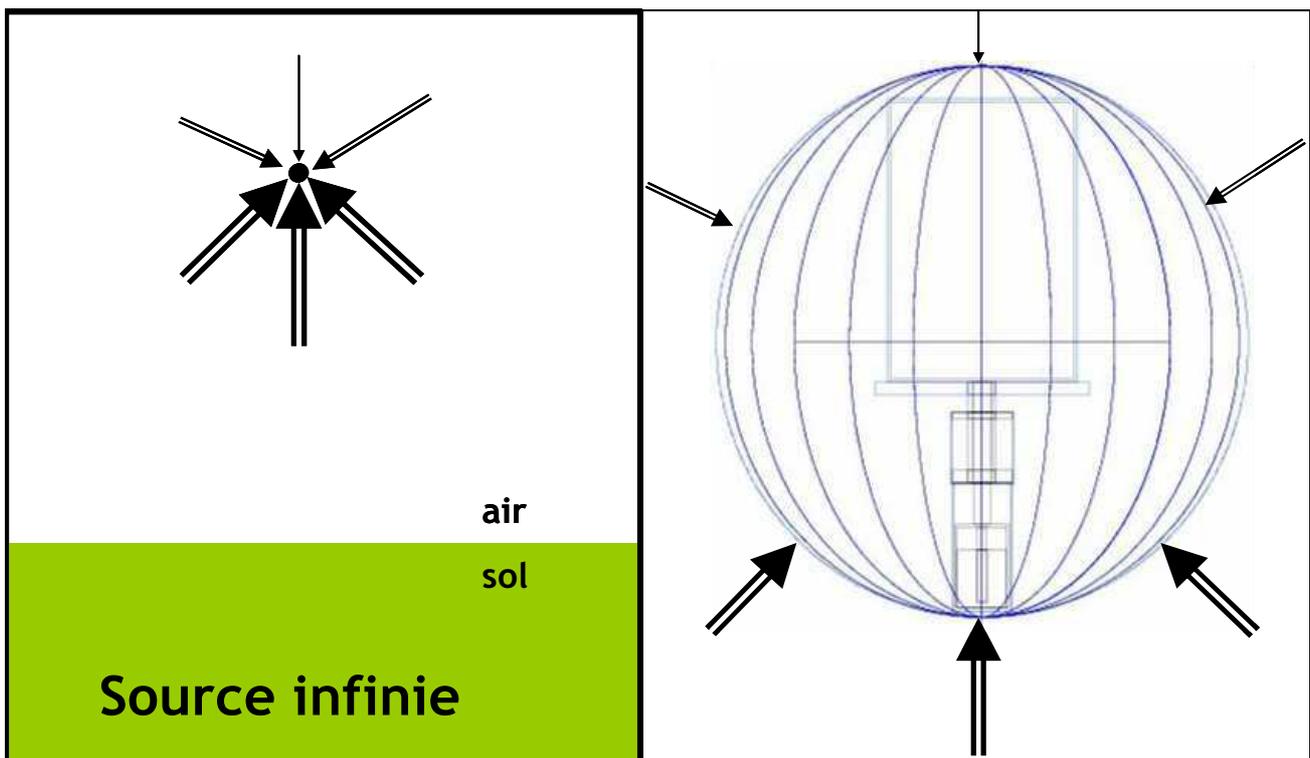


Figure 2.22 : principe du passage d'un flux en un point à un flux sur une sphère.

La figure 2.22 montre, schématiquement, sur la gauche, le flux incident en un point avec des épaisseurs de flèches grandissant avec le nombre de photons incidents, et sur la droite la répartition de ce flux sur la sphère avec les mêmes épaisseurs de flèche.

### 2.6.2. Les détails du code

Pour effectuer ce transfert, chaque particule incidente est redistribuée sur la sphère en fonction de son angle d'impulsion d'arrivée sur le point. La position sur la sphère est fixée en déterminant les points d'interaction de la sphère avec la droite passant par le centre de la sphère et ayant comme vecteur directeur, l'impulsion de la particule incidente.

Sur les deux points déterminés, celui choisi comme position sur la sphère et celui se situant en amont du point central de la sphère par rapport au sens du vecteur directeur. Ce point sert de centre à la construction d'un disque tangent à la sphère utilisé comme surface de départ pour la particule (figure 2.23).

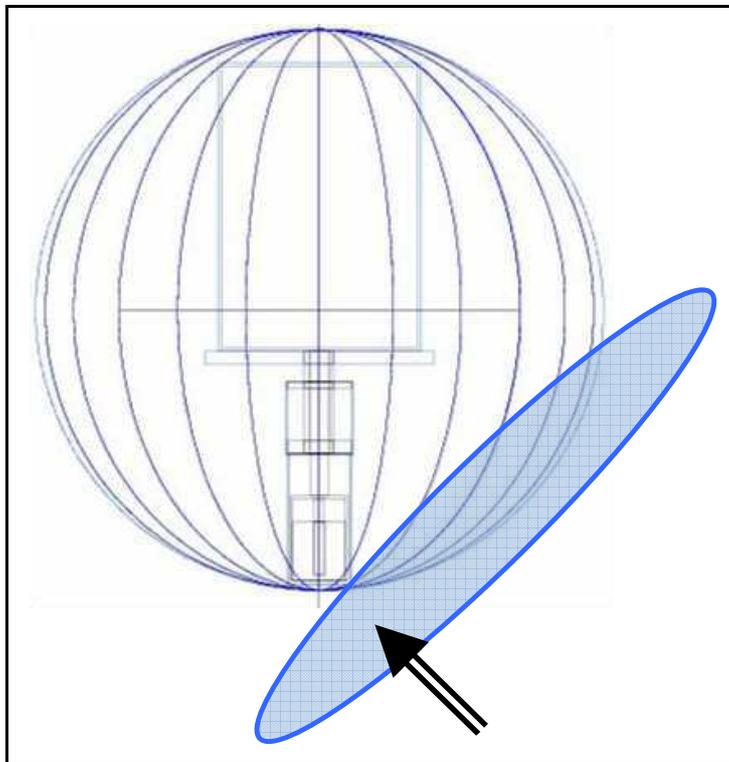


Figure 2.23 : tirage d'une position aléatoire sur le disque.

Ensuite, une position est générée aléatoirement sur ce disque, servant de départ pour la simulation de convolution. Ce tirage aléatoire fait appel à une hypothèse stipulant que le flux incident sur le point central du disque est le même sur l'ensemble de la surface ; c'est-à-dire, l'hypothèse que le flux est constant quelle que soit la hauteur de la position de départ du flux.

Cette hypothèse se vérifie avec les graphes de la figure 2.24 montrant la variation du flux incident sur le détecteur en fonction de la hauteur de détection pour différentes énergies.

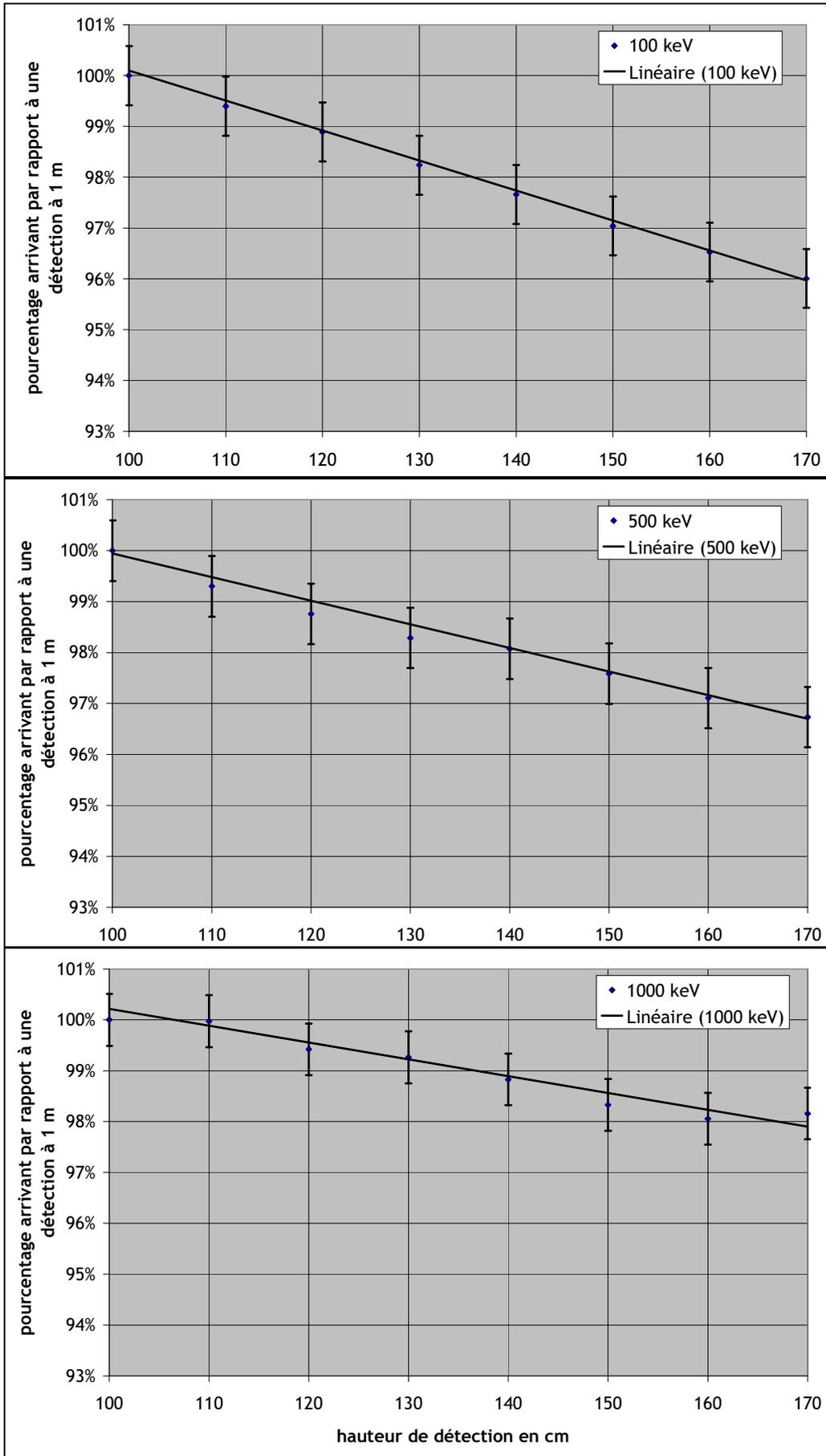


Figure 2.24 : variation du flux incident en fonction de la hauteur de détection pour différentes énergies.

La variation du flux est de l'ordre de 4 % entre une hauteur de détection à 100 cm et une à 170 cm (hauteur maximale de la sphère) pour une énergie de 100 keV. Cette variation est de l'ordre de 3 % pour une énergie initiale de 500 keV et d'environ 2 % pour une énergie initiale de 1000 keV.

Les variations de flux sont plus importantes lorsque la hauteur de détection est élevée. La proportion du nombre de photons incident sur le haut de la sphère (170 cm sur le graphe) est beaucoup plus faible que ceux incident sur le bas de la sphère, soit sur la face avant du détecteur (100 cm). Ceci fait que les variations déjà peu élevées du flux incident sont amoindries par le fait que peu de photons proviennent de cette hauteur. Enfin pour conclure, les photons incidents par le haut du détecteur ont une très faible probabilité d'atteindre le cristal de germanium à cause de la présence du cryostat et des autres composants du détecteur. Ces variations de flux en fonction de la hauteur de départ sont donc considérées négligeables dans la suite de la modélisation.

Une fois la position aléatoire déterminée, le code de simulation prend ses coordonnées (X, Y, Z) comme données d'entrée du code. Un changement de base a été nécessaire car le repère du disque sur lequel est tirée cette position n'est pas celui utilisé par le code de simulation. La sphère a donc été choisie car le changement de base nécessaire est plus facilement géré avec un repère sphérique constant qu'avec un repère changeant suivant la surface atteinte du détecteur.

Le principe d'un changement de base est d'appliquer aux coordonnées (X, Y, Z), l'inverse d'une matrice de passage A (équation 2.6) permettant d'exprimer ces coordonnées (X, Y, Z) dans le repère utilisé par le code de simulation. Ces nouvelles coordonnées seront appelées (x, y, z).

$$A^{-1} = \frac{1}{\det} \begin{bmatrix} a_{11} & a_{12} & a_{13} \\ a_{21} & a_{22} & a_{23} \\ a_{31} & a_{32} & a_{33} \end{bmatrix} \quad \text{Équation 2.8}$$

Les coordonnées (x, y, z) s'exprime en fonction des coordonnées (X, Y, Z) de la manière décrite dans l'équation 2.7.

$$\begin{aligned}
x &= (a_{11}X + a_{12}Y + a_{13}Z) / \det \\
y &= (a_{21}X + a_{22}Y + a_{23}Z) / \det \\
z &= (a_{31}X + a_{32}Y + a_{33}Z) / \det
\end{aligned}$$

Équation 2.9

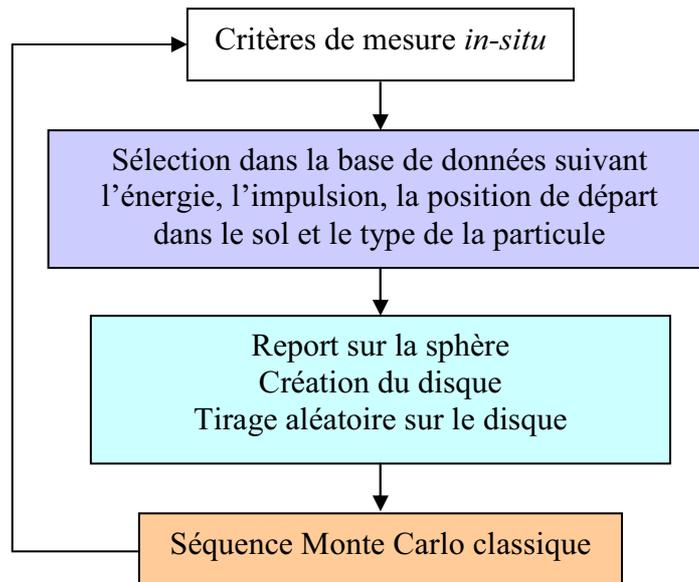
Dans le cas du code de simulation, l'inverse de la matrice de passage s'exprime comme indiqué dans l'équation 2.8 avec  $P_x$ ,  $P_y$ ,  $P_z$  définissant les composantes de l'impulsion d'arrivée de la particule incidente sur le point infinitésimal.

$$A^{-1} = \frac{1}{(-1 - P_x^2)\sqrt{(1 - P_x^2)}} \begin{bmatrix} \frac{(1 - P_x^2)/P_x P_z}{\sqrt{(1 - P_x^2)/P_x^2 P_z^2}} & 0 & P_x \\ -P_y/P_z & \frac{P_z}{\sqrt{(1 - P_x^2)}} & P_y \\ 1 & \frac{P_y}{\sqrt{(1 - P_x^2)}} & -P_z \\ \frac{1}{\sqrt{(1 - P_x^2)/P_x^2 P_z^2}} & \frac{P_y}{\sqrt{(1 - P_x^2)}} & -P_z \end{bmatrix} \quad \text{Équation 2.10}$$

En appliquant l'équation 2.7 avec les éléments de matrice indiqués dans l'équation 2.8, les coordonnées du point aléatoire sur le disque sont exprimées dans le repère utilisé par le code de simulation. Le code de simulation utilise ces coordonnées et également des particularités énergétiques de la particule comme données d'entrée.

### 2.6.3. *Résumé du principe de fonctionnement du code*

La figure 2.25 présente les différentes étapes du principe de convolution. Après le changement de référentiel, le code simule le parcours de chaque particule et enregistre l'énergie déposée dans la partie active du cristal de germanium.



**Figure 2.25 : principe de convolution du flux avec le détecteur.**

L'espace compris entre la sphère et le détecteur est rempli de vide afin de ne pas modifier le flux incident.

Cette dernière étape de simulation permet d'obtenir un spectre *in-situ* simulé comparable à un spectre *in-situ* mesuré. Une comparaison de spectres sera présentée dans le chapitre 3.4 après avoir entrepris dans un premier temps d'améliorer la compréhension de la physique mise en jeu lors d'une mesure *in-situ* et d'identifier les différentes composantes du rayonnement incident.

<b>3. EXPLOITATION : COMPREHENSION DU SPECTRE IN-SITU.....</b>	<b>68</b>
<b>3.1. L'ORIGINE ET LE PARCOURS DES PHOTONS.....</b>	<b>68</b>
3.1.1. Rayon et profondeur d'origine.....	69
3.1.2. Hauteur .....	72
<b>3.2. LES PARAMETRES DE LA MESURE.....</b>	<b>75</b>
3.2.1. La densité du sol.....	75
3.2.2. La composition du sol .....	76
3.2.3. L'humidité du sol.....	77
3.2.4. La distribution exponentielle de l'activité des radionucléides artificiels dans le sol.....	79
<b>3.3. ETUDE DES DIFFERENTES COMPOSANTES D'UN SPECTRE IN-SITU.....</b>	<b>82</b>
3.3.1. Les paramètres de simulation.....	82
3.3.2. La composante des chaînes naturelles .....	84
3.3.3. La composante des autres radionucléides présents .....	86
3.3.4. La composante des rayonnements cosmiques .....	87
3.3.5. Le bruit de fond intrinsèque .....	88
<b>3.4. COMPARAISON SIMULATION ET MESURE IN-SITU.....</b>	<b>90</b>
3.4.1. Caractéristiques du site d'ORSAY .....	90
3.4.2. Comparaisons .....	91

### 3. Exploitation : Compréhension du spectre *in-situ*

Dans ce chapitre, la modélisation décrite dans le chapitre 2 est utilisée pour comprendre la formation du flux incident. Plusieurs paramètres sont étudiés afin :

- d'améliorer la compréhension du spectre du flux incident en fonction de l'origine spatiale des photons,
- d'améliorer la compréhension de la forme du spectre du flux incident en fonction de l'histoire des photons (diffusions dans l'air, le sol...),
- d'estimer l'influence des caractéristiques du sol sur le spectre du flux incident,
- et enfin, de connaître l'effet de la distribution en fonction de la profondeur dans le sol des radionucléides.

Dans une deuxième partie, les différentes composantes d'un spectre *in-situ* sont calculées et comparées à une mesure *in-situ* réelle.

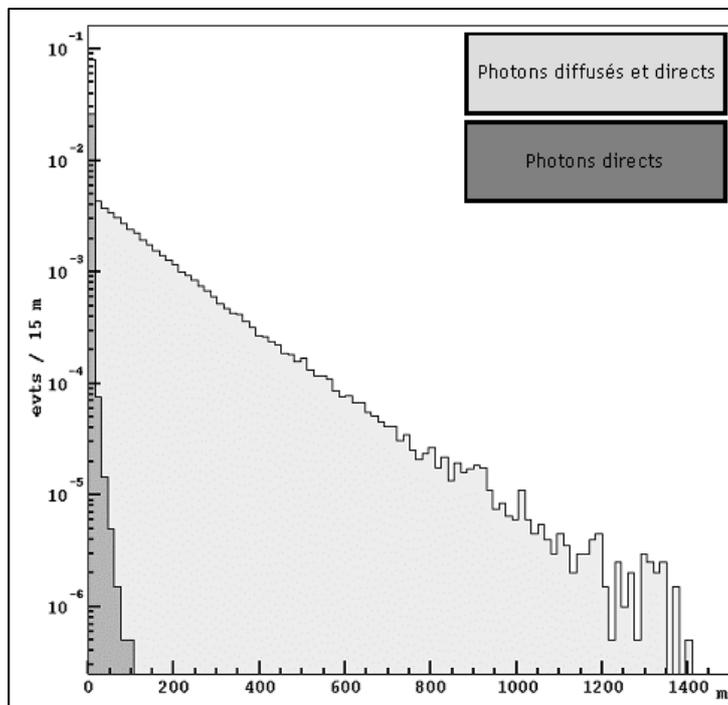
#### 3.1. *L'origine et le parcours des photons*

La représentation de la figure 1.3, présentée dans le chapitre 1, donne les ordres de grandeur de la spectrométrie gamma *in-situ* classique où on ne s'intéresse qu'au pic d'absorption totale. Le modèle pour le calcul du flux incident développé au chapitre 2.4 est utilisé dans ce chapitre pour comprendre plus finement les grandeurs de la spectrométrie *in-situ*.

Toutes les simulations du flux de ce sous-chapitre ont été réalisées pour une source de  $1 \text{ Bq.kg}^{-1}$  de distribution uniforme émettant un photon de 2614 keV avec un rapport d'embranchement de 100 %. Cette énergie a été choisie car elle est la plus élevée rencontrée en spectrométrie gamma *in-situ* et permet de définir les dimensions optimales des différents milieux du modèle de simulation. Dans les graphiques suivants, sont appelés photons directs les photons n'ayant pas eu d'interaction durant leur transport et a contrario, photons diffusés ceux ayant subi *a minima* une interaction.

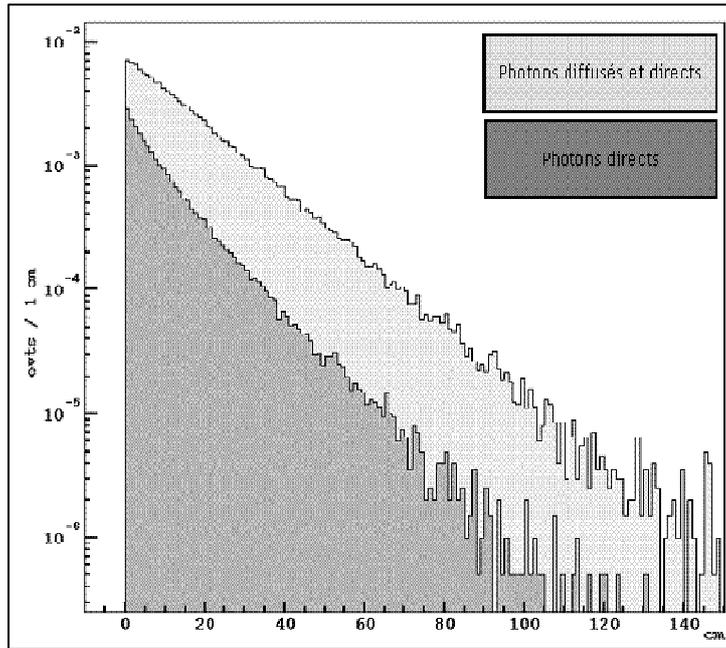
### 3.1.1. Rayon et profondeur d'origine

La figure 3.1 présente la distribution du rayon d'origine des photons incidents directs et diffusés. La majorité des photons directs (en gris foncé) proviennent de la première quinzaine de mètres. La probabilité qu'ils viennent de plus loin existe mais elle est fortement réduite. Par exemple, par rapport à la première quinzaine de mètres, la probabilité que le flux provienne d'une distance comprise entre 30 m et 45 m est réduite d'environ trois ordres de grandeur. Pour le flux incident de photons diffusés, il faut aller à  $\sim 700$  m pour observer cette même diminution. A noter que le diamètre de la modélisation a été fixé à 1500 m, ce qui correspond à une diminution du flux de photons diffusés d'environ sept ordres de grandeur. Le flux provenant d'un diamètre supérieur à 1500 m est négligé.



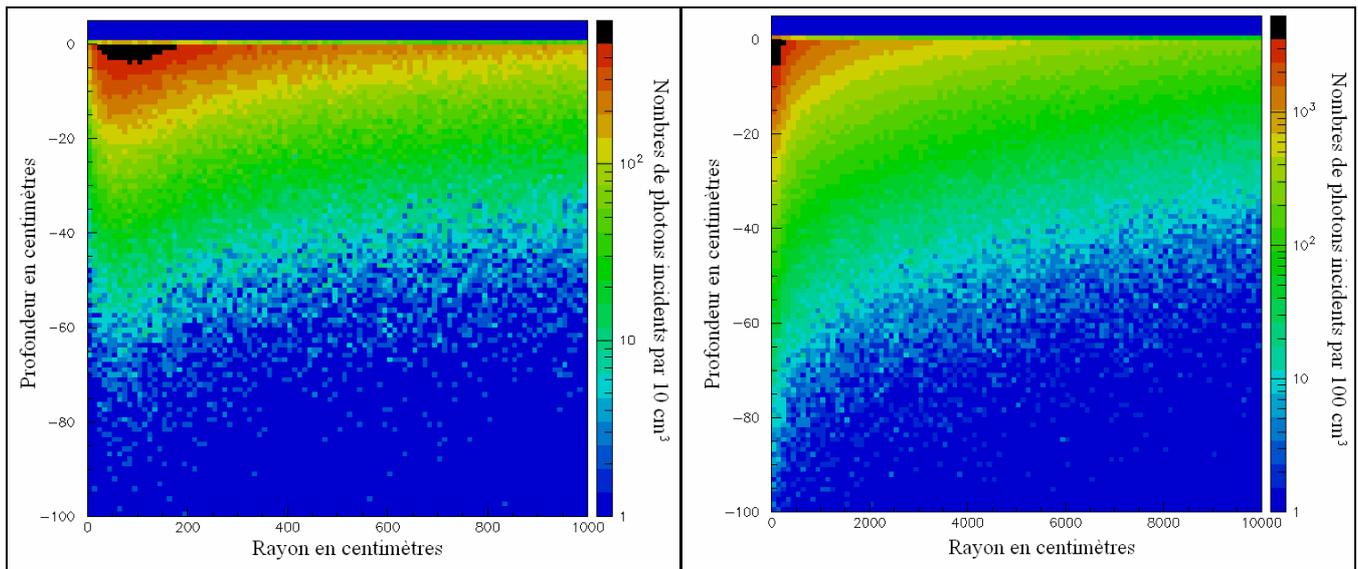
**Figure 3.1 : distribution du rayon d'origine des photons incidents diffusés et directs pour une activité de  $1 \text{ Bq.kg}^{-1}$  en photon de 2614 keV avec 100 % de rapport d'embranchement.**

La figure 3.2 montre la profondeur d'origine des photons incidents. Dans le modèle utilisé, l'épaisseur de terre considérée est de 150 cm. Cette épaisseur a été jugée suffisante pour les objectifs de ce travail. En effet, entre la surface et la profondeur 150 cm le flux des photons incidents est diminué de presque cinq ordres de grandeur.

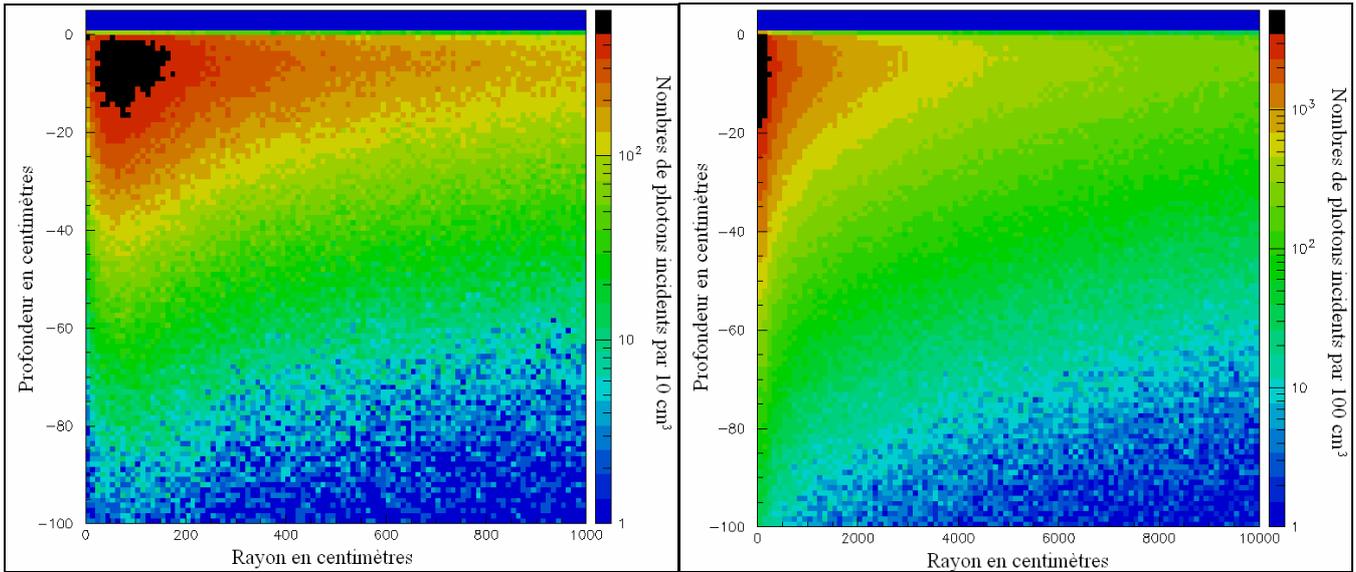


**Figure 3.2: distribution de la profondeur d'origine des photons incidents diffusés et directs pour une activité de  $1 \text{ Bq.kg}^{-1}$  en photon de 2614 keV avec 100 % de rapport d'embranchement.**

Les figures 3.3 et 3.4 présentent la profondeur d'origine des photons incidents en fonction de leur rayon pour une simulation de cinquante millions de photons initiaux. La figure 3.3 montre à gauche la profondeur d'origine des photons directs pour un rayon compris entre 0 m et 10 m, et à droite la profondeur d'origine pour un rayon allant de 0 m et 100 m. La figure 3.4 présente les mêmes résultats pour les photons incidents diffusés.



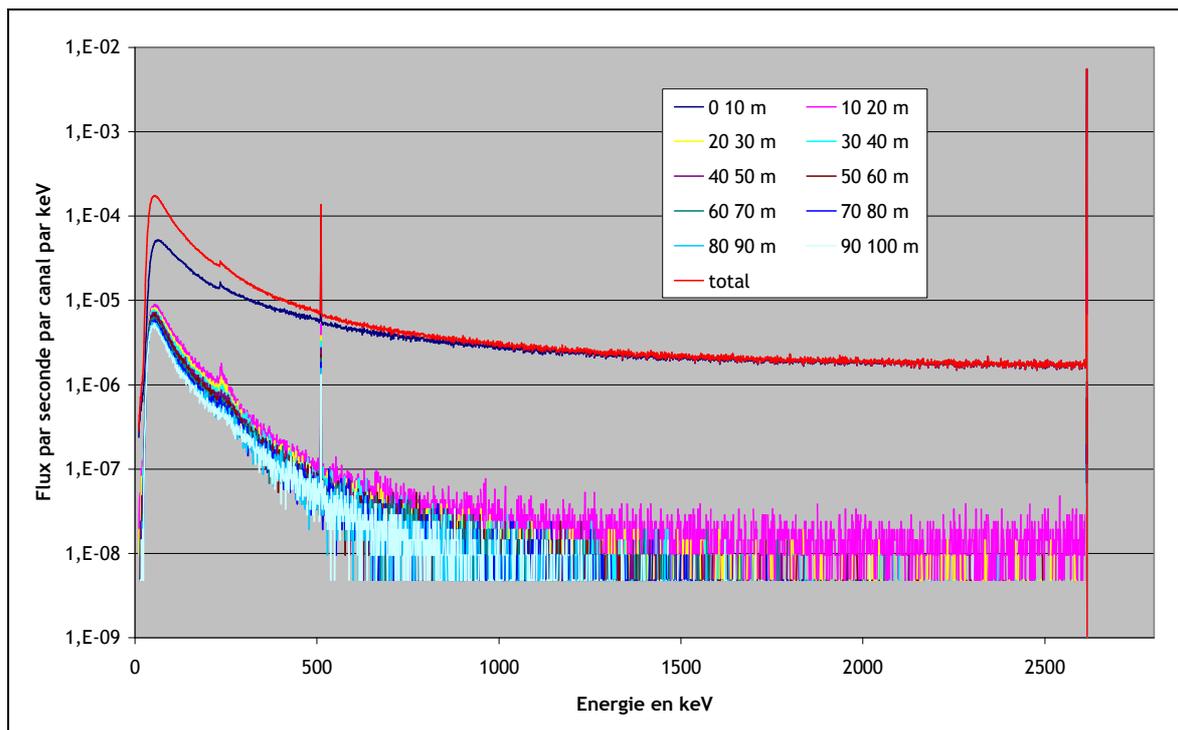
**Figure 3.3 : profondeur d'origine des photons incidents directs pour une simulation de 50 millions de photons initiaux de 2614 keV avec une distribution homogène.**



**Figure 3.4 : profondeur d'origine des photons incidents diffusés pour une simulation de 50 millions de photons initiaux de 2614 keV avec une distribution homogène.**

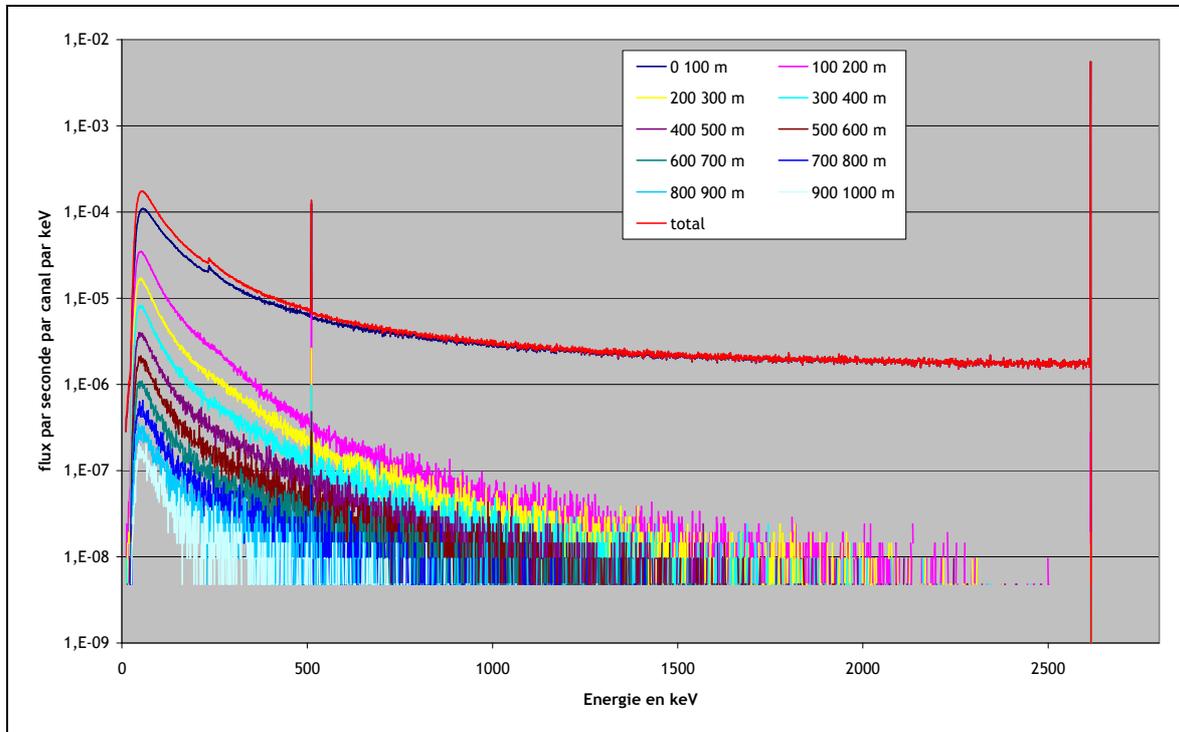
La forme de disque d'une épaisseur de quelques dizaines de centimètres de l'échantillon analysé par la spectrométrie gamma *in-situ* se retrouve sur ce graphe, il s'agit bien d'un échantillon de plusieurs tonnes.

Les figures 3.5 et 3.6 montrent les composantes du spectre du flux incident pour une simulation de photons de 2614 keV d'activité de  $1 \text{ Bq.kg}^{-1}$  avec une distribution homogène dans le sol.



**Figure 3.5 : spectres du flux incident total et pour différents rayons d'origine de photons de 2614 keV.**

La composante totale du spectre du flux incident et celle pour différents rayons d'origine des photons compris entre 0 m et 100 m par pas de 10 m sont représentées sur la figure 3.5. La même représentation est fournie par la figure 3.6 mais pour des rayons d'origine compris entre 0 m et 1000 m par pas de 100 m.



**Figure 3.6 : spectres du flux incident total et pour différents rayons d'origine de photons de 2614 keV.**

Dans les deux représentations, la partie comprise entre 500 keV et 2614 keV du spectre total du flux incident est principalement formée de la composante du spectre du flux incident due au premier pas d'intégration du rayon. Pour la partie du spectre du flux incident comprise entre 0 keV et 500 keV, la contribution des autres pas d'intégration devient plus importante mais reste en retrait comparée à la contribution du premier d'intégration du rayon. Pour résumer ces deux graphes, la composante due aux dix premiers mètres de rayon contribue à la quasi-totalité du spectre total du flux incident.

### 3.1.2. Hauteur

De la même manière que pour l'étude du rayon et de la profondeur de terre, une étude a été faite pour connaître l'influence de la hauteur d'air du modèle. La figure 3.7 présente l'énergie des photons incidents diffusés sur le détecteur en fonction de la hauteur

maximale atteinte pendant l’histoire de la particule initiale. Seuls sont présentés sur ce graphe les photons ayant dépassé la hauteur du détecteur.

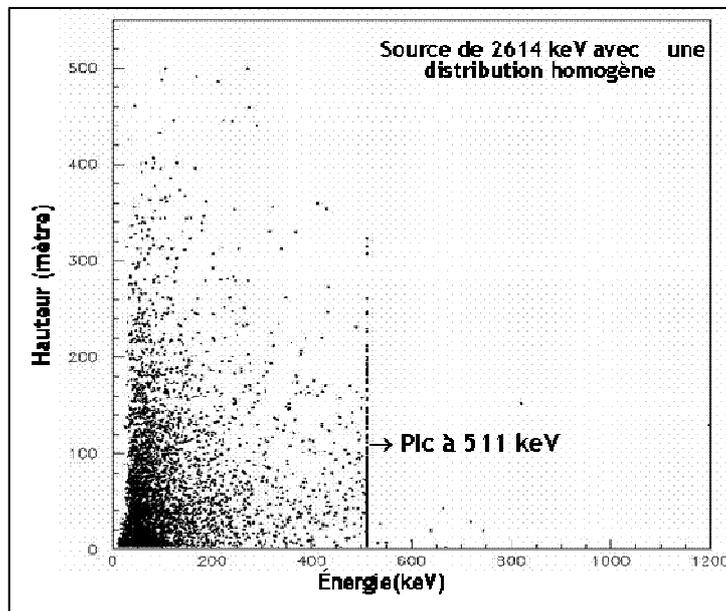


Figure 3.7 : distribution de la hauteur maximale atteinte par les photons incidents sur le détecteur pour des photons incidents diffusés pour une distribution uniforme de 2614 keV.

A noter la perte d’énergie considérable, le photon initial ayant une énergie de 2614 keV. A noter également la présence de photons de 511 keV due à la création de paires. A la vue du graphe, la hauteur de 500 mètres choisie pour l’épaisseur d’air du modèle est acceptable.

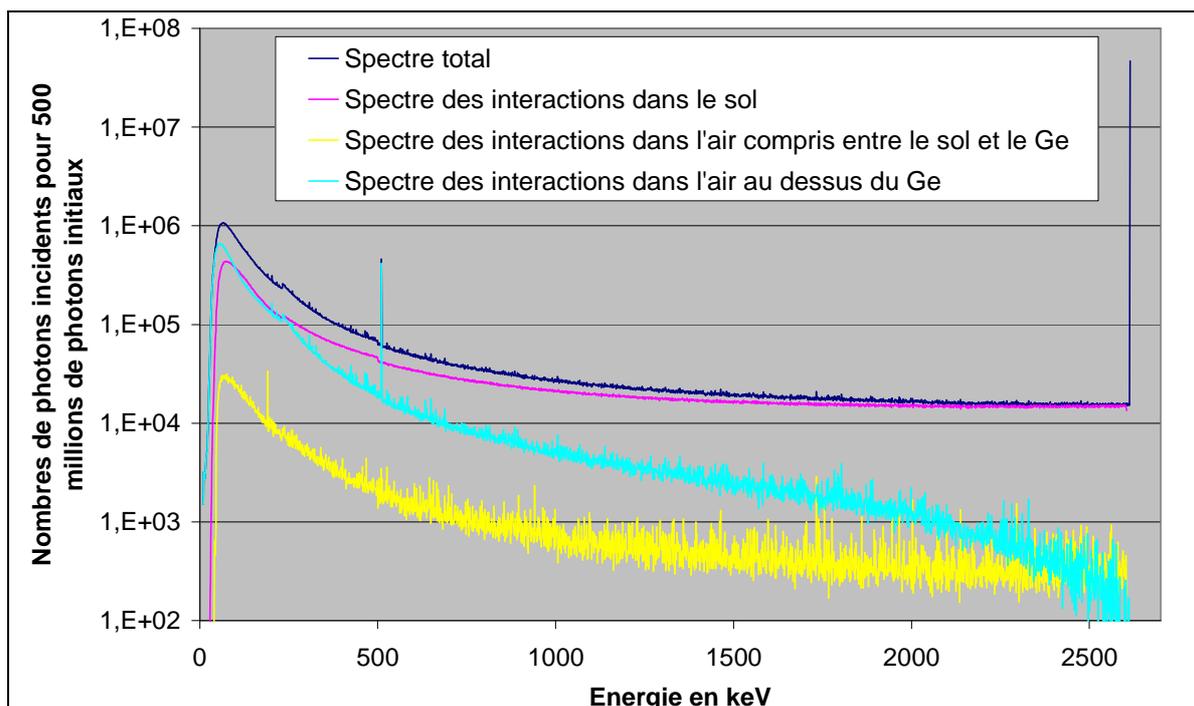


Figure 3.8 : composante du spectre total du flux incident et celle des spectres due aux différentes localisations d’interaction.

La figure 3.8 présente les composantes du spectre du flux incident en fonction de la localisation des interactions mise en jeu dans la formation d'un spectre :

- interaction dans le sol,
- interaction dans l'air compris entre le sol et la partie supérieure du cristal,
- et interaction dans l'air située au-dessus du cristal de germanium.

Grâce à cette figure, l'explication de la contribution des interactions à la forme du spectre peut être donnée : la partie située à basse énergie, 0 keV – 500 keV, s'explique par les interactions produites dans le sol et dans l'air situé au-dessus du détecteur, tandis que la partie située entre 500 keV et 2613 keV s'explique, de façon majoritaire, par les interactions produites dans le sol. De plus, il faut noter que le nombre limité d'interactions produites dans l'air situé entre le sol et le cristal de germanium apporte une faible contribution à la formation d'un spectre du flux incident.

### 3.2. Les paramètres de la mesure

Les déformations de la forme du spectre de flux incident en fonction des paramètres du sol sont étudiées dans ce chapitre.

Un sol de référence a été choisi (sol 3, ICRU53) : il a une densité de  $1,6 \text{ g.cm}^{-3}$ , une composition présentée tableau 3.1 avec une humidité de 10 %.

Elément	H	C	O	Al	Si	Fe
Sol 3	1,1	1,2	55,8	7,2	31,6	3,1

Tableau 3.1 : composition massique du sol 3 définie dans l'ICRU 53 utilisé comme sol de référence.

L'étude porte sur l'observation des changements de la forme du spectre avec la variation de ces trois paramètres. Les calculs Monte Carlo ont été faits pour une activité ayant une distribution homogène de  $1 \text{ Bq.kg}^{-1}$  et un rapport d'embranchement de 100 % pour des photons initiaux de 1 MeV. Cette énergie a été choisie pour obtenir des déformations qualitatives d'une énergie moyenne du spectre.

#### 3.2.1. La densité du sol

La figure 3.9 présente trois spectres de flux incident de photons ayant été calculés pour trois densités de sol :  $1,2 \text{ g.cm}^{-3}$ ,  $1,6 \text{ g.cm}^{-3}$  et  $2 \text{ g.cm}^{-3}$ . Il y a une superposition parfaite des trois spectres. Ce résultat a été d'abord surprenant, mais s'explique parfaitement par la notion de quantité de matière traversée. En effet, en compactant à une densité de  $2 \text{ g.cm}^{-3}$  un sol ayant une activité de  $1 \text{ Bq.kg}^{-1}$  et une densité de  $1 \text{ g.cm}^{-3}$ , son activité serait toujours la même de  $1 \text{ Bq.kg}^{-1}$ . Les photons rencontreraient toujours la même quantité de matière sur leur parcours et le spectre résultant serait identique. La seule nuance qui peut être appliquée à ce raisonnement est que le modèle Monte Carlo a une épaisseur finie et donc pour des densités très faibles, les dimensions finies du modèle peuvent ne pas être suffisantes pour prendre en compte tous les photons (cf. chapitre 3.1.1). Cependant, pour des variations raisonnables (entre  $1 \text{ g.cm}^{-3}$  et  $2 \text{ g.cm}^{-3}$ ) les dimensions du modèle sont acceptables.

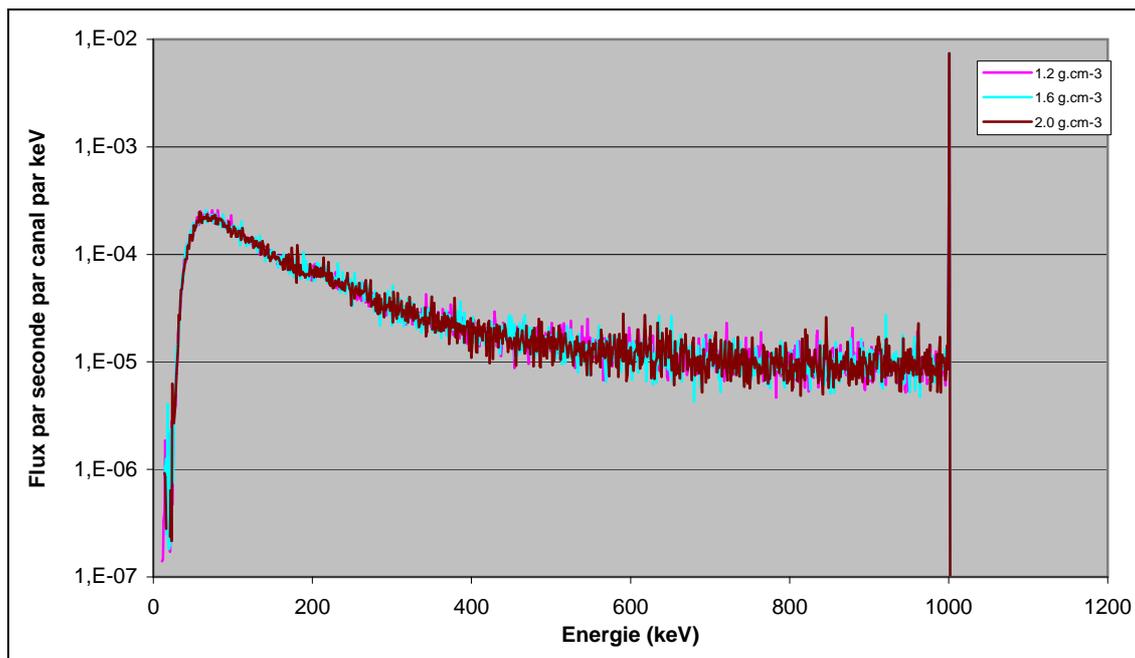


Figure 3.9 : superposition des spectres du flux incident pour trois densités différentes de sol.

### 3.2.2. La composition du sol

La deuxième partie de l'étude porte sur la variation de la forme du spectre du flux incident en fonction de différentes compositions du sol. Les cinq compositions étudiées ont été prises dans l'ICRU 53 : leurs compositions sont données dans le tableau 3.2. Trois d'entre elles définissent des sols composés principalement de Fe, O, Si et Al avec différents pourcentages (sol 1, 2 et 3) ; ils seront désignés comme étant des « sols standards ». Les deux autres définissent un sol de tourbière (sol 4 : H, C, O, N, S) et un sol minéral (sol 5 : O, Mg, Al, Si, K, Ca, Ti, Mn, Fe).

Elément	Sol				
	1	2	3	4	5
H	2,2	2,2	1,1	10,0	---
C	---	---	1,2	11,4	---
O	57,5	58,2	55,8	78,0	45,2
N	---	---	---	0,4	---
Mg	---	---	---	---	2,5
Al	8,5	10,6	7,2	---	8,3
Si	26,2	26,2	31,6	---	25,0
S	---	---	---	0,2	---
K	---	---	---	---	1,8
Ca	---	---	---	---	4,1
Ti	---	---	---	---	0,7
Mn	---	---	---	---	0,2
Fe	5,6	2,8	3,1	---	12,2

Tableau 3.2 : Composition des sols définis dans l'ICRU 53 en pourcentage massique.

La figure 3.10 montre la superposition, après normalisation à la hauteur du pic d'absorption totale, des cinq spectres du flux incident. La normalisation sert ici juste à recalibrer le spectre plus élevé du sol minéral, les autres étant équivalents. Cette comparaison permet de voir l'influence de la composition du sol sur la forme des spectres de flux incident. Une variation apparaît au niveau de la bosse à faible énergie entre le sol minéral et la tourbe. Par contre, pour les sols standards les variations du spectre sont négligeables.

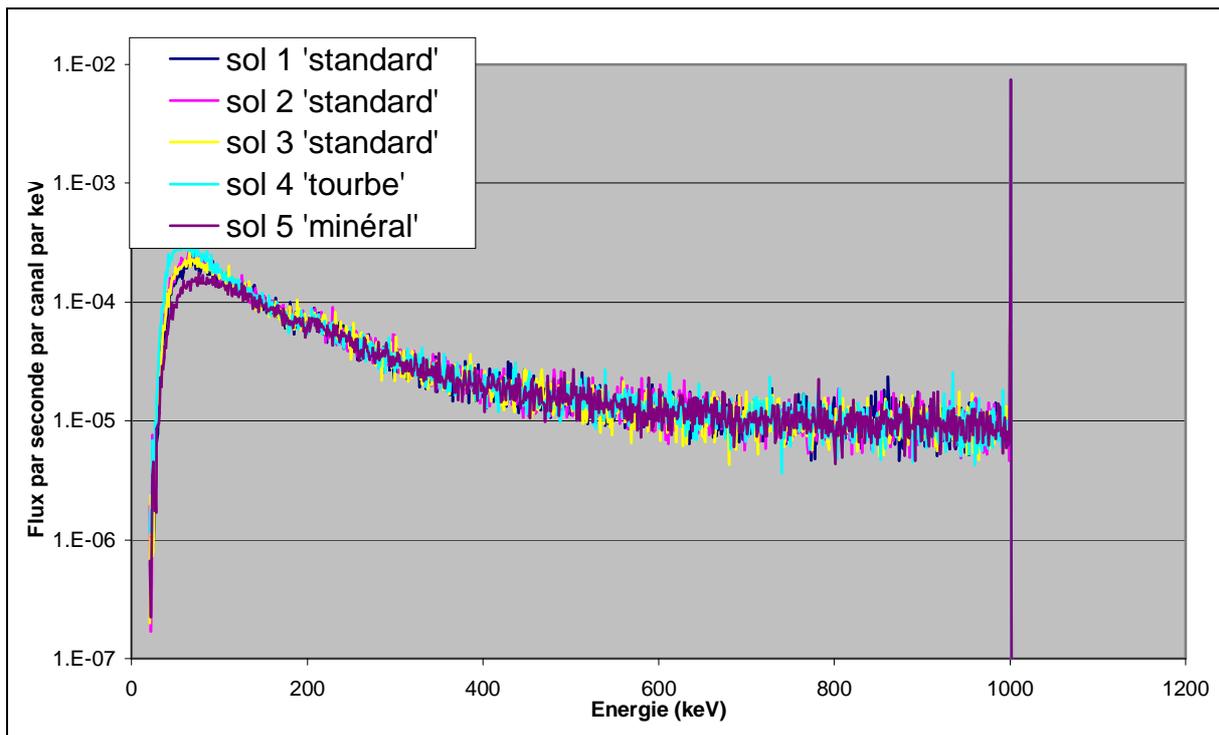


Figure 3.10 : superposition de spectres de flux d'énergie de 1000 keV pour différentes compositions de sol.

Donc, dans le cas de mesures *in-situ* pratiquées sur des terrains dont le sol n'est ni tourbeux ni minéral, la variation de la forme du spectre peut être considérée comme négligeable. Pour les sols tourbeux ou très minéraux, la déformation spectrale peut éventuellement être négligée car se trouvant à très basse énergie, aux alentours de 50 keV.

### 3.2.3. L'humidité du sol

La dernière partie s'est portée sur la déformation du spectre du flux incident avec la variation de l'humidité du sol. La figure 3.11 présente la simulation effectuée avec la composition de sol 3 pour des humidités de 0 %, 20%, 40%, 60% et 80%. Un décalage complet du spectre est visible. En effet l'humidité d'un sol correspond à l'ajout d'un

atténuateur dans le sol et également à une augmentation de la densité : pour  $1 \text{ Bq.kg}^{-1}$  simulé dans un sol sec, l'ajout de 20 % d'humidité dilue l'activité à  $0,8 \text{ Bq.kg}^{-1}$ .

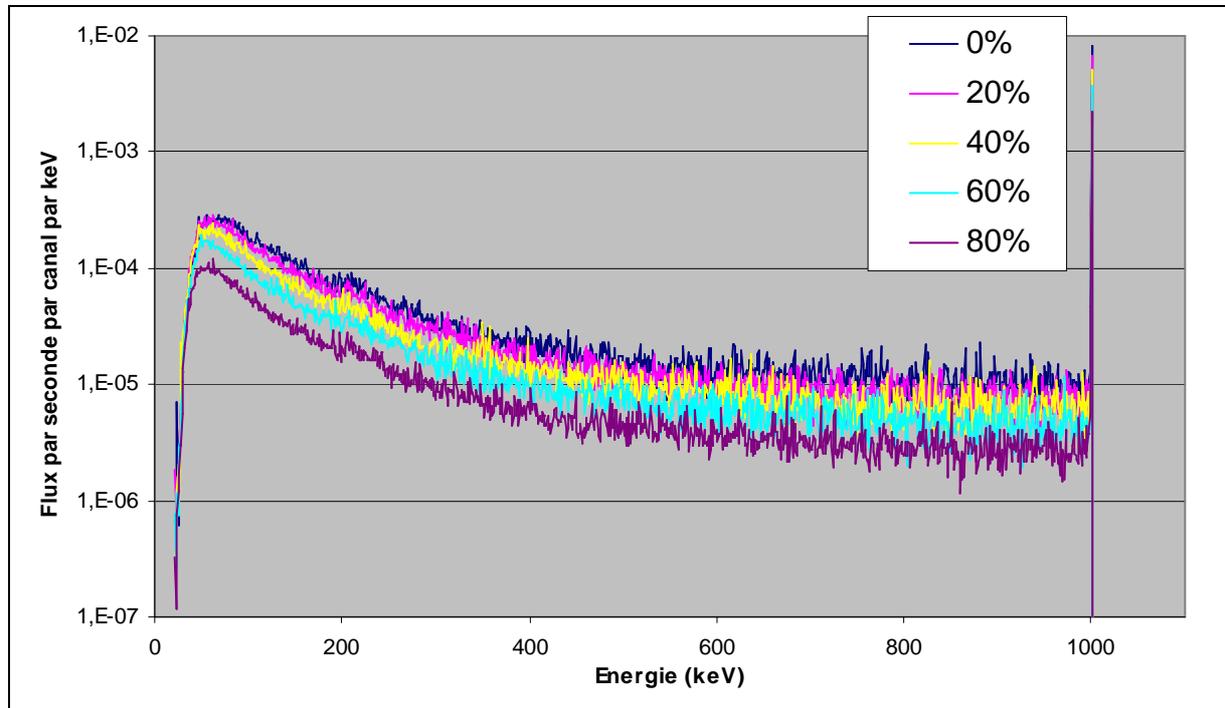


Figure 3.11 : spectres du flux incident pour une énergie de 1000 keV et pour différents taux d'humidité.

Les cinq spectres sont présentés sur la gamme d'énergie 0 - 300 keV après normalisation à même hauteur des pics d'absorption totale sur la figure 3.12. Elle permet de voir que la déformation à basse énergie, induite par le changement de composition du sol, est négligeable.

L'humidité du terrain de mesure doit être prise en compte pour la comparaison d'un spectre simulé avec un spectre mesuré. Un simple recalage du spectre simulé peut être effectué en appliquant un facteur de correction. Ce facteur correspond en fait au rapport d'humidité du sol de simulation avec celle du sol de mesure.

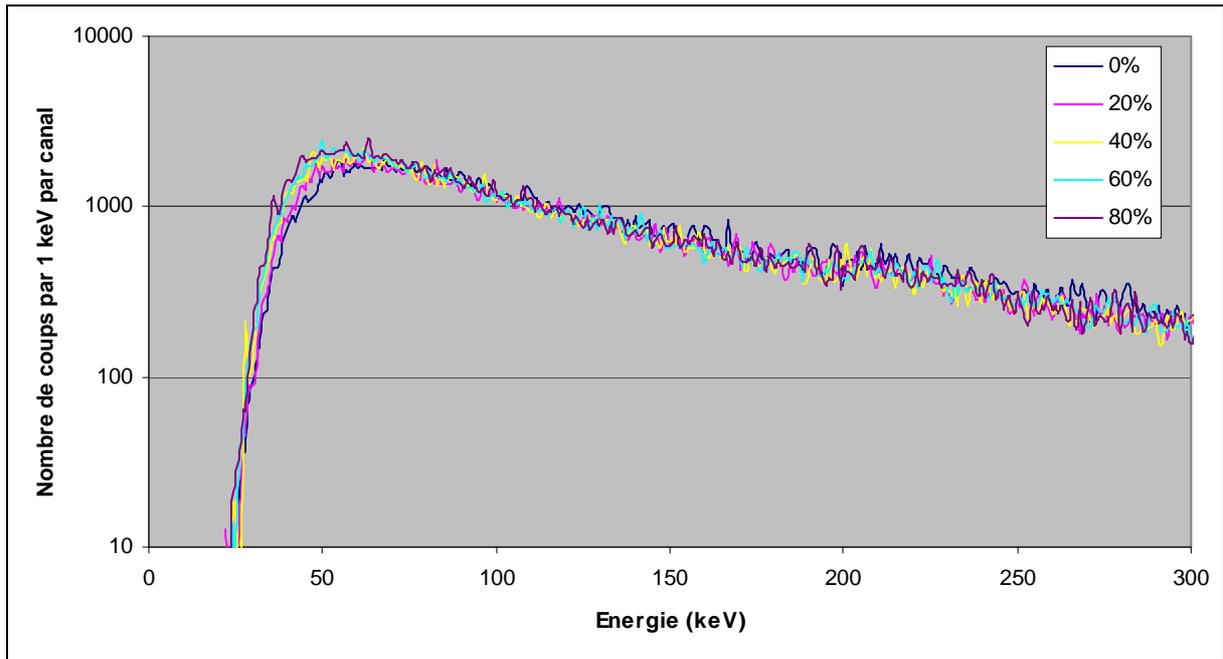


Figure 3.12 : superposition et zoom des spectres de flux incident pour une énergie de 1000 keV et pour différentes humidités de sol.

En pratique, la correction d'humidité peut s'effectuer par deux méthodes. La première est de faire un prélèvement de sol et d'en estimer l'humidité. Cette méthode introduit une incertitude car cette détermination ne se fait que sur les premiers centimètres de sol et non sur toute la profondeur. La deuxième est d'ajuster le spectre de simulation dans une zone sans aucun pic d'absorption totale perturbateur, présentant un lien avec le sol et avec une bonne statistique. La zone choisie est celle de la descente du plateau Compton de  $^{40}\text{K}$  situé entre 1290 keV et 1370 keV. En effet, cette zone, principalement due aux diffusions à faibles angles subies par les photons dans le sol, caractérise la quantité de matière rencontrée dans le sol. Cette deuxième méthode sera appliquée par le recalage des spectres en fonction de l'humidité.

### 3.2.4. *La distribution exponentielle de l'activité des radionucléides artificiels dans le sol*

Un dernier paramètre important dans la mesure *in-situ* est la forme de la distribution exponentielle de l'activité des radionucléides artificiels et plus particulièrement de celle de  $^{137}\text{Cs}$  dans le sol. La figure 3.13 présente cinq spectres *in-situ* de  $^{137}\text{Cs}$  pour différentes valeurs du paramètre  $\beta$  définissant différentes distributions exponentielles.

Il y a une forte variation de la forme du spectre aussi bien du point de vue de la hauteur du pic d'absorption totale que de la forme de la composante Compton.

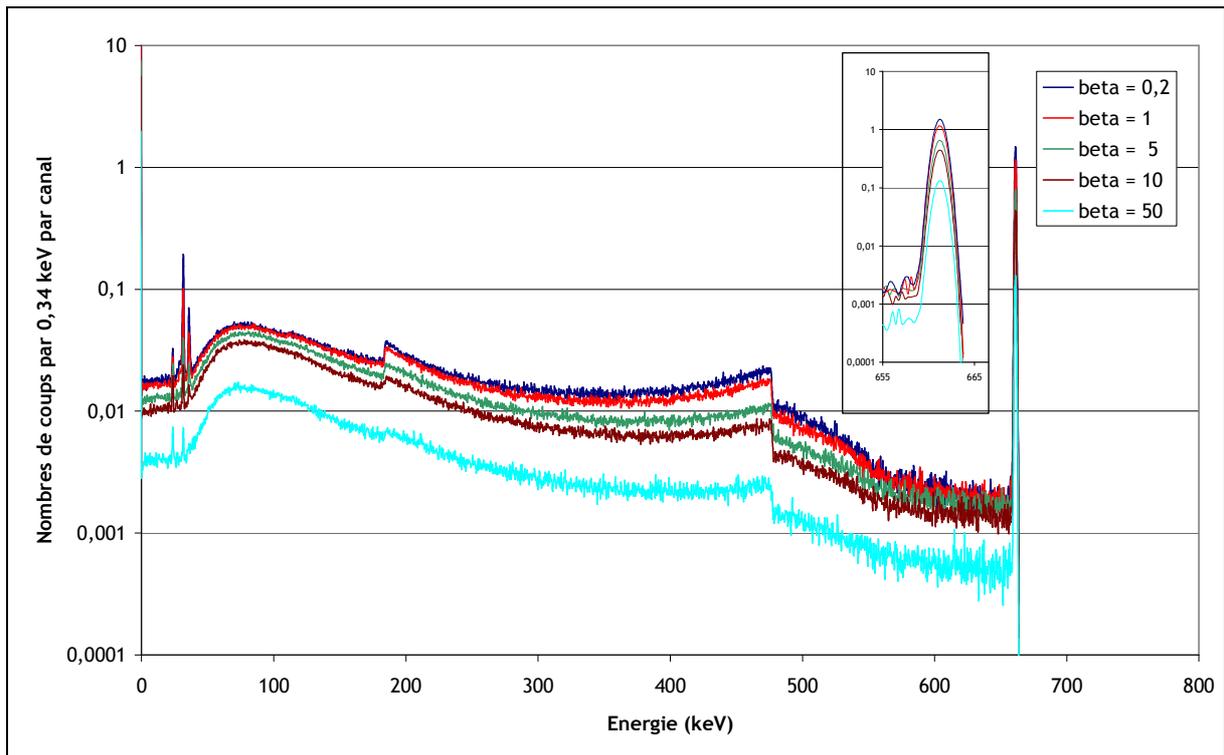


Figure 3.13 : spectres *in-situ* de  $^{137}\text{Cs}$  pour différentes distributions exponentielles pour un même nombre de décroissances.

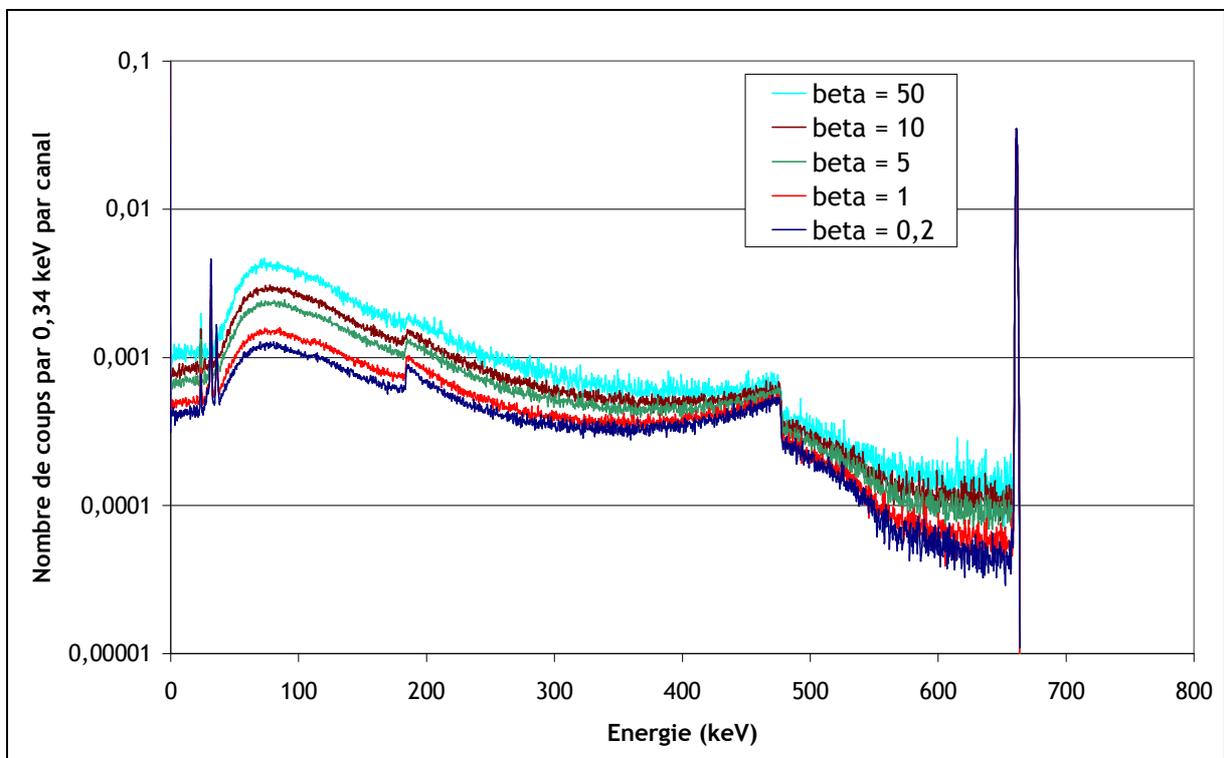


Figure 3.14 : spectres *in-situ* de  $^{137}\text{Cs}$  pour différentes distributions exponentielles, normalisés à la hauteur du pic d'absorption totale.

Cette déformation est plus facilement visible sur la figure 3.14 qui montre la superposition des cinq spectres de flux incident après normalisation à la hauteur du pic d'absorption totale. La déformation est difficilement paramétrable et seule une détermination de la distribution exponentielle du terrain permettra de corriger cette déformation. Dans le cas où la détermination n'est pas possible, la distribution homogène des radionucléides artificiels sera prise par défaut.

### 3.3. Etude des différentes composantes d'un spectre in-situ

#### 3.3.1. Les paramètres de simulation

La figure 3.15 présente les familles de décroissances naturelles. Les radionucléides entourés sont ceux dont les spectres ont été simulés et les radionucléides entourés et foncés en gris sont ceux contribuant de façon importante au spectre *in-situ*.

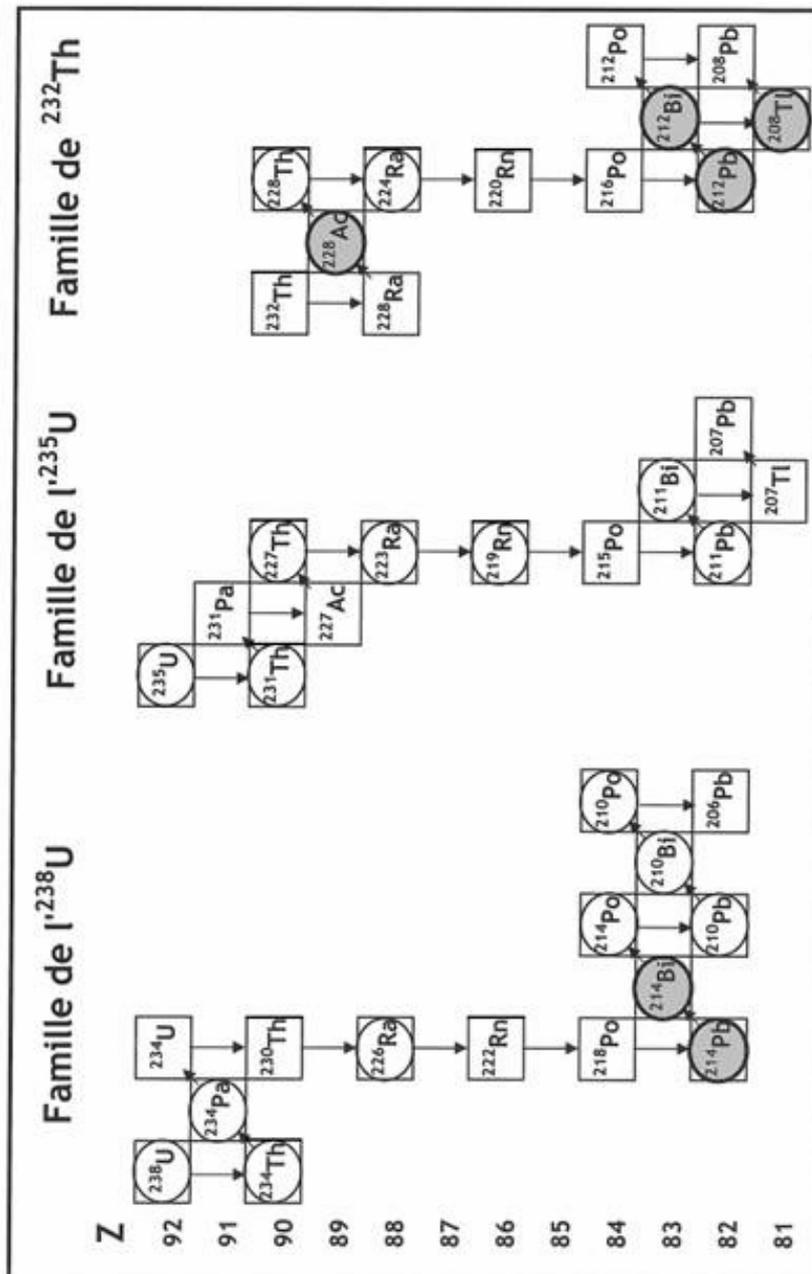
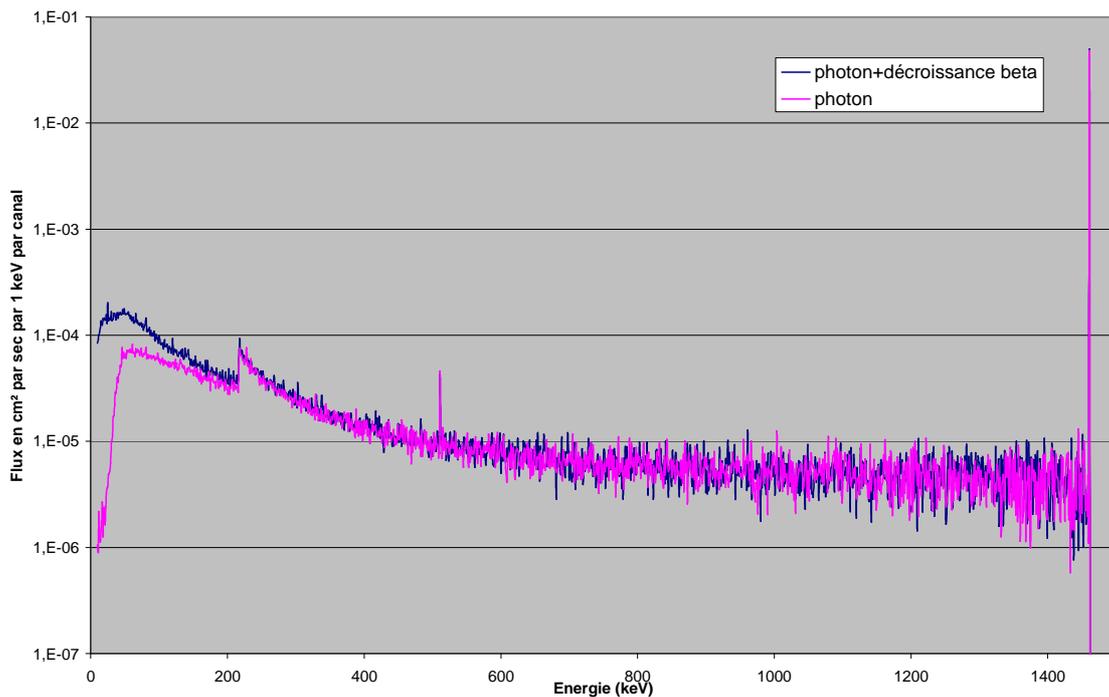


Figure 3.15 : familles radioactives et leur descendance.

En complément de cette figure et à titre d'information, les tableaux de l'annexe 4 présentent dans le détail les décroissances pour chaque famille avec l'indication de la période et des trois énergies ayant les rapports d'embranchement les plus importants pour chaque type d'émission [39].

Un point important apparu dans cette étude est la nécessité de tenir compte de toutes les particules issues d'une décroissance radioactive. La figure 3.16 présente les résultats de la simulation Monte Carlo du flux incident d'une distribution homogène de  $^{40}\text{K}$  de  $1 \text{ Bq.kg}^{-1}$ . Le spectre rose présente une simulation simplifiée ne tenant compte que des photons. En tenant compte de toutes les émissions du radionucléide (capture électronique,  $\beta^-$ , émission gamma, électron Auger...), la forme du spectre change à basse énergie (en bleu). Cette précaution a été prise pour les simulations de tous les radionucléides naturels et artificiels.



**Figure 3.16 : comparaison du spectre du flux incident de  $^{40}\text{K}$  sortant d'un sol d'activité uniforme prenant en compte ou pas la décroissance  $\beta$ .**

Tous les résultats de simulation présentés dans la suite du manuscrit tiendront compte de toutes les décroissances radioactives du radionucléide considéré ou de la famille radioactive considérée.

### 3.3.2. La composante des chaînes naturelles

Les simulations ci-après ont été faites pour des radionucléides ayant une distribution homogène dans le sol et les familles naturelles en équilibre séculaire.

Les trois figures suivantes (figures 3.17, 3.18, 3.19) présentent les spectres *in-situ* simulés (modèle développé au chapitre 2.3, détecteur de type N, 30 %) pour les trois familles radioactives présentes dans le sol, respectivement la famille de  $^{238}\text{U}$ , celle de  $^{232}\text{Th}$ , et celle de  $^{235}\text{U}$ . Ils sont normalisés en nombres d'évènements par seconde reçus par le spectromètre pour  $1 \text{ Bq.kg}^{-1}$  dans le sol.

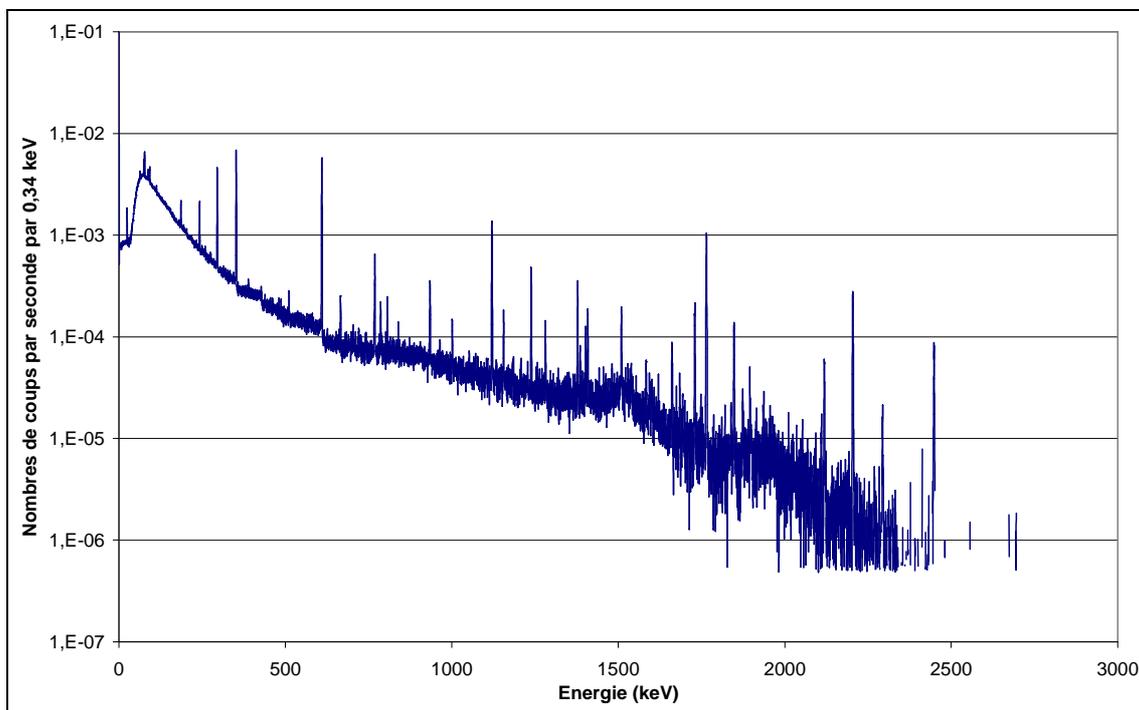


Figure 3.17 : spectre *in-situ* simulé de la famille de  $^{238}\text{U}$ .

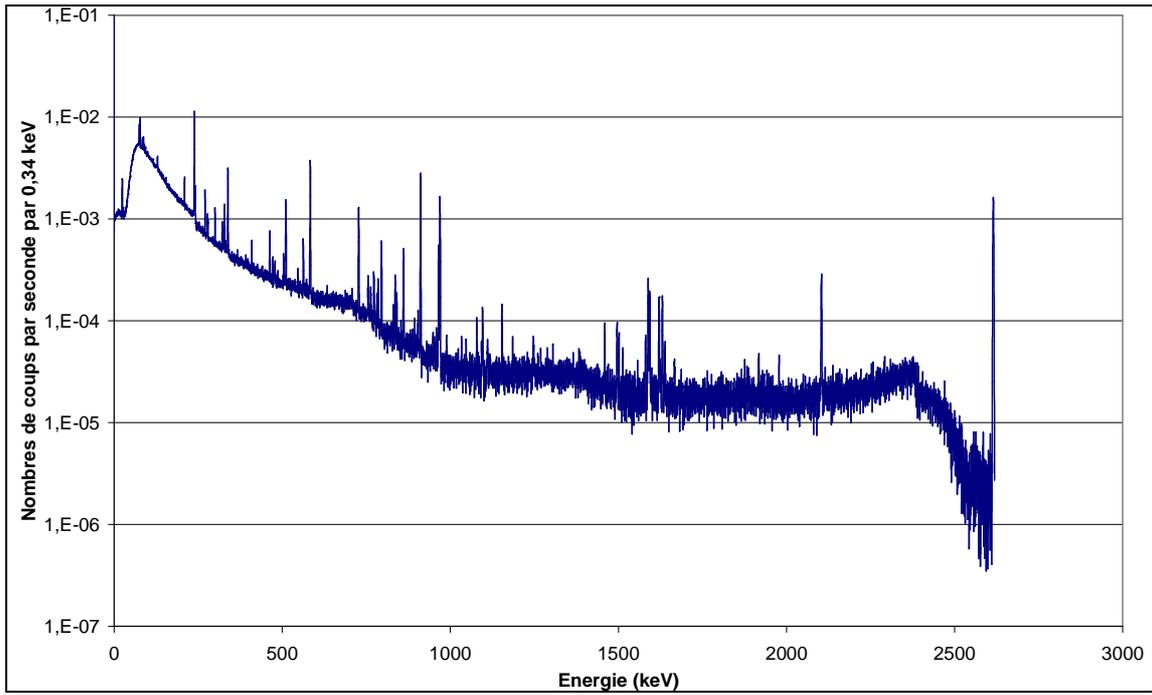


Figure 3.18 : spectre *in-situ* simulé de la famille de  $^{232}\text{Th}$ .

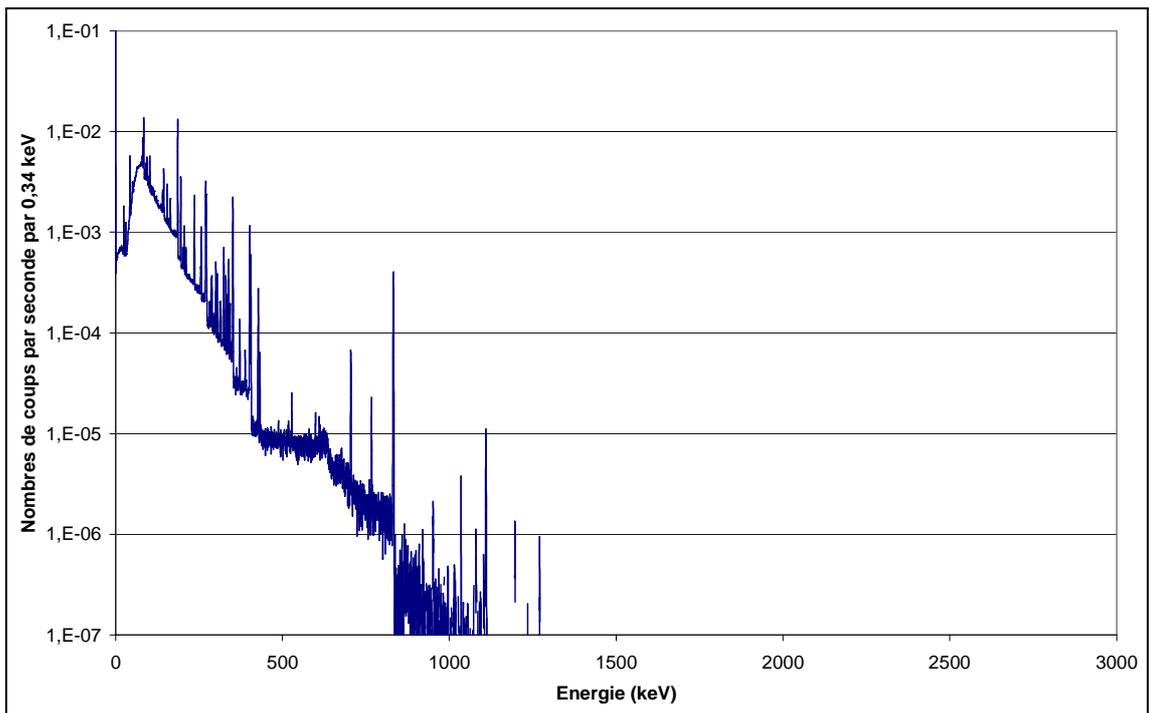


Figure 3.19 : spectre *in-situ* simulé de la famille de  $^{235}\text{U}$ .

### 3.3.3. La composante des autres radionucléides présents

A ces trois familles s'ajoutent également  $^{40}\text{K}$  et  $^{137}\text{Cs}$ . Avec une activité d'environ  $500 \text{ Bq.kg}^{-1}$ ,  $^{40}\text{K}$  contribue de façon importante au spectre *in-situ*. Son spectre *in-situ* simulé, normalisé au nombre d'évènements reçus par seconde pour  $1 \text{ Bq.kg}^{-1}$ , est montré sur la figure 3.20.

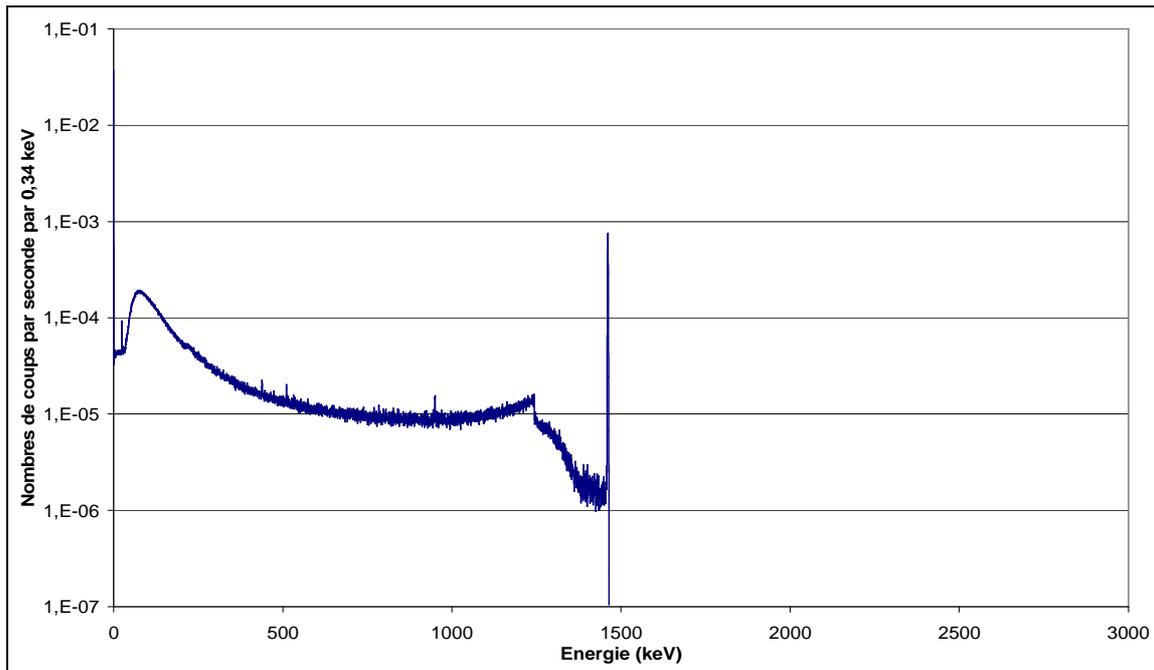


Figure 3.20 : spectre *in-situ* simulé de  $^{40}\text{K}$ .

$^{137}\text{Cs}$  est un radionucléide artificiel présent dans le sol suite à l'accident de la centrale nucléaire de Tchernobyl et aux essais nucléaires atmosphériques. La figure 3.21 montre le spectre *in-situ* simulé du radionucléide normalisé aux nombres d'évènements par seconde reçus pour  $1 \text{ Bq.kg}^{-1}$  avec une distribution homogène.

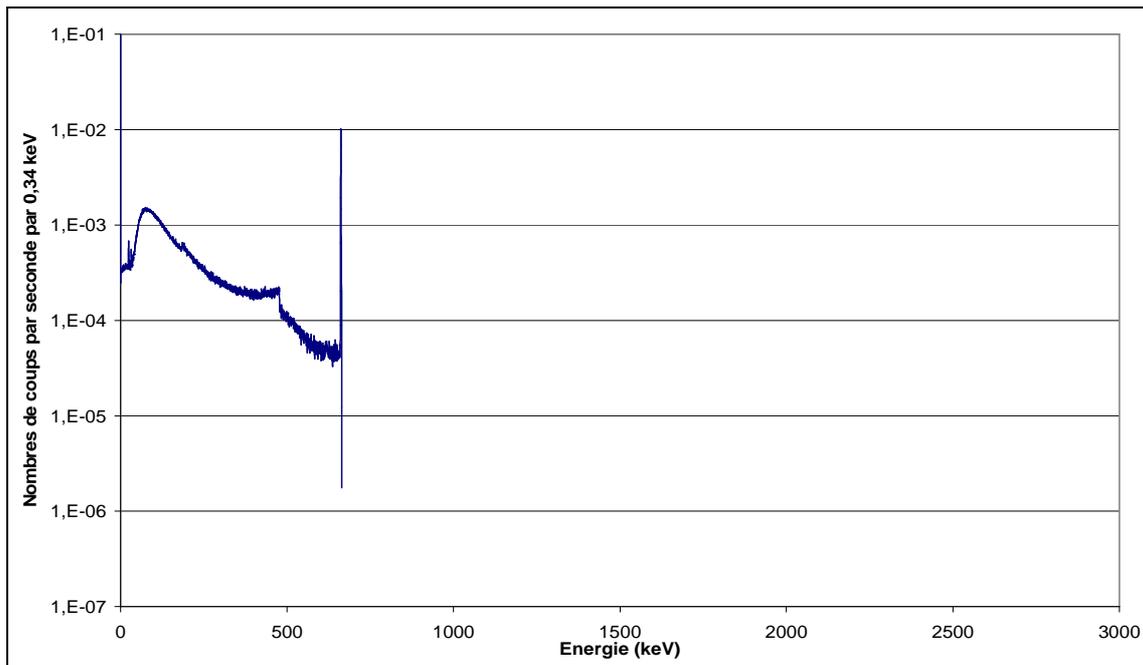


Figure 3.21 : spectre *in-situ* simulé de  $^{137}\text{Cs}$ .

### 3.3.4. La composante des rayonnements cosmiques

La composante cosmique contribue aussi à la forme d'un spectre *in-situ*. C'est une partie du spectre difficile à déterminer par la mesure. Grâce à l'intercomparaison EURADOS 2002 et plus particulièrement à une mesure effectuée au milieu d'un lac, l'estimation de cette composante a été possible.



Figure 3.22 : mesure de la composante cosmique lors de l'intercomparaison EURADOS 2002.

En effet, placé sur une plate-forme (figure 3.22) considérée sans radioactivité, le détecteur a mesuré principalement le rayonnement cosmique et une partie de rayonnements naturels présents dans l'eau et sur les berges. Son spectre *in-situ* mesuré, présenté sur la figure

3.23 pour une mesure de 1800 secondes, est le résultat d'une étude présentée dans le chapitre 4.3.

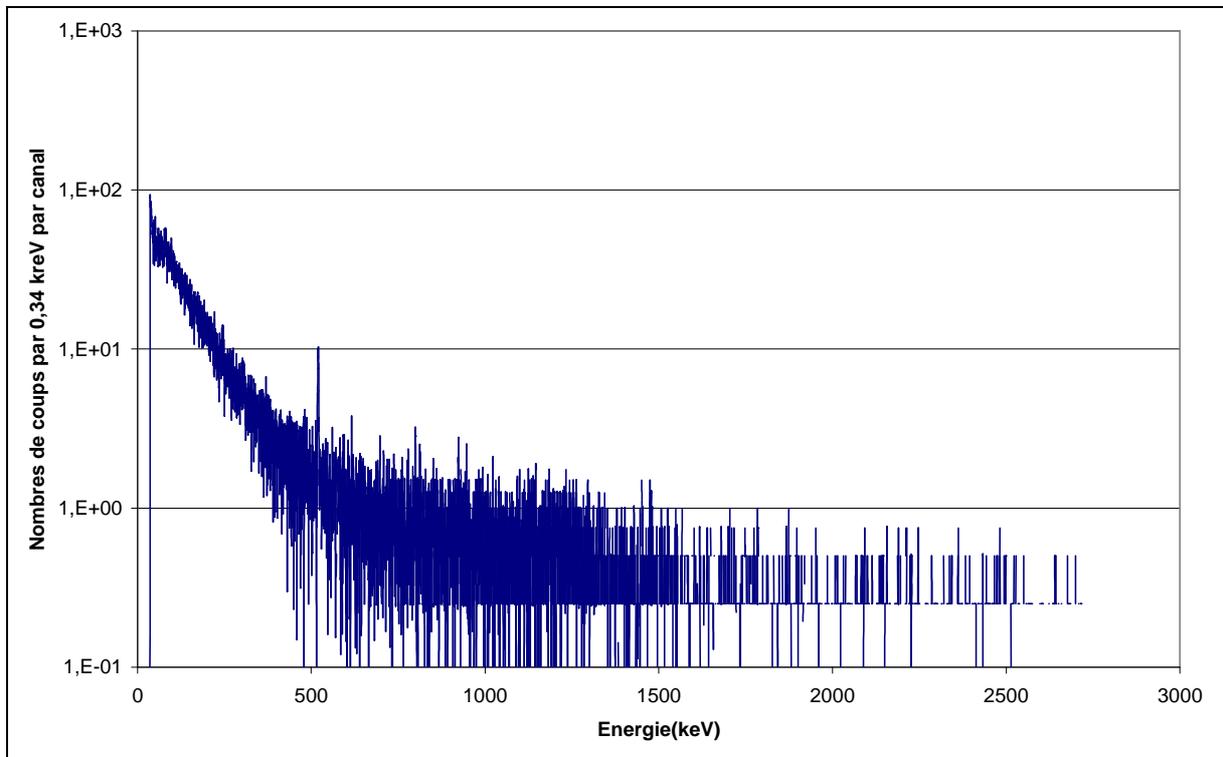


Figure 3.23 : spectre *in-situ* mesuré de la composante cosmique.

Les rayonnements cosmiques varient beaucoup avec l'altitude du point de mesure (annexe 4). Comme le lac est situé à une altitude quasiment identique à celle du site d'Orsay, à environ 100 mètres d'altitude, cette mesure cosmique s'applique facilement à une mesure faite à Orsay en normalisant son spectre au temps de comptage.

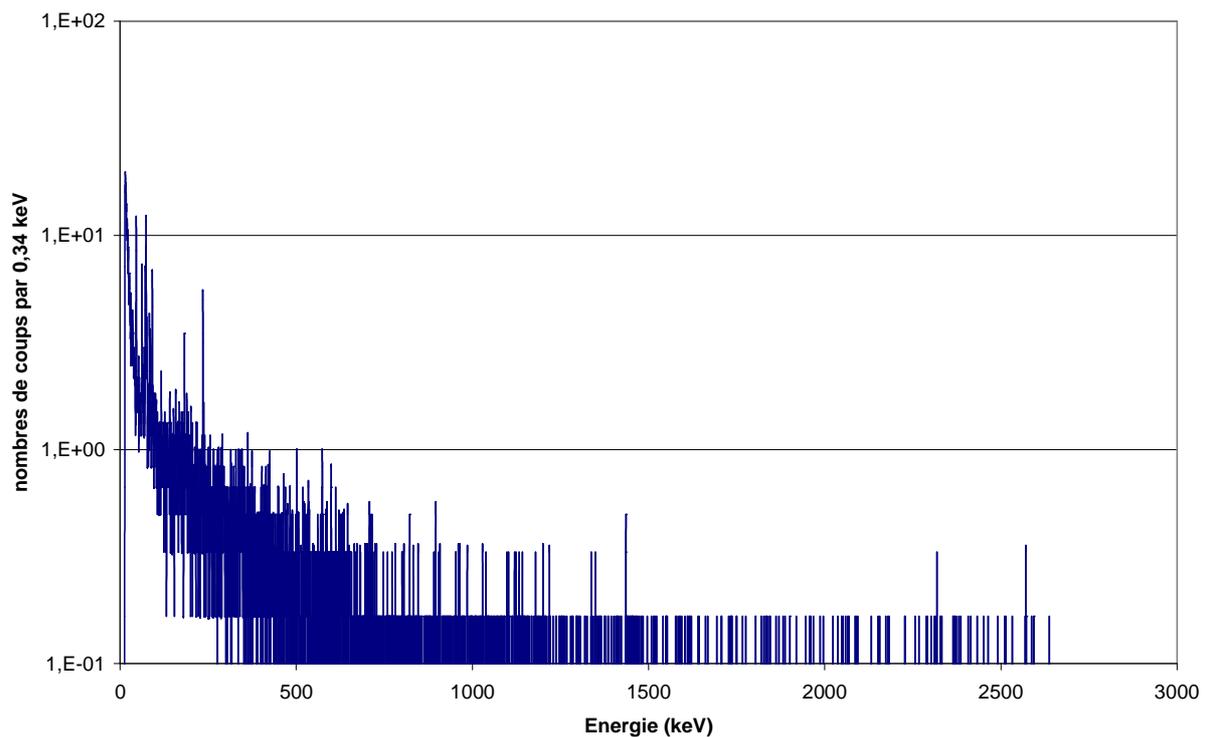
### 3.3.5. *Le bruit de fond intrinsèque*

Le bruit de fond intrinsèque est une composante relativement mineure d'un spectre *in-situ*. Elle a comme origine la radioactivité propre des matériaux du détecteur [40]. Cette composante a été mesurée lors d'EURADOS [27] dans le laboratoire situé dans la mine de sel situé à plus de 900 m de profondeur. A cette profondeur, il n'y a plus de rayonnements cosmiques et un blindage de plomb protège le détecteur du rayonnement naturel (figure 3.24) particulièrement faible dans ce site exceptionnel (débit de dose ambiant  $< 1 \text{ nSv.h}^{-1}$ ).



**Figure 3.24 : mesure du bruit de fond du détecteur dans la mine d'UDO.**

Cette configuration de mesure a permis d'obtenir le spectre *in-situ* mesuré, montré sur la figure 3.25, normalisé à une mesure de 1800 secondes, qui est celui du rayonnement produit par la radioactivité contenue dans les matériaux du détecteur.



**Figure 3.25 : spectre *in-situ* mesuré du bruit de fond intrinsèque du détecteur utilisé.**

Cette composante est déjà présente dans le spectre *in-situ* mesuré de la composante cosmique. Ce bruit de fond intrinsèque est difficilement mesurable et sa connaissance permet de bien maîtriser et de bien connaître toute la radioactivité incidente sur le cristal de germanium.

### 3.4. Comparaison simulation et mesure in-situ

#### 3.4.1. Caractéristiques du site d'ORSAY

Avant de s'intéresser à la comparaison de la mesure *in-situ* avec la simulation, il faut d'abord connaître le terrain sur lequel la comparaison s'effectue. Dans un premier temps, un prélèvement de sol a été effectué pour connaître sa composition. Mesurés au laboratoire LMRE [41], les facteurs d'atténuation  $\mu$  exprimés en  $\text{cm}^2 \cdot \text{g}^{-1}$  sont regroupés sur la figure 3.26 et comparés aux coefficients  $\mu$  pour les cinq définitions de sol de l'ICRU 53.

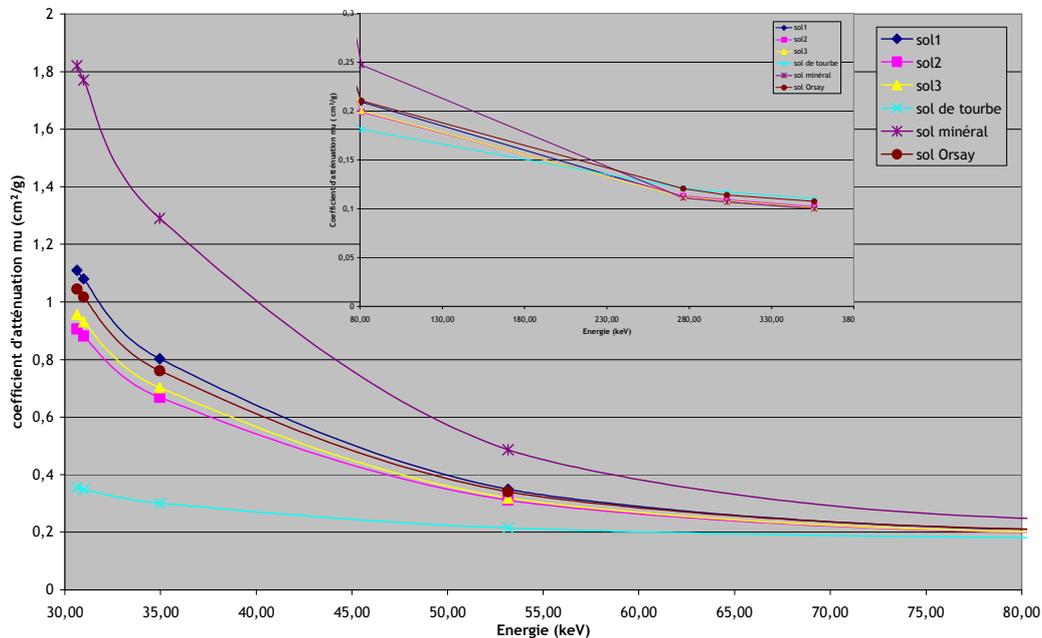


Figure 3.26 : comparaison des coefficients d'atténuation du sol d'Orsay avec ceux définis dans l'ICRU 53.

Les coefficients d'atténuation du sol d'Orsay se situent parmi ceux des trois sols « standard ». Aucun facteur de correction dû à la composition du sol ne sera à prendre en compte pour le recalage du spectre simulé. De plus, la mesure ayant été effectuée en été avec une humidité de 8,9 %, aucune correction ne sera apportée.

Les activités du site de mesure d'Orsay sont bien connues car de nombreuses mesures ont été effectuées dans différentes conditions d'humidité et de météo. Le tableau 3.3 est basé sur plusieurs mesures du site d'Orsay dont les variations d'activité sont présentées en fonction de différents paramètres en annexe 6.

Radionucléides	Activité en Bq.kg <sup>-1</sup>	Ecart-type
<sup>214</sup> Bi	22,7	1,8
<sup>214</sup> Pb	23,0	2,3
<sup>212</sup> Bi	29,3	3,7
<sup>212</sup> Pb	27,2	3,3
<sup>208</sup> Tl	9,91	0,48
<sup>228</sup> Ac	25,5	2,6
<sup>40</sup> K	272	22
<sup>137</sup> Cs	3,22	0,37

Tableau 3.3 : activité des principaux radionucléides présents dans le sol d'Orsay.

La réponse du détecteur pour chaque élément des chaînes naturelles est présentée en annexe 7 pour une mesure de 1800 secondes.

### 3.4.2. Comparaisons de spectres

La comparaison du spectre issu de la simulation des éléments du sol ayant une distribution uniforme, avec un spectre *in-situ* mesuré de 1800 secondes effectué à Orsay, avec un détecteur 30 % de type N, est présentée sur la figure 3.27.

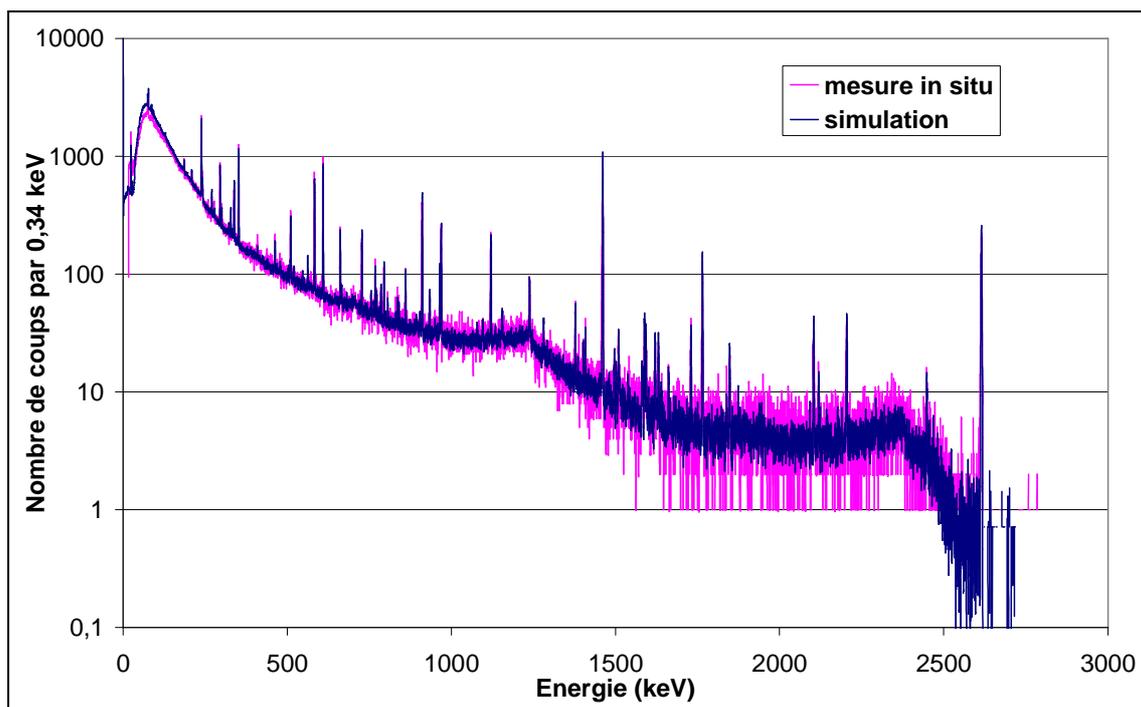


Figure 3.27 : comparaison entre la simulation et un spectre *in-situ* mesuré à Orsay.

Il y a une bonne cohérence des deux spectres avec un écart de moins de 5 % sur l'ensemble du spectre allant de 200 keV à 2614 keV, d'environ 20 % sur la gamme 0 keV - 200 keV. Vu que la zone d'intérêt énergétique se situe entre 200 keV et 2614 keV, l'écart observé ne change en rien à l'utilisation de ce modèle de simulation pour les études à venir. Toutefois, l'écart observé peut venir du fait que le terrain n'était pas le plus adapté à une comparaison de spectres *in-situ* : en effet comme le montre la figure 3.28, la présence de la route, du parking et de bâtiments situés à proximité du point de mesure(en rouge sur la figure) peuvent contribuer à cet écart. En effet, les bâtiments sont des obstacles aux rayonnements radioactifs et diminuent donc le flux arrivant jusqu'au détecteur.



**Figure 3.28 : photos du site de mesure d'Orsay.**

Néanmoins, pour conclure sur la qualité de la simulation, les aires des principaux pics d'absorption totale des deux spectres sont comparées dans le tableau 3.4. Les incertitudes données pour chacune des valeurs sont seulement dues à la statistique présente dans les pics étudiés.

Les écarts entre la simulation et la mesure *in-situ* sont de l'ordre de 5 % à 10 % montrant une légère surestimation de la simulation.

radionucléide	Energie (keV)	Mesure <i>in-situ</i> (A)		Simulation (B)		Rapport A/B en %
		Nb de coups	±	Nb de coups	±	
<sup>212</sup> Pb	238,6	2144	46	2270	48	94,45
<sup>214</sup> Pb	351,9	1416	38	1463	38	96,78
<sup>208</sup> Tl	583,2	980	31	1008	32	97,22
<sup>214</sup> Bi	609,3	1410	38	1505	39	93,69
<sup>137</sup> Cs	661,7	294	17	316	18	93,04
<sup>228</sup> Ac	911,2	680	26	735	27	92,52
<sup>214</sup> Bi	1120,3	343	19	373	19	91,96
<sup>40</sup> K	1460,8	2368	49	2505	50	94,53
<sup>208</sup> Tl	2614,5	695	26	734	28	94,69

**Tableau 3.4 : valeurs du nombre de coups pour le spectre simulé et mesuré pour différentes énergies.**

Ces résultats confirment la bonne qualité du programme de simulation et des modèles utilisés pour les principaux radionucléides présents dans le sol.

Une deuxième comparaison a été effectuée en prenant une mesure *in-situ* faite lors de la surveillance du LHC du CERN. Le site de mesure présentait un large champ dégagé comme montré sur la figure 3.29 : un terrain idéal pour la mesure *in-situ*.



**Figure 3.29 : photo prise du site de mesure BA4.**

La figure 3.30 présente la cohérence entre les deux spectres *in-situ* de 1800 secondes et le tableau 3.5 présente la comparaison de la surface des principaux pics.

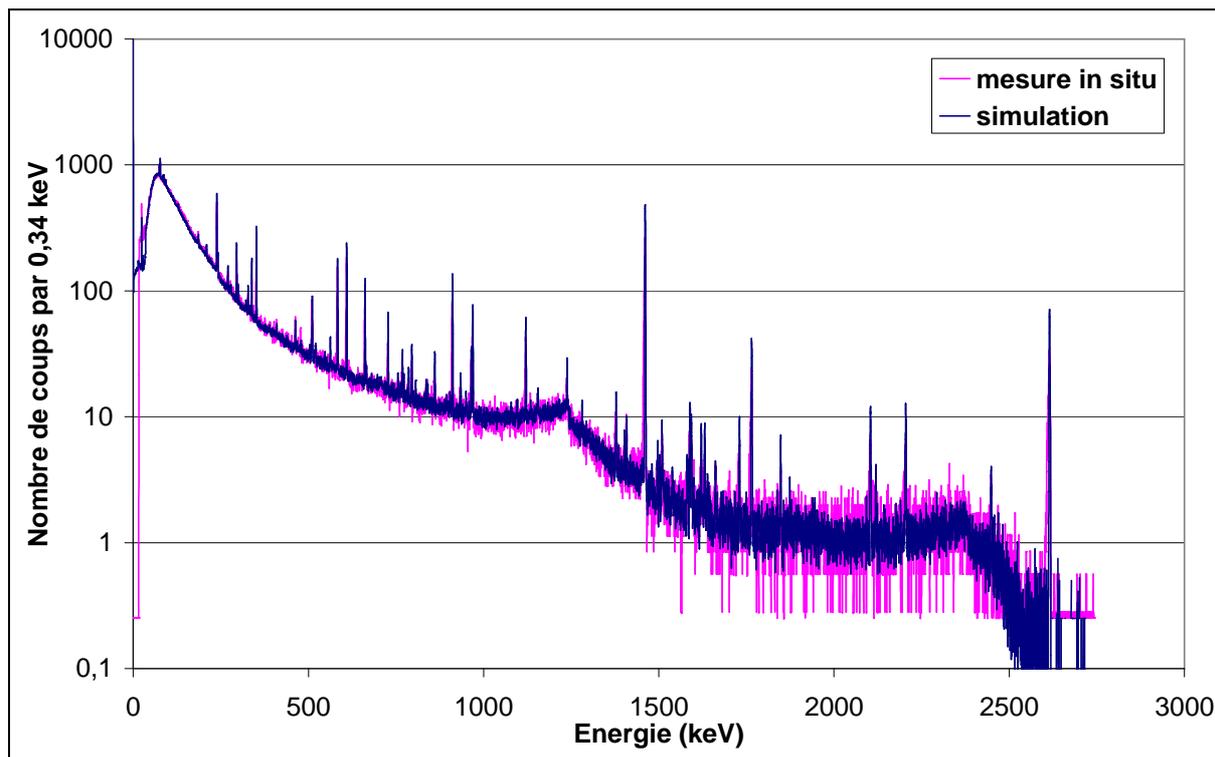


Figure 3.30 : comparaison entre la simulation et un spectre *in-situ* mesuré au CERN.

radionucléide	Energie (keV)	Mesure <i>in-situ</i> (A)		Simulation (B)		Rapport A/B en %
		Nb de coups	±	Nb de coups	±	
<sup>212</sup> Pb	238,6	1550	39	1561	40	99,30
<sup>214</sup> Pb	351,9	969	31	1036	32	93,53
<sup>208</sup> Tl	583,2	731	27	704	27	103,8
<sup>214</sup> Bi	609,3	944	31	1033	32	91,38
<sup>137</sup> Cs	661,7	434	21	482	22	90,04
<sup>228</sup> Ac	911,2	499	22	523	23	95,41
<sup>214</sup> Bi	1120,3	223	15	247	17	90,28
<sup>40</sup> K	1460,8	2604	51	2804	53	92,87
<sup>208</sup> Tl	2614,5	401	20	443	21	90,52

Tableau 3.5 : valeurs du nombre de coups pour le spectre simulé et mesuré pour différentes énergies.

Les écarts des nombres d'évènements dans les principaux pics entre la simulation et la mesure *in-situ* sont de l'ordre de 10 %. Ces résultats, et en particulier la comparaison des deux spectres, confirment la qualité de la simulation et le besoin d'avoir un terrain dégagé pour effectuer une comparaison cohérente sur toute la gamme d'énergie.

Enfin, pour conclure sur le besoin d'avoir un terrain dégagé, une dernière comparaison est effectuée. La figure 3.31 présente le site de mesure de Tricastin et la figure 3.32 la comparaison de la simulation avec la mesure *in-situ*.



Figure 3.31 : site de mesure proche de la centrale nucléaire de Tricastin.

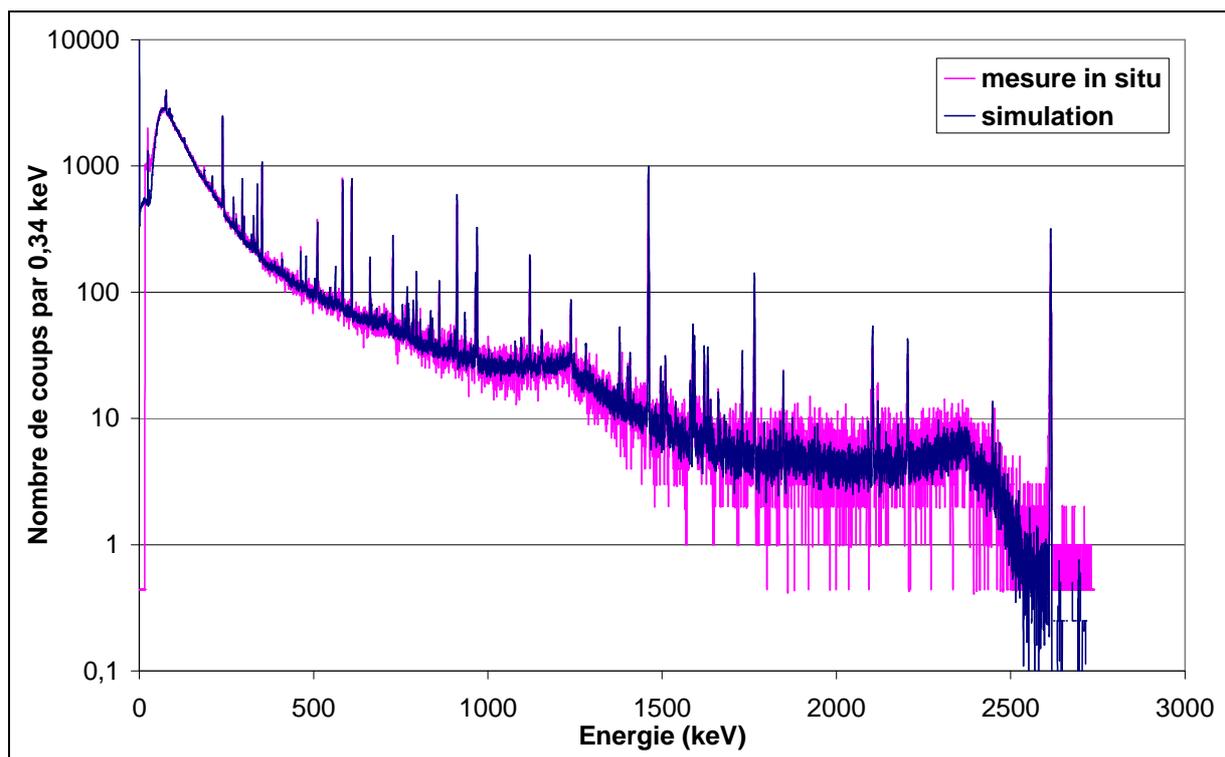


Figure 3.32 : comparaison entre la simulation et un spectre *in-situ* mesuré à Tricastin.

En effet, la bonne cohérence, de nouveau observée, entre les deux spectres *in-situ* confirme le fait que le terrain d'étude à Orsay n'était pas le plus adapté, au vu des infrastructures présentes, à une comparaison simulation – mesure *in-situ*.



<b>4. EXPLOITATION : PREVISION DES EFFETS D'UNE CONTAMINATION .....</b>	<b>98</b>
<b>4.1. LES FACTEURS DE DOSE .....</b>	<b>98</b>
4.1.1. <i>Facteurs de dose monoénergétiques .....</i>	<i>99</i>
4.1.2. <i>Facteurs de dose in-situ .....</i>	<i>100</i>
<b>4.2. LA METHODE DE DECONVOLUTION D'UN SPECTRE .....</b>	<b>102</b>
4.2.1. <i>La problématique d'EURADOS 2002 .....</i>	<i>102</i>
4.2.2. <i>« Stripping method » .....</i>	<i>103</i>
<b>4.3. LA MESURE DU RAYONNEMENT COSMIQUE .....</b>	<b>108</b>
<b>4.4. LA COMPREHENSION DES SPECTRES D'ISIGAMMA 2005 .....</b>	<b>110</b>
<b>4.5. LA METHODE « PEAK-TO-VALLEY » .....</b>	<b>113</b>
4.5.1. <i>L'utilisation de la modélisation.....</i>	<i>113</i>
4.5.2. <i>La détermination de la profondeur d'une source.....</i>	<i>114</i>
4.5.3. <i>La détermination de la distribution de <sup>137</sup>Cs à Orsay .....</i>	<i>116</i>

## 4. Exploitation : Prévision des effets d'une contamination

Dans ce chapitre, la modélisation décrite dans le chapitre 2 et sa comparaison cohérente avec une mesure *in-situ* décrite dans le chapitre 3 sont utilisées pour calculer les facteurs de débit de dose en  $\text{nSv.h}^{-1}$  et pour expliquer différentes mesures d'intercomparaison où les résultats étaient différents de ceux des organisateurs. Plusieurs mesures *in-situ* sont étudiées :

- la mesure effectuée dans le laboratoire souterrain lors de l'intercomparaison EURADOS en 2002 expliquée avec l'utilisation de la « stripping method »,
- la mesure des rayonnements cosmiques sur la plate-forme au milieu du lac lors de la même intercomparaison,
- la mesure effectuée sur les sites d'étalonnage dans la mine d'uranium lors de l'intercomparaison d'ISIGAMMA en 2005.

Dans une deuxième partie, l'utilisation de la méthode « Peak to Valley » sera utilisée pour extraire plus d'information du spectre *in-situ* et ainsi améliorer l'analyse des spectres gamma *in-situ*.

### 4.1. Les facteurs de dose

Les coefficients de dose servent à déterminer le débit de dose à partir de l'activité de chaque radionucléide dont la présence est détectée dans le spectre *in-situ*. Ces facteurs ont été publiés dans la littérature [5] pour l'expression du débit de dose absorbée, ou débit de kerma, dans l'air en  $\text{nGy.h}^{-1}$  et sont utilisés dans l'analyse de la spectrométrie gamma *in-situ*. Toutes les notions et les définitions de dose sont accessibles dans la littérature.

Cependant ces facteurs ne suffissent plus depuis que la directive européenne 96/29/EURATOM (13 mai 1996) suggère l'utilisation de  $H^*(10)^3$  dans les normes de base relatives à la protection sanitaire des travailleurs et de la population contre les dangers résultant des rayonnements ionisants. Les facteurs de conversion permettant de convertir les grandeurs de la spectrométrie gamma *in-situ* en cette unité n'existent pas dans la littérature. A partir des spectres de flux incident, il est aisé de calculer les facteurs nécessaires à la

---

<sup>3</sup> C'est l'équivalent de dose ambiant qui tient compte du type de rayonnement et de ces effets biologiques dans la sphère ICRU à une profondeur de 10 mm pour un champ expansé et unidirectionnel.

spectrométrie gamma *in-situ*. L'annexe 3 présente un article accepté dans *Radiation Protection Dosimetry* décrivant en détail la méthode utilisée pour calculer ces facteurs de dose. Dans ce chapitre seront juste rappelés les principaux résultats.

#### 4.1.1. Facteurs de dose monoénergétiques

Le premier calcul effectué a pour but d'obtenir les facteurs de dose pour différentes distributions (surfacique, exponentielles avec différentes valeurs du paramètre  $\beta$  définissant la forme de l'exponentielle et homogène), de sources monoénergétiques dans le sol (tableau 4.1), d'énergie allant de 50 keV à 2500 keV couvrant ainsi la majeure partie de la gamme d'énergie 0 keV – 3 MeV.

Energie (keV)	1.10 <sup>-4</sup> nSv.h <sup>-1</sup> par Bq.m <sup>-2</sup>							nSv.h <sup>-1</sup> par Bq.kg <sup>-1</sup>
	$\beta = 0$	$\beta = 0,3$	$\beta = 1$	$\beta = 5$	$\beta = 10$	$\beta = 20$	$\beta = 50$	$\beta = \infty$ (homogène)
50	4,85	3,41	2,36	0,940	0,544	0,300	0,127	0,0066
100	6,69	5,49	4,39	2,44	1,62	0,987	0,460	0,0249
200	12,8	10,7	8,57	5,19	3,66	2,31	1,14	0,0659
500	29,2	23,6	19,3	11,8	8,56	5,62	2,85	0,170
662	36,4	30,4	24,0	15,0	10,8	7,23	3,67	0,221
750	40,7	33,6	26,4	16,6	12,0	8,04	4,13	0,252
1000	50,5	41,7	33,5	20,8	15,2	10,2	5,34	0,336
1250	59,3	49,3	40,4	24,7	18,3	12,4	6,512	0,414
1460	67,9	55,3	45,6	27,8	20,7	14,1	7,53	0,483
2250	92,5	75,8	62,5	39,6	29,6	20,5	11,1	0,733
2500	101	82,8	67,4	42,6	32,0	22,4	12,3	0,826

**Tableau 4.1 : facteurs de dose pour différentes sources monoénergétiques ayant différentes distributions dans le sol.**

Une deuxième détermination de facteurs de dose a été effectuée en se focalisant sur des tranches d'épaisseur de sol. La simulation a été faite pour des sources monoénergétiques ayant une distribution homogène dans le sol. En parallèle, la détermination de la valeur de  $\Phi/A$  (le flux incident divisé par l'activité) a été réalisée. Le tableau 4.2 présente leurs différentes valeurs pour les premières tranches de sol d'épaisseurs 5 cm à différentes énergies. La séparation par tranches de sol se retrouve lors des opérations de démantèlement où d'anciennes contaminations ont été recouvertes par de la terre non contaminée. Ces différents facteurs sont également intéressants pour des mesures pour lesquelles la distribution de

l'activité de la source varie en fonction de la profondeur et par conséquent la reconstitution de leur apport au débit de dose peut se faire en sommant les contributions des tranches incriminées.

Energie (keV) \ z	0 - 5 cm		5 - 10 cm		10 - 15 cm		15 - 20 cm		20 - 25 cm	
	$\Phi/A$	H*(10)	$\Phi/A$	H*(10)	$\Phi/A$	H*(10)	$\Phi/A$	H*(10)	$\Phi/A$	H*(10)
50	1,38	0,0065	0,028	0,0003						
100	2,55	0,0190	0,267	0,0045	0,043	0,0013	0,009	0,0004		
200	3,17	0,0411	0,444	0,0144	0,111	0,0060	0,031	0,0025	0,009	0,0011
500	4,11	0,0930	0,835	0,0377	0,283	0,0192	0,105	0,0100	0,044	0,0054
662	4,44	0,118	1,02	0,0485	0,374	0,0257	0,153	0,0142	0,066	0,0080
750	4,59	0,129	1,11	0,0546	0,429	0,0296	0,180	0,0166	0,080	0,0094
1000	5,02	0,163	1,35	0,0707	0,561	0,0395	0,262	0,0234	0,127	0,0141
1250	5,33	0,195	1,56	0,0862	0,696	0,0500	0,346	0,0303	0,176	0,0188
1460	5,56	0,218	1,73	0,0987	0,802	0,0579	0,412	0,0362	0,220	0,0229
2250	6,37	0,309	2,25	0,146	1,16	0,0901	0,656	0,0590	0,390	0,0400
2500	6,61	0,339	2,38	0,156	1,25	0,0998	0,725	0,0663	0,440	0,0453

**Tableau 4.2 : facteurs de débit de dose (en nSv.h<sup>-1</sup> par Bq.kg<sup>-1</sup>) et valeurs de  $\Phi/A$  (en photons par cm<sup>2</sup>.s<sup>-1</sup> par Bq g<sup>-1</sup>) pour des sources uniformes d'épaisseur 5 cm.**

#### 4.1.2. Facteurs de dose *in-situ*

Le tableau 4.3 présente les facteurs de conversion permettant d'obtenir la dose en nSv.h<sup>-1</sup> à partir de l'activité des principaux radionucléides rencontrés lors des mesures *in-situ*. Le facteur de chaque radionucléide est en fait la somme des facteurs de dose pour chaque rayonnement monoénergétique émis, pondéré par son rapport d'embranchement. Ensuite, le facteur de dose d'une famille radioactive est la somme des facteurs de chaque radionucléide la composant.

	Radionucléides	nSv.h <sup>-1</sup> par Bq.kg <sup>-1</sup>
<b>Famille de <sup>232</sup>Th</b>	<sup>208</sup> Tl	0,387
	<sup>228</sup> Ac	0,280
	<sup>212</sup> Pb	0,0443
	<sup>212</sup> Bi	0,034
	<sup>224</sup> Ra	0,00347
	<b>Total</b>	<b>0,749</b>
<b>Famille de <sup>238</sup>U</b>	<sup>214</sup> Bi	0,480
	<sup>214</sup> Pb	0,0817
	<sup>226</sup> Ra	0,00228
	<b>Total</b>	<b>0,564</b>
	<sup>40</sup> K	0,0512
	<sup>137</sup> Cs	0,192

**Tableau 4.3 : facteurs de dose exprimés en nSv.h<sup>-1</sup> par Bq.kg<sup>-1</sup> pour les principaux radionucléides naturels et artificiels.**

Ces facteurs de conversion sont maintenant utilisés pour les mesures faites par spectrométrie gamma *in-situ*.

## 4.2. La méthode de déconvolution d'un spectre

### 4.2.1. La problématique d'EURADOS 2002

Lors de l'intercomparaison EURADOS 2002, les mesures effectuées dans la mine de sel ont permis de démontrer les limites de l'analyse classique dans la spectrométrie gamma *in-situ* et ont montré la nécessité d'utiliser le calcul Monte Carlo. L'expérience mise en cause consistait en une mesure de dose d'une source placée à 2 mètres de la face avant du détecteur, dans un collimateur en plomb (figure 4.1). Pour les organisateurs issus du domaine de la dosimétrie, ce dispositif expérimental permet d'obtenir un spectre gamma monoénergétique et ainsi de déterminer le débit de dose associé à une énergie unique.

A noter que ce dispositif expérimental est identique, à la présence du collimateur près, à celui utilisé pour l'étalonnage classique des spectromètres germanium (ANNEXE 1) : une source ponctuelle située à une distance de 1 m à 2 m de la face avant du détecteur. Le résultat de l'intercomparaison a surpris les organisateurs et les participants : des écarts de 10 % à 25 % (tableau 4.4) entre les valeurs de référence et mesurées du débit de dose ont montré un manque de maîtrise d'un paramètre de cette mesure. Pour l'analyse de cette mesure, les participants ont utilisé le taux de comptage du pic d'absorption totale pour déduire le flux à la distance de 2 m et en déduire l'activité de la source. A partir de cette activité et de facteurs de conversion pris dans la littérature, le débit de dose a été déterminé.

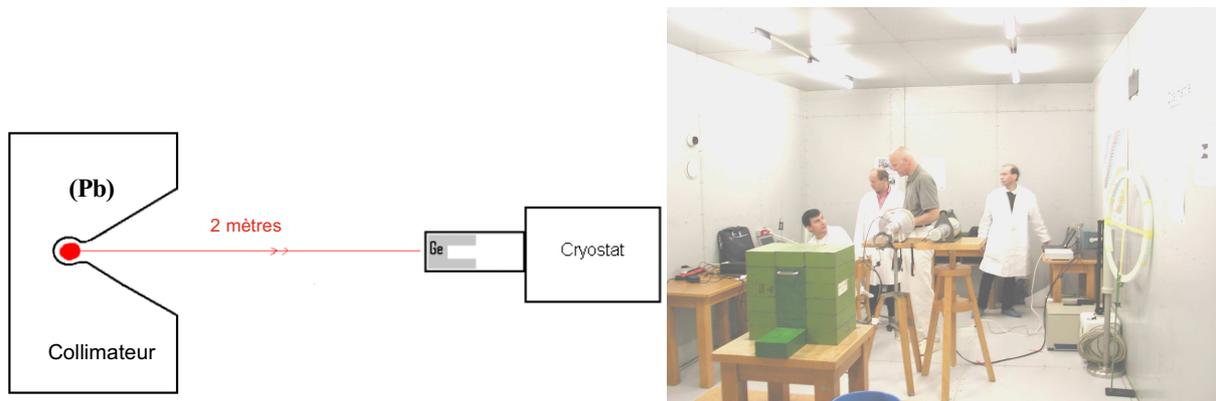


Figure 4.1 : configuration de la mesure de dose dans la mine de sel.

<b><math>H^*(10)</math> en <math>nSv.h^{-1}</math></b>	$^{137}Cs$	$^{241}Am$	$^{60}Co$	$^{226}Ra$
Valeurs de référence (A)	140,4	64,0	556,5	283,2
Valeurs mesurées (B)	119,1	48,0	510,4	236,6
<b>Rapport B/A</b>	<b>0,848</b>	<b>0,750</b>	<b>0,917</b>	<b>0,835</b>

Tableau 4.4 : valeurs de débit de dose de référence et mesurées expérimentalement.

Le problème de cette analyse est que seule l'information du pic d'absorption totale est utilisée. Le modèle Monte Carlo du détecteur développé au chapitre 2.3 va être utilisé pour déterminer les fonctions de réponse du détecteur et ainsi extraire plus d'informations du spectre *in-situ* mesuré que celle apportée par le pic d'absorption totale.

#### 4.2.2. « Stripping method »

La simulation du détecteur a permis d'appliquer la méthode de déconvolution spectrale (« stripping method » [42]) donnant le spectre du flux incident à partir d'un spectre *in-situ* mesuré. Cette technique utilise l'équation 4.1 exprimant le spectre mesuré ( $Em1 Em2 \dots Em8192$ ) comme étant égal au produit du spectre de flux incident ( $F1 F2 \dots F8192$ ) par la matrice des réponses unitaires du détecteur, dans le cas d'un spectre de 8192 canaux.

$$(Em1 Em2 \dots Em8192) = (F1 F2 \dots F8192) \otimes \begin{pmatrix} R_{1,1} & \dots & R_{1,8192} \\ \dots & \dots & \dots \\ 0 & \dots & R_{8192,8192} \end{pmatrix} \quad \text{Équation 4.1}$$

En pratique, cette matrice est *triangulaire supérieure*. En utilisant cette caractéristique et en posant l'hypothèse que le contenu du dernier canal ne provient que des dépôts d'énergie totaux, le schéma de résolution suivant est utilisé :

$$F8192 = \frac{Em8192}{R_{8192,8192}} \quad \text{Équation 4.2}$$

$$(Em1 Em2 \dots Em8192) - F8192 \times (R_{1,8192} \dots R_{8192,8192}) \quad \text{Équation 4.3}$$

L'équation 4.2 est utilisée pour connaître le flux au canal 8192, puis en utilisant l'équation 4.3, le contenu du spectre *in-situ* dans le canal 8192 est amené à zéro. Ce schéma est appliqué ensuite canal par canal vers les basses énergies : l'équation 4.2 est utilisé pour le canal 8191 et ainsi de suite jusqu'au premier canal.

La figure 4.2 montre le spectre de la mesure expérimentale de la source de  $^{60}\text{Co}$  et la figure 4.3, le spectre incident obtenu en appliquant la méthode de déconvolution. Une dernière étape consiste à convertir le spectre de flux incident en débit de dose, en multipliant chaque canal par un facteur de conversion flux – débit de dose [43]. La somme cumulative du débit de dose en  $\text{nSv}\cdot\text{h}^{-1}$  apparaît en magenta sur la figure 4.3.

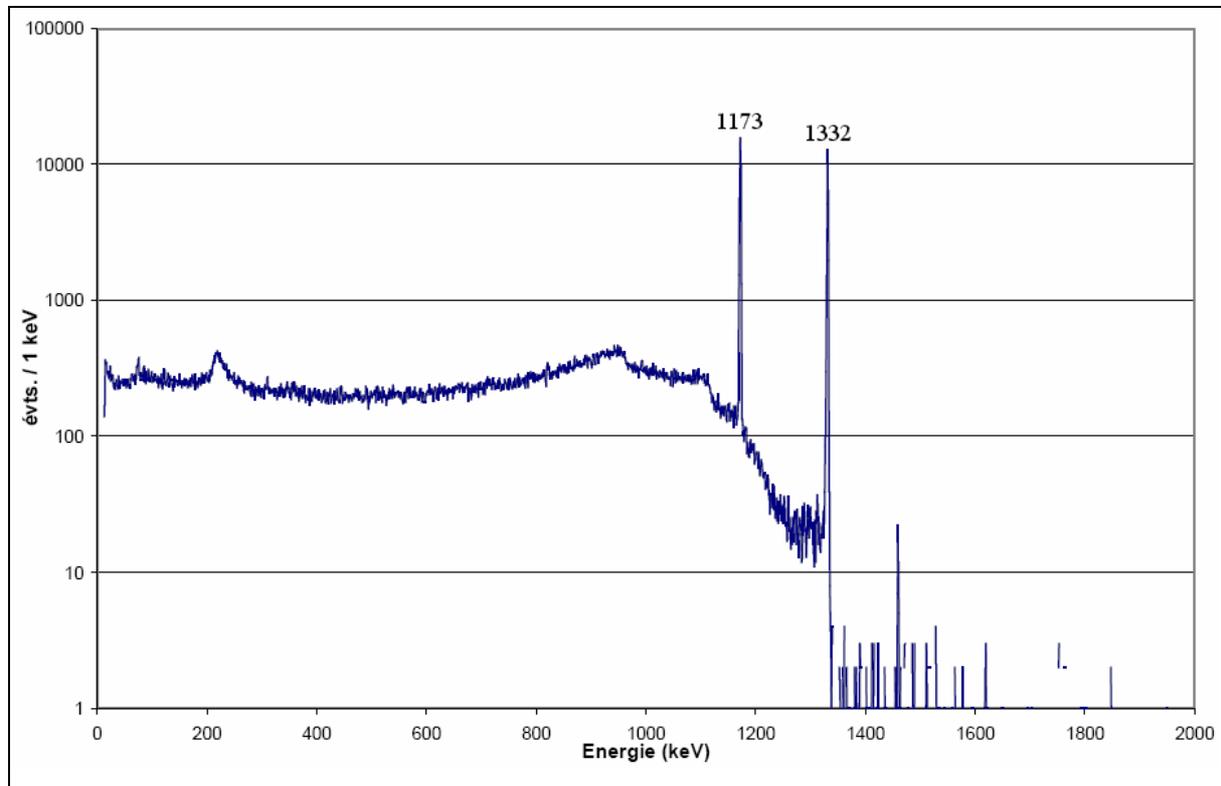


Figure 4.2 : spectre *in-situ* de la mesure expérimentale de la source de  $^{60}\text{Co}$  dans la mine d'UDO.

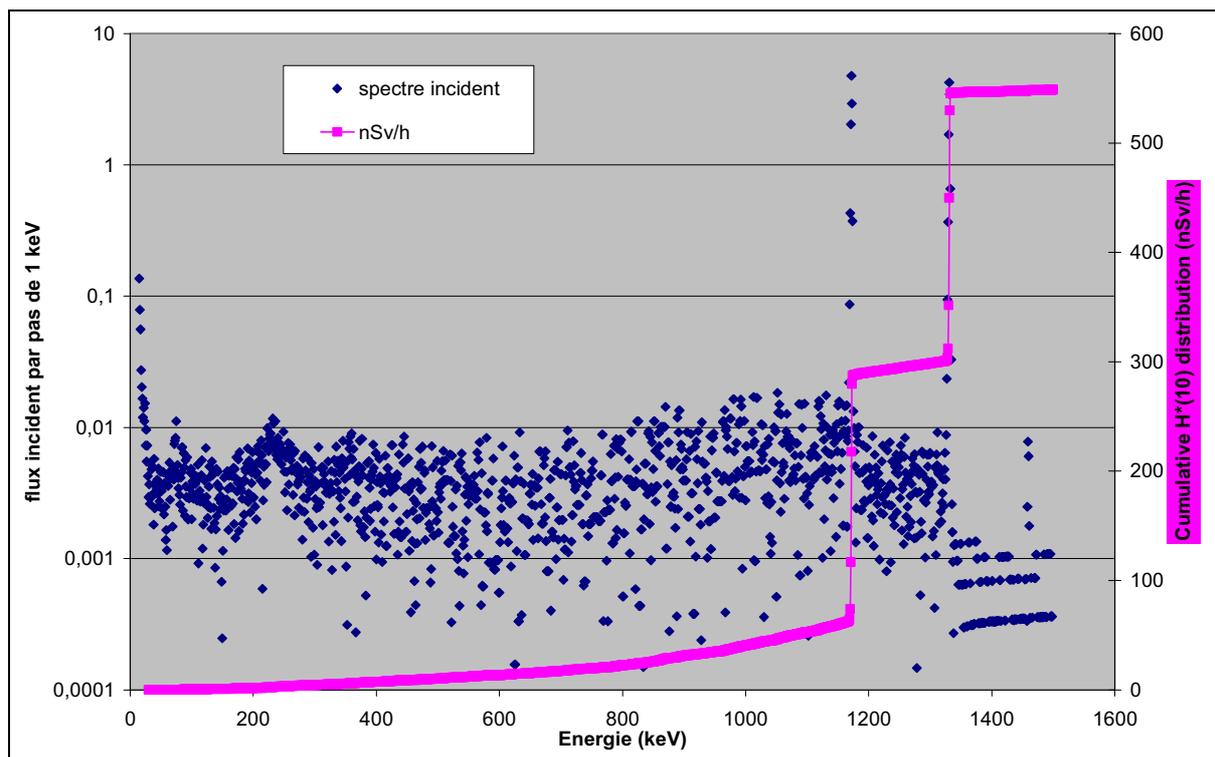


Figure 4.3 : spectre de flux incident obtenu par la méthode de déconvolution.

Le spectre incident ne montre pas seulement un spectre avec les raies de  $^{60}\text{Co}$  comme indiqué par les organisateurs, mais également une composante continue apportant, comme le montre la courbe en rose, environ 15 % de la totalité du débit de dose. Par conséquent, la dose n'était pas seulement due aux photons directs, mais également due aux photons diffusés. La figure 4.4 présente l'hypothèse suivie : le plateau Compton observé tient son origine des photons diffusés dans le blindage de plomb.

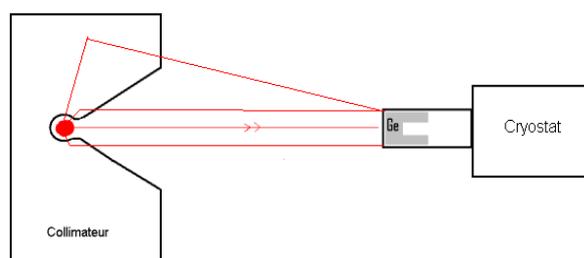


Figure 4.4 : trajet possible des photons incidents sur le détecteur.

Afin de confirmer cette hypothèse, une simulation Monte Carlo de l'expérience a été effectuée en utilisant le modèle représenté sur la figure 4.5. Tout photon atteignant la surface de détection sera enregistré pour ainsi obtenir un spectre incident simulé (figure 4.6).

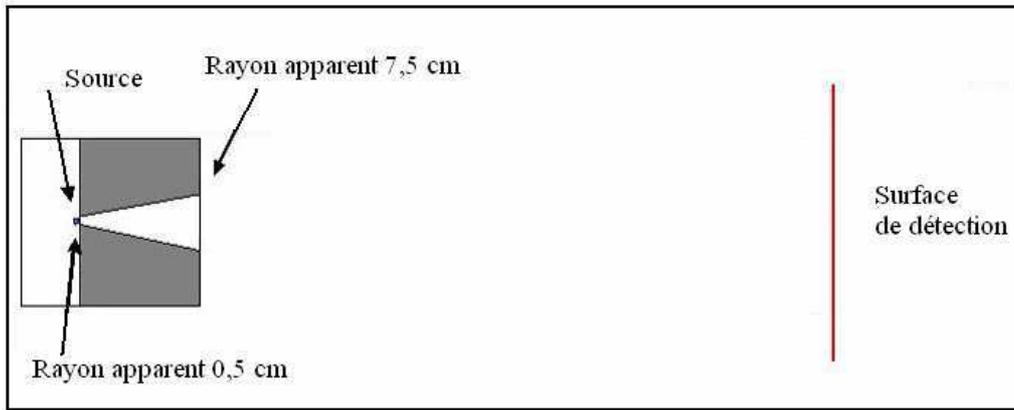


Figure 4.5 : modèle utilisé pour la simulation du flux.

Le spectre du flux incident simulé montre une forme similaire à celle du spectre incident obtenu par la méthode de déconvolution : il présente également un plateau Compton important, mettant bien en évidence les diffusions Compton dans le blindage de plomb. Ces diffusions doivent être prises en compte lors du calcul du débit de dose.

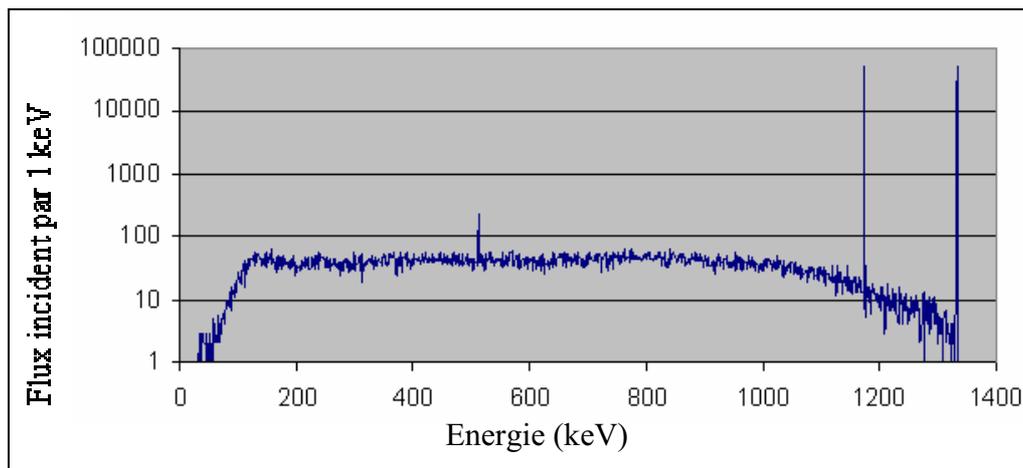


Figure 4.6 : spectre incident simulé.

Les débits de dose obtenus par la méthode de déconvolution ont maintenant une bonne cohérence avec les valeurs théoriques (tableau 4.5). Après avoir obtenu des différences de l'ordre de 20 % au cours de la détermination du débit de dose à partir des pics d'absorption totale seuls, un bon accord est maintenant obtenu avec des différences de moins de 5 % pour les quatre radionucléides étudiés.

<b>H*(10) en nSv.h<sup>-1</sup></b>	<sup>137</sup> Cs	<sup>241</sup> Am	<sup>60</sup> Co	<sup>226</sup> Ra
Spectre mesuré (B)	137,4	61,7	548,3	283,4
Bruit de fond (C)	1,0	0,9	1,1	1,2
B - C	136,4	60,9	547,2	282,2
Valeurs de référence (A)	140,4	64,0	556,5	283,3
<b>Rapport (B - C)/A</b>	<b>0,971</b>	<b>0,951</b>	<b>0,985</b>	<b>0,996</b>

**Tableau 4.5 : valeurs de débits de dose de référence et nouvelles valeurs calculées à partir de la méthode de déconvolution du spectre.**

Cette cohérence permet d'affirmer que la dose est due aux photons du pic d'absorption totale mais également pour une part non négligeable aux photons diffusés dans le blindage de plomb. La méthode de déconvolution spectrale a permis d'obtenir les spectres de flux incident permettant de comprendre un peu mieux la physique mise en jeu lors d'une mesure.

### 4.3. *La mesure du rayonnement cosmique*

Un site de mesure de l'intercomparaison EURADOS en 2002 a permis de mesurer la composante cosmique. Le spectre de la mesure effectuée sur une plate-forme sans radioactivité (figure 3.22) située au milieu d'un lac à 100 mètres des berges est présenté sur la figure 4.7 en rose. Le spectre comporte une forte composante continue caractérisant l'interaction du rayonnement cosmique avec le système de détection et également quelques pics de radioactivité naturelle. Ces pics témoignent du fait que la mesure ne s'est pas déroulée de façon aussi propre que prévue par les organisateurs. En effet, malgré les directives des organisateurs, un chercheur et toute sa radioactivité sont restés sur la plate-forme. Le pic de  $^{40}\text{K}$  à 1460 keV peut être expliqué en partie par la présence du chercheur. Enfin, les organisateurs n'ont pas tenu compte de l'impact de la radioactivité présente sur les berges du lac, à 100 mètres du détecteur. La méthodologie développée dans le chapitre 3 est utilisée pour déterminer cette composante.

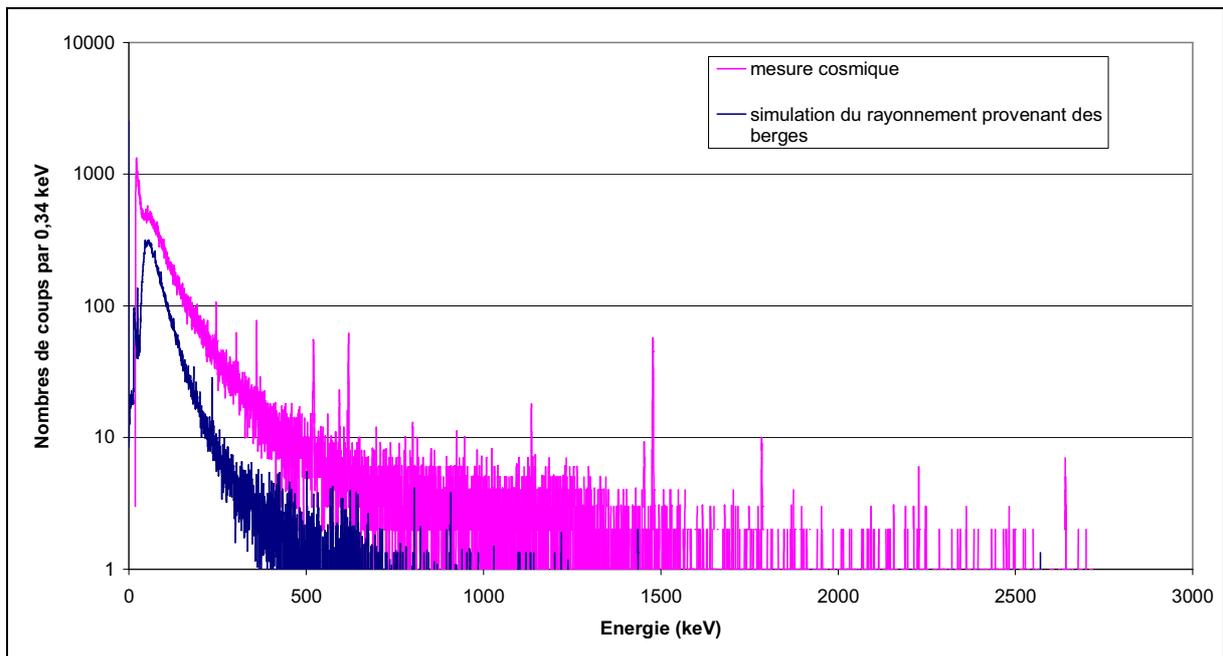
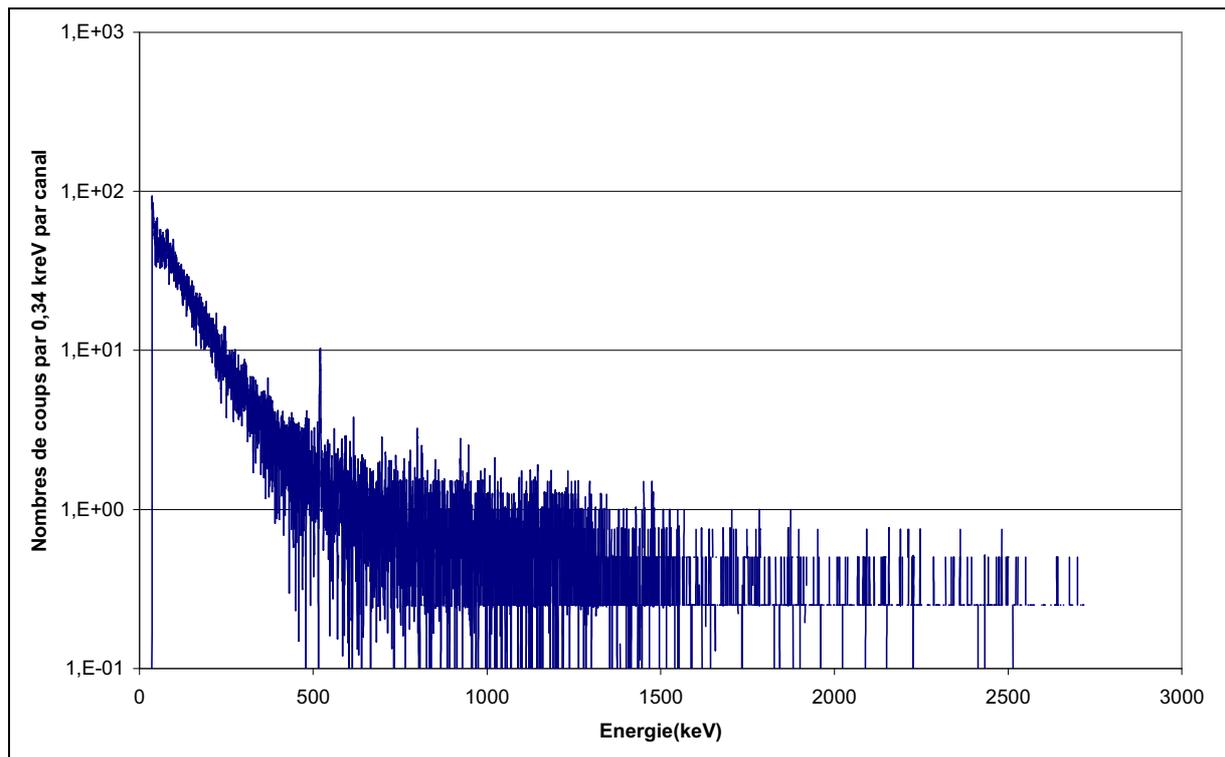


Figure 4.7 : mesure cosmique sur la plate-forme (en rose) et la simulation de la composante naturelle venant des berges (en bleu).

En effet, en sélectionnant dans la base de données les photons provenant d'une distance supérieure à 100 mètres, la reconstruction de la contribution naturelle a été effectuée (spectre bleu sur la figure 4.7). La présence de quelques pics naturels et surtout la présence d'un fond Compton important montrent l'importance de soustraire cette composante au

spectre *in-situ* mesuré afin d'isoler la contribution cosmique. Toutefois, il faut noter que cette contribution naturelle des berges n'est pas suffisante pour expliquer en totalité l'ensemble des pics : la radioactivité naturelle du chercheur est mise en cause. Pour pallier à ce problème et en première approximation, tous les pics de rayonnements naturels ont été supprimés sauf celui de 511 keV car provenant partiellement de façon inconnue du rayonnement cosmique. La figure 4.8 présente le résultat de cette analyse.



**Figure 4.8 : composante cosmique du spectre *in-situ* pour une mesure de 1800 s.**

Les conditions d'une mesure propre de la composante due au rayonnement cosmique est difficile à mettre en œuvre à si basse énergie. Il existe quelques références expliquant les interactions des rayonnements cosmiques avec les spectromètres germanium mais à des énergies supérieures (de l'ordre du GeV) à celles mesurées ici [44,45]. Cette analyse est malgré tout l'estimation la plus précise à disposition de la composante cosmique entre 0 keV et 3 MeV. Elle sera donc utilisée pour les analyses des simulations effectuées dans ce travail.

#### 4.4. *La compréhension des spectres d'ISIGAMMA 2005*

La simulation Monte Carlo peut être utilisée pour comprendre la forme de certains spectres de mesures *in-situ*. C'est le cas par exemple des deux spectres présentés sur la figure 1.9. Ils ont été mesurés sur deux sites de mesure équivalents donc présentent une hauteur de pics d'absorption totale similaire mais ont un fond Compton très différent. L'analyse classique utilisée fournit les mêmes activités de radionucléides car elles utilisent seulement l'information comprise dans le pic d'absorption totale. La simulation Monte Carlo permet de comprendre les phénomènes mis en jeu.



Figure 4.9 : configuration du site de mesure.

Expérimentalement, le premier site de mesure est une pelouse du campus d'Orsay et le deuxième est un point du site de mesure de calibration de l'intercomparaison ISIGAMMA en 2005 (figure 4.9). Ce dernier site comportait trois surfaces carrées de vingt mètres de côté situées à environ dix mètres les unes des autres et décalées en hauteur : en théorie, d'après les organisateurs, il n'y avait pas d'influence croisée entre les sites. Le tableau 4.6 présente les activités de référence de ces trois surfaces.

en Bq.kg <sup>-1</sup>	Site A	Site B	Site C
<sup>238</sup> U	319	200	32
<sup>226</sup> Ra et descendants	319	2682	32
<sup>40</sup> K	636	313	248
<sup>232</sup> Th	40	15	15

Tableau 4.6 : activités de référence des trois surfaces utilisées pour l'étalonnage des dosimètres de l'ancienne mine d'uranium de WISMUT (en Bq.kg<sup>-1</sup>).

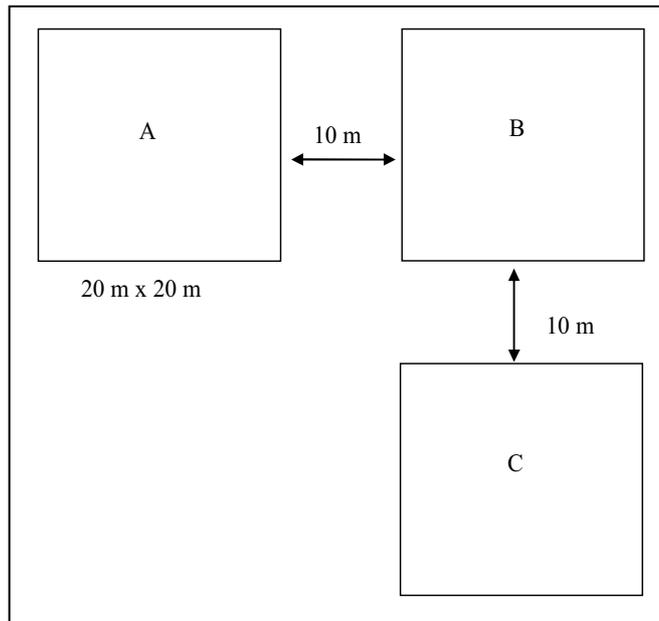


Figure 4.10 : implantation des trois sites de mesure.

La modélisation a été utilisée pour simuler l'activité du site C correspondant en fait à l'activité environnante du terrain de mesure. La comparaison avec la mesure *in-situ* est montrée sur la figure 4.11.

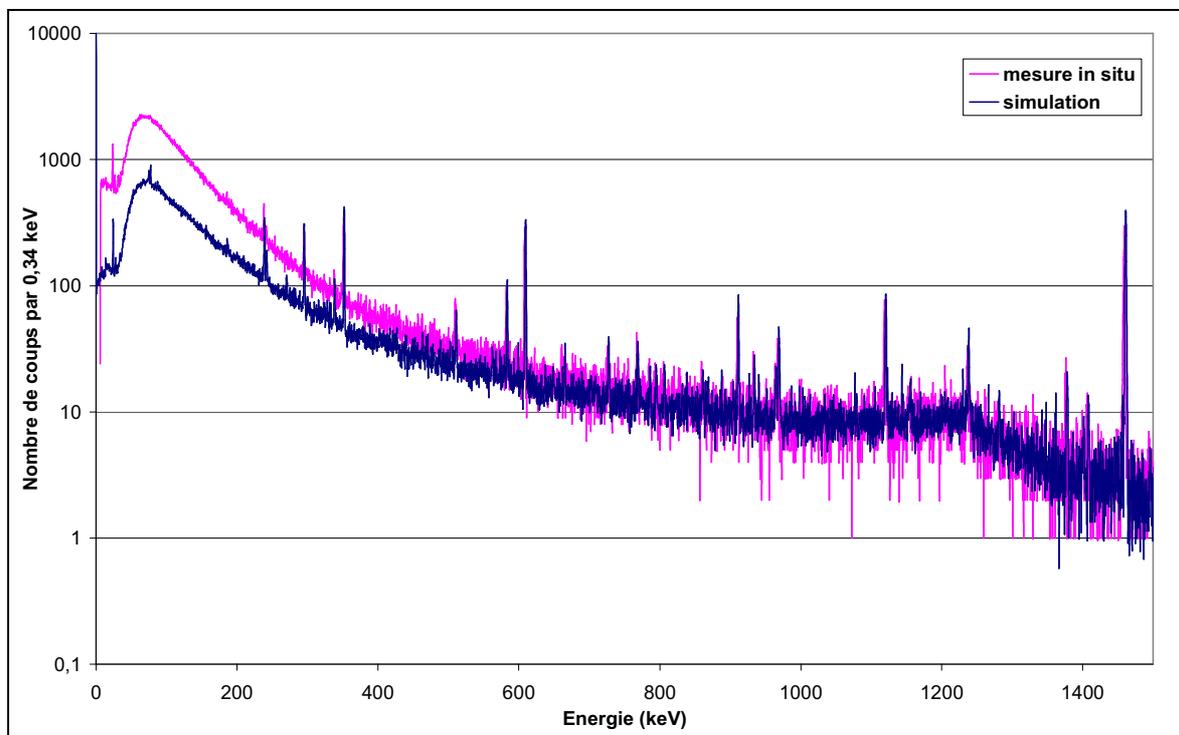
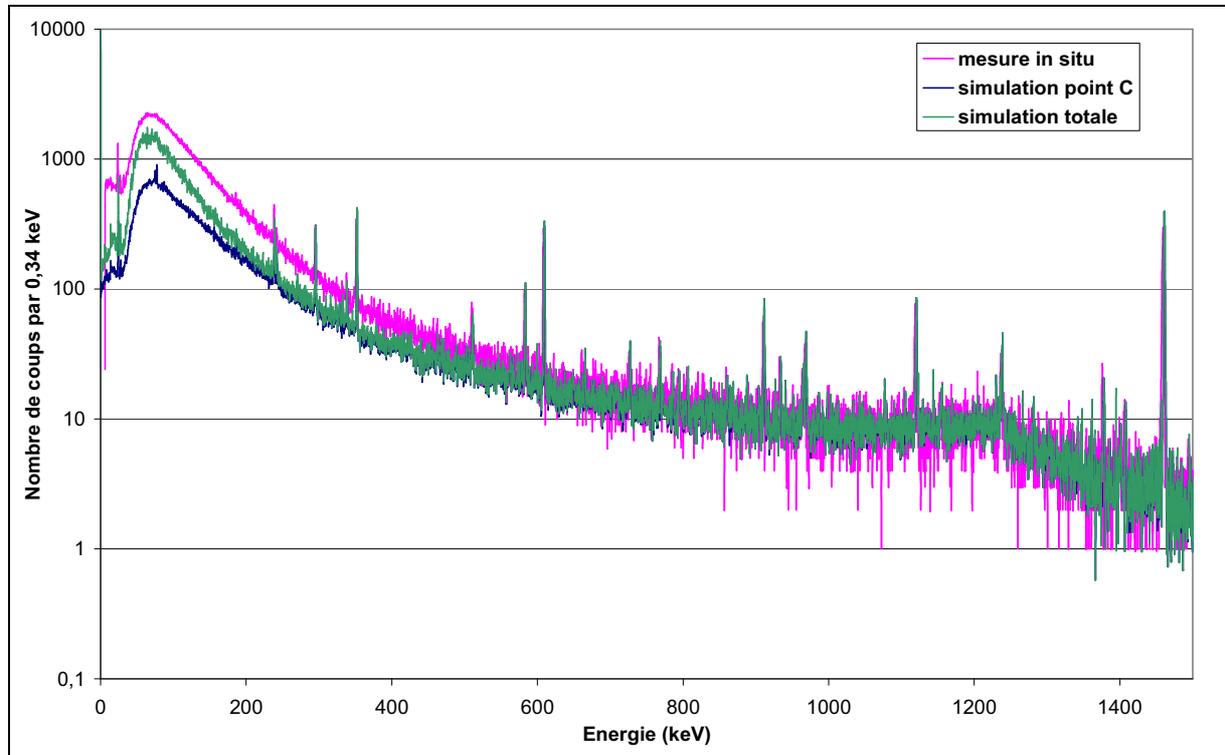


Figure 4.11 : comparaison entre la simulation et le spectre *in-situ* mesuré au site C.

La base de données décrite dans le chapitre 3 a été utilisée pour modéliser la mesure effectuée sur le site A et B : une sélection dans la base de données des photons ayant pour origine le site étudié est effectuée et normalisée à l'activité de cette surface. La somme des trois sites de mesures correspond à la mesure effectuée au point C (figure 4.12).



**Figure 4.12 : comparaison des deux spectres de simulation avec et sans contribution des sources extérieures (points A et B) avec celui de la mesure in-situ effectuée au point C.**

La figure 4.12 montre le résultat de cette modélisation, avec et sans la prise en compte de l'influence des surfaces A et B. Une nette différence est présente à basse énergie et montre que les points de mesure situés à environ vingt mètres du détecteur ont une influence sur la mesure contrairement à ce que pensaient les organisateurs.

Les incertitudes sur la position et les activités de référence étant relativement mal connues par les organisateurs, ce résultat est purement qualitatif. A noter que ce site était implanté dans la mine à ciel ouvert, et la présence d'une zone à forte activité proche du site n'est pas à exclure. Cette étude permet néanmoins de comprendre le changement de forme du spectre.

## 4.5. La méthode « Peak-to-Valley »

### 4.5.1. L'utilisation de la modélisation

Comme déjà décrit dans le chapitre 1.3, la figure 4.13 (à gauche) présente les zones d'intérêt du pic  $^{137}\text{Cs}$  pour le calcul du rapport « Peak-to-Valley » dont le principe [23] est d'étudier le rapport entre l'aire du pic d'absorption totale et l'aire C. Cette dernière aire correspond aux photons ayant subi une diffusion Compton à faible angle de diffusion entraînant ainsi une faible perte d'énergie. La détermination de l'aire nette C s'effectue en soustrayant le comptage du bruit de fond (A) et celui du bruit de fond additionnel produit par le fond Compton hétérogène des photons de plus haute énergie(B).

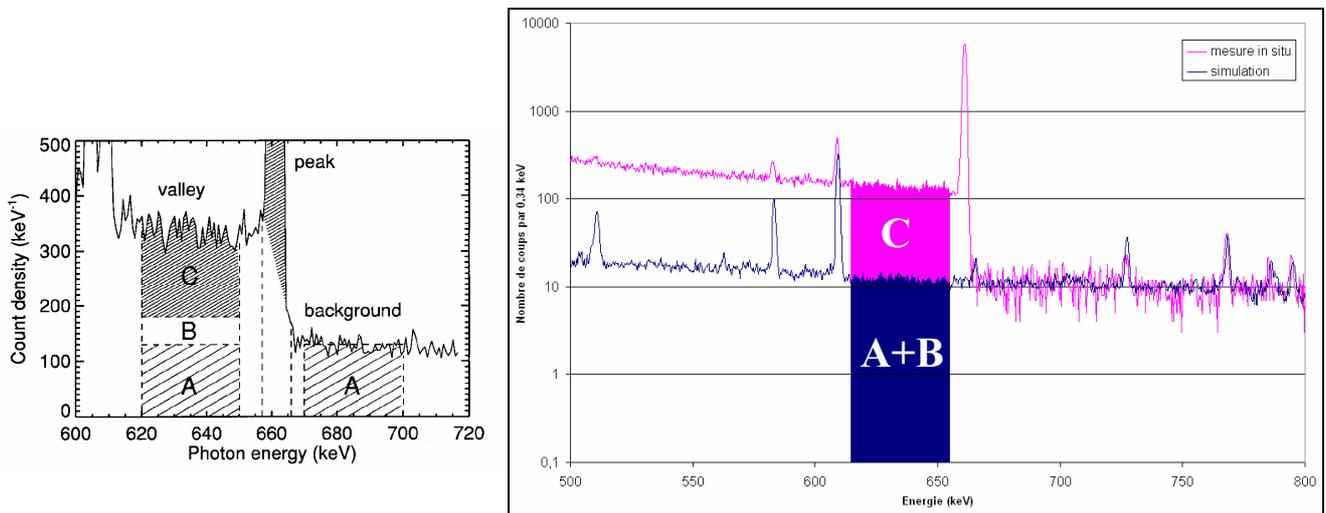


Figure 4.13 : la méthode « Peak to valley » pour  $^{137}\text{Cs}$  (à gauche) et principe de calcul du taux de comptage de la valley en utilisant la simulation Monte Carlo (à droite).

La modélisation développée au chapitre 3 est utilisée pour estimer la surface  $A + B$ . En effet, comme montré sur la figure 4.13 (à droite), la modélisation de tous les éléments de la radioactivité présente dans le spectre de mesure *in-situ* permet d'accéder à la valeur  $A + B$  en bleu sur la figure. Cette approche sera utilisée dans deux cas particuliers :

- un cas d'école permettant de tester cette utilisation basée sur la mesure d'une source ponctuelle enterrée
- et un cas réel avec une distribution complexe de  $^{137}\text{Cs}$  dans le sol.

#### 4.5.2. La détermination de la profondeur d'une source

Un des exercices de l'intercomparaison ISIGAMMA proposait de déterminer la profondeur d'une source de  $^{60}\text{Co}$  ponctuelle et enterrée. Plusieurs méthodes existent pour déterminer la profondeur : soit utiliser l'atténuation différentielle entre les deux raies de  $^{60}\text{Co}$ , soit faire des mesures à deux distances du sol et étudier l'atténuation du flux en fonction de la distance. Avec ces méthodes classiques, l'estimation de la profondeur de la source était de  $32 \pm 1$  cm pour une profondeur donnée par les organisateurs de  $35 \pm 1$  cm.

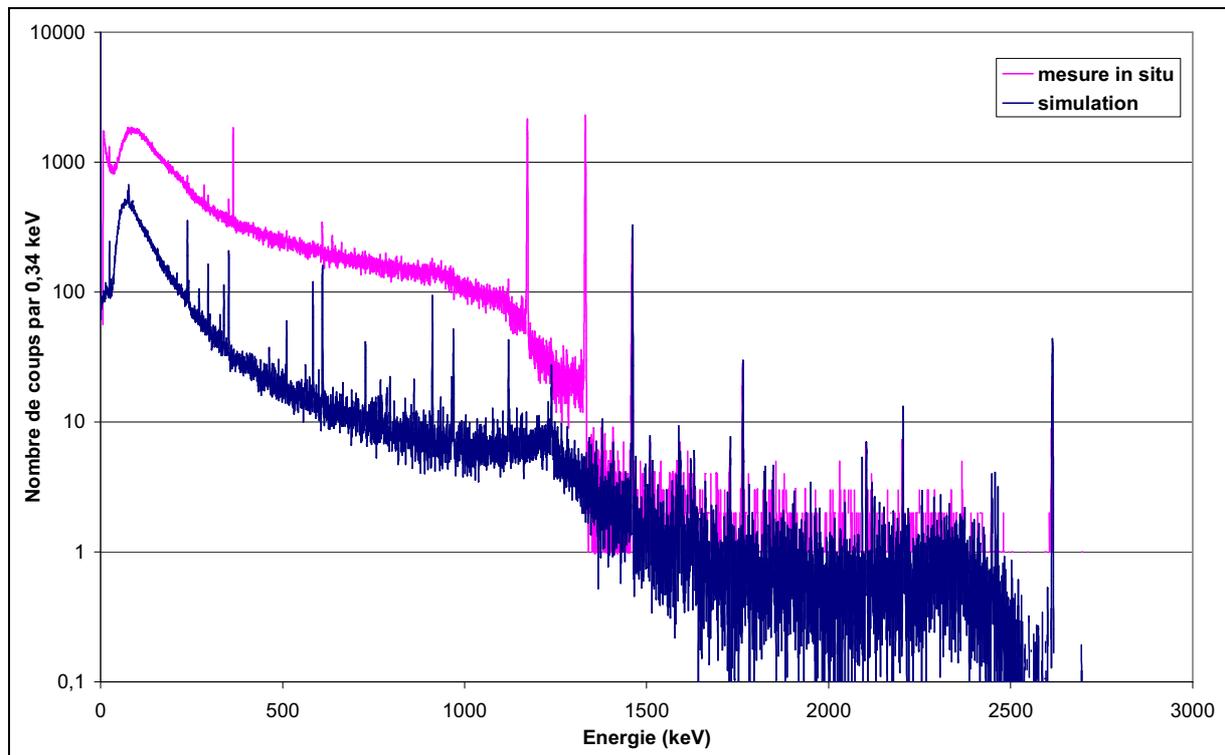


Figure 4.14 : superposition du spectre de mesure *in-situ* avec le spectre de simulation ne prenant pas en compte les émissions du cobalt.

Cet exercice est un cas d'école parfait pour vérifier l'utilisation de la modélisation et de la base de données. A posteriori, la méthode « *Peak to Valley* » a été utilisée pour déterminer cette profondeur. Les zones d'intérêt utilisées pour  $^{60}\text{Co}$  sont la zone comprise entre 1290 keV et 1320 keV pour la Valley, entre 1328 keV et 1335 keV pour la zone du Peak. La figure 4.14 montre le spectre *in-situ* mesuré en rose et celui de la simulation des radionucléides naturels en bleu.

Le tableau 4.7 montre le nombre d'évènements des différentes zones d'intérêt et la valeur du rapport « *Peak to Valley* » avec son incertitude pour un temps de mesure de 1150 s.

	Pic d'absorption totale		Vallée		Rapport Peak to Valley
	brut	net	Brut (A+B+C)	Net (C)	
Nombre d'évènements	15226	15124	1822	1342	<b>11,27 ± 0,40</b>

Tableau 4.7 : calcul du rapport Peak to Valley.

Dans une première étape, la base de données constituée au chapitre 3 a servi à déterminer le rapport en fonction de la profondeur. Cependant, les conditions très restrictives (diamètre de la source 3 mm, épaisseur 0,1 mm) faisaient que la statistique était insuffisante pour donner un résultat satisfaisant. Donc, dans une deuxième étape, une modélisation et une base de données spécifiques à ce problème ont été créées en ne prenant en compte que les particules provenant des dimensions de la source. Cette nouvelle base de données restrictives a été créée en 1 mois de calcul. La figure 4.15 montre la variation du rapport « Peak-to-Valley » de  $^{60}\text{Co}$  en fonction de la profondeur par pas de 2 cm de ce nouveau modèle et la valeur mesurée (en rose).

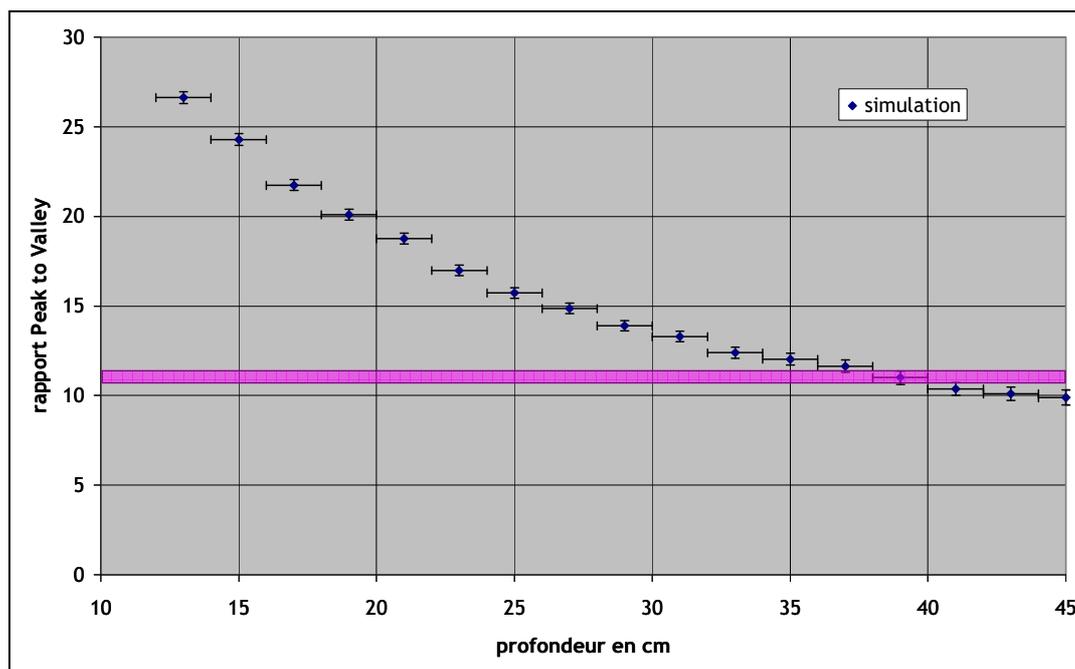


Figure 4.15 : variation du rapport « Peak to Valley » en fonction de la profondeur de source.

A l'aide de la méthode « Peak to Valley », la profondeur de la source est mesurée à  $38 \pm 2$  cm. Cette profondeur est en bon accord avec la profondeur donnée par les organisateurs. Ce test a permis de vérifier le bon fonctionnement de cette approche, de valider son utilisation dans un cas simple et ainsi de pouvoir l'appliquer à la mesure *in-situ*.

### 4.5.3. La détermination de la distribution de $^{137}\text{Cs}$ à Orsay

La présence de  $^{137}\text{Cs}$  sur le sol d'Orsay est due aux retombées des essais atmosphériques et à celles de l'accident de Tchernobyl. Ce terrain a été relativement peu touché : l'activité comme déjà décrite dans le chapitre 3 est de l'ordre de quelques  $\text{Bq.kg}^{-1}$ .

Une mesure *in-situ* de 6000 secondes a été faite et présentée en magenta sur la figure 4.16. Le rapport « Peak to Valley » a été calculé et est donné dans le tableau 4.8.

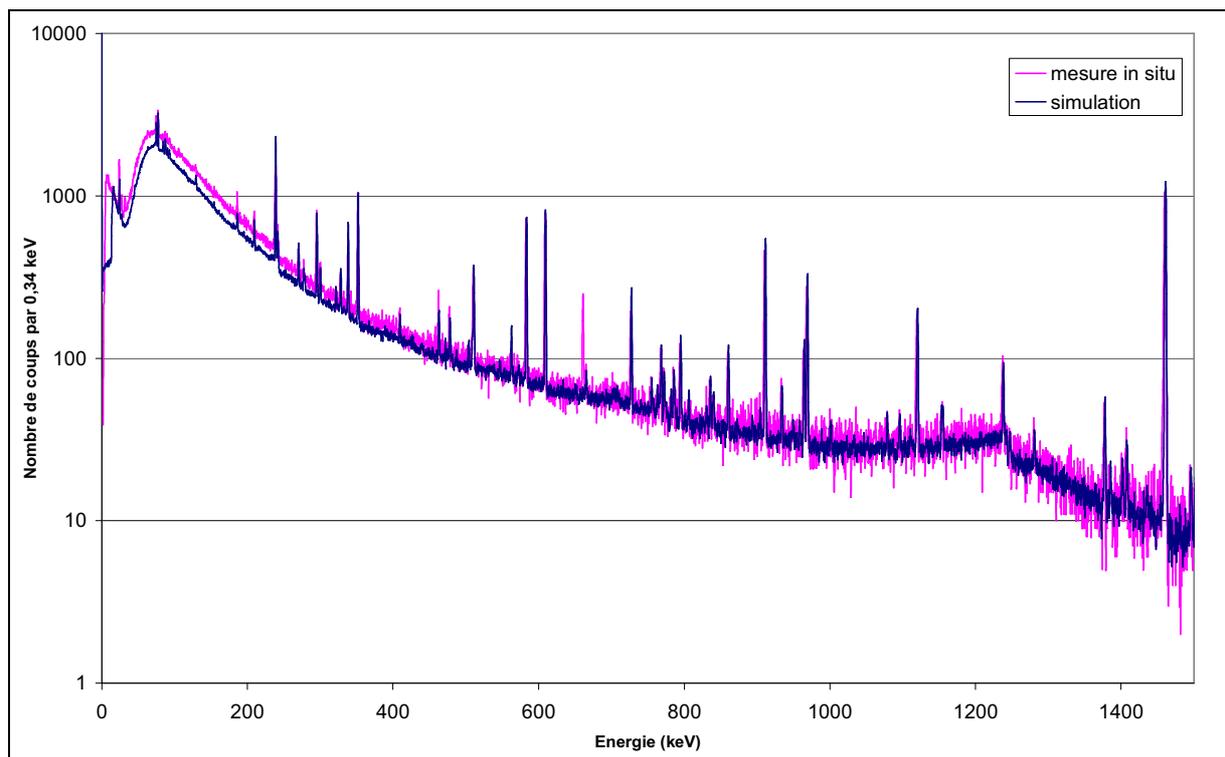


Figure 4.16 : comparaison entre un spectre *in-situ* et celui de la simulation ne prenant pas en compte l'activité en  $^{137}\text{Cs}$  sur le site d'Orsay.

	Peak		Valley		rapport
	brut	net	brut	net	Peak to Valley
Nombres de coups	1521	864	5640	212	$4,08 \pm 1,26$

Tableau 4.8: calcul du rapport Peak to Valley.

La modélisation a permis d'obtenir la variation du rapport « Peak to Valley » en fonction du paramètre  $\beta$  en bleu sur la figure 4.17. En magenta est présentée la valeur obtenue à partir de la mesure *in-situ* ainsi que son incertitude. L'intersection de ces graphes donne une valeur du paramètre  $\beta$  (défini au paragraphe 2.5.2) de  $60 \text{ g.cm}^{-2}$  et en tenant compte des incertitudes, ce paramètre a comme borne inférieure  $12 \text{ g.cm}^{-2}$ .

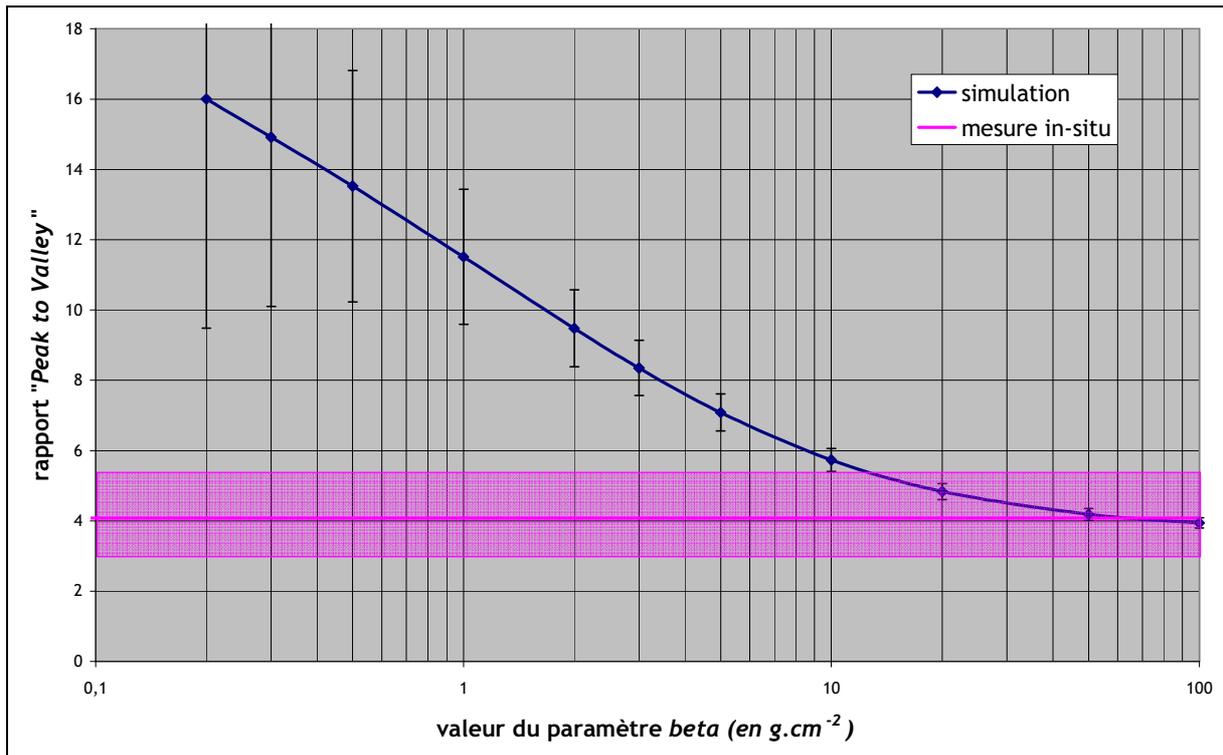


Figure 4.17 : variation du rapport Peak to Valley en fonction du paramètre de l'exponentielle.

Parallèlement à la mesure, deux carottes de terre ont été prélevées, découpées en tranches de 5 cm, conditionnées et mesurées par spectrométrie gamma au laboratoire. La figure 4.18 montre la décroissance exponentielle de l'activité en  $^{137}\text{Cs}$  sur les deux carottes (prélevées sur le terrain d'Orsay). A partir de l'ajustement d'une courbe exponentielle sur les points de mesure, le paramètre  $\beta$  peut être déterminé en effectuant une moyenne des deux valeurs commentées au tableau 4.9.

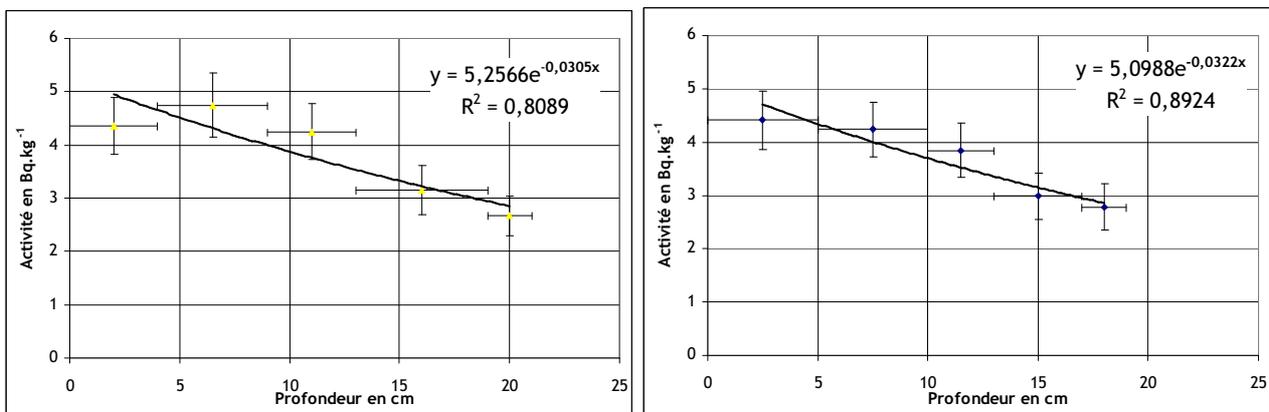


Figure 4.18 : profil exponentiel de l'activité en  $^{137}\text{Cs}$  sur le site d'Orsay.

	Carotte 1	Carotte 2	Valeur moyenne
Valeur de $\beta$ (g.cm <sup>-2</sup> )	49,7	52,5	<b>51,1</b>

**Tableau 4.9 : valeur du paramètre  $\beta$  sur le site d'Orsay.**

Malgré les fortes incertitudes de la mesure, dues à la faible activité en <sup>137</sup>Cs (de l'ordre de 3 Bq.kg<sup>-1</sup>), une bonne cohérence est observée sur le paramètre  $\beta$  mesuré sur la carotte de terre et celui déterminé à partir de la mesure *in-situ* et de la modélisation. Ainsi, même dans des conditions de faibles activités, la modélisation reste utilisable.

## ***CONCLUSION ET PERSPECTIVES***

Le travail présenté dans ce manuscrit se situe dans le cadre du développement de l'analyse de la spectrométrie gamma *in-situ*, méthode en plein essor de nos jours. Cette étude a été initiée à la suite de deux intercomparaisons internationales ou l'utilisation de l'analyse classique de la spectrométrie gamma *in-situ*, basée sur l'étude des raies d'absorption totale, amenait des écarts avec les valeurs des organisateurs :

- EURADOS 2002, écart important sur une mesure simple d'une source ponctuelle, mesure similaire à celle d'un étalonnage.
- ISIGAMMA 2005, résultats identiques pour deux terrains ayant pourtant des spectres différents.

Ces intercomparaisons ont montré le manque de compréhension des phénomènes physiques mis en jeu ainsi que la limite de l'analyse classique. Le but de ce travail était de développer une méthode d'analyse utilisant l'information fournie par les raies d'absorption totale mais aussi et surtout utilisant l'information codée dans la partie continue du spectre *in-situ*.

La première étape de ce travail a eu pour but de lister les mécanismes mis en jeu lors d'une détection. Elle a permis d'identifier, de comprendre et de localiser dans le dispositif expérimental, les mécanismes à l'origine des caractéristiques d'un spectre gamma identifiant ainsi les zones les plus susceptibles de contenir un signal exploitable.

Dans une deuxième étape, l'outil Monte Carlo a été utilisé pour modéliser le dispositif expérimental. Très rapidement une difficulté est apparue : dans le cadre de la mesure *in-situ* les dimensions des sources sont a priori infinies. En effet, par exemple dans le cas d'un dépôt surfacique, la diminution de l'angle solide de détection en fonction du rayon est compensée exactement par l'augmentation de la surface émettrice. Seule l'atténuation du flux de photons dans l'air permet au problème de converger. D'un point de vue pratique la méthode Monte Carlo converge très lentement dans ce cas particulier et les durées de simulation ne sont pas envisageables. Le développement d'une méthode utilisant les symétries existantes dans le problème a permis de réduire considérablement ces temps de calcul, levant ainsi le verrou existant à l'utilisation de l'outil Monte Carlo à la problématique *in situ*.

De manière pratique la modélisation de la mesure *in-situ* a été divisée en trois parties :

- modélisation du détecteur.
- modélisation du flux de photons incident sur le détecteur.
- convolution des deux modèles et obtention du spectre *in-situ*.

Un autre développement de ce travail a été l'utilisation de bases de données intermédiaires stockant les résultats des calculs Monte Carlo. Ce développement technique rend extrêmement aisée l'usage de cette méthode. Ainsi un calcul qui était incompatible avec la durée d'une thèse est devenu un outil pratiquement opérationnel.

La méthodologie ainsi développée a été utilisée afin de comprendre les phénomènes physiques engendrant le spectre *in-situ*. Elle a permis de comprendre l'origine des photons arrivant sur le détecteur et l'histoire qu'ils ont subie. Ensuite, l'impact des paramètres tels que l'humidité, la distribution des radionucléides dans le sol, la densité du sol et sa composition a été étudié pour connaître les changements de la forme spectrale du flux incident en fonction de la configuration environnementale. Ceci a permis de comprendre la robustesse de la mesure *in-situ* : en effet le flux de photons incident ne varie qu'en fonction de l'humidité dans le sol. Enfin, la modélisation a été utilisée pour reconstituer un spectre *in-situ* réel après identification des différentes sources :

- les chaînes naturelles en prenant compte toutes leurs décroissances.
- les radionucléides tels que le  $^{40}\text{K}$  et le  $^{137}\text{Cs}$ .
- le rayonnement cosmique.

L'excellent accord des comparaisons des spectres *in-situ* simulés avec les spectres *in-situ* mesurés de trois sites différents a montré l'efficacité de la modélisation développée. En particulier, cette comparaison a permis d'identifier l'influence d'une route et d'un bâtiment sur le spectre mesuré sur le site expérimental situé à Orsay.

La dernière partie a montré les utilisations du développement fait au cours de ce travail.

Une utilisation directe des méthodes développées a été le calcul des facteurs de débit de dose en  $\text{nSv}\cdot\text{h}^{-1}$  par  $\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$  rendus nécessaire par la directive européenne 96/29/EURATOM, facteurs n'existant pas dans la littérature. Ces facteurs ont été calculés pour des sources monoénergétiques et pour les principaux radionucléides présents dans l'environnement.

La modélisation Monte Carlo du détecteur a été utilisée pour comprendre l'écart entre les valeurs de débit de dose cibles et mesurées par les participants lors de l'intercomparaison

EURADOS. Ainsi, le spectre du flux incident de la mesure a été obtenu en utilisant la modélisation du détecteur. Apparaissaient dans ce spectre les raies des photons directs mais également une composante continue due à la diffusion des photons dans le collimateur et négligée par les organisateurs. Cette composante continue apportait jusqu'à 20 % du débit de dose dans le cas de  $^{241}\text{Am}$ . L'intégration de cette composante dans le calcul du débit de dose a permis d'obtenir un excellent accord entre l'analyse et la valeur cible des organisateurs.

L'utilisation de la base de données a permis de comprendre de manière qualitative l'écart à basse énergie des deux spectres lors de l'intercomparaison ISIGAMMA. Des sélections appropriées ont montré l'influence des autres sites de mesure, qui par diffusion des photons, modifiait le spectre continu à basse énergie mesuré sur l'aire d'étalonnage.

La bonne cohérence lors de la comparaison entre les spectres *in-situ* mesurés et les spectres *in-situ* simulés a permis de développer la méthode « *Peak to Valley* » utilisant la modélisation pour estimer le nombre d'évènements de la *Valley*. Cette méthode a été appliquée à la détermination de la distribution exponentielle de  $^{137}\text{Cs}$  sur le site d'Orsay. La forme de l'exponentielle déterminée est cohérente avec celle mesurée à partir des prélèvements effectués et de la mesure *in-situ*. Malgré le manque de statistique dû à la faible activité de  $^{137}\text{Cs}$ , la méthode « *Peak to Valley* » permet d'obtenir une bonne cohérence entre les paramètres  $\beta$  de la forme exponentielle déterminés.

Suite au développement technique de ce travail, l'application Monte Carlo à la spectrométrie gamma *in-situ* est maintenant envisageable. L'utilisation de bases de données intermédiaires offre une perspective immédiate par la création d'outils opérationnels permettant, par le changement de quelques paramètres, d'obtenir immédiatement la réponse du détecteur *in-situ* à différentes hypothèses de distribution de sources dans l'environnement.



## Références

- 1 RUTHERFORD, E. et al. (1903) *A penetrating from the Earth's Surface Phys Rev* **16** 183 1903
- 2 HESS, V. F. (1912). *Penetrating Radiation in Seven Free Ballon Flights*. PZ, **13**, 1084.
- 3 BECK, H. L. (1966). *Environmental gamma radiation from deposited fission products, 1960-1964*. Health Phys **12**:313-322.
- 4 BECK, H. L., DECAMPO, J. and GOGOLAK, C. (1972) *In situ Ge(Li) and NaI(Tl) Gamma-Ray Spectrometry*, Report HASL-258 (U.S. Department of Energy, Environmental measurement Laboratory, New York).
- 5 ICRU REPORT 53 (1994). *Gamma Ray Spectrometry in the Environment*.
- 6 ROSSI, B. B. and STAUB, H. H. (1949). *Ionization chambers and counters*. New York: McGraw-hill.
- 7 KNOLL, G. F. (1989). *Radiation Detection and measurement*. 2d ed, New York: John Wiley & Sons.
- 8 HOFSTADTER, R. (1948). *Alkali halide Scintillation counters*. Physical Review **74**(1):100-101.
- 9 WILKINSON, D. H. (1950). *Ionization chambers and counters*, Cambridge: Cambridge university, Press.
- 10 JOHANSSON, S. A. E. (1950). *Measurements of energy of beta and gamma rays with scintillation counters*. Nature **165**:396.
- 11 JOHANSSON, S. A. E. (1950). *A scintillation counter for high energy gamma rays*. Nature **166**: 794-795.
- 12 MATHER et al. (1962). *G-radiation field above fallout contaminated ground*. Health Phys. **8**: 245-260.
- 13 ADAMS, J. A. S. and FRYER, G. E. (1964). *Portable gamma ray spectrometer for field determination of thorium, uranium and potassium*. The natural radiation environment
- 14 BECK, H. L. et al. (1964). *Spectrometric techniques for measuring environmental gamma radiation*. Report HASL-150 USAEC Health and Safety laboratory.
- 15 LOWDER, W. M. et al. (1964). *Spectrometry determination of dose rates from natural and fallout gamma radiation in the united states, 1962-63*. Nature **202**, 745-749.
- 16 PELL, E. M. (1960) *Ion drift in a n-p junction*. J. Appl. Phys. **31**: 291-302.
- 17 BECK, H. L. et al. (1971). *In situ external environmental gamma ray measurement utilizing Ge(Li) and NaI(Tl) spectrometry and pressurized ionization chambers*. Proceeding of international Atomic Energy Agency Symposium on Rapid methods of measuring radioactivity in the environment. Vienna: IAEA, IAEC-SM-148/2: 499-513.
- 18 PHELPS et al. (1972). *A portable Ge(Li) detector for field measurement of radionuclides in the environment*. IEEE Trans Nucl Sci NS-19(1): 199-210.
- 19 BOCHUD, F. et al. (2006). *Note sur la stratégie de surveillance de la radioactivité dans l'environnement de l'OFSP et la révision du plan de prélèvements de la SUER*. Séance de discussion IRA6OFSP du 04-05-2006 à Fribourg.
- 20 Doctrine *La protection des populations civiles face au danger NRBC (Nucléaire, Radiologique, Biologique et Chimique)* Objectif Doctrine n°35. 28-36.
- 21 3ème salon mondial des douanes, Bruxelles, 29 juin- 1 juillet 2006.
- 22 BOUISSET, P. and CALMET, D. (1997) *Hyper pur gamma ray spectrometry applied to low level environmental sample measurements*. Esarda raport EUR 17312 73-81.
- 23 GERING, F. et al. (1998). *In situ gamma spectrometry several after deposition of radiocesium part II peak to valley method*. Radiat. Environ Biophys **37**: 283-291.

- 
- 24 HJERPE, T. (2004). *On line Mobile in situ Gamma Spectrometry* Department of Medical Radiation Physics, The Jubileum Institute, Lund University, Helsinki.
- 25 RYBACEK, K. et al. (1992). *In situ determination of deposited radionuclide activities: improved method using derived depth distribution from the measured photon spectra*. Health phys 62 (6): 519-528.
- 26 BENKE et al. (2001). *An improved in situ method for determining depth distribution of gamma ray emitting radionuclides*. Nuclear Instruments and Method in Physics Research A 463 393-412.
- 27 J. C. SAEZ-VERGARA et al. (2006). *The second EURADOS intercomparison of national network systems used provide early warning of a nuclear accident*. Radiat. Prot. Dos. Doi :10.1093/rpd :nc112.
- 28 HUBELL, J., H. (1982). *Photon mass attenuation and energy-absorption coefficients from 1 keV to 20 MeV*, Int. J. Appl. Radiat. Isot. **33**, 1269-1290.
- 29 BERGER, M. J. and HUBELL, J. H. (1987). *XCOM: Photon Cross Section on a Personal Computer*, Report NBSIR87-3597 (National Institute of Standards and Technology, Gaithersburg, Maryland).
- 30 METROPOLIS, N. and ULAM, S. (1949). *The Monte Carlo Method*. Journal of the American Statistical Association Number 247 Vol 44 335-341.
- 31 BARTHE, J. et al. *Utilisation de codes de Monte Carlo en métrologie des rayonnements ionisants*. CEA/DRT/DIMRI-LNHB.
- 32 GEANT. *Detector Description and Simulation Tool*. CERN Program Library Long Write-up W5013.
- 33 R. Gurriaran, E. Barker, P. Bouisset, X. Cagnat, C. Ferguson. Calibration of a very large ultra-low background well-type Ge detector for environmental sample measurements in a underground laboratory. Nucl. Inst. & Meth A 524 (2004)
- 34 DELLIERE, J. Rapport de stage : *Etude d'un modèle Monte Carlo pour la spectrométrie gamma in-situ, en vue de l'application de nouvelles méthodes d'analyses spectrales*. Juin 2004.
- 35 LEPY, M. C. et al. (2001). *Intercomparison of efficiency transfer software for gamma-ray spectrometry*. Applied Radiation and Isotopes **55** 493-503.
- 36 RAPPORT IRSN/DEI/SESURE n°2007-21. *Radionucléides naturels en France : Approche géochimique de la variabilité des radionucléides naturels d'origine tellurique (40K et chaînes U-Th) dans les sols et sédiments fluviaux*.
- 37 RENAUD, Ph. Et al. (2004). *Cartographie des dépôts de l'<sup>137</sup>Cs en mai 1986 sur l'ensemble du territoire français métropolitain*. Radioprotection Vol 39 n°1, pages 23-38.
- 38 J. Kastlander ; C. Bargholtz. ; *Efficient in situ method to determine radionuclide concentration in soil*. Nuclear Instruments and Method in Physics Research A 547 400-410 2005.
- 39 EKSTRÖM, L. P. and FIRESTONE, R. B. WWW Table of Radioactive Isotopes, database from URL <http://ie.lbl.gov/toi/index/htm>
- 40 GURRIARAN, Thèse de l'université Bordeaux I (1996). *Développement de la spectrométrie gamma ultra bas bruit de fond au Laboratoire Souterrain de Modane*. N° d'ordre 1521.
- 41 BOUISSET et al. (1999). *Direct gamma-X spectrometry measurement of <sup>129</sup>I in environmental samples using experimental self-absorption corrections*. Nucl. Inst. & Meth. A 437 114-127.
- 42 FEHRENBACHER, G. et al. (1996). *Unfolding the response of a Ge detector used for in-situ gamma-ray spectrometry*. Nuclear Instruments and methods in Physics Research A **383** 454-462.

- 
- 43 International Commission on Radiation Units and Measurements. *Measurements of dose equivalents from external photon and electron radiations*. ICRU REPORT 47 (1992).
- 44 PERILLO ISAAC, Thèse de l'université Bordeaux I (1993). *Le bruit de fond de radioactivité naturelle du détecteur NEMO 2*. N° d'ordre 912.
- 45 VOJTYLA, P. (1995). *A computer simulation of the cosmic-muon background induction in a Ge gamma spectrometer using GEANT*. Nuclear Instruments and Methods in Physics research B 100 87-96.



<b>ANNEXE 1 :</b>	<b>LE PRINCIPE D'ETALONNAGE DES DETECTEURS</b>	
	<b>128</b>	
<b>ANNEXE 2 :</b>	<b>L'ATTENUATION DU FLUX.....</b>	<b>133</b>
<b>ANNEXE 3 :</b>	<b>VALIDATION DU MODELE DU FLUX.....</b>	<b>136</b>
<b>ANNEXE 4 :</b>	<b>LES DECROISSANCES NATURELLES .....</b>	<b>143</b>
<b>ANNEXE 5 :</b>	<b>LES RAYONNEMENTS COSMIQUES.....</b>	<b>146</b>
<b>ANNEXE 6 :</b>	<b>LES MESURES <i>IN-SITU</i>.....</b>	<b>149</b>
<b>ANNEXE 7 :</b>	<b>LES SPECTRES ENERGETIQUES DES DIFFERENTS RADIONUCLEIDES SIMULES POUR UNE MESURE DE 1800 S .....</b>	<b>156</b>

## ANNEXE 1 : Le principe d'étalonnage des détecteurs

Le principe d'étalonnage utilise l'équation 1.1 exprimant le taux de comptage d'un détecteur germanium *in-situ* en fonction de différents paramètres de détection :

$$\frac{N}{A_x} = \frac{N_0}{\varphi} \cdot \frac{N}{N_0} \cdot \frac{\varphi}{A_x} \quad \text{Équation 1.1}$$

où  $N/A_x$  est le taux de comptage du pic d'absorption totale à une énergie incidente donnée E pour une transition gamma d'un radionucléide donné.  $N_0/\varphi$  est la réponse du détecteur pour un flux normal à la face avant du détecteur.  $N/N_0$  est le facteur de correction angulaire de la fonction de réponse du détecteur à une énergie E, qui doit être pris en compte si le flux de la source est étendu ou non perpendiculaire à la face avant du détecteur ou bien si le flux a une distribution variant en fonction de l'angle d'incidence.  $\varphi/A_x$  est le flux arrivant sur le détecteur pour une transition gamma du radionucléide étudié.

### ***1.1. La détermination de la réponse du détecteur pour un flux normal***

La réponse du détecteur pour un flux arrivant perpendiculairement à la fenêtre avant du détecteur se détermine facilement à l'aide d'une simple source ponctuelle. En effet, en plaçant la source ponctuelle à une distance supérieure à 1 mètre, le flux  $\varphi$  arrivant sur le détecteur peut être considéré comme pratiquement parallèle et peut être exprimé grâce à l'équation suivante :

$$\varphi = \text{Photons par seconde émis par la source} / 4\pi r^2 \quad \text{Équation 1.2}$$

Où r est la distance entre la source et la position moyenne des interactions dans le cristal. La détermination de cette position moyenne est difficile à effectuer car les photons de basse énergie (inférieure à 100 keV) interagissent dans les premiers micromètres voire millimètres de Ge, tandis que les photons de plus haute énergie (de l'ordre du MeV) auront une position

moyenne d'interaction située au milieu du cristal vu que les interactions seront distribuées de façon homogène dans le cristal. De plus, l'estimation de cette position moyenne d'interaction introduit une incertitude dans le calcul du flux allant en diminuant lorsque la distance entre la source et le détecteur augmente. Son calcul peut se faire soit en estimant les coefficients d'atténuation du Ge, soit à partir de l'expérience avec des mesures faites à différentes distances. Dans ce deuxième cas, l'inverse de la racine carré du taux de comptage suit une loi en  $1/r^2$  et permet de déterminer expérimentalement la position moyenne d'interaction. L'établissement de la distance est donc un compromis entre l'incertitude de mesure et le temps de mesure utile pour obtenir une statistique suffisante.

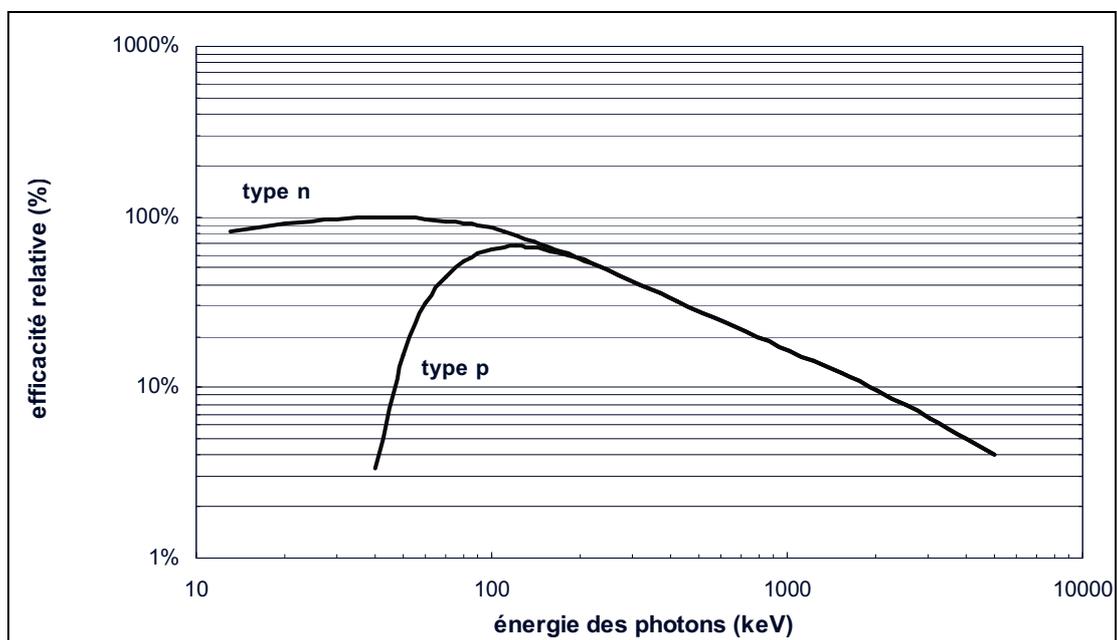


Figure 1.1.1 : comparaison des efficacités relatives pour des détecteurs germanium de type p et de type n.

Evidemment, la réponse du détecteur pour un flux axial dépend du détecteur : cette variation est visible lorsque deux détecteurs de même efficacité mais de type différent (n et p) sont comparés (figure 1.1). La réponse du détecteur de type n est beaucoup plus efficace à basse que pour un détecteur de type p. Cette différence est due à la présence d'une zone morte d'environ 300 µm sur l'avant du détecteur de type p et influence ainsi les utilisateurs de la spectrométrie gamma *in-situ* à se munir d'un détecteur de type n pour les mesures.

## 1.2. La détermination de la réponse angulaire du détecteur

La détermination de la réponse angulaire d'un détecteur s'effectue en deux étapes. La première est en fait une vérification que la réponse de symétrie cylindrique du détecteur n'a pas été endommagée lors du montage du cristal dans le cryostat. Afin de s'assurer de cette symétrie, une mesure a été effectuée à quatre angles répartis autour de l'axe du cristal. Si le taux de comptage est conservé quel que soit l'angle de mesure, le cristal a alors une symétrie cylindrique et a une utilisation possible pour les mesures *in-situ*.

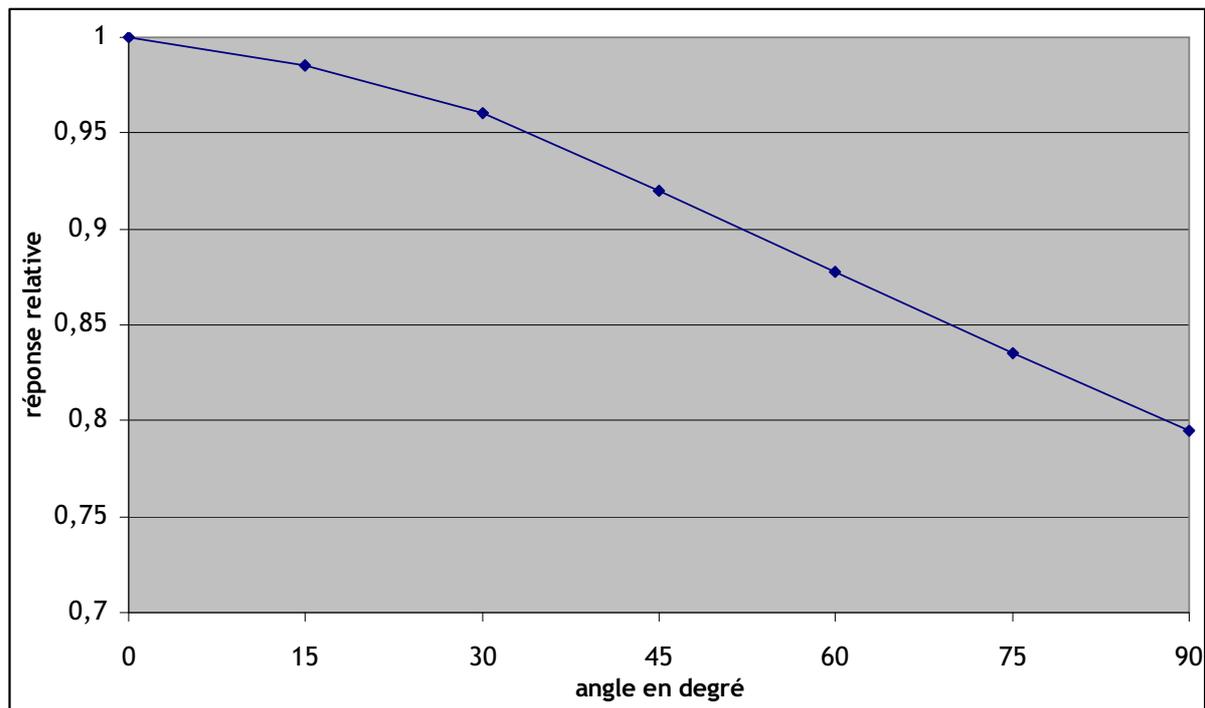


Figure 1.1.2 : réponse relative du détecteur pour une énergie de 100 keV et pour différents angles d'incidence.

La méthode utilisée pour l'étalonnage de la réponse angulaire du détecteur est d'effectuer des mesures à distance égale du barycentre d'interaction en faisant varier l'angle d'incidence par rapport à la face avant du détecteur. La figure 1.2 montre la réponse relative du détecteur pour une énergie de 100 keV et pour des angles de mesure allant de 0 à 90° par pas de 15°. Cette manipulation est faite avec une source couvrant du mieux possible toute la gamme d'énergie comprise entre 0 et 3 MeV. Ensuite une intégration numérique est effectuée en utilisant la formule de l'équation 1.3 qui représente la convolution de cette réponse avec la distribution angulaire des photons arrivant sur le détecteur :

$$\frac{N}{N_0} = \sum_{\theta=0}^{\theta=90} \varphi_{moyen}(\theta) \times R_{\theta} \quad \text{Équation 1.3}$$

Où  $R_0$  est la réponse relative par rapport à  $\theta = 0^\circ$ , et  $\varphi_{moyen}$  le flux arrivant sur le détecteur sans interagir pour une distribution dans l'environnement donné.

Angle (°)	$\varphi_{moyen}(\theta)$		
	100 keV	500 keV	2000 keV
00-05	0,004	0,004	0,004
05-10	0,012	0,012	0,012
10-15	0,020	0,020	0,020
15-20	0,028	0,027	0,027
20-25	0,035	0,034	0,034
25-30	0,042	0,042	0,041
30-35	0,049	0,048	0,047
35-40	0,056	0,055	0,054
40-45	0,062	0,061	0,060
45-50	0,067	0,066	0,065
50-55	0,072	0,071	0,070
55-60	0,077	0,075	0,074
60-65	0,082	0,081	0,080
65-70	0,084	0,084	0,083
70-75	0,086	0,086	0,085
75-80	0,086	0,086	0,087
80-85	0,082	0,085	0,086
85-90	0,054	0,064	0,073
<b>somme</b>	<b>1,000</b>	<b>1,000</b>	<b>1,000</b>

Tableau 1.1 : valeurs de  $\varphi_{moyen}(\theta)$  pour une distribution uniforme dans le sol [5].

Le tableau 1.1 donne les valeurs de  $\varphi_{moyen}(\theta)$  pour une distribution uniforme dans le sol des nucléides et pour trois énergies distinctes. Pour chaque énergie, un maximum de flux est situé entre 75 à 80 degrés. Ceci veut dire que lors d'une mesure *in-situ* d'un sol ayant une distribution uniforme, la probabilité qu'un photon atteigne le détecteur sur le coté est plus élevée que celle d'un photon arrivant sur la face avant. Cette différence de probabilité s'explique facilement en regardant l'angle solide apparent du détecteur vu par le photon suivant l'angle d'incidence.

Maintenant en multipliant, comme l'indique la formule 1.3, les valeurs du tableau 1.1 avec celle de la figure 1.2, la valeur de  $N/N_0$  est obtenue. Ainsi, par exemple, la démonstration du calcul de la valeur de  $N/N_0$  pour une énergie de 100 keV est montrée dans le tableau 1.2.

Angle (°)	$\varphi_{\text{moyen}}(\theta)$	$R_{\theta}$	$\varphi_{\text{moyen}}(\theta)*R_{\theta}$
0-20	0,064	0,98	0,063
20-35	0,126	0,96	0,121
35-50	0,185	0,92	0,170
50-65	0,231	0,87	0,200
65-80	0,256	0,83	0,212
80-90	0,136	0,81	0,110
	N/N <sub>0</sub> (100 keV) =		0,876

**Tableau 1.2 : établissement de la valeur N/N<sub>0</sub> pour une énergie de 100 keV.**

Ce type d'étalonnage doit être effectué pour différentes énergies afin de créer la courbe de variation de N/N<sub>0</sub>(E).

### ***1.3. La détermination de la distribution angulaire du flux de photons arrivant sur le détecteur***

Les différentes valeurs de  $\varphi/A_x$  ont été mesurées pour un détecteur placé à un mètre de hauteur pour des isotopes distribués de manière homogène dans le sol. Le tableau 1.3 donne ces valeurs pour toute la gamme d'énergie allant de 50 à 2500 keV.

Energie (keV)	$\square \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ par $\text{Bq} \cdot \text{g}^{-1}$
50	1,416
100	2,817
150	3,379
200	3,754
250	4,091
364	4,737
500	5,415
662	6,142
750	6,516
1000	7,495
1250	8,362
1460	9,108
1765	10,09
2004	10,81
2250	11,52
2500	12,18

**Tableau 1.3 : valeurs de  $\varphi/A_x$  pour différentes énergies et pour une distribution homogène dans le sol [5].**

Pour obtenir les valeurs relatives à un radionucléide, il faut multiplier la valeur pour une énergie donnée par le rapport d'embranchement de la transition considérée.

## ANNEXE 2 : L'atténuation du flux

### 2.1. Le nombre de libre parcours moyen nécessaire

Lors de leur traversée de la matière, les photons interagissent. La distance parcourue par le photon avant une interaction n'est pas constante pour une énergie. C'est pour cela que la notion de libre parcours moyen (« mean free path ») existe et définit la distance moyenne parcourue par le photon avant d'interagir. Cette distance moyenne varie en fonction de l'énergie du photon et également en fonction du matériau traversé : en effet, le photon parcourt beaucoup plus de distance dans l'air que dans un mur de béton avant d'interagir.

Pour un flux de photons traversant une épaisseur, la moitié de ce flux interagit au bout d'une distance donnée que l'on appelle libre parcours moyen. La moitié du flux restant intact interagit au bout de 2 fois cette distance et ainsi de suite. C'est ce que montre la figure 2.1 exprimant le pourcentage de flux restant intact en fonction du nombre de libre parcours moyen parcouru.

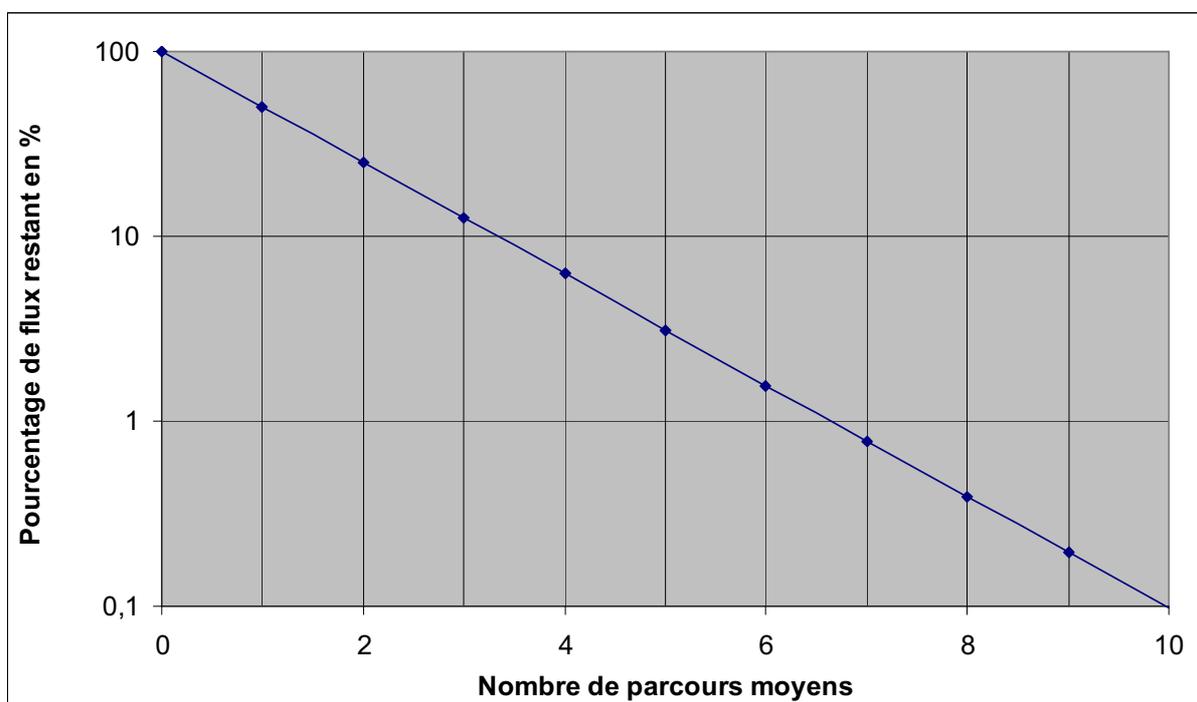


Figure 2.1 : atténuation du flux en fonction du nombre de parcours moyens parcourus.

En observant le graphique de la figure, le pourcentage du flux initial restant est inférieur à 1 % au bout d'environ 7 fois le parcours libre moyen. Cette valeur de 7 distances

moyennes d'interaction sera prise en compte pour la détermination des dimensions des espaces de simulation de flux.

## 2.2. L'évaluation de la profondeur et du rayon de sol

En tenant compte de la valeur de 7 fois le libre parcours moyen, la distance à laquelle le flux devient négligeable (moins de 1 %) peut être déterminée pour différents milieux. L'ICRU 53 donne les valeurs de ce libre parcours moyen pour l'air et le sol pour différentes énergies. Les figures 2.2 et 2.3 présentent en fonction de l'énergie, la profondeur de sol et la distance dans l'air à laquelle il reste moins de 1 % des photons n'ayant pas interagi.

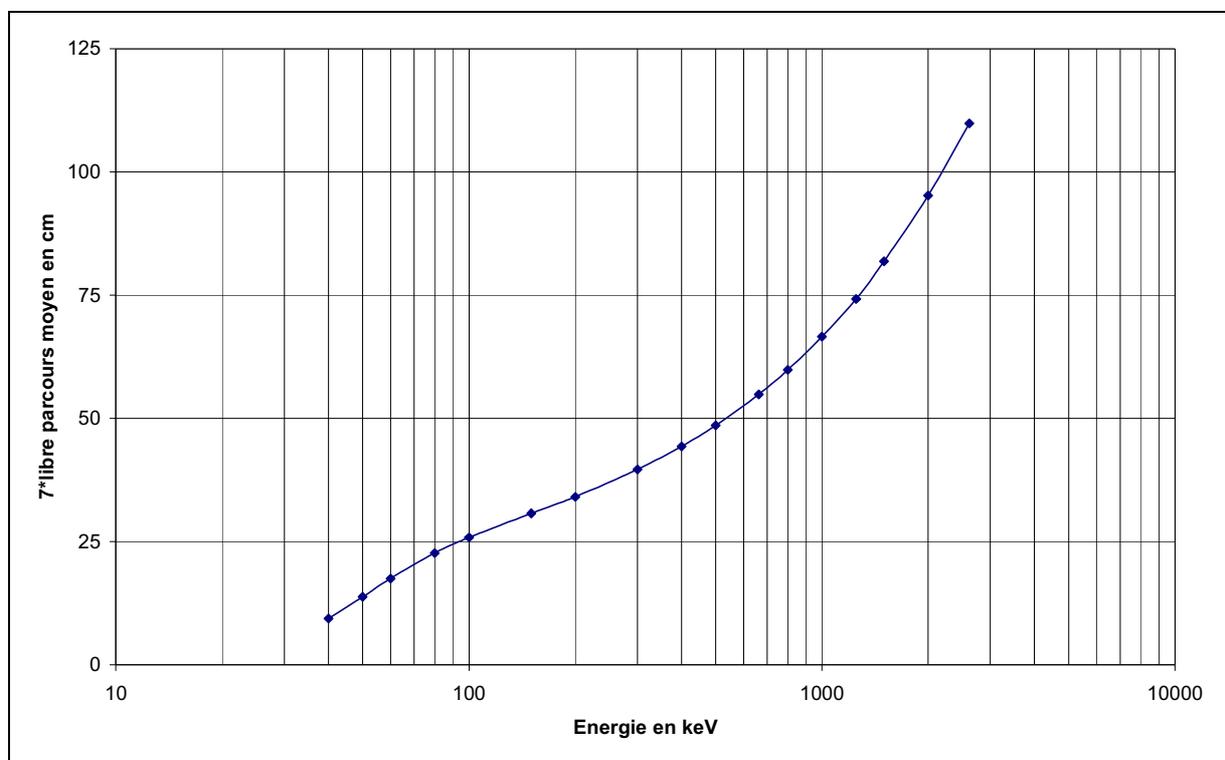
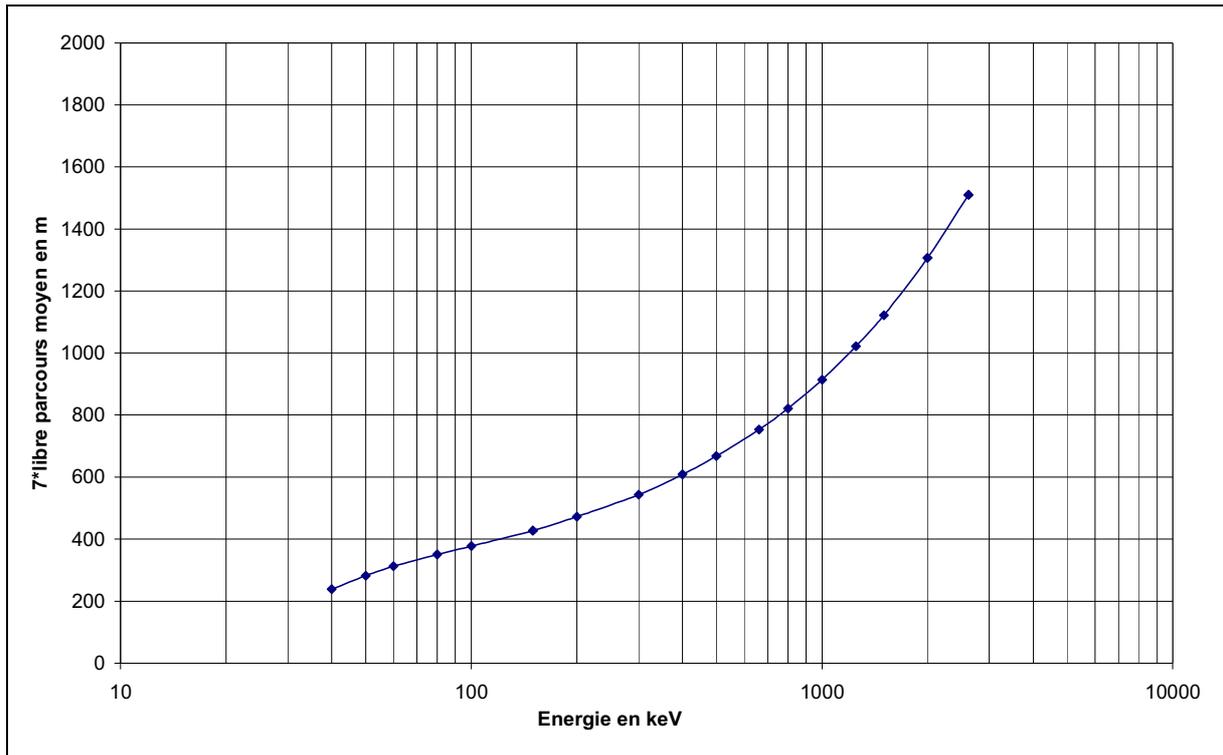


Figure 2.2 : profondeur maximale de sol en fonction de l'énergie du photon

Pour les dimensions du modèle utilisé pour la simulation du flux, 150 centimètres de sol en profondeur sur un rayon de 1500 mètres semble prendre en compte la majorité des photons non diffusés. Ces dimensions ont été déterminées en considérant le photon le plus énergétique pouvant être rencontré en spectrométrie gamma *in-situ*, soit le photon de 2614 keV de  $^{208}\text{Tl}$ .



**Figure 2.3 : distance maximale dans l'air en fonction de l'énergie du photon**

# ANNEXE 3 : Validation du modèle du flux

Radiation Protection Dosimetry (2007), pp. 1–7

doi:10.1093/rpd/nem307

## SPECIFIC ACTIVITY TO H\*(10) CONVERSION COEFFICIENTS FOR *IN SITU* GAMMA SPECTROMETRY

M. Lemerrier\*, R. Gurriaran, P. Bouisset and X. Cagnat

Institut de Radioprotection et de Sécurité Nucléaire, Laboratoire de Mesure de la Radioactivité de l'Environnement, Bât. 501, Bois de Rames, 91400 Orsay, France

Received February 3 2006, revised March 22 2007, accepted April 23 2007

The typical situations found in *in situ* gamma spectrometry have been simulated by Monte Carlo techniques to obtain the energy spectra of the photon fluence rate existing at 1 m above ground. The main difficulty found with the model is its slow convergence. A method to speed up the calculation has been derived. The results of the model have been thoroughly tested against existing data. In a final stage, the specific activity to H\*(10) conversion coefficients have been derived for the typical scenarios encountered in the *in situ* gamma spectrometry.

### INTRODUCTION

The *in situ* gamma spectrometry measurement, done for site characterisation and dismantling operations, generally consists<sup>(1–3)</sup> in installing the Ge spectrometer in the field at 1 m above ground. Then, from the measured gamma spectra, the specific activity (Bq kg<sup>-1</sup> or Bq m<sup>-2</sup>) and the kerma rate per isotope are derived using conversion coefficients found in the literature<sup>(3–5)</sup>.

The 96/29/EURATOM European directive<sup>(6)</sup> requires that the results of area monitoring are expressed in terms of ambient dose equivalent H\*(10). This paper describes the method used to derive the required corresponding conversion coefficients for the *in situ* gamma spectrometry technique. In a first stage, the Monte Carlo model used to derive the energy spectra of the fluence rate is described. This model is then thoroughly tested comparing its results with existing data and finally the H\*(10) conversion coefficients are derived.

### CALCULATION PROCEDURE

#### Monte Carlo model

##### Realistic model

Figure 1 presents a geometrical schematic measurement model for *in situ* gamma spectrometry. The specific activity  $A_v$  is a function of the depth ( $z$ ), the photons will go through a thickness  $r_s$  of soil and  $r_a$  of air before reaching the detector position. As a first approximation, it is assumed that this specific activity  $A_v$  is only dependent on the depth  $z$  in the

soil, as it can see in the following equation<sup>(3)</sup>:

$$A_v(z) = A_{v,0} \exp\left(\frac{-z}{\beta}\right) \quad (1)$$

where  $A_{v,0}$  is the activity per unit mass at the surface of the soil (Bq g<sup>-1</sup>) and the parameter  $\beta$  is called the relaxation mass per unit area (g cm<sup>-2</sup>). The parameter  $\zeta$ , being the mass per unit area (g cm<sup>-2</sup>) down to depth  $z$  (cm) is expressed as:

$$\zeta = \int_0^z \rho(z') dz' \quad (2)$$

where  $\rho(z)$  is the soil density (g cm<sup>-3</sup>).

In order to obtain the energy spectra of the fluence rate of photons reaching the detector position, it is possible to develop a Monte Carlo model of this problem according to Figure 1. However, this realistic model does not converge easily as the probability of a photon reaching the detector position is extremely low and results cannot be obtained in a reasonable time. In particular, notice that in order to correctly model the problem, the horizontal extensions of the semi-infinite source and the air above the detector position will need to extend to at least eight mean free paths for the photon energy under study<sup>(7)</sup> i.e. 1500 m radius for a 2 MeV photon. The depth extension will also need to be extended to at least eight mean free paths i.e. 150 cm depth. These radius and depth values were adopted in the specific calculations for all the investigated energies.

The unscattered part of the photon transport having a branching ratio of 100% can be solved in a numerical way. Equation (3) presents (in cylindrical coordinates) the fluence rate  $\Phi$  of the unscattered photons in cm<sup>-2</sup>·s<sup>-1</sup>, as a function of  $A_v$  the activity in soil in Bq g<sup>-1</sup>;  $\rho$  the density of the soil in g cm<sup>-3</sup>;  $\mu_s$  and  $\mu_a$  being the photon attenuation coefficients of soil and air, respectively, and  $r_s$  and  $r_a$  being the

\*Corresponding author: mickael.lemerrier@irsn.fr

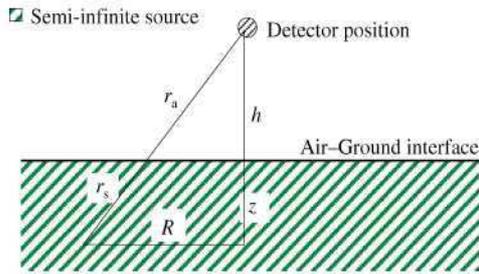


Figure 1. Realistic model.

distance travelled by the unscattered photons in soil and air towards the detector, respectively;  $R$  is the distance to the elementary source placed in the ground from the detector plane normal to the ground surface;  $\varphi$  is the polar angle defining the elementary volume of the source and  $dz$  is the elementary line segment in depth of the source in the ground.

$$\Phi = \rho \cdot \int_{z=0}^{z_{\max}} \int_{R=0}^{\infty} \int_{\varphi=0}^{2\pi} A_1(z) \frac{e^{-\mu_a r_a} \cdot e^{-\mu_s r_s}}{4\pi \cdot (r_a + r_s)^2} \cdot dz \cdot R \cdot dR \cdot d\varphi \quad (3)$$

The parameters ' $r_a$ ' and ' $r_s$ ' are the functions of other independent variables such as ' $z$ ', ' $h$ ', ' $z+h$ ' and ' $R$ '.

*Optimized model*

From the symmetry of the problem a different model can be derived, and has been described in Ref. (8). It consists of substituting an infinite plane source of given thickness and a point detector (Figure 1) with an equivalent line source and an infinite plane detector (Figure 2). For any simulated photon, the physics of the model Figures 1 and 2 are the same, only the scoring needs to be adapted as the calculated quantities are not the same. This can be understood through the unscattered photons case shown in Equation (4), which presents the number  $N$  of unscattered photons reaching the detection surface, where  $A_1$  is the linear activity in the soil in  $\text{Bq cm}^{-1}$ ,  $\theta$  is the angle between the direction of the photon and the detection surface,  $R$  is the distance between a generic point within the source and the detector plane normal to the ground surface;  $\varphi$  is the polar angle defining the elementary surface of the plane detector and  $dz$  an elementary line segment in depth of the source in the ground.

$$N = \int_{z=0}^{z_{\max}} \int_{R=0}^{\infty} \int_{\varphi=0}^{2\pi} A_1(z) \frac{e^{-\mu_a r_a} \cdot e^{-\mu_s r_s}}{4\pi \cdot (r_a + r_s)^2} \cdot \sin \theta dz \cdot R \cdot dR \cdot d\varphi \quad (4)$$

where  $R dR d\varphi$  is the elementary detection surface  $dS$ , and  $\sin(\theta)$  takes into account the angle between the photon line of flight and  $dS$  as it can be seen in the Figure 3.

According to transport theory definition, the surface estimator of particle fluence is obtained weighting every surface boundary-crossing event ( $N$ ) with the inverse cosine of the particle incident angle.

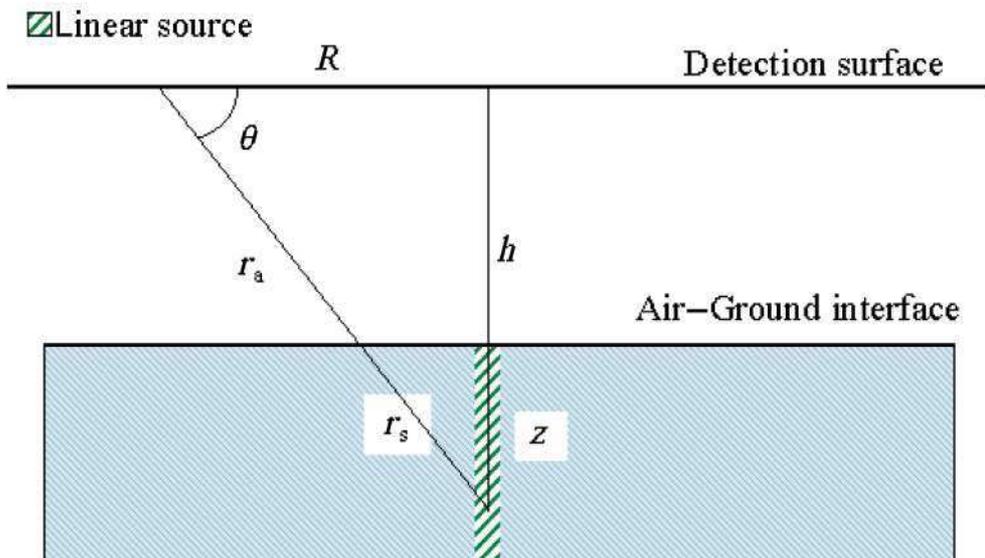


Figure 2. Model used for the simulation.

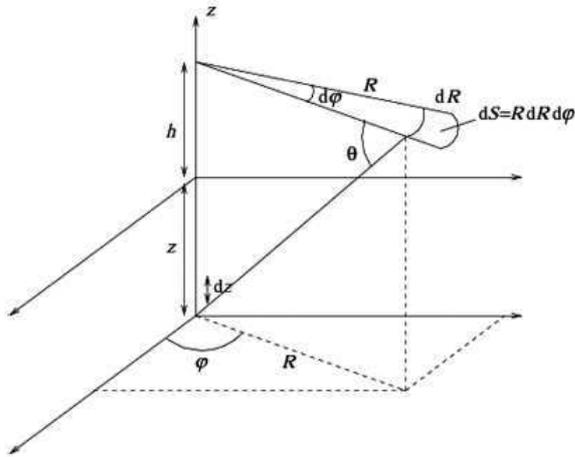


Figure 3. Optimized model 3-D representation.

Adopting this symmetric model, the convergence of the Monte Carlo simulation of this new configuration is increased by several orders of magnitude.

Comparing the two equations, the photon fluence  $\Phi$  is obtained using the following equation:

$$\frac{\Phi}{A_v(z) \cdot \rho} = \frac{N}{A_1(z) \cdot \sin \theta} \quad (5)$$

The Monte Carlo simulations were performed for a source activity  $A_v(z)$  of  $1 \text{ Bq g}^{-1}$  using the GEANT3 toolkit<sup>(9)</sup>. The GEANT toolkit allows the transport of particles through an experimental setup taking into account the different probabilities of interaction with matter, and handling all the secondary particles generated in each interaction. In a single run,  $10^7$  initial photons were generated corresponding to the activity  $A_1(z)$ . During the simulation, each photon (scattered or unscattered) crossing the detection plane was stored in the different energy bins with an associated weighting factor of  $1/(\sin \theta)$ ,  $\theta$  being the complementary to the incident angle. Applying these different normalisation factors, the simulation result is the photon fluence reached the detector placed at 1 m above the ground.

Figure 4a to c was calculated for an activity homogeneously distributed in the ground of  $1 \text{ Bq kg}^{-1}$  (2614 keV photon from  $^{208}\text{Tl}$ , 100% branching ratio, the most energetic photon measured by *in-situ* gamma spectrometry). Figure 4a and b analyse the place of origin (depth  $z$  and radius  $R$ ) of the photons reaching the detector plane for the unscattered and scattered photons. Figure 4a shows for instance that the fluence of scattered and unscattered photons generated by the first 1 cm layer of soil is of the order of  $10^{-2} \text{ cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ . The layer bounded between 140 and 141 cm generates of the

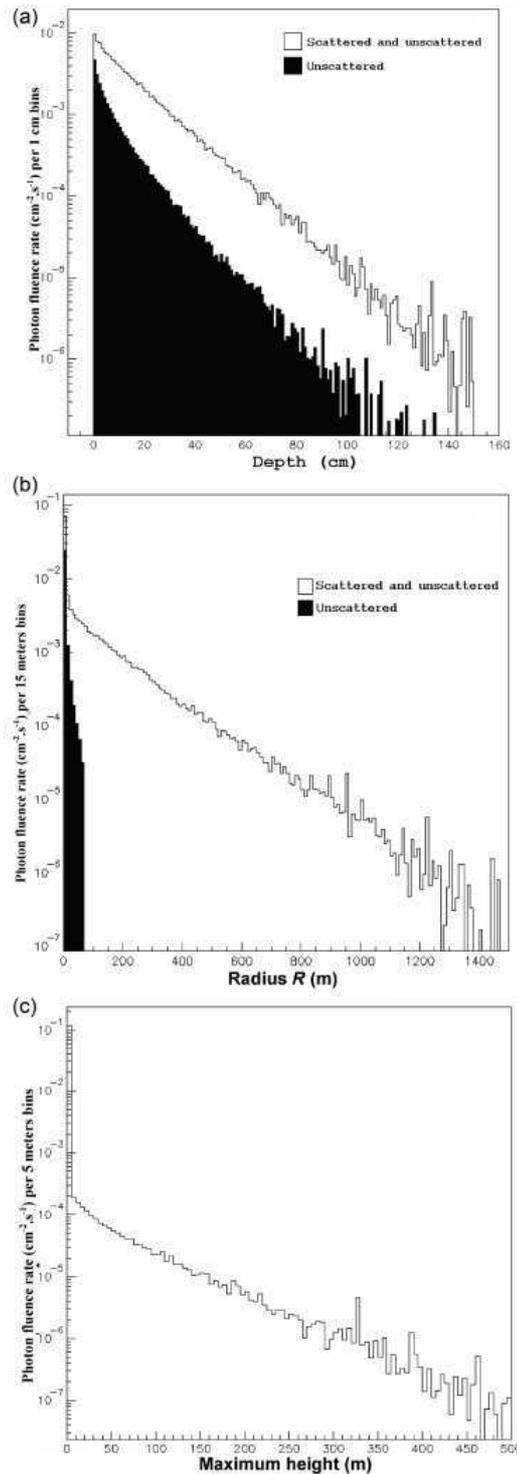


Figure 4. (a and b) Origin (depth  $z$  and radius  $R$ ) of the photons composing the photon fluence created by a  $1 \text{ Bq kg}^{-1}$  homogenous distribution of 2614 keV photon source. (c) Maximum height reached by photons.

order of  $10^{-6} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ , a factor  $10^4$  smaller. This factor is much higher for the unscattered photons. As a consequence, the contribution originating from below 150 cm has been considered as negligible.

Figure 4b shows the fluence as a function of  $R$  (Figure 1) in 15 m bins. The fluence for the unscattered and scattered photons from the 1000 to 1015 m ring has been diminished by a factor of the order of  $10^5$  with respect to 0–15 m ring. The contribution from a radius larger than 1500 m is considered as negligible.

Figure 4c shows the fluence as a function of the maximum height for the scattered photons that reached the detector plane in order to know at what extent the air backscatter contributes to the response and what is the percentage importance of each layer of air to the response. For each initial simulated photon, the history of all the interactions and all photon generated by secondaries particles were stored, in particular the maximum height reached by either the photon before go down again to the detection surface. It can be seen that the ratio of the fluences that reach 0–5 m height with respect to the fluence that reach the 495–500 m height is of the order of  $10^6$ . The thickness of air used in the Monte Carlo was chosen as 500 m.

The materials and dimensions used in all the following Monte Carlo calculations were:

- Air: a cylinder of 1500 m radius and 500 m of height to take into account all scattered photons, with a composition of 78.09% N, 20.98% O and 0.93% Ar, and with a density of  $1.204 \cdot 10^{-3} \text{ g cm}^{-3}$ ;
- Soil: a cylinder of 1500 m radius and 1.50 m of height, a composition of 1.1% H, 1.2% C, 55.8% O, 7.2% Al, 31.6% Si and 3.1% Fe, a density of  $1.60 \text{ g cm}^{-3}$ ;
- In practice three scenarios were treated: (1) a plane superficial source, (2) a homogeneous volume source and (3) an exponential decreasing activity distribution as a function of depth.

## Model validation

### Unscattered flux

The optimized model has been tested in a simple situation. In the case of a homogeneous distribution, i.e. constant activity with depth, Equation (3) can be analytically solved<sup>(3)</sup>. Table 1 presents the ratio  $\Phi/A$  calculated with Mathematica<sup>(10)</sup> and with the optimized Monte Carlo model. The calculations were performed for monoenergetic sources from 50 to 2.5 MeV, statistical uncertainties of the Monte Carlo calculation were kept below 0.3%. The simulation and the Mathematica results are within 2%.

**Table 1. Simple case validation (A: simulation, B: numerical solution).**

Energy (keV)	Photon fluence rate ( $\text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ ) per $\text{Bq g}^{-1}$		
	A	B	A/B
50	1.416	1.432	0.989
100	2.811	2.817	0.998
150	3.418	3.379	1.012
200	3.798	3.754	1.012
250	4.062	4.091	0.993
364	4.783	4.737	1.010
500	5.380	5.415	0.994
662	6.018	6.142	0.980
750	6.468	6.516	0.993
1000	7.421	7.495	0.990
1173	8.048	8.101	0.993
1250	8.400	8.362	1.005
1333	8.72	8.645	1.009
1460	9.176	9.108	1.007
1765	10.09	10.09	1.000
2004	10.72	10.81	0.992
2250	11.57	11.52	1.004
2500	12.24	12.18	1.005

### Testing the scattered and unscattered radiation components

The second test takes into account the scattered and the unscattered photons through the calculation of the kerma rate conversion coefficients. For a monoenergetic gamma emitter (photons with an energy  $E$ ), the energy spectra of the fluence rate  $\phi$  reaching the detector is calculated with the Monte Carlo code. The conversion coefficient for kerma rate  $CC(E)$ , for a source activity of 1 Bq per unit of mass, is derived using Equation (3):

$$CC_{\text{activity} \rightarrow \text{air-kerma}}(E) = \sum_{E'=0}^E \phi(E') \cdot CC_{K_d/\phi}(E') \quad (6)$$

where  $\phi(E')$  is the Monte Carlo calculated fluence rate at energy  $E'$ , and  $CC_{K_d/f}(E')$  is the conversion coefficient linking the kerma in free air to the fluence, interpolated from the values found in the ICRU Report 47<sup>(11)</sup> with polynomial functions. It is interesting to note that exactly the same procedure is used for calculating the conversion coefficients for the ambient dose equivalent.

The kerma rate conversion coefficient for a radionuclide is the sum of the individual  $CC(E)$  for all the photon energies emitted taking into account the corresponding branching ratios<sup>(12)</sup>. The simulation result, taking into account only the gamma emissions with a branching ratio larger than 0.1%, is the photon

Table 2. Complex case validation (A: simulation, B: Saito and Jacob)

	nGy h <sup>-1</sup> per Bq kg <sup>-1</sup>		
	A	B	A/B
<sup>232</sup> Th family			
<sup>228</sup> Ac	0.221	0.221	1.000
<sup>212</sup> Bi	0.0271	0.0272	0.996
<sup>224</sup> Ra	0.00235	0.00214	1.098
<sup>208</sup> Tl	0.319	0.326	0.979
<sup>212</sup> Pb	0.0296	0.0277	1.069
Total	0.599	0.604	0.992
<sup>238</sup> U family			
<sup>214</sup> Pb	0.0581	0.0546	1.064
<sup>226</sup> Ra	0.00148	0.00125	1.184
<sup>214</sup> Bi	0.390	0.401	0.973
Total	0.450	0.463	0.972
<sup>40</sup> K	0.0427	0.0417	1.024

Table 4. Specific activity to  $H^*(10)$  conversion coefficients for a homogeneous distribution for the natural series in equilibrium <sup>40</sup>K, and <sup>137</sup>Cs.

	nSv h <sup>-1</sup> per Bq kg <sup>-1</sup>
<sup>232</sup> Th family	
<sup>208</sup> Tl	0.387
<sup>228</sup> Ac	0.280
<sup>212</sup> Pb	0.0443
<sup>212</sup> Bi	0.034
<sup>224</sup> Ra	0.00347
Total	0.749
<sup>238</sup> U family	
<sup>214</sup> Bi	0.480
<sup>214</sup> Pb	0.0817
<sup>226</sup> Ra	0.00228
Total	0.564
<sup>40</sup> K	0.0512
<sup>137</sup> Cs	0.192

fluence for each individual radionuclide. The coefficients for the natural radioactive families are the sum of the individual radionuclide coefficients. The results are compared in Table 2 with data of Saito and Jacob in 1995<sup>(5)</sup>. The difference observed for the radium radionuclides is due to the different branching ratios used: up to 10% larger in this work. For the lead radionuclides, the simulation of x-rays is not totally taken into account in the reference. Taking into account these differences, there is a good agreement between the results and the data of the literature.

## RESULTS

The  $H^*(10)$  conversion coefficients were derived using the procedure described in the previous paragraph. The only difference is the use of the  $CC_{H^*(10)/\phi}$  as can be seen in Equation (4), also interpolated from values found in<sup>(11)</sup>.

$$CC_{H^*(10)}(E) = \sum_{E'=0}^E \phi(E') \cdot CC_{H^*(10)/\phi}(E') \quad (7)$$

Table 3. Specific activity to  $H^*(10)$  conversion coefficients (expressed in  $1.10^{-4}$  nSv h<sup>-1</sup> per Bq m<sup>-2</sup> (A) and in nSv h<sup>-1</sup> per Bq kg<sup>-1</sup> (B)) for different source distributions.

Energy (keV)	$1.10^{-4}$ nSv h <sup>-1</sup> per Bq m <sup>-2</sup>							nSv h <sup>-1</sup> per Bq kg <sup>-1</sup> $\beta = \infty$ (homogeneous)
	$\beta = 0$	$\beta = 0.3$	$\beta = 1$	$\beta = 5$	$\beta = 10$	$\beta = 20$	$\beta = 50$	
50	4.85	3.41	2.36	0.940	0.544	0.300	0.127	0.0066
100	6.69	5.49	4.39	2.44	1.62	0.987	0.460	0.0249
150	9.74	8.02	6.48	3.88	2.68	1.68	0.810	0.0449
200	12.8	10.7	8.57	5.19	3.66	2.31	1.14	0.0659
250	15.9	12.9	10.5	6.39	4.59	2.95	1.46	0.0854
364	22.0	18.0	14.7	9.04	6.44	4.21	2.11	0.124
500	29.2	23.6	19.3	11.8	8.56	5.62	2.85	0.170
662	36.4	30.4	24.0	15.0	10.8	7.23	3.67	0.221
750	40.7	33.6	26.4	16.6	12.0	8.04	4.13	0.252
1000	50.5	41.7	33.5	20.8	15.2	10.2	5.34	0.336
1173	57.2	47.4	38.2	23.5	17.3	11.8	6.113	0.385
1250	59.3	49.3	40.4	24.7	18.3	12.4	6.512	0.414
1333	64.4	51.9	42.7	26.1	19.2	13.2	6.921	0.441
1460	67.9	55.3	45.6	27.8	20.7	14.1	7.53	0.483
1765	77.9	64.3	52.7	33.2	24.2	16.6	8.91	0.575
2004	85.7	71.4	57.3	36.1	26.8	18.7	9.97	0.655
2250	92.5	75.8	62.5	39.6	29.6	20.5	11.1	0.733
2500	101	82.8	67.4	42.6	32.0	22.4	12.3	0.826

Table 5. Specific activity to H\*(10) conversion coefficients and  $\Phi/A$  for different a layered uniform contamination -  $\Phi/A$  in  $\text{cm}^{-2} \text{s}^{-1}$  per  $\text{Bq g}^{-1}$  and H\*(10) in  $\text{nSv h}^{-1}$  per  $\text{Bq kg}^{-1}$ .

Energy (keV)	z	0–5 cm		5–10 cm		10–15 cm		15–20 cm		20–25 cm	
		$\Phi/A$	H*(10)								
50		1.38	0.0065	0.028	0.0003						
100		2.55	0.0190	0.267	0.0045	0.043	0.0013	0.009	0.0004		
150		2.95	0.0307	0.362	0.0097	0.079	0.0036	0.020	0.0013	0.005	0.0005
200		3.17	0.0411	0.444	0.0144	0.111	0.0060	0.031	0.0025	0.009	0.0011
250		3.33	0.0500	0.524	0.0187	0.139	0.0083	0.042	0.0038	0.014	0.0017
364		3.72	0.0706	0.669	0.0277	0.207	0.0134	0.072	0.0066	0.026	0.0033
500		4.11	0.0930	0.835	0.0377	0.283	0.0192	0.105	0.0100	0.044	0.0054
662		4.44	0.118	1.02	0.0485	0.374	0.0257	0.153	0.0142	0.066	0.0080
750		4.59	0.129	1.11	0.0546	0.429	0.0296	0.180	0.0166	0.080	0.0094
1000		5.02	0.163	1.35	0.0707	0.561	0.0395	0.262	0.0234	0.127	0.0141
1173		5.22	0.185	1.19	0.0811	0.654	0.0464	0.317	0.0281	0.165	0.0175
1250		5.33	0.195	1.56	0.0862	0.696	0.0500	0.346	0.0303	0.176	0.0188
1333		5.51	0.205	1.64	0.0914	0.740	0.0528	0.370	0.0325	0.196	0.0204
1460		5.56	0.218	1.73	0.0987	0.802	0.0579	0.412	0.0362	0.220	0.0229
1765		5.96	0.254	1.96	0.117	0.950	0.0704	0.511	0.0448	0.293	0.0295
2004		6.14	0.281	2.10	0.131	1.05	0.0799	0.586	0.0516	0.338	0.0345
2250		6.37	0.309	2.25	0.146	1.16	0.0901	0.656	0.0590	0.390	0.0400
2500		6.61	0.339	2.38	0.156	1.25	0.0998	0.725	0.0663	0.440	0.0453

The calculations were done for (1) plane superficial source, (2) a homogeneous volume source and (3) an exponentially decreasing activity as a function of depth. These distributions in the soil correspond to the classical situations found in the *in situ* gamma spectrometry technique. Considering soil density as a constant, the exponential activity distribution with depth of the Equation (1) can be expressed as:

$$A = A_0 \cdot \exp\left(-\frac{\rho}{\beta} \cdot z\right) \quad (8)$$

where  $A$  is the activity in soil,  $A_0$  is the activity per unit mass at the surface of the soil ( $\text{Bq g}^{-1}$ ),  $\beta$  is the relaxation mass per area ( $\text{g cm}^{-2}$ ),  $\rho$  is the ground density constant with depth and  $z$  the source depth.

The simulations were performed for monoenergetic sources from 50 keV to 2.5 MeV. Table 3 presents the specific activity to H\*(10) conversion coefficient for different distributions. When  $\beta = 0$ , the distribution is plane above ground and when  $\beta = \infty$ , the distribution is uniform in the soil. The coefficients calculated for the exponential and plane distributions are expressed in  $\text{nSv h}^{-1}$  per  $\text{Bq m}^{-2}$ .

Table 4 presents the specific activity to ambient dose equivalent H\*(10) conversion coefficients for the natural families in secular equilibrium and having a uniform distribution in the ground.

A final simulation has been done for radioactivity uniformly distributed in 5 cm layers, situation found

in dismantling operations were old contaminations were covered with uncontaminated earth. Also shown in Table 5 is the corresponding  $\Phi/A$  factor and H\*(10) conversion coefficient for different ranges of depth from 0 to 25 cm.

## CONCLUSION

An efficient Monte Carlo model to calculate the energy spectra of the photon fluence rate for situations found in *in situ* gamma spectrometry has been described. This model has been used to derive the ambient dose equivalent conversion coefficients (ambient dose equivalent H\*(10) per unit activity per unit ground mass or square metre,  $\text{nSv h}^{-1}$  per  $\text{Bq kg}^{-1}$  or  $\text{nSv h}^{-1}$  per  $\text{Bq m}^{-2}$ ).

## REFERENCES

1. Clouvas, A., Xanthos, S. and Antonopoulos-Domi, M. *Extended survey of indoor and outdoor terrestrial gamma radiation in greek urban areas by in situ gamma spectrometry with a portable Ge detector*. Radiat. Prot. Dosim. **94**(3), 233–246 (2001).
2. Shebell, P. *An in situ gamma-ray spectrometry intercomparison*. Health Phys. **85**(6), 662–677 (2003).
3. International Commission on Radiation Units and Measurements. *Gamma ray spectrometry in the environment*. ICRU Report 53 (1994).
4. Clouvas, A., Xanthos, S., Antonopoulos-Domis, M. and Silva, J. *Monte Carlo calculation of dose rate conversion factors for external exposure to photon emitters in soil*. Health Phys., **78**(3), 295–301 (2000).

SPECIFIC ACTIVITY TO  $H^*(10)$  CONVERSION COEFFICIENTS

5. Saito, K. and Jacob, P. *Gamma ray fields in the air due to sources in the ground*. Radiat. Prot. Dosim. **58**, 29–45 (1995).
6. Council Directive 96/29/EURATOM laying down. *Basic safety standards for the protection of the health of workers and the general public against the dangers arising from ionizing radiation* (1996).
7. Jacob, P. and Paretzke, H. G. *Gamma-ray exposure from contaminated soil*. Nucl. Sci. Eng. **93**, 248–261 (1986).
8. Kastlander, J. and Bargholtz, C. *Efficient in situ method to determine radionuclide concentration in soil*. Nucl. Instrum. Method in Phys. Res. A **547**, 400–410 (2005).
9. Brun, R. *et al.* GEANT3: detector description and simulation tool. CERN Program Library, W5013, CERN Geneva, Switzerland.
10. Wolfram, S. Mathematica (France: International Thomson Publishing, Company) (1997).
11. International Commission on Radiation Units and Measurements. *Measurement of dose equivalents from external photon and electron radiations*. ICRU REPORT 47 (1992).
12. Chu, S. Y. F., Ekström, L. P. and Firestone, R. B. *WWW Table of Radioactive Isotopes*, database version 2/28/1999. Available on <http://nucldata.nuclear.lu.se/nucldata/toi/>.

## ANNEXE 4 : Les décroissances naturelles

### 4.1. La famille de $^{238}\text{U}$

Radionucléide	Période	$\alpha$		$\beta$		$\gamma$	
		Energie (MeV)	Rapport d'embr. (%)	Energie (MeV)	Rapport d'embr. (%)	Energie (MeV)	Rapport d'embr. (%)
$^{238}\text{U}$	$4,47 \cdot 10^9$ a	4,151 4,198	20,9 79	-	-	-	-
$^{234}\text{Th}$	24,1 j	-	-	0,106 0,107 0,199	7,6 19,2 70,3	0,063 0,092 0,093	4,8 2,81 2,77
$^{234}\text{Pa}$	1,17 m	-	-	1,224 2,269	1,01 98,2	0,765 1,001	0,29 0,84
$^{234}\text{U}$	$2,46 \cdot 10^5$ a	4,604 4,722 4,774	0,2 28,4 71,4	-	-	0,053	0,12
$^{230}\text{Th}$	$7,54 \cdot 10^4$ a	4,480 4,621 4,687	~0,12 23,4 76,3	-	-	0,068	0,38
$^{226}\text{Ra}$	1600 a	4,601 4,784	5,6 94,4	-	-	0,186	3,59
$^{222}\text{Rn}$	3,8235 j	5,489	99,9	-	-	-	-
$^{218}\text{Po}$	3,10 m	6,002	100	-	-	-	-
$^{214}\text{Pb}$	26,8 m	-	-	0,672 0,729 1,024	48,9 42,2 6,3	0,242 0,295 0,352	7,43 19,3 37,6
$^{214}\text{Bi}$	19,9 m	5,273 5,452 5,516	5,8 53,9 39,2	1,508 1,542 3,272	17,0 17,8 18,2	0,609 1,120 1,764	46,1 15,1 15,4
$^{214}\text{Po}$	164 $\mu\text{s}$	7,687	100	-	-	-	-
$^{210}\text{Pb}$	22,3 a	3,720	100	0,017 0,064	84 16	0,047	4,25
$^{210}\text{Bi}$	5,013 j	4,656 4,694	~60 ~40	1,162	100	-	-
$^{210}\text{Po}$	138,4 j	5,304	100	-	-	-	-
$^{206}\text{Pb}$	stable	-	-	-	-	-	-

Tableau 4.1 : description de la famille radioactive de  $^{238}\text{U}$  [38].

## 4.2. La famille de $^{235}\text{U}$

Radionucléide	Période	$\alpha$		$\beta$		$\gamma$	
		Energie (MeV)	Rapport d'embr. (%)	Energie (MeV)	Rapport d'embr. (%)	Energie (MeV)	Rapport d'embr. (%)
$^{235}\text{U}$	$7,038 \cdot 10^8$ a	4,214 4,366 4,398	5,7 17 55	-	-	0,144 0,163 0,186	10,96 5,08 57,2
$^{231}\text{Th}$	25,52 j	-	-	0,206 0,288 0,305	12,8 37 35	0,026 0,081 0,084	14,5 0,89 6,6
$^{231}\text{Pa}$	32760 a	4,951 5,014 5,028	22,8 25,4 20,0	-	-	0,027 0,300 0,303	10,3 2,46 2,2
$^{227}\text{Ac}$	21,773 a	4,873 4,941 4,953	6,3 39,6 47,7	0,020 0,036 0,045	10 35 54	-	-
$^{227}\text{Th}$	18,72 j	5,757 5,978 6,038	20,4 23,5 24,2	-	-	0,050 0,236 0,256	8,0 12,3 7,0
$^{223}\text{Ra}$	11,435 j	5,607 5,716 5,747	25,7 52,6 9,2	-	-	0,154 0,269 0,324	5,62 13,7 3,93
$^{219}\text{Rn}$	3,96 s	6,425 6,553 6,819	7,5 12,9 79,4	-	-	0,131 0,271 0,402	0,12 10,8 6,37
$^{215}\text{Po}$	1,781 m	7,386	100	-	-	-	-
$^{211}\text{Pb}$	36,1 m	-	-	0,540 0,967 1,372	6,32 1,54 91,3	0,405 0,427 0,832	3,78 1,76 3,52
$^{211}\text{Bi}$	2,14 m	6,278 6,623	16,2 83,8	-	-	0,351	12,9
$^{207}\text{Tl}$	4,77 m	-	-	0,525 1,423	0,27 99,72	0,898	0,26
$^{207}\text{Pb}$	stable	-	-	-	-	-	-

Tableau 4.2 : description de la famille radioactive de  $^{235}\text{U}$  [38].

### 4.3. La famille de $^{232}\text{Th}$

Radionucléide	Période	$\alpha$		$\beta$		$\gamma$	
		Energie (MeV)	Rapport d'embr. (%)	Energie (MeV)	Rapport d'embr. (%)	Energie (MeV)	Rapport d'embr. (%)
$^{232}\text{Th}$	$1,41 \cdot 10^{10}$ a	3,947 4,012	21,7 78,7	-	-	0,064	0,263
$^{228}\text{Ra}$	5,75 a	-	-	0,013 0,026 0,039	30 20 40	0,013 0,014 0,016	0,30 1,6 0,72
$^{228}\text{Ac}$	6,15 h	-	-	1,158 1,731 2,069	29,9 11,66 8,0	0,338 0,911 0,969	11,27 25,8 15,8
$^{228}\text{Th}$	1,9116 a	5,211 5,340 5,423	0,42 27,2 72,2	-	-	0,084 0,132 0,216	1,22 0,13 0,25
$^{224}\text{Ra}$	3,66 j	5,449 5,685	5,06 94,9	-	-	0,241	4,10
$^{220}\text{Rn}$	55,6 s	5,747 6,288	0,11 99,89	-	-	0,550	0,11
$^{216}\text{Po}$	0,145 s	6,778	~100	-	-	-	-
$^{212}\text{Pb}$	10,64 h	-	-	0,159 0,335 0,574	5,17 82,5 12,3	0,115 0,239 0,300	0,59 43,3 3,28
$^{212}\text{Bi}$	60,55 m	5,768 6,051 6,090	7,78 69,9 27,1	0,633 1,527 2,254	1,87 4,36 55,46	0,727 0,785 1,621	6,58 1,10 1,49
$^{212}\text{Po}$	0,299 $\mu\text{s}$	8,784	100	-	-	-	-
$^{208}\text{Tl}$	3,053 m	-	-	1,293 1,526 1,803	24,5 21,8 48,7	0,511 0,583 2,615	22,6 84,5 99
$^{208}\text{Pb}$	stable	-	-	-	-	-	-

Tableau 4.3 : description de la famille radioactive de  $^{232}\text{Th}$  [38].

## ANNEXE 5 : Les rayonnements cosmiques

La connaissance de la forme et de la contribution de la composante cosmique est quelque chose de très difficile à mettre en évidence. L'intercomparaison EURADOS 2002 a permis de connaître cette composante à une altitude similaire à celle du site d'Orsay et ainsi de pouvoir l'utiliser pour la reconstitution. Mais elle peut seulement être utilisée pour des altitudes situées aux environs de 100 mètres.

### 5.1. La variation du taux de comptage des rayonnements cosmiques

La variation de la composante cosmique peut s'estimer en spectrométrie gamma *in-situ* à partir du taux de comptage de la zone comprise entre 3 MeV et 5 MeV. En effet, c'est une zone énergétique où il n'y a aucune composante naturelle ni artificielle qui contribue au taux de comptage.

La variation du taux de comptage a été étudiée en fonction de l'altitude des mesures *in-situ* et en fonction de la protection mise entre le rayonnement cosmique et le détecteur.

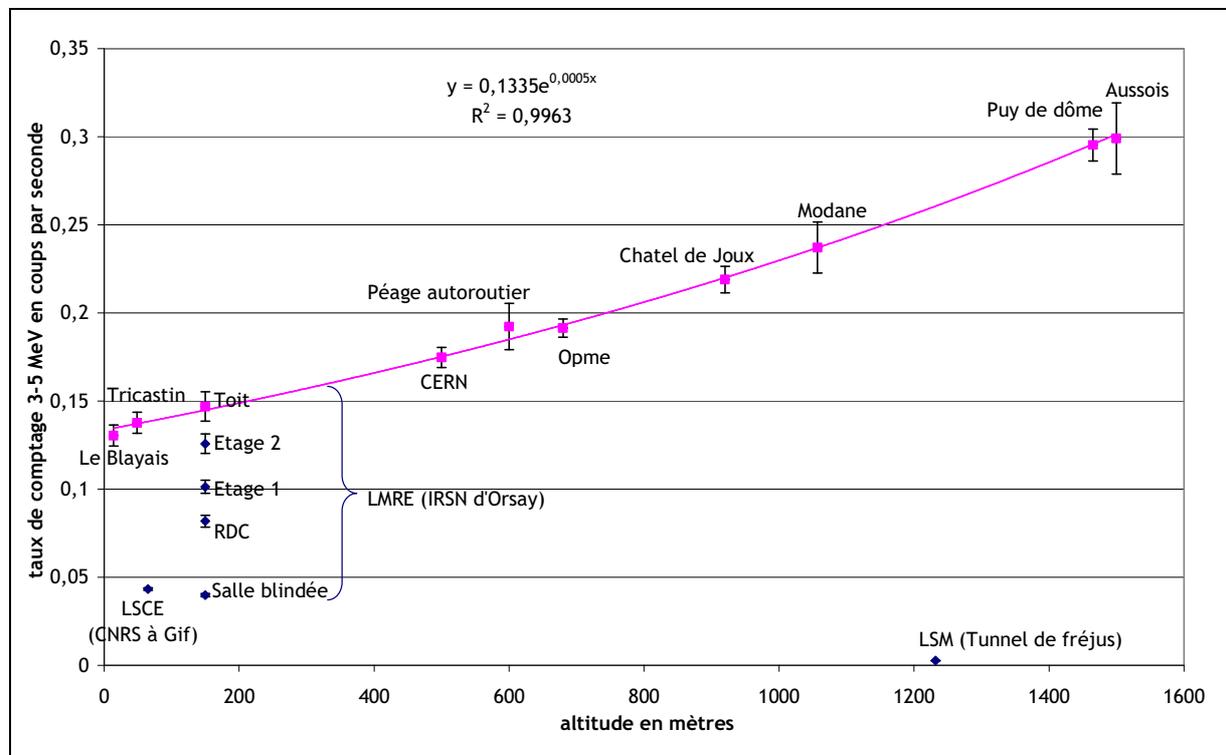


Figure 5.1 : variation du taux de comptage en fonction de l'altitude et de l'épaisseur de protection.

La figure 5.1 présente en rose la diminution du taux de comptage en fonction de la diminution de l'altitude de mesure *in-situ*. Cette diminution semble suivre une loi exponentielle en fonction de l'altitude.

Les points en bleu de la figure sont des mesures effectuées à l'intérieur de trois laboratoires : celui de l'IRSN à Orsay, le LSM (Laboratoire Souterrain de Modane) et le LSCE (Laboratoire des Sciences du Climat et l'Environnement) du CEA-CNRS de Gif sur Yvette. Sur les mesures faites au LMRE, la diminution du taux de comptage lorsque l'épaisseur de matériaux augmente est très nette. Cette diminution du taux de comptage atteint son maximum dans la salle blindée du laboratoire utilisée pour toutes les mesures de spectrométrie gamma.

Cette étude du taux de comptage des cosmiques permet de classer les laboratoires suivant la protection offerte et donc du bruit de fond dû au rayonnement cosmique. Par exemple, les deux laboratoires LSCE et LMRE ont une salle de mesure de spectrométrie équivalente alors que le laboratoire souterrain LSM offre un bruit de fond vraiment très faible.

Une deuxième étude s'est portée sur la variation du taux de comptage en fonction de la différence entre le débit de dose total mesuré par la chambre d'ionisation et celui estimé à partir du spectre germanium (somme du débit de dose de chaque radionucléide présent dans le spectre *in-situ*) (figure 5.2).

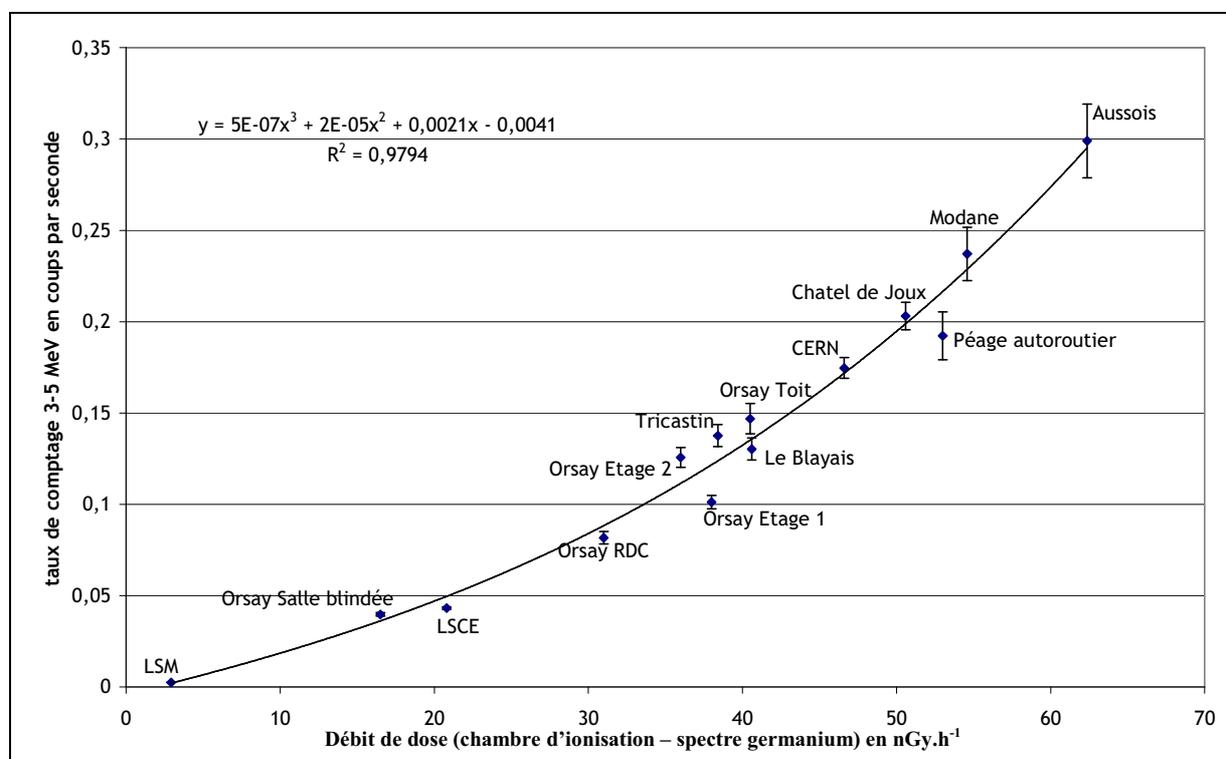


Figure 5.2 : variation du taux de comptage 3 – 5 MeV en fonction de la différence de débit de dose (chambre d'ionisation – spectre germanium).

Cette différence de débit de dose correspond en fait au débit de dose du rayonnement cosmique. Il y a une bonne cohérence entre les points de mesure et l'ajustement polynomial. Cette concordance permet de relier le débit de dose cosmique avec le taux de comptage entre 3 MeV et 5 MeV.

## 5.2. La correspondance des doses

Un passage important de l'analyse est la comparaison entre le débit de dose mesuré par la chambre à ionisation et celui estimé à partir du spectre *in-situ*. La figure 5.3 présente cette comparaison avec en rose les points de mesure, en vert la droite médiane passant par zéro correspondant à l'égalité parfaite entre les deux débits de dose.

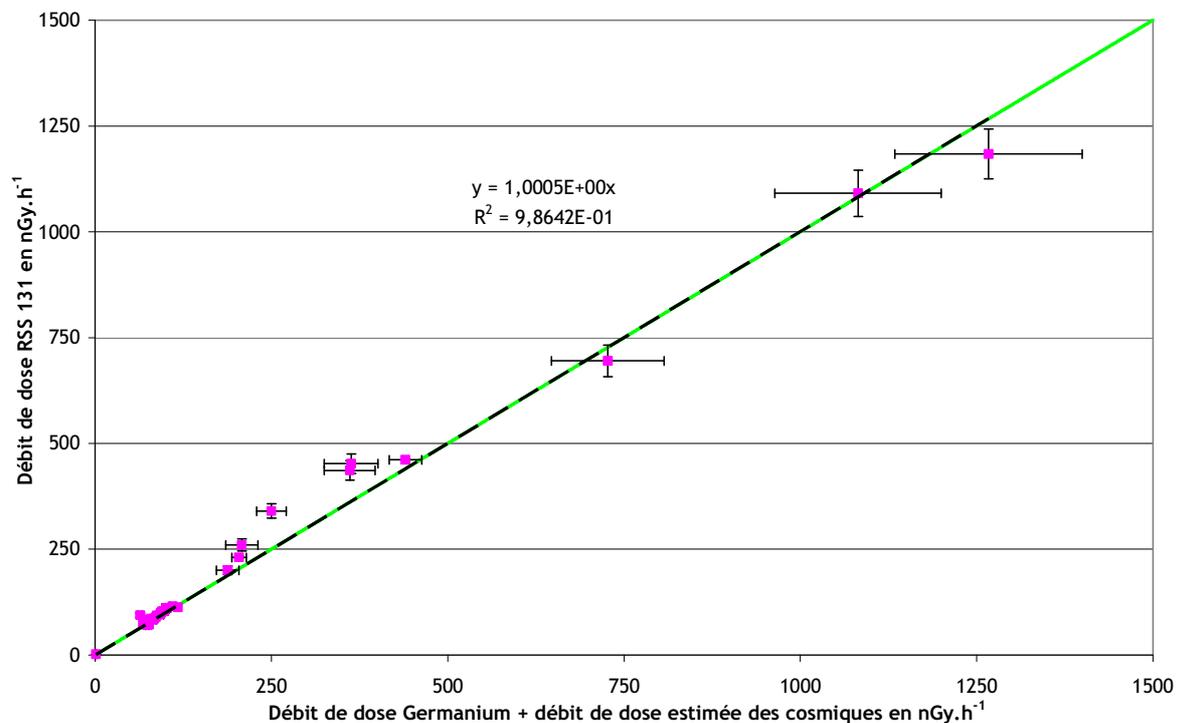


Figure 5.3 : comparaison du débit de dose total avec celui estimé par la mesure *in-situ*.

Les quelques points en dehors de la droite sont des points de mesure de l'intercomparaison ISIGAMMA 2005 où la diffusion n'était pas négligeable pour le calcul de débit de dose. Toutefois, l'ajustement linéaire des points de mesure (en pointillé) montre une très bonne cohérence avec la droite médiane.

## ANNEXE 6 : Les mesures *in-situ*

### 6.1. La variation annuelle de l'activité sur le site d'Orsay

La connaissance du site de mesure d'Orsay passe par une étape de plusieurs mesures *in-situ*. L'étude s'est portée sur la variation de l'activité en fonction de la période annuelle de la mesure. Les quatre figures suivantes (6.1, 6.2, 6.3 et 6.4) présentent les différents points de mesures effectués au cours de ce travail.

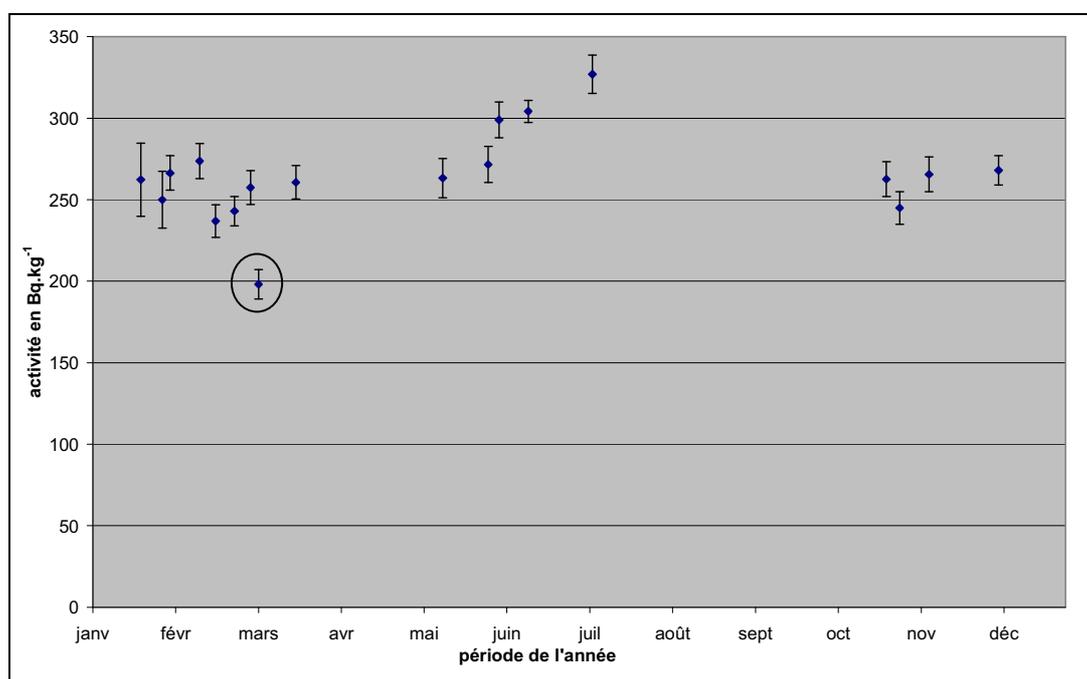


Figure 6.1 : variation de l'activité de  $^{40}\text{K}$  au cours de l'année sur le site d'Orsay.

Sur les quatre figures, une stabilité au cours de l'année est observée permettant ainsi de définir une activité moyenne du site avec son écart type. Toutefois, deux variations sont observables :

- une augmentation de l'activité au cours de l'été qui pourrait s'expliquer par une accumulation plus importante de la radioactivité dans les plantes pendant cette période pour le  $^{40}\text{K}$  et due à une retombée de radon pour le  $^{214}\text{Bi}$ .
- et un point plus faible (entouré) pour les quatre figures dû à une épaisseur de neige d'une dizaine de centimètres sur le sol au moment de la mesure. En effet l'épaisseur de neige joue le rôle d'un atténuateur supplémentaire et donc diminue le flux incident.

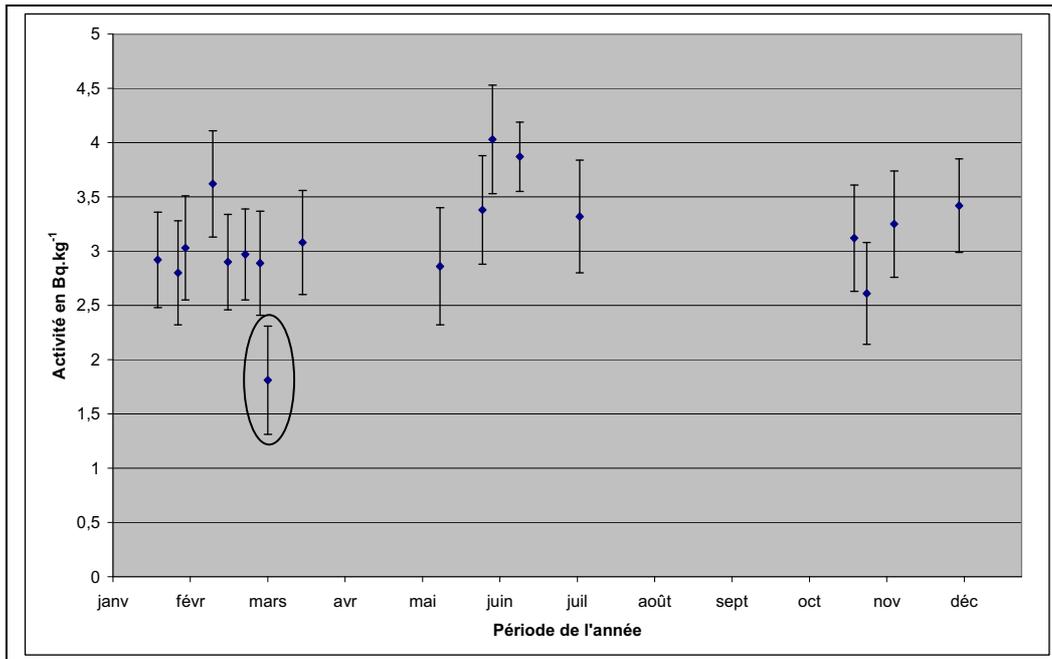


Figure 6.2 : variation de l'activité de  $^{137}\text{Cs}$  au cours de l'année sur le site d'Orsay.

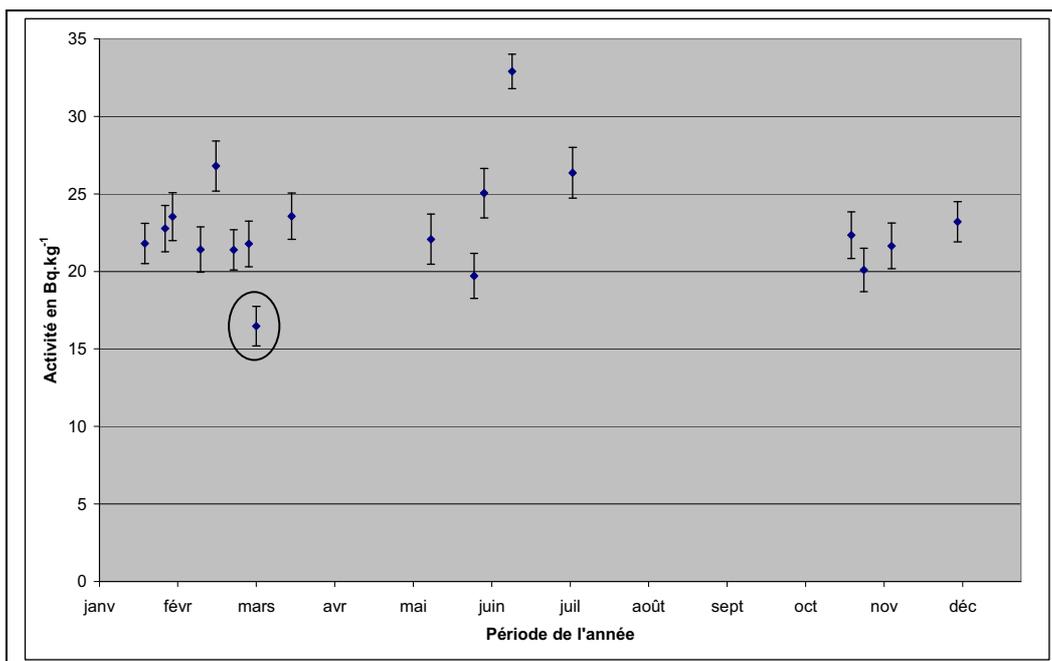


Figure 6.3 : variation de l'activité de la famille de  $^{214}\text{Bi}$  au cours de l'année sur le site d'Orsay.

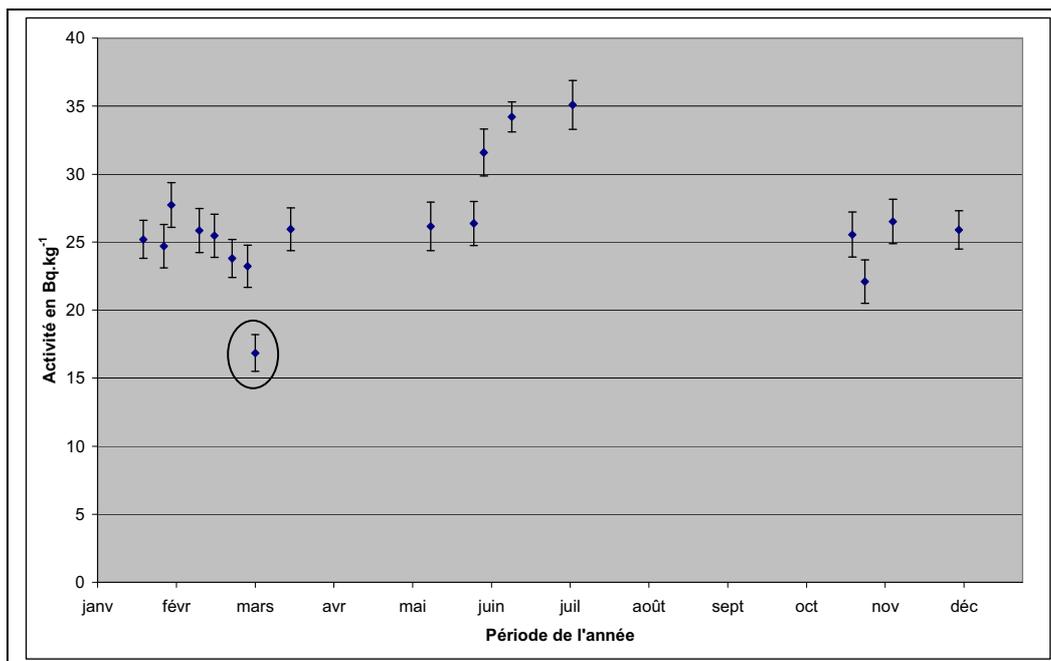


Figure 6.4 : variation de l'activité de la famille de  $^{212}\text{Pb}$  au cours de l'année sur le site d'Orsay.

Radionucléides	Activité en $\text{Bq.kg}^{-1}$	Ecart-type
$^{214}\text{Bi}$	22,7	1,8
$^{214}\text{Pb}$	23,0	2,3
$^{212}\text{Bi}$	29,3	3,7
$^{212}\text{Pb}$	27,2	3,3
$^{208}\text{Tl}$	9,91	0,48
$^{228}\text{Ac}$	25,5	2,6
$^{40}\text{K}$	272	22
$^{137}\text{Cs}$	3,22	0,37

Tableau 6.1 : activité des principaux radionucléides présents dans le sol d'Orsay.

A partir de toutes ces mesures *in-situ*, l'activité moyenne des radionucléides présents sur le site d'Orsay a pu être déterminée avec son écart-type associé (tableau 6.1).

## 6.2. La cartographie du site d'Orsay

Une cartographie du site d'Orsay a été effectuée pendant une journée complète pour observer l'homogénéité ou pas de l'activité des radionucléides présents sur le site. Cette cartographie de 34 mesures couvrait une surface d'environ 300 m<sup>2</sup> (maille triangulaire de 4 mètres de coté) prise autour du point de mesure (entouré en rouge) habituellement utilisé. Les figures 6.5 et 6.6 présentent les activités en <sup>40</sup>K et en <sup>137</sup>Cs en fonction de leur localisation sur le terrain .

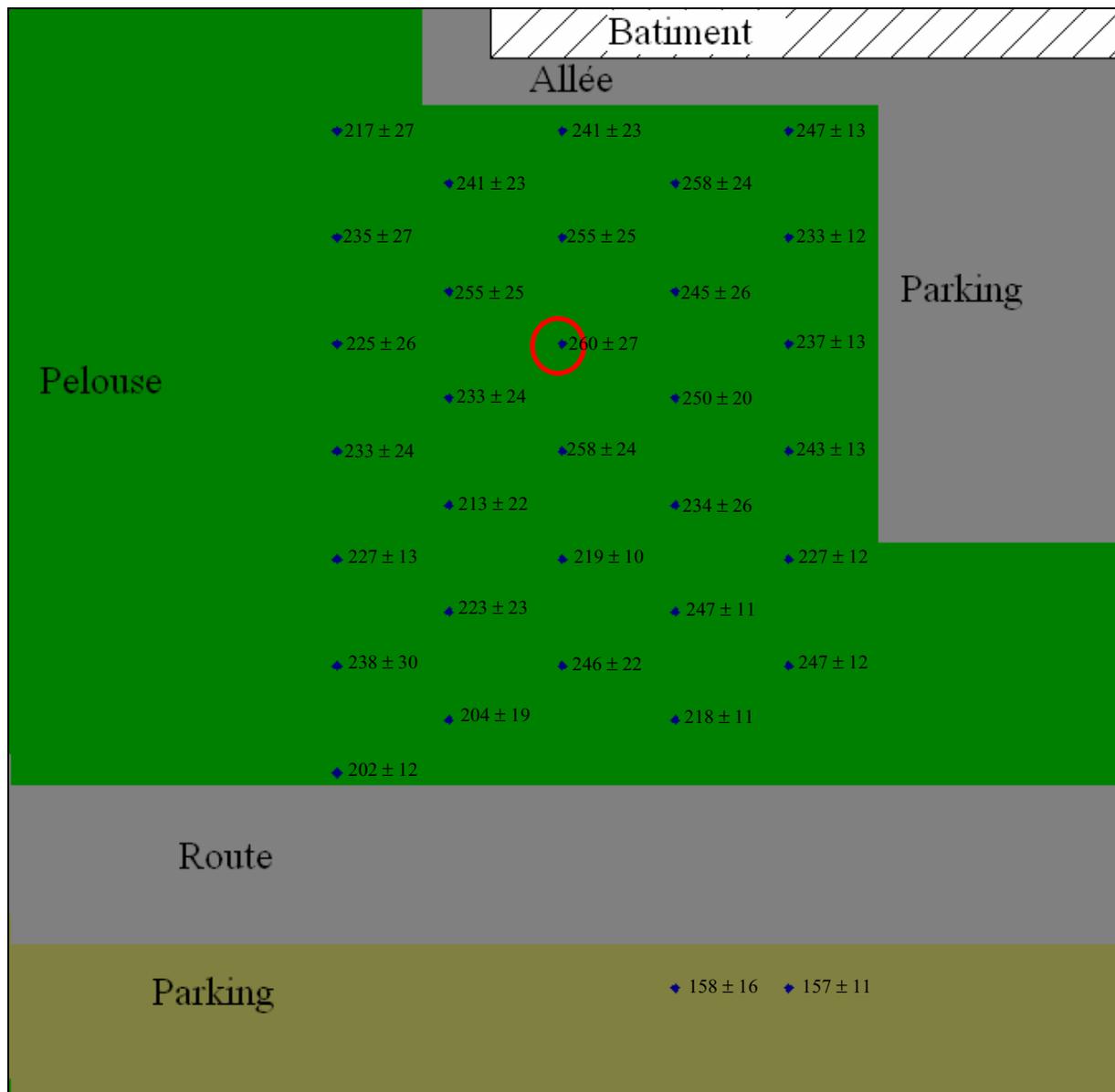


Figure 6.5 : activité en <sup>40</sup>K en fonction de la position sur le terrain d'Orsay (en Bq.kg<sup>-1</sup>).

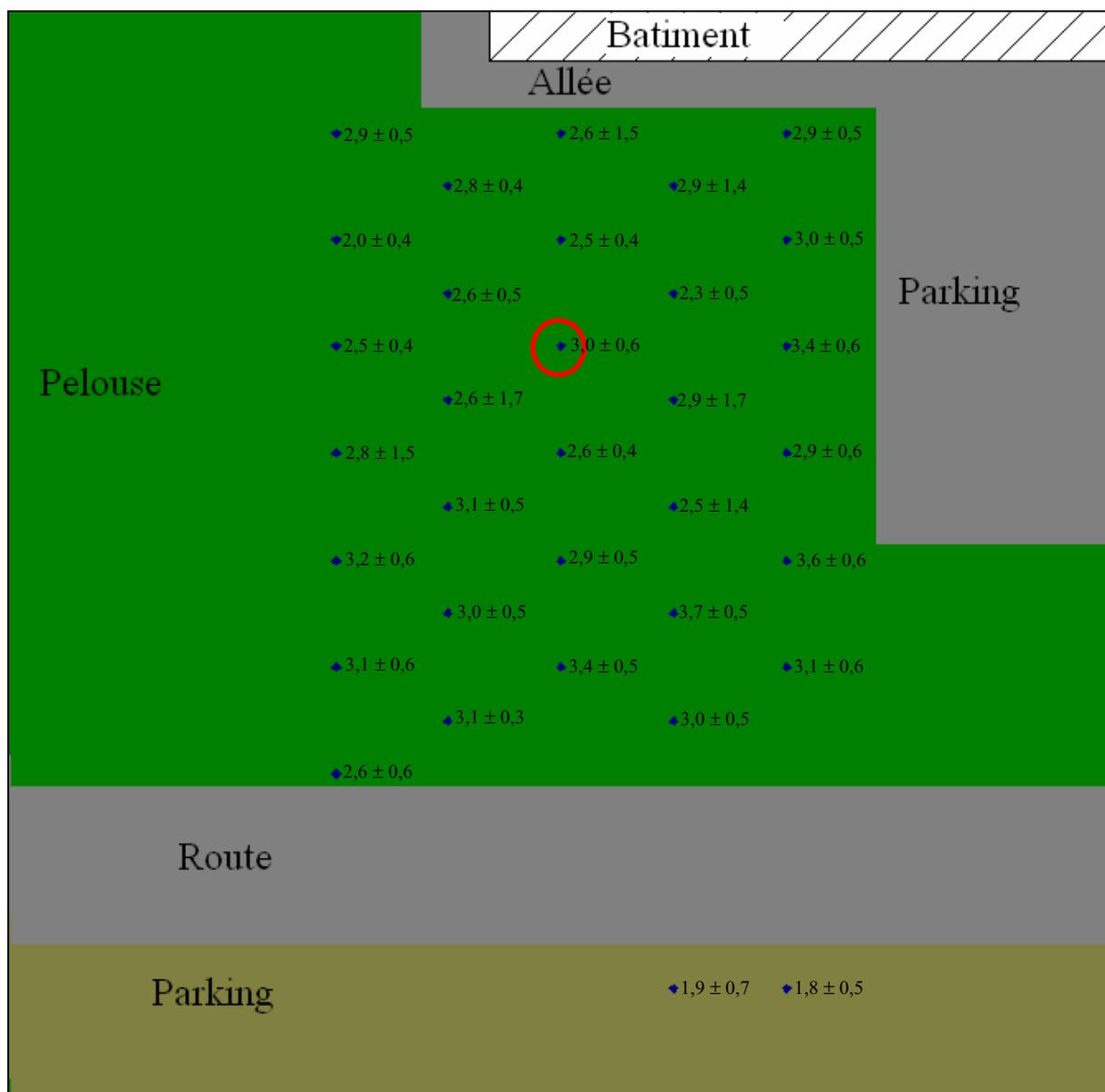


Figure 6.6 : activité en <sup>137</sup>Cs en fonction de la position sur le terrain d'Orsay (en Bq.kg<sup>-1</sup>).

Les deux figures précédentes permettent de voir une activité uniforme en <sup>40</sup>K et en <sup>137</sup>Cs sur l'ensemble du terrain.. Il est à noter la diminution de l'activité pour les deux points de mesure effectuée sur le parking en terre ainsi qu'aux points de mesure situés à proximité de la route.

### 6.3. Les autres mesures in-situ

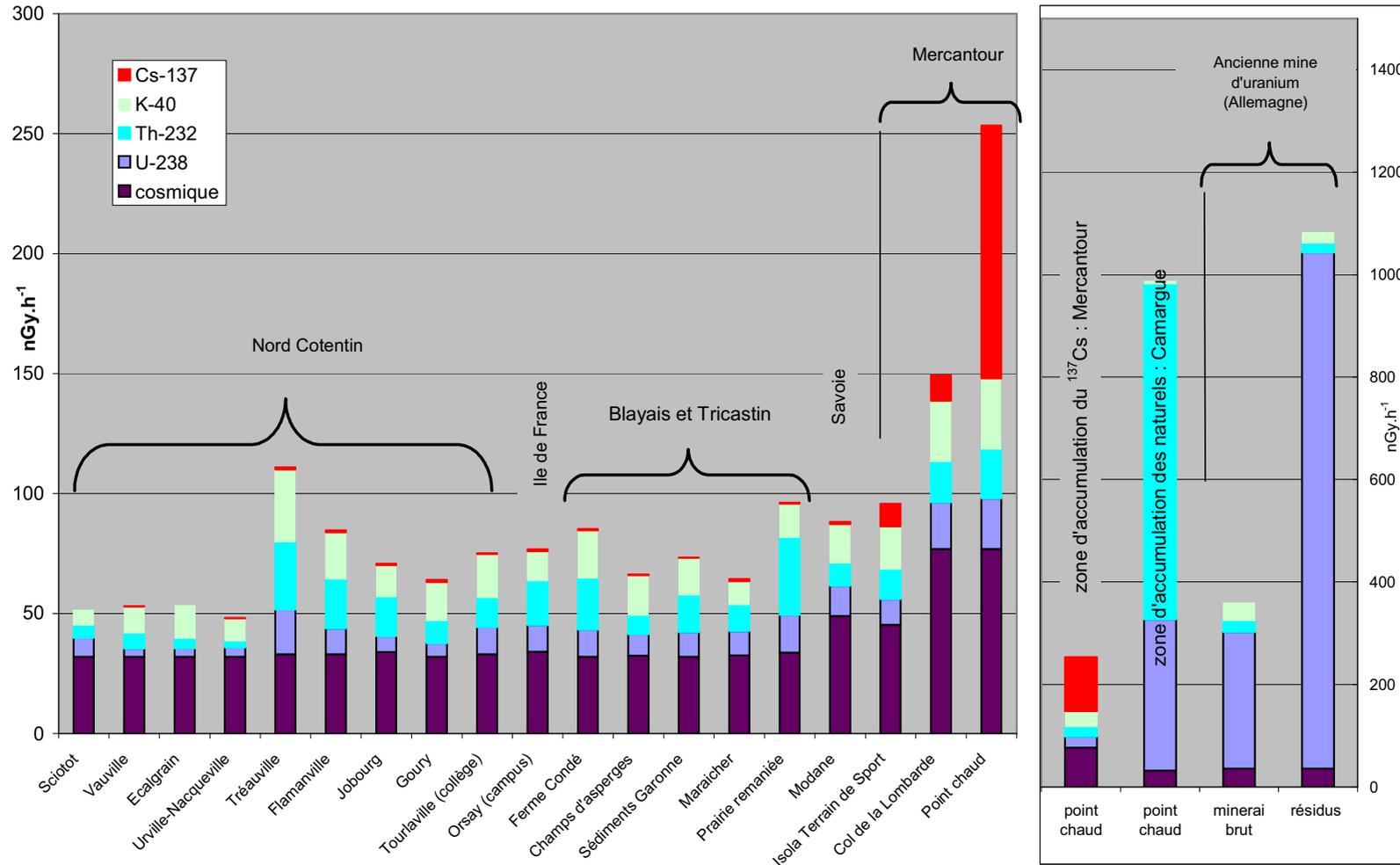


Figure 6.7 : représentation du débit de dose sur différents sites de mesures effectués par le LMRE.

La figure 6.7 présente la distribution du débit de dose pour différents sites de mesures *in-situ* effectuées par le laboratoire. Cette représentation permet de voir que la contribution des radionucléides artificiels tels que le  $^{137}\text{Cs}$  (en rouge) est très faible comparée à la dose totale mesurée. Le seul point de mesure où le  $^{137}\text{Cs}$  devient important dans le calcul de débit de dose est un point de mesure effectué juste au dessus d'une accumulation dans le Mercantour sur le col de la Lombarde.

Les trois derniers histogrammes sont des points de mesures effectués lors de l'intercomparaison ISIGAMMA 2005. Il faut noter le changement d'échelle avec le point chaud du Mercantour comme référence. Les déséquilibres de familles radioactives observés sur ces points sont dus au fait que la mesure se fait sur une ancienne mine d'uranium.

# ANNEXE 7 : Les spectres énergétiques des différents radionucléides simulés pour une mesure de 1800 s

## 7.1. La famille de $^{238}\text{U}$

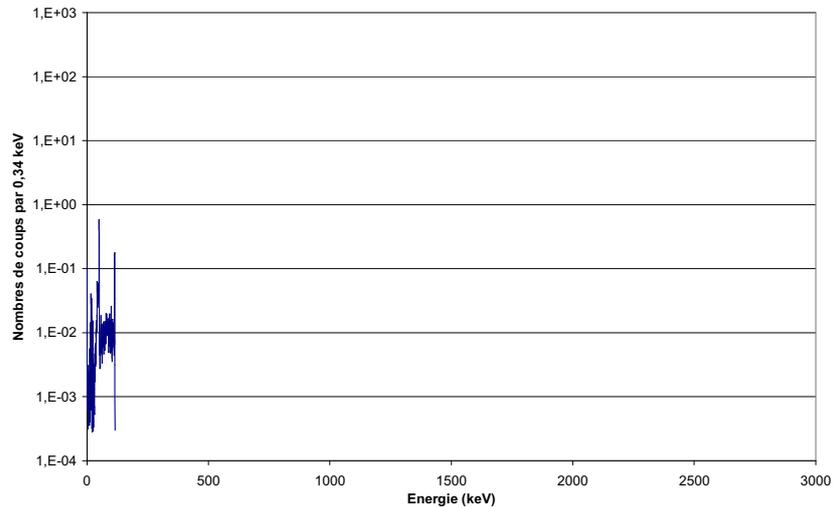


Figure7.1 : spectre énergétique de  $^{238}\text{U}$ .

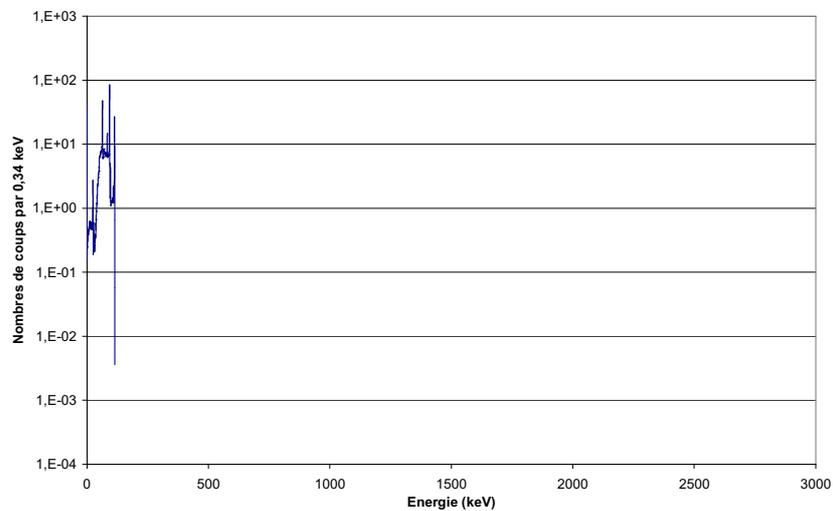
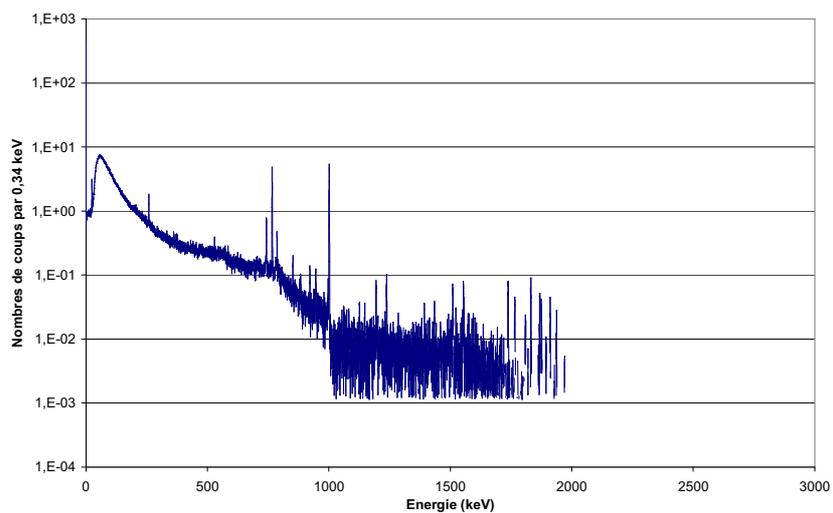
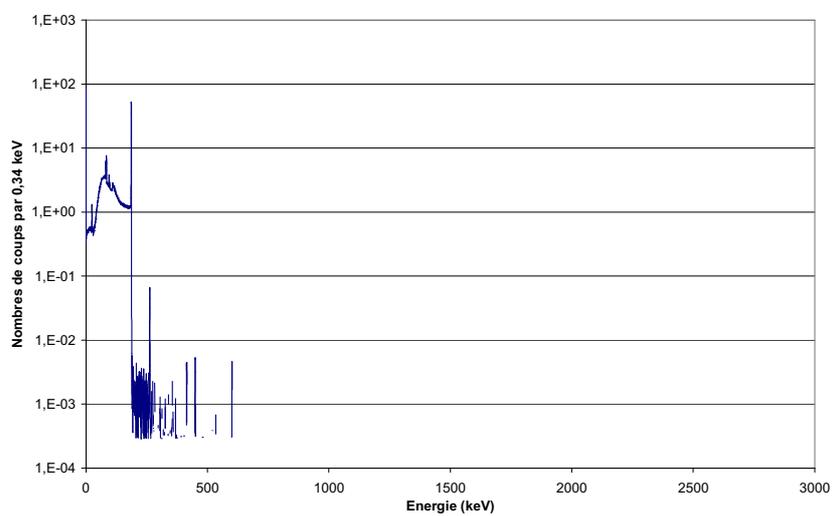


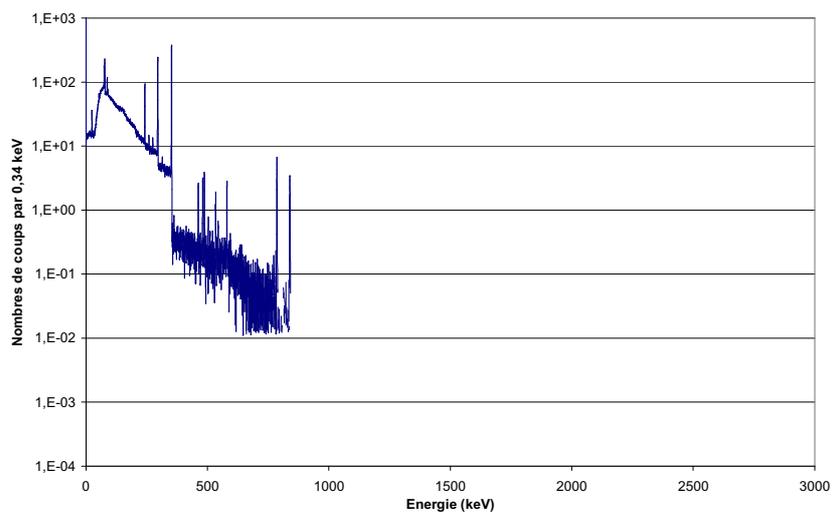
Figure 7.2 : spectre énergétique de  $^{234}\text{Th}$ .



**Figure 7.3 : spectre énergétique de  $^{234}\text{Pa}$ .**



**Figure 7.4 : spectre énergétique de  $^{226}\text{Ra}$ .**



**Figure 7.5 : spectre énergétique de  $^{214}\text{Pb}$ .**

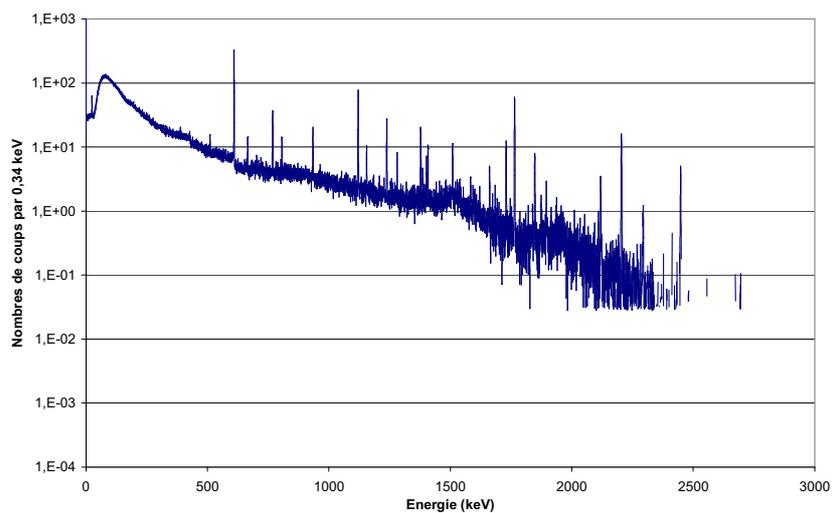


Figure 7.6 : spectre énergétique de  $^{214}\text{Bi}$ .

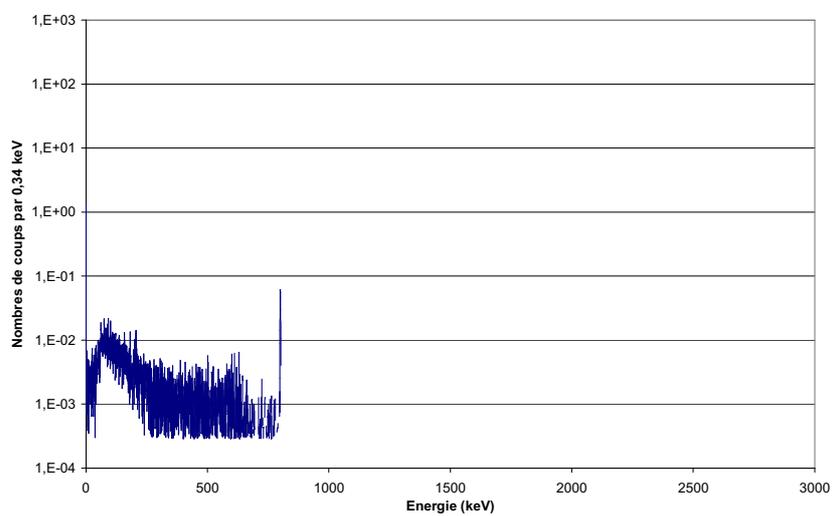


Figure 7.7 : spectre énergétique de  $^{214}\text{Po}$ .

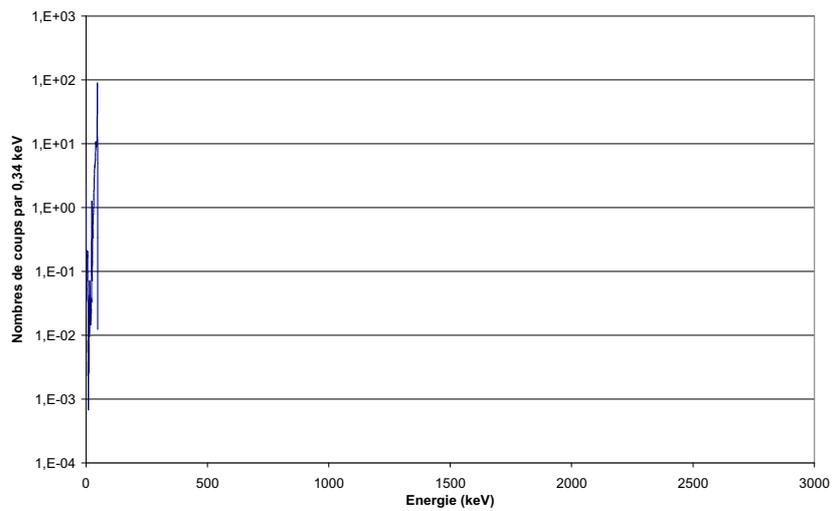


Figure 7.8 : spectre énergétique de  $^{210}\text{Pb}$ .

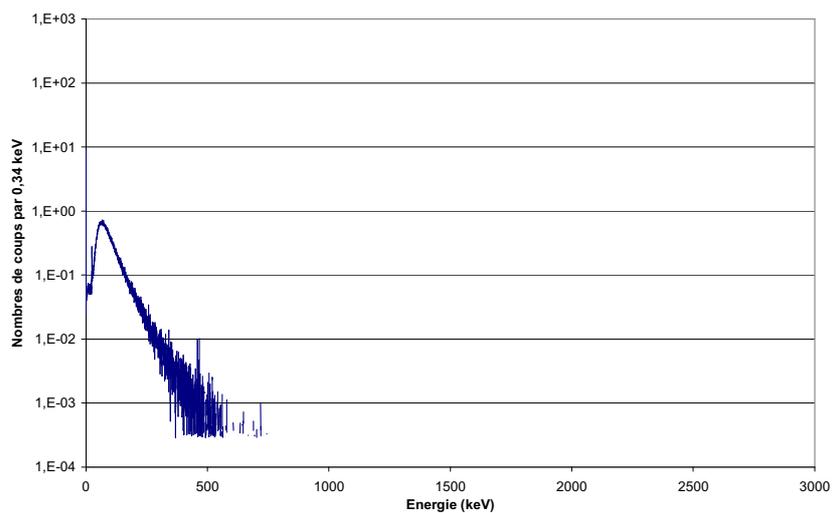


Figure 7.9 : spectre énergétique de  $^{210}\text{Bi}$ .

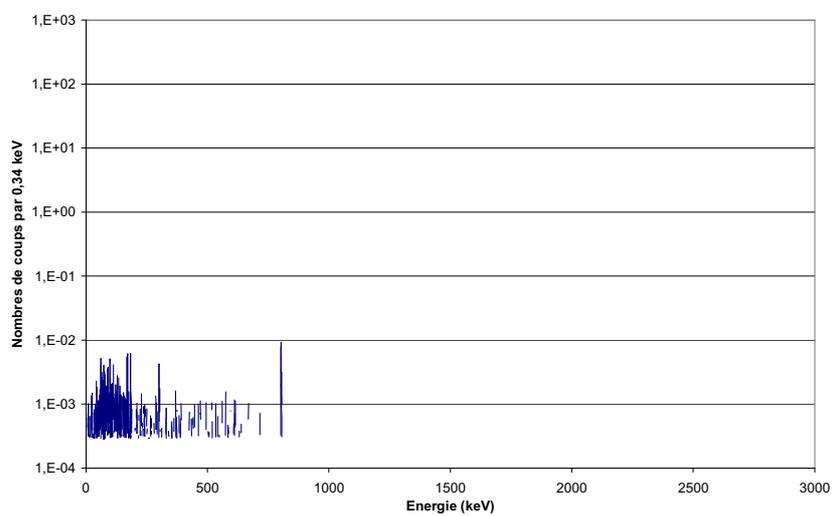


Figure 7.10 : spectre énergétique de  $^{210}\text{Po}$ .

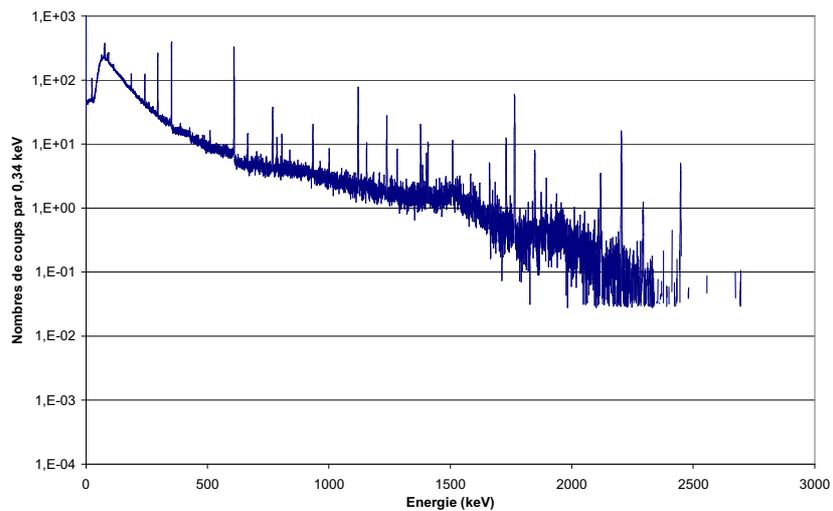


Figure 7.11 : spectre énergétique de la famille de  $^{238}\text{U}$ .

## 7.2. La famille de $^{232}\text{Th}$

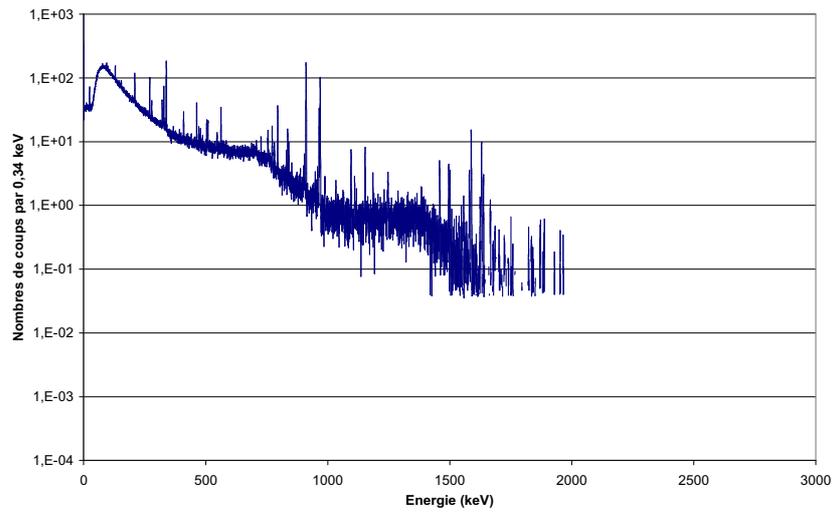


Figure 7.12 : spectre énergétique de  $^{228}\text{Ac}$ .

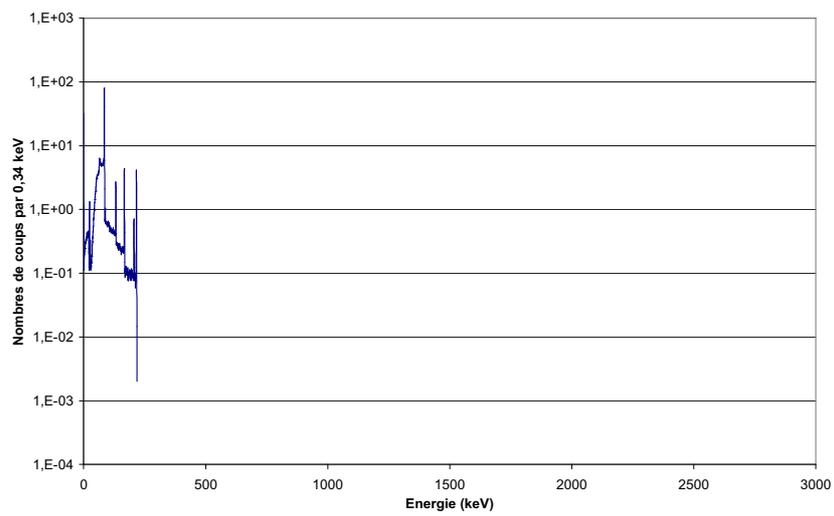


Figure 7.13 : spectre énergétique de  $^{228}\text{Th}$ .

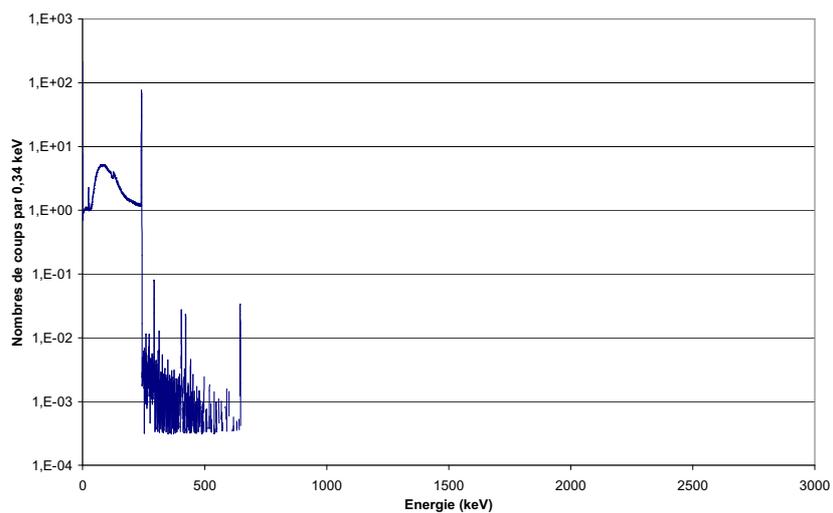


Figure 7.14 : spectre énergétique de  $^{224}\text{Ra}$ .

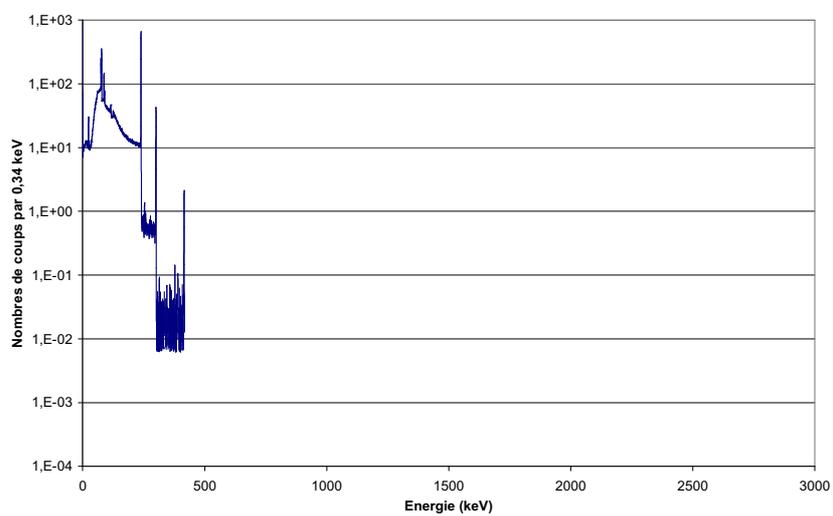


Figure 7.15 : spectre énergétique de  $^{212}\text{Pb}$ .

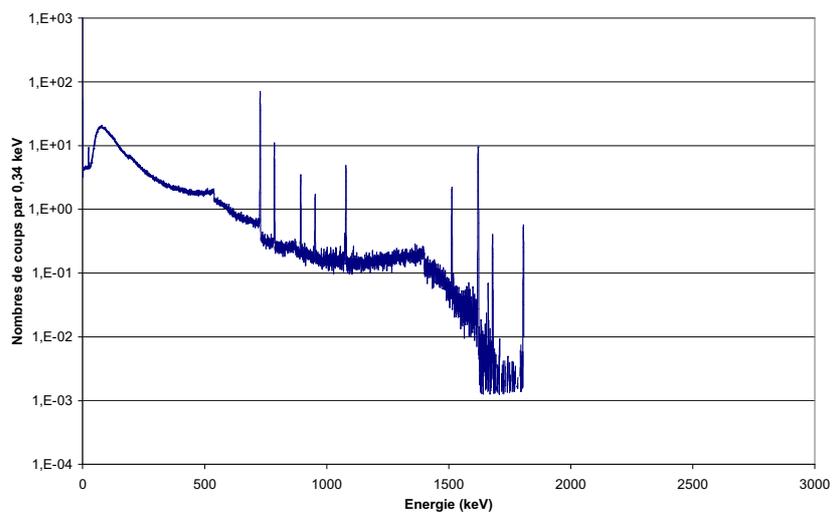
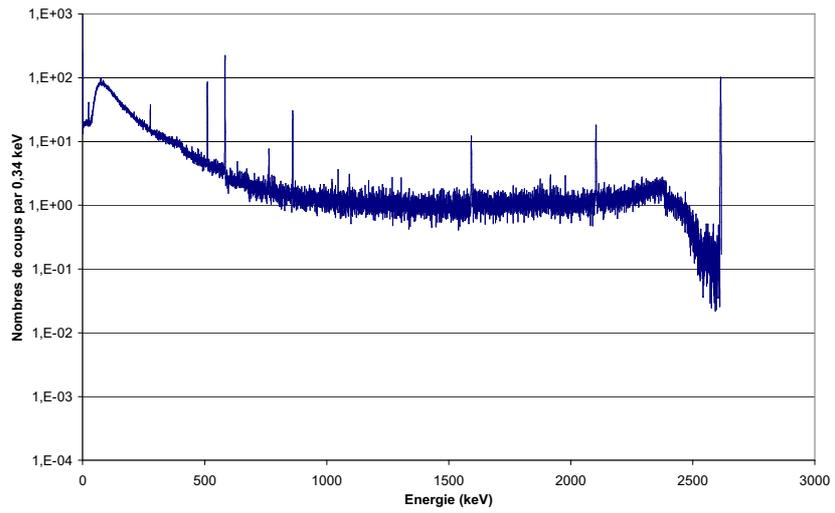
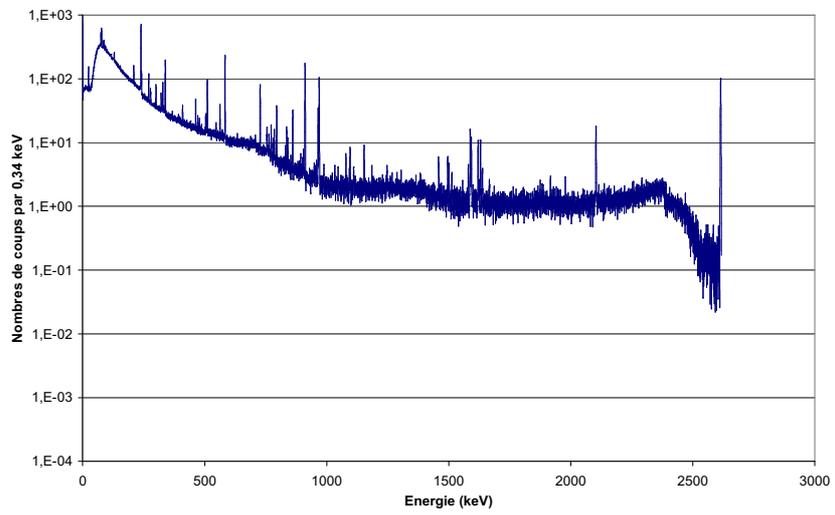


Figure 7.16 : spectre énergétique de  $^{212}\text{Bi}$ .



**Figure 7.17 : spectre énergétique de  $^{208}\text{Tl}$ .**



**Figure 7.18 : spectre énergétique de la famille de  $^{232}\text{Th}$ .**

### 7.3. La famille de $^{235}\text{U}$

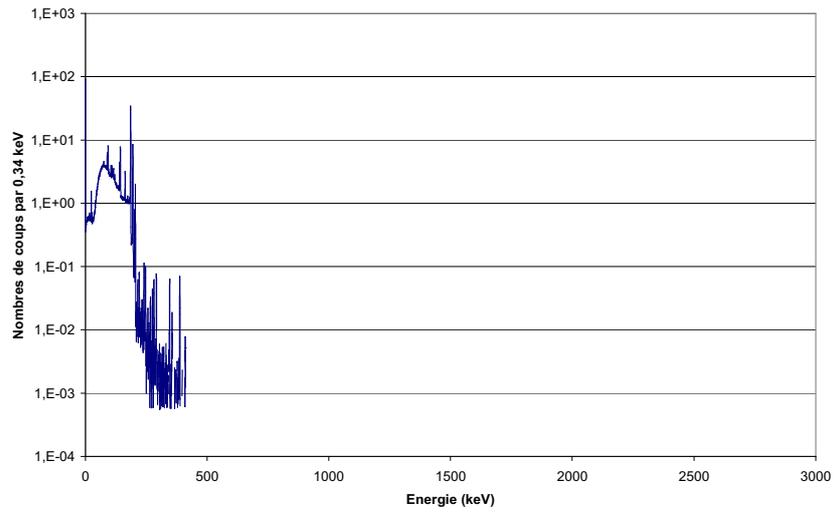


Figure 7.19 : spectre énergétique de  $^{235}\text{U}$ .

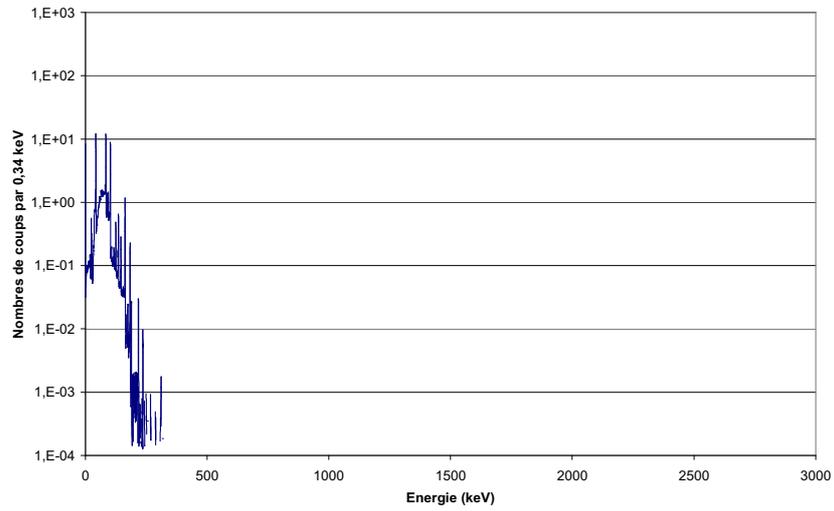


Figure 7.20 : spectre énergétique de  $^{231}\text{Th}$ .

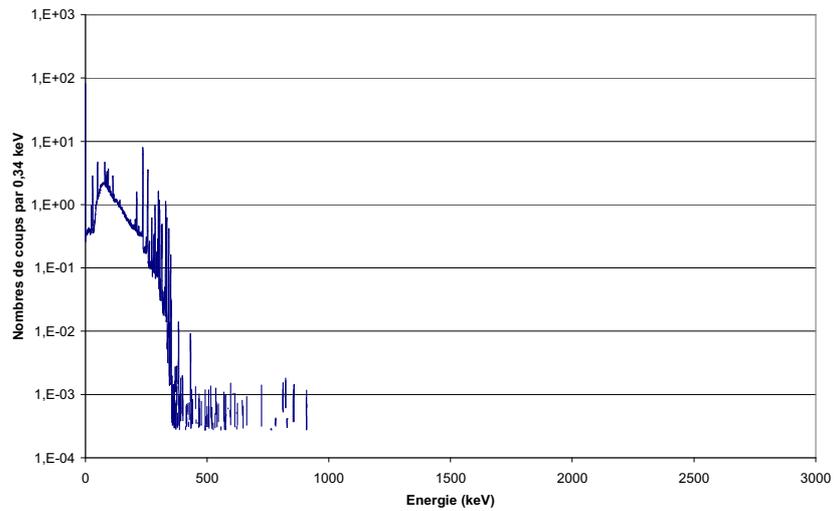


Figure 7.21 : spectre énergétique de  $^{227}\text{Th}$ .

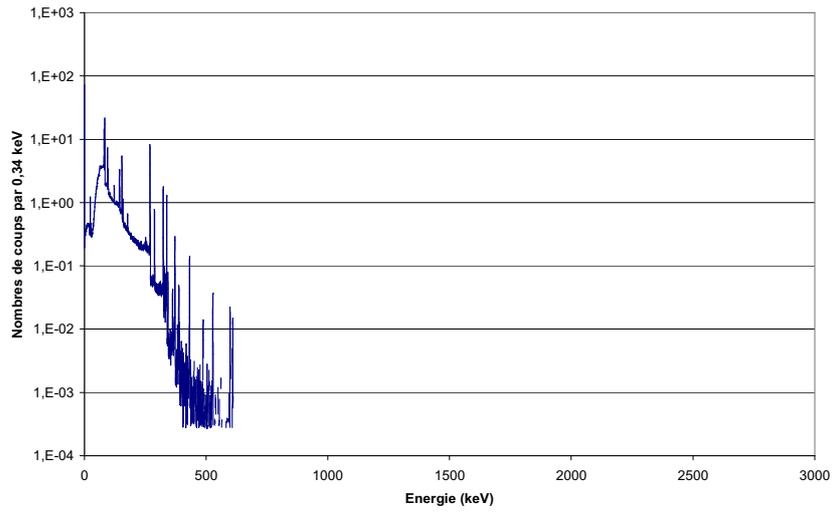


Figure 7.22 : spectre énergétique de  $^{223}\text{Ra}$ .

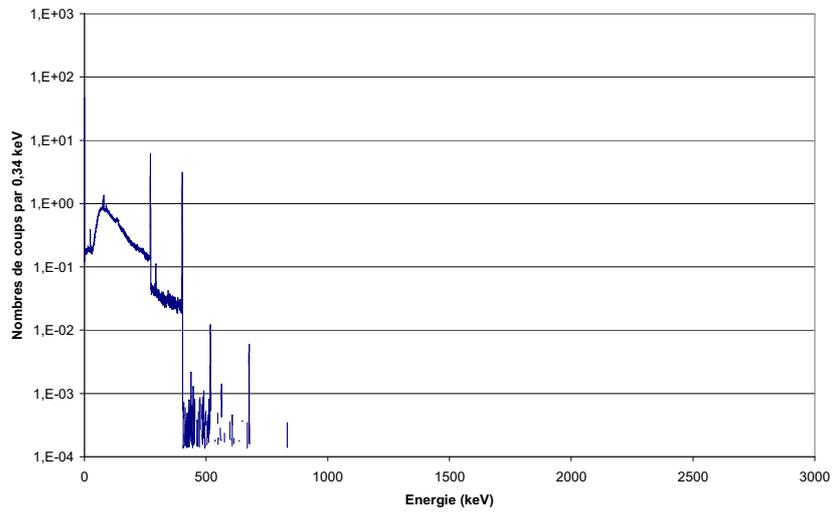


Figure 7.23 : spectre énergétique de  $^{219}\text{Rn}$ .

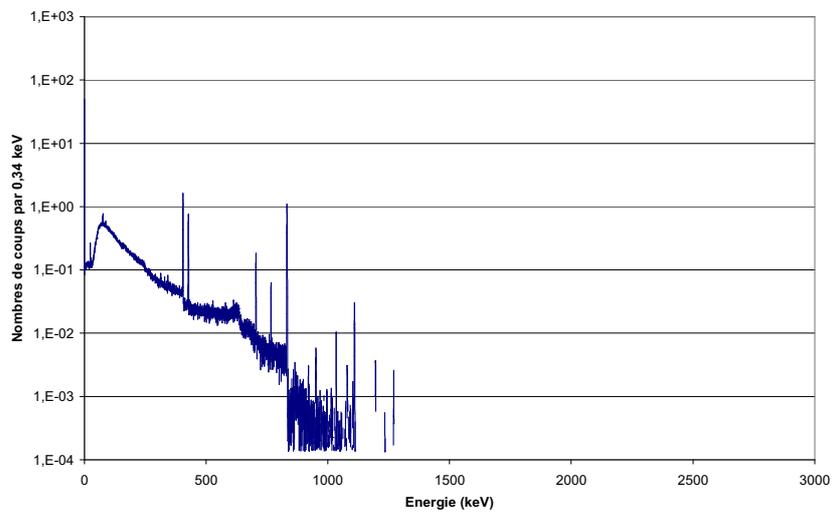


Figure 7.24 : spectre énergétique de  $^{211}\text{Pb}$ .

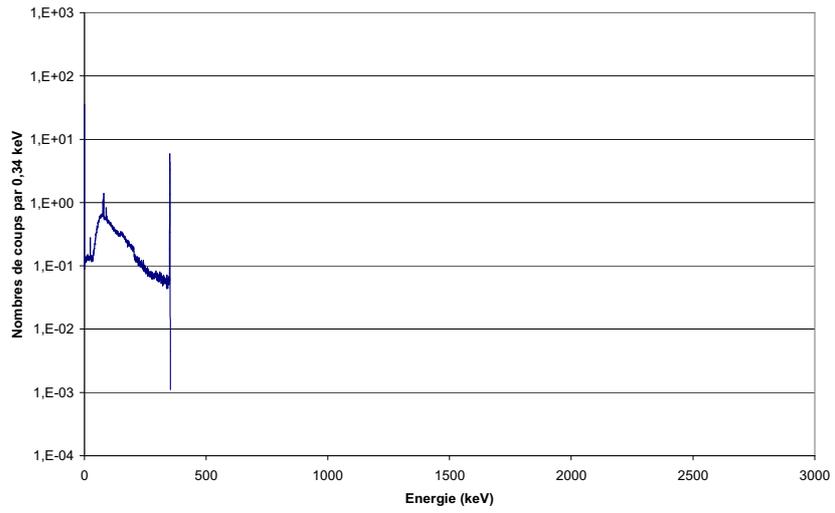


Figure 7.25 : spectre énergétique de  $^{211}\text{Bi}$ .

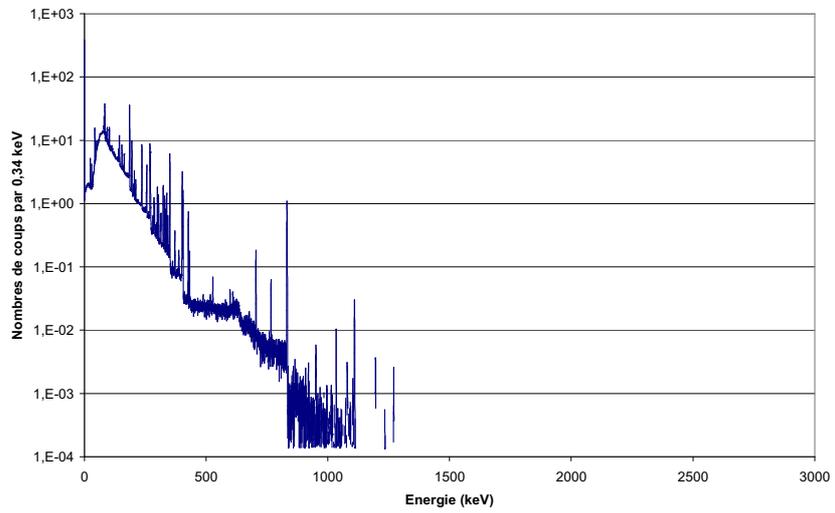


Figure 7.26 : spectre énergétique de la famille de  $^{235}\text{U}$ .

