

NNT : 2016SACLS215

THESE DE DOCTORAT
DE
L'UNIVERSITE PARIS-SACLAY
PREPAREE A
L'UNIVERSITE PARIS SUD XI

ECOLE DOCTORALE N° 576

PHENIICS : Particules hadrons énergie et noyau : instrumentation, image, cosmos et simulation

Spécialité de doctorat : Imagerie médicale et radioactivité

Par

M. Hugues Paradis

Développement de la mesure par spectrométrie γ en coïncidence.

Thèse présentée et soutenue à Orsay le 16 septembre 2016

Composition du Jury :

M. Elias Khan,	Professeur,	Université Paris sud,	Président
M ^{me} Marie Christine Lépy,	Directrice de recherche,	CEA-LNHB,	Rapporteur
M. José Busto,	Professeur,	Université Aix-Marseille,	Rapporteur
M. Lionel Tenailleau,	Ingénieur,	EAMEA-GEA,	Examinateur
M. Guilhem Douysset,	Chercheur,	CEA-DAM,	Examinateur
M ^{me} Anne de Vismes Ott,	Chercheur,	IRSN,	Examinatrice
M. Fabrice Piquemal,	Directeur de recherche,	CNRS,	Directeur de thèse

Table des matières

Remerciements	xiii
Introduction	xv
I La mesure de la radioactivité dans l'environnement	1
1 La radioactivité et ses sources	2
1.1 Radioactivité naturelle	2
1.2 Radioactivité artificielle	4
1.2.1 Les retombées globales	4
1.2.2 Les rejets contrôlés	4
1.2.3 Les situations accidentelles	5
2 Les mesures au LMRE	6
2.1 Echantillons de l'environnement	6
2.2 Contexte des mesures	7
2.2.1 Surveillance radiologique de l'environnement	7
2.2.2 Radioécologie : étude de la radioactivité dans l'environnement	8
2.2.3 Situations incidentelles ou accidentelles	9
2.3 Amélioration des limites de détection	10
2.3.1 Augmentation du signal	10
2.3.2 Diminution du bruit de fond	10
II Mesures par spectrométrie γ en coïncidence	13
1 Interactions photon-matière	14
2 La spectrométrie γ classique	16
2.1 Les différents types de détecteurs	16
2.1.1 Les scintillateurs	16
2.1.2 Les semi-conducteurs	16
2.2 L'électronique d'acquisition	18
2.2.1 Electronique analogique	18
2.2.2 Electronique numérique	18
2.2.3 Le spectre γ obtenu	20
3 Utilisation des coïncidences en spectrométrie γ	20
3.1 La mesure en anti-coïncidence	20
3.2 La mesure en coïncidence	22
3.2.1 Principe	22
3.2.2 Radionucléides concernés	24
3.2.3 Etat de l'art	26
3.2.4 Electronique associée	27
4 Analyse	28
4.1 Statistique de Poisson	28
4.2 Calcul de l'activité et des limites caractéristiques	30
4.2.1 Spectrométrie γ classique	31
4.2.2 Spectrométrie γ en coïncidence	32

5	Etalonnage en rendement	34
5.1	Méthodes d'étalonnage utilisées	34
5.1.1	Etalonnage à l'aide de sources étalons	34
5.1.2	Etalonnage par simulation Monte Carlo	35
5.2	Calcul des coefficients d'étalonnage	35
5.2.1	Spectrométrie γ classique	35
5.2.2	Spectrométrie γ en coïncidence	36
6	Corrections appliquées à l'activité	36
6.1	Corrections de décroissance	36
6.2	Corrections d'auto atténuation	37
6.3	Corrections de coïncidence	37
7	La simulation Monte Carlo en spectrométrie γ	38
III Le système anti-Compton		41
1	Matériel	42
1.1	Détecteurs	42
1.2	Electronique	43
2	Algorithme d'analyse	44
3	Etalonnage	50
3.1	Etalonnage à l'aide de sources étalons	50
3.2	Etalonnage par simulation Monte Carlo	51
3.3	Facteurs de correction d'atténuation	56
4	Bruit de fond du système	58
IV De la modélisation à la mise en service de Léda		61
1	Matériel	62
1.1	Détecteurs	62
1.1.1	Spectromètres germanium	62
1.1.2	Scintillateur NaI(Tl)	65
1.2	Blindage et mécanique	67
1.3	Electronique numérique	68
1.3.1	Réglages du Pixie-4	68
1.3.2	Fichier en mode liste du Pixie-4	72
2	Voies de mesure	74
2.1	Voies classiques	74
2.2	Voie anti-coïncidence	76
2.3	Voies en coïncidence	76
2.3.1	Coïncidences Ge/Ge	76
2.3.2	Coïncidences Ge/NaI	78
2.4	Identification de la voie de mesure appropriée	79
3	Algorithme d'analyse	81
3.1	Reconstruction du temps	82
3.2	Tri des événements	82
3.3	Etalonnage en énergie	84
3.4	Optimisation des ROI	86
4	Etalonnage en rendement de détection	89
4.1	Etalonnage à l'aide de sources étalons	89
4.2	Etalonnage par simulation Monte Carlo	91
5	Bruit de fond	95
6	Distribution temporelle des coïncidences	99
6.1	Mesure d'une source étalon	99
6.2	Mesure d'un bruit de fond	104

V Résultats	107
1 Radionucléides concernés	108
1.1 Cobalt 60	108
1.2 Césium 137	109
1.3 Césium 134	109
1.4 Argent 108 métastable	110
1.5 Argent 110 métastable	110
1.6 Europium 152	111
2 Mesures d'échantillons	113
2.1 Mesures sur le système anti-Compton	113
2.2 Mesures sur Léda	116
2.2.1 ^{137}Cs : spectre en anti-coïncidence	116
2.2.2 ^{60}Co : matrice de coïncidence "Ge/NaI"	117
2.2.3 ^{134}Cs : voies en coïncidence	118
2.2.4 ^{108m}Ag : spectres en coïncidence	120
2.2.5 ^{110m}Ag : spectres en coïncidence	122
2.2.6 Conclusion	122
3 Mesures rapides de filtres de prélèvement d'aérosols	124
4 Discussion et perspectives	126
Conclusion	127
Communications	129
Annexes	135

Table des figures

1	Chaîne de désintégration de ^{232}Th	3
2	Géométries de comptage utilisées au laboratoire, pour les matrices liquides (50 et 500 mL), pour les matrices solides (17, 60, 220 et 380 mL), 10 mL pour les filtres d'aérosols et tubes 12 mL pour les détecteurs de type puits.	6
3	Chronique des concentrations moyennes de ^{137}Cs en rouge et ^7Be en bleu dans les aérosols atmosphériques du territoire français (IRSN/PRP-ENV/SESURE/LERCM – Cadarache).	7
4	Chronique des activités massiques de ^{60}Co dans les mollusques de la Manche prélevés autour de l'usine de retraitement d'AREVA la Hague (IRSN/PRP-ENV/SERIS/LRC).	8
5	Chronique des activités massiques de ^{60}Co dans les mollusques de Méditerranée autour de l'embouchure du Rhône (IRSN/PRP-ENV/SESURE/LERCM-La Seyne).	9
6	Schéma de l'effet photoélectrique (CEA-LNHB [13]).	14
7	Schéma de l'effet Compton (CEA-LNHB [13]).	14
8	Schéma de la création de paire e^+/e^- (CEA-LNHB [13]).	14
9	Evolution des coefficients d'atténuation massiques (μ/ρ) exprimés en $\text{cm}^2\cdot\text{g}^{-1}$ en fonction de l'énergie en MeV du photon incident dans le germanium (NIST [42]), pour l'atténuation et en fonction de chaque type d'interaction.	15
10	Prédominance des interactions photons-matière en fonction de l'énergie du photon en MeV et du numéro atomique, Z, du matériau (Knoll [34]).	16
11	Schéma de fonctionnement d'un détecteur à base de semi-conducteur.	17
12	Schéma des géométries des spectromètres germanium CANBERRA (CANBERRA [12]).	17
13	Signal de sortie d'un préamplificateur en fonction du temps [μs].	18
14	Signaux en fonction du temps [μs] en sortie de l'ADC (carré), du filtre rapide (croix) et du filtre lent (losange), avec indication des constantes de temps de montée (rise time) et de temps de plateau (flat top) du filtre lent (XIA [51]).	19
15	Principales composantes d'un spectre de ^{40}K (simulation Monte Carlo).	20
16	Spectres classique (violet foncé) et en anti-coïncidence (violet clair) d'un échantillon biologique mesuré sur le système anti-Compton du laboratoire contenant une forte proportion de ^{40}K	21
17	Matrice de coïncidence théorique avec empreintes caractéristiques en rouge.	22
18	Répartition des dépôts d'énergie dans la matrice de coïncidence (1 ^{ère} partie).	22
19	Répartition des dépôts d'énergie dans la matrice de coïncidence (2 ^{de} partie).	23
20	Schéma de désintégration de ^{60}Co (CEA-LNHB [14]).	24
21	Schéma de la chambre de coïncidence avec la source placée sur un support rotatif, utilisée par Jurado Vargas et al. [31].	26
22	Photos du système de mesure bas niveau γ^3 (haut) et de la cellule de mesure de gaz nobles (bas), employés au CEA-DAM ([11])	27
23	Distribution de Gauss	28
24	Intervalle de confiance d'une distribution de Gauss	28
25	Exemple de ROI d'un pic et de la zone d'estimation du bruit de fond	29
26	Représentation schématique de la ROI d'une empreinte et de la surface servant à l'estimation du fond	32

27	Exemple de courbe d'étalonnage en rendement en fonction de l'énergie [keV] utilisée au laboratoire.	34
28	Système anti-Compton : schéma à gauche (germanium en bleu, NaI en vert et échantillon en rouge), photo du NaI à droite.	42
29	Schéma et cotes (mm) du spectromètre germanium de type REGe de CANBERRA du système anti-Compton.	43
30	Matrice de coïncidence obtenue par la simulation MCNP_CP d'une source contenant ^{60}Co , ^{241}Am et ^{137}Cs	44
31	Matrice de coïncidence obtenue par la mesure d'une source contenant ^{60}Co , ^{241}Am et ^{137}Cs	45
32	Projections selon différentes directions de l'empreinte de la matrice du système anti-Compton : $E_{Ge} = 1173$ keV et $E_{NaI} = 1332$ keV.	46
33	Dimensions de la ROI et de la zone d'estimation du fond d'une empreinte.	46
34	Résolution en énergie du spectromètre germanium du système anti-Compton en fonction de l'énergie (keV).	47
35	ROI et zone d'estimation de fond avec $\chi = 24$, utilisées pour le système anti-Compton dans la première configuration.	48
36	ROI et zone d'estimation de fond avec $\chi = 14$, utilisées pour le système anti-Compton dans la seconde configuration.	49
37	Courbes d'étalonnage en rendement en fonction de l'énergie du spectromètre germanium du système anti-Compton pour les 3 géométries utilisées (10, 17 et 60 mL).	50
38	Modèle MCNP_CP en 2 dimensions du système anti-Compton, cristal de germanium en bleu, scintillateur NaI en orange et échantillon en vert.	51
39	Comparaison des courbes de rendement (ε) expérimentales et simulées pour les différentes géométries de comptage (de haut en bas : 60 mL, 17mL, 10 mL) en fonction de l'énergie. Superposition des deux courbes à gauche (expérimentale en bleu et simulée en vert) et ratios entre les rendements expérimentaux et simulés à droite.	53
40	Ratios entre les coefficients d'étalonnage simulés et expérimentaux pour la géométrie de 60 mL, pour chacune des deux empreintes (C_1 et C_2) de ^{60}Co (bleu) et ^{88}Y (vert). Trois sources différentes ont été mesurées.	54
41	Ratios entre les coefficients d'étalonnage simulés et expérimentaux pour la géométrie de 17 mL, pour chacune des deux empreintes (C_1 et C_2) de ^{60}Co (bleu) et ^{88}Y (vert). 3 sources différentes ont été mesurées.	55
42	Ratios entre les coefficients d'étalonnage simulés et expérimentaux pour la géométrie de 10 mL, pour chacune des deux empreintes (C_1 et C_2) de ^{60}Co (bleu) et ^{88}Y (vert).	55
43	Coefficients d'étalonnage de ^{60}Co en coïncidence, C_1 (bleu) et C_2 (vert), en fonction de la densité de l'échantillon et ajustement linéaire $C=f(d)$	57
44	Spectre de la voie normale (sans veto) d'une mesure de bruit de fond du dispositif du système anti-Compton (durée d'acquisition : 560 000 s).	58
45	Matrice de coïncidence de bruit de fond du système anti-Compton, avec encadrées en vert les empreintes caractéristiques (1120 keV - 609 keV) de ^{208}Tl et (2614 keV - 583 keV) de ^{214}Bi	59
46	Zoom sur les zones des empreintes de ^{60}Co dans la matrice de coïncidence du système anti-Compton, avec la ROI en vert et zone d'estimation du fond en rouge.	60
47	Zones des empreintes de ^{134}Cs (605 keV ; 795 keV) et (795 keV ; 605 keV) encadrées en rouge, superposées à la diagonale de ^{40}K ($E_{Ge} + E_{NaI} = 1460$ keV) dans la matrice Ge/NaI obtenue par la mesure d'un échantillon d'origine biologique sur le système anti-Compton.	62
48	Schéma en 3 dimensions et dessin coté d'un détecteur BEGe de CANBERRA (CANBERRA [12])	63
49	Modèle MCNP_CP du nouveau système de mesure : Léda. Cristaux de germanium en bleu, scintillateur NaI en vert et blindage en gris.	64

50	Photos des trois détecteurs de Léda à l'intérieur du blindage, à gauche les deux BEGe à l'intérieur du blindage et à droite le scintillateur NaI avec son capot en inox entourant les BEGe.	64
51	Résolution en énergie [keV] des deux spectromètres germanium, Castor (bleu) et Pollux (rouge), en fonction de l'énergie des photons incidents [keV].	65
52	Photo du scintillateur NaI (Hélène)	66
53	Evolution de la résolution en énergie du scintillateur NaI (Hélène)	66
54	Schéma et photo de Léda et sa mécanique associée.	67
55	Support pour la géométrie de mesure 60 mL.	67
56	Réglages des filtres rapides du Pixie-4 [XIA [51]] dans l'onglet "Trigger"	68
57	Réglages des filtres lents du Pixie-4 [XIA [51]] dans l'onglet "Energy".	69
58	Réglages des coïncidences [XIA [51]].	69
59	Evolution du comptage dans les pics de ^{60}Co , à 1173 keV (bleu) et 1332 keV (rouge), en fonction du retard appliquée à la voie "NaI" par rapport aux voies germanium en μs	70
60	Evolution du comptage en coïncidence dans les empreintes de deux émetteurs, ^{60}Co (losanges bleus pour (1173,1332) et carrés rouges pour (1332,1173)) et ^{137}Cs ((662,662), triangles violets), en fonction de la largeur de la fenêtre de coïncidence (FC) [ns].	71
61	Fenêtre de réglage des paramètres de mesure du Pixie-4[XIA [51]]	71
62	Extrait d'un exemple de fichier en mode liste du Pixie-4.	73
63	Voie "SommeGe" : somme des deux spectres germanium. Haut : schéma de la voie de mesure avec localisation en bleu des dépôts d'énergie possibles, en l'occurrence les deux cristaux de germanium. Bas : spectre d'une mesure de source étalon multi- γ obtenu sur cette voie.	74
64	Voie "NaI". Haut : schéma de la voie de mesure avec localisation en rouge des dépôts d'énergie possibles. Bas : spectre d'une mesure de source étalon multi- γ obtenu sur cette même voie. Zoom sur la gamme d'énergie 0-2700 keV, qui correspond aux énergies des dépôts par des photons γ	75
65	Voie anti-coïncidence. Haut : schéma de la voie de mesure avec localisation en bleu des dépôts d'énergie possibles, les détecteurs dans lesquels il ne doit pas y avoir de dépôt simultané sont en mauve. Bas : spectre d'une mesure de source étalon multi- γ obtenu sur cette même voie.	76
66	Voie en coïncidence "Ge/Ge". Haut : schéma de la voie de mesure avec localisation en bleu des dépôts d'énergie possibles, simultanément dans les deux spectromètres germanium. Milieu : matrice de coïncidence d'une mesure de source associée à cette voie, avec les empreintes du ^{60}Co entourées en rouge. Bas : spectre d'une mesure de source étalon multi- γ obtenu sur cette même voie, seul le ^{60}Co , unique émetteur en coïncidence, est présent.	77
67	Voie en coïncidence "Ge/NaI". Haut : schéma de la voie de mesure avec localisation en bleu des dépôts d'énergie dans les spectromètres germanium et en rouge des dépôts dans le scintillateur NaI. Milieu : matrice de coïncidence d'une mesure de source associée à cette voie, avec les empreintes du ^{60}Co entourées en noir. Bas : spectre d'une mesure de source étalon multi- γ obtenu sur cette même voie, seul le ^{60}Co , unique émetteur en coïncidence, est présent.	78
68	Logigramme présentant la méthode de choix de la voie de mesure pour un radionucléide donné en fonction du radionucléide présent en forte proportion dans l'échantillon (et son énergie maximum E_{bdf} , dont le fond Compton masque les pics du radionucléide recherché).	80
69	Logigramme de l'algorithme d'analyse des données de Léda à partir du fichier en mode liste fourni par le Pixie-4.	81
70	Logigramme de tri du fichier en mode liste permettant d'incrémenter les spectres.	83
71	Logigramme de l'étalonnage en énergie des spectres de Léda.	85
72	ROI et zone d'estimation de fond pour les empreintes de la matrice Ge/Ge de Léda.	86

73	Evolution du rapport signal sur bruit pour chacune des deux empreintes de trois radionucléides (^{88}Y , ^{60}Co et ^{134}Cs) en fonction de la largeur de la ROI (facteur a).	87
74	ROI et zone d'estimation de fond pour les empreintes de la matrice Ge/NaI de Léda.	87
75	Evolution du rapport signal sur bruit en fonction de la hauteur de la ROI (facteur b) de la matrice Ge/NaI pour les empreintes de radionucléide (^{88}Y , ^{60}Co et ^{134}Cs).	88
76	Rendement de détection en fonction de l'énergie [keV] pour les spectres "SommeGe" des géométries 10 mL (rouge), 17 mL (bleu) et 60 mL (vert).	89
77	Coefficients d'étalonnage du spectre en coïncidence "Ge/Ge" pour les 3 géométries utilisées : 10 mL (vert), 17 mL (rouge) et 60 mL (bleu).	90
78	Coefficients d'étalonnage du spectre en coïncidence "Ge/NaI" pour les 3 géométries utilisées : 10 mL (vert), 17 mL (rouge) et 60 mL (bleu).	90
79	Coefficients d'étalonnage de la matrice Ge/Ge pour trois géométries : 10 (vert), 17 (rouge) et 60 mL (bleu) pour les deux empreintes (C_1 et C_2) de 3 radionucléides (^{60}Co , ^{134}Cs , ^{88}Y).	91
80	Coefficients d'étalonnage de la matrice Ge/NaI pour trois géométries : 10 mL (vert), 17 mL (rouge) et 60 mL (bleu) pour les deux empreintes (C_1 et C_2) de 3 radionucléides (^{60}Co , ^{134}Cs , ^{88}Y).	91
81	Rapport entre les rendements de détection simulés et expérimentaux de la voie "SommeGe" pour 3 géométries utilisées (de bas en haut, 10, 17 et 60 mL).	92
82	Comparaison des coefficients d'étalonnage des matrices de coïncidence "Ge/Ge" (gauche) et Ge/NaI (droite) simulés et expérimentaux pour trois radionucléides (^{60}Co , ^{134}Cs , ^{88}Y) et 3 géométries (10, 17 et 60 mL de bas en haut).	93
83	Comparaison des coefficients d'étalonnage spectres de coïncidence "Ge/Ge" (gauche) et Ge/NaI (droite) simulés et expérimentaux pour 3 radionucléides (^{60}Co , ^{134}Cs , ^{88}Y) et 3 géométries (10, 17 et 60 mL de bas en haut).	94
84	Spectre "SommeGe" d'une mesure de bruit de fond de Léda pendant 1 100 000 s et principaux pics présents.	95
85	Zoom du spectre "SommeGe" d'une mesure de bruit de fond sans (noir) et avec balayage d'azote (rouge) sur quelques pics caractéristiques de ^{214}Pb et ^{214}Bi	96
86	Distribution du temps entre deux dépôts en coïncidence (Δt en ns) pour les coïncidences Ge/NaI (gauche) et Ge/Ge (droite).	99
87	Spectres germanium en coïncidence "Ge/NaI". Les trois spectres correspondent aux trois zones temporelles de la figure 86.	100
88	Matrices de coïncidence "Ge/NaI" en fonction du temps entre les deux dépôts d'énergie en coïncidence (Δt).	101
89	Matrices de coïncidence "Ge/Ge" en fonction du temps entre les deux dépôts d'énergie en coïncidence (Δt).	102
90	Simulation des interactions des photons dans un détecteur BEGe pour 3 énergies initiales : 50 keV, 250 keV et 1 MeV.	103
91	Distribution du potentiel à l'intérieur d'un cristal de détecteur BEGe germanium (Harkness-Brennan et al. [25]).	103
92	Ecart en temps entre les dépôts en coïncidence (Δt) pour une mesure de bruit de fond pour les coïncidences Ge/NaI (gauche) et Ge/Ge (droite).	104
93	Spectre germanium en coïncidence "Ge/NaI" correspondant aux dépôts d'énergie avec un Δt compris entre 0.67 μs et 5 μs	104
94	Zooms sur le spectre en coïncidence "Ge/NaI" avec des dépôts en coïncidence compris entre 0.67 μs et 5 μs , 133 keV de $^{128}\text{I}^*$ ((n,γ) sur ^{127}I) à gauche et 695 keV de $^{72}\text{Ge}^*$ ((n,n') sur ^{72}Ge) à droite.	105
95	Schéma de désintégration de ^{60}Co (CEA-LNHB [14]).	108
96	Schéma de désintégration de ^{137}Cs (CEA-LNHB [14]).	109
97	Schéma de désintégration simplifié de ^{134}Cs (CEA-LNHB [14]).	109
98	Schéma de désintégration de ^{108m}Ag (CEA-LNHB [14]), par capture électronique (gauche) et transition interne (droite).	110

99	Schéma de désintégration simplifié de ^{110m}Ag (CEA-LNHB [14]).	111
100	Schéma de désintégration simplifié de ^{152}Eu (CEA-LNHB [14]), par capture électronique (gauche) et par désintégration β^- (droite).	112
101	Comparaison des activités massiques obtenues en spectrométrie classique (losanges bleus) et en spectrométrie en coïncidence (carrés rouge). Les activités massiques sont représentées par des symboles pleins et les limites de détection par des symboles vides.	113
102	Mesure d'un échantillon d'origine biologique en voie classique et en coïncidence sur le système anti-Compton avec recherche de ^{60}Co . Spectre classique en haut et matrice de coïncidence avec zoom sur les empreintes (1173-1332 keV ; 1332-1173 keV) de ^{60}Co en bas.	114
103	Rapports entre les activités mesurées de ^{152}Eu (échantillon 1 et 2) et de ^{134}Cs (échantillons 3 à 5) en spectrométrie classique et en spectrométrie en coïncidence sur le système anti-Compton.	115
104	Comparaison des activités massiques de ^{137}Cs entre la spectrométrie classique et la mesure en anti-coïncidence avec Léda. En haut activités massiques calculées à partir des deux méthodes et en bas ratio Léda sur spectrométrie classique.	116
105	Zoom sur les basses activités du graphique de comparaison des activités massiques de ^{137}Cs mesurées avec Léda et en spectrométrie classique.	117
106	Limites de détection des mesures de ^{137}Cs sur Léda (rouge) comparées à celles obtenues en spectrométrie classique (bleu).	117
107	Comparaison des activités massiques de ^{60}Co mesurées par spectrométrie classique (vert clair) et avec Léda (vert foncé) sur la matrice de coïncidence "Ge/NaI". Les symboles évidés représentent des limites de détection.	118
108	Comparaison des activités massique de ^{134}Cs mesurées en spectrométrie classique (rose) et avec Léda (marron).	119
109	Comparaison entre la mesure sur le spectre "SommeGe" et la mesure sur le spectre en coïncidence "Ge/NaI" sur Léda d'un échantillon contenant $4.4 \text{ Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ de ^{134}Cs et $23\ 800 \text{ Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ de ^{137}Cs . En haut, spectre "SommeGe" en noir et spectre en coïncidence en bleu, en bas, zoom sur la zone du pic à 605 keV pour le spectre "SommeGe" (gauche) et pour le spectre en coïncidence (droite).	119
110	Comparaison des activités massiques de ^{108m}Ag obtenues par spectrométrie classique et avec Léda.	120
111	Spectres "SommeGe" (noir) et en coïncidence "Ge/Ge" (bleu) d'une même mesure d'un échantillon d'origine biologique contenant $0.36 \text{ Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ de ^{108m}Ag et environ $1500 \text{ Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ de ^{40}K	121
112	Trois zooms sur les deux spectres présentés sur la figure 111 pour chacun des trois pics de ^{108m}Ag à 433 keV, 614 keV et 723 keV.	121
113	Comparaison des activités massiques de ^{110m}Ag obtenues par spectrométrie classique et avec Léda.	122
114	Comparaison générale des activités massiques obtenues par spectrométrie classique et avec Léda.	123
115	Spectres d'un filtre d'aérosols mesuré 240 000 s, juste après le prélèvement (gauche) et après 4 jours de décroissance (droite).	124
116	Comparaison de l'évolution des limites de détection en spectrométrie classique et avec Léda pour un filtre d'aérosol mesuré avant la décroissance des descendants particuliers du radon pour trois radionucléides (^{131}I , ^{137}Cs et ^{134}Cs).	125
117	Spectre en anti-coïncidence d'une mesure d'un filtre d'aérosols prélevé à Orsay et mesuré 3 jours, 2 jours seulement après prélèvement. Mise en évidence du pic caractéristique de ^{131}I à 364 keV.	125
118	chaîne de désintégration de ^{235}U	135
119	chaîne de désintégration de ^{238}U	136

Liste des tableaux

1	Liste des radionucléides rejetés (hors ^{14}C , ^3H , gazes rares et émetteurs β purs) par un réacteur de 900 MWe (Florence [23]) et proportions associées.	4
2	Liste des produits de fission (bleu) et des produits d'activation (orange), principalement rejetés en cas d'accident d'une centrale nucléaire (IRSN [29]).	5
3	Radionucléides susceptibles d'être rejetés dans l'environnement et mesurables en coïncidence avec leur principale mode de désintégration (β^- , β^+ , capture électronique (CE)) (CEA-LNHB [14]).	25
4	Composition du mélange de radionucléides composant les sources étalons mutli- γ , avec pour chaque radionucléide, sa période, ses principaux photons γ émis et leur intensité d'émission associée.	35
5	Rapports signal sur bruit en fonction des dimensions de la ROI utilisée pour quantifier les empreintes dans la matrice du système anti-Compton avec $\chi = 24$	48
6	Rapports signal sur bruit en fonction des dimensions de la ROI utilisée pour quantifier les empreintes dans la matrice du système anti-Compton avec $\chi = 14$	49
7	Coefficient d'étalonnage en coïncidence de ^{60}Co et incertitudes associées (u_{Ci} (k=2)) pour les 3 géométries de comptage (10, 17 et 60 mL)	51
8	Coefficients d'étalonnage de ^{60}Co et ^{88}Y en coïncidence simulés pour les trois géométries de comptage (10, 17 et 60 mL) et incertitudes associées (k=2).	54
9	Compositions chimiques des différents échantillons utilisées pour l'étude de l'atténuation avec les proportions massiques et les densités.	56
10	Liste des pics présents dans le spectre germanium classique d'une mesure de bruit de fond du système anti-Compton.	59
11	Caractéristiques des spectromètres germanium de type BEGe de Léda.	63
12	Constantes de réglage des détecteurs de Léda.	69
13	Différentes coïncidences possibles entre les lignes du fichier en mode liste lues par l'algorithme et nombre de lignes non utilisées et lues à l'étape de lecture suivante.	82
14	Fonctions d'étalonnage en énergie associées à chaque détecteur de Léda.	84
15	Taux de comptage pour les principaux pics présents dans le spectre "SommeGe" bruit de fond de Léda pour 4 configurations de mesure. Les couleurs mettent en avant des diminutions des taux de comptage (vert) ou des augmentations (rouge), pour mettre en avant les effets entre les différentes configurations.	97
16	Réactions nucléaires des neutrons tertiaires sur les détecteurs (germanium et NaI) du système, avec le type de réaction, le noyau cible, le noyau produit ainsi que l'énergie du photon γ émis.	98

Remerciements

Je tiens à remercier toutes les personnes qui ont contribué à ce travail de thèse. En premier lieu, je tiens à remercier la direction de l'IRSN, de m'avoir permis de réaliser cette thèse au sein de l'institut. Un grand merci à Marc Gleizes, chef du STEME, pour son accueil au sein du service. Je tiens également à remercier mon chef de laboratoire, Rodolfo, tant pour son accueil au sein du LMRE que pour son aide tout au long de mon travail. Je remercie Madame Marie-Christine Lépy et Monsieur José Busto d'avoir accepté d'être les rapporteurs de ma thèse. Un grand merci à Monsieur Guilhem Douysset, Monsieur Elias Khan et Monsieur Lionel Tenailleau pour leur participation à mon jury de thèse.

Je tiens à adresser mes plus sincères remerciements à ma tutrice, Anne, qui m'a apporté un encadrement exceptionnel durant ces trois années. J'ai pu acquérir des compétences techniques et rédactionnelles indispensables à mon travail. Sa grande disponibilité et son soutien permanent ont été pour moi d'une grande aide. Je remercie également mon directeur de thèse, Fabrice Piquemal, pour son encadrement. Nos nombreux échanges ont permis de faire avancer le projet dans la meilleure direction et toutes ses corrections judicieuses m'ont aidé à écrire ce mémoire. Merci à Xavier pour toute l'aide apportée aussi bien sur le plan technique que sur le plan théorique avec des discussions parfois animées mais toujours utiles.

Merci à Pedro Caldeiras pour son aide à la fabrication des portes échantillons à l'aide de l'imprimante 3D du SESURE. A toute l'équipe du LEI, j'adresse mes remerciements pour les nombreuses sources étalons spécifiques qu'ils ont pu me fournir pour mener à bien mon travail.

Bien entendu, je remercie tous les autres membres de l'équipe du LMRE pour cette ambiance de travail formidable. Tout d'abord le reste de l'équipe γ qui m'a très gentiment accueilli. Djamel, tu m'as également beaucoup aidé à installer Léda, notamment pour la partie électronique où tu es un expert. Florent, nous avons pu partager notre bureau durant ma première année de thèse et donc partager beaucoup de choses, merci. Pauline, tu as rejoint notre bureau par la suite et ta bonne humeur a toujours été des plus agréables. Sébastien, merci pour ton aide tout au long de ma thèse, tu m'as fait partager ta grande expérience en spectrométrie γ et m'a beaucoup apporté. Severine, nous nous sommes côtoyés à la fin de ma thèse et partager quelques footing le midi, merci pour ta bonne humeur quotidienne. Merci aux stagiaires γ , Jules et Pierrick, pour leur sympathie et l'aide que nous nous sommes apportés dans nos projets respectifs.

Enfin, le LMRE est également composé d'excellents chimistes, tant sur le plan humain que professionnel, merci à vous tous. Azza, nouveau docteur, fraîchement diplômée et qui a aussi eu le privilège d'effectuer sa thèse au LMRE. Outre les travaux que nous avons pu réaliser ensemble, je garderai un excellent souvenir de la thésarde la plus fun de l'IRSN. Merci à toi. Béatrice, toujours ouverte à la discussion, qu'elle soit professionnelle ou personnelle, je te remercie pour ta bonne humeur. Blaise, pour ta touche de folie et m'avoir converti au VTT, je te remercie! Un jour peut-être arriverai-je à te rattraper. Carole, j'ai une chose pour laquelle je veux te remercier, c'est ta bonne humeur quotidienne, à chaque fois que j'ai pu te croiser tu m'as donné le sourire. Catherine, merci pour tes conseils toujours judicieux, tu partages volontairement ta grande expérience, c'est une aide précieuse. Cédric, pas toujours en accord avec moi, mon interlocuteur sportif au laboratoire et mon référent pour le bricolage, un grand merci pour ta bonne humeur permanente. Marjorie, un grand merci à toi, ton « peps » est

une source de motivation. Nicolas, avec qui nous nous sommes creusés les méninges sur des scripts python mais également partager des balades à vélo, merci pour ton soutien. Sandrine, la voyageuse, qui m'aura fait rêver dans nos discussions sur le bout de monde, merci à toi. Vanessa, notre secrétaire toujours disponible et prête à donner son aide pour les tumultes administratifs, merci.

Enfin je tiens à remercier ma famille et mes amis pour leur soutien sans faille durant ces trois années. Mes parents, c'est à vous que je dois le plus grand merci, si j'ai pu réaliser ce travail c'est bel et bien car vous avez toujours été là quand j'en ai eu besoin et surtout, vous avez toujours cru en moi et ça a été ma plus grande motivation. Ma sœur, merci d'avoir été là pour moi, comme tu l'as toujours été d'ailleurs. Sarita, ma chère et tendre, je te remercie de m'avoir soutenu (supporté) pendant cette épreuve. Mes amis, Aurélien, Benjamin et tous les autres, je vous remercie pour votre présence, même si vous êtes loin parfois, et votre soutien absolu depuis que nous nous connaissons.

Introduction

Dans le cadre de la surveillance radiologique de l'environnement, qui est l'une de ses missions, l'Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire (IRSN) réalise des mesures de la radioactivité dans l'environnement. Au sein du Service de Traitement et de Mesure des Echantillons (STEME), le Laboratoire de Mesure de la Radioactivité dans l'Environnement (LMRE) effectue des mesures sur divers types d'échantillons. Différentes techniques de mesure sont employées, comme la spectrométrie α , la scintillation liquide, la spectrométrie de masse ou encore la spectrométrie γ . Cette dernière technique, basée sur l'étude des photons γ de désexcitation, est employée dans ce travail de thèse.

Le laboratoire de mesure de la radioactivité dans l'environnement possède une vingtaine de spectromètres germanium. La majorité est installée au second sous-sol du laboratoire, lequel est recouvert d'une dalle de béton boré de 3 m d'épaisseur. Trois sont également installés au laboratoire souterrain de Modane (LSM, CNRS/Université de Grenoble). Une salle blindée est également installée au sous-sol et neuf des détecteurs γ sont installés. Cette installation unique en France permet de réduire la radioactivité tellurique par un facteur 100 environ et le rayonnement cosmique par 3. C'est également dans cette salle qu'est installé le nouveau système de mesure développé au cours de la thèse.

Les mesures par spectrométrie γ sont réalisées en support à la surveillance de l'environnement et la recherche en radioécologie mais pourraient également être utilisées en cas d'accident nucléaire pour aider à l'identification et la quantification d'éventuels rejets.

La recherche en radioécologie et la surveillance de l'environnement nécessitent des mesures de très basse radioactivité car les échantillons contiennent des radionucléides artificiels en quantité souvent inférieures à la centaine de millibecquerel. A l'inverse, des spectres de mesures de filtres d'aérosols en cas de rejets accidentels contiendraient de nombreux radionucléides et seraient complexes à analyser, pourtant ils devraient l'être dans un temps le plus bref possible. Ces contraintes poussent le laboratoire à améliorer sans cesse ses limites de détection.

L'amélioration des limites de détection est directement liée à l'amélioration du rapport signal sur bruit. Les technologies actuelles permettent d'avoir des spectromètres germanium composés de matériaux sélectionnés pour leur radio-pureté ce qui conduit à une amélioration du bruit de fond des mesures. Jusqu'à ce jour, le laboratoire a travaillé à la diminution des différentes sources de bruit de fond comme le rayonnement cosmique à l'aide de systèmes anti-cosmique ou les descendants particulaires du radon à l'aide de balayage d'azote. Seul persiste le bruit de fond dû à l'échantillon lui-même, plus précisément aux divers fonds Compton des radionucléides présents dans l'échantillon.

En 1995, la mise en place du système anti-Compton et le pilotage par une électronique numérique en 2001, a permis d'abaisser le bruit de fond lié aux interactions Compton dans les détecteurs. Cependant, cette technique n'est utilisable que pour des émetteurs simples, qui ne sont pas ou très peu affectés par le phénomène de coïncidence. Les radionucléides dits émetteurs en coïncidence présentent des pertes de rendement et sont donc analysés sur la voie classique. C'est ainsi que les améliorations portent désormais sur la diminution du bruit de fond pour la mesure des émetteurs en coïncidence, notamment par le développement de la mesure en coïncidence.

Il a dans un premier temps été nécessaire de développer la méthode de mesure en coïncidence sur le système existant, le système anti-Compton avec le développement d'un algorithme et d'une méthode d'analyse des émetteurs en coïncidence. Cependant, la résolution du détecteur NaI n'est pas suffisante pour séparer tous les radionucléides du bruit de fond. Pour cette raison, un nouveau système de mesure en coïncidence, Léda, a été développé. Ce système a ensuite été installé et mis en service afin de dépasser les limites constatées sur le système anti-Compton.

Le premier chapitre expose le domaine de mesure, la radioactivité et le contexte des mesures. Il permet aussi de mettre en avant les différents moyens d'améliorer ces mesures. Le second chapitre quant à lui répertorie les méthodes utilisées et développées, avec les étapes d'analyse, le comptage, l'étalonnage, le calcul de l'activité et de limites caractéristiques avec leurs facteurs de correction associés. Un état de l'art de la mesure en coïncidence est également présenté. Pour terminer, les méthodes de simulation Monte Carlo, largement utilisées pour l'étalonnage en rendement sont détaillées.

Le troisième chapitre est consacré au travail sur le système anti-Compton. Le matériel et les électroniques sont présentés avant de détailler la méthode d'analyse, ensuite l'étalonnage à l'aide de source étalon et par simulation Monte Carlo sont développés. Pour terminer, une brève étude du bruit de fond permet de mettre en avant l'importante diminution du bruit de fond.

Le quatrième chapitre présente le nouveau système de mesure, Léda, ce système a été optimisé par simulation et installé dans la salle blindée du laboratoire. L'ensemble des détecteurs et l'électronique numérique employés (Pixie-4) permettent d'avoir différentes voies de mesure qui sont toutes expliquées et appliquées à un type de radionucléide. Comme pour le système anti-Compton, un modèle Monte Carlo a été développé pour réaliser un étalonnage numérique lorsqu'un radionucléide n'est pas disponible en source étalon. Enfin, une étude du bruit de fond est présentée et permet de connaître parfaitement notre système.

Pour terminer, le dernier chapitre, présente toutes les mesures d'échantillons réalisées avec les deux systèmes qui valident la méthode développée et son application sur les deux systèmes de mesure. Un exemple de mesure de filtre de prélèvement d'aérosols en cas d'accident est également présenté pour illustrer les mesures rapides possibles avec Léda. Enfin, quelques perspectives pour améliorer le système sont exposées.

Chapitre I

La mesure de la radioactivité dans l'environnement

Sommaire

1	La radioactivité et ses sources	2
1.1	Radioactivité naturelle	2
1.2	Radioactivité artificielle	4
1.2.1	Les retombées globales	4
1.2.2	Les rejets contrôlés	4
1.2.3	Les situations accidentelles	5
2	Les mesures au LMRE	6
2.1	Echantillons de l'environnement	6
2.2	Contexte des mesures	7
2.2.1	Surveillance radiologique de l'environnement	7
2.2.2	Radioécologie : étude de la radioactivité dans l'environnement	8
2.2.3	Situations incidentelles ou accidentelles	9
2.3	Amélioration des limites de détection	10
2.3.1	Augmentation du signal	10
2.3.2	Diminution du bruit de fond	10

1 La radioactivité et ses sources

La radioactivité fut découverte en 1896 par Henri Becquerel, qui constata que les sels d'uranium imprimaient une plaque photographique protégée de toute lumière. Cette expérience lui permit de mettre en avant que l'uranium émet un rayonnement spontané qu'il nomma « rayons uraniques ». Marie Curie, en 1898 découvrit que la pechblende, roche composée d'oxyde d'uranium, est émettrice de rayonnements en plus grande quantité que l'uranium seul. Elle en déduisit qu'elle contenait d'autres rayonnements plus actifs. Avec son mari Pierre Curie ils découvrirent deux nouveaux éléments : le polonium et le radium, Marie Curie donna le nom de "radioactivité" à ce phénomène physique.

La radioactivité est la désintégration d'un élément père instable vers un élément fils en émettant de l'énergie sous forme de rayonnement. L'activité d'un matériau radioactif est le nombre de désintégrations par seconde, exprimée en Becquerel (Bq), 1 Bq correspond à une désintégration par seconde. Elle se calcule à partir du nombre de noyaux radioactifs et de la période du radionucléide (1). La période radioactive est le temps nécessaire pour que le nombre de noyaux initiaux (N) soit divisé par deux.

$$A = \lambda N = \frac{\ln(2)}{T_{\frac{1}{2}}} N \quad [Bq] \quad (1)$$

Avec :

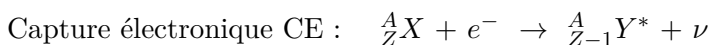
A : activité d'un radionucléide [Bq]

λ : constante radioactive [s^{-1}]

N : nombre de noyaux radioactifs

$T_{\frac{1}{2}}$: période du radionucléide [s]

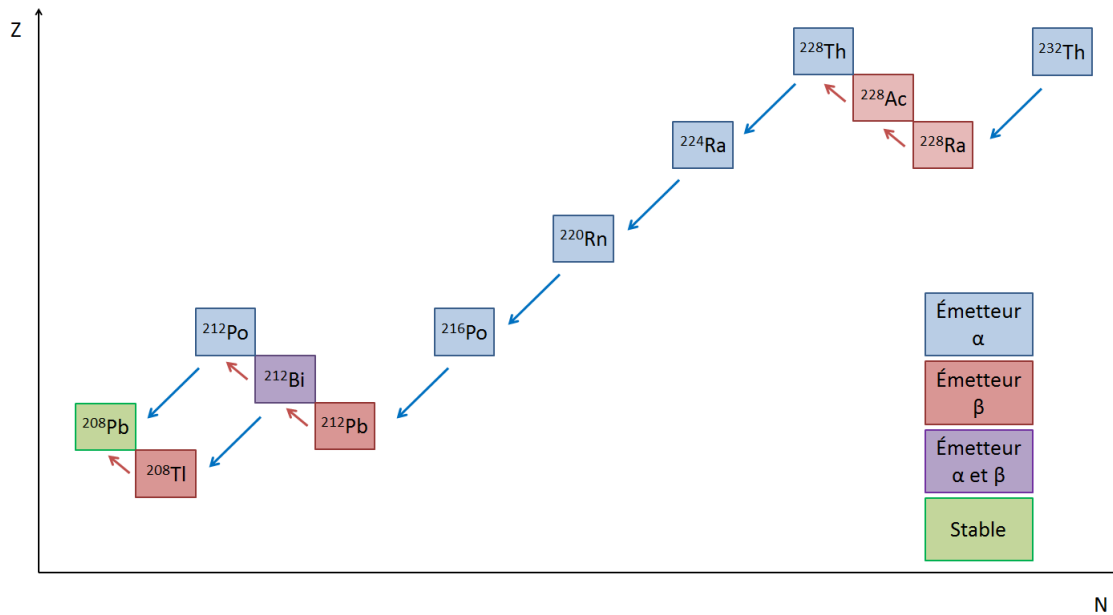
On distingue principalement quatre types de désintégrations : la désintégration α , la désintégration β^- , la désintégration β^+ et la capture électronique (CE). Les désintégrations pour un noyau père noté X, de charge Z et de masse A donnant un noyau fils Y sont de la forme :



Dans la majorité des cas, le noyau fils est produit dans un état excité, Y^* et se désexcite vers son état fondamental. Cette transition peut se faire sous forme radiative avec l'émission d'un photon γ ou bien par conversion interne avec émission d'un électron et de photons X due au réarrangement du cortège électronique. Le réarrangement peut également engendrer l'émission d'électrons Auger. Une capture électronique, phénomène concurrent de la désintégration β^+ , va absorber un électron du cortège électronique et ainsi engendrer un réarrangement et des émissions de photons X ou d'électrons Auger.

1.1 Radioactivité naturelle

La radioactivité naturelle présente deux composantes principales : tellurique et cosmique. La radioactivité naturelle terrestre est issue des trois familles radioactives naturelles dont les radionucléides sont en filiation, celle de ${}^{232}\text{Th}$ (figure 1), de ${}^{235}\text{U}$ et de ${}^{238}\text{U}$ (figures en annexe). On retrouve également ces différents radionucléides dans les autres compartiments comme les eaux ou l'air et même dans le corps humain suite à l'ingestion de denrées alimentaires.

Figure 1 – Chaîne de désintégration de ^{232}Th .

On peut voir dans la chaîne de désintégration du ^{232}Th (figure 1) qu'il y a des émetteurs α et β . Dans toutes les mesures nucléaires réalisées, on note la présence de traces de ces radionucléides naturels.

Le radon est un gaz radioactif qui possède trois isotopes dans chaque famille radioactive naturelle : ^{219}Rn (^{235}U), ^{220}Rn (^{232}Th) et ^{222}Rn (^{238}U). ^{222}Rn , descendant de la famille de ^{238}U est présent en grande quantité dans l'atmosphère de par la forte proportion de sa famille radioactive et de sa période (3.82 jours) assez longue pour permettre sa migration dans l'environnement. Sa décroissance engendre des descendants radioactifs. Son accumulation dans des atmosphères confinées en fait l'élément radioactif naturel le plus dosant pour la population et augmente le risque de cancer du poumon.

Enfin, ^{40}K est un isotope radioactif du potassium présent dans les matrices biologiques et aussi dans le sol. Il existe quatre autres émetteurs radioactifs naturels à longue durée de vie, supérieure à 10^{10} ans, par exemple ^{87}Rb , ^{176}Lu et ^{187}Re .

La radioactivité naturelle a toujours existé à un niveau globalement constant au cours des siècles passés, cependant, il existe des augmentations de concentration de radioactivité naturelle, que l'on appelle radioactivité renforcée (EPA [21]). Certains phénomènes naturels conduisent à des augmentations de concentration de radioactivité naturelle dans les matériaux appelés NORM (Naturally Occuring Radioactive Materials). L'activité humaine a également conduit à des concentrations élevées de radioactivité naturelle, c'est ce que l'on nomme les TENORM (Technologically Enhanced Naturally Occuring Radioactive Materials). Par exemple, l'industrie, avec des procédés de séparation ou l'extraction de minerais conduit à la concentration de la radioactivité naturelle sur certains sites.

La radioactivité naturelle cosmique est un flux de rayonnements venant du cosmos. Les rayonnements cosmiques furent découverts en 1912 par Victor Hess. Le rayonnement primaire vient de l'univers et est essentiellement composé de protons (90 %) et de noyaux d'hélium (9 %), venant du soleil. Ce rayonnement primaire traverse l'atmosphère, il entre en collision avec les atomes de l'atmosphère (12-15 km) et engendre une gerbe de particules secondaires (Heusser [28]), appelée rayonnement cosmique secondaire. Ce rayonnement est composé à la surface de la mer de 80 % de photons γ , 18 % d'électron/positon, 1.7 % de muons et 0.3 % de hadrons. Le passage des rayonnements cosmiques dans l'atmosphère crée des réactions nucléaires avec des éléments de l'atmosphère et engendre des

isotopes radioactifs. On retrouve principalement ^3H , ^{14}C , ^7Be et ^{22}Na . Ces radionucléides et le rayonnement cosmique secondaire, tout comme la radioactivité terrestre seront détectés dans les mesures de radioactivité.

1.2 Radioactivité artificielle

La radioactivité artificielle est produite par l'activité humaine, on la nomme aussi radioactivité anthropogénique.

1.2.1 Les retombées globales

Les retombées globales regroupent les essais atmosphériques d'armes nucléaires et les accidents ayant engendré d'importants rejets de radioactivité dans l'environnement. Les essais nucléaires militaires ont conduit à l'apparition dans l'environnement à l'échelle mondiale de nombreux radionucléides, surtout des produits d'activation et de fission ainsi que des radionucléides transuraniens. Aujourd'hui on retrouve essentiellement ^{137}Cs comme émetteur γ dans l'environnement dû aux essais militaires. Les accidents nucléaires atmosphériques ont aussi contribué à l'apparition de la radioactivité artificielle dans l'environnement, le plus important est l'accident de Tchernobyl, dont les rejets de ^{137}Cs sont encore aujourd'hui mesurables sur tout le territoire français.

1.2.2 Les rejets contrôlés

En fonctionnement normal, les installations nucléaires de base (INB) rejettent des radio-isotopes sous trois formes : rejets gazeux, rejets liquides et rejets diffus. Les principaux radioéléments rejetés sont : ^3H , ^{14}C , les isotopes de l'iode, des gaz rares et quelques produits d'activation et de fission. Ces derniers sont principalement : ^{58}Co , ^{137}Cs , ^{134}Cs , ^{54}Mn , ^{124}Sb , ^{125}Sb , ^{60}Co , ^{108m}Ag , ^{110m}Ag . Le tableau 1 regroupe les proportions de radionucléides émetteurs γ qui peuvent être rejetés par un réacteur de 900 MWe, pour lequel l'autorisation annuelle de rejet est de 0.6 GBq.

Radionucléide (émetteur γ)	Proportion (%)
^{58}Co	35
^{110m}Ag	26
^{60}Co	16
^{124}Sb	6
^{125}Sb	4
^{137}Cs	4
^{123m}Te	3
^{54}Mn	2
^{134}Cs	1
^{131}I	1
Autres émetteurs γ	2

Tableau 1 – Liste des radionucléides rejetés (hors ^{14}C , ^3H , gazes rares et émetteurs β purs) par un réacteur de 900 MWe (Florence [23]) et proportions associées.

Certains de ces radionucléides sont également rejetés lors du démantèlement des INB ou du retraitement des déchets de combustibles usés, auxquels il faut ajouter des rejets de radionucléides transuraniens.

Dans le domaine médical, la médecine nucléaire est le principal contributeur de rejets dans l'environnement du fait de l'utilisation de sources liquides. On retrouve essentiellement des émetteurs à courte durée de vie dont la dispersion dans l'environnement est brève. La médecine nucléaire, pour le diagnostic, utilise par exemple ^{99m}Tc ($T=6$ h), ^{201}Tl ($T=3$ j) ou ^{123}I ($T=13$ h) pour réaliser des scintigraphies ou encore le ^{18}F ($T=2$ h) lors des examens de Tomographie par Emissions de Positons (TEP). Tous sont directement des émetteurs γ ou indirectement par création de paire e^+/e^- (^{18}F émet deux photons γ de 511 keV suite à l'annihilation du positon avec un électron du milieu). La curiethérapie, à but curatif, utilise des émetteurs à durée de vie plus longue, on retrouve par exemple : ^{137}Cs , ^{60}Co , ^{192}Ir , ^{125}I , ^{103}Pd ou encore ^{106}Rh , mais les sources sont sous forme solide et leur dispersion est moins probable.

1.2.3 Les situations accidentelles

Dans le cas d'un accident sur un réacteur nucléaire, un panel assez large de radionucléides est susceptible d'être rejeté dans l'environnement, panel dépendant du type d'accident. Les principaux radionucléides rejetés (IRSN [29]) sont répertoriés dans le tableau 2. Il s'agit essentiellement de produits de fission et d'activation. Certains comme ^{131}I ont un impact dosimétrique très important et devraient donc être quantifiés rapidement pour en limiter l'impact sur les populations proches de l'accident.

Radionucléide	Rayonnements dominants	Période
^{144}Ce	β, γ	285 jours
^{137}Cs	β, γ	30 ans
^{129}I	β, γ	$1.6 \cdot 10^7$ ans
^{131}I	β, γ	8.02 jours
^{85}Kr	β, γ	10.8 ans
^{103}Ru	β, γ	39.26 ans
^{106}Ru	β, γ	372.6 jours
^{89}Sr	β, γ	50.6 jours
^{90}Sr	β	28.8 ans
^{133}Xe	β, γ	5.2 jours
^{95}Zr	β, γ	64 jours
^{110m}Ag	β, γ	250 jours
^{133}Ba	β, γ	10.54 ans
^{58}Co	β, γ	70.8 jours
^{60}Co	β, γ	5.27 ans
^{134}Cs	β, γ	2.07 ans
^{55}Fe	β, γ	2.7 ans
^3H	β, γ	12.3 ans
^{54}Mn	β, γ	312 jours
^{65}Zn	β, γ	244 jours

Tableau 2 – Liste des produits de fission (bleu) et des produits d'activation (orange), principalement rejetés en cas d'accident d'une centrale nucléaire (IRSN [29]).

Un accident dans le transport des radionucléides médicaux pourrait engendrer une contamination dans l'environnement. Mais comme précisé plus haut, les émetteurs employés en médecine nucléaire ont des durées de vies courtes et leur présence serait restreinte dans l'environnement. Enfin, la curiethérapie utilise des sources scellées généralement solides et peuvent donc difficilement se disperser dans l'environnement.

2 Les mesures au LMRE

2.1 Echantillons de l'environnement

Le LMRE réalise des mesures de radioactivité sur des échantillons environnementaux. Différentes techniques de mesure sont employées en fonction des émissions des radionucléides recherchés (chapitre I, § 1). Par exemple, des radionucléides émetteurs α seront mesurés par spectrométrie α et des émetteurs β par scintillation liquide ou compteur proportionnel. Ces techniques ont l'inconvénient de nécessiter une étape de radiochimie sur l'échantillon préalablement à la mesure pour isoler les émetteurs d'intérêt. Une autre technique, que nous utiliserons tout au long de ce travail, est la spectrométrie γ . C'est une technique rapide, non destructive et multi-élémentaire qui, la plupart du temps, ne nécessite pas de réaliser une radiochimie sur l'échantillon. Cette technique sera détaillée dans le chapitre II. Les échantillons mesurés au laboratoire sont prélevés dans différents compartiments de l'environnement. Les aérosols du compartiment atmosphérique sont prélevés sur des filtres qui seront compressés avant la mesure. Le compartiment terrestre fournit des matrices biologiques (végétaux, viande, lait par exemple) ou des sols. Enfin des matrices biologiques sont collectées dans le compartiment marin, comme des mollusques ou des algues. Les échantillons solides peuvent être séchés ou réduits en cendre. Ces échantillons sont ensuite broyés, tamisés et homogénéisés avant d'être conditionnés dans les géométries de comptage. Les géométries (figure 2) varient de 10 mL pour les filtres d'aérosols à 500 mL pour les liquides ; des tubes de 12 mL sont également utilisés pour les très faibles quantités mesurées avec des détecteurs de type puits.

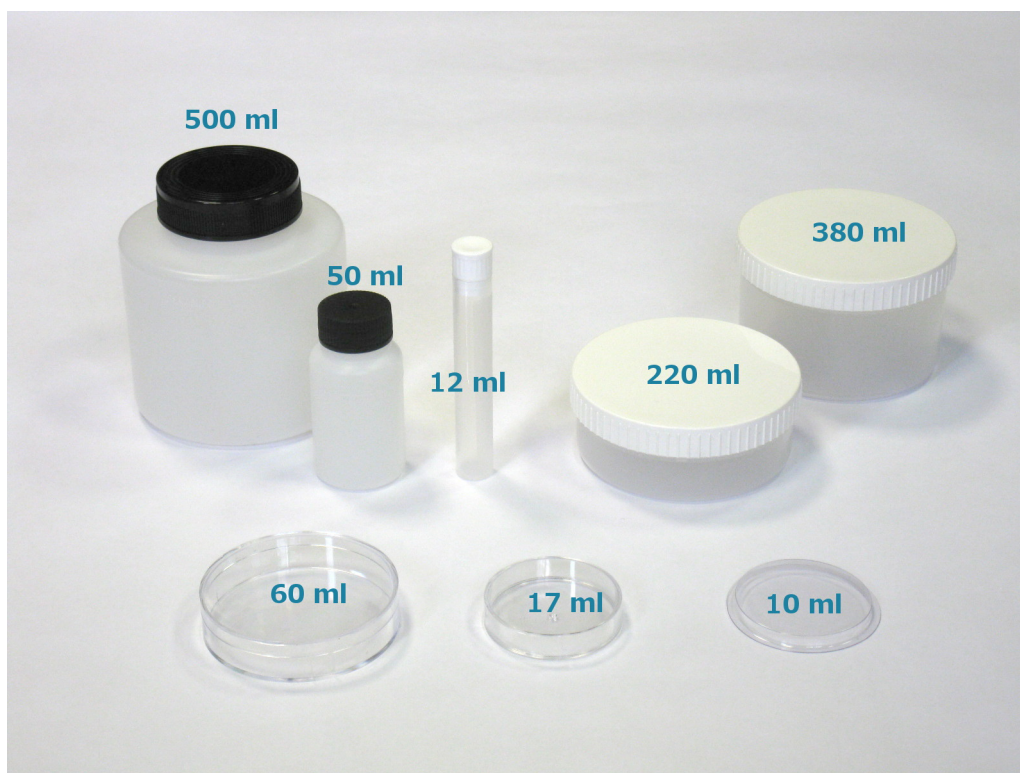


Figure 2 – Géométries de comptage utilisées au laboratoire, pour les matrices liquides (50 et 500 mL), pour les matrices solides (17, 60, 220 et 380 mL), 10 mL pour les filtres d'aérosols et tubes 12 mL pour les détecteurs de type puits.

2.2 Contexte des mesures

2.2.1 Surveillance radiologique de l'environnement

La surveillance de l'environnement impose de connaître le niveau de base de la radioactivité dans l'environnement afin de pouvoir déceler et identifier des variations. La figure 3 représente l'évolution des activités volumiques de ^{137}Cs et ^7Be (radionucléide cosmogénique naturel) dans les filtres de prélèvement d'aérosols des stations à très grand débit (TGD) dans le cadre du réseau OPERA-Air (Observatoire PÉrenne de le Radioactivité) qui est un référentiel national hors influence directe des installations nucléaires.

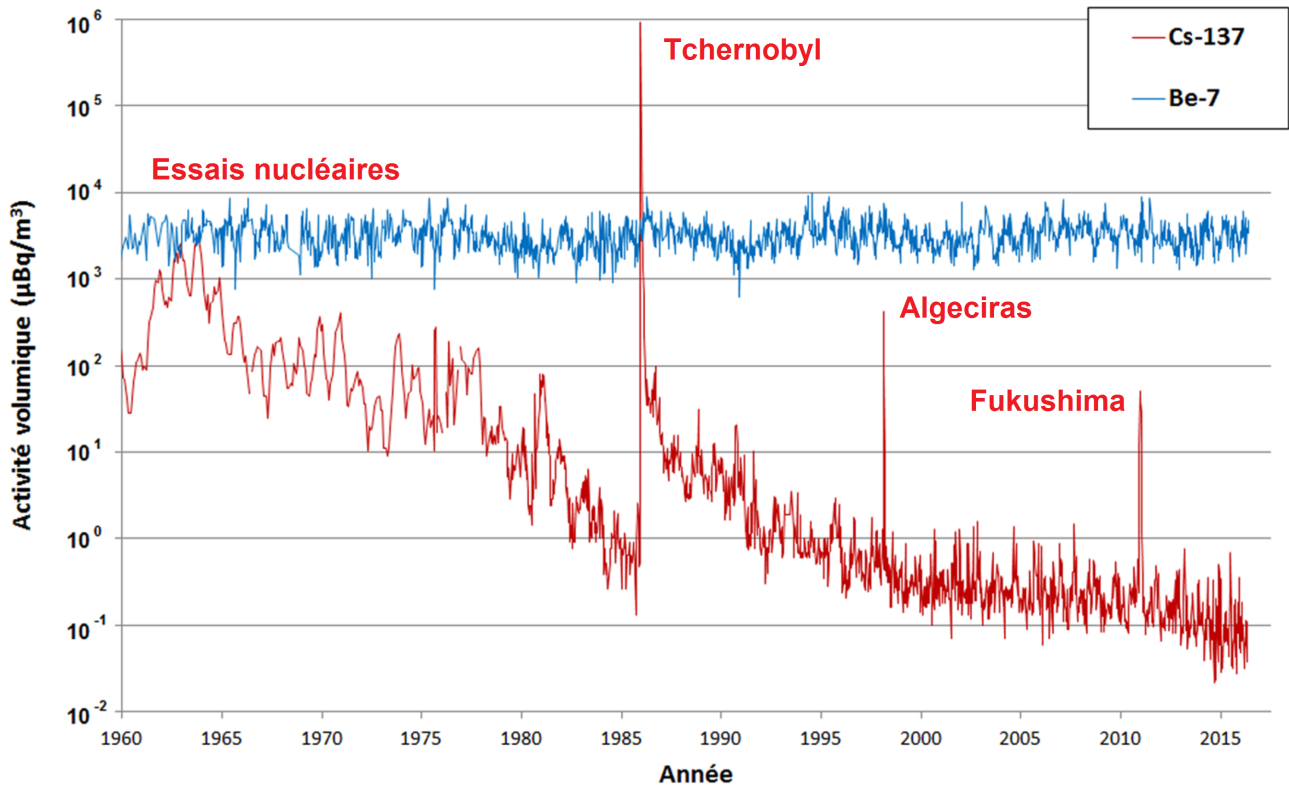


Figure 3 – Chronique des concentrations moyennes de ^{137}Cs en rouge et ^7Be en bleu dans les aérosols atmosphériques du territoire français (IRSN/PRP-ENV/SESURE/LERCM – Cadarache).

Le suivi de la radioactivité dans les aérosols atmosphériques a débuté en 1959 pour surveiller les essais nucléaires militaires. Les premiers essais nucléaires ont eu lieu en 1945 et une grande partie des tirs ont été effectués jusqu'en 1970 ce qui explique de fortes concentrations jusqu'à cette période, avec un maximum en 1963. Le dernier a eu lieu le 18 octobre 1980 en Chine, il s'en est suivi une décroissance des concentrations de ^{137}Cs avec un point le plus bas en 1985. Suite à l'arrêt des essais atmosphériques, la surveillance a continué dans le cadre de radioprotection de la population.

En 1986, l'accident de Tchernobyl engendra un pic de concentration de ^{137}Cs . Les niveaux post-accidentels en France sont augmentés de deux ordres de grandeurs par rapport à ceux présents avant l'accident. Ensuite, la décroissance continua en suivant une période qui tient compte de la décroissance radioactive, du dépôt, de l'absorption dans les sols et du stockage dans la haute atmosphère (Renaud et al. [44]). Depuis les années 2000, les concentrations se stabilisent car la remise en suspension des sols (érosion, vents, agriculture) réalimente les aérosols atmosphériques. Les feux de biomasses des régions fortement contaminées en ^{137}Cs par l'accident de Tchernobyl conduisent aussi à l'alimentation des aérosols atmosphériques. La décroissance des concentrations de ^{137}Cs suit une période de 30 ans qui est la période radioactive de ce radionucléide. Deux autres accidents engendrèrent des brèves élévations de concentration, Algeriras et Fukushima, mais ils furent suivis d'un retour très rapide à niveaux de concentrations présents avant l'accident. En effet, aujourd'hui les niveaux de ^{137}Cs sont

de l'ordre $0.1 \mu\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$, soit autour de 10 mBq mesurés dans le filtre. Le suivi des concentrations a désormais pour but la surveillance de l'environnement car elles ne présentent plus de risque sanitaire pour les populations françaises. Ces valeurs sont proches des limites de détection des systèmes usuels de mesure.

2.2.2 Radioécologie : étude de la radioactivité dans l'environnement

Les mesures par spectrométrie γ sont un appui à la recherche en radioécologie grâce aux très bas niveaux de radioactivité qu'elles permettent de mesurer. La radioécologie est l'étude du transfert de la radioactivité dans les milieux naturels : transfert d'un compartiment de l'environnement à un autre (de l'atmosphère, du terrestre et du marin), transfert d'un milieu à un organisme (de l'eau aux moules ; du sol aux plantes) ou encore le transfert d'un organisme à un autre (de l'herbe à la viande ou au lait).

La mesure de ^{60}Co dans des échantillons prélevés aux alentours de l'usine de retraitement des combustibles nucléaires usés d'AREVA la Hague permet de réaliser le suivi du transfert de la radioactivité d'un milieu vers un organisme, à savoir, le transfert de l'eau de mer aux algues ou aux mollusques.

La Figure 4 représente l'évolution des activités massiques de ^{60}Co dans les mollusques de la Manche. Il est important de rappeler que les niveaux maximum admissibles en radioactivité dans les denrées alimentaires pour les nourrissons sont de $400 \text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ pour le ^{60}Co et $1250 \text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ pour les autres denrées (Union-Européenne [49]). Les niveaux actuels sont de l'ordre de $0.1 \text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$, ce qui correspond à quelques millibecquerel dans l'échantillon. Ces faibles activités nécessitent à une amélioration continue des moyens de mesure pour continuer à tracer des rejets de plus en plus faibles.

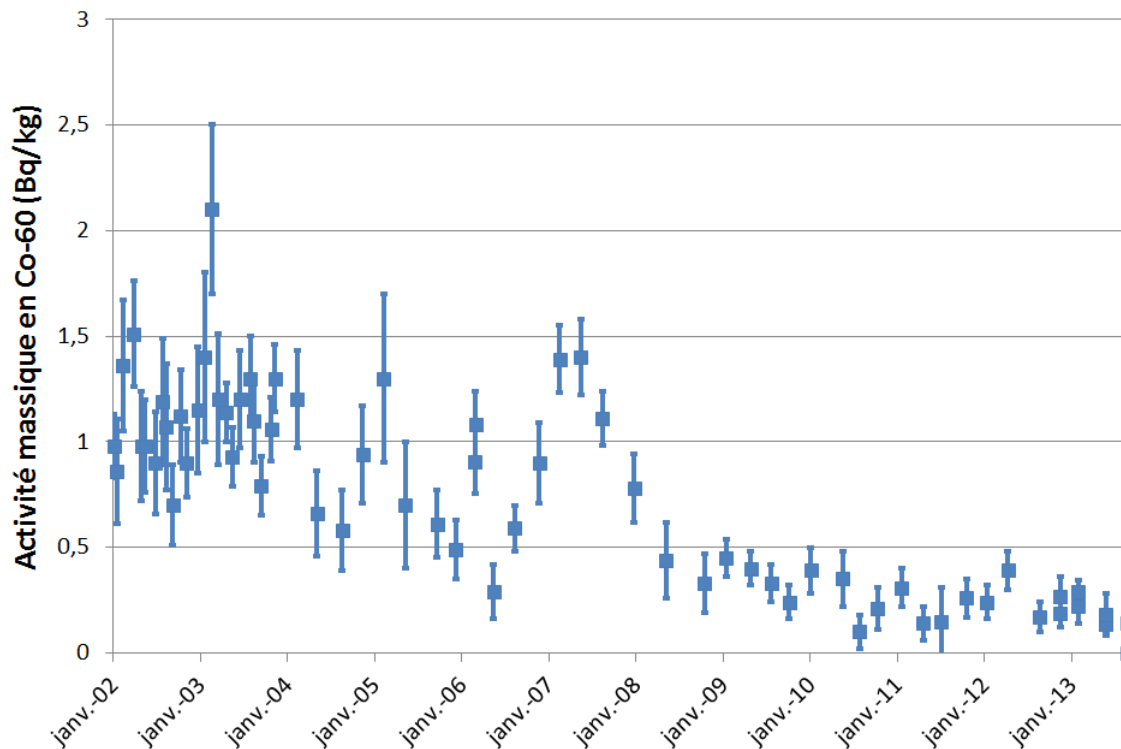


Figure 4 – Chronique des activités massiques de ^{60}Co dans les mollusques de la Manche prélevés autour de l'usine de retraitement d'AREVA la Hague (IRSN/PRP-ENV/SERIS/LRC).

Un autre but de la radioécologie est le développement et la validation de modèles de dispersion de la radioactivité dans l'environnement ; ces modèles peuvent être prédictifs ou explicatifs et sont validés à l'aide de mesures de faibles activités de radionucléides artificiels dispersés dans l'environnement. Les rejets du Rhône dans le Méditerranée (figure 5) ou ceux de la Hague dans la Manche sont par exemple d'excellents traceurs. Il est à noter que les activités massiques sont inférieures à $1 \text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$

et s'approchent de $0.1 \text{ Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ comme pour les mollusques de la Manche.

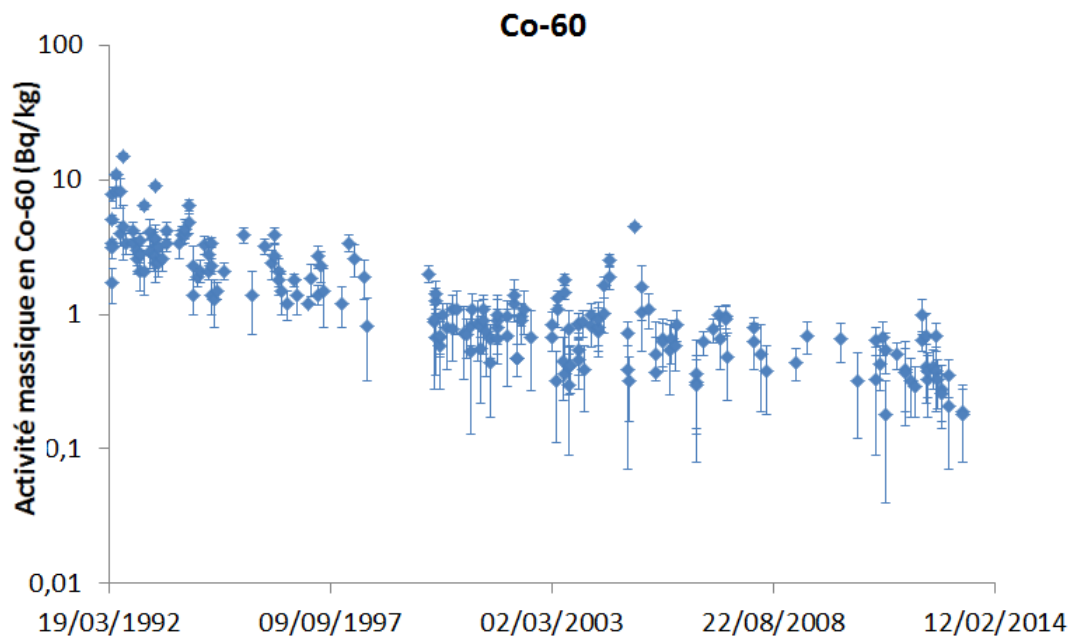


Figure 5 – Chronique des activités massiques de ^{60}Co dans les mollusques de Méditerranée autour de l'embouchure du Rhône (IRSN/PRP-ENV/SESURE/LERCM-La Seyne).

Dans les deux exemples, les concentrations sont très faibles et proches des limites de détection des systèmes usuels du laboratoire. Elles nécessitent donc une amélioration des moyens de mesures. Les réductions de ces concentrations sont dues aux rejets de plus en plus restreints des différentes installations nucléaires. Cette baisse des rejets radioactifs est due aux améliorations apportées aux différentes étapes de filtrages des divers rejets des installations nucléaires afin de réduire leur impact sur l'environnement.

2.2.3 Situations incidentelles ou accidentelles

Il n'est pas toujours nécessaire de mesurer la radioactivité à bas niveau. En cas d'accident ou d'incident, il faut être capable de produire des résultats rapidement. La mesure à bas niveau de la radioactivité sera toujours utilisée pour déceler et quantifier un rejet lointain ou déceler un incident proche mais de faible ampleur. Mais en cas d'accident proche avec rejet, des quantifications seront nécessaires dans les plus brefs délais car la protection de la population pourra être mise en jeu. L'air étant le premier vecteur de contamination radioactive, la mesure des aérosols à proximité du lieu de l'accident est un moyen de quantifier rapidement les rejets.

De plus, les mesures de ces filtres aérosols permettront d'aider à la caractérisation du terme source. Une mesure fine, avec une connaissance précise des radionucléides et de leurs proportions à des lieux donnés sera une aide majeure pour quantifier le terme source et valider les modèles de dispersion atmosphérique. Les aérosols sont collectés à l'aide de filtres, mais ces filtres vont également collecter les descendants particuliers du radon qui rendront difficile l'identification et la quantification des radionucléides liés au rejet accidentel. C'est pourquoi, en routine, les filtres sont conservés au minimum quatre jours avant d'être mesurés pour laisser décroître les descendants particuliers du radon. De plus, une mesure de routine de filtre dure entre deux et trois jours, délai inenvisageable dans une situation d'urgence. Enfin, un plus grand nombre de filtres sera amené à être mesuré et il sera nécessaire de répondre à un fort afflux. En cas de crise, ces multiples délais ne pourront être respectés compte tenu de la rapidité de la réponse attendue et du nombre important de filtres à mesurer.

2.3 Amélioration des limites de détection

Tous ces points mettent en avant le besoin d'améliorer les limites de détection ou le temps de mesure. Il est à noter que l'amélioration du temps de comptage et des limites de détection sont liés (2).

$$LD \propto \frac{\sqrt{n_b R}}{t \sqrt{\varepsilon}} \quad (2)$$

Avec :

LD : limite de détection

n_b : nombre d'événements de bruit de fond par unité d'énergie

R : résolution en énergie

t : temps de mesure

ε : rendement de détection

Diminuer les limites de détection revient à augmenter le temps de comptage et/ou augmenter le rendement et/ou diminuer le bruit de fond et/ou améliorer la résolution en énergie. Si le bruit de fond est diminué, une mesure avec la même durée aura une meilleure limite de détection. Ce qui veut aussi dire que si le bruit de fond est amélioré, le temps de mesure nécessaire pour atteindre les mêmes limites de détection sera plus court. Afin de répondre au besoin de mesure au niveau de trace pour la surveillance de l'environnement et la recherche en radioécologie, ainsi qu'au besoin de mesures rapides en cas de crise, le laboratoire améliore ses moyens et méthodes de mesure. En spectrométrie γ , l'amélioration porte sur le rapport signal sur bruit. Augmenter ce rapport revient à augmenter le signal et/ou diminuer le bruit de fond.

2.3.1 Augmentation du signal

Tout d'abord, l'augmentation du signal peut se faire grâce à des temps de mesure plus longs si la période du radionucléide le permet, en augmentant la masse d'échantillon mesurée ou en augmentant le rendement de détection. Les temps de comptage sont d'une journée à une semaine pour les plus longs. Pour des mesures environnementales, il n'est pas envisageable, sauf cas exceptionnels, de mesurer au-delà d'une semaine.

Les géométries de comptage sont limitées en volume, allant de quelques millilitres à un demi-litre, mais la plupart du temps c'est la faible quantité prélevée et préparée qui impose la géométrie. Pour certains échantillons disponibles en grande quantité, ils peuvent être réduits en cendres ou séchés afin de les concentrer. L'utilisation d'une plus petite géométrie de comptage augmentera le rendement de détection. Celle-ci peut également être améliorée en utilisant des détecteurs avec un plus grand volume actif ou des matériaux avec une plus grande probabilité d'interaction.

2.3.2 Diminution du bruit de fond

L'amélioration du rapport signal sur bruit passe aussi par une diminution du fond. Ce dernier peut avoir plusieurs origines : bruit intrinsèque du détecteur, rayonnement tellurique, radon, rayonnement cosmique, fond continu Compton de l'échantillon.

- Le bruit intrinsèque du détecteur est amélioré avec l'emploi de matériaux bas bruit, c'est-à-dire sélectionnés pour leur faible radioactivité.
- Le rayonnement tellurique est diminué à l'aide de blindages, généralement en plomb bas bruit, c'est-à-dire avec une faible concentration de ^{210}Pb , afin de limiter leur radioactivité intrinsèque. Un blindage de 10 cm de plomb diminue d'un facteur 100 le bruit de fond dû à la radioactivité tellurique.

- Les descendants particuliers du radon engendrent de multiples photons γ qui viennent peupler les spectres. Pour diminuer et stabiliser leurs quantités, les locaux sont équipés d'un système de renouvellement d'air et les systèmes de détection d'un balayage d'azote à l'intérieur du blindage. L'azote gazeux va créer une légère surpression à l'intérieur du blindage et limiter l'apport de l'air ambiant contenant du radon.
- Le rayonnement cosmique est diminué en utilisant des laboratoires souterrains ou semi-enterrés. Le bruit de fond engendré par le rayonnement cosmique peut également être diminué en utilisant des systèmes anti-cosmiques basés par exemple sur l'utilisation de scintillateurs plastiques en veto.
- Enfin, l'échantillon lui-même contient des radionucléides naturels qui vont peupler le spectre de multiples pics ainsi que de leur fond Compton associé. Une méthode pour diminuer ce fond Compton est l'utilisation de scintillateurs en veto.

Toutes les méthodes de réduction du bruit sont utilisées et optimisées au laboratoire, cependant, certaines montrent leurs limites. Les blindages sont faits de plomb de faible activité et peuvent difficilement être améliorés. Un balayage d'azote permet une diminution significative de la concentration en radon. Aujourd'hui la part la plus importante dans le bruit de fond des spectres est due au rayonnement cosmique et au fond Compton de l'échantillon. Les systèmes anti-cosmique abaissent le fond cosmique d'un facteur 5 et sont employés sur 6 détecteurs. Le laboratoire possède un système anti-Compton, utilisable pour une partie des émetteurs γ , mais qui ne peut pas être utilisé pour les émetteurs dits en coïncidence.

C'est pour répondre au besoin de mesure niveau trace pour la surveillance de l'environnement et la recherche en radioécologie, ou encore en cas de crise, que le laboratoire travaille au développement de la spectrométrie γ en coïncidence. La première partie du travail a été de développer la méthode sur le système anti-Compton du laboratoire et la seconde de mettre en place un nouveau système de mesure complet utilisant la spectrométrie γ en coïncidence et en anti-coïncidence. Le travail sur le système anti-Compton est détaillé dans le chapitre III, la modélisation et l'installation du nouveau système sont expliquées dans le chapitre IV et le chapitre V discute de la méthode et des résultats obtenus avec l'anti-Compton et surtout le nouveau système.

Chapitre II

Mesures par spectrométrie γ en coïncidence

Sommaire

1	Interactions photon-matière	14
2	La spectrométrie γ classique	16
2.1	Les différents types de détecteurs	16
2.1.1	Les scintillateurs	16
2.1.2	Les semi-conducteurs	16
2.2	L'électronique d'acquisition	18
2.2.1	Electronique analogique	18
2.2.2	Electronique numérique	18
2.2.3	Le spectre γ obtenu	20
3	Utilisation des coïncidences en spectrométrie γ	20
3.1	La mesure en anti-coïncidence	20
3.2	La mesure en coïncidence	22
3.2.1	Principe	22
3.2.2	Radionucléides concernés	24
3.2.3	Etat de l'art	26
3.2.4	Electronique associée	27
4	Analyse	28
4.1	Statistique de Poisson	28
4.2	Calcul de l'activité et des limites caractéristiques	30
4.2.1	Spectrométrie γ classique	31
4.2.2	Spectrométrie γ en coïncidence	32
5	Etalonnage en rendement	34
5.1	Méthodes d'étalonnage utilisées	34
5.1.1	Etalonnage à l'aide de sources étalons	34
5.1.2	Etalonnage par simulation Monte Carlo	35
5.2	Calcul des coefficients d'étalonnage	35
5.2.1	Spectrométrie γ classique	35
5.2.2	Spectrométrie γ en coïncidence	36
6	Corrections appliquées à l'activité	36
6.1	Corrections de décroissance	36
6.2	Corrections d'auto atténuation	37
6.3	Corrections de coïncidence	37
7	La simulation Monte Carlo en spectrométrie γ	38

1 Interactions photon-matière

Il est important de rappeler quelques bases sur l'émission des photons et les interactions de ces rayonnements avec la matière. Les photons γ sont d'origine nucléaire, ils sont émis lors de la désexcitation d'un noyau et leurs énergies sont comprises dans une gamme allant de quelques eV à quelques MeV. Les photons X sont eux émis lors de la désexcitation d'un atome et leur gamme d'énergie est plus restreinte, dépassant rarement la centaine de keV. Ces rayonnements peuvent interagir principalement par trois effets : l'effet photoélectrique, l'effet Compton et la création de paire e^+/e^- .

- Effet photoélectrique : le photon cède toute son énergie à la matière en la transmettant à un électron du milieu (figure 6).
- Effet Compton : le photon diffuse sur un électron libre du milieu et lui cède une partie de son énergie (figure 7).
- Création de paire e^+/e^- : le photon va créer un électron et son antiparticule un positon. Cette réaction ne peut avoir lieu qu'avec des photons d'énergie supérieure à 1022 keV et dans le champ d'une particule chargée, la plupart du temps un noyau. Le positon va perdre de l'énergie puis s'annihiler avec un électron du milieu en donnant deux photons γ de 511 keV chacun (figure 8).

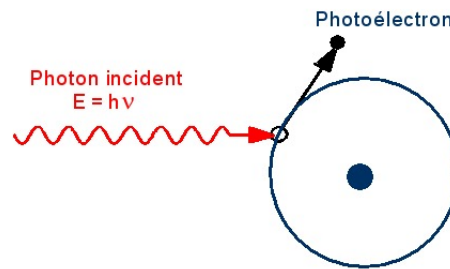


Figure 6 – Schéma de l'effet photoélectrique (CEA-LNHB [13]).

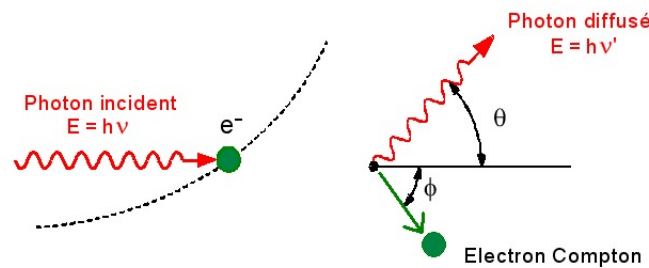


Figure 7 – Schéma de l'effet Compton (CEA-LNHB [13]).

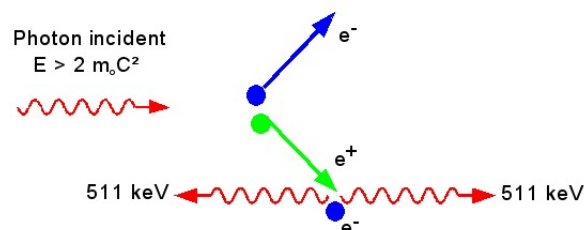


Figure 8 – Schéma de la création de paire e^+/e^- (CEA-LNHB [13]).

La figure 9 représente le coefficient d'atténuation massique μ/ρ en $\text{cm}^2 \cdot \text{g}^{-1}$ en fonction de l'énergie des photons pour le matériau germanium, avec les contributions des différents types d'interaction. On constate qu'à basse énergie, le phénomène prépondérant est l'effet photoélectrique. A partir de 800 keV, c'est l'effet Compton qui devient prédominant, jusqu'à une énergie de 2 MeV à partir de laquelle l'interaction la plus probable est la création de paire e^+/e^- .

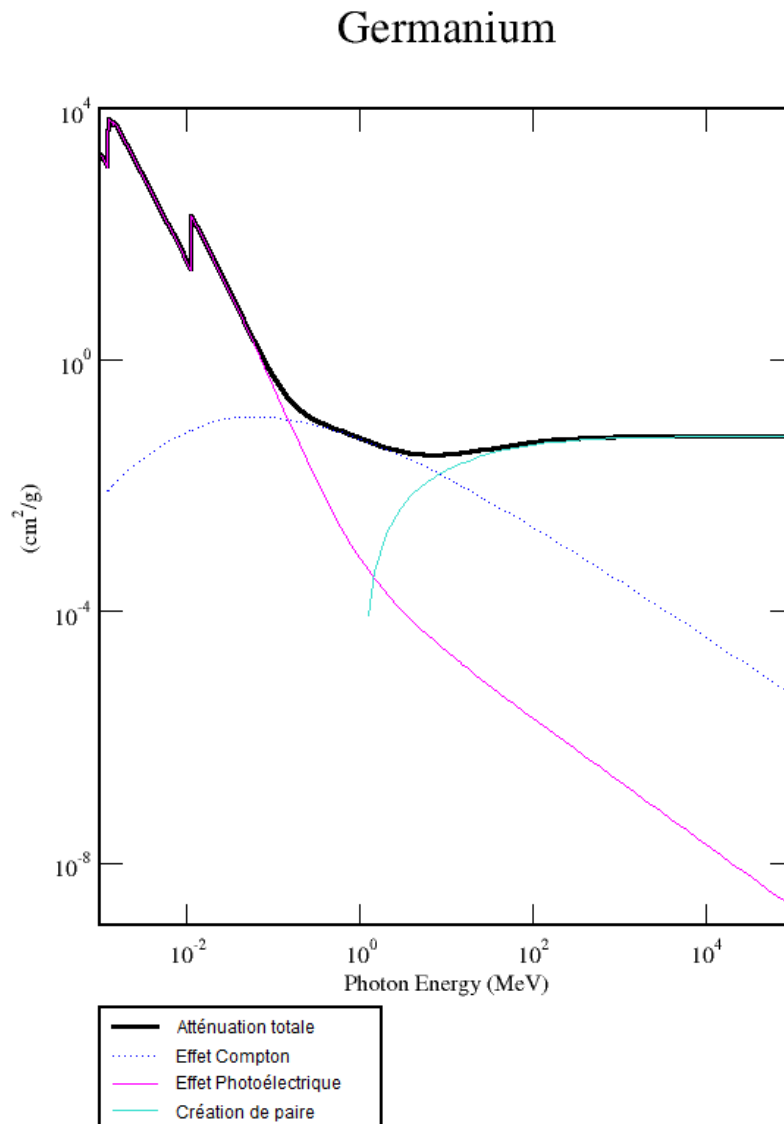


Figure 9 – Evolution des coefficients d'atténuation massiques (μ/ρ) exprimés en $\text{cm}^2 \cdot \text{g}^{-1}$ en fonction de l'énergie en MeV du photon incident dans le germanium (NIST [42]), pour l'atténuation et en fonction de chaque type d'interaction.

Les énergies qui limitent les gammes d'énergie sur lesquelles prédomine l'une ou l'autre des interactions dépendent du numéro atomique (Z) du matériau. La figure 10 représente ces deux énergies "limite" en fonction du Z du matériau et l'on constate par exemple que pour un matériau "léger" (de Z faible) l'effet Compton sera prépondérant sur la majeure partie de la gamme d'énergie des photons incidents. Plus généralement, ce graphe permet de voir l'interaction qui prédominera suivant l'énergie du photon incident et le Z du matériau. A très basse énergie, il existe un quatrième effet, la diffusion du photon sur un électron du milieu sans perte d'énergie. Cette diffusion peut-être appelée diffusion de Thomson si elle est faite sur un électron libre ou diffusion de Rayleigh si elle est effectuée sur un électron lié.

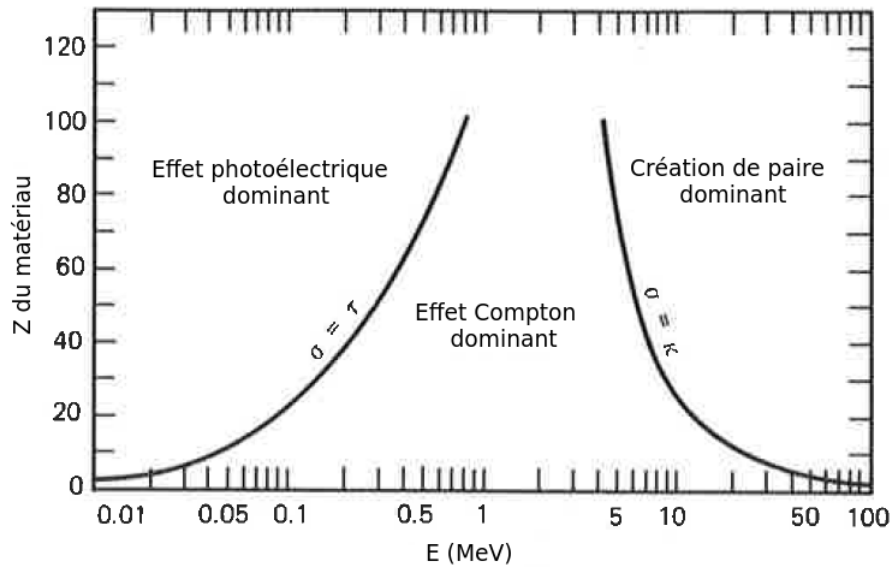


Figure 10 – Prédominance des interactions photons-matière en fonction de l'énergie du photon en MeV et du numéro atomique, Z , du matériau (Knoll [34]).

2 La spectrométrie γ classique

2.1 Les différents types de détecteurs

La spectrométrie γ est une méthode de mesure rapide, non destructive et multi-élémentaire pour identifier et quantifier les radionucléides émetteurs γ . Les photons γ émis par l'échantillon vont interagir avec le matériau du détecteur en déposant tout ou partie de leur énergie. Les différents événements seront classés dans un histogramme en fonction de l'énergie déposée : il s'agit du spectre à proprement parler. On retrouve différents types de détecteurs utilisés en spectrométrie γ .

2.1.1 Les scintillateurs

Les premiers détecteurs employés pour faire de la spectrométrie γ étaient des scintillateurs. Le matériau scintillant fonctionne sur le principe d'excitation de ses atomes. Les photons vont céder leur énergie au scintillateur en faisant passer ses atomes d'un état stable à un état excité. C'est en se désexcitant qu'ils vont émettre des photons de fluorescence ou phosphorescence. Ces photons lumineux sont guidés, grâce à un guide optique, vers un photomultiplicateur composé d'une photocathode et d'une série de dynodes. La photocathode convertit les photons lumineux en électrons par effet photoélectrique. Le flux électronique est amplifié grâce à la série de dynodes. Le signal électrique est alors proportionnel à l'énergie déposée par les photons incidents dans le scintillateur.

Plusieurs matériaux sont employés comme le germanate de bismuth (BGO) ou encore l'oxyorthosilicate de lutécium (LSO), mais c'est l'iodure de sodium dopé au thallium, NaI(Tl), qui est le plus couramment utilisé (Swiderski et al. [47]). Le faible coût, l'important rendement de détection et la robustesse en font un matériau fiable pour le développement de détecteurs. Le principal inconvénient des scintillateurs est leur résolution en énergie. Trop importante, elle ne permet pas une analyse fine d'un spectre, des pics d'énergies proches ne seront pas séparés.

2.1.2 Les semi-conducteurs

L'apparition des détecteurs à base de matériau semi-conducteurs, a permis de résoudre le problème de la résolution en énergie. Le semi-conducteur (figure 11) est un matériau qui possède un faible gap entre sa bande de valence et sa bande de conduction qui peut être franchi par les électrons sous l'action d'un champ électrique. L'application du champ électrique va créer une zone de déplétion à

l'intérieur du semi-conducteur dans laquelle il n'y a plus de porteurs de charges libres. L'augmentation de la différence de potentiel permet d'agrandir la zone de déplétion du semi-conducteur. Les photons incidents vont mettre en mouvement des électrons qui vont eux mêmes créer dans la zone de déplétion des paires électron-trou qui seront collectées sur les contacts n et p. La collecte des charges engendre un courant électrique proportionnel au dépôt d'énergie du photon incident.

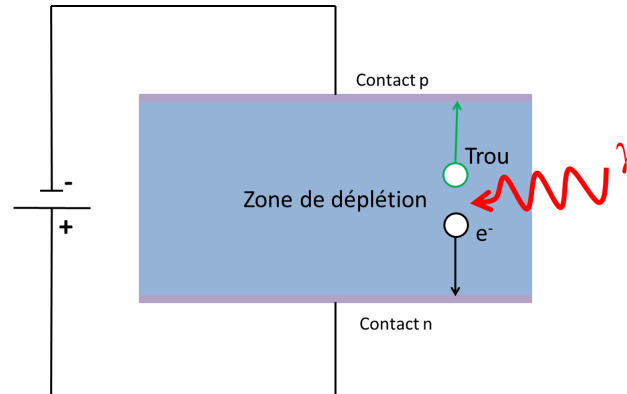


Figure 11 – Schéma de fonctionnement d'un détecteur à base de semi-conducteur.

Le détecteur est relié à une chaîne d'acquisition électronique qui sera détaillée dans le paragraphe suivant. Il existe différents matériaux semi-conducteur : le silicium, le germanium ou encore l'arséniure de gallium. Nous nous intéresserons plus particulièrement aux spectromètres germanium dans ce travail.

Différents spectromètres germanium sont disponibles sur le marché, ils sont différenciés par leur géométrie qui leur confère différentes propriétés. La figure 12 présente plusieurs types de spectromètres germanium, commercialisés par la société CANBERRA.

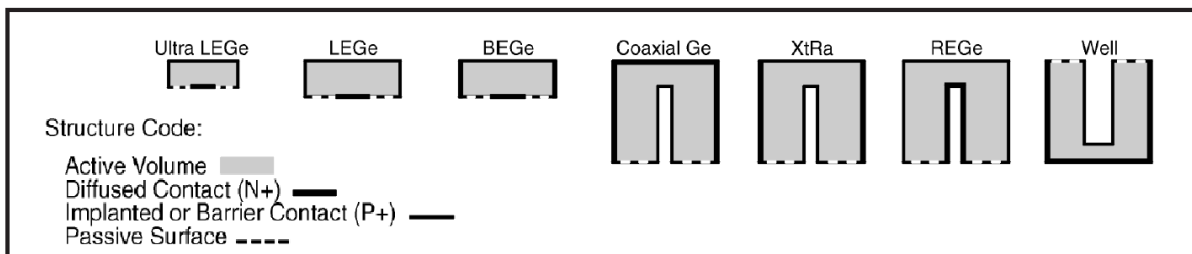


Figure 12 – Schéma des géométries des spectromètres germanium CANBERRA (CANBERRA [12]).

Le choix de la géométrie se fait en fonction de trois grands critères : le rendement de détection (qui dépend du volume du cristal), la résolution en énergie et la gamme d'énergie. En règle générale, la résolution et la gamme d'énergie sont liées au volume. En effet, plus un détecteur sera volumineux plus sa gamme en énergie sera élevée et donc son rendement de détection aussi. En revanche, un détecteur de faible volume aura une gamme en énergie plus basse, un rendement de détection faible mais d'excellentes résolutions en énergie. L'efficacité relative d'un spectromètre germanium est définie par rapport au rendement du pic à 1332 keV de ^{60}Co , d'un scintillateur NaI(Tl) de 3x3 pouces, placé à 25 cm de la source. Au laboratoire, les spectromètres germanium ont une efficacité relative comprise entre 40 et 65 %. Les détecteurs de type puits sont employés pour les petites géométries de comptage, ce qui leur confère un important rendement de détection compte tenu de leur géométrie enveloppante.

Un inconvénient des spectromètres germanium est leur utilisation à très basse température afin de limiter le bruit électronique. Ces basses températures sont généralement atteintes à l'aide de réservoirs d'azote liquide (77 K) appelés dewars ou par le biais de cryogénérateurs.

2.2 L'électronique d'acquisition

En spectrométrie γ , les signaux fournis par un détecteur sont analysés par une chaîne électronique. Il existe deux types d'électroniques : l'analogique et le numérique. L'électronique fournit un histogramme en hauteur d'impulsion, proportionnelle à l'énergie déposée, appelé spectre, qui sera détaillé au paragraphe II.2.2.3.

2.2.1 Electronique analogique

Une chaîne d'électronique analogique est composée des éléments suivant : un préamplificateur, un amplificateur, un convertisseur analogique-numérique et un analyseur multi-canaux.

Le préamplificateur de charge, lié physiquement au détecteur, collecte les charges créées par un dépôt d'énergie. Son rôle est de convertir les charges en une tension, avec une amplitude d'impulsion en sortie du préamplificateur proportionnelle à la charge en entrée (figure 13). En contrepartie, le signal est légèrement bruité. Un signal est séparé en deux parties, un temps de montée très court et une décroissance exponentielle qui suit une constante τ .

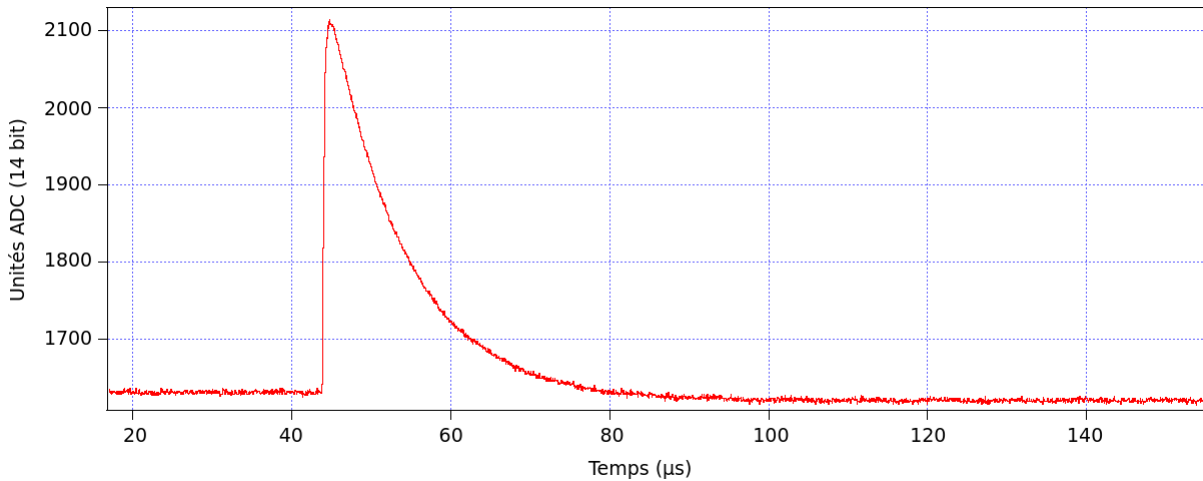


Figure 13 – Signal de sortie d'un préamplificateur en fonction du temps [μs].

Ensuite l'amplificateur amplifie le signal jusqu'à une tension souhaitée à l'aide d'un gain. Le gain définit l'échantillonnage en énergie du spectre de sortie : plus le gain est élevé, plus la valeur maximale du spectre en énergie est faible. Par exemple, si l'amplificateur fournit une tension maximale de 5 V repartis sur 8000 canaux, le gain définit la valeur en énergie correspondant au dernier canal. L'amplificateur filtre aussi le signal pour le séparer du bruit électronique. La hauteur de l'impulsion est convertie en valeur numérique à l'aide du convertisseur analogique-numérique. Enfin, l'analyseur multi canaux convertit la hauteur de l'impulsion en une valeur de canal du spectre en énergie.

2.2.2 Electronique numérique

L'électronique numérique, connectée au préamplificateur, joue le rôle d'amplificateur, de convertisseur analogique numérique et d'analyseur multi-canaux et va par conséquent accepter en entrée des impulsions en tension. Ces signaux sont amplifiés à l'aide d'un gain comme pour une électronique analogique. Une fois le signal amplifié, l'électronique numérique réalise trois étapes : l'identification du signal (filtre rapide), le codage numérique (filtre lent) et le remplissage du spectre. La figure 14 représente les deux filtres appliqués au signal numérique.

Un filtre comporte deux constantes du temps : le temps de montée (Rise Time) et le temps du plateau (Flat Top). Le filtre rapide possède deux temps relativement courts car il doit juste détecter

une variation de la ligne de base qui correspond à un signal : il identifie un événement. Le filtre lent a des constantes de temps plus longues afin de quantifier précisément la hauteur de l'impulsion. Si ces constantes sont augmentées, alors la hauteur de l'impulsion sera déterminée plus précisément, ce qui permet d'avoir une meilleure résolution en énergie. Enfin, une fois l'événement détecté et son amplitude déterminée, l'analyseur va incrémenter le canal correspondant dans le spectre.

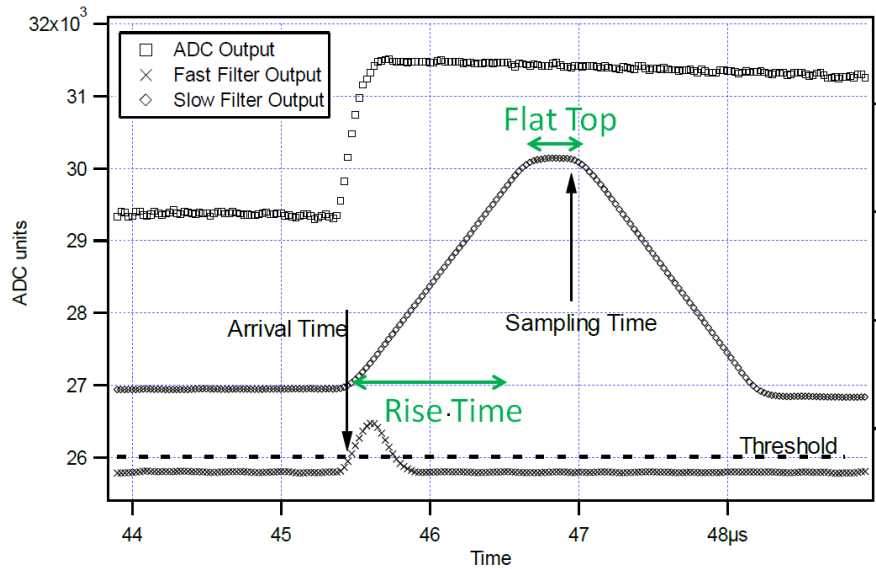


Figure 14 – Signaux en fonction du temps [μs] en sortie de l'ADC (carré), du filtre rapide (croix) et du filtre lent (losange), avec indication des constantes de temps de montée (rise time) et de temps de plateau (flat top) du filtre lent (XIA [51]).

2.2.3 Le spectre γ obtenu

L'électronique va permettre d'obtenir un spectre en canaux. Grâce à un étalonnage en énergie, la valeur de chaque canal est convertie en énergie correspondante en keV.

Le spectre de ^{40}K ci-dessous (figure 15), permet d'identifier les différentes interactions (§ 1 du chapitre II) entre les photons de ^{40}K de 1460 keV et le cristal du détecteur. On retrouve le pic d'absorption totale lorsque le photon incident a cédé toute son énergie dans le détecteur, par exemple par effet photoélectrique. Le fond Compton est également bien visible avec son front haut (1460 keV - 200/300 keV) qui correspond au dépôt maximum d'énergie par effet Compton et son front bas (200/300 keV) qui correspond au dépôt d'énergie minimum. La création de paire e^+/e^- est suivie d'une annihilation avec deux photons de 511 keV qui peuvent déposer leur énergie dans le détecteur ou sortir de ce dernier. Les deux pics d'échappement, simple avec un seul photon γ de 511 keV qui s'échappe et double avec les deux photons qui s'échappent sont visibles.

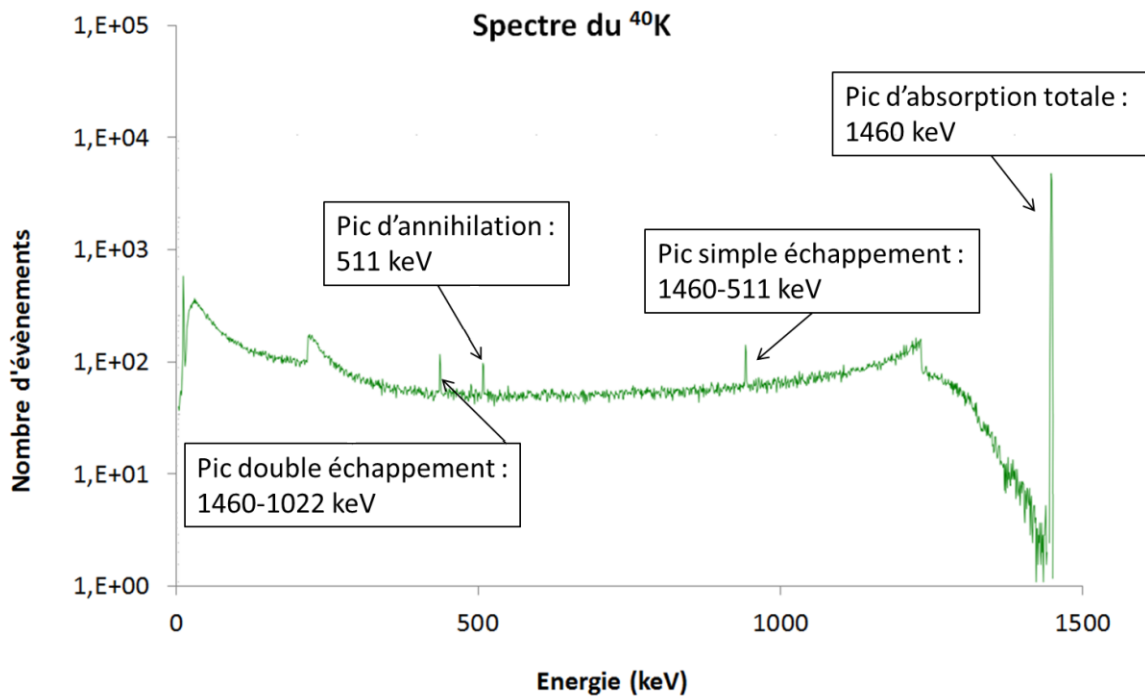


Figure 15 – Principales composantes d'un spectre de ^{40}K (simulation Monte Carlo).

3 Utilisation des coïncidences en spectrométrie γ

Afin de réaliser des coïncidences entre plusieurs événements, il est nécessaire d'avoir au moins deux détecteurs pour avoir des dépôts simultanés d'énergie. La simultanéité est définie à l'échelle de temps de l'électronique, deux dépôts seront considérés simultanés s'ils arrivent dans une fenêtre temporelle donnée : la fenêtre de coïncidence. Lorsqu'une coïncidence est identifiée, elle peut être traitée de deux manières, soit les événements sont supprimés, c'est la mesure en anti-coïncidence, soit ils sont conservés et c'est la mesure en coïncidence.

3.1 La mesure en anti-coïncidence

La mesure en anti-coïncidence est utilisée en mesure environnementale principalement dans les systèmes anti-cosmique (par exemple, Laurec et al. [36] et Burnett and Davies [9]) ou anti-Compton (par exemple Kantele et al. [33]). Le laboratoire possède un des deux premiers systèmes anti-Compton mis en service en France (de Vismes et al. [17]), en fonctionnement depuis 1996. Les systèmes anti-cosmique du laboratoire sont composés d'un spectromètre germanium à l'intérieur d'un blindage autour duquel sont installés des scintillateurs plastique, détecteurs de rayonnement cosmique (de Vismes

et al. [16]). Lorsqu'un événement est détecté dans le scintillateur, une fenêtre en temps est ouverte durant laquelle l'électronique du spectromètre germanium est inhibée. En d'autres termes, lorsque les scintillateurs voient un événement, le spectre γ n'est pas incrémenté. En effet, dans un délai très court, le rayonnement cosmique engendre des particules secondaires qui pourraient déposer leur énergie dans le détecteur germanium. Cette technique limite le fond cosmique dans le spectre en n'enregistrant pas les photons en coïncidence avec un rayonnement cosmique.

Les systèmes anti-Compton sont employés pour limiter le fond engendré par les radionucléides présents en forte proportion dans l'échantillon. Si l'échantillon contient des émetteurs en quantité importante, leurs photons γ qui interagissent par effet Compton engendreront un fond sur une partie du spectre.

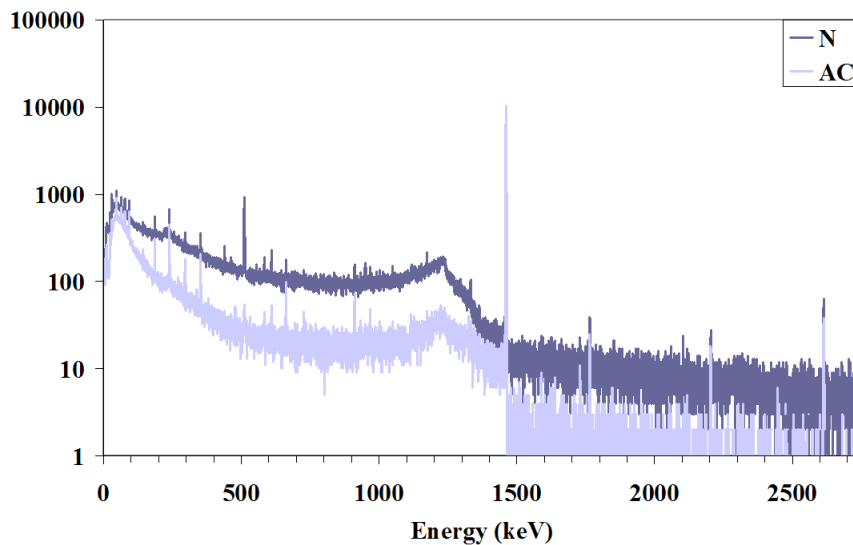


Figure 16 – Spectres classique (violet foncé) et en anti-coïncidence (violet clair) d'un échantillon biologique mesuré sur le système anti-Compton du laboratoire contenant une forte proportion de ^{40}K .

La figure 16 représente les spectres classique (en violet foncé) et en anti-coïncidence (violet clair) de la mesure d'une matrice biologique. La forte proportion de ^{40}K , engendre un pic d'absorption totale, situé à 1460 keV, qui est accompagné d'un important fond continu dû aux photons ayant interagi par effet Compton. Les pics de radionucléides recherchés peuvent être masqués par ce fond continu. Le laboratoire possède un système anti-Compton, composé d'un spectromètre germanium entouré d'un scintillateur NaI(Tl). Lorsqu'un photon dépose une partie de son énergie par effet Compton dans le spectromètre germanium, il est possible que le photon diffusé perde toute ou une partie de son énergie dans le scintillateur, si tel est le cas, il y a une coïncidence temporelle entre les deux dépôts d'énergie. Ces événements sont éliminés du spectre et cela permet d'abaisser le fond Compton dû aux radionucléides de l'échantillon, comme il est possible de le voir dans le spectre en anti-coïncidence de la figure 16.

3.2 La mesure en coïncidence

3.2.1 Principe

Contrairement à la spectrométrie en anti-coïncidence, la spectrométrie γ en coïncidence va conserver les événements en coïncidence. Les deux dépôts en coïncidence peuvent être représentés sous forme de spectre ou de matrice, ils viennent incrémenter deux spectres ou une matrice de coïncidence. La matrice représente le dépôt d'énergie dans le détecteur A (E_A) en fonction du dépôt dans le détecteur B (E_B) (figure 17).

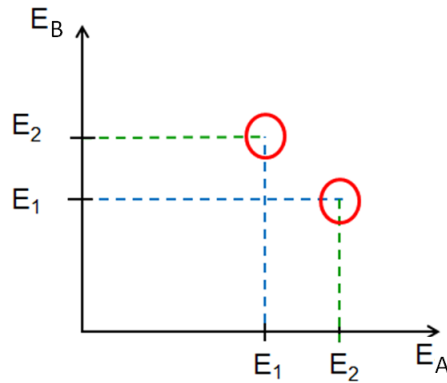


Figure 17 – Matrice de coïncidence théorique avec empreintes caractéristiques en rouge.

Ce tracé permet de mettre en évidence le radionucléide émetteur en coïncidence. S'il émet deux photons en coïncidence d'énergie E_1 et E_2 , la matrice aura deux empreintes caractéristiques. Ces empreintes correspondent au dépôt total de E_1 dans le détecteur A et au dépôt total de E_2 dans le détecteur B et vice versa. Les zones environnant les empreintes sont peu bruitées ce qui les rend aisément identifiables.

En réalité, la matrice de coïncidence est plus complexe. Elle comporte, en plus des 2 empreintes caractéristiques décrites figure 17, des événements correspondant à des dépôts d'énergie partiels par les photons E_1 et E_2 . Ces différents événements sont représentés sur deux figures différentes (18 et 19) par souci de lisibilité.

La figure 18 représente tous les événements pour lesquels au moins un des deux photons a déposé toute son énergie dans un des détecteurs. Les différentes zones sont décrites ci-dessous. On y retrouve les 2 empreintes caractéristiques (notées 1 et 2) tandis que la zone 3 regroupe les événements pour lesquels seul un des deux photons a déposé toute son énergie dans un des détecteurs.

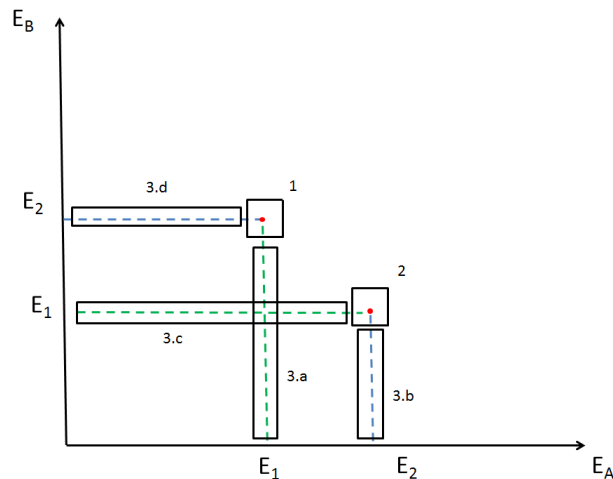


Figure 18 – Répartition des dépôts d'énergie dans la matrice de coïncidence (1^{ère} partie).

1. Dépôt total de E_1 dans détecteur A et de E_2 dans détecteur B : $E_A = E_1$ et $E_B = E_2$
2. Dépôt total de E_2 dans détecteur A et de E_1 dans détecteur B : $E_A = E_2$ et $E_B = E_1$
3. Dépôt partiel par effet Compton de E_1 dans détecteur A ou détecteur B et dépôt total d' E_2 dans l'autre détecteur et vice versa :
 - a : $E_A = E_1$ et $E_B < E_2$
 - b : $E_A = E_2$ et $E_B < E_1$
 - c : $E_B = E_1$ et $E_A < E_2$
 - d : $E_B = E_2$ et $E_A < E_1$

La figure 19 représente les événements pour lesquels les deux photons ont diffusé par effet Compton dans les deux détecteurs et n'ont donc déposé qu'une partie de leur énergie.

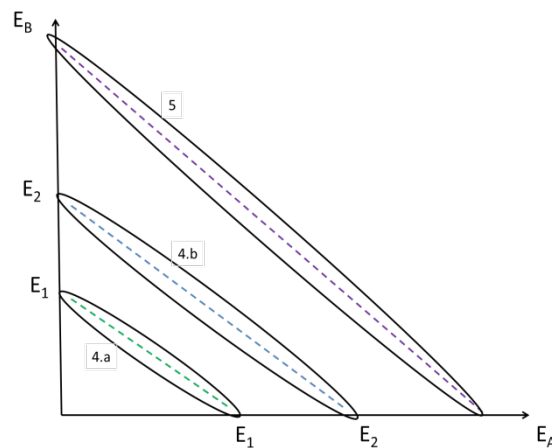


Figure 19 – Répartition des dépôts d'énergie dans la matrice de coïncidence (2^{de} partie).

- 4 Dépôt partiel par diffusion Compton de E_1 (ou E_2) dans un des détecteurs et dépôt total de l'énergie du photon diffusé dans l'autre détecteur :
 - a : $E_A + E_B = E_1$
 - b : $E_A + E_B = E_2$
- 5 Dépôts partiels d' E_1 et E_2 dans un des deux détecteurs et dépôt de l'énergie des photons diffusés dans l'autre détecteur : $E_A + E_B = E_1 + E_2$.

3.2.2 Radionucléides concernés

La mesure par spectrométrie γ en coïncidence s'applique aux émetteurs dits "en coïncidence" qu'il est nécessaire de définir. Un radionucléide sera considéré émetteur en coïncidence s'il présente dans son schéma de désintégration plusieurs photons émis en cascade et avec une durée de vie de chaque niveau beaucoup plus courte que la fenêtre de coïncidence de l'électronique, tout en tenant compte de l'énergie des photons qui conditionnera le rendement d'absorption totale. De plus, l'intensité de l'émission conjointe des deux radionucléides doit être importante. Elle doit être supérieure à au moins la moitié de l'intensité du photon de plus haute intensité détectable. Par exemple, si un radionucléide émet deux photons successifs à 100 % et 20 %, il ne sera pas intéressant de le mesurer par coïncidence. L'intensité de l'émission conjointe sera au mieux de 20 % alors que le premier photon a une intensité de 100 % et sera donc plus facile à détecter. On retrouve comme émetteur en coïncidence couramment utilisé, ^{60}Co (dont le schéma de désintégration est présenté à la figure 20) qui émet de photons γ en cascade avec des intensités proches de 100 %. Ce radionucléide sera souvent utilisé dans les différentes études réalisées sur les système de mesure.

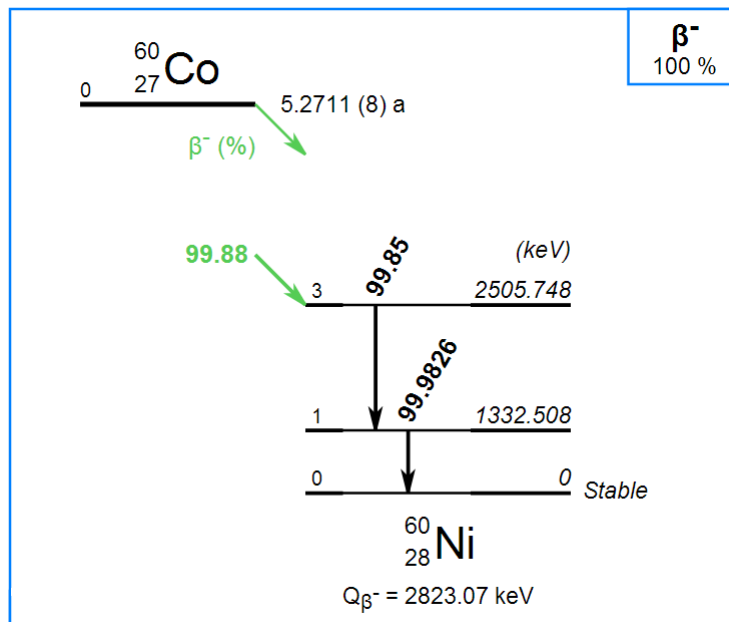


Figure 20 – Schéma de désintégration de ^{60}Co (CEA-LNHB [14]).

D'autres types de radionucléides sont mesurables en coïncidence, les radionucléides se désintégrant par désintégration β^+ ou capture électronique par exemple. Pour la désintégration β^+ , deux photons de 511 keV sont émis en coïncidence et ils peuvent être suivis d'émissions γ qui seront également en coïncidence si le niveau a une durée de vie courte. La capture électronique va quant à elle engendrer un réarrangement électronique qui conduira à l'émission de photons X en coïncidence avec d'éventuels photons γ . Le tableau 3 représente une liste non exhaustive de radionucléides mesurables par spectrométrie γ en coïncidence.

Radionucléide	Principal mode de désintégration	Période (père à l'équilibre)	Energies des principaux photons γ en coïncidence (keV)
^{108m}Ag	CE	438 ans	434+614 ; 434+723 ; 614+723
^{110m}Ag	β^-	250 jours	658+818 ; 658+885 ; 658+1505 ; 678+885 ; 885+937 ; 885+1384
^{133}Ba	CE	10.54 ans	81+303 ; 81+356
^{82}Br	β^-	1.47 jours	554+69 ; 554+317 ; 474+619 ; 619+698 ; 698+777
^{60}Co	β^-	5.27 ans	1173+1332
^{134}Cs	β^-	2.07 ans	605+795
^{152}Eu	β^+ , CE	13.5 ans	122+1408
^{154}Eu	β^-	8.6 ans	123+1005 ; 123+1274
^{67}Ga	CE	3.26 jours	93+300
^{72}Ga	β^-	0.59 jours	834+894
^{132}I	β^-	2.30 heures	667+773
^{111}In	CE	2.8 jours	171+254
^{192}Ir	β^-	74 jours	296+308 ; 296+316 ; 296+588 ; 316+468 ; 316+604 ; 308+612
^{22}Na	β^+	950 jours	511+1274
^{24}Na	β^-	0.62 jours	1369+2754
^{106}Rh	β^-	372.6 jours (^{106}Ru)	511+622
^{75}Se	CE	120 jours	136+265
^{124}Sb	β^-	60 jours	(427 ; 463 ; 600) + X
^{46}Sc	β^-	84 jours	889+1121
^{88}Y	β^+ , CE	107 jours	898+1836
^{169}Yb	CE	32 jours	63+177 ; 63+198 ; 63+308 ; 109+198

Tableau 3 – Radionucléides susceptibles d'être rejetés dans l'environnement et mesurables en coïncidence avec leur principale mode de désintégration (β^- , β^+ , capture électronique (CE)) (CEA-LNHB [14]).

3.2.3 Etat de l'art

La mesure en coïncidence est couramment utilisée dans différents domaines scientifiques, par exemple en physique des hautes énergies ou en astrophysique. Pour les mesures de radioactivité, des techniques de mesures primaires utilisent les coïncidences. En ce qui concerne les mesures de radioactivité dans l'environnement, on retrouve plusieurs types de coïncidences : γ - γ ou γ -X, α - γ ou encore des coïncidences β - γ .

Les coïncidences entre les particules α et les photons γ sont utilisées pour la mesure de ^{241}Am (Jurado Vargas et al. [31]). Le système est composé d'un spectromètre germanium et d'une diode silicium (figure 21). Les deux détecteurs sont à 90° et la source surfacique est positionnée de façon à ce que chaque détecteur soit à 45° de la surface. Les résultats des coïncidences sont donnés sous forme de matrice de coïncidence.

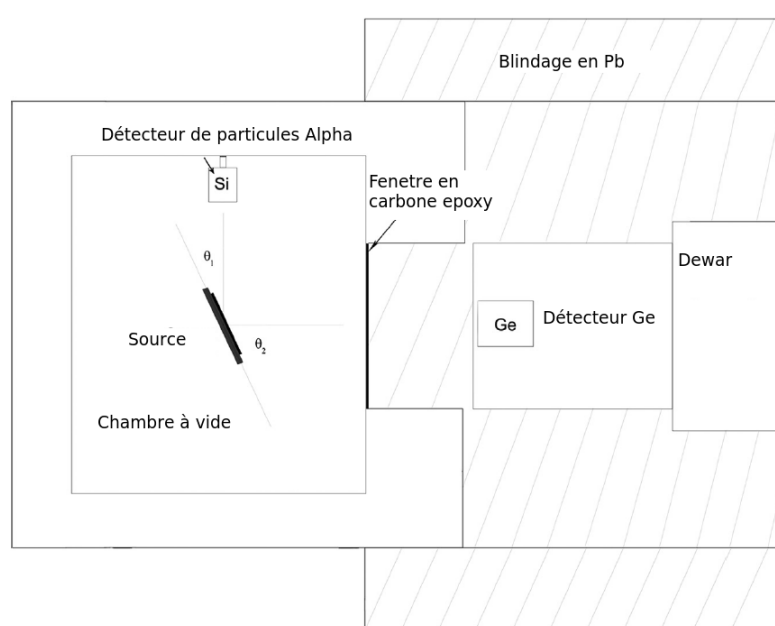


Figure 21 – Schéma de la chambre de coïncidence avec la source placée sur un support rotatif, utilisée par Jurado Vargas et al. [31].

Les coïncidences électron-photon sont employées pour mesurer les isotopes du xénon (voir par exemple Schroettner et al. [45]; Cagniant et al. [11]) par exemple. Des coïncidences entre les X et les électrons sont utilisées pour ^{131m}Xe et ^{133m}Xe . Des coïncidences entre les électrons et les γ sont réalisées pour ^{133}Xe et ^{135}Xe . Le système utilisé est un spectromètre germanium de type BEGe et une diode PIPS. L'électronique associée est un analyseur numérique MPA3 (FAST [22]). Ce système permet d'améliorer les limites de détection. La mesure par coïncidence entre des électrons et des γ peut aussi être employée pour mesurer ^{22}Na (Dias et al. [18]; Le Petit et al. [37]) ou les isotopes du cobalt (^{56}Co et ^{57}Co) (Havelka and Sochorová [26]).

En ce qui concerne les coïncidences $\gamma - \gamma$, objet de cette étude, les systèmes permettant de les mesurer sont encore très peu développés dans le monde, bon nombre de publications portent sur des études de simulations. Les seuls systèmes utilisés pour l'instant en coïncidence sont des systèmes anti-Compton, les coïncidences sont donc faites entre un détecteur germanium et un scintillateur. Le scintillateur possédant une mauvaise résolution en énergie, il est difficile de réaliser une spectrométrie précise.

Un système composé de six scintillateurs NaI formant un cube est utilisé pour mesurer les coïncidences de ^{232}Th (Antovic and Svrkota [2]). Ce même système est aussi employé pour la mesure de ^{226}Ra (Antovic and Svrkota [3]). Cependant, le scintillateur NaI ne permet pas de séparer des raies d'énergies proches et n'est donc pas utilisable pour identifier précisément des émetteurs γ .

D'autres systèmes de mesure en coïncidence employés sont des couplages entre un spectromètre Germanium et un scintillateur NaI, entre des détecteurs BGO ou encore entre deux scintillateurs NaI. Une partie des mesures effectuées porte sur la quantification des activités des isotopes de l'uranium afin de définir son enrichissement (Zhang et al. [54]; Zhang et al. [53]).

Des systèmes composés uniquement de spectromètre germanium sont employés, notamment dans le cadre du Traité d'Interdiction Complet des Essais nucléaires (TICE). Ces systèmes utilisent deux (Britton et al. [7]) ou trois (Cagniant et al. [10]) spectromètres germanium (figure 22).

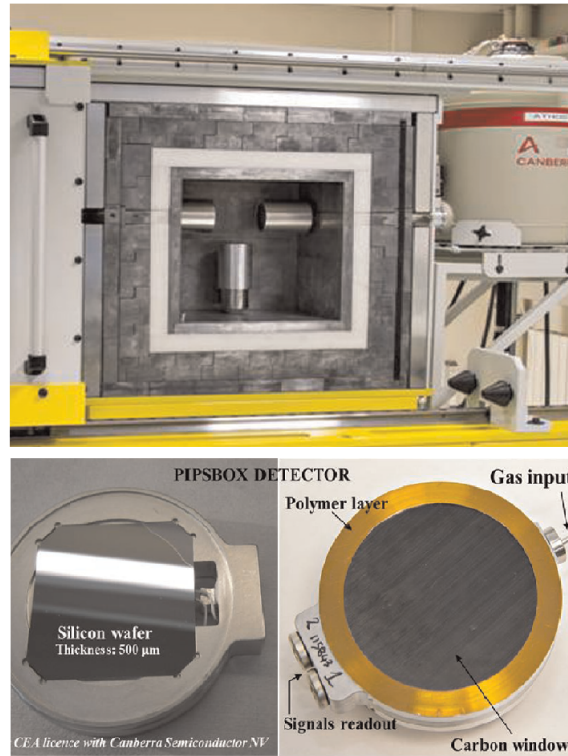


Figure 22 – Photos du système de mesure bas niveau γ^3 (haut) et de la cellule de mesure de gaz nobles (bas), employés au CEA-DAM ([11])

3.2.4 Electronique associée

Afin de réaliser des mesures en coïncidence ou en anti-coïncidence, il est nécessaire de sélectionner les événements en coïncidence. Deux méthodes sont possibles, soit en continu durant l'acquisition, soit après la mesure en sélectionnant les événements d'intérêt. En continu, l'enregistrement des événements se fait si la condition en coïncidence est remplie (pour la mesure en anti-coïncidence le veto s'applique lorsque la coïncidence a lieu). L'enregistrement des coïncidences de manière continue peut se faire avec des électroniques analogiques ou numériques. Un détecteur est observé et si un événement est détecté, une fenêtre temporelle de coïncidence est ouverte et l'autre détecteur est observé durant celle-ci pour détecter un éventuel événement. Si un événement est vu par l'autre détecteur alors les deux sont enregistrés dans deux spectres (ou une matrice) sinon ils sont rejetés. Les tracés résultant ne contiennent que les événements en coïncidence.

Les électroniques numériques, permettent de travailler en mode liste, c'est-à-dire d'enregistrer tous les événements avec une information en temps et en énergie. Un fichier dans lequel sont écrits tous les événements avec l'énergie déposée dans le ou les détecteurs ainsi que leurs temps d'arrivée correspondant est fourni par l'électronique.

L'analyse du fichier provenant du mode liste permet de trier les événements en coïncidence ou non. L'enregistrement en mode liste est très répandu pour les mesures utilisant les coïncidences (voir exemple [52]). Tous les événements sont enregistrés dans un fichier généralement au format texte ou

binaire, il est traité par un algorithme approprié et permet de tracer toutes les représentations souhaitées : spectres simples, en anti coïncidence, en coïncidence, matrices de coïncidence... L'avantage de cette méthode est l'utilisation multiple des données et l'inconvénient est la taille du fichier qui peut atteindre plusieurs gigabits de données en fichier texte et engendrer des problèmes de vitesse de lecture, voire de stockage des données.

4 Analyse

4.1 Statistique de Poisson

Une désintégration radioactive est un phénomène spontané et aléatoire. L'émission consécutive des photons de désexcitation l'est donc également, ce phénomène est régi par la statistique de Poisson. Pour appliquer cette statistique à des particules émises suite à des désintégrations, deux conditions sont nécessaires (Lyoussi [38]). Tout d'abord le nombre d'atomes, n , doit être élevé ($n \gg 1$). Ensuite, le nombre d'atomes susceptibles de subir une décroissance, k , doit être faible devant le nombre total d'atomes ($k \ll n$). La mesure doit donc être très courte par rapport à la période du radionucléide. Si le nombre d'événements augmente, la statistique de Poisson devient Gaussienne (figure 23). Les paramètres de cette gaussienne dépendent de plusieurs phénomènes physiques. Sa valeur centrale est définie par l'énergie, sa hauteur maximale dépend du nombre d'événements détectés et son élargissement est dû à la variation du nombre de porteurs de charges mis en mouvement par le dépôt d'énergie.

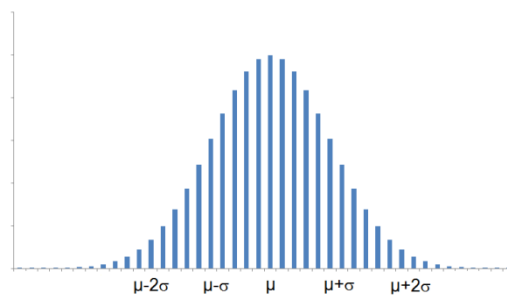


Figure 23 – Distribution de Gauss

Plus la statistique sera importante plus le pic suivra les caractéristiques d'une gaussienne. La densité de probabilité de la loi normale est donnée par l'équation (3).

$$f(x) = \frac{1}{\sigma \sqrt{2\pi}} e^{-\frac{1}{2} \left(\frac{x-\mu}{\sigma} \right)^2} \quad (3)$$

Avec :

x : variable

μ : constante définissant l'abscisse du centre de la distribution de Gauss

σ : écart type

La probabilité que tous les événements soient comptabilisés dépend de l'intervalle de confiance (figure 24) défini en fonction de l'écart type (σ).

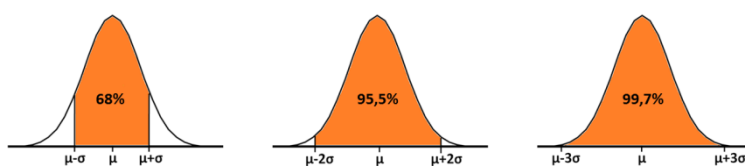


Figure 24 – Intervalles de confiance d'une distribution de Gauss

Plus cet intervalle est grand, plus on s'approche du nombre total d'événements dans la gaussienne. Un intervalle de confiance de 3σ permet d'avoir plus de 99 % des événements.

En spectrométrie γ , il est nécessaire de comptabiliser le nombre d'événements dans un pic. Pour réaliser un comptage il faut définir une région d'intérêt (ROI : region of interest) en fonction de la largeur à mi-hauteur de la gaussienne (FWHM : full width at half maximum) définie par l'équation (4). En spectrométrie γ , la largeur à mi-hauteur est également appelée résolution absolue, la résolution relative à une énergie donnée (E) est quant à elle définie en divisant la résolution absolue à cette énergie par l'énergie (5).

$$FWHM = R_{absolue} = 2 \sqrt{2 \ln(2)} \sigma \approx 2.355 \sigma \quad [keV] \quad (4)$$

$$R_{relative}(E) = \frac{R_{absolue}(E)}{E} \quad (5)$$

D'après le Dossier de recommandations pour l'optimisation des mesures (DROP, CETAMA [15]) sur la spectrométrie γ appliquée aux échantillons de l'environnement de la CETAMA et la norme internationale sur la détermination des limites caractéristiques pour le mesurage de rayonnements ionisants (ISO 11929), la largeur recommandée pour la région d'intérêt (ROI) est de 2.5 FWHM. En comparant à σ de la gaussienne, l'équation (6) fournit une ROI de presque 6σ , contenant donc plus de 99 % des événements.

$$ROI = 2.5 FWHM = 2.5 \cdot 2.355 \sigma = 5.89 \sigma \quad (6)$$

C'est en suivant la statistique de Gauss qu'il est possible de définir l'incertitude statistique du nombre d'événements dans un pic (équation (7)). Lorsque le nombre d'événements, N , est assez important (> 9).

$$u_N = \sqrt{N} \quad (7)$$

Le comptage dans un pic doit être corrigé du fond présent sous le pic. D'après le DROP il est nécessaire de prendre au moins une fois la largeur de la ROI du pic de part et d'autre de ce dernier (figure 25) pour estimer le fond.

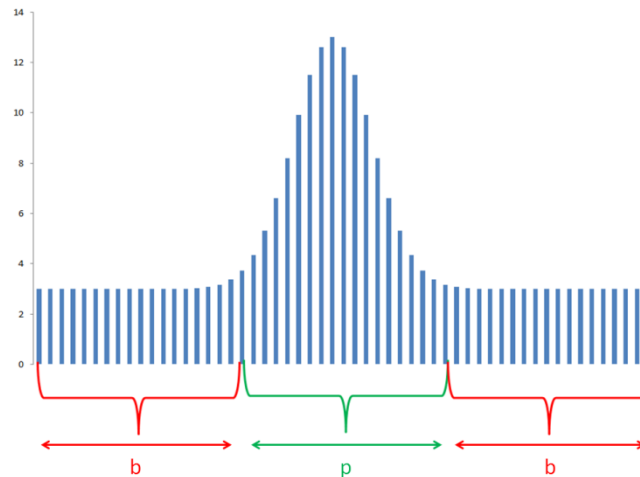


Figure 25 – Exemple de ROI d'un pic et de la zone d'estimation du bruit de fond

La zone verte représente la ROI du pic et celles en rouge les zones pour estimer le bruit de fond présent sous le pic. Il existe différentes méthodes d'estimation du bruit de fond dans la ROI, celles employées pour nos systèmes de mesure seront détaillées plus tard dans ce chapitre. Il est nécessaire de définir un facteur de normalisation (7) du bruit de fond car la zone utilisée pour l'estimer est plus grande que celle de la ROI.

$$\chi = \frac{2 b}{p} \quad (8)$$

Avec :

χ : facteur de normalisation du fond

b : largeur de la zone utilisée pour estimer le fond à droite et à gauche

p : largeur de la ROI

Le nombre d'événements de bruit de fond normalisé est alors calculé à l'aide de l'équation (9).

$$n_b = \frac{N_b}{\chi} \quad (9)$$

Avec :

χ : facteur de normalisation du fond

N_b : nombre total d'événements de bruit de fond

n_b : nombre d'événements de bruit de fond normalisé

Le nombre d'événements net, qui sera utilisé pour le calcul de l'activité, est obtenu en soustrayant au nombre d'événements brut dans la ROI un nombre d'événements de bruit de fond estimé (10).

$$n_n = n_g - n_b \quad (10)$$

Avec :

n_n : nombre d'événements net dans le pic

n_g : nombre d'événements brut dans le pic

n_b : nombre d'événements de fond estimé sous le pic

Les incertitudes associées (u) aux différents comptages sont données par les équations (11), ((12), (13), (14). Toutes les incertitudes utilisées dans ce document sont données à $k=2$, sauf cas particulier qui sera précisé.

$$u_{n_g} = \sqrt{n_g} \quad (11)$$

$$u_{N_b} = \sqrt{N_b} \quad (12)$$

$$u_{n_b} = \frac{\sqrt{N_b}}{\chi} = \sqrt{\frac{n_b}{\chi}} \quad (13)$$

$$u_{n_n} = \sqrt{(u_{n_g})^2 + (u_{n_b})^2} = \sqrt{n_n + \left(1 + \frac{1}{\chi}\right) n_b} \quad (14)$$

4.2 Calcul de l'activité et des limites caractéristiques

Afin de déterminer si le signal est significatif ou non, le nombre de coups net n_n déterminé au paragraphe précédent va être comparé à ce que l'on appelle le seuil de décision, noté SD par la suite. Celui-ci est calculé à partir du bruit de fond total, à savoir le fond continu sous le pic (n_b) et l'éventuel mouvement propre, c'est-à-dire la mesure sans échantillon (n_{n0}).

Si n_n est supérieur à SD, un résultat en activité peut être fourni sous la forme $A \pm uA$ où uA est l'incertitude associée à l'activité A . Dans le cas contraire, le signal est considéré comme non significatif et le résultat déclaré inférieur à la limite de détection (LD) sous la forme $< LD$.

SD dépend également du risque α , que l'on pourrait appeler risque de « faux positif » ; il s'agit de la probabilité de déclarer que le résultat est significatif alors qu'il ne l'est pas, et donc de rendre une activité au lieu d'une limite de détection.

La limite de détection dépend de SD et également du risque β , que l'on pourrait appeler risque de « faux négatif » ; il s'agit de la probabilité de conclure à tort que l'échantillon n'est pas radioactif, ou du moins que son activité est inférieure à LD.

La plupart du temps les risques α et β sont choisis égaux et leur valeur est souvent de 2.5 % ou 5 %. Dans notre cas nous les fixons égaux à 2.5 %.

4.2.1 Spectrométrie γ classique

Le calcul d'activité d'un échantillon est fonction de plusieurs paramètres : le temps de mesure, le nombre d'événements dans le pic, l'intensité d'émission, le bruit de fond et un rendement d'absorption totale à l'énergie utilisée. Ce rendement d'absorption totale, qui sera par la suite appelé rendement, tient lui-même compte de la géométrie du détecteur et de la géométrie de comptage. Si une activité massique est recherchée il faut aussi inclure la masse de l'échantillon. L'équation (15) représente le calcul d'activité massique à partir du comptage net d'un pic :

$$A = \frac{n_n \omega}{t} \cdot F_c \quad [Bq \cdot kg^{-1}] \quad (15)$$

Avec :

n_n : nombre d'événements net dans le pic.

t : temps de comptage [s].

F_c : facteur de correction tenant compte de la décroissance radioactive, de l'auto-atténuation et du phénomène de coïncidence.

ω : défini par l'équation (16) :

$$\omega = \frac{1}{m I \varepsilon} \quad [kg^{-1}] \quad (16)$$

Avec :

ε : coefficient d'étalonnage tenant compte des rendements intrinsèque et géométrique.

m : masse de l'échantillon [kg].

I : intensité d'émission.

Les incertitudes associées sont données par l'équation (17) :

$$\frac{u_A}{A} = \sqrt{\left(\frac{u_{n_n}}{n_n}\right)^2 + \left(\frac{u_t}{t}\right)^2 + \left(\frac{u_\omega}{\omega}\right)^2} \quad (17)$$

L'incertitude sur le temps de mesure peut être négligée (équation (18)).

$$\left(\frac{u_t}{t}\right) \simeq 0 \quad (18)$$

D'après la norme ISO 11929 (ISO [30]), le seuil de décision se calcule à partir de l'incertitude sur l'activité :

$$u_A^2 = \left(\frac{\omega}{t}\right)^2 \left[n_n + \left(1 + \frac{1}{\chi}\right) n_b + n_n^2 \left(\frac{u_\omega}{\omega}\right)^2 \right] \quad (19)$$

D'après la norme ISO 11929, si $n_n = 0$:

$$SD = k_{(1-\alpha)} u_A(A=0) \quad (20)$$

$$SD = k_{(1-\alpha)} \sqrt{\left(1 + \frac{1}{\chi}\right) n_b} \quad [coups] \quad (21)$$

$$SD = k_{(1-\alpha)} \frac{\omega}{t} \sqrt{\left(1 + \frac{1}{\chi}\right) n_b} \quad [Bq \cdot kg^{-1}] \quad (22)$$

La limite de détection, en prenant $\alpha = \beta$ et en posant $K = k_{(1-\alpha)} = k_{(1-\beta)}$, est donnée par les équations (23) et (24). Ces limites peuvent être calculées selon d'autres techniques (Done and Ioan [19]).

$$LD = \frac{2 SD + K^2}{1 - K^2 \left(\frac{u_\omega}{\omega}\right)^2} \quad [coups] \quad (23)$$

$$LD = \frac{\omega}{t} \frac{2 SD + K^2}{1 - K^2 \left(\frac{u_\omega}{\omega}\right)^2} \quad [Bq \cdot kg^{-1}] \quad (24)$$

4.2.2 Spectrométrie γ en coïncidence

La spectrométrie en coïncidence peut fournir des spectres ou des matrices de coïncidence. Dans le cas des matrices, le calcul d'activité est proche de celui utilisé en spectrométrie classique avec l'équation (25) :

$$A_i = \frac{n_{n,i} \omega_i}{t m} \cdot F_c \quad [Bq \cdot kg^{-1}] \quad (25)$$

Avec :

$n_{n,i}$: nombre d'événements net dans l'empreinte i (avec $i=1$ ou $i=2$).

t : temps de comptage [s].

m : masse de l'échantillon [kg].

F_c : facteur de correction tenant compte de la décroissance radioactive, de l'auto-atténuation et du phénomène de coïncidence.

ω_i : défini par l'équation (26) :

$$\omega_i = \frac{1}{m C_i} \quad [kg^{-1}] \quad (26)$$

Avec :

m : masse de l'échantillon [kg]

C_i : coefficient d'étalonnage en coïncidence

Dans le cas des matrices de coïncidence, la ROI s'applique à une surface et non à un pic. En effet, l'empreinte est composée d'un nombre d'événements répartis sur une surface. Une région d'intérêt rectangulaire (figure 26) est définie autour de l'empreinte, ses dimensions (largeur et hauteur) dépendent des résolutions en énergie de chacun des détecteurs

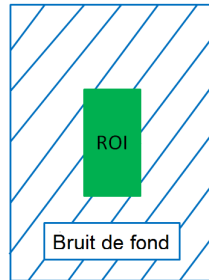


Figure 26 – Représentation schématique de la ROI d'une empreinte et de la surface servant à l'estimation du fond

L'algorithme effectue une recherche sur une zone environnant l'empreinte théorique afin de se centrer sur l'empreinte réelle, cette méthode permet de s'affranchir des éventuelles faibles variations de l'étalonnage en énergie des détecteurs. Une fois la ROI identifiée, l'algorithme compte le nombre d'événements présents à l'intérieur ainsi que le nombre d'événements environnant la ROI afin d'obtenir une estimation du bruit de fond. Le nombre d'événements net dans la ROI i est estimé avec l'équation suivante :

$$n_{n,i} = n_{g,i} - n_{b,i} \quad (27)$$

$$\chi = \frac{Surface(fond)}{Surface(ROI)} \quad (28)$$

Le nombre d'événements de bruit de fond dans l'empreinte est calculé avec l'équation (29).

$$n_{b,i} = \frac{N_{b,i}}{\chi} \quad (29)$$

Avec :

$n_{n,i}$: nombre d'événements net dans l'empreinte i.

$n_{g,i}$: nombre d'événements brut dans l'empreinte i .

$N_{b,i}$: nombre d'événements de fond environnant l'empreinte i .

$n_{b,i}$: nombre d'événements de fond normalisé à la surface de l'empreinte i .

Par analogie avec la spectrométrie classique, pour chaque empreinte, l'incertitude sur le nombre d'événements net est donnée par l'équation (30).

$$u_{n_{n,i}} = \sqrt{n_{n,i} + \left(1 + \frac{1}{\chi}\right) n_{b,i}} \quad (30)$$

Le calcul d'activité se fait à l'aide du coefficient d'étalonnage C_i , dont la détermination sera détaillée au paragraphe suivant. Une fois la ROI identifiée sur la matrice et le nombre d'événements déterminés, l'activité est calculée avec l'équation (31) pour chaque empreinte et l'incertitude relative associée est calculée grâce à l'équation (32) :

$$A_i = \frac{n_{n,i}}{C_i t m} \quad [Bq \cdot kg^{-1}] \quad (31)$$

$$\frac{u_{A_i}}{A_i} = \sqrt{\left(\frac{u_{n_{n,i}}}{n_{n,i}}\right)^2 + \left(\frac{u_t}{t}\right)^2 + \left(\frac{u_m}{m}\right)^2 + \left(\frac{u_{C_i}}{C_i}\right)^2} \quad (32)$$

Comme pour la spectrométrie classique, les incertitudes sur le temps (u_t) et la masse de l'échantillon sont négligées. Une fois l'activité évaluée pour chaque empreinte, les deux activités sont moyennées de manière quadratique pondérée (33) et l'incertitude associée est calculée à partir de l'équation (34).

$$\bar{A} = \frac{\sum_i \frac{A_i}{(u_{A_i})^2}}{\sum_i \frac{1}{(u_{A_i})^2}} \quad [Bq \cdot kg^{-1}] \quad (33)$$

$$u_{\bar{A}} = \frac{1}{\sqrt{\sum_i \frac{1}{(u_{A_i})^2}}} \quad [Bq \cdot kg^{-1}] \quad (34)$$

Comme pour la spectrométrie classique, les seuils de décision et limites de détection sont estimés en suivant le formalisme de la norme ISO 11929 à partir de l'incertitude sur l'activité de chaque empreinte ((21); (23)). De plus, ces limites s'expriment en coups ou en $Bq \cdot kg^{-1}$ à l'aide du temps de mesure et des coefficients d'étalonnage C_i ((35) et (36)).

$$SD_i = k_{(1-\alpha)} \frac{C_i}{t} \sqrt{\left(1 + \frac{1}{\chi}\right) n_b} \quad [Bq \cdot kg^{-1}] \quad (35)$$

Avec $K = k_{(1-\alpha)} = k_{(1-\beta)}$:

$$LD_i = \frac{C_i}{t} \frac{2 SD + K^2}{1 - K^2 \left(\frac{u_{\omega}}{\omega}\right)^2} \quad [Bq \cdot kg^{-1}] \quad (36)$$

Les limites caractéristiques sont moyennées quadratiquement ((37), (38)) pour une estimation plus précise.

$$\bar{SD} = \frac{1}{\sqrt{\sum_i \frac{1}{(SD_i)^2}}} \quad (37)$$

$$\bar{LD} = \frac{1}{\sqrt{\sum_i \frac{1}{(LD_i)^2}}} \quad [Bq \cdot kg^{-1}] \quad (38)$$

5 Etalonnage en rendement

5.1 Méthodes d'étalonnage utilisées

Le coefficient d'étalonnage tient compte de la réponse de la chaîne d'électronique et de deux sous-ensembles : le rendement intrinsèque du détecteur et le rendement géométrique. Le rendement intrinsèque est le nombre de photons qui ont déposé toute leur énergie dans le détecteur compte tenu d'un flux de photons arrivant sur sa surface d'entrée. Pour simplifier, si 100 photons d'une énergie donnée arrivent à la surface du détecteur et que 10 d'entre eux ont déposé toute leur énergie alors le rendement d'absorption totale intrinsèque est de 10 %. Le rendement géométrique tient compte de l'angle solide par lequel le détecteur voit l'échantillon. En d'autres termes si un échantillon émet 100 photons par seconde et qu'il en arrive 50 à la surface du détecteur alors le rendement géométrique est de 50 %. Le coefficient d'étalonnage est le produit de ces deux rendements.

En spectrométrie classique, les coefficients d'étalonnage en énergie sont représentés par une courbe de rendement en fonction de l'énergie (figure 27).

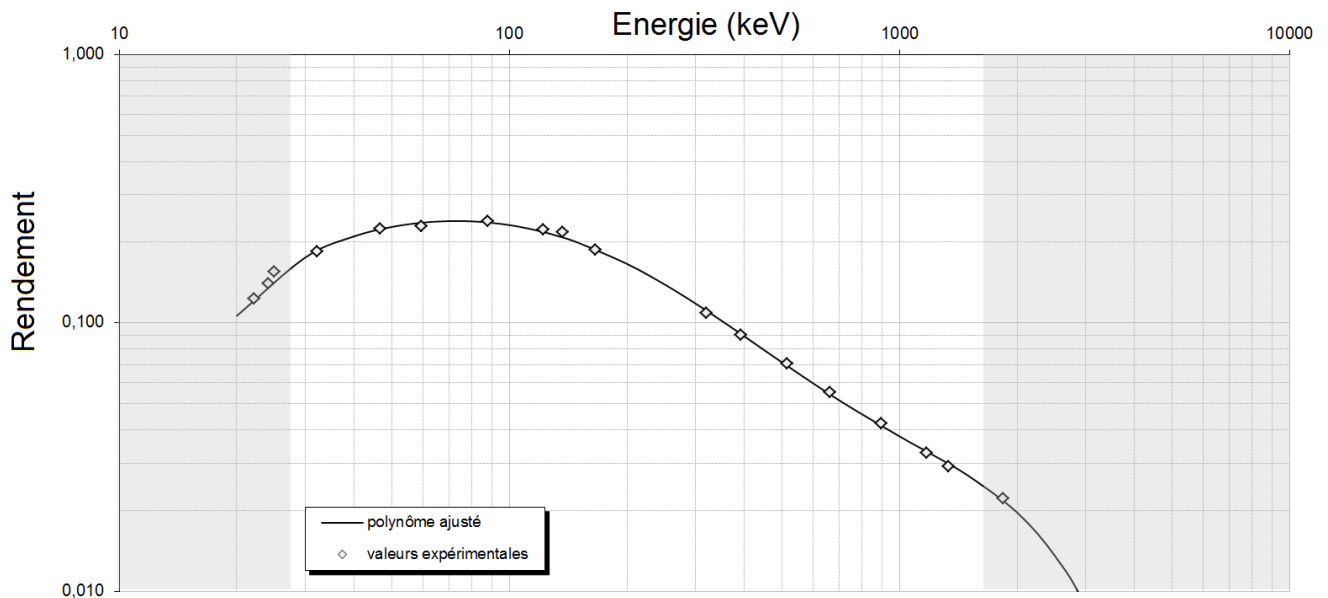


Figure 27 – Exemple de courbe d'étalonnage en rendement en fonction de l'énergie [keV] utilisée au laboratoire.

Cette courbe d'étalonnage peut s'obtenir par deux méthodes : la mesure de sources étalons ou la simulation Monte Carlo.

5.1.1 Etalonnage à l'aide de sources étalons

Les sources étalons utilisées sont des sources fournies par le Laboratoire des Etalons et Intercomparaisons de l'IRSN (PRP-ENV/STEME/LEI). Une solution multi- γ raccordée aux étalons primaires est diluée et mélangée à une résine équivalent eau de densité 1.15. Les différentes géométries de mesure sont remplies de ce mélange afin d'obtenir une source étalon pour chaque géométrie de mesure. La mesure de chaque géométrie sur chaque détecteur va permettre d'obtenir des courbes d'étalonnage en rendement pour chaque couple géométrie-détecteur. Il n'est pas possible d'avoir tous les radionucléides en sources étalons : certains sont difficiles à produire, d'autres ont des périodes trop courtes pour être utilisables dans des sources étalons classiques, enfin, des autorisations de détention de sources étalons sont nécessaires et le laboratoire n'en possède que pour un nombre restreint de radionucléides. Une méthode pour s'affranchir de l'utilisation de sources étalons est l'utilisation de la simulation Monte Carlo.

5.1.2 Etalonnage par simulation Monte Carlo

La méthode Monte Carlo, qui sera détaillée au paragraphe 7 de ce chapitre, permet de réaliser un étalonnage par simulation. Il est d'abord nécessaire de créer le modèle géométrique du système employé ; ensuite de définir les matériaux de chaque volume. Tous les volumes cibles dans lesquels sont susceptibles d'interagir les particules doivent être modélisés. Enfin la simulation des radionucléides présents dans les sources étalons permet d'avoir des points de comparaison dans les courbes d'étalonnage et donc de valider le modèle. La partie la plus longue et difficile est d'ajuster le modèle pour qu'il fournisse des résultats les plus proches possibles des valeurs expérimentales. En fonction de la complexité du système, les écarts entre les valeurs expérimentales et simulées varient de 1 à 15 %.

5.2 Calcul des coefficients d'étalonnage

5.2.1 Spectrométrie γ classique

Le calcul des coefficients d'étalonnage, pour les deux méthodes précédemment mentionnées, est réalisé à partir des pics d'absorption totale présents dans le spectre de mesure d'une source étalon ou le spectre simulé. Toute la gamme en énergie utilisée pour les mesures doit être couverte. Le mélange multi- γ des sources étalons est composé des radionucléides du tableau 4, la simulation Monte Carlo permet d'explorer une gamme d'énergie bien plus vaste que celle employée pour les mesures du laboratoire.

Radionucléide	Période (années)	Energie des principaux photons γ (keV)	Intensité (%)
^{241}Am	432.60	59.54	35.92
^{109}Cd	1.26	88.03	3.63
^{57}Co	0.74	122.06	85.51
^{139}Ce	0.38	165.86	79.90
^{51}Cr	0.07	320.08	9.87
^{113}Sn	0.31	391.70	64.97
^{137}Cs	30.05	661.66	84.99
^{88}Y	0.29	898.04 ; 1836.05	93.90 ; 99.32
^{60}Co	5.27	1173.23 ; 1332.49	99.85 ; 99.98

Tableau 4 – Composition du mélange de radionucléides composant les sources étalons mutli- γ , avec pour chaque radionucléide, sa période, ses principaux photons γ émis et leur intensité d'émission associée.

Le laboratoire demande l'ajout de ^{210}Pb dans le mélange multi- γ initial, ce qui donne une gamme d'énergie s'étendant de 46 keV (^{210}Pb) à 1836 keV (^{88}Y), ce qui représente une douzaine de pics utilisables. ^{51}Cr a une période assez courte et n'est plus en quantité suffisante très rapidement dans la source. ^{85}Sr ayant une raie à 514 keV, proche du pic d'annihilation à 511 keV n'est pas toujours utilisé. Le laboratoire a également recours à des sources avec un seul radionucléide comme ^{134}Cs ou ^{88}Y pour des utilisations particulières.

La mesure d'une source étalon ou une simulation va fournir un spectre dans lequel le nombre d'événements dans les pics sera utilisé pour calculer des coefficients d'étalonnage (ε_i) en fonction de l'énergie (équation (39)).

$$\varepsilon_i = \frac{n_{n,i}}{t A_i F_c I} \quad (39)$$

Avec :

$n_{n,i}$: nombre d'événements net dans le pic d'énergie i

A_i : activité du radionucléide [Bq]

F_c : facteur de correction tenant compte de la décroissance radioactive et du phénomène de coïncidence.

t : temps de mesure [s]

I : intensité d'émission du photon d'énergie i

Les facteurs de correction sont détaillés dans le paragraphe suivant. Les incertitudes sont négligeables sur le temps de mesure et sur l'intensité d'émission. Pour ε_i l'incertitude est donnée par l'équation (40).

$$\frac{u_{\varepsilon_i}}{\varepsilon_i} = \sqrt{\left(\frac{u_{n_{n,i}}}{n_{n,i}}\right)^2 + \left(\frac{u_{F_c}}{F_c}\right)^2 + \left(\frac{u_{A_i}}{A_i}\right)^2} \quad (40)$$

5.2.2 Spectrométrie γ en coïncidence

Pour évaluer l'activité d'un échantillon, à partir du nombre d'événements net, un étalonnage est nécessaire pour chaque géométrie de comptage, à savoir 17, 30 et 60 mL. Pour cela, une mesure d'une source étalon est effectuée. Un coefficient d'étalonnage est calculé pour chacune des deux empreintes. Le coefficient d'étalonnage est obtenu à partir du nombre d'événements net de la ROI dans une matrice de source étalon ($n_{n,i}^o$), de l'activité de la source (A_i^o) et du temps de comptage (t^o) (41) et l'incertitude associée est donnée par l'équation (42), l'incertitude sur le temps de mesure (t^o) est négligeable.

$$C_i = \frac{n_{n,i}^o}{t^o A_i^o} \quad (41)$$

Avec :

$n_{n,i}^o$: nombre d'événements net dans l'empreinte i du radionucléide.

A_i^o : activité du radionucléide dans la source.

t^o : temps de mesure de la source.

$$u_{C_i} = \sqrt{\left(\frac{u_{n_{n,i}^o}}{n_{n,i}^o}\right)^2 + \left(\frac{u_{A_i^o}}{A_i^o}\right)^2} \quad (42)$$

6 Corrections appliquées à l'activité

L'équation (15) fournit une valeur d'activité brute qui doit être corrigée de divers phénomènes : la décroissance radioactive, la différence entre les propriétés d'atténuation de la source et de l'échantillon, et les effets de sommation dus aux coïncidences.

6.1 Corrections de décroissance

Il est nécessaire de distinguer deux corrections de décroissance, la première entre la mesure et la date d'expression des résultats et la seconde durant la mesure. Pour des radionucléides à période très longue par rapport à la durée de la mesure, cette dernière est négligeable. La correction ne se fera que sur la différence en temps entre la date de mesure et celle d'expression des résultats en suivant la loi de décroissance radioactive (43).

$$A_{t=0} = A_t e^{\lambda t} \quad [Bq] \quad (43)$$

Avec :

$A_{t=0}$: activité à la date d'expression des résultats [Bq], en général la date de prélèvement de l'échantillon.

A_t : activité à la date de mesure [Bq]

λ : constante de désintégration radioactive [s^{-1}]

t : temps écoulé [s] entre la date de mesure et d'expression des résultats.

Le facteur de correction à appliquer à la mesure est alors :

$$FC_1 = e^{\lambda t} \quad (44)$$

La correction de décroissance pendant la mesure est à appliquer lorsque la durée de la mesure est non négligeable devant la période du radionucléide. Le facteur de correction est donné par l'équation (45).

$$FC_2 = \frac{\lambda t_m}{1 - e^{-\lambda t_m}} \quad (45)$$

Avec :

λ : constante radioactive [s^{-1}]

t_m : temps de mesure [s]

6.2 Corrections d'auto atténuation

L'atténuation des photons dans la source étalon et dans l'échantillon étant différente, il faut corriger l'activité obtenue. Le facteur de correction d'atténuation est fonction de la densité de l'échantillon quelle que soit l'énergie des photons considérés. A très basse énergie la composition chimique joue un rôle important sur l'atténuation des photons dans l'échantillon. Plusieurs techniques existent pour déterminer ce facteur de correction, comme la mesure par transmission de l'échantillon ou la simulation Monte Carlo. Le laboratoire possède un banc de transmission équipé d'une source ^{133}Ba et ^{109}Cd qui permet de mesurer les coefficients d'atténuation (μ) d'un échantillon et donc de calculer un facteur de correction. Pour la simulation, lorsqu'un système de détection est correctement modélisé, les facteurs de correction de densité et de composition chimique se calculent en simulant différentes densités d'échantillon. Cette technique sera utilisée et détaillée plus loin dans ce manuscrit (§ 4 du chapitre III).

6.3 Corrections de coïncidence

Enfin, certains émetteurs, dits en coïncidence, auront une perte de comptage dans leurs pics de pleine énergie à cause du phénomène de coïncidence. Cette perte peut engendrer l'apparition de pics somme. Dans certains cas le phénomène de coïncidence peut engendrer une augmentation du comptage si la somme des énergies des photons en coïncidence est égale à l'énergie d'un autre photon émis par le radionucléide, comme par exemple le ^{57}Co . Les deux photons γ de 1173 keV et 1332 keV de ^{60}Co , engendrent un pic somme à 2505 keV dans le spectre. Ce pic apparaît lorsque les deux photons d'une même désintégration sont détectés simultanément dans le détecteur. Ce dernier va enregistrer un dépôt d'énergie égal à la somme des énergies de chaque photon. Ce phénomène conduit à une perte de comptage dans les pics à 1173 keV et 1332 keV qu'il est nécessaire de corriger. Plusieurs techniques existent : la méthode analytique, la méthode expérimentale et la simulation Monte Carlo.

- Méthode analytique : cette méthode (Tomarchio and Rizzo [48]) se base sur des équations élaborées à partir de la géométrie du système de mesure et de la physique probabiliste d'une désintégration radioactive.
- Méthode expérimentale : La méthode expérimentale consiste à mesurer le rendement d'un pic d'absorption totale en faisant varier la distance source-détecteur. A partir d'une certaine distance il n'y a plus de coïncidences et le rendement ne dépend que du flux de photons. Le ratio entre la mesure à distance et au contact est le facteur de correction de coïncidence

(Boshkova [6]).

- Simulation : De nombreux codes de calcul permettent d'évaluer les facteurs de correction des coïncidences. Le code de calcul MCNP_CP simule les schémas de désintégration et peut servir de référence.

Ces trois méthodes sont comparées entre elles dans différentes publications (Zhu and Berlizov [55]; Dziri et al. [20]; Quintana and Montes [43]; Zhu et al. [56]; Jutier and Le Petit [32]) et des inter-comparaisons entre différents laboratoires (Lépy et al. [39]) sont réalisées pour comparer ces méthodes. On remarque que les logiciels tels que GESPECOR, basé sur la méthode de Monte Carlo, ou encore ETNA, basé sur des expressions analytiques, sont les plus utilisés et donnent des résultats fiables. Les géométries des systèmes sont décrites dans les logiciels et une simulation numérique permet de calculer les facteurs de correction.

7 La simulation Monte Carlo en spectrométrie γ

Les simulations numériques sont largement utilisées en physique nucléaire. La majorité est basée sur la méthode de Monte Carlo de par le caractère probabiliste des interactions nucléaires. La spectrométrie γ , utilisée pour mesurer la radioactivité, phénomène aléatoire, a également recours à ce type de simulation numérique. Ces simulations sont utilisées pour modéliser des phénomènes qui seront ensuite validés par l'expérience, pour concevoir de nouvelles expériences ou encore pour en remplacer certaines non réalisables dans un laboratoire. Il est possible de rencontrer des modèles d'une expérience du LHC, comme un modèle d'une source ponctuelle en radioprotection. Certains laboratoires n'ayant pas d'autorisation de détention de sources radioactives ont recours à l'étalonnage par simulation Monte Carlo pour réaliser leurs mesures.

Les méthodes Monte Carlo sont basées sur la génération de nombres aléatoires utilisés pour résoudre des problèmes probabilistes. Chaque modèle a une densité de probabilité associée pour représenter les phénomènes qui peuvent se dérouler en son sein. Dans le cas de la physique nucléaire, les interactions étant très bien connues, la simulation Monte Carlo fournit des résultats très proches de la réalité. Dans notre cas précis, le phénomène simulé est le transport de particules dans la matière, avec toutes les interactions possibles. Nombreux sont les codes de calcul adaptés au transport de particules, par exemple GEANT4 (Agostinelli et al. [1]), MCNP (Waters et al. [50]), PENELOPE (Sempau et al. [46]). Le laboratoire utilise le code de calcul MCNPX et son extension MCNP_CP.

Bien que le terme "méthode Monte Carlo" ait été inventé par Metropolis et Ulam en 1947 (Metropolis and Ulam [41]) qui cherchaient une méthode pour résoudre les équations de Boltzman et Schrödinger. Le code Monte Carlo N-Particule transport (MCNP) fut développé par le laboratoire Los Alamos durant le projet Manhattan lors de la seconde guerre mondiale. Le code a subi de nombreuses évolutions et aujourd'hui présente plusieurs extensions dont MCNPX et MCNP_CP. MCNPX (Monte Carlo with N Particules eXtended est la fusion des codes MCNP et LAHET (Los Alamos High Energy Transport) et permet la simulation du transport de 34 types de particules.

MCNP_CP (Monte Carlo N-Particule transport for Correlated Particule) a été développé par Andrey Berlizov (Berlizov [4]) et s'appuie sur la bibliothèque Evaluated Nuclear Structure Data File (BNL [5]) pour simuler la physique des désintégrations radioactives. Cela comprend les schémas de désintégration de la majorité des isotopes radioactifs. Toutes les caractéristiques du schéma sont prises en compte, comme les intensités d'émissions, les durées de vie des niveaux ou encore la corrélation angulaire entre deux photons.

Quel que soit le code utilisé, MCNPX ou MCNP_CP, le programme est composé d'un fichier principal créé par l'utilisateur qui fera appel à différents sous programmes. L'architecture d'un programme principal est la suivante :

```
#Cellules  
#Surfaces  
#Physique  
#Tallies (résultats)  
#Matériau
```

Les cellules et les surfaces permettent de définir la géométrie du problème. Les matériaux sont utilisés dans cette dernière. La partie physique permet de définir le type de particules simulées et les volumes dans lesquels elles sont émises, qui sont les volumes sources. Différents types de sources sont réalisables, ponctuelle, surfacique ou encore volumique. Les «tallies», que l'on peut traduire par "score", définissent le type de résultat et le volume dans lequel il est récupéré. Les résultats sont de divers types : flux de particules surfacique ou volumique ou encore l'énergie déposée dans le volume. Dans notre cas, nous utilisons le tally F8, «pulse height tally» qui représente l'énergie déposée dans un volume cible. Contrairement au tally F6 qui représente l'énergie déposée par rapport à l'énergie de la particule incidente, le tally F8 exprime le nombre d'occurrences en fonction de l'énergie déposée. Ce type de résultats est parfaitement adapté à la spectrométrie γ car il est directement comparable à un spectre.

Chapitre III

Le système anti-Compton

Sommaire

1	Matériel	42
1.1	Détecteurs	42
1.2	Electronique	43
2	Algorithme d'analyse	44
3	Etalonnage	50
3.1	Etalonnage à l'aide de sources étalons	50
3.2	Etalonnage par simulation Monte Carlo	51
3.3	Facteurs de correction d'atténuation	56
4	Bruit de fond du système	58

1 Matériel

1.1 Détecteurs

La méthode de mesure par spectrométrie γ en coïncidence a été développée, dans un premier temps, sur le système anti-Compton du laboratoire temps car le matériel et l'électronique étaient déjà présents au laboratoire. La forte demande d'abaissement des limites de détection pour la mesure de ^{60}Co nous a conduit à travailler en premier lieu sur ce radionucléide.

Le système utilisé, installé en 1996, est composé d'un détecteur germanium coaxial hyper pur (HPGe) et de deux scintillateurs NaI, un cylindre creux et un cylindre qui ferme la géométrie pour qu'elle soit proche d'une configuration 4π (figure 28). Le spectromètre germanium, fourni par la société CANBERRA, est un coaxial de type N : REGe (chapitre II § 2.1.2). D'une efficacité relative importante (51 %) et bas bruit de fond, le détecteur est équipé d'un col de cygne, qui permet de déporter l'électronique et d'une fenêtre d'entrée mince. Le spectromètre est utilisé pour la mesure et les scintillateurs NaI pour le véto. L'ensemble de détection est entouré d'un blindage en plomb bas bruit de fond d'une épaisseur de 10 cm : 8 cm de plomb faible activité ($\text{FA} < 30 \text{ Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$) et 2 cm de plomb très faible activité ($\text{TFA} < 0.3 \text{ Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$) à l'intérieur. Le système est installé au second sous-sol du laboratoire, sous une dalle de 3 mètres de béton boré.

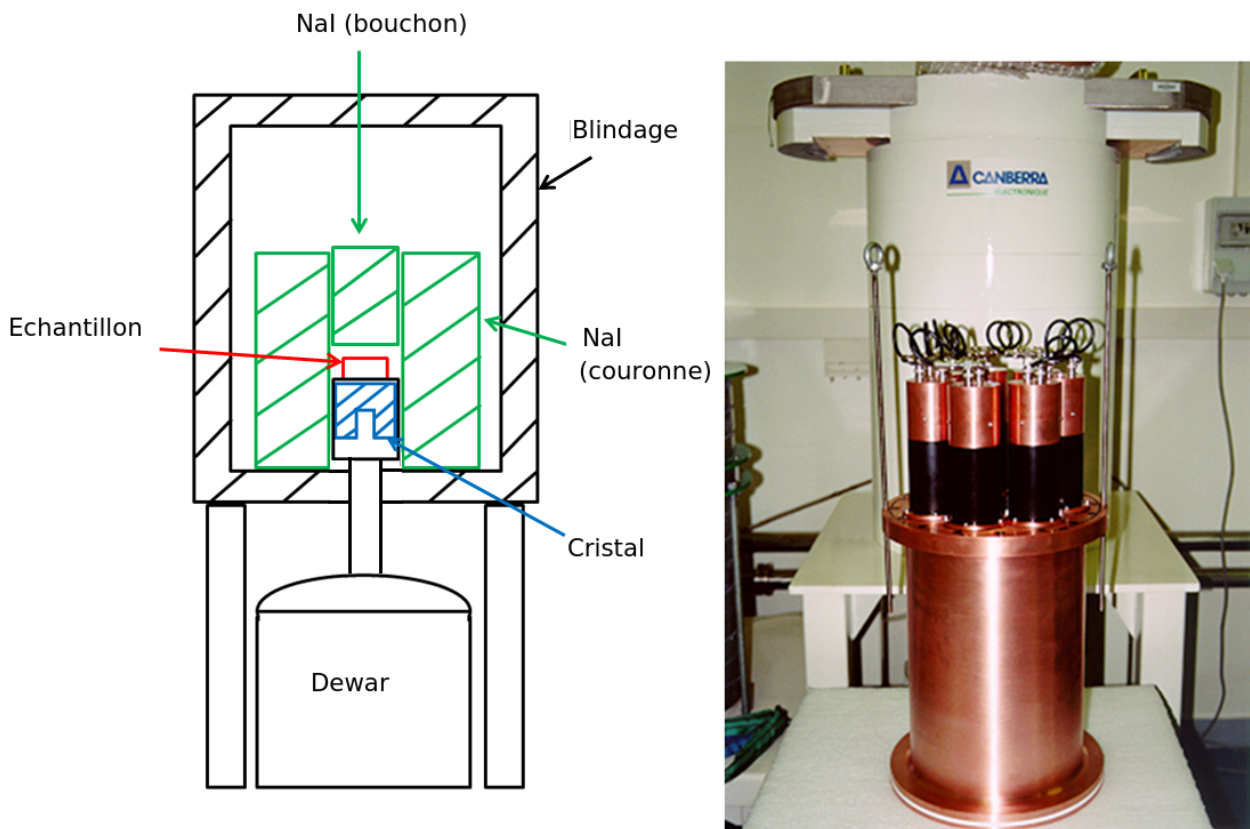


Figure 28 – Système anti-Compton : schéma à gauche (germanium en bleu, NaI en vert et échantillon en rouge), photo du NaI à droite.

Les dimensions du cristal de germanium sont détaillées dans la figure 29. Il est maintenu par un support en cuivre et protégé par un capot en aluminium avec une fenêtre d'entrée de 1 mm. La couronne de NaI a un diamètre intérieur de 105.6 mm, un diamètre extérieur de 240 mm et une hauteur de 368 mm. Le cylindre qui ferme la cavité a un diamètre de 90 mm et une hauteur de 76 mm.

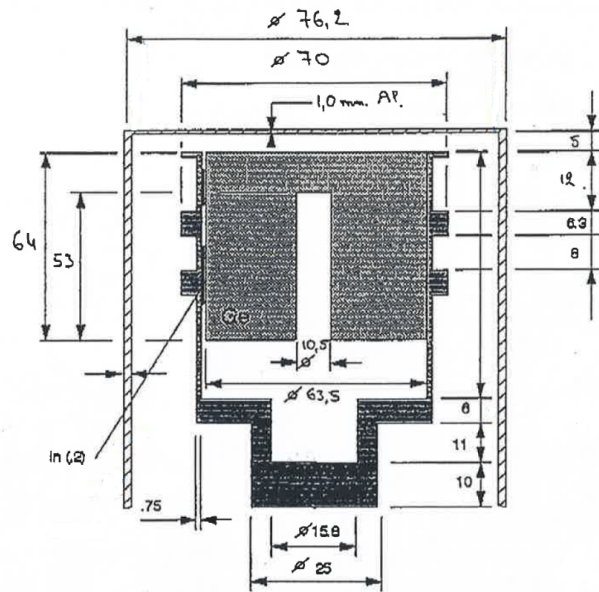


Figure 29 – Schéma et cotes (mm) du spectromètre germanium de type REGe de CANBERRA du système anti-Compton.

1.2 Electronique

Le système de détection est piloté par l'analyseur multiparamétrique numérique, MPA-3, de la société FASTCOM (FAST [22]) mémoire lui permettant d'enregistrer les données en mode liste. L'analyse peut donc être réalisée en ligne avec un affichage des spectres : spectre germanium, spectre NaI, anti-coïncidence, en coïncidence et de la matrice de coïncidence. Le fichier en mode liste est enregistré en binaire et une relecture post acquisition permet de le convertir en fichier texte. Tous les événements vus par le système sont écrits dans le fichier texte, qu'ils soient simples ou en coïncidence. Il y a trois types d'événements, chacun étant repéré grâce à un indicateur : EC 1 pour les événements germanium, EC 2 pour les événements NaI et EC 3 pour les événements en coïncidence. Chaque indicateur est suivi d'une ligne avec le ou les dépôts d'énergie correspondant (E_{Ge} , E_{NaI}). L'architecture du fichier mode liste est la suivante :

EC 2	Indicateur dépôt d'énergie dans NaI
C0 « valeur »	Energie déposée dans NaI : E_{NaI}
EC 1	Indicateur dépôt d'énergie dans Germanium
C1 « valeur »	Energie déposée dans Ge : E_{Ge}
EC 3	Indicateur dépôt en coïncidence
C0 « valeur 1 »	Energie déposée dans NaI : E_{NaI}
C1 « valeur 2 »	Energie déposée dans Ge : E_{Ge}

Si l'événement est unique, il sera suivi d'une seule valeur de dépôt d'énergie tandis qu'il y aura deux valeurs pour un événement en coïncidence. A partir de ce fichier, tous les spectres et la matrice de coïncidence peuvent être tracés.

De plus, l'électronique numérique permet de conserver les événements «out of range», c'est-à-dire hors gamme, du scintillateur NaI et du spectromètre germanium, qui sont liés aux dépôts d'énergie qui les ont saturés. Ces événements avec un fort dépôt d'énergie sont engendrés par les rayonnements cosmiques qui peuvent ensuite créer des particules secondaires qui vont déposer leur énergie dans le spectromètre germanium. L'électronique identifie tous les événements hors gamme d'un détecteur dans le canal 0 de son spectre associé. En réalisant une mesure en anti-coïncidence qui tient compte du canal 0 le système anti-Compton permet de faire aussi de la mesure anti-cosmique et donc limiter le bruit de fond cosmique du spectre germanium.

2 Algorithme d'analyse

L'analyse est basée sur les fichiers enregistrés en mode liste par le MPA-3. Pour la spectrométrie classique ou en anti-coïncidence (anti-Compton et anti-cosmique), des spectres sont tracés pour identifier les pics caractéristiques d'un radionucléide recherché. En revanche, pour la spectrométrie en coïncidence, le tracé d'une matrice de coïncidence est plus approprié.

Afin de construire la matrice, il est nécessaire d'identifier les événements en coïncidence dans le fichier mode liste grâce à l'indicateur «EC 3». L'algorithme va lire les deux lignes suivantes qui correspondent aux énergies libérées déposées dans les détecteurs. L'élément de la matrice correspondant au couple d'énergies (E_{Ge} , E_{NaI}) est incrémenté. L'échelle des couleurs représente le nombre d'événements dans chaque élément de la matrice (figure 30). Il est facile de repérer les empreintes de ^{60}Co dans cette matrice tracée grâce à une simulation de ^{60}Co , ^{241}Am et ^{137}Cs .

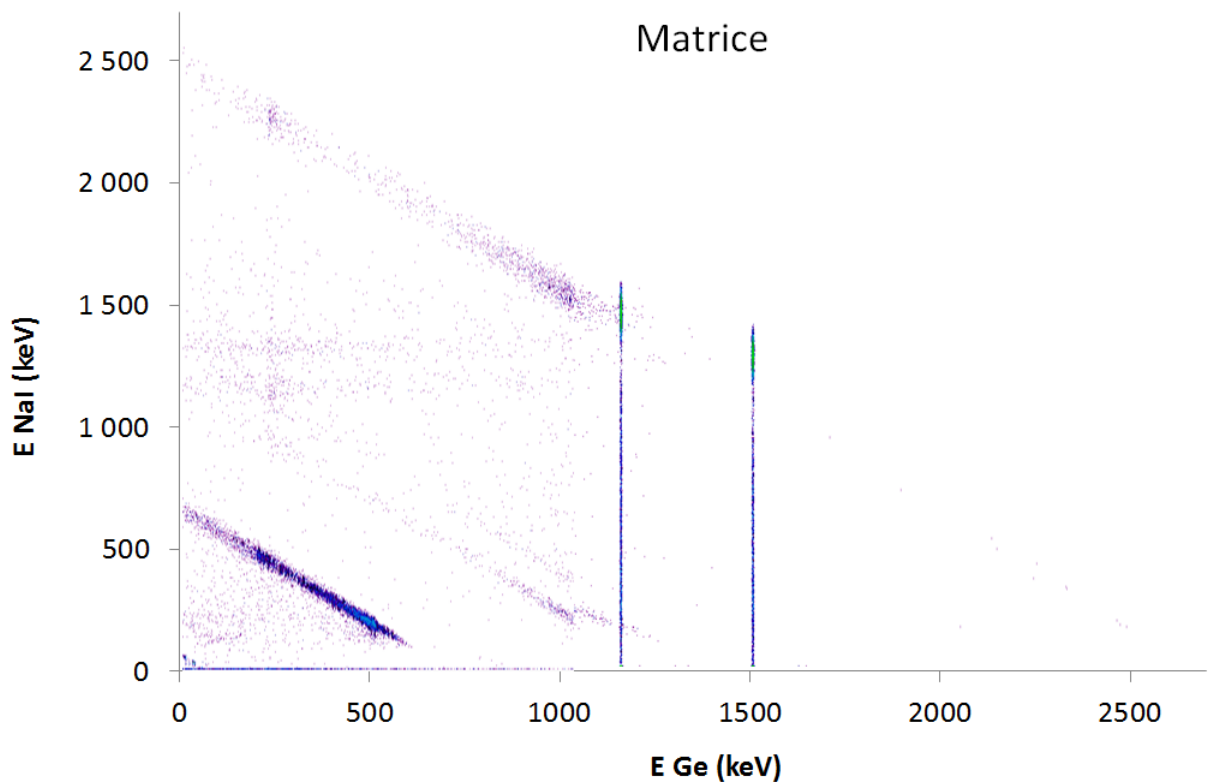


Figure 30 – Matrice de coïncidence obtenue par la simulation MCNP_CP d'une source contenant ^{60}Co , ^{241}Am et ^{137}Cs .

Pour le système anti-Compton, le détecteur germanium est codé sur 8192 canaux et le détecteur NaI sur 1024 pour une gamme d'énergie de 0 à 2700 keV. Afin d'avoir une résolution maximale, la matrice de coïncidence a une taille de $2^{13} \times 2^{10} = 2^{23}$ éléments. Chaque pixel de la matrice a des dimensions en énergie de 0.33 keV en germanium par 2.7 keV en NaI (figure 31).

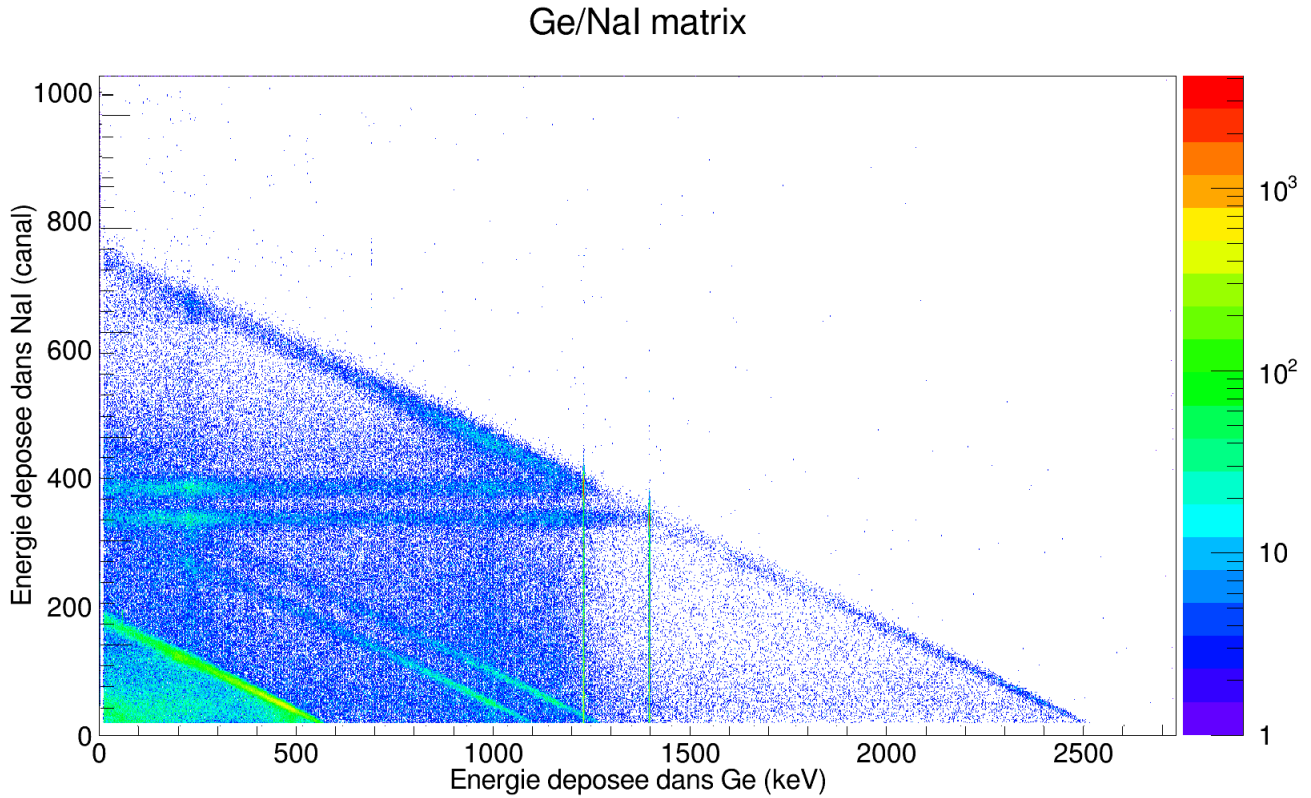


Figure 31 – Matrice de coïncidence obtenue par la mesure d'une source contenant ^{60}Co , ^{241}Am et ^{137}Cs .

Afin de sélectionner les événements souhaités, une zone d'intérêt entourant l'empreinte est définie, cette zone d'intérêt est rectangulaire. En effet, la figure 32 montre que le fond est du même ordre de grandeur tout autour de l'empreinte et qu'il est nécessaire de l'estimer dans la ROI à partir d'une zone environnant cette dernière. Une empreinte de ^{60}Co dans la matrice a été projetée selon différents axes et dans chaque cas le fond à gauche ou à droite du pic est du même ordre de grandeur et au moins 100 fois inférieur au nombre d'événements dans le pic.

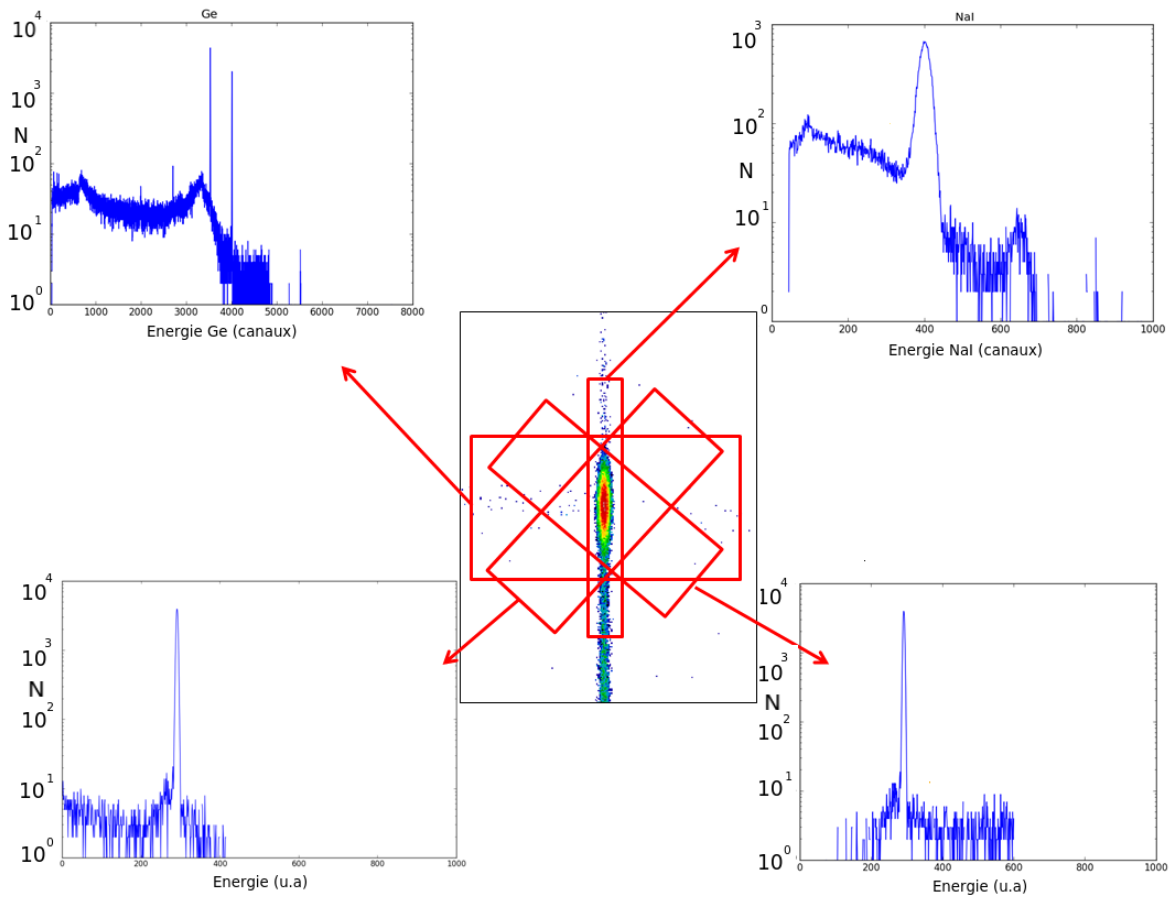


Figure 32 – Projections selon différentes directions de l’empreinte de la matrice du système anti-Compton : $E_{Ge} = 1173$ keV et $E_{NaI} = 1332$ keV.

La ROI rectangulaire en vert (figure 33) définit la zone sur laquelle sera comptabilisé le nombre d’événements. Il est aussi nécessaire d’estimer le nombre d’événements de fond à l’intérieur de cette ROI à l’aide du fond environnant (en bleu) et de la normaliser grâce à un facteur χ (chapitre II, § 4.2.2).

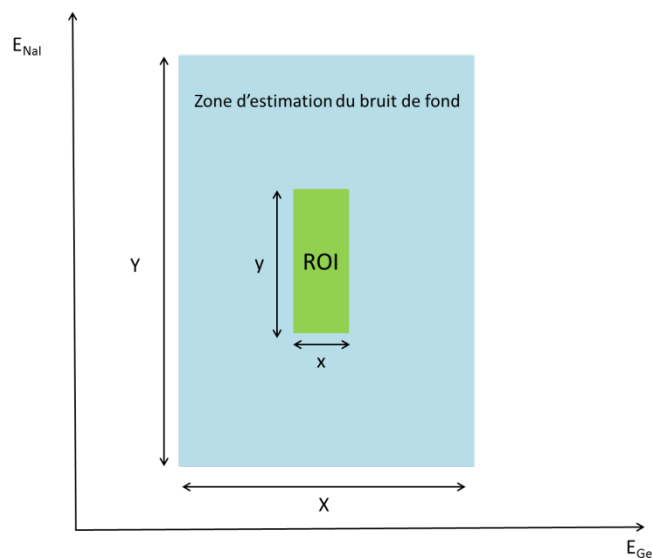


Figure 33 – Dimensions de la ROI et de la zone d’estimation du fond d’une empreinte.

Les dimensions (x et y) de la ROI sont proportionnelles à la résolution de chacun des détecteurs (R_{Ge} et R_{NaI}) et les dimensions de la zone d'estimation de fond sont proportionnelles à x et y :

$$x = a R_{Ge} \quad (46)$$

$$y = b R_{NaI} \quad (47)$$

$$X = A x \quad (48)$$

$$Y = B y \quad (49)$$

Avec :

x : largeur de la ROI

y : hauteur de la ROI

X : largeur de la zone d'estimation du bruit de fond

Y : hauteur de la zone d'estimation du bruit de fond

a, b, A, B : constantes

Le facteur χ utilisé pour la normalisation du bruit de fond à l'intérieur de la ROI, dans ces conditions, est donné par l'équation (50).

$$\chi = \frac{XY - xy}{xy} = AB - 1 \quad (50)$$

La figure 34 représente l'évolution de la résolution en énergie en fonction de l'énergie exprimée en keV, l'équation (51) permet de calculer la résolution absolue en fonction de l'énergie. La résolution du NaI est quant à elle fournie par l'équation (52).

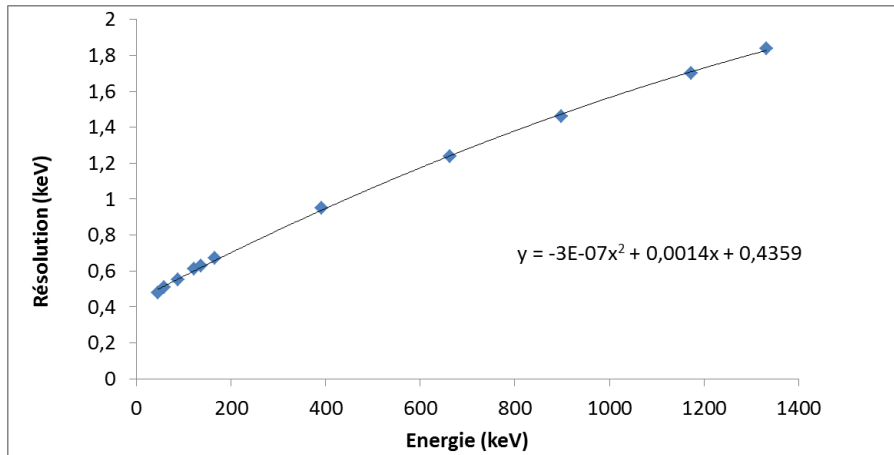


Figure 34 – Résolution en énergie du spectromètre germanium du système anti-Compton en fonction de l'énergie (keV).

$$R_{Ge} = -3 \cdot 10^{-7} E^2(keV) + 0.0014 E(keV) + 0.4359 \quad [keV] \quad (51)$$

$$R_{NaI} = 0.07 E(keV) \quad [keV] \quad (52)$$

Il a été nécessaire de trouver les valeurs de a, b, A et B optimales pour avoir une bonne estimation du nombre d'événements net dans l'empreinte. Pour commencer, A et B ont été fixés pour avoir une zone d'estimation de fond la plus importante possible sans aller compter des événements d'autres empreintes. En effet, comme la résolution en NaI est importante, la dimension y est de l'ordre de la centaine de keV pour les empreintes de ^{60}Co ; pour ne pas augmenter le fond à cause d'autres émetteurs, nous avons fixé $A=B=5$ (figure 35).

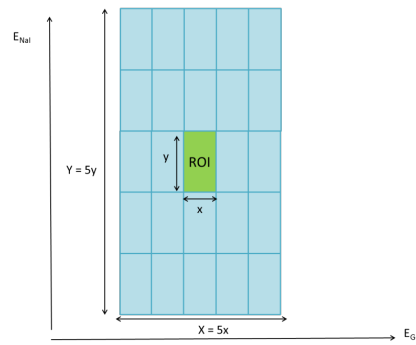
Configuration 1 :

Figure 35 – ROI et zone d'estimation de fond avec $\chi = 24$, utilisées pour le système anti-Compton dans la première configuration.

Donc :

$$X = 5 x \quad (53)$$

$$Y = 5 y \quad (54)$$

Cette configuration donne un facteur de normalisation χ de 24. La norme ISO 11929 et le DROP recommandent d'utiliser une ROI de 2.5 fois la résolution d'un pic pour estimer le nombre d'événements à l'intérieur en spectrométrie classique. Par analogie, la largeur et la hauteur pour la ROI ont été fixées à 2.5 fois la résolution du détecteur correspondant. Afin de vérifier que les valeurs $a=b=2.5$ sont optimales, nous avons fait varier a et b et regardé l'évolution du rapport signal sur bruit pour les deux empreintes de ^{60}Co sur une matrice d'une source mesurée sur le système ACS. Les résultats sont regroupés sur le tableau 5. Les rapports signal sur bruit maximaux sont mis en évidence dans les cases vertes pour chaque empreinte.

Rapport signal sur bruit pour l'empreinte 1173/1332					
$a \backslash b$	1.5	2	2.5	3	3.5
1.5	53	70	68	65	62
2	53	70	68	65	62
2.5	48	60	59	57	54
3	40	50	52	47	45
3.5	35	42	41	40	38
Rapport signal sur bruit pour l'empreinte 1332/1173					
$a \backslash b$	1.5	2	2.5	3	3.5
1.5	64	67	67	66	64
2	73	77	76	75	72
2.5	65	68	67	66	64
3	53	55	55	54	52
3.5	44	45	45	44	43

Tableau 5 – Rapports signal sur bruit en fonction des dimensions de la ROI utilisée pour quantifier les empreintes dans la matrice du système anti-Compton avec $\chi = 24$.

Les valeurs optimales de a et b pour les deux empreintes sont respectivement 2 à 2.5 et 2 pour ce modèle de ROI et de zone de d'estimation du bruit de fond.

Ce test a été réalisé avec une autre configuration qui permet de limiter l'apport du fond du détecteur NaI en définissant une zone d'estimation du bruit de fond moins haute que pour la configuration 1 (figure 36).

Configuration 2 :

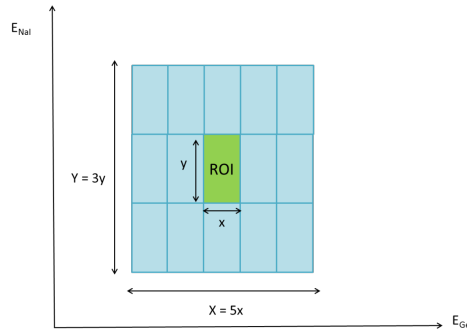


Figure 36 – ROI et zone d'estimation de fond avec $\chi = 14$, utilisées pour le système anti-Compton dans la seconde configuration.

Dans cette configuration :

$$X = 5 \cdot x \quad (55)$$

$$Y = 3 \cdot y \quad (56)$$

Le facteur de normalisation, χ est égal à 14. La même étude de l'évolution du rapport signal sur bruit en fonction de a et b a été réalisée et est présentée dans le tableau 6 :

Rapport signal sur bruit pour l'empreinte 1173/1332					
$a \backslash b$	1.5	2	2.5	3	3.5
1.5	41	58	57	54	51
2	47	69	67	63	59
2.5	45	65	63	60	56
3	40	56	55	52	49
3.5	36	48	47	45	42
Rapport signal sur bruit pour l'empreinte 1332/1173					
$a \backslash b$	1.5	2	2.5	3	3.5
1.5	52	57	58	58	57
2	69	77	78	77	74
2.5	68	74	73	72	68
3	59	63	63	61	59
3.5	51	54	53	52	50

Tableau 6 – Rapports signal sur bruit en fonction des dimensions de la ROI utilisée pour quantifier les empreintes dans la matrice du système anti-Compton avec $\chi = 14$

Conclusion :

Les deux configurations de ROI et zone d'estimation du bruit de fond (figures 35 et 36) montrent que les valeurs optimales pour a et b sont respectivement 2.25 et 2. Comme le rapport signal sur bruit est aussi élevé avec les deux modèles, le second sera utilisé car il restreint la zone d'estimation du bruit de fond à une surface plus petite. Une surface réduite évite de comptabiliser comme du bruit des empreintes d'un autre radionucléide qui serait proche des empreintes recherchées. Pour récapituler, les dimensions de la ROI et de la zone d'estimation du bruit de fond sont :

$$x = 2.25 R_{Ge} \quad (57)$$

$$y = 2 R_{NaI} \quad (58)$$

$$X = 5 x \quad (59)$$

$$Y = 3 y \quad (60)$$

$$\chi = 14 \quad (61)$$

Les activités et limites caractéristiques sont calculées à l'aide des équations (33), (35) et (36) du chapitre II.

3 Etalonnage

3.1 Etalonnage à l'aide de sources étalons

Pour évaluer l'activité d'un échantillon, à partir du nombre d'événements net, un étalonnage est nécessaire pour chaque géométrie de comptage utilisée, à savoir 17, 30 et 60 mL. Les sources employées sont celles décrites au chapitre II.5.1. L'incertitude sur l'activité, donnée par le certificat d'étalonnage, est comprise entre 3 % et 5 %. Onze raies en énergie sont utilisées pour réaliser une courbe d'étalonnage, de 46 keV (^{210}Pb) à 1836 keV (^{88}Y). Les trois graphiques suivants (figure 37) représentent les courbes d'étalonnage en énergie pour les 3 géométries utilisées dans le système anti-Compton. Plus la géométrie de comptage est petite meilleur est le rendement car l'angle solide est d'autant plus important que le diamètre de la géométrie est faible. De plus, le rendement est moins important à basse énergie (46 keV) à cause de la forte auto absorption de l'échantillon à cette énergie et de la fenêtre en aluminium du détecteur.

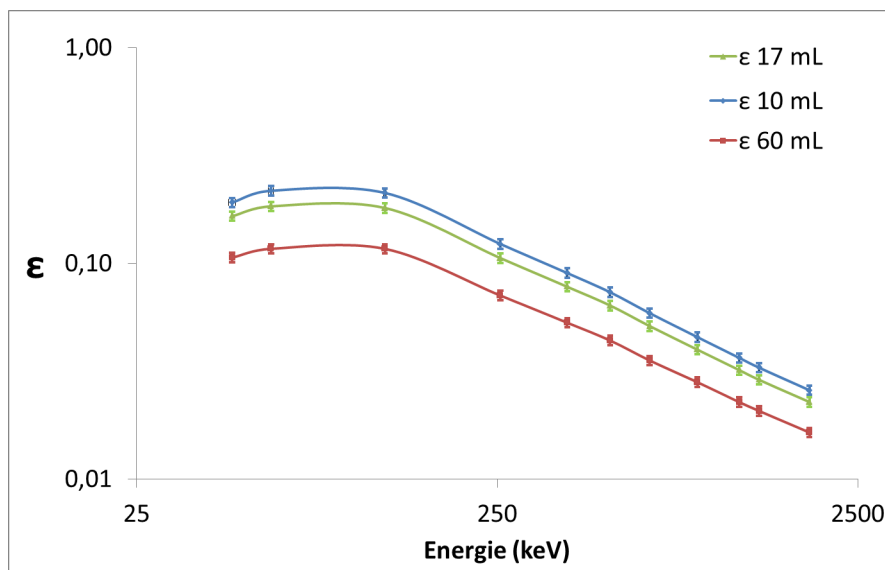


Figure 37 – Courbes d'étalonnage en rendement en fonction de l'énergie du spectromètre germanium du système anti-Compton pour les 3 géométries utilisées (10, 17 et 60 mL).

Pour la spectrométrie en coïncidence, un coefficient d'étalonnage est calculé pour chacune des empreintes du radionucléide présent dans la source étalon. Ce coefficient est obtenu à partir du nombre d'événements net de la ROI, de l'activité de la source et du temps de comptage (équation (41) du chapitre 2.5.3). Le tableau 7 regroupe les coefficients d'étalonnages C_i de ^{60}Co pour les 3 géométries de sources et leurs incertitudes associées (u_{C_i}) avec un facteur d'élargissement $k=2$.

Géométrie (mL)	C_1	C_2
10	$1.28(9) 10^{-2}$	$1.21(9) 10^{-2}$
17	$1.13(11) 10^{-2}$	$1.08(11) 10^{-2}$
60	$8.1(8) 10^{-3}$	$7.8(8) 10^{-3}$

Tableau 7 – Coefficient d'étalonnage en coïncidence de ^{60}Co et incertitudes associées (u_{C_i} ($k=2$)) pour les 3 géométries de comptage (10, 17 et 60 mL)

Les coefficients d'étalonnage sont plus faibles qu'en spectrométrie classique ; à titre de comparaison, le ^{60}Co est mesuré à l'aide du pic à 1332 keV pour lequel le rendement est de 2.0 % pour la géométrie de 60 mL. En effet, le pic à 1173 keV n'est pas utilisable car il est en interférence avec un pic du ^{214}Bi . La comparaison doit être réalisée entre 2.0 % et la somme des coefficients d'étalonnage en coïncidence, soit 1.6 %. La perte en rendement est minime, et est largement compensée par la forte réduction du bruit de fond, comme nous le verrons par la suite.

3.2 Etalonnage par simulation Monte Carlo

L'étalonnage peut également se faire avec des simulations à l'aide de code Monte Carlo. Pour le réaliser, nous avons utilisé le code de calcul MCNP_CP qui fournit un fichier en mode liste avec lequel les spectres et matrices pourront être tracés. La modélisation du système anti-Compton (figure 38) a été réalisée à l'aide des plans constructeur, des cotes et des courbes d'étalonnage en énergie pour affiner le modèle.

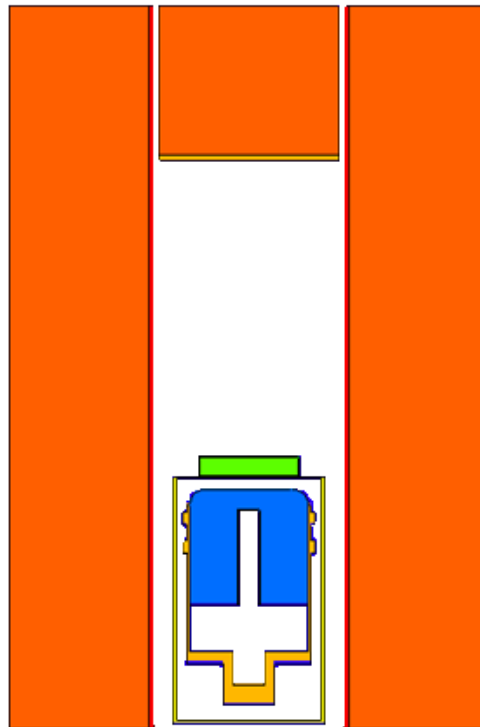


Figure 38 – Modèle MCNP_CP en 2 dimensions du système anti-Compton, cristal de germanium en bleu, scintillateur NaI en orange et échantillon en vert.

Le cristal du détecteur germanium coaxial est en bleu, entouré d'un support en cuivre (jaune), lui-même protégé par un capot en aluminium (orange). L'échantillon est représenté en vert et les scintillateurs NaI (couronne + bouchon) sont en orange, leurs couches internes, en magnésium (couronne) en rouge et en cuivre (bouchon) en jaune sont modélisées car elles atténuent une partie des photons venant de l'échantillon, notamment ceux à basse énergie. Un premier modèle a été réalisé avec les données du constructeur et les cotes prises sur le système réel. S'en est suivi un travail d'affinage du modèle à l'aide des différentes mesures des sources étalons de 10 mL, 17 mL et 60 mL pour converger vers le modèle utilisé à l'heure actuelle (figure 38).

La simulation fournit un fichier en mode liste dans lequel sont répertoriés tous les dépôts d'énergie dans chacun des deux détecteurs en fonction du temps. Le temps utilisé est un temps virtuel fourni par l'ordinateur mais qui est relatif aux temps réels des désintégrations radioactives simulées. Ce fichier est organisé comme suivant :

Résultat temps ordinateur énergie déposée (MeV)

Le résultat utilisé est le dépôt d'énergie dans un détecteur (tally F8), et les temps et énergies déposées sont utilisés pour la construction des spectres et matrices souhaitées. Les lignes suivantes sont un extrait d'un fichier mode liste simulé avec le modèle du système anti-Compton :

18	0.8919036173118742E+07	0.48820E+00
28	0.1096130245084270E+08	0.51268E+00
18	0.1096130247093485E+08	0.84890E-01
18	0.1427832489983166E+08	0.19834E-01
28	0.1887459968760990E+08	0.12100E-03

Le tri des événements se fait en comparant chaque ligne avec la suivante afin de savoir s'ils sont en coïncidence. Lorsqu'une coïncidence est identifiée, les spectres et la matrice sont incrémentés, il en est de même pour les spectres en anti-coïncidence et les spectres classiques. Lorsque que toutes les représentations sont tracées, les courbes d'étalonnage en énergie et les coefficients d'étalonnage en coïncidence sont obtenus de la même manière qu'avec des spectres ou des matrices obtenus avec des sources étalons. Les figures suivantes représentent la comparaison entre les courbes d'étalonnage en énergie obtenues avec des sources étalons et avec MCNP_CP :

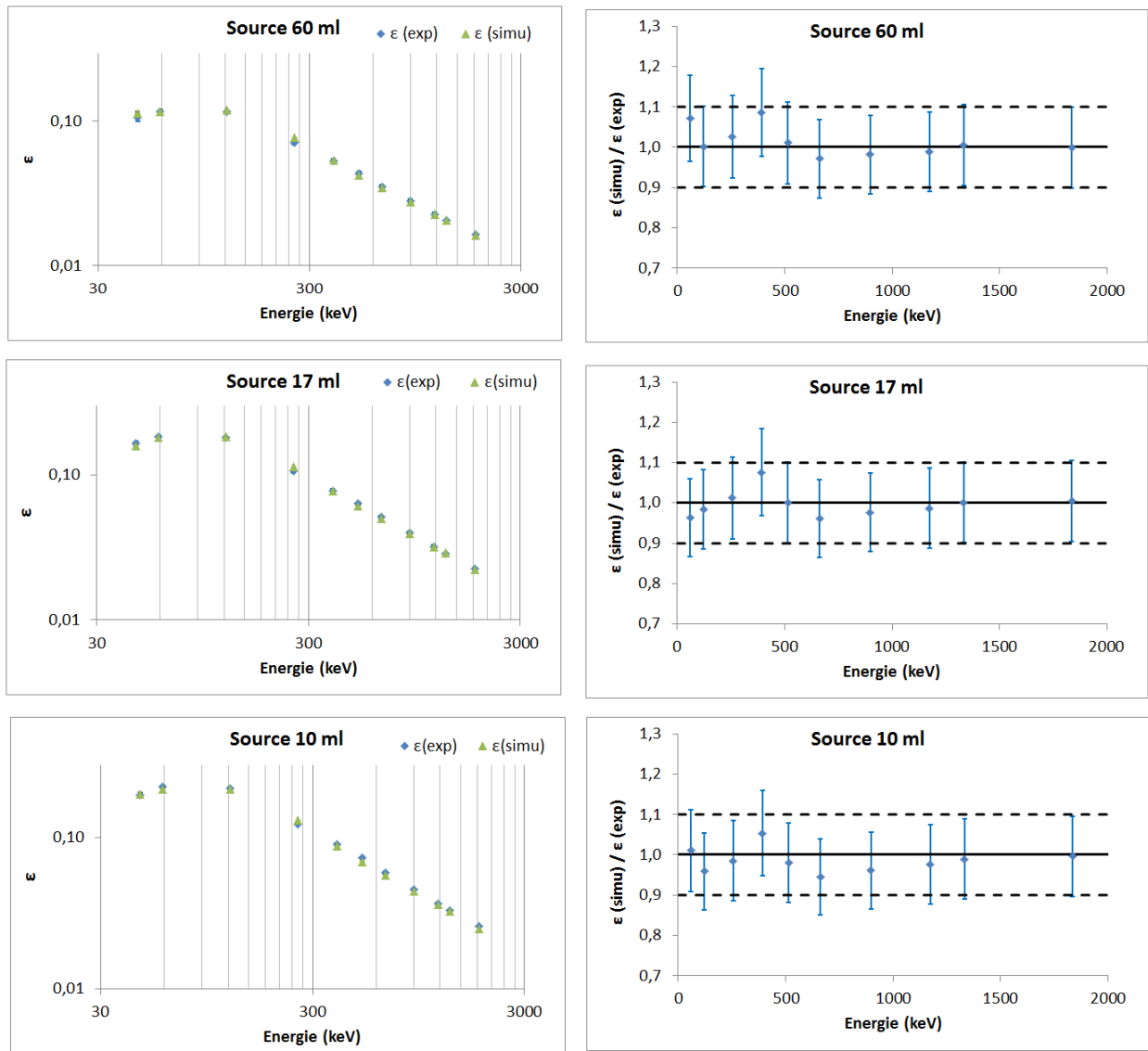


Figure 39 – Comparaison des courbes de rendement (ϵ) expérimentales et simulées pour les différentes géométries de comptage (de haut en bas : 60 mL, 17 mL, 10 mL) en fonction de l'énergie. Superposition des deux courbes à gauche (expérimentale en bleu et simulée en vert) et ratios entre les rendements expérimentaux et simulés à droite.

Tous les points de comparaison sont compatibles aux incertitudes près pour les trois géométries de comptage. L'écart maximum identifié est de 9%.

Pour la spectrométrie en coïncidence, les coefficients d'étalonnage sont comparés. Une fois la matrice tracée avec les mêmes propriétés (dimensions, résolutions, gamme d'énergie), la détermination du nombre d'événements se fait avec le même algorithme que pour que la mesure d'une source. Nous disposons de 3 sources de 60 mL et 3 sources de 17 mL contenant chacune de ^{60}Co et de ^{88}Y ainsi qu'une source de 10 mL contenant les mêmes radionucléides. La simulation fournit les coefficients d'étalonnages suivants (tableau 8) pour ces deux émetteurs en coïncidence :

Radionucléide	Géométrie (mL)	C_1	C_2
^{88}Y	10	$1.34(8) \cdot 10^{-2}$	$1.03(6) \cdot 10^{-2}$
	17	$1.17(7) \cdot 10^{-2}$	$9.1(5) \cdot 10^{-3}$
	60	$8.2(5) \cdot 10^{-3}$	$6.4(5) \cdot 10^{-3}$
^{60}Co	10	$1.33(8) \cdot 10^{-2}$	$1.27(8) \cdot 10^{-2}$
	17	$1.18(7) \cdot 10^{-2}$	$1.12(7) \cdot 10^{-2}$
	60	$8.3(5) \cdot 10^{-3}$	$7.8(5) \cdot 10^{-3}$

Tableau 8 – Coefficients d'étalonnage de ^{60}Co et ^{88}Y en coïncidence simulés pour les trois géométries de comptage (10, 17 et 60 mL) et incertitudes associées ($k=2$).

Les graphiques suivants représentent la comparaison entre les coefficients d'étalonnage simulés et ceux calculés à partir d'une source étalon. La comparaison est faite pour chaque coefficient de chaque empreinte (C_1 et C_2).

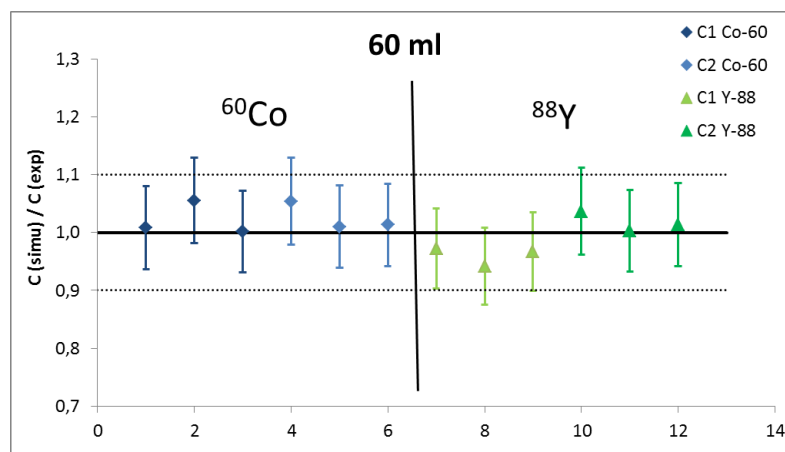


Figure 40 – Ratios entre les coefficients d'étalonnage simulés et expérimentaux pour la géométrie de 60 mL, pour chacune des deux empreintes (C_1 et C_2) de ^{60}Co (bleu) et ^{88}Y (vert). Trois sources différentes ont été mesurées.

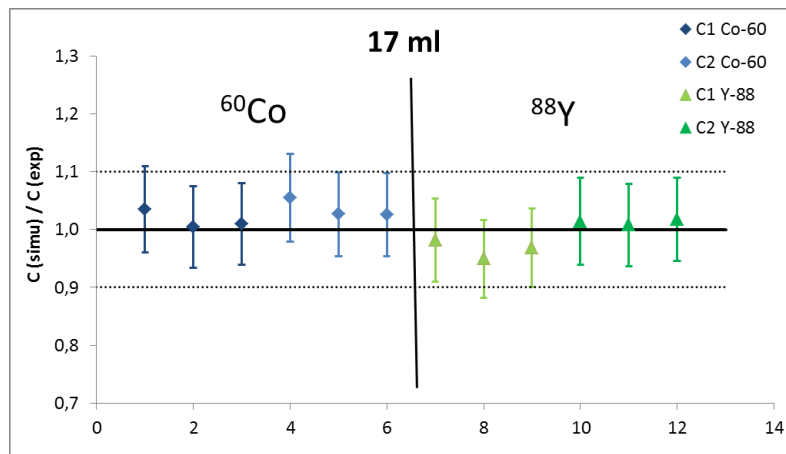


Figure 41 – Ratios entre les coefficients d'étalonnage simulés et expérimentaux pour la géométrie de 17 mL, pour chacune des deux empreintes (C_1 et C_2) de ^{60}Co (bleu) et ^{88}Y (vert). 3 sources différentes ont été mesurées.

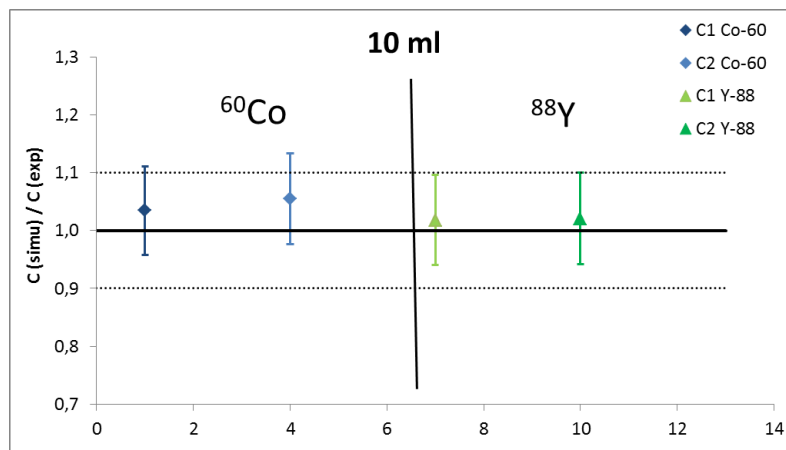


Figure 42 – Ratios entre les coefficients d'étalonnage simulés et expérimentaux pour la géométrie de 10 mL, pour chacune des deux empreintes (C_1 et C_2) de ^{60}Co (bleu) et ^{88}Y (vert).

Les coefficients d'étalonnage obtenus avec les mesures de sources étalons ou avec la simulation sont en très bon accord avec des écarts inférieurs à 5 %. Pour résumer, les rendements classiques du modèle correspondent à moins de 9 %, les coefficients d'étalonnage en coïncidence à 5 %. C'est pour ces raisons que l'incertitude globale associée au modèle sera prise à 10 %.

3.3 Facteurs de correction d'atténuation

Ce modèle permet également de calculer des facteurs de correction d'atténuation de l'échantillon. En effet, l'atténuation des photons γ dans une source étalon en résine de densité 1.15 et dans les échantillons est différente et il n'est pas juste d'utiliser exactement le même facteur d'étalonnage pour une source que pour un échantillon. L'atténuation à l'intérieur de la géométrie de comptage est fonction de la densité et de la composition chimique du matériau. Des facteurs de correction (§ 6 du chapitre II) doivent être appliqués à la formule de calcul de l'activité.

Une étude a été réalisée sur la composition chimique et la densité des principaux types d'échantillons environnementaux mesurés au laboratoire. Trois sols, des végétaux en cendres et des végétaux secs ont été simulés en suivant des compositions et des densités précises (tableau 9).

Proportions des différents éléments en fonction du matériau								
qualité	Sol			Végétaux en cendre			Végétaux secs	Résine
Matériaux Élément	Sol 1	Sol 2	Sol 3	Blé	Lavande 1	Lavande 2	Cellulose	Résine
H	0.022	0.1	/	/	/	/	0.48	0.0725
O	0.575	0.78	0.452	0.6	0.5	0.52	0.24	0.176
Al	0.085	/	0.083	0.02	/	0.01	/	/
Si	0.262	/	0.25	0.23	0.12	0.07	/	/
Fe	0.056	/	/	/	/	/	/	/
C	/	0.114	/	/	/	/	0.28	0.7465
N	/	0.004	/	/	/	/	/	0.005
S	/	0.002	/	/	/	/	/	/
Ca	/	/	0.041	0.08	0.18	0.36	/	/
Mg	/	/	0.025	/	/	/	/	/
K	/	/	0.018	0.07	0.2	0.04	/	/
densité	1.28	1.28	1.28	0.86	0.86	0.86	0.72	1.15

Tableau 9 – Compositions chimiques des différents échantillons utilisées pour l'étude de l'atténuation avec les proportions massiques et les densités.

Pour chaque échantillon, des désintégrations de ^{60}Co ont été simulées et les facteurs d'étalonnage en coïncidence ont été comparés à ceux obtenus avec la résine utilisée pour les sources étalons. Aux énergies de ^{60}Co , c'est-à-dire 1173 keV et 1332 keV, aucune variation significative n'a été identifiée en fonction de la composition chimique de l'échantillon. Pour une géométrie donnée, quelle que soit la composition chimique du matériau, les facteurs d'étalonnage en coïncidence varient uniquement en fonction de la densité de cette matrice. Par exemple les végétaux secs ($\rho = 0.72$) ont un facteur d'étalonnage 8 % plus élevé que les sols ($\rho = 1.28$). La figure 43 représente l'évolution des coefficients d'étalonnage pour ^{60}Co en fonction de la densité. Les coefficients d'étalonnage varient linéairement en fonction de la densité de l'échantillon.

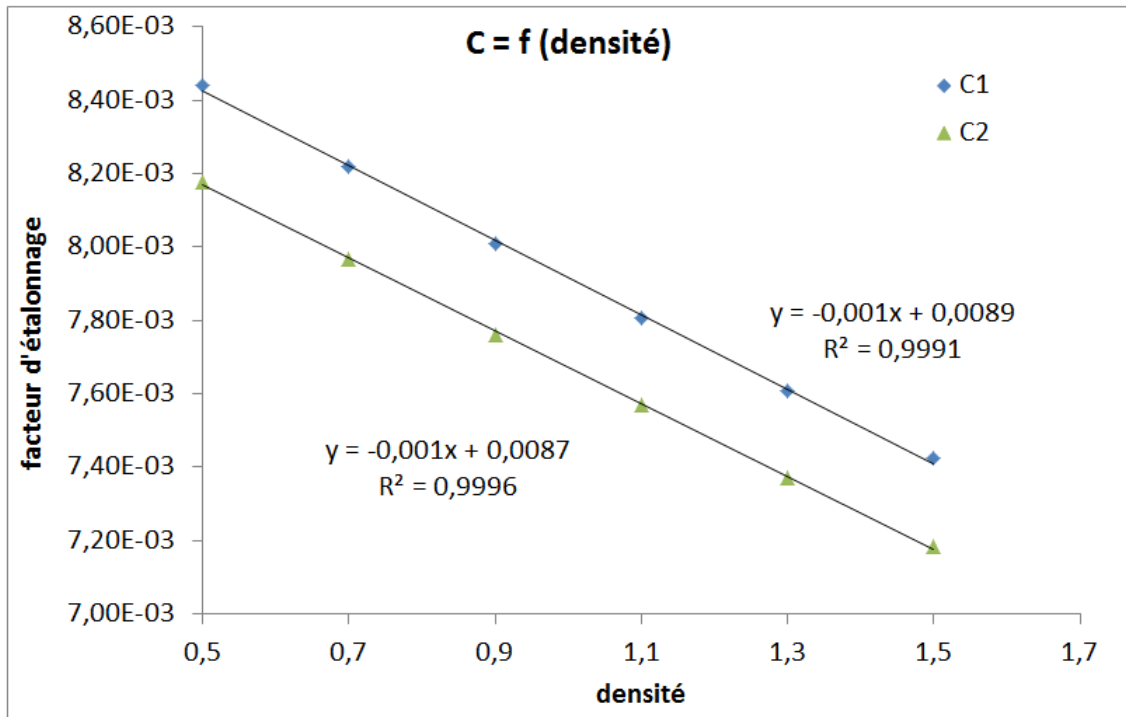


Figure 43 – Coefficients d'étalonnage de ^{60}Co en coïncidence, C_1 (bleu) et C_2 (vert), en fonction de la densité de l'échantillon et ajustement linéaire $C=f(d)$.

Le système a été étalonné avec des sources étalons contenant ^{60}Co et ^{88}Y . Les résultats concordent aux incertitudes près. Le modèle MCNP_CP sera utilisé pour la mesure d'échantillons lorsque les radionucléides recherchés ne seront pas disponibles en sources étalons. De plus, le modèle a permis de tracer des courbes de correction d'atténuation basées sur la densité de l'échantillon pour ^{60}Co et pourra être étendu à d'autres radionucléides si le besoin se présente.

4 Bruit de fond du système

Des mesures de bruit de fond d'une durée d'une semaine sont réalisées tous les deux mois dans le cadre des contrôles d'assurance qualité. Ces mesures permettent d'une part de soustraire des calculs d'activité une éventuelle présence du radionucléide recherché dans le bruit de fond du système et d'autre part de vérifier que le système n'a pas été contaminé. La figure 44 représente le spectre d'une mesure du bruit de fond effectuée durant le mois d'août 2015.

On remarque la présence des différentes sources de bruit de fond détaillées au chapitre 1.2. Les familles naturelles de ^{238}U (^{234}Th) et ^{232}Th (^{208}Tl) sont présentes, ainsi que les descendants particuliers du radon (^{214}Bi) et ^{40}K pour la radioactivité tellurique. Comme le système est installé au sous-sol du laboratoire, la dalle de béton boré diminue le rayonnement cosmique qui est alors presque uniquement composé de muons. Ces muons vont interagir avec le blindage du détecteur et engendrer des neutrons tertiaires (Gastrich et al. [24]). De plus, les muons vont créer du rayonnement de freinage qui va engendrer un fond continu dans le spectre, avec une forte proportion dans la gamme 0-500 keV.

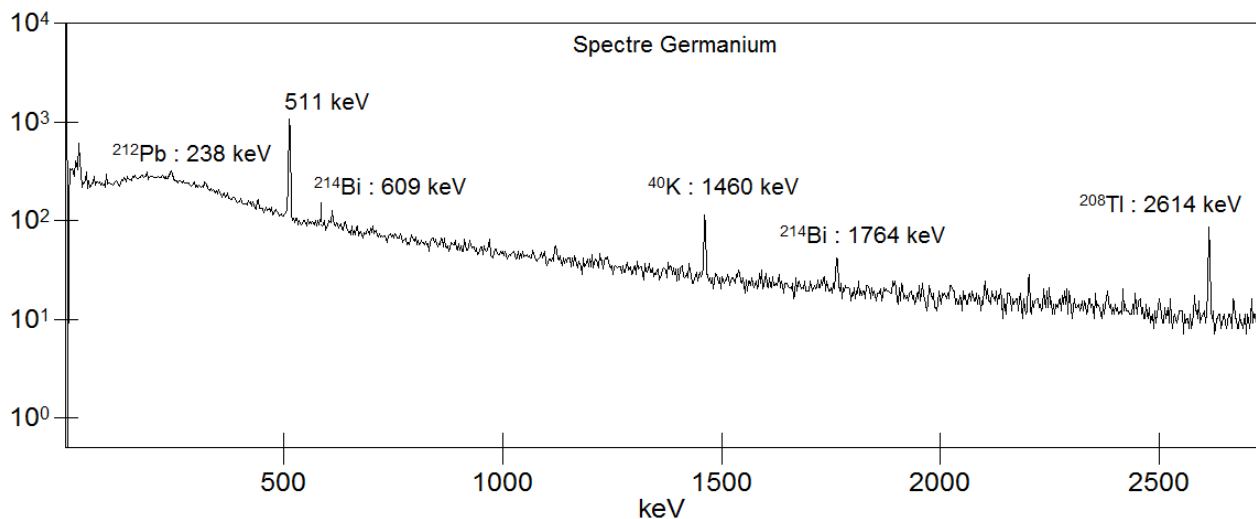


Figure 44 – Spectre de la voie normale (sans veto) d'une mesure de bruit de fond du dispositif du système anti-Compton (durée d'acquisition : 560 000 s).

Le tableau 10 regroupe tous les pics identifiés dans le bruit de fond avec leur origine et le taux de comptage associé au pic. Outre les différents pics dus à la radioactivité naturelle, tellurique et cosmique, on note la présence de photons X de l'iode, ces photons sont émis suite à la photo-ionisation des atomes d'iode dans le scintillateur NaI.

Enfin, la présence de neutrons tertiaires (Gastrich et al. [24]) engendre des réactions nucléaires sur certains composants du système. D'abord dans le cristal de germanium, on observe des réactions (n, n') sur les isotopes stables du germanium ^{71m}Ge et ^{73m}Ge . Ensuite, la présence en forte proportion de cuivre autour du scintillateur conduit à l'apparition des pics d'activation neutronique (n, γ) sur le ^{63}Cu , un des isotopes stables du cuivre. Sur la gamme 30 keV – 2700 keV le taux de comptage global dans le spectre germanium est de $0.77 \text{ coup} \cdot \text{s}^{-1} \cdot \text{kg}_{\text{Ge}}^{-1}$.

E (keV)	RN	N (h^{-1})	E (keV)	RN	N (h^{-1})
27.4	$X_{K\alpha}$ Te	1.85	238.7	^{212}Pb	1.42
28.5	$X_{K\alpha}$ I	9.83	351.8	^{214}Pb	1.10
32.5	$X_{K\beta}$ I	4.38	511.0	annihilation	52.99
46.7	^{210}Pb	3.00	609.3	^{214}Bi	1.24
66.5	^{73m}Ge	1.56	911.1	^{228}Ac	0.71
92.7	^{234}Th	1.72	1120.0	^{214}Bi	0.50
185.9	^{235}U	1.71	1460.7	^{40}K	3.68
198.7	^{71m}Ge	0.67	1764.4	^{214}Bi	1.10
202.8	^{64}Cu	0.55	2614.8	^{208}Tl	3.41

Tableau 10 – Liste des pics présents dans le spectre germanium classique d’une mesure de bruit de fond du système anti-Compton.

Pour les mesures en coïncidence, le nombre d’événements dans une matrice de bruit de fond est faible (figure 45). Ce bruit de fond a été mesuré 560 000 s et la matrice comptabilise 41900 événements, soit un taux de comptage de $0.07 \text{ coups}\cdot\text{s}^{-1}$ sur l’ensemble de la matrice. Cette matrice ne présente que très peu d’empreintes dues aux radionucléides naturels (encadrées en vert), les plus visibles étant celles de ^{208}Tl (2614 keV + 583 keV(canal 203)) et de ^{214}Bi (1120 keV + 609 keV(canal 213)). On remarquera la présence de la diagonale de ^{40}K , dont les proportions sont non négligeables (tableau 10).

Ge/Nal matrix

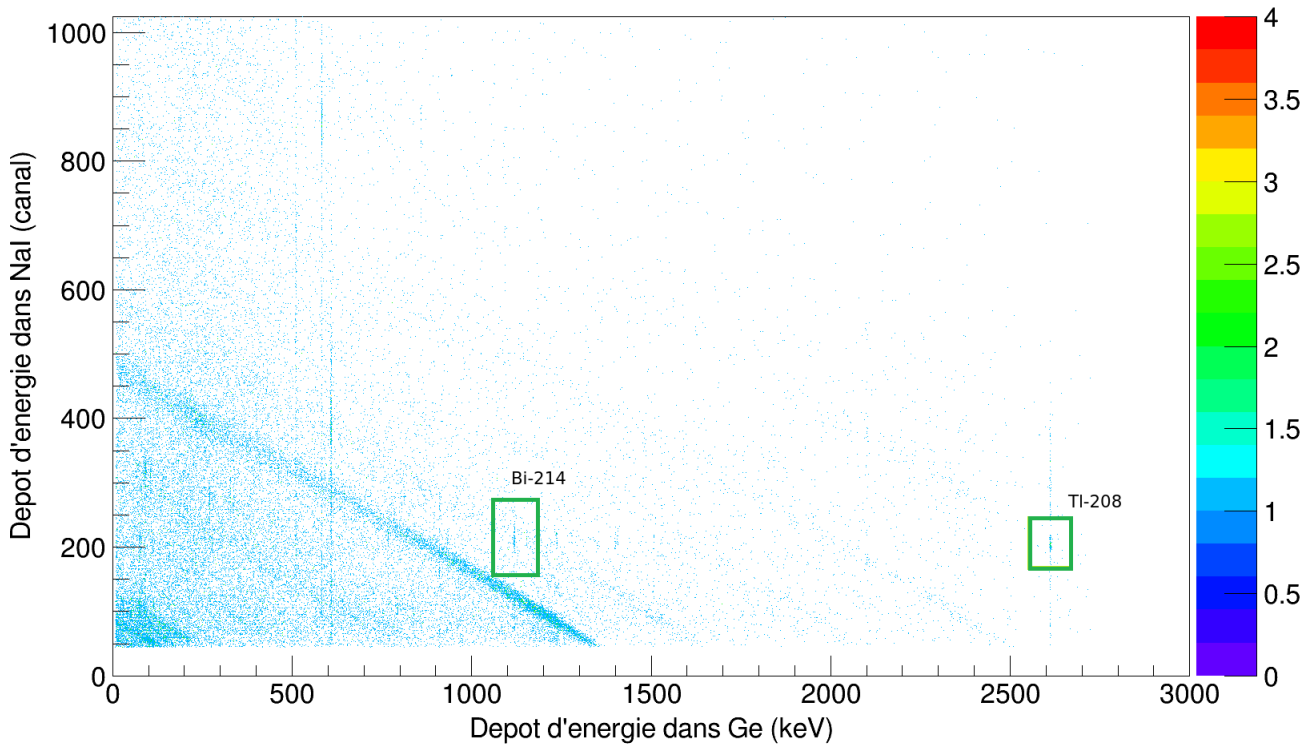


Figure 45 – Matrice de coïncidence de bruit de fond du système anti-Compton, avec encadrées en vert les empreintes caractéristiques (1120 keV - 609 keV) de ^{208}Tl et (2614 keV - 583 keV) de ^{214}Bi .

La figure 46 est un zoom sur la zone de la matrice à l'emplacement théorique des empreintes de ^{60}Co . Les zones rectangulaires en vert représentent la zone de l'empreinte et celles en rouge la zone d'estimation du bruit de fond.

La première empreinte comptabilise 1 coup et la zone d'estimation de fond 11 coups, lorsqu'ils sont normalisés à la surface de l'empreinte cela donne 0.8 coups de fond sous l'empreinte, soit un nombre de coups net de 0.2. Pour la seconde empreinte, 1 coup est présent dans l'empreinte et 14 dans la zone de fond, pour un nombre de coups net égal à 0.

Cette mesure de mouvement propre d'une durée d'une semaine, montre que le bruit de fond est nul dans les empreintes de ^{60}Co . Les mesures usuelles de ^{60}Co , d'une durée d'un à trois jours, ne seront pas affectées par le bruit de fond du système. Cela permet de ne pas insérer de composante de bruit de fond dans le calcul d'activité ou des limites caractéristiques.

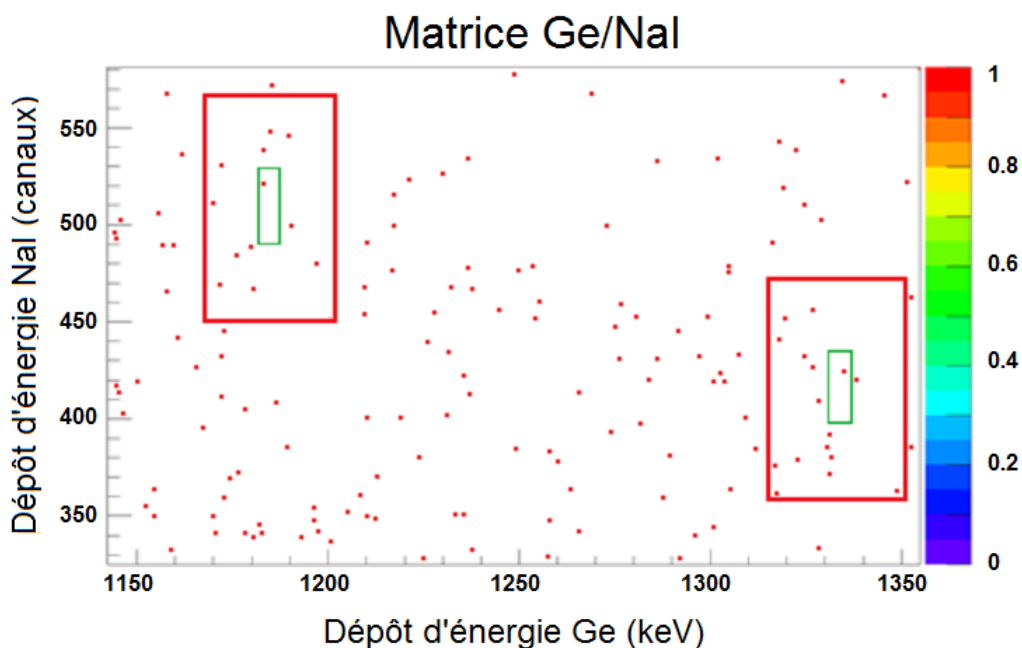


Figure 46 – Zoom sur les zones des empreintes de ^{60}Co dans la matrice de coïncidence du système anti-Compton, avec la ROI en vert et zone d'estimation du fond en rouge.

Chapitre IV

De la modélisation à la mise en service de Léda

Sommaire

1	Matériel	62
1.1	Détecteurs	62
1.1.1	Spectromètres germanium	62
1.1.2	Scintillateur NaI(Tl)	65
1.2	Blindage et mécanique	67
1.3	Electronique numérique	68
1.3.1	Réglages du Pixie-4	68
1.3.2	Fichier en mode liste du Pixie-4	72
2	Voies de mesure	74
2.1	Voies classiques	74
2.2	Voie anti-coïncidence	76
2.3	Voies en coïncidence	76
2.3.1	Coïncidences Ge/Ge	76
2.3.2	Coïncidences Ge/NaI	78
2.4	Identification de la voie de mesure appropriée	79
3	Algorithme d'analyse	81
3.1	Reconstruction du temps	82
3.2	Tri des événements	82
3.3	Etalonnage en énergie	84
3.4	Optimisation des ROI	86
4	Etalonnage en rendement de détection	89
4.1	Etalonnage à l'aide de sources étalons	89
4.2	Etalonnage par simulation Monte Carlo	91
5	Bruit de fond	95
6	Distribution temporelle des coïncidences	99
6.1	Mesure d'une source étalon	99
6.2	Mesure d'un bruit de fond	104

La mesure en coïncidence sur le système anti-Compton expliquée dans le chapitre précédent présente certaines limites. Lorsque les empreintes d'un émetteur en coïncidence sont proches de la diagonale d'un émetteur simple, comme c'est le cas des empreintes de ^{134}Cs dans la diagonale de ^{40}K (figure 47), la mauvaise résolution en NaI conduit à la superposition de la diagonale et des empreintes. En effet, pour ^{134}Cs , $E_1 + E_2 = 1400$ keV et la résolution à 1460 keV du NaI est d'environ 140 keV ce qui induit des empreintes très bruitées par la diagonale de ^{40}K .

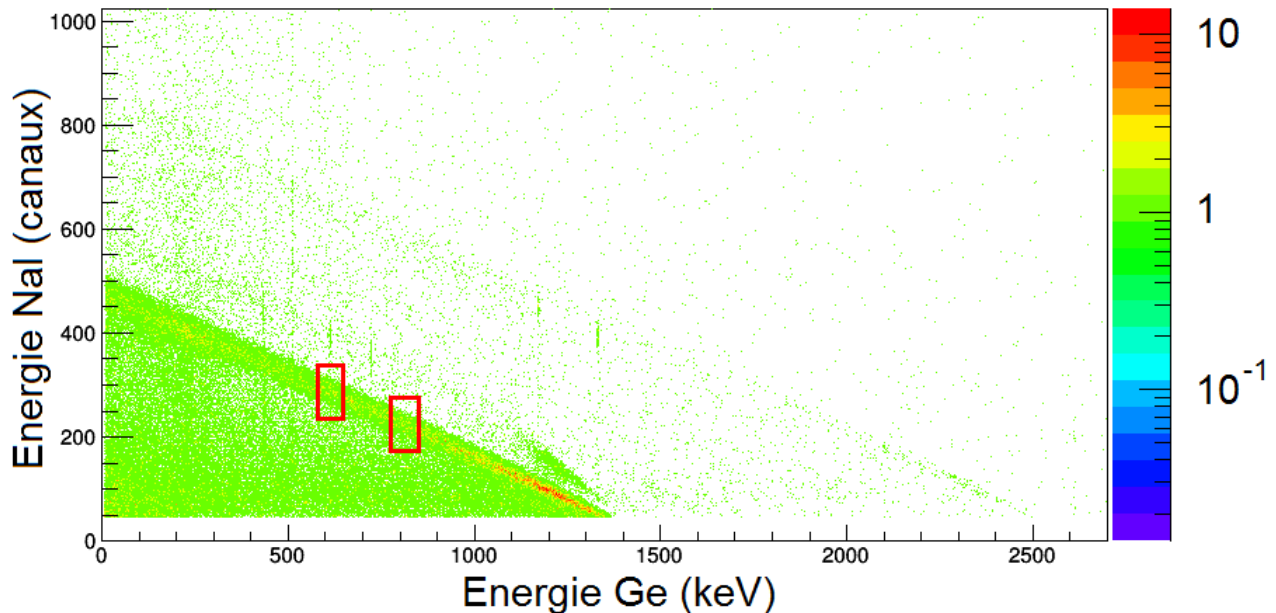


Figure 47 – Zones des empreintes de ^{134}Cs (605 keV ; 795 keV) et (795 keV ; 605 keV) encadrées en rouge, superposées à la diagonale de ^{40}K ($E_{\text{Ge}} + E_{\text{NaI}} = 1460$ keV) dans la matrice Ge/NaI obtenue par la mesure d'un échantillon d'origine biologique sur le système anti-Compton.

De plus, les coïncidences à basses énergies ne sont pas mesurées car le scintillateur NaI ne détecte correctement que les événements d'énergie supérieure à 120 keV à cause de l'enveloppe interne en magnésium qui atténue les photons de basses énergies. Un seuil est réglé pour ne coder que les événements supérieurs à cette énergie. C'est pour ces raisons que le laboratoire a décidé de mettre en place un nouveau système de mesure basé sur des coïncidences entre deux détecteurs germanium.

1 Matériel

1.1 Détecteurs

1.1.1 Spectromètres germanium

La première partie du travail a été de concevoir par simulation un système de mesure en coïncidence optimal compte tenu des contraintes de coût et d'encombrement. Tout d'abord il a été nécessaire de faire un choix sur le type de spectromètre germanium. Le meilleur compromis entre rendement de détection et résolution sur une gamme 30 keV – 2700 keV nous a orienté sur des détecteurs de type BEGe (chapitre II, § 2.1.2) de CANBERRA. Compte tenu de l'encombrement et du coût, le choix s'est porté sur deux détecteurs BEGe 5030 dont le schéma est présenté en figure 48 et les caractéristiques dans le tableau 11.

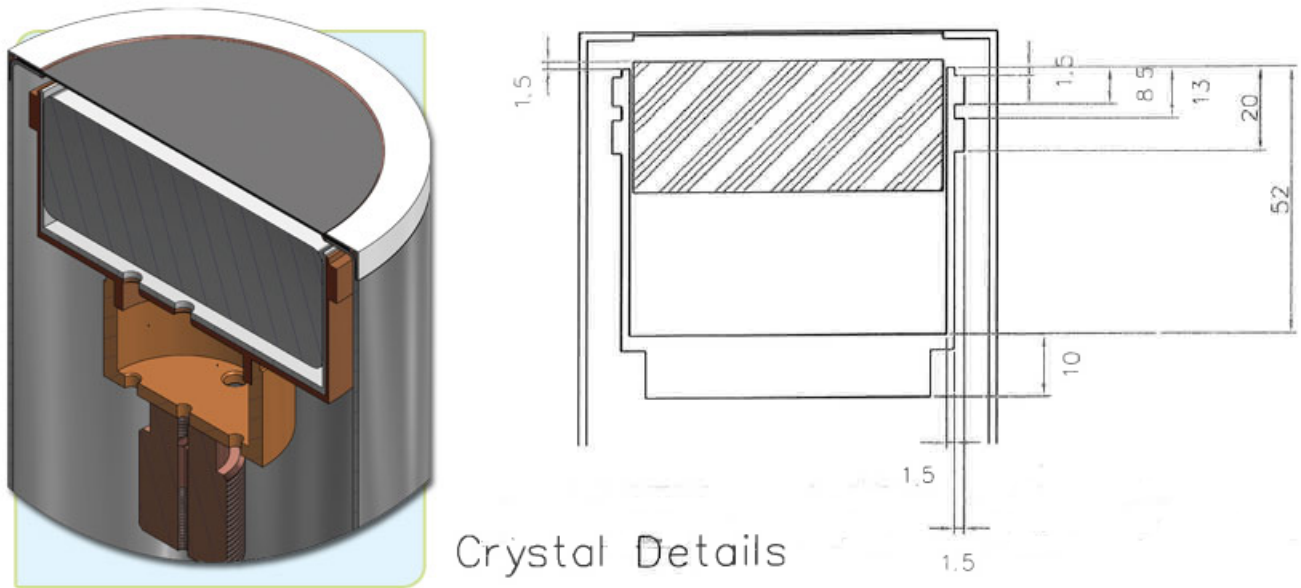


Figure 48 – Schéma en 3 dimensions et dessin coté d’un détecteur BEGe de CANBERRA (CANBERRA [12])

Caractéristiques	Castor	Pollux
Diamètre (mm)	81	81
Epaisseur (mm)	32.5	32
Efficacité relative (%)	51.3	51.1
Résolution 5.9 keV (keV)	0.356	0.367
Résolution 122 keV (keV)	0.675	0.653
Résolution 1332 keV (keV)	1.760	1.784

Tableau 11 – Caractéristiques des spectromètres germanium de type BEGe de Léda.

L’optimisation du système a été réalisée à l’aide d’un modèle MCNP_CP qui tient compte des caractéristiques (tableau 11) et des dimensions (figure 48) des détecteurs. De plus, pour optimiser la mesure en coïncidence, les géométries de faible volume, 10, 17 et 60 mL sont privilégiées. En effet, plus la géométrie est compacte et plus la probabilité de coïncidence est grande. De plus, une géométrie compacte permet de rapprocher au maximum les détecteurs et donc d’optimiser la détection des coïncidences.

L’ensemble de détection est installé dans la salle blindée, qui est elle-même au second sous-sol du laboratoire. La dalle de béton boré de 3 m, et les épaisseurs de 10 cm de plomb et 5 mm de cuivre sont équivalents à une atténuation de 10 m.w.e. (meter water equivalent), ce qui diminue à l’intérieur de la salle blindée le taux de comptage du bruit de fond dû au rayonnement cosmique par un facteur 4 et le taux de comptage du bruit de fond dû à la radioactivité tellurique par un facteur 100. Cette diminution des composantes du bruit de fond permet d’avoir un blindage moins imposant, de seulement 5 cm de plomb. Le mouvement propre du système est détaillé au paragraphe 5 de ce chapitre.

Comme la mesure par spectrométrie en coïncidence s’applique uniquement aux émetteurs en coïncidence, il est aussi intéressant d’avoir la possibilité de mesurer les émetteurs simples. Une technique déjà employée au laboratoire et expliquée précédemment est la mesure en anti-coïncidence. Cependant, le rendement d’une mesure en anti-coïncidence avec le système composé de deux détecteurs face à face est faible, puisque l’angle solide est au maximum de 2π , c’est pour cela qu’ont été

réalisées des simulations pour identifier le meilleur compromis avec l'ajout d'un autre détecteur servant de veto anti-Compton.

Les premières études ont porté sur l'utilisation de blocs de scintillateur plastique pour une raison de coût, de facilité d'usinage et la radio-pureté des matériaux employés. Cette technique fut écartée à cause de l'encombrement : pour avoir un rendement acceptable, il est nécessaire d'avoir au minimum 30 cm de part et d'autre de chacun des deux détecteurs. De plus, la quantité de lumière produite par un scintillateur est de l'ordre de 8 000 photons par MeV déposé alors que pour un scintillateur NaI(Tl) elle est de 40 000 photons par MeV déposé. C'est pour ces raisons que le choix s'est porté sur un scintillateur commercial en NaI(Tl).

Les simulations ont permis de montrer que la disposition suivante (figure 49) était optimale en termes d'encombrement et surtout de volume à l'intérieur du blindage. On retrouve en bleu les deux cristaux des spectromètres germanium et en vert le scintillateur NaI en cylindre creux. Il est en effet important de diminuer le volume intérieur du blindage pour limiter l'accumulation du radon. Une longueur de scintillateur NaI couvrant les deux cristaux de germanium suffit pour avoir un effet anti-Compton et anti-cosmique important. Pour limiter l'encombrement mais avoir un bon rendement de détection dans les énergies usuellement mesurées, l'épaisseur de 7.6 cm est un bon compromis.

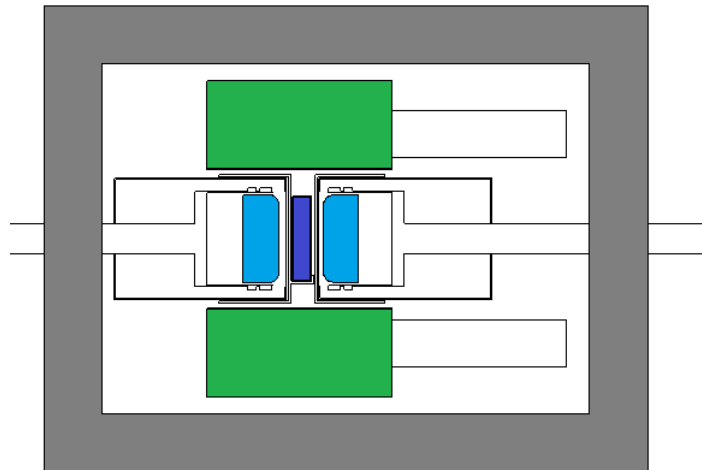


Figure 49 – Modèle MCNP_CP du nouveau système de mesure : Léda. Cristaux de germanium en bleu, scintillateur NaI en vert et blindage en gris.

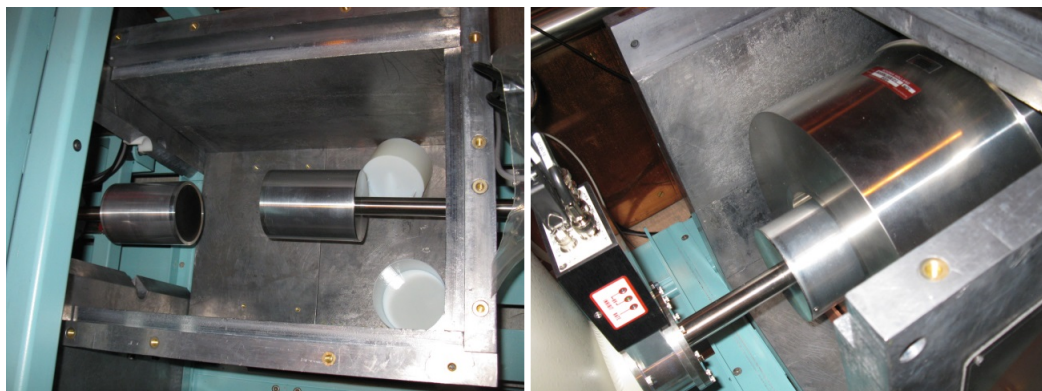


Figure 50 – Photos des trois détecteurs de Léda à l'intérieur du blindage, à gauche les deux BEGe à l'intérieur du blindage et à droite le scintillateur NaI avec son capot en inox entourant les BEGe.

Les deux détecteurs germanium sont très semblables en termes de dimensions, de rendement et de résolution (tableau 11) et ont donc été baptisés comme les célèbres jumeaux Castor (détecteur de gauche) et Pollux (détecteur de droite). Le scintillateur est quant à lui appelé Hélène comme la sœur des jumeaux et le blindage, Clytemnestre, comme la quatrième sœur de la fratrie. Ces quatre personnages de la mythologie grecque sont tous les filles et fils de Lédà, nom qui a été choisi pour nommer ce nouveau système de mesure.

La figure 51 montre l'évolution des résolutions en énergie des détecteurs Castor et Pollux. Les résolutions sont très proches, même si celle de Pollux est légèrement supérieure.

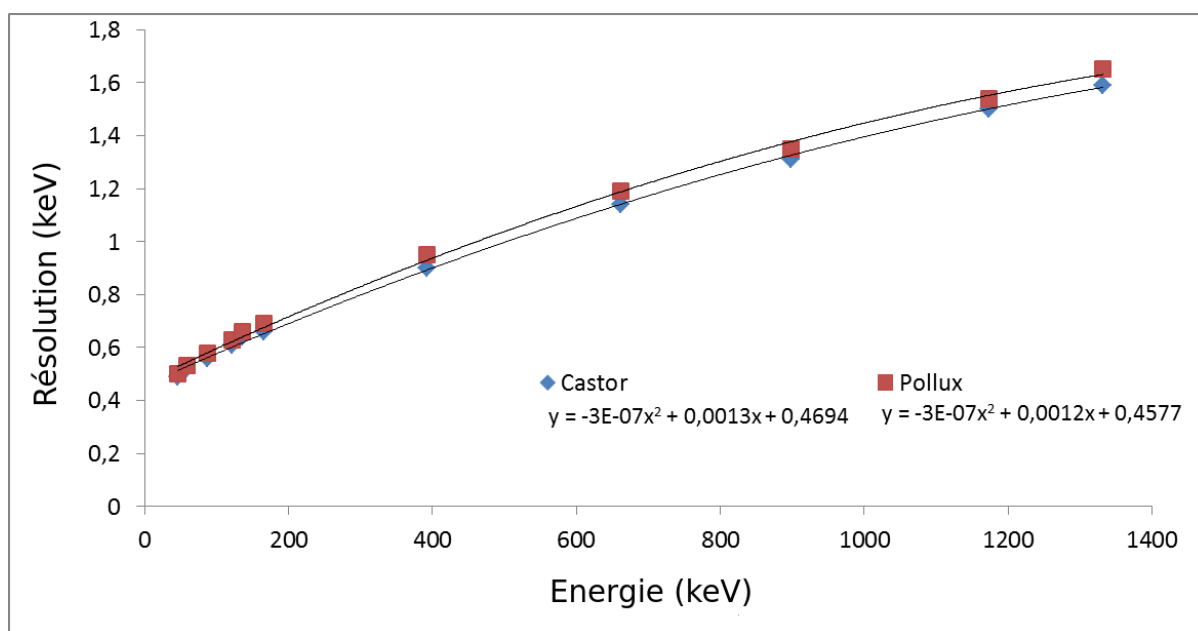


Figure 51 – Résolution en énergie [keV] des deux spectromètres germanium, Castor (bleu) et Pollux (rouge), en fonction de l'énergie des photons incidents [keV].

1.1.2 Scintillateur NaI(Tl)

Hélène est un cylindre creux de diamètre intérieur 12 cm, d'épaisseur 7.6 cm et de hauteur 16 cm (figure 52). Le scintillateur est protégé par un capot en inox et est relié à 7 photomultiplicateurs. Le cylindre est un assemblage de 7 quartiers, c'est pour cela qu'un photomultiplicateur est relié à chacun d'entre eux.



Figure 52 – Photo du scintillateur NaI (Hélène)

Pour vérifier que la réponse de tous les blocs du cylindre est homogène, c'est-à-dire qu'il n'y a pas de perte de lumière à un endroit donné, un test a été réalisé. Une source a été déplacée autour du cylindre en suivant les 7 quartiers et des comptages de 1000 s ont été réalisés. Les comptages sont tous identiques aux incertitudes près et permettent d'affirmer que le scintillateur est homogène. De plus, les photomultiplicateurs sont protégés par une épaisseur de μ -métal pour limiter l'effet du champ magnétique terrestre sur le flux électronique parcourant les dynodes.

La figure 53 représente l'évolution de la résolution en énergie du scintillateur NaI Hélène en fonction de l'énergie. Les résolutions sont meilleures que celles du scintillateur NaI du système anti-Compton. A titre d'exemple, le scintillateur NaI du système anti-Compton a des résolutions de 82 keV et 93 keV respectivement à 1173 keV et 1332 keV tandis que celles d'Hélène sont de 73 keV et 79 keV.

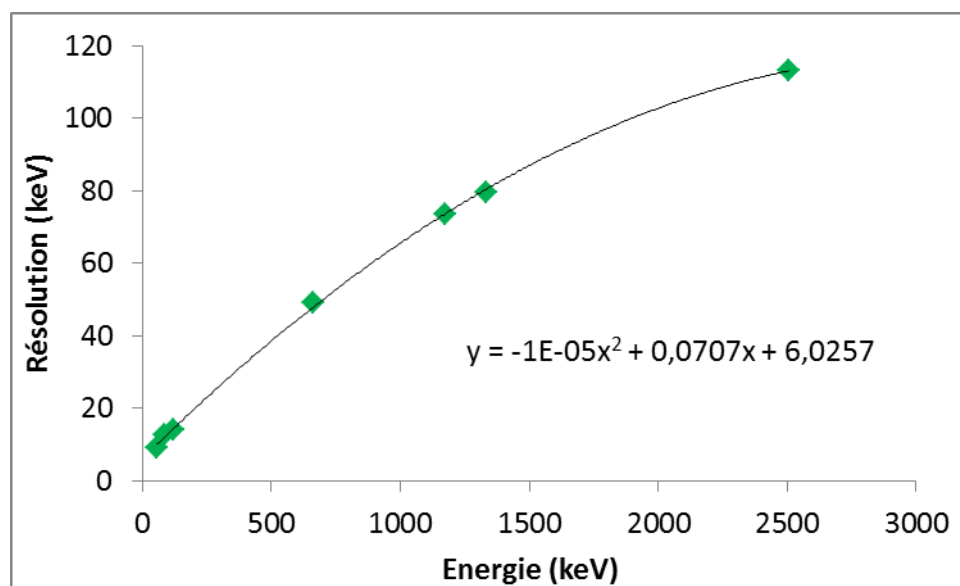


Figure 53 – Evolution de la résolution en énergie du scintillateur NaI (Hélène)

1.2 Blindage et mécanique

Les trois détecteurs, installés dans la salle blindée du laboratoire, sont protégés par un blindage de 5 cm de plomb bas bruit. Afin de pouvoir insérer l'échantillon, l'un des deux détecteurs est mobile, Castor. Différents supports correspondant aux géométries de comptage peuvent être posés sur le capot de Castor dont le dewar est installé sur un plateau roulant lui permettant de glisser à l'extérieur du blindage (figure 54).



Figure 54 – Schéma et photo de Léda et sa mécanique associée.

L'ensemble de la mécanique est démontable facilement, toutes les pièces ont une masse inférieure à 35 kg et possèdent des poignées amovibles. Castor est reculé manuellement afin d'introduire un échantillon sur le support (figure 55), il est ensuite inséré jusqu'à un contact mécanique entre le support et le capot en plastique protecteur de Pollux.



Figure 55 – Support pour la géométrie de mesure 60 mL.

1.3 Electronique numérique

Léda est pilotée par une électronique numérique, une carte Pixie-4 (XIA) dans un châssis National Instrument, pour réaliser des mesures en mode liste. L'électronique est connectée au préamplificateur de charges pour Castor et Pollux et à la sortie de l'amplificateur d'Hélène. Les signaux fournis par les 7 photomultiplicateurs sont sommés et connectés à l'amplificateur. Cette électronique possède 4 voies d'entrée avec lesquelles il est possible de réaliser des coïncidences. Hélène est branchée sur la voie 0, Castor sur la voie 1 et Pollux sur la voie 2. Chacune des voies permet de remplir un spectre de 65536 canaux (2^{16}).

1.3.1 Réglages du Pixie-4

Plusieurs onglets permettent de régler les paramètres de l'électronique dans la fenêtre « Parameter Setup ».

Filtre rapide : détection d'un signal

D'abord il est nécessaire de régler le filtre rapide (figure 56) qui détectera les signaux en provenance de chaque détecteur. Les différents réglages se trouvent dans l'onglet "Trigger" de l'interface.

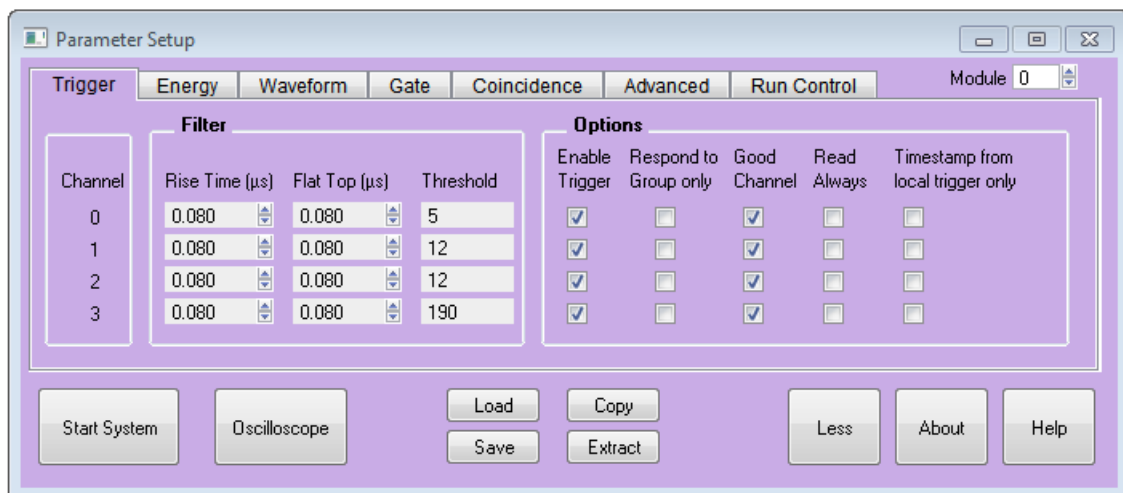


Figure 56 – Réglages des filtres rapides du Pixie-4 [XIA [51]] dans l'onglet "Trigger"

Les constantes de temps (Rise Time et Flat Top), expliquées au paragraphe 2.2 du chapitre II, sont réglées en fonction du meilleur compromis entre la détection de tous les signaux physiques et la limitation du temps mort induit par ce filtrage. Une valeur de seuil ("Threshold") est fixée pour éliminer les événements vus par le filtre rapide mais qui ont des amplitudes trop faibles pour être séparés du bruit électronique. L'unité de cette valeur de seuil est de 4 canaux du spectre associé à la voie. Par exemple, si le seuil est fixé à 12 alors tous les signaux inférieurs au canal 48 seront éliminés.

Nous avons déterminé les valeurs des Rise Time et Flat Top de $0.08 \mu\text{s}$ pour les trois détecteurs, un seuil de 12 pour les spectromètres germanium et un seuil de 5 pour le scintillateur NaI.

Filtre lent : quantification d'un signal

Les réglages essentiels à une mesure sont ceux des filtres lents qui permettent la quantification d'un événement par la mesure de la hauteur d'une impulsion. Cette hauteur d'impulsion correspondra à un canal du spectre associé. La figure 57, tirée du manuel utilisateur, présente l'onglet « Energy » associé à ces constantes.

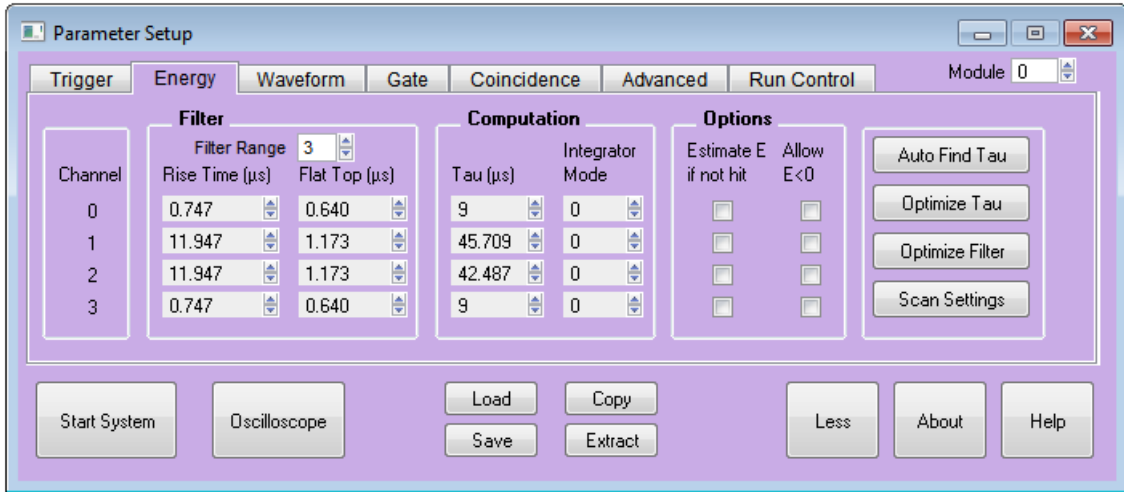


Figure 57 – Réglages des filtres lents du Pixie-4 [XIA [51]] dans l’onglet "Energy".

Comme pour le filtre rapide, il y a les deux constantes de temps, Rise Time et Flat Top, qui dépendent du type de détecteur. Plus les temps seront longs et meilleure sera la résolution en énergie de chacune des voies. Cependant, lorsque l’électronique filtre le signal, la voie de mesure est inhibée, c’est-à-dire en temps mort. C’est pour ces deux raisons que les deux constantes sont choisies en faisant un compromis entre la résolution et le temps mort du système. Enfin une constante, τ , est utilisée pour compenser une éventuelle décharge d’un signal précédent qui fausserait le niveau de base des signaux et par conséquent la quantification de la hauteur de l’impulsion. Elle est déterminée par le Pixie-4 en utilisant « Auto Find Tau ». Le tableau 12 liste les différentes constantes de temps expliquées ci-dessus choisies pour les détecteurs de Léda.

Détecteur	Rise Time (μs)	Flat Top (μs)	τ (μs)
Hélène	0.75	0.64	9
Castor	11.95	1.17	46
Pollux	11.95	1.17	42

Tableau 12 – Constantes de réglage des détecteurs de Léda.

Coïncidences :

L’onglet "Coincidence" (figure 58) permet de définir les coïncidences que l’utilisateur souhaite enregistrer et les différentes constantes nécessaires à leur mesure.

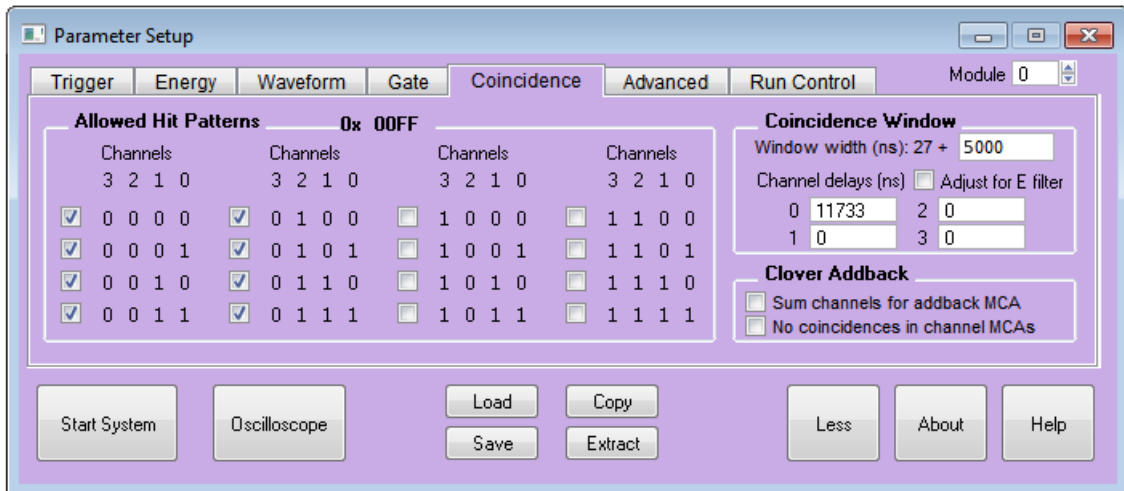


Figure 58 – Réglages des coïncidences [XIA [51]].

Tout d'abord il est nécessaire de définir un tableau de configuration entre les différentes voies pour choisir les coïncidences conservées et rejetées. Comme il n'y a aucun détecteur sur la voie 4, toutes les combinaisons incluant cette voie sont enlevées.

La sélection d'une coïncidence se fait à l'aide de la fenêtre de coïncidence. La largeur de cette fenêtre en temps est définie en ns grâce au paramètre « Window width ».

Enfin, les filtres lents des voies germanium et NaI sont différents, ce qui engendre un décalage entre la validation et le remplissage du spectre entre ces voies. En d'autres termes, il est nécessaire de recalibrer de manière temporelle les trois voies entre elles, sinon les coïncidences physiques dans les détecteurs n'auront jamais lieu au niveau de l'électronique. Ce décalage se définit grâce au paramètre « channel delays » associé à chacune des voies. Le décalage à associer à la voie "NaI" est la différence entre la somme des Rise Time et Flat Top des voies germanium d'une part et NaI d'autre part, c'est-à-dire un décalage de $11.73 \mu\text{s}$. L'électronique peut le calculer automatiquement en cochant l'option « Adjust for E filter ».

Le recalage entre les voies a été vérifié à l'aide de plusieurs mesures de 600 s, avec une fenêtre de coïncidence fixée arbitrairement à $5 \mu\text{s}$. Le retard entre la voie "NaI" et les deux voies germanium a été modifié à chaque mesure. Ce test a permis de tracer l'évolution du comptage en coïncidence d'une source de ^{60}Co en fonction du retard (figure 59). On constate que pour un retard compris entre $5.5 \mu\text{s}$ et $16.5 \mu\text{s}$ le comptage est maximal, avec une valeur centrale qui correspond à $11,7 \mu\text{s}$, soit la valeur calculée.

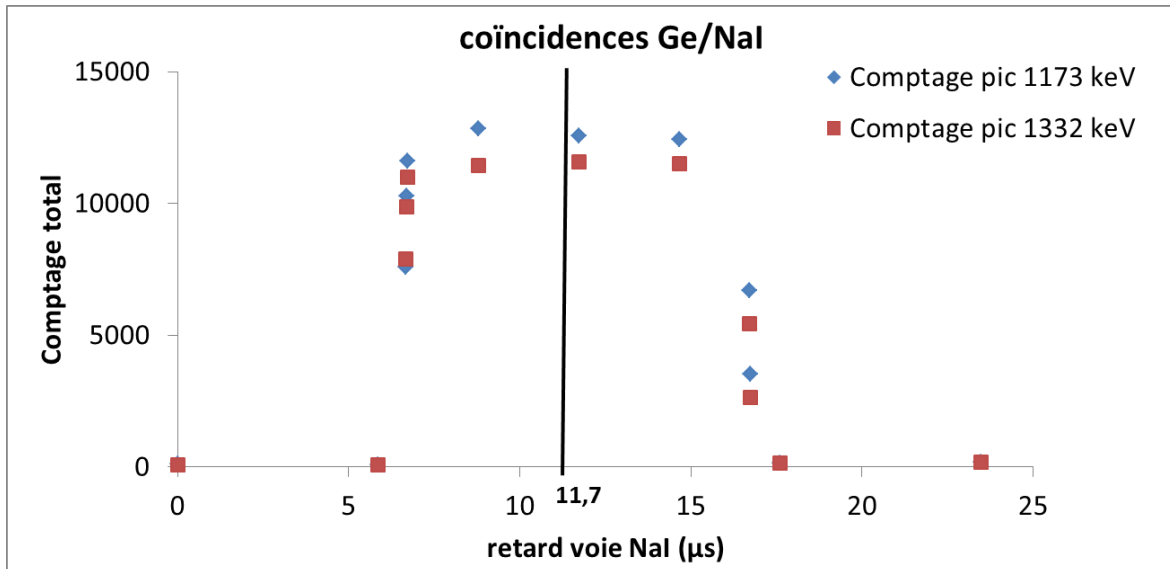


Figure 59 – Evolution du comptage dans les pics de ^{60}Co , à 1173 keV (bleu) et 1332 keV (rouge), en fonction du retard appliquée à la voie "NaI" par rapport aux voies germanium en μs .

La largeur de la fenêtre de coïncidence optimale a été identifiée à l'aide de plusieurs mesures d'une source multi- γ en faisant varier la largeur de cette fenêtre. Pour chaque mesure, le nombre de coups net des empreintes de ^{60}Co : (1173,1332) ; (1332,1173) et de ^{137}Cs (662,662), ont été tracés en fonction de la largeur de la fenêtre de coïncidence (figure 60). L'empreinte de ^{137}Cs est due à des coïncidences fortuites entre des photons γ de deux désintégrations distinctes.

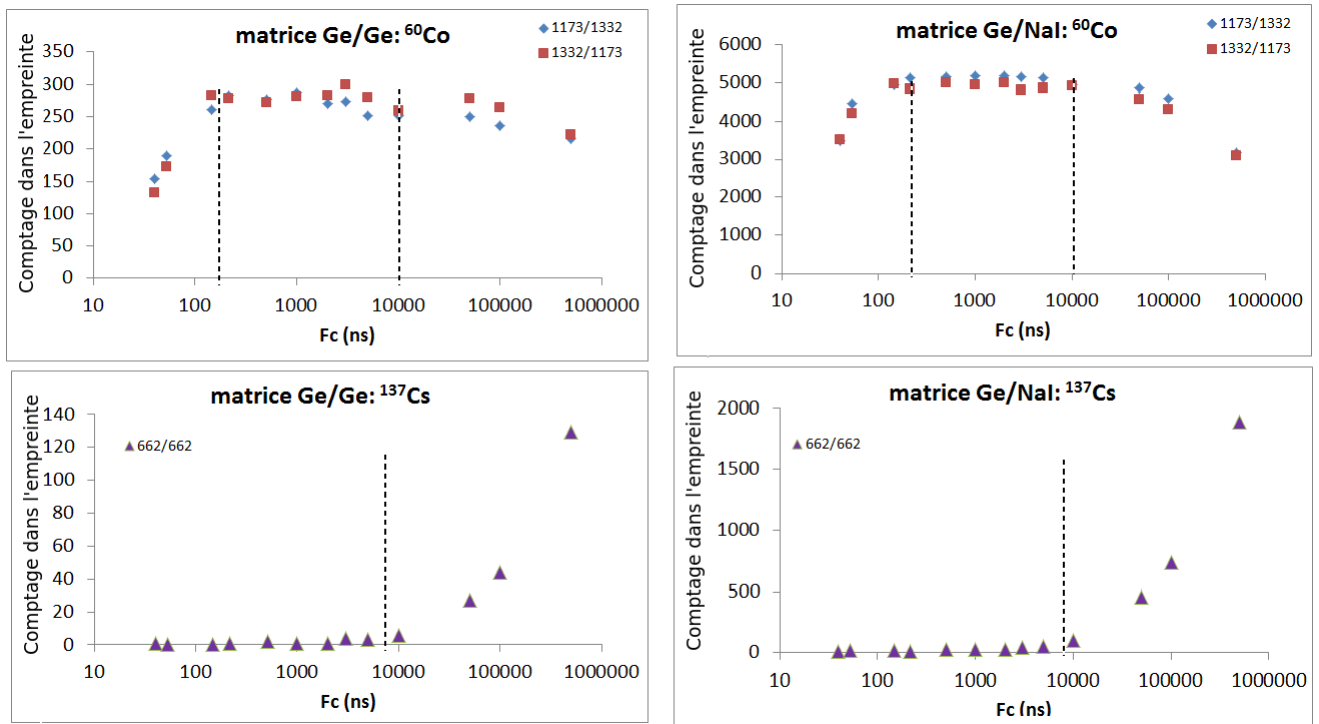


Figure 60 – Evolution du comptage en coïncidence dans les empreintes de deux émetteurs, ^{60}Co (losanges bleus pour (1173,1332) et carrés rouges pour (1332,1173)) et ^{137}Cs ((662,662), triangles violets), en fonction de la largeur de la fenêtre de coïncidence (FC) [ns].

Pour ^{60}Co , une fenêtre d'au moins 300 ns est nécessaire pour avoir la totalité des événements alors qu'une fenêtre supérieure à 10 μs commence à diminuer le comptage. Cette baisse est liée à l'augmentation du temps mort du système qui est proportionnel à la largeur de la fenêtre de coïncidence. Les empreintes de ^{137}Cs sont fortuites car c'est un émetteur simple qui ne devrait pas apparaître sur une mesure en coïncidence, les graphiques de l'évolution du comptage de son empreinte nous montrent que si la fenêtre est supérieure à 8 μs alors les coïncidences fortuites ne sont plus négligeables. C'est pour cela que nous avons fixé la fenêtre de coïncidence à 1.5 μs .

Paramètres de la mesure :

Enfin, les paramètres propres à la mesure sont définis dans l'onglet « Run Control » (figure 61).

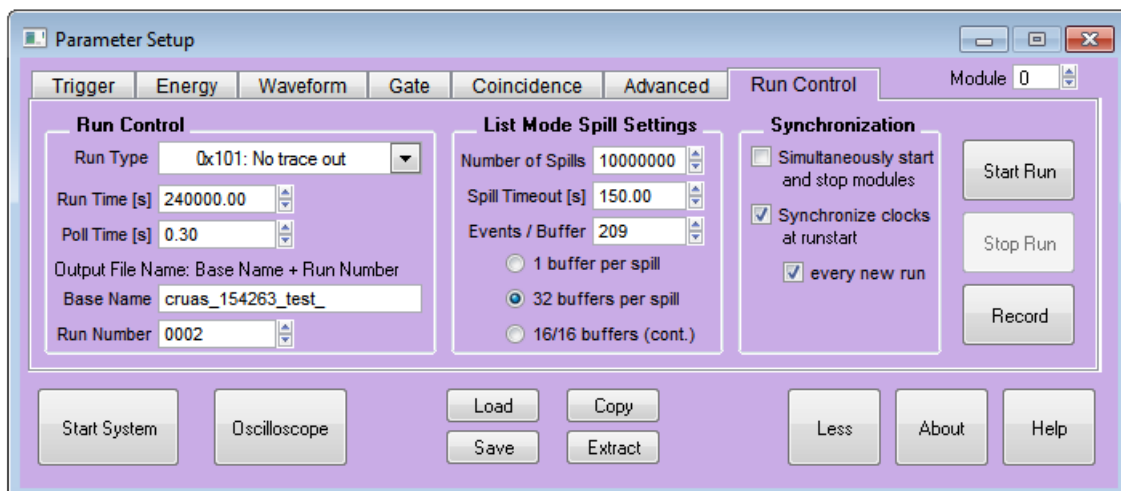


Figure 61 – Fenêtre de réglage des paramètres de mesure du Pixie-4[XIA [51]]

Sont paramétrés l'intitulé et la durée d'une mesure, ainsi que le choix entre une acquisition classique ou une acquisition en mode liste. Nous réalisons des mesures en mode liste de type « 0x101 » qui nous donne accès à l'énergie et au temps absolu pour chaque événement sans avoir d'information d'analyse de forme. Ce mode fournit toutes les informations souhaitées tout en limitant le temps mort du système. Le mode liste est écrit dans un fichier binaire qui sera relu à la fin de l'acquisition en cochant l'option « .dt » dans le sous-panneau « Record » et écrira un nouveau fichier en mode liste au format texte que nous pourrions analyser. Le détail du fichier en mode liste sera expliqué au paragraphe suivant de ce chapitre.

Les informations enregistrées sont stockées dans une mémoire tampon avant d'être écrites régulièrement dans le fichier en mode liste binaire. Les paramètres « list mode spill settings » permettent de définir combien de fois et à quelle fréquence les informations seront écrites. Notre choix s'est porté sur une mémoire importante (32 buffer per spill) et donc une écriture moins fréquente. C'est la solution qui limite au maximum le temps mort d'écriture de l'électronique.

Enfin, l'électronique possède une horloge interne qui est remise à 0 à chaque nouvelle mesure (panneau « Synchronization »).

1.3.2 Fichier en mode liste du Pixie-4

L'électronique numérique fournit, en mode liste, un fichier texte qui sera ensuite analysé par un algorithme (§ 3 du chapitre IV). La figure 62 est un extrait d'un fichier en mode liste du Pixie-4, on retrouve dans ce fichier le numéro de l'événement, la voie, le "hit pattern", l'heure de l'événement, l'énergie et le heure du dépôt.

Chaque événement peut correspondre à un ou plusieurs dépôts simultanés, jusqu'à trois comme il y a trois détecteurs. Chaque colonne du fichier en mode liste est détaillée ci-dessous :

1. La première colonne, « Event », représente le numéro de l'événement qui s'incrémente jusqu'à la fin de la mesure. On remarque que l'événement 0 correspond à une coïncidence car il est composé de deux lignes et l'événement 1 de trois dépôts d'énergie. Seul l'événement 2 de cet exemple correspond à un dépôt unique.
2. La deuxième colonne, « Channel », correspond au numéro de voie, c'est-à-dire le détecteur dans lequel il y a eu un dépôt d'énergie. Par exemple l'événement 0 correspond à des dépôts simultanés dans les voies 1 et 2, soit dans Castor et Pollux.
3. La troisième colonne, « Hit Pattern », correspond au type de coïncidence qui a été identifiée dans la configuration définie au § 1.3.1 du chapitre IV dans l'onglet coïncidence. Cette colonne n'est pas utilisée pour l'analyse des données.
4. Les colonnes 4, 5 et 6 (« Time_A », « Time_B », « Time_C ») correspondent au temps de l'événement. Le temps est codé sur 48 bits répartis en 3 fois 16 bits. Il est à noter qu'il est identique pour chaque ligne correspondant à un dépôt d'un même événement.
5. La septième colonne, « Energy », répertorie les dépôts d'énergie dans la voie associée. La valeur est exprimée en canal (65536 canaux par spectre). Par exemple l'événement 2 a engendré un dépôt correspondant au canal 24965 de la voie 0.
6. Enfin, la dernière colonne, « Trig Time », liste les temps auxquels ont été détectés les dépôts d'énergie. C'est, plus précisément, le temps auquel s'est déclenché le filtre rapide.

Event	Channel	Hit Pattern	Time_A	Time_B	Time_C	Energy	Trig Time
0	1	6F6	0	12	25883	24028	24851
0	2	6F6	0	12	25883	24967	24851
1	0	7F7	0	12	58411	3440	57379
1	1	7F7	0	12	58411	1599	57404
1	2	7F7	0	12	58411	1724	57397
2	0	1F1	0	12	18211	24965	17179
3	1	6F6	0	12	10646	24024	9614
3	2	6F6	0	12	10646	24958	9614

Figure 62 – Extrait d'un exemple de fichier en mode liste du Pixie-4.

2 Voies de mesure

L'utilisation de trois détecteurs et l'électronique numérique permettent d'avoir plusieurs combinaisons entre les voies de mesure. Parmi ces voies, certaines fournissent le meilleur rapport signal sur bruit, c'est-à-dire un rendement de détection maximum et un bruit de fond minimum pour chaque radionucléide. Ces voies des mesure ont été identifiées et sont expliquées dans les paragraphes suivants.

2.1 Voies classiques

Les voies classiques permettent d'enregistrer tous les événements sans tenir compte de la notion de coïncidence. Il en existe trois distinctes, correspondant à chaque détecteur, trois spectres sont donc disponibles (Castor, Pollux et Hélène). Les deux spectromètres germanium sont très proches en termes de rendement et de résolution, il est donc possible de faire la somme de leurs spectres. Les voies classiques sont donc la voie "NaI" et la voie appelée "SommeGe", qui est la somme des spectres de Castor et Pollux. Les schémas (figure 63 et 64) représentent ces deux voies avec un spectre de source étalon.

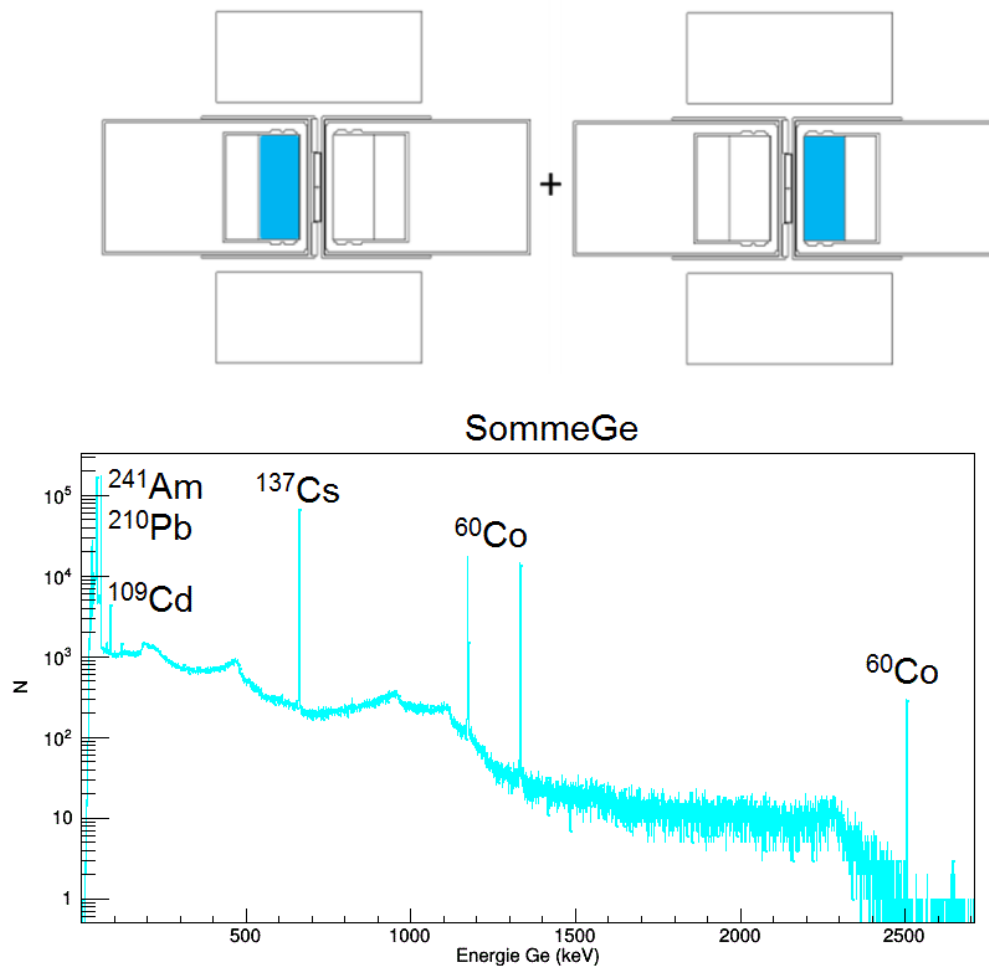


Figure 63 – Voie "SommeGe" : somme des deux spectres germanium. Haut : schéma de la voie de mesure avec localisation en bleu des dépôts d'énergie possibles, en l'occurrence les deux cristaux de germanium. Bas : spectre d'une mesure de source étalon multi- γ obtenu sur cette voie.

On reconnaît les pics caractéristiques et le fond Compton associé des radionucléides encore présents dans la source multi- γ (^{241}Am , ^{109}Cd , ^{60}Co , ^{210}Pb) ainsi que le pic somme de l'émetteur en coïncidence, ^{60}Co (2505 keV).

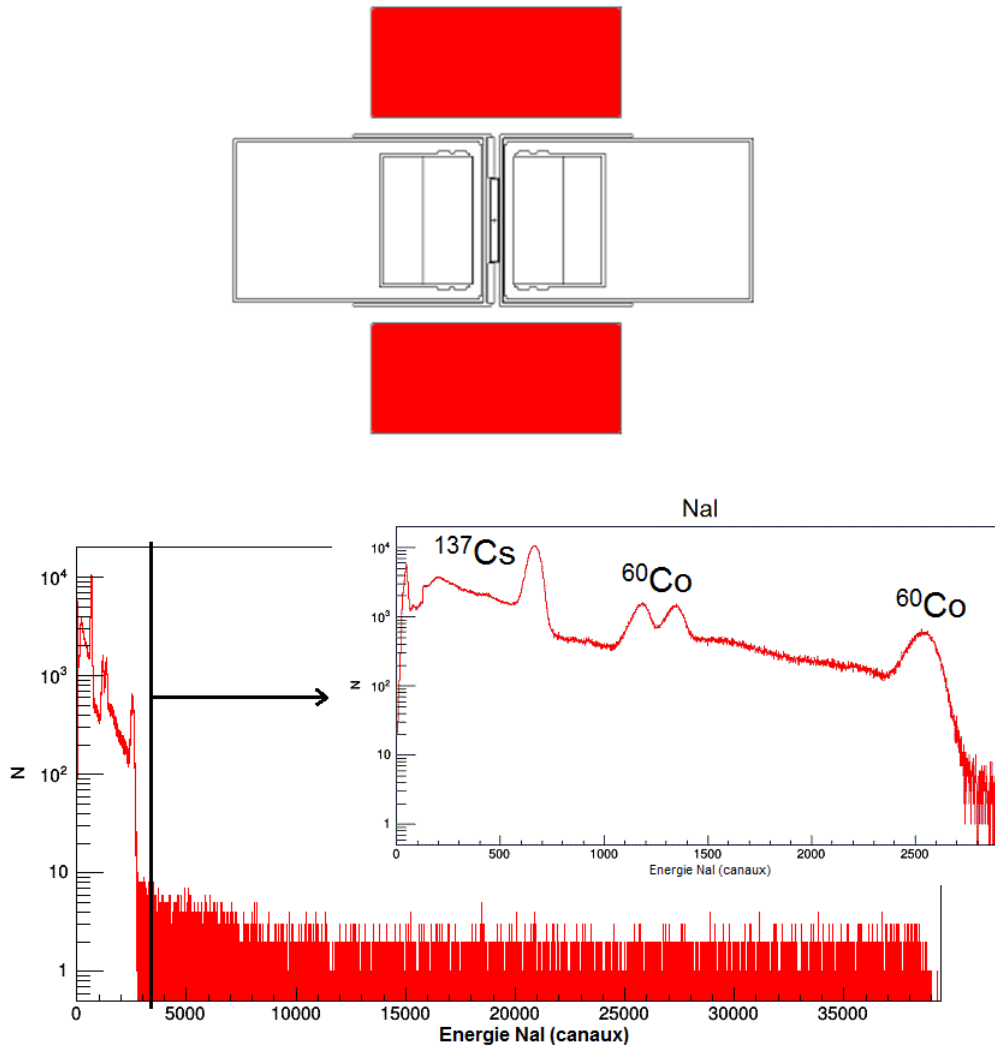


Figure 64 – Voie "NaI". Haut : schéma de la voie de mesure avec localisation en rouge des dépôts d'énergie possibles. Bas : spectre d'une mesure de source étalon multi- γ obtenu sur cette même voie. Zoom sur la gamme d'énergie 0-2700 keV, qui correspond aux énergies des dépôts par des photons γ .

Les voies Castor et Pollux sont codées de 20 keV à environ 2700 keV. La voie "NaI" est codée sur une gamme en énergie plus grande que les voies germanium. En effet, afin de récupérer un maximum d'informations et notamment les dépôts d'énergie dus aux rayons cosmiques qui peuvent être de plusieurs dizaines de MeV, la voie Hélène est codée jusqu'à environ 40 MeV.

Le zoom de la figure 64 sur la gamme en énergie des photons γ émis par la source, en comparaison avec la figure 63, montre bien la différence flagrante de résolution entre un spectromètre germanium et un scintillateur NaI(Tl). Mais les bonnes résolutions d'Hélène permettent de bien différencier les pics de ^{60}Co . De plus, le rendement important du scintillateur permet de bien identifier le pic somme de ^{60}Co .

2.2 Voie anti-coïncidence

La voie en anti-coïncidence utilisée est la combinaison permettant d'avoir un rendement en anti-coïncidence maximale. Les événements sélectionnés sont des dépôts d'énergie dans Castor ou Pollux qui n'ont aucune coïncidence avec les deux autres détecteurs. En d'autres termes, ce sont les événements uniques de Castor ou de Pollux. Deux spectres germanium sont tracés et sont ensuite sommés. La figure 64 représente le schéma de cette voie et le spectre d'une source.

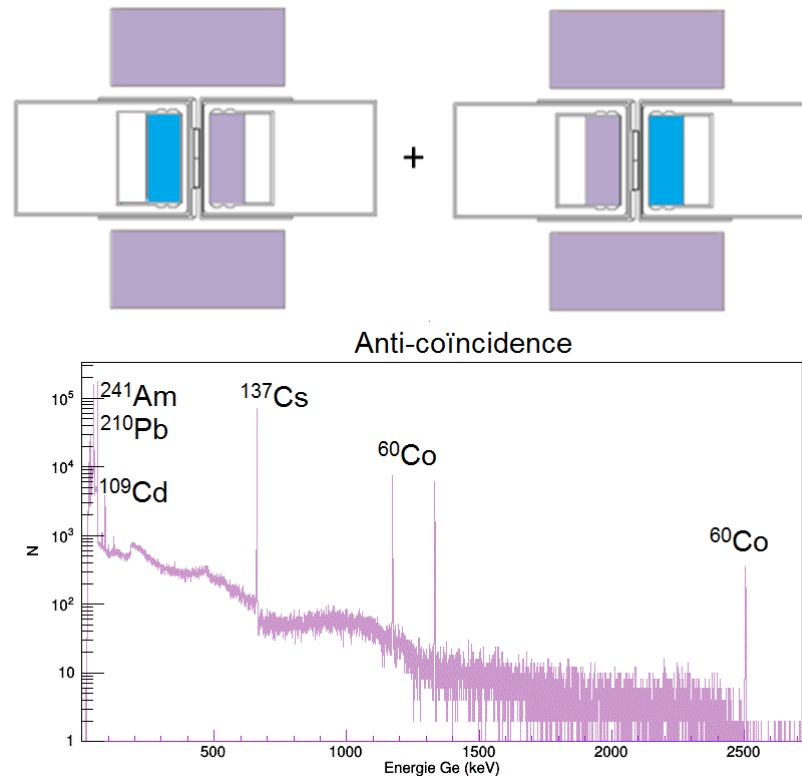


Figure 65 – Voie anti-coïncidence. Haut : schéma de la voie de mesure avec localisation en bleu des dépôts d'énergie possibles, les détecteurs dans lesquels il ne doit pas y avoir de dépôt simultané sont en mauve. Bas : spectre d'une mesure de source étalon multi- γ obtenu sur cette même voie.

Cette voie est utilisée pour la mesure des radionucléides émetteurs simples en diminuant le fond Compton et le fond cosmique du spectre. Les rayonnements cosmiques sont détectés dans le scintillateur NaI et un éventuel dépôt engendré dans les spectromètres germanium ne sera pas représenté dans ce spectre en anti-coïncidence. On voit une amélioration d'un facteur 5 du rapport signal sur bruit pour le pic à 662 keV de ^{137}Cs . Il est clairement visible que les pics des émetteurs en coïncidence ont diminué à cause de la perte par coïncidence.

2.3 Voies en coïncidence

Il existe plusieurs combinaisons entre les trois détecteurs et deux représentations : le spectre et la matrice. Nous avons choisi d'utiliser uniquement les deux voies présentant les meilleurs rendements de détection et pour chacune de ces voies les deux représentations.

2.3.1 Coïncidences Ge/Ge

La première voie regroupe les coïncidences entre les spectromètres germanium (Ge/Ge) (figure 66). Pour chaque événement, ont lieu deux dépôts en énergie, un dans chaque détecteur germanium, ce qui conduit à l'incrémenter d'un élément de la matrice de coïncidence (figure 67). Deux spectres sont également incrémentés, l'un pour Castor et l'autre pour Pollux, ils sont ensuite sommés (figure 67).

Les pics de ^{60}Co sont aisément discernables dans le spectre. Les pics des émetteurs simples ont disparu. La matrice quant à elle présente toutes les caractéristiques décrites au chapitre II (figure 18 et 19 § 3.1.2 du chapitre II) pour ^{60}Co .

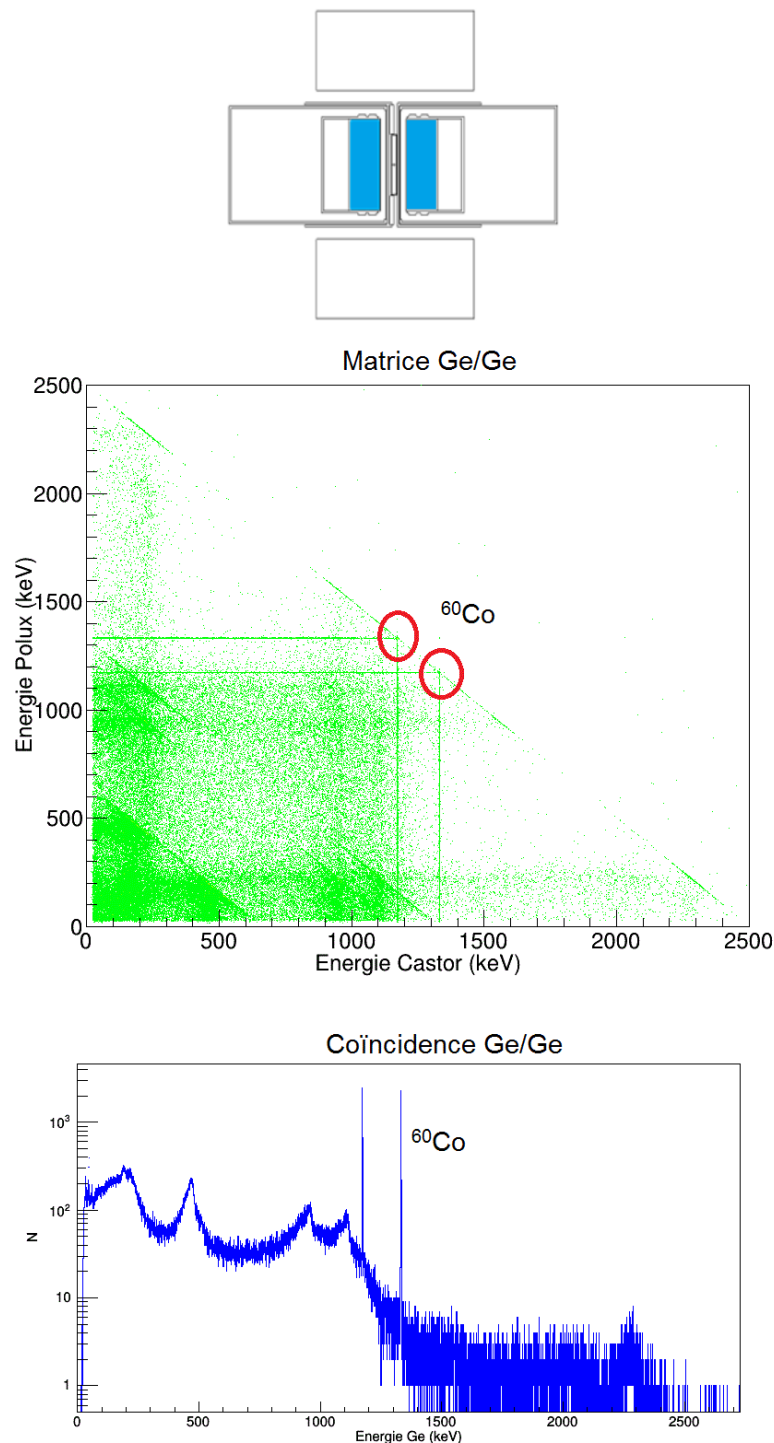


Figure 66 – Voie en coïncidence "Ge/Ge". Haut : schéma de la voie de mesure avec localisation en bleu des dépôts d'énergie possibles, simultanément dans les deux spectromètres germanium. Milieu : matrice de coïncidence d'une mesure de source associée à cette voie, avec les empreintes du ^{60}Co entourées en rouge. Bas : spectre d'une mesure de source étalon multi- γ obtenu sur cette même voie, seul le ^{60}Co , unique émetteur en coïncidence, est présent.

2.3.2 Coïncidences Ge/NaI

La seconde voie regroupe les coïncidences Germanium/NaI (figure 66). Comme pour les coïncidences entre les détecteurs germanium, deux spectres et une matrice sont incrémentés, les spectres sont ensuite sommés. Le spectre en coïncidence correspond à la projection de la matrice selon l'axe germanium.

On retrouve les mêmes caractéristiques pour les deux tracés que pour les coïncidences Ge/Ge et surtout la matrice est très proche que celle du système anti-Compton (figure 31 du § 2 du chapitre III). La grande différence avec la matrice Ge/Ge est la résolution selon l'axe des ordonnées qui est bien plus importante qu'en germanium. Cela induit des empreintes plus larges et donc moins facilement discernables du fond. A l'inverse, le rendement d'Hélène est très important et si les radionucléides ont des empreintes éloignées du bruit de fond alors elles seront facilement quantifiables.

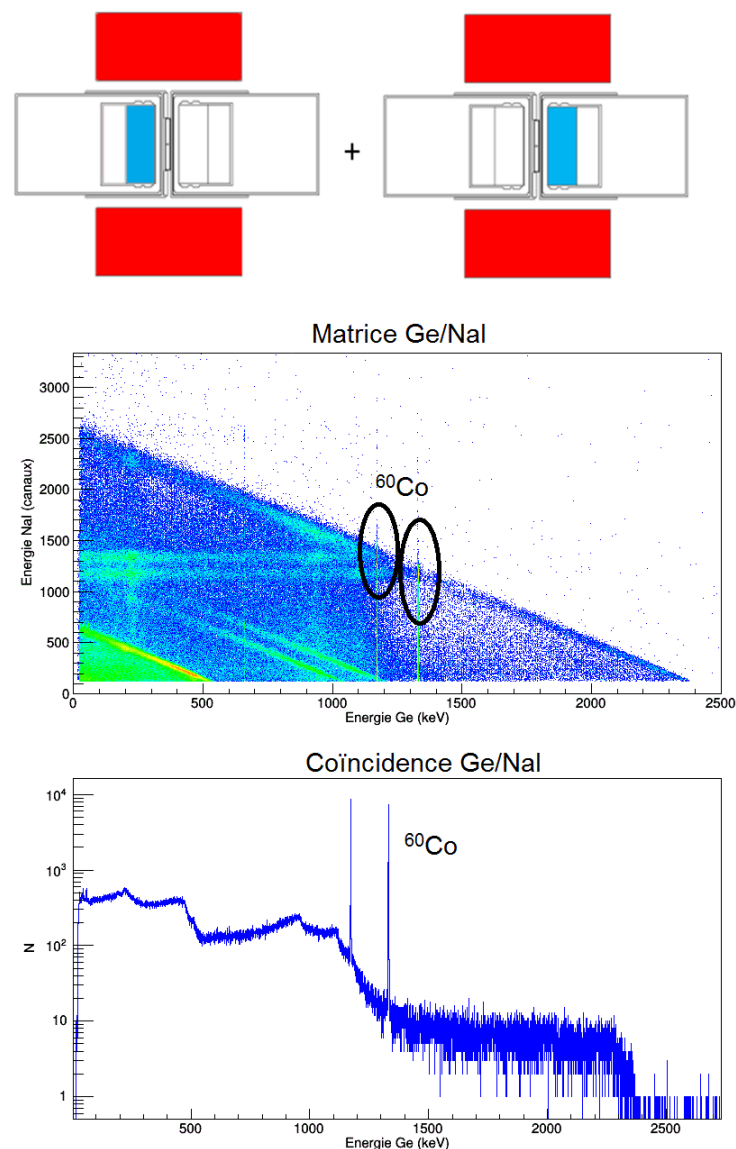


Figure 67 – Voie en coïncidence "Ge/NaI". Haut : schéma de la voie de mesure avec localisation en bleu des dépôts d'énergie dans les spectromètres germanium et en rouge des dépôts dans le scintillateur NaI. Milieu : matrice de coïncidence d'une mesure de source associée à cette voie, avec les empreintes du ^{60}Co entourées en noir. Bas : spectre d'une mesure de source étalon multi- γ obtenu sur cette même voie, seul le ^{60}Co , unique émetteur en coïncidence, est présent.

2.4 Identification de la voie de mesure appropriée

Les radionucléides émetteurs en coïncidence seront mesurés sur la voie en coïncidence "Ge/Ge" ou Ge/NaI en fonction de l'énergie de leurs émissions et du radionucléide majoritaire dans l'échantillon engendrant un important bruit de fond dans le spectre.

Le choix entre la matrice ou le spectre de coïncidence se fait en fonction du schéma de désintégration. Si la coïncidence se fait entre seulement deux photons alors les matrices de coïncidence seront privilégiées, s'il y en a plus alors ce seront les spectres. En effet, le rendement des empreintes sera maximal s'il y a seulement deux photons en coïncidence, sinon il y aura de multiples empreintes avec des rendements faibles. A l'inverse, un photon en coïncidence avec plusieurs autres aura un important rendement de détection dans le spectre en coïncidence.

Les spectres de coïncidence seront aussi utilisés dans le cas des coïncidences entre des photons γ et des photons X. C'est le cas lors de la désintégration par capture électronique ou lorsque la déséxcitation conduit à l'émission d'un électron de conversion au lieu d'un photon γ . Dans les deux cas, il y a l'émission de photons X suite au réarrangement du cortège électronique (§ 1 du chapitre II). Si l'énergie est supérieure à 20 keV, alors il est possible que les photons soient mesurables en coïncidence. Dans ce cas, le spectre de coïncidence sera le plus approprié car les empreintes de la matrice seront multiples à cause de l'émission de différents photons X de plusieurs énergies en fonction du réarrangement. C'est le cas de ^{108m}Ag qui sera illustré au chapitre suivant (§ 2.2.4 du chapitre V).

Pour récapituler, chacune des voies de mesures présentées plus haut correspond à un type de radionucléide. Pour chaque mesure d'échantillon, il est nécessaire de savoir quelle voie sera utilisée pour mesurer tous les radionucléides recherchés. Ce choix se fait sur deux principaux critères : le type d'échantillon mesuré et le schéma de désintégration du radionucléide recherché.

Pour commencer, le type d'échantillon permet, en général, de connaître le ou les radionucléides naturels présents en très forte proportion. Ces radionucléides engendreront des fonds Compton dans les spectres et des diagonales dans les matrices. Il est important de connaître le photon de plus haute énergie (E_{bdf}) et d'intensité élevée émis par le radionucléide présent en forte proportion. Il faudra donc choisir des voies dans lesquelles la présence de ce radionucléide ne masquera pas les pics ou les empreintes des radionucléides recherchés. Par exemple, les échantillons biologiques contiennent généralement beaucoup de ^{40}K , et donc un pic à 1460 keV associé à un important fond Compton dans le spectre classique entre 200 et 1200 keV environ. Sur les spectres en coïncidence "Ge/Ge" on retrouve deux pics triangulaires très larges aux énergies 200 et 1200 keV environ, et enfin, dans la matrice, une diagonale apparaît à une énergie somme déposée égale à 1460 keV.

Ensuite, le schéma de désintégration fournit plusieurs informations. Tout d'abord si l'émetteur est en coïncidence ou pas. Un émetteur simple sera toujours mesuré sur la voie en anti-coïncidence. Si l'émetteur est en coïncidence, le nombre et les énergies des photons en coïncidence permettront de choisir la voie en coïncidence la plus appropriée. Tous les critères permettant de choisir entre les voies sont répertoriés ci-dessous :

1. Spectre Ge/Ge :
au moins 3 photons en coïncidence et énergies plutôt faibles.
2. Spectre Ge/NaI :
au moins 3 photons en coïncidence et énergies plutôt élevées.
au moins 3 photons en coïncidence et au moins une énergie supérieure à l'énergie maximum des photons du radionucléide majeur (E_{bdf}).

3. Matrice Ge/Ge :

2 photons en coïncidence et énergies plutôt faibles.

4. Matrice Ge/NaI :

2 photons en coïncidence et énergies plutôt élevées.

2 photons en coïncidence et énergie somme supérieure à l'énergie du radionucléide majeur (E_{bdf}).

Le logigramme présenté figure 68 récapitule la méthode pour choisir la voie de mesure appropriée :

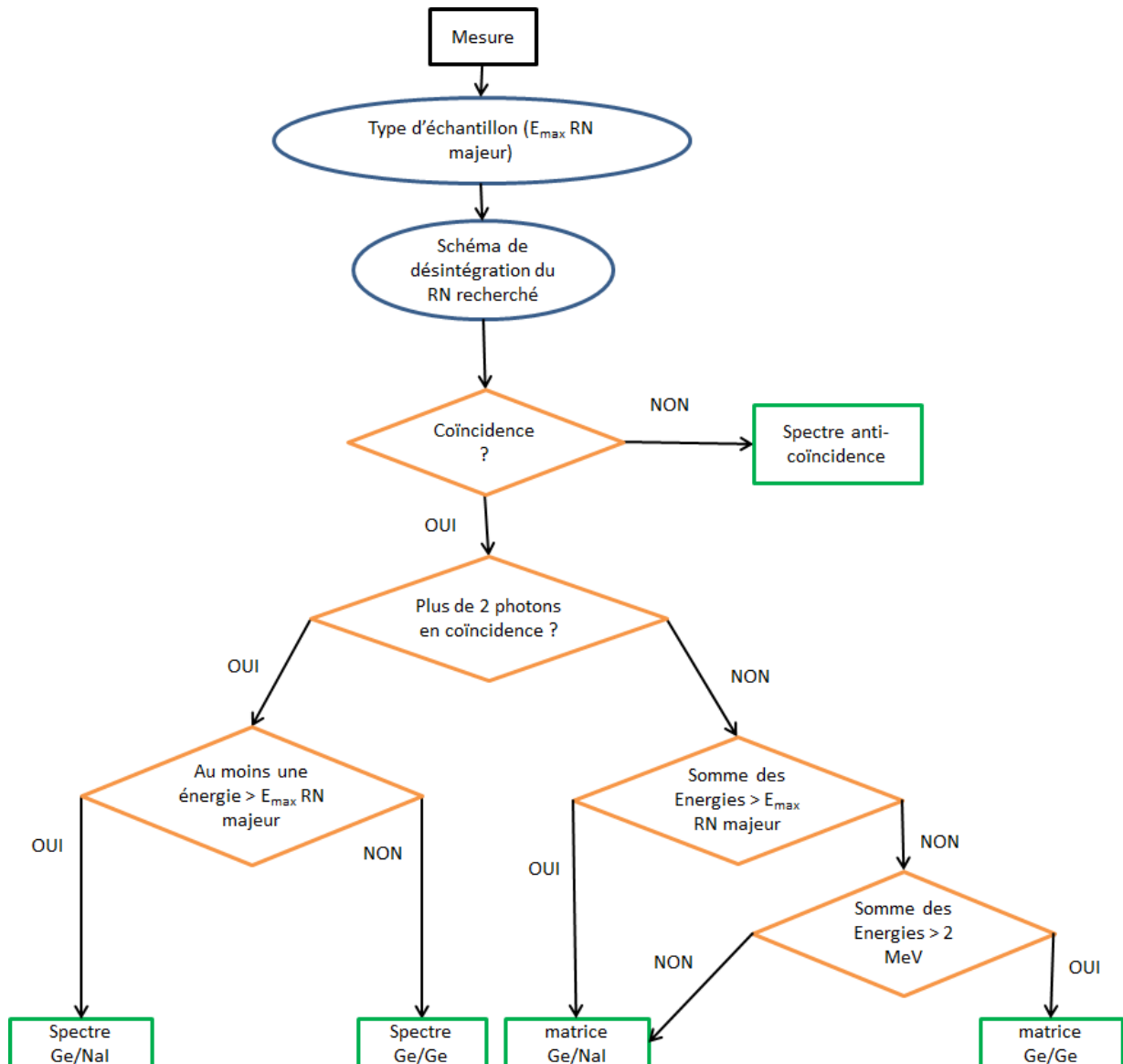


Figure 68 – Logigramme présentant la méthode de choix de la voie de mesure pour un radionucléide donné en fonction du radionucléide présent en forte proportion dans l'échantillon (et son énergie maximum E_{bdf} , dont le fond Compton masque les pics du radionucléide recherché).

3 Algorithme d'analyse

Comme pour le système anti-Compton, un algorithme d'analyse a été développé afin de lire le fichier fourni en mode liste par le Pixie-4 puis tracer les spectres et matrices qui pourront alors être analysés. La figure 69 est une représentation sous forme de logigramme de l'algorithme d'analyse.

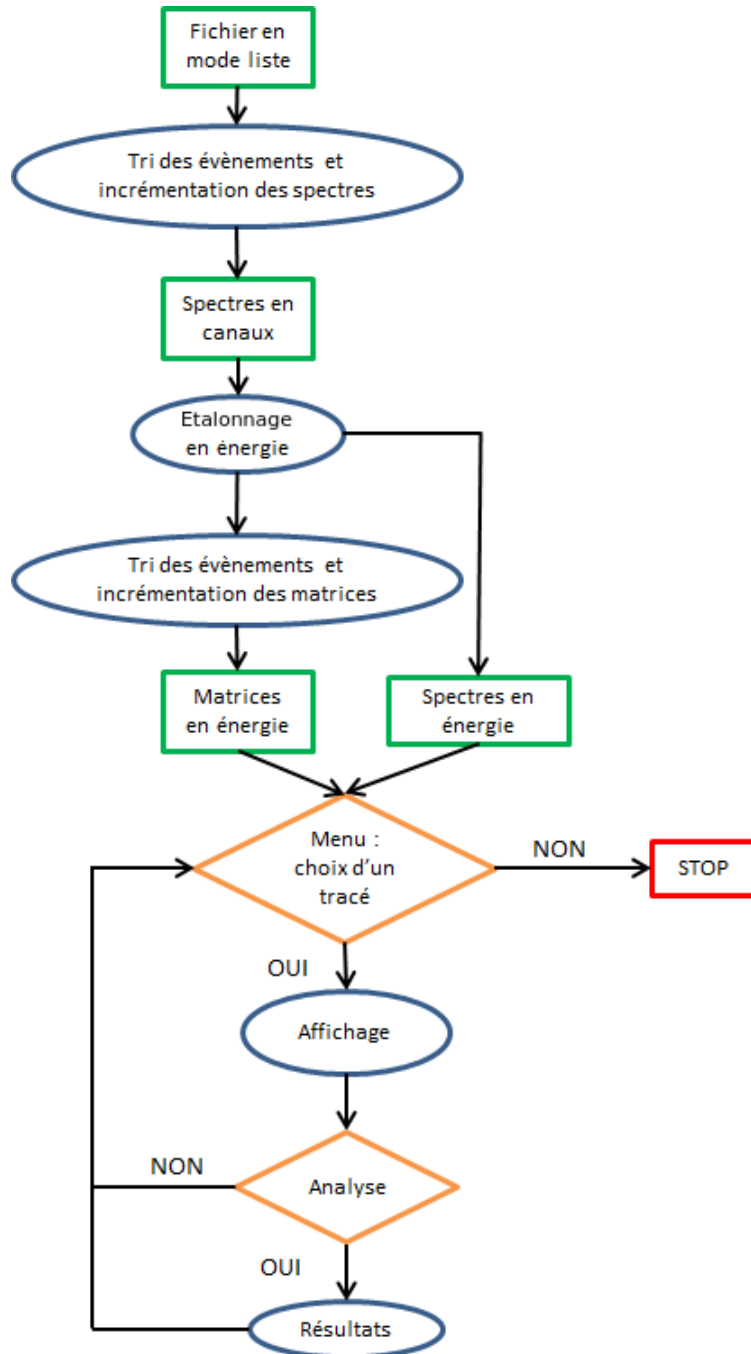


Figure 69 – Logigramme de l'algorithme d'analyse des données de Léda à partir du fichier en mode liste fourni par le Pixie-4.

Les différentes parties de ce logigramme sont détaillées dans la suite de ce chapitre aux § 3.2 et 3.3.

3.1 Reconstruction du temps

Le fichier en mode liste, décrit au paragraphe 1.3.2 de ce chapitre, fournit un temps pour chaque événement et un temps associé à chaque dépôt d'énergie (temps A, temps B, temps C et temps trigger). Le temps est codé sur 48 bits, répartis en 3 valeurs de 16 bits. L'échantillonnage temporel étant de $1/75 \mu\text{s}$, le temps absolu d'un événement est donc reconstruit en utilisant l'équation suivante :

$$t_{\text{événement}} = \text{temps}_A \frac{65536^2}{75} + \text{temps}_B \frac{65536}{75} + \frac{\text{temps}_C}{75} \quad [\mu\text{s}] \quad (62)$$

Ce temps est celui pour lequel l'événement a été enregistré. Pour avoir le temps exact d'un dépôt d'énergie il faut remplacer la dernière partie de l'équation par le temps du trigger (§ 1.3.2 du chapitre IV) :

$$t_{\text{dépôt d'énergie}} = \text{temps}_A \frac{65536^2}{75} + \text{temps}_B \frac{65536}{75} + \frac{\text{temps}_{\text{trigger}}}{75} \quad [\mu\text{s}] \quad (63)$$

L'algorithme lit le fichier ligne par ligne et remplit les spectres et matrices en fonction de chaque événement. L'analyse permet de tracer toutes les représentations expliquées au paragraphe précédent.

3.2 Tri des événements

Le tri des événements est basé sur la lecture du numéro d'événement. Comme trois dépôts au maximum peuvent être en coïncidence, les lignes sont lues 4 par 4 pour avoir toujours au moins 3 lignes qui pourraient être en coïncidence et une autre qui ne le sera pas. Le remplissage des spectres est effectué lors d'une première lecture du fichier en mode liste et les matrices lors d'une seconde lecture. Les spectres sont tracés en nombre d'événements par canal et sont ensuite étalonnés en énergie (§ 3.3 du chapitre IV) tandis que les matrices sont directement incrémentées avec des valeurs en énergie afin de limiter le temps de calcul. Le logigramme présenté par la figure 70 est une représentation simplifiée du tri des événements lors de la première lecture.

La boucle sur le nombre de lignes ne lit pas à chaque fois 4 lignes mais seulement le nombre nécessaire pour avoir à chaque étape 4 lignes à comparer. Par exemple, si les 4 premières lignes donnent les trois premières comme faisant partie du même événement alors la 4^{ème} sera conservée pour la prochaine comparaison et seules trois nouvelles lignes seront lues. En effet, cette 4^{ème} ligne peut être en coïncidence avec la ligne d'après et il faut donc toujours pouvoir comparer une ligne avec celle qui la suit.

Le tableau 13 représente la valeur N (lignes non utilisées) en fonction du type d'événements dans les 4 lignes lues, « C » signifie que la ligne est en coïncidence et « NC » qu'elle ne l'est pas :

Cas N^o	Ligne 1	Ligne 2	Ligne 3	Ligne 4	N (lignes non utilisées)	N (lignes lues à l'étape suivante)
1	C	C	C	NC	1	3
2	NC	C	C	C	0	4
3	C	C	C	C ou NC	2	2
4	NC	C	C	NC	1	3
5	NC	NC	NC	NC	1	3

Tableau 13 – Différentes coïncidences possibles entre les lignes du fichier en mode liste lues par l'algorithme et nombre de lignes non utilisées et lues à l'étape de lecture suivante.

Dans le cas N^o 3, les lignes 3 et 4 ne sont pas utilisées car elles pourraient être en coïncidence entre elles, voire avec la ligne suivante et seront donc utilisées à l'étape suivante.

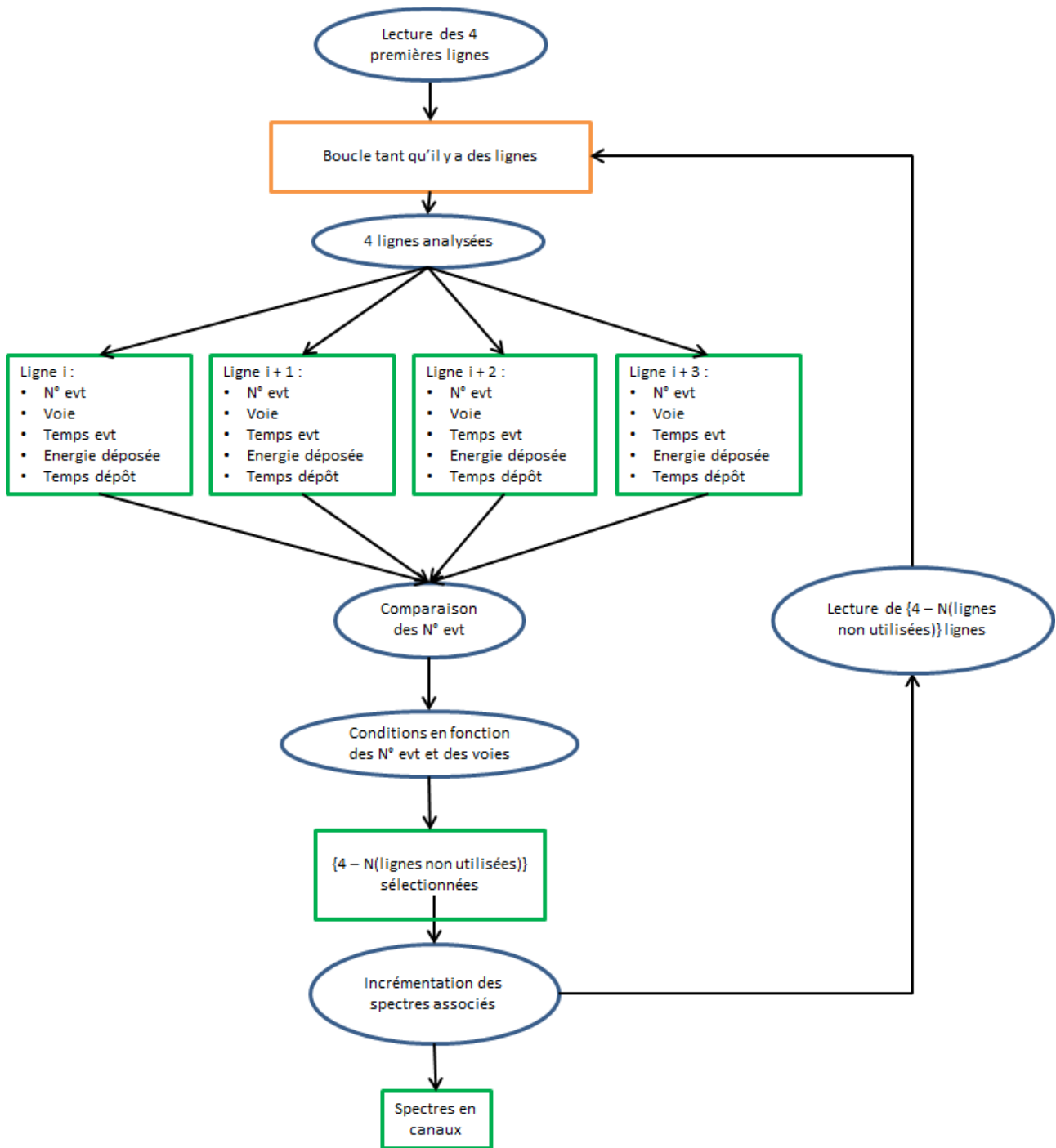


Figure 70 – Logigramme de tri du fichier en mode liste permettant d’incrémenter les spectres.

A la fin de ce tri, l’algorithme a en mémoire plusieurs spectres en canaux, correspondant aux spectres classiques, en anti-coïncidence et en coïncidence pour chacun des trois détecteurs.

3.3 Etalonnage en énergie

Une fonction d'étalonnage en énergie permet de passer d'un spectre en canal à un spectre en énergie. Cette fonction est polynomiale d'ordre 2 (64).

$$E = ax^2 + bx + c \quad (64)$$

Avec :

E : énergie correspondante au canal x [keV]

a, b, c : coefficients [keV]

x : numéro de canal

Les coefficients de ce polynôme sont calculés avec les valeurs en canal et en énergie correspondante d'au moins trois pics. Les fonctions d'étalonnage sont propres à chaque détecteur et varient peu avec le temps mais une vérification est faite à chaque mesure. Si les spectres ne sont pas correctement étalonnés en énergie alors les fonctions sont recalculées. A l'heure actuelle les fonctions d'étalonnage sont (tableau 14) :

Détecteur	Fonction d'étalonnage en énergie
Castor	$9.4276 \cdot 10^{-10}x^2 + 0.04997x + 0.3256$
Polux	$1.5635 \cdot 10^{-10}x^2 + 0.04991x + 0.3284$
Hélène	$7 \cdot 10^{-7}x^2 + 0.5919x - 21.156$

Tableau 14 – Fonctions d'étalonnage en énergie associées à chaque détecteur de Léda.

Il est connu que les scintillateurs NaI présentent des variations de gain, et par conséquent une variation de leur fonction d'étalonnage. Cependant, le système étant installé dans la salle blindée au second sous-sol où les variations de température sont faibles ($\pm 5^\circ\text{C}$), aucune variation significative ($>0.1\%$) du gain n'a été remarquée.

Afin de conserver le nombre d'événements et de ne pas dégrader artificiellement la résolution du spectre, il est nécessaire de lire chaque canal un à un et d'aller incrémenter un nouveau spectre en énergie. La figure 71 représente le logigramme de l'étalonnage en énergie pour un spectre.

Cette technique permet de conserver le nombre total d'événements quel que soit le nombre de canaux du spectre initial et du spectre final en énergie et surtout quelles que soient les variations de résolution en énergie du détecteur, la robustesse de cette technique est démontrée dans Helene and Moralles [27].

Les matrices sont quant à elles incrémentées avec une deuxième lecture du fichier mode liste, en suivant le même principe que le logigramme précédent (figure 71). La seule différence est qu'elles sont directement incrémentées en énergie en appliquant la fonction d'étalonnage en énergie à chaque événement.

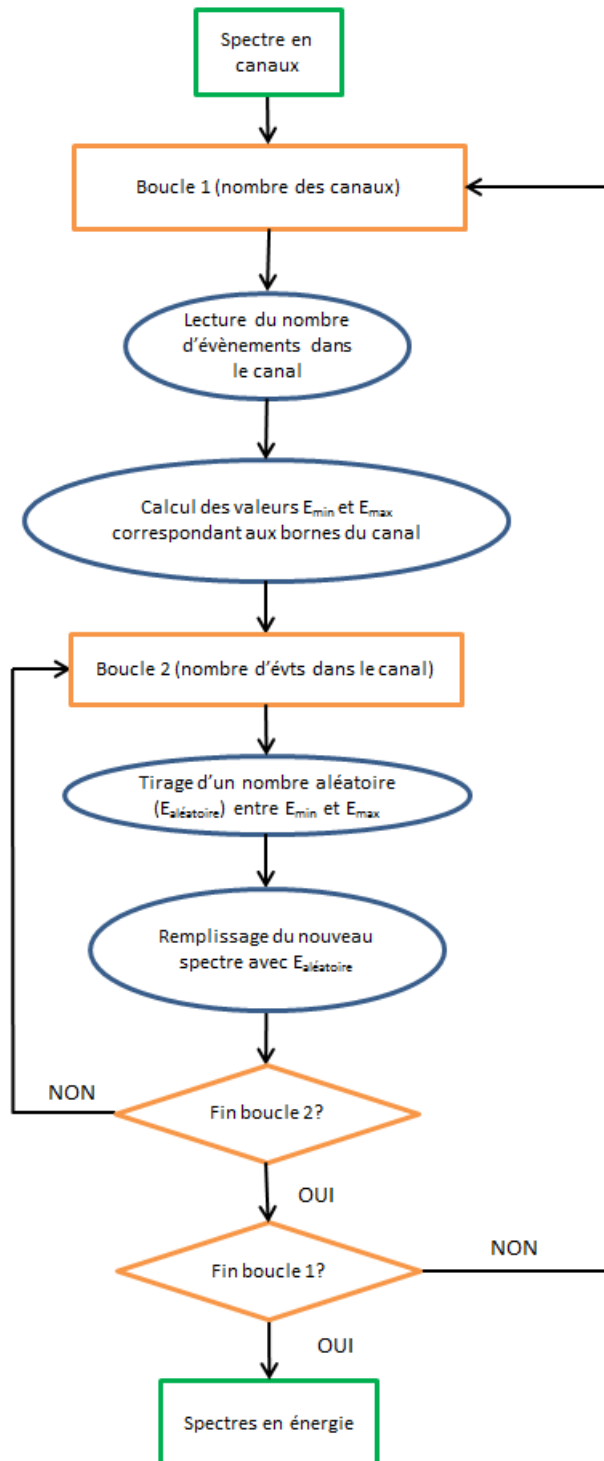


Figure 71 – Logigramme de l'étalonnage en énergie des spectres de Léda.

3.4 Optimisation des ROI

Lorsque tous les spectres et matrices sont tracés, l'algorithme permet de faire une analyse sur chacun d'entre eux. L'ajustement gaussien et le calcul de l'aire sont réalisés pour chaque pic ainsi que le comptage du nombre d'événements dans les empreintes pour les matrices. Comme pour le système anti-Compton, il a été nécessaire d'optimiser la taille de la ROI pour le comptage des empreintes.

Matrice Ge/Ge :

Par analogie avec le spectromètre germanium du système anti-Compton, pour la matrice Ge/Ge la zone d'estimation du bruit de fond a une largeur de 5 fois la largeur de la ROI et une hauteur de 5 fois la hauteur de la ROI (figure 72). Dans cette configuration, le facteur de normalisation χ , est égal à 24.

$$x = a R_{Castor} \quad (65)$$

$$y = a R_{Pollux} \quad (66)$$

$$X = 5 x \quad (67)$$

$$Y = 5 y \quad (68)$$

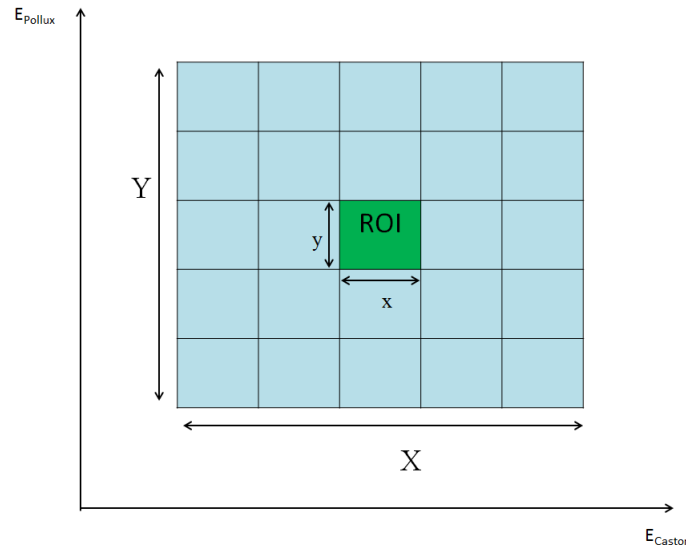


Figure 72 – ROI et zone d'estimation de fond pour les empreintes de la matrice Ge/Ge de Léda.

La figure 72 présente l'évolution du rapport signal sur bruit en fonction des dimensions de la ROI pour les deux empreintes de trois émetteurs en coïncidence (^{60}Co , ^{134}Cs , ^{88}Y) en faisant varier les dimensions de la ROI à l'aide du facteur a . Les rapports signal sur bruit ont été tracés en fonction du paramètre a et les incertitudes associées sont plus petites que les marqueurs de chaque point. Le rapport signal sur bruit est optimal pour a égal à 2.8. Les dimensions de la ROI sont de 2.8 R(Castor) pour la largeur et 2.8 R(Pollux) pour la hauteur.

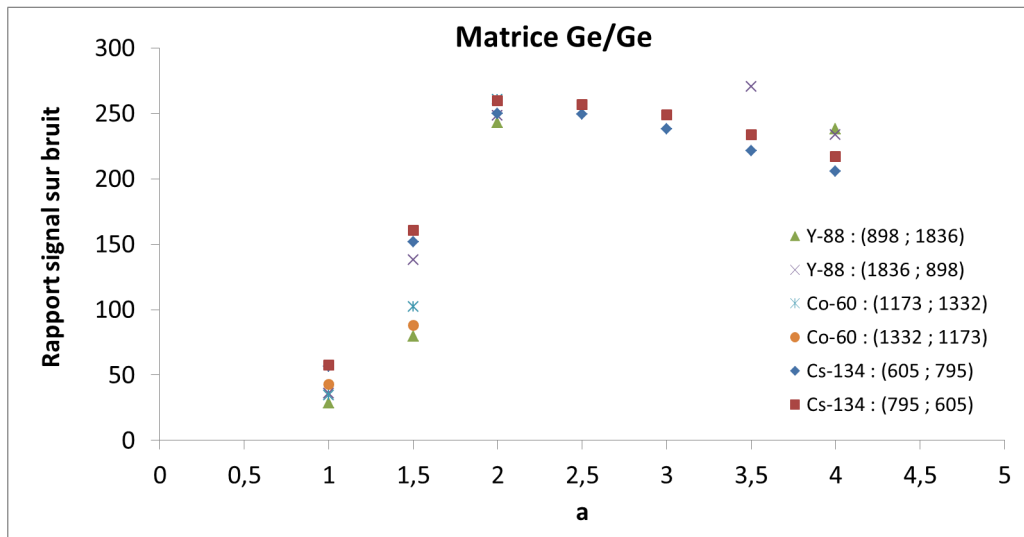


Figure 73 – Evolution du rapport signal sur bruit pour chacune des deux empreintes de trois radionucléides (^{88}Y , ^{60}Co et ^{134}Cs) en fonction de la largeur de la ROI (facteur a).

Matrice Ge/NaI :

Les mêmes tests ont été réalisés avec la matrice Ge/NaI, la largeur de la ROI est de 2.8 $R(\text{SommeGe})$ comme pour la matrice Ge/Ge. Par analogie avec le système anti-Compton, la largeur de la zone d'estimation de fond est de 5 fois la largeur de la ROI et la hauteur de 3 fois la hauteur de la ROI (figure 74).

$$x = a R_{\text{SommeGe}} \quad (69)$$

$$y = b R_{\text{Hélène}} \quad (70)$$

$$X = 5 x \quad (71)$$

$$Y = 3 y \quad (72)$$

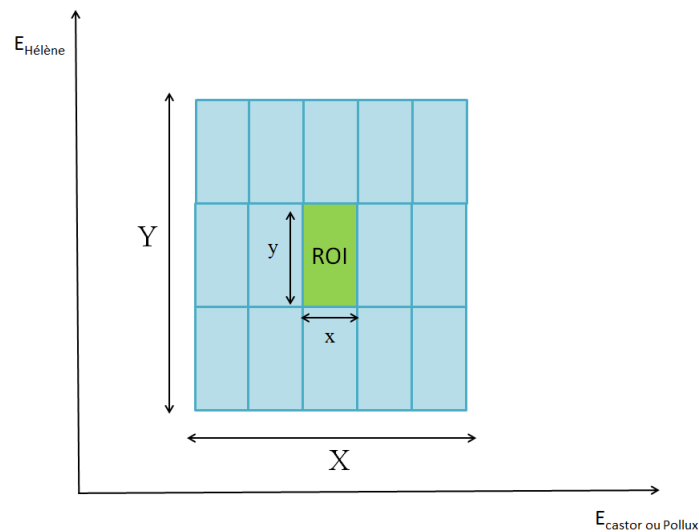


Figure 74 – ROI et zone d'estimation de fond pour les empreintes de la matrice Ge/NaI de Léda.

Le paramètre a est le même que pour la matrice Ge/Ge, donc fixé à 2.8. Le paramètre a a été optimisé sur les empreintes de 3 radionucléides : ^{60}Co , ^{134}Cs et ^{88}Y (figure 75). Les rapports signal sur bruit ont été tracés en fonction du paramètre b et les incertitudes associées sont confondues dans les marqueurs des points. La valeur de b optimale pour les 6 empreintes est de 2.5. Les dimensions de la ROI de la matrice Ge/NaI sont donc de 2.8 fois la résolution du spectre "SommeGe" en largeur et 2.5 fois la résolution d'Hélène en hauteur.

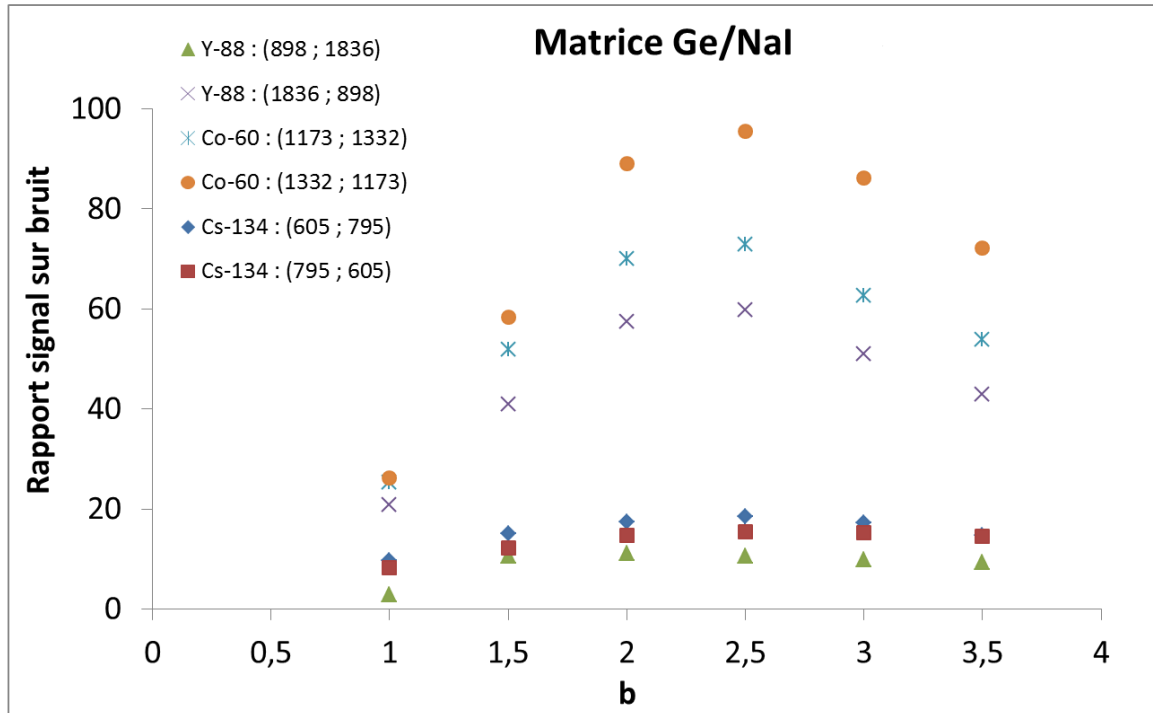


Figure 75 – Evolution du rapport signal sur bruit en fonction de la hauteur de la ROI (facteur b) de la matrice Ge/NaI pour les empreintes de radionucléide (^{88}Y , ^{60}Co et ^{134}Cs).

4 Etalonnage en rendement de détection

4.1 Etalonnage à l'aide de sources étalons

Des coefficients d'étalonnage (§ 4.2 du chapitre II) doivent être calculés pour chacune des voies de mesures.

Voies "SommeGe" et anti-coïncidence :

La mesure d'une source étalon permet de tracer des courbes d'étalonnage en rendement en fonction de l'énergie pour la voie "SommeGe" pour chaque géométrie. Nous avons à disposition les sources multi- γ du laboratoire et des sources de ^{134}Cs en géométrie 10, 17 et 60 mL. La figure 76 représente les courbes d'étalonnage en rendement en fonction de l'énergie pour les trois géométries. Ces courbes sont à utiliser pour la voie en anti-coïncidence sur laquelle les émetteurs simples seront mesurés.

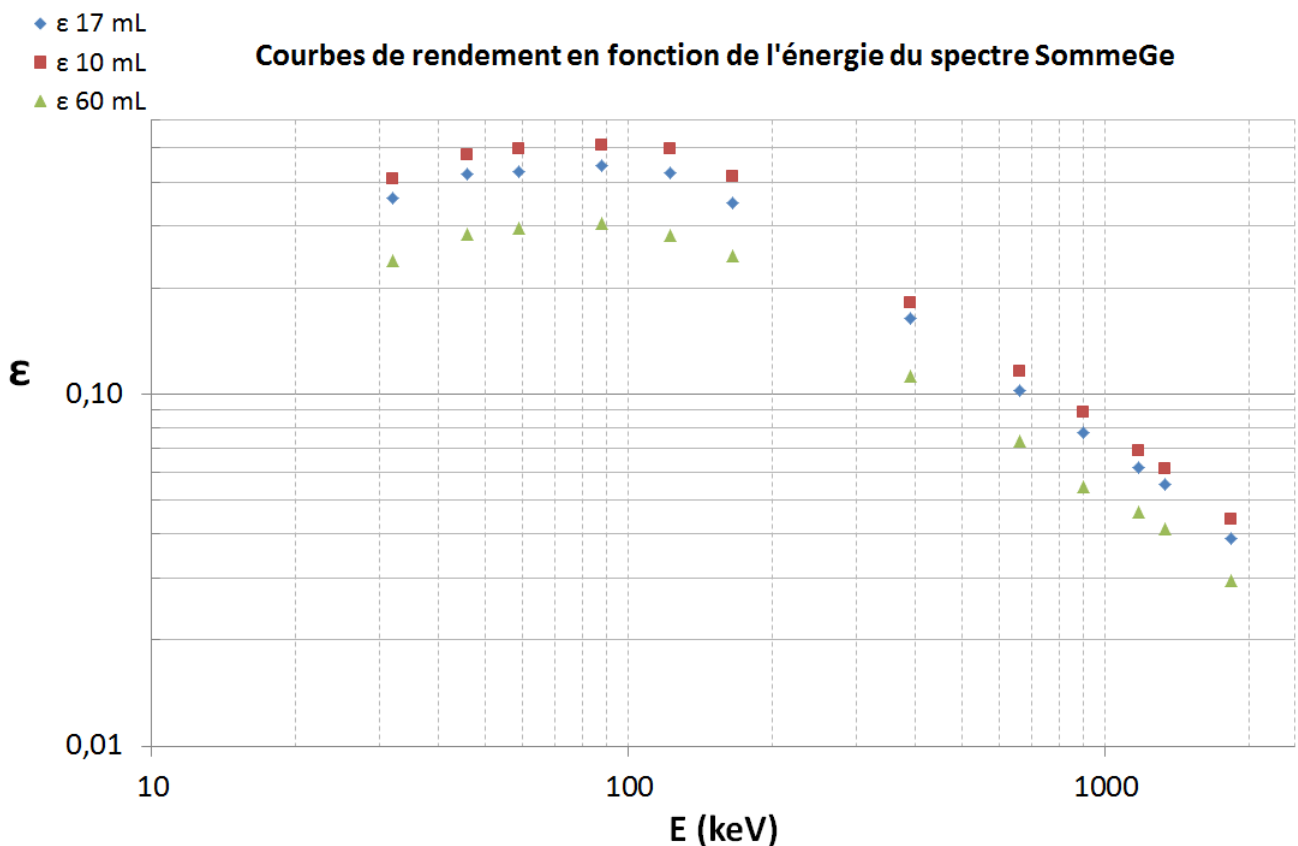


Figure 76 – Rendement de détection en fonction de l'énergie [keV] pour les spectres "SommeGe" des géométries 10 mL (rouge), 17 mL (bleu) et 60 mL (vert).

Voies spectres en coïncidence :

Pour la spectrométrie en coïncidence, les coefficients d'étalonnage sont propres à chaque pic de chaque radionucléide et sont une combinaison entre l'angle solide des détecteurs, le rendement intrinsèque à une énergie donnée pour un détecteur et le rendement intrinsèque sur toute la gamme d'énergie pour l'autre détecteur (Britton et al. [8]). En effet, pour un pic donné dans un spectre en coïncidence, le dépôt dans l'autre détecteur qui permet d'avoir une coïncidence peut se faire à n'importe quelle énergie, que le dépôt d'énergie soit total ou partiel. Les sources étalons disponibles au laboratoire en géométrie 10, 17 et 60 mL contiennent les émetteurs en coïncidence suivant : ^{60}Co , ^{134}Cs , ^{88}Y . Les deux voies en coïncidence (Ge/Ge) et (Ge/NaI) fournissent des coefficients d'étalonnage représentés dans les figures 77 et 78.

Les coefficients d'étalonnage sont inférieurs aux rendements de détection en spectrométrie classique, en moyenne on constate un facteur 2. Les facteurs des spectres en coïncidence "Ge/Ge" sont inférieurs à ceux du spectre en coïncidence "Ge/NaI" car le rendement du scintillateur NaI est bien plus important que celui des spectromètres germanium. Les sources étalons permettent de couvrir la gamme 600 keV - 1836 keV. Plus la géométrie est petite, plus le rendement est élevé, les facteurs de la 10 mL sont deux fois plus importants que ceux de la 60 mL par exemple. Ce phénomène est dû au taux de coïncidence bien plus important sur les petites géométries comme expliqué au chapitre 2. Enfin, les incertitudes relatives associées aux coefficients sont d'environ 6 % avec un facteur d'élargissement $k=2$.

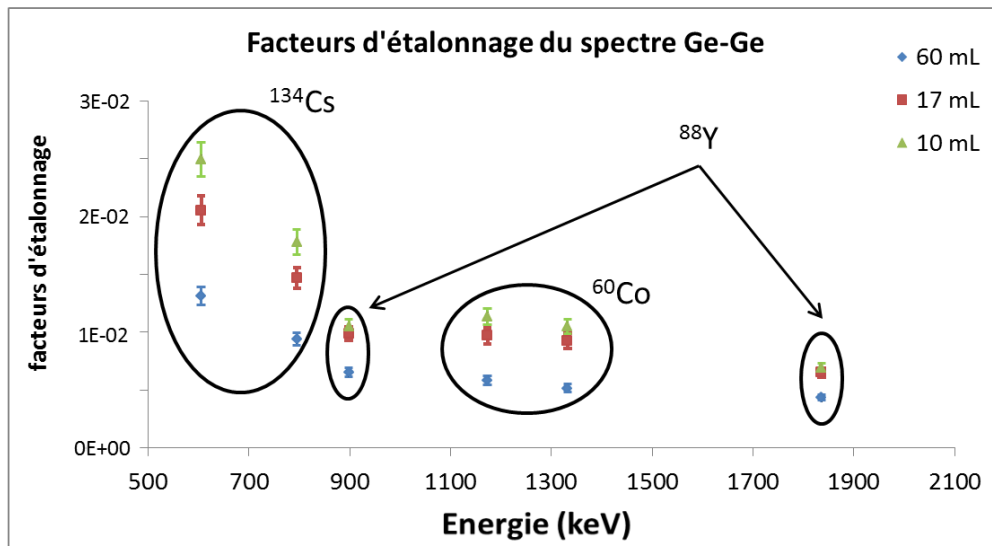


Figure 77 – Coefficients d'étalonnage du spectre en coïncidence "Ge/Ge" pour les 3 géométries utilisées : 10 mL (vert), 17 mL (rouge) et 60 mL (bleu).

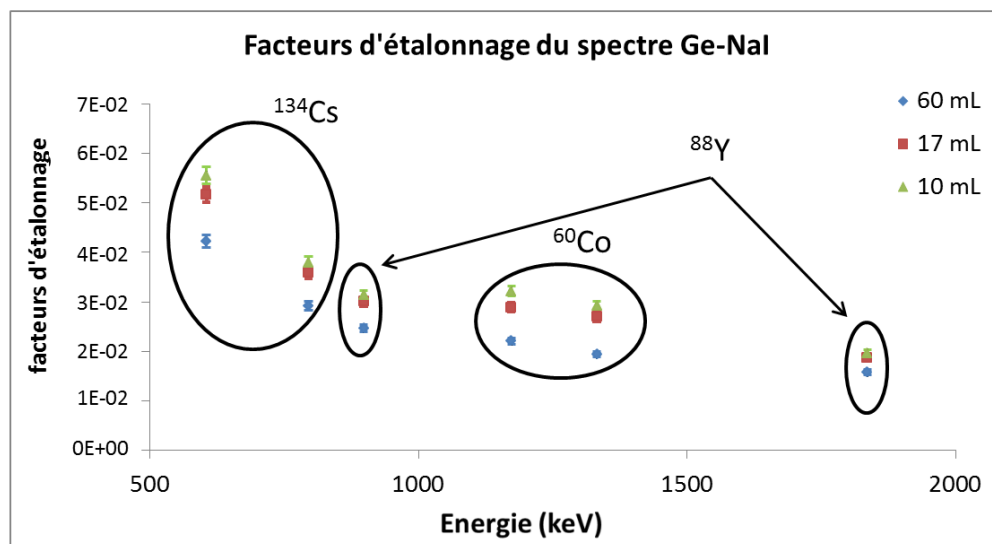


Figure 78 – Coefficients d'étalonnage du spectre en coïncidence "Ge/NaI" pour les 3 géométries utilisées : 10 mL (vert), 17 mL (rouge) et 60 mL (bleu).

Voies matrices de coïncidence :

Enfin, les coefficients d'étalonnage et leurs incertitudes pour les matrices de coïncidence "Ge/Ge" et Ge/NaI sont présentés dans les figures 79 et 80. Cette fois-ci les coefficients sont différents d'un

ordre de grandeur entre les coïncidences Ge/Ge et Ge/NaI. Les incertitudes associées aux coefficients d'étalonnage en rendement sont compris entre 6 % et 12 % à $k=2$ et sont les plus élevés pour la matrice de coïncidence "Ge/Ge".

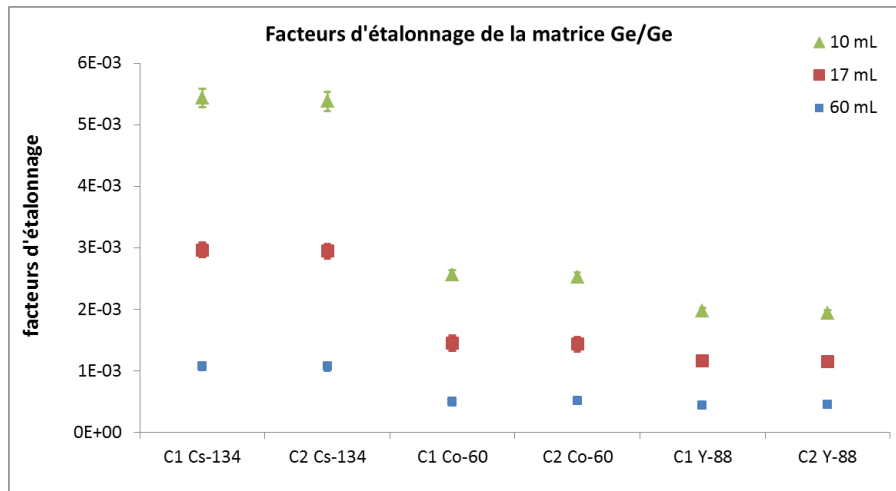


Figure 79 – Coefficients d'étalonnage de la matrice Ge/Ge pour trois géométries : 10 (vert), 17 (rouge) et 60 mL (bleu) pour les deux empreintes (C₁ et C₂) de 3 radionucléides (⁶⁰Co, ¹³⁴Cs, ⁸⁸Y).

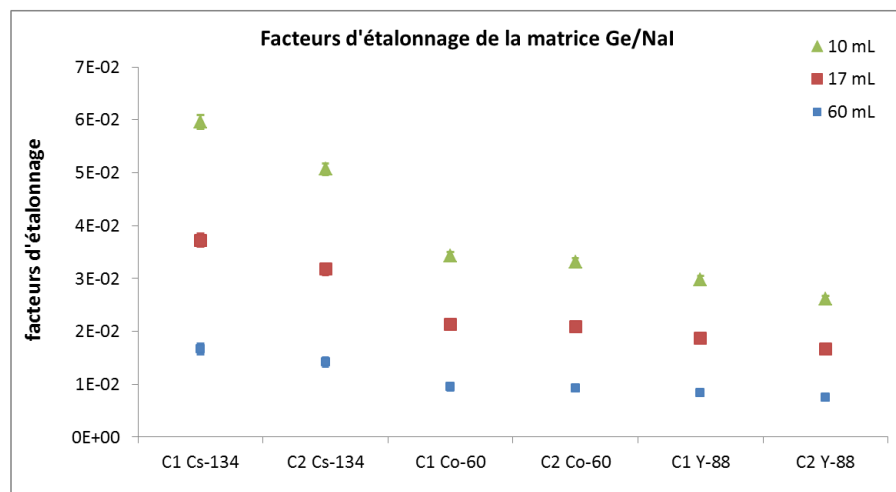


Figure 80 – Coefficients d'étalonnage de la matrice Ge/NaI pour trois géométries : 10 mL (vert), 17 mL (rouge) et 60 mL (bleu) pour les deux empreintes (C₁ et C₂) de 3 radionucléides (⁶⁰Co, ¹³⁴Cs, ⁸⁸Y).

Toutes les voies de mesure ont leur propre étalonnage, les voies "SommeGe" et anti-coïncidence ont un étalonnage en fonction de l'énergie et un facteur de correction de coïncidence permet de mesurer tous les radionucléides. Pour les voies en coïncidence, un étalonnage dépendant de chaque radionucléide est nécessaire. Si un radionucléide n'est pas disponible en source étalon, il est nécessaire de calculer ses coefficients d'étalonnage par simulation Monte Carlo.

4.2 Etalonnage par simulation Monte Carlo

Comme pour le système anti-Compton, le modèle Monte Carlo a été optimisé pour permettre de réaliser un étalonnage par simulation lorsque les radionucléides ne sont pas disponibles en source étalon. Les activités des radionucléides sont données à une incertitude de 5 % à $k=2$ (95 %). Pour déterminer l'incertitude à associer aux calculs réalisés avec le modèle Monte Carlo, nous avons réalisé

des simulations avec un nombre d'histoire (NPS) de 10^8 pour négliger l'incertitude statistique et évaluer les écarts entre le modèle et la réalité.

Courbes d'étalonnage en rendement :

Les graphiques ci-dessous (figure 81) montrent que le modèle Monte Carlo fournit des coefficients d'étalonnage pour le spectre "SommeGe" qui correspondent, aux incertitudes près à ceux calculés expérimentalement pour les trois géométries. L'incertitude associée au coefficients d'étalonnages simulés avec ce modèle sera déduite de la comparaison des points expérimentaux et simulés. Il est nécessaire de rappeler que la plus importante source d'incertitude expérimentale est l'incertitude associée à l'étalon qui est de l'ordre de 5 % à $k=2$. L'ensemble des points de comparaison est compris dans un intervalle de 10 %, ce qui permet d'associer aux coefficients d'étalonnage simulés avec cette voie une incertitude de 10 % à $k=2$.

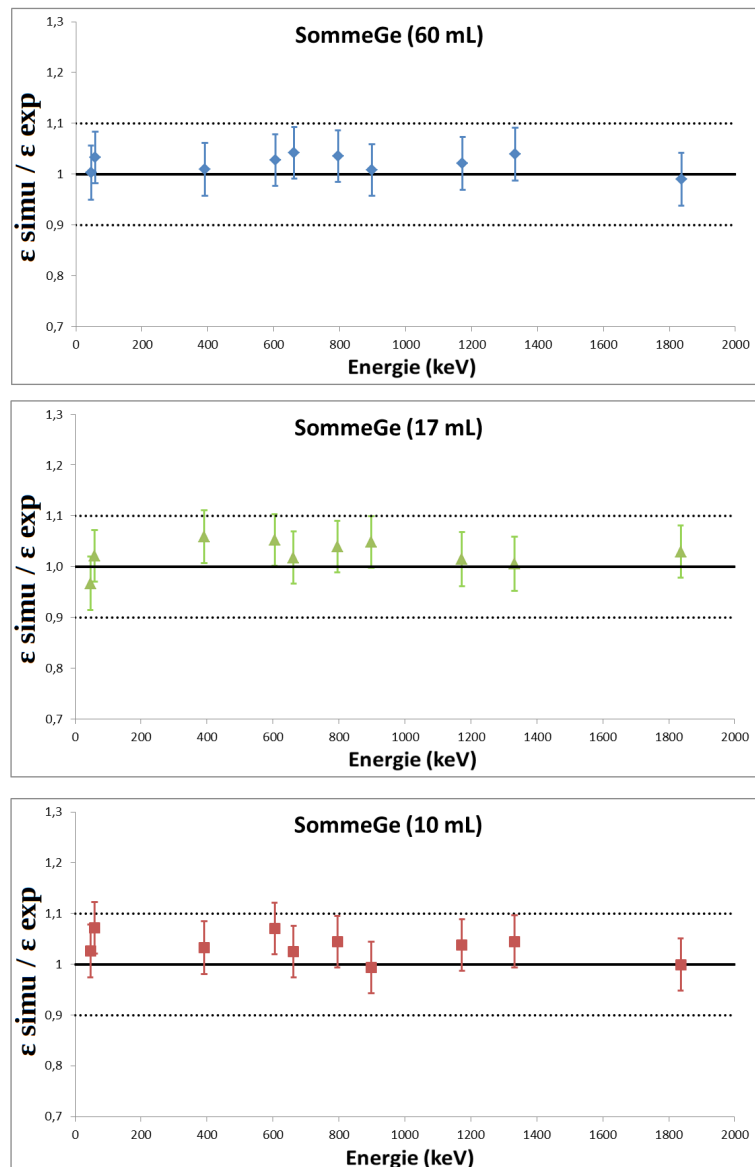


Figure 81 – Rapport entre les rendements de détection simulés et expérimentaux de la voie "SommeGe" pour 3 géométries utilisées (de bas en haut, 10, 17 et 60 mL).

Coefficients d'étalonnage en coïncidence :

Les différentes matrices en coïncidence ont été simulées pour chaque géométrie et le récapitulatif est présenté sur la figure 82. Comme pour la voie précédente, c'est la comparaison entre la simulation et la réalité qui permet de déduire une incertitude à associer aux coefficients d'étalonnage simulés.

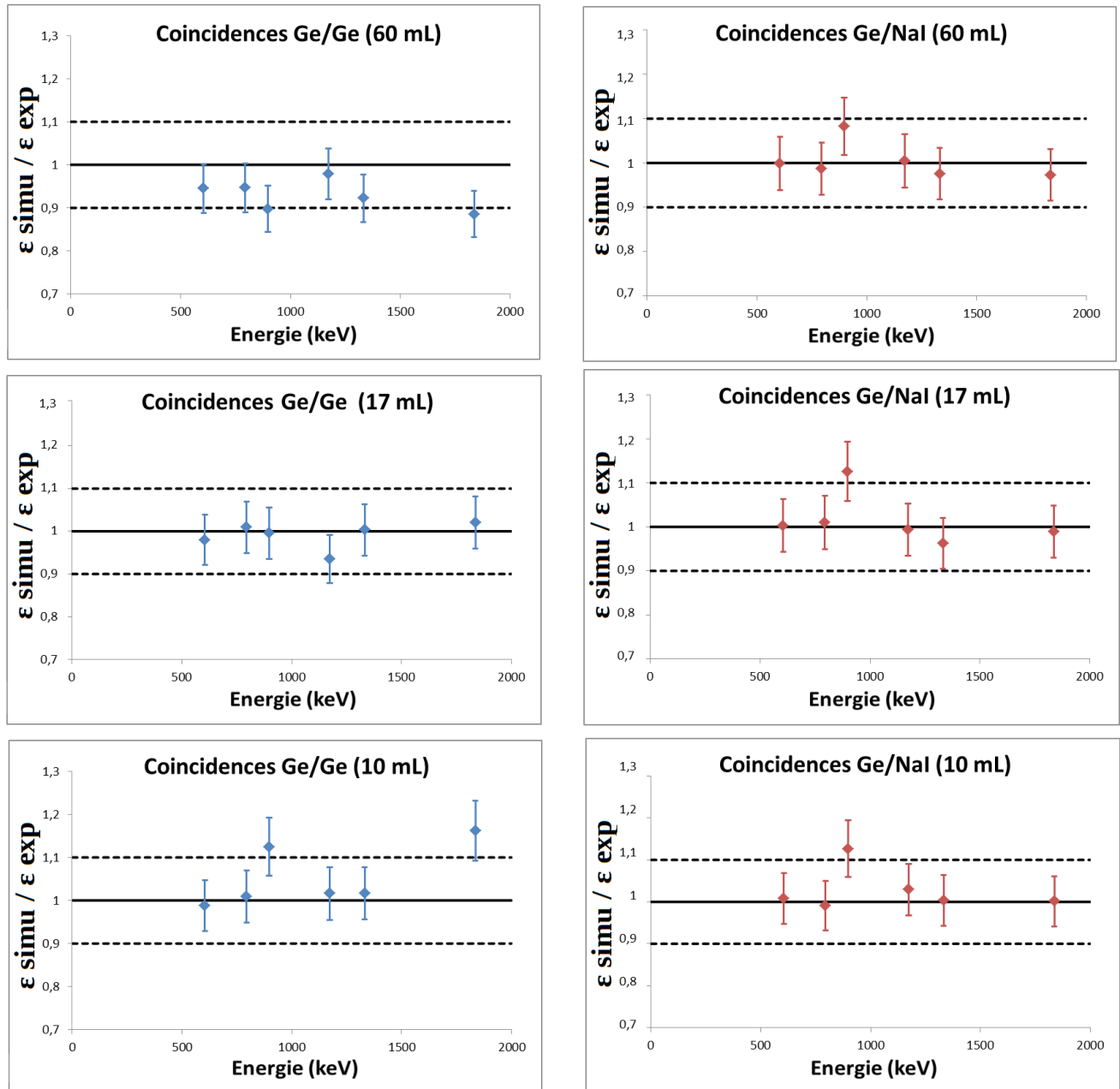


Figure 82 – Comparaison des coefficients d'étalonnage des matrices de coïncidence "Ge/Ge" (gauche) et Ge/NaI (droite) simulés et expérimentaux pour trois radionucléides (^{60}Co , ^{134}Cs , ^{88}Y) et 3 géométries (10, 17 et 60 mL de bas en haut).

On notera qu'une partie des ratios entre les coefficients simulés et expérimentaux ne correspondent pas, c'est pour cela qu'il est nécessaire d'augmenter l'incertitude associée au coefficients simulés sur ces voies du modèle. Les points de comparaison les plus éloignés ont des écarts de -12 % et +13 %, c'est pour cela qu'une incertitude de 15 % ($k=2$) est associée au modèle.

Il est intéressant de noter que dans plusieurs cas, les coefficients d'étalonnage de ^{88}Y à 898 keV et 1836 keV sont ceux qui ont les écarts les plus importants. Ces écarts sont dus aux émissions X de 13

keV lors d'une désintégration de ^{88}Y . En effet, la simulation des photons d'énergie si basse est difficile car très sensible aux variations d'épaisseur des différents écrans.

Pour terminer, les coefficients d'étalonnage des spectres de coïncidences, Ge/Ge et Ge/NaI, ont été comparés (figure 83). Comme pour les matrices en coïncidence, une partie des ratios n'entrent pas dans l'intervalle de comparaison en tenant compte uniquement des incertitudes expérimentales. Cependant, en associant une incertitude aux coefficients simulés sur ces voies du modèle, il est acceptable de dire que les coefficients d'étalonnage correspondent compte tenu de la complexité de la simulation de certaines voies. Les ratios des coefficients d'étalonnage les plus éloignés présentent des écarts de -13 % et +16 %, ce qui permet d'augmenter l'incertitude à 20 %, pour les coefficients d'étalonnage des spectres en coïncidence simulés avec le modèle Monte Carlo.

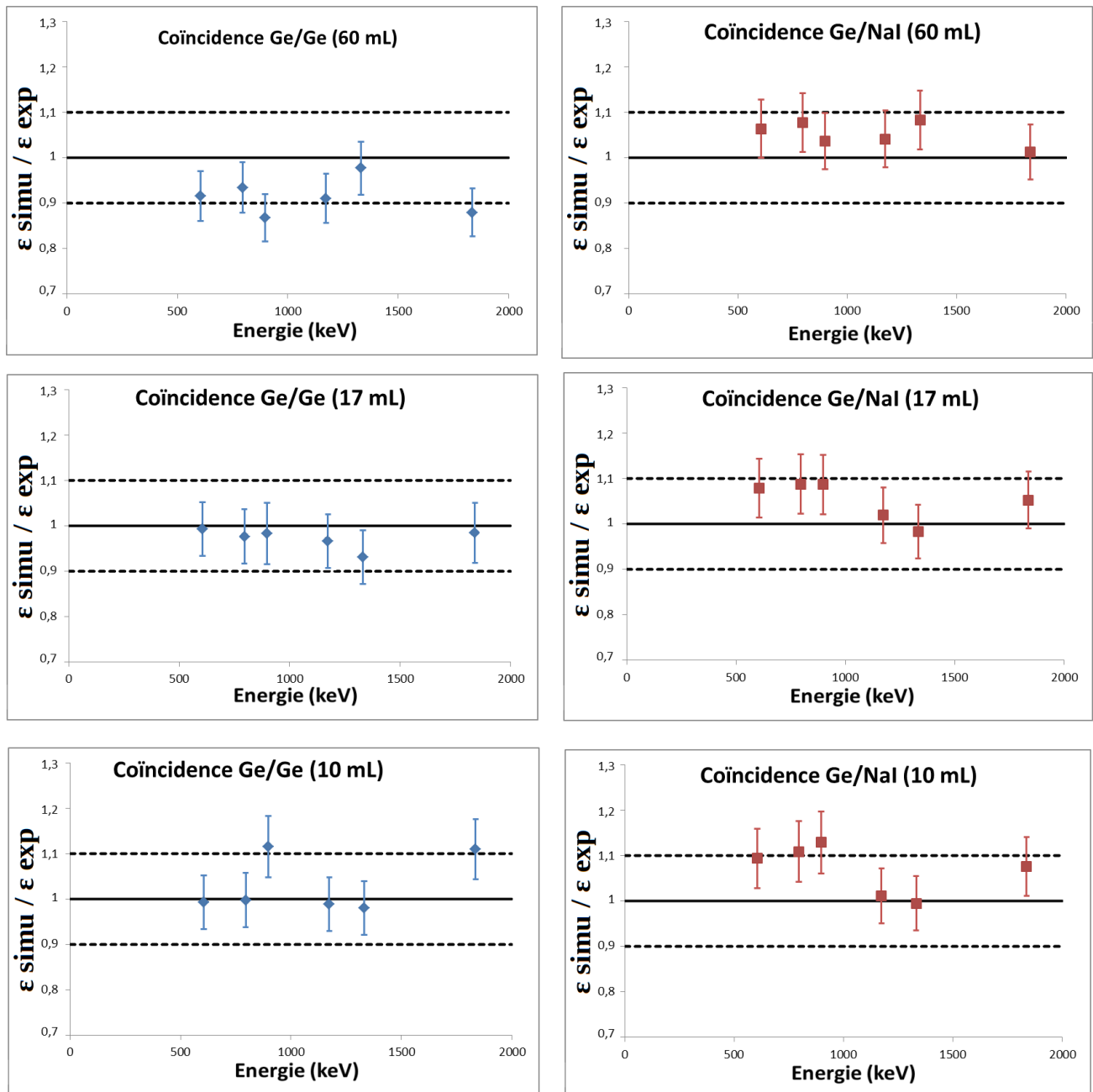


Figure 83 – Comparaison des coefficients d'étalonnage spectres de coïncidence "Ge/Ge" (gauche) et Ge/NaI (droite) simulés et expérimentaux pour 3 radionucléides (^{60}Co , ^{134}Cs , ^{88}Y) et 3 géométries (10, 17 et 60 mL de bas en haut).

5 Bruit de fond

La mesure du mouvement propre de Léda permet d'identifier les radionucléides présents dans le système et les interactions du rayonnement cosmique avec le système. En effet, comme expliqué dans le chapitre III.4, des neutrons tertiaires vont engendrer des réactions nucléaires dans les matériaux lourds composant le système.

Le spectre de bruit de fond de Léda (figure 84) montre la présence des différentes composantes, un fond cosmique continu et de multiples pics naturels, l'ensemble des pics sont détaillés dans le tableau 15.

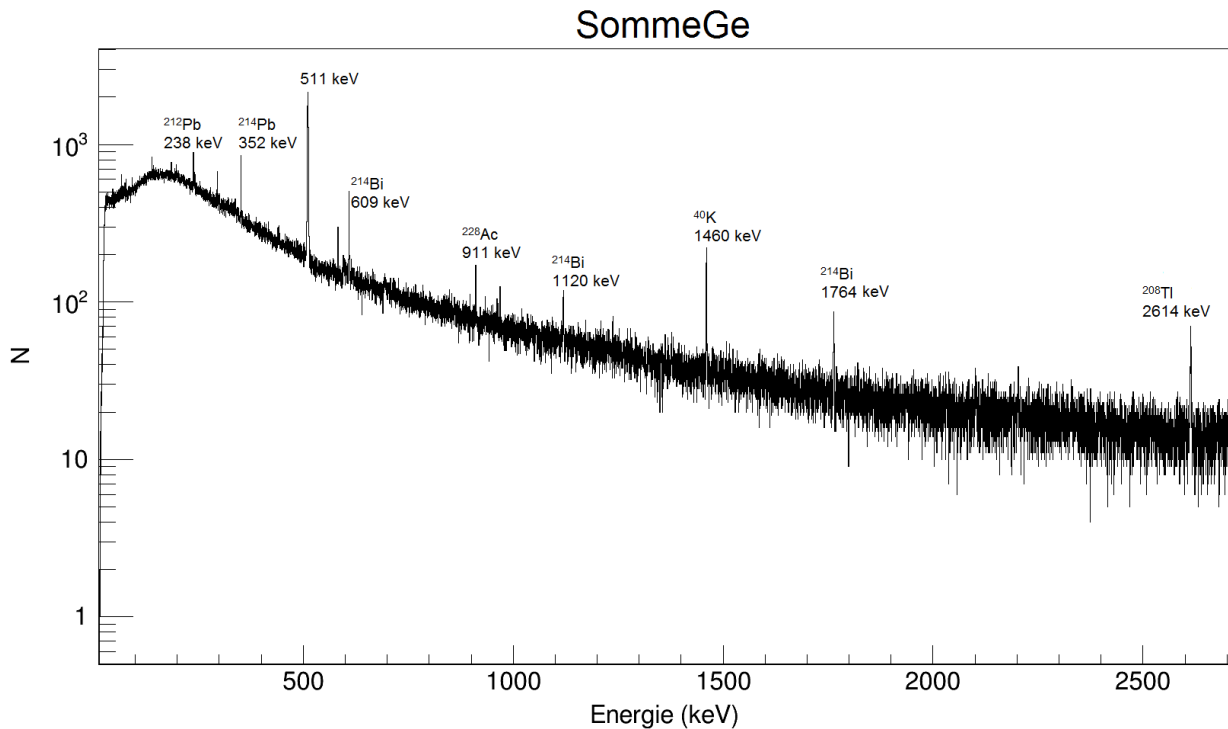


Figure 84 – Spectre "SommeGe" d'une mesure de bruit de fond de Léda pendant 1 100 000 s et principaux pics présents.

Afin de suivre l'évolution du bruit de fond avec la mise en place d'un dégazage d'azote et l'ajout du scintillateur NaI, différentes mesures ont été réalisées pour chaque changement de configurations, les pics présents dans les spectres de chacune de ces mesures sont répertoriés dans le tableau 15. Tout d'abord, une mesure sur Castor et Pollux seuls à l'intérieur du blindage (configuration 1), ensuite en ajoutant un balayage d'azote (configuration 2) et enfin, en rajoutant Hélène (configuration 3). La mesure avec Hélène a montré une contamination au ^{60}Co , ce qui a engendré le changement de son enveloppe en inox par un capot en cuivre et donc une nouvelle mesure de bruit de fond (configuration 4).

Pour chaque configuration, une étude du spectre "SommeGe" a été réalisée pour identifier les radionucléides ou interactions associés à chaque pic présent. Les taux de comptage [h^{-1}] associés à chaque pic sont regroupés dans les quatre dernières colonnes du tableau 15. Afin d'alléger le tableau, les taux de comptage ont été notés sans leurs incertitudes associées, cependant, elles peuvent aller jusqu'à 50 % pour les plus faibles compte tenu de la faible statistique dans les pics et de l'important fond soustrait. En vert sont surlignées les améliorations apportées par le changement par rapport à la mesure précédente, en rouge les augmentations des taux de comptage dues à l'ajout du NaI. Les principales caractéristiques des quatre configurations sont décrites ci-dessous :

- Configuration 1 : Castor et Pollux à l'intérieur du blindage (690 000 s)
Cette première mesure permet d'identifier les descendants particuliers du radon ainsi que quelques radionucléides naturels présents dans les détecteurs et le blindage.
- Configuration 2 : Castor et Pollux à l'intérieur du blindage avec la mise en place d'un balayage d'azote (600 000 s). Le passage de la configuration 1 à la configuration 2, permet de réduire l'apport des descendants particuliers du radon (figure 85). Les pics suivants, qui leur sont associés, ont un taux de comptage qui a diminué d'un facteur 2 environ :
 - ^{214}Pb : 295.2 keV, 351.9 keV
 - ^{214}Bi : 1764.5 keV, 609.3 keV
 - ^{208}Tl : 2614.5 keV

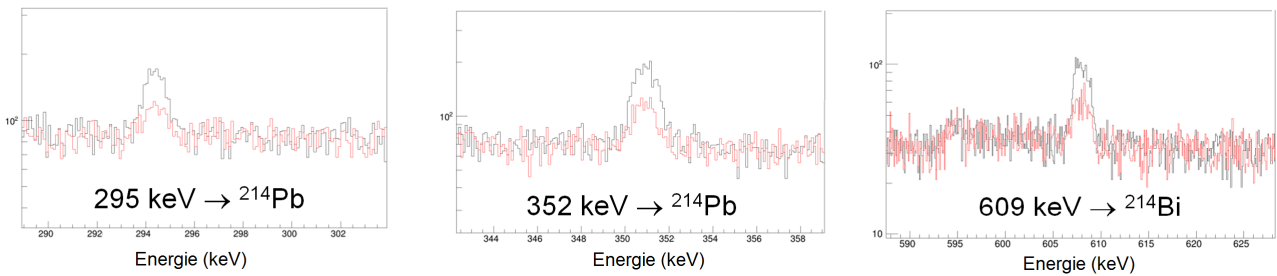


Figure 85 – Zoom du spectre "SommeGe" d'une mesure de bruit de fond sans (noir) et avec balayage d'azote (rouge) sur quelques pics caractéristiques de ^{214}Pb et ^{214}Bi .

- Configuration 3 : ajout du NaI (Castor et Pollux entourés d'Hélène (capot en inox)) à l'intérieur du blindage avec un balayage d'azote (1 100 000 s)
L'ajout du scintillateur NaI a augmenté fortement la présence des deux familles naturelles de ^{232}Th et de ^{238}U , on note l'apparition d'un nouveau radionucléide, le ^{234}Th et la forte augmentation d'autres émetteurs comme ^{228}Ac , ^{212}Pb ou encore ^{208}Tl . Ces radionucléides sont essentiellement présents dans les photomultiplicateurs ; en effet, lorsque les spectres des deux germaniums sont comparés séparément, on note une proportion bien plus importante sur le spectre de Pollux qui est du côté des photomultiplicateurs. Par ailleurs, l'épaisseur de NaI supprime la quasi-totalité des photons X du plomb composant le blindage. Enfin, on note la présence en proportion non négligeable (> 1 coup par heure) des pics à 1173 keV et 1332 keV de ^{60}Co . L'origine de cette contamination est l'inox qui constitue le capot de protection du scintillateur NaI. C'est pour cette raison qu'Hélène a été renvoyée chez le constructeur pour effectuer le changement du capot en inox contaminé, par un capot en cuivre.
- Configuration 4 : changement du capot en inox par du cuivre (Castor et Pollux entourés d'Hélène) et balayage d'azote (1 100 000 s)
Le remplacement de l'inox par du cuivre a conduit à la suppression de ^{60}Co , on peut voir dans la dernière colonne du tableau 15 la disparition des deux pics de ^{60}Co .

Energie des principaux pics (keV)	Radionucléide	Origine	Taux de comptage pour chaque configuration (h^{-1})			
			N°1	N°2	N°3	N°4
46.5	^{210}Pb	^{238}U	3.7	2.9	0.7	0.4
66.7	^{73m}Ge	$^{72}\text{Ge} (n,\gamma)$	1.6	1.6	0.6	2.6
72.8/75	$\text{XK}_{\alpha 2}$	Pb	14.1	12.7	<0.8	0.8
74.8/75	$\text{XK}_{\alpha 2}/\text{XK}_{\alpha 1}$	Bi/Pb	28.2	27.5	0.7	1.3
77.1	$\text{XK}_{\alpha 1}$	Bi	0.3	0.6	2.6	1.7
84.9	$\text{XK}_{\beta 1}$	Pb	15.8	15.5	<0.7	<0.5
87.3	XK_{β}	Bi/Pb	7.2	3.3	2.5	<0.5
92.8	^{234}Th	^{238}U	<0.7	<0.7	1.3	1.5
139.7	^{75m}Ge	$^{74}\text{Ge}(n,\gamma)$	1.7	1.2	0.8	0.6
185.7/186.2	$^{235}\text{U}/^{226}\text{Ra}$	$^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$	0.8	<0.8	1.8	1.7
198.3	^{71m}Ge	$^{70}\text{Ge} (n,\gamma)$	2.5	1.9	0.6	0.8
238.6	^{212}Pb	^{220}Rn	<0.8	0.6	5.9	6.0
242.9	^{214}Pb	^{222}Rn	<0.8	2.3	3.3	2.5
295.2	^{214}Pb	^{222}Rn	6.2	2.5	4.0	2.4
338.3	^{228}Ac	^{232}Th	<0.7	<0.7	1.2	1.6
351.9	^{214}Pb	^{222}Rn	11.2	4.5	7.7	7.3
417.9	$^{127}\text{I}^*$	$^{127}\text{I}(n,n')$	<0.6	<0.5	0.8	1.3
439.9	$^{23}\text{Na}^*$	$^{23}\text{Na}(n,n')$	<0.6	<0.5	0.8	1.1
442.7	^{128}I	$^{127}\text{I}(n,\gamma)$	<0.6	<0.5	0.7	0.5
511	e^+	Annihilation	111.6	111.4	81.5	81.2
583.2	^{208}Tl	^{220}Rn	<0.6	<0.5	2.7	2.6
596.3	$^{74}\text{Ge}^*$	$^{74}\text{Ge}(n,n')$	1.5	1.0	1.0	1.1
609.3	^{214}Bi	^{222}Rn	8.5	3.9	7.6	6.2
727.3	^{212}Bi	^{220}Rn	<0.5	<0.5	0.9	0.7
911.1	^{228}Ac	^{232}Th	<0.5	0.6	2.2	2.3
969.0	^{228}Ac	^{232}Th	<0.5	<0.5	1.2	1.2
1120.3	^{214}Bi	^{222}Rn	1.7	1.1	2.3	1.3
1173.2	^{60}Co	inox contaminé	<0.4	<0.4	1.5	<0.3
1332.5	^{60}Co	inox contaminé	<0.4	<0.4	1.6	<0.2
1460.8	^{40}K	Tellurique	4.7	4.5	4.7	5.0
1764.5	^{214}Bi	^{222}Rn	2.4	1.0	1.8	1.4
2614.5	^{208}Tl	^{220}Rn	1.8	1.4	2.4	2.1
Intégrale 30-2700 keV			5148	5055	5253	5233

Tableau 15 – Taux de comptage pour les principaux pics présents dans le spectre "SommeGe" bruit de fond de Léda pour 4 configurations de mesure. Les couleurs mettent en avant des diminutions des taux de comptage (vert) ou des augmentations (rouge), pour mettre en avant les effets entre les différentes configurations.

Enfin, dans les quatre configurations, on remarque également de nombreuses interactions des neutrons tertiaires avec les matériaux du système présents en quantité importante, à savoir les cristaux de germanium et le scintillateur NaI(Tl). Les deux réactions nucléaires observées sont la réaction de capture neutronique radiative (n,γ) et la diffusion inélastique neutronique (n,n'). Le tableau 16 récapitule chaque matériau sur lesquels les neutrons interagissent avec le noyau produit et le photon observé.

Il est intéressant de noter que le pic à 596.3 keV présente un élargissement sur la droite, ce phénomène est dû à l'effet Doppler de l'énergie du noyau de recul dans le germanium. L'origine est la même que pour les autres réaction (n,n'), cependant, pour ^{127}I et ^{23}Na , la réaction nucléaire se produit dans le NaI et le photon est collecté dans le Ge, le noyau de recul n'est donc pas dans le détecteur. A l'inverse, ^{74}Ge est produit dans le germanium, qui est aussi le matériau détecteur, et où le noyau de recul conduit à l'effet Doppler.

Réaction nucléaire	Noyau cible (abondance isotopique)	Noyau produit	Energie du photon γ de désexcitation (keV)
Diffusion (n,n')	^{23}Na (100 %)	$^{23}\text{Na}^*$	439.9
	^{127}I (100 %)	$^{127}\text{I}^*$	417.9
	^{74}Ge (36.7 %)	$^{74}\text{Ge}^*$	596.3 (pic élargi)
Capture radiative (n,γ)	^{127}I (100 %)	^{128}I	442.7
	^{70}Ge (20.4 %)	^{71m}Ge	198.3
	^{72}Ge (27.3 %)	^{73m}Ge	66.7
	^{74}Ge (36.4 %)	^{75m}Ge	139.7

Tableau 16 – Réactions nucléaires des neutrons tertiaires sur les détecteurs (germanium et NaI) du système, avec le type de réaction, le noyau cible, le noyau produit ainsi que l'énergie du photon γ émis.

Il est à noter que l'ensemble des voies de mesures a été exploré pour rechercher d'autres radionucléides que ceux qui sont présentés dans le tableau 15. Aucun autre radionucléide n'a été identifié, ce qui permet d'affirmer que pour les radionucléides artificiels qui sont mesurés sur Léda, il n'est pas nécessaire de tenir compte d'une composante de bruit de fond dans le calcul d'activité ou de limites caractéristiques (SD et LD).

6 Distribution temporelle des coïncidences

6.1 Mesure d'une source étalon

L'électronique numérique permet d'enregistrer tous les dépôts d'énergie avec leur temps exact. On peut ainsi tracer la distribution en temps entre les coïncidences (figure 86) pour une mesure de source étalon ; qu'elles soient Ge/Ge (gauche) ou (Ge/NaI) (droite). Cet écart en temps, noté Δt , est la durée qui s'écoule entre les deux dépôts d'énergie en coïncidence.

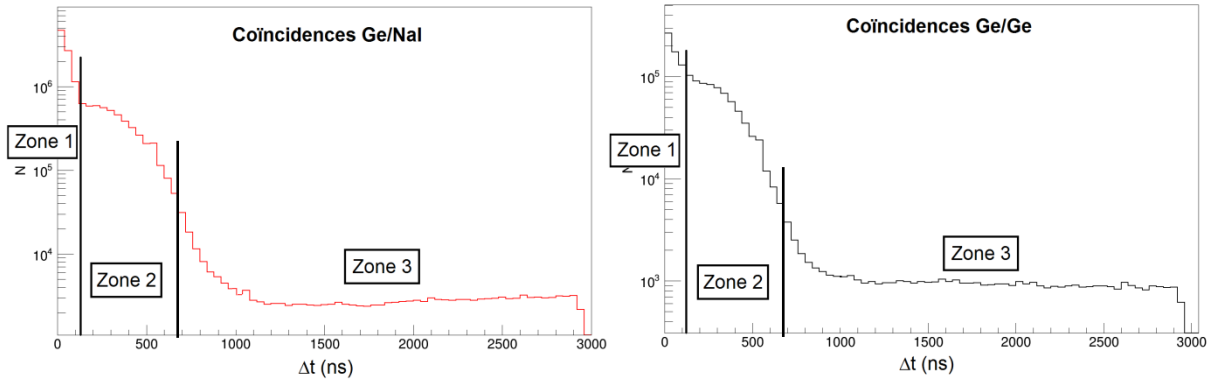


Figure 86 – Distribution du temps entre deux dépôts en coïncidence (Δt en ns) pour les coïncidences Ge/NaI (gauche) et Ge/Ge (droite).

Les distributions étant similaires, pour la suite de l'étude des écarts en temps (Δt), nous nous concentrons sur les coïncidences Ge/NaI. On remarque trois zones distinctes dans les distributions de Δt . Pour chacune de ces zones, les spectres en coïncidence ont été tracés et montrent qu'elles dépendent des énergies déposées.

La figure 87 regroupe les spectres germanium en coïncidence "Ge/NaI" pour les événements ayant des Δt compris dans chacune des zones de la figure 86. Le spectre représenté en noir figure 87, correspond à la première zone de la figure 86. Il regroupe les événements en coïncidence dont les dépôts d'énergie sont séparés de 0 à 133 ns, ces événements correspondent à environ la moitié du nombre total d'événements en coïncidence. On remarque que les coïncidences à haute énergie sont majoritaires. Les pics de ^{60}Co et de ^{88}Y sont importants, tandis que les photons X de ^{139}Ce n'apparaissent pas du tout.

Le spectre représenté en vert figure 87, représentant la seconde zone, dont les dépôts d'énergie se font dans un temps espacé d'au moins 133 ns tout en étant inférieur à 667 ns, a tendance à être plus peuplé à basse énergie. En effet, cette fois-ci les photons X de ^{139}Ce apparaissent clairement tandis que les pics de ^{60}Co et de ^{88}Y ont diminué d'un facteur 10.

Enfin, le spectre bleu (figure 87) est composé d'événements dont les dépôts en énergie sont au moins espacés de 667 ns, soit la zone 3 de la figure 86. Il est nécessaire de préciser que cette partie représente une proportion très faible du nombre total d'événements en coïncidence ($< 0.1\%$ du nombre total). On constate l'apparition de pics, comme par exemple le 662 keV de ^{137}Cs qui n'est pas émis en coïncidence. Cette dernière partie très peu importante en nombre d'événements, est en fait constituée en grande partie de coïncidences fortuites.

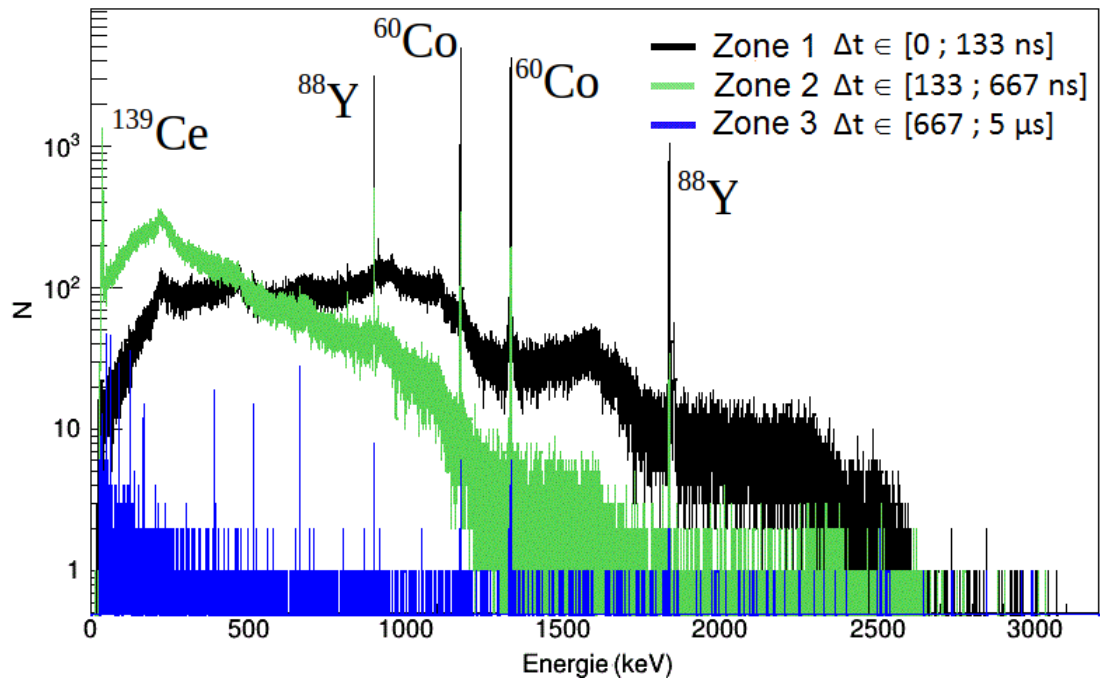


Figure 87 – Spectres germanium en coïncidence "Ge/NaI". Les trois spectres correspondent aux trois zones temporelles de la figure 86.

Pour détailler les zones 1 et 2 qui correspondent à de vraies coïncidences, pour lesquels les Δt dépendent de l'énergie, des sous-ensembles ont été tracés sous forme de matrices de coïncidence. La figure 88 regroupe différentes matrices obtenues en appliquant une condition sur l'écart en temps entre deux coïncidence "Ge/NaI". On observe le même phénomène que sur les spectres, avec des coïncidences à haute énergie pour des Δt faibles et vice versa. Cependant, ce phénomène ne s'applique qu'aux spectromètres germanium, dans le NaI il n'y a pas de corrélation entre Δt et l'énergie déposée.

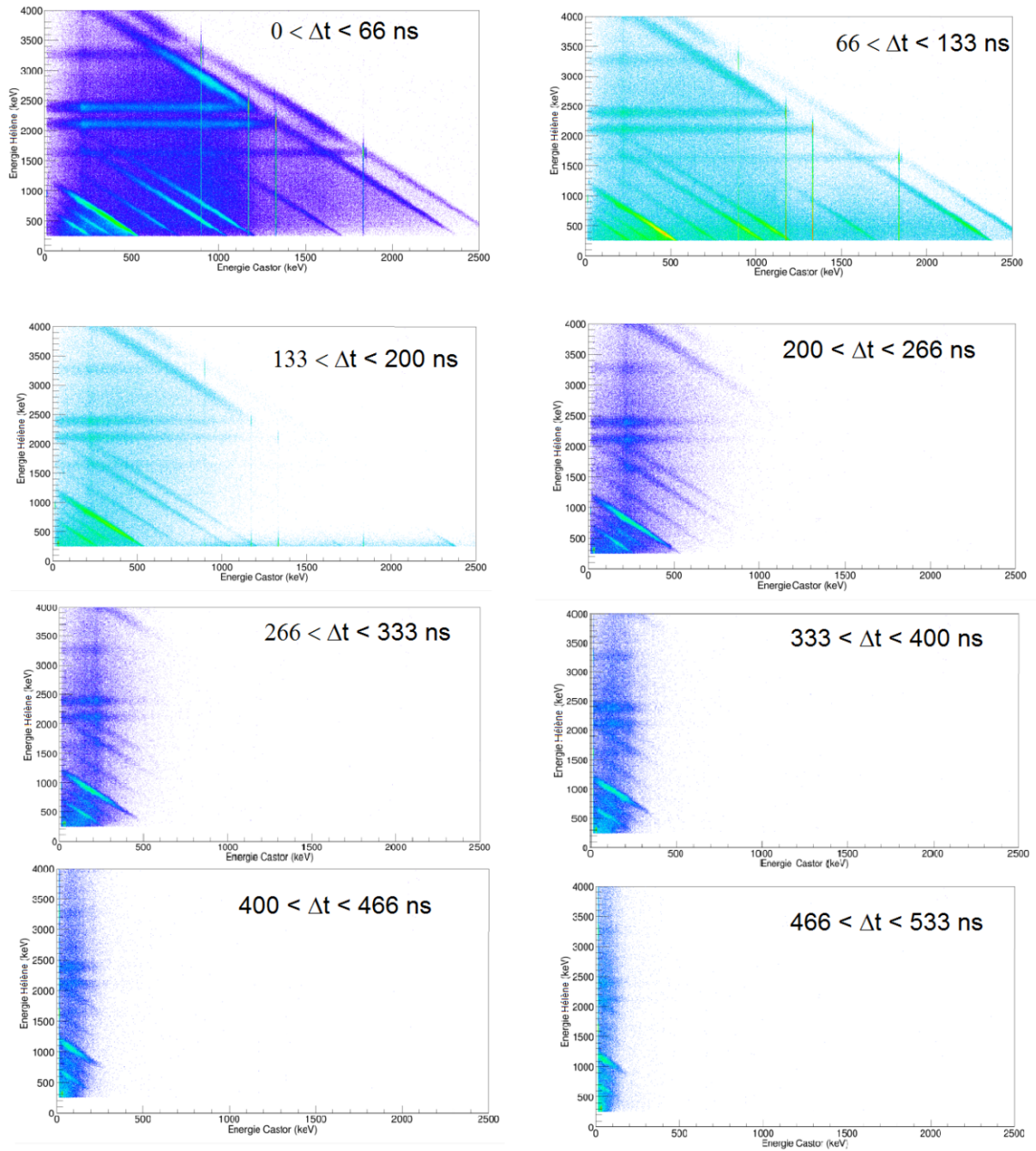


Figure 88 – Matrices de coïncidence "Ge/NaI" en fonction du temps entre les deux dépôts d'énergie en coïncidence (Δt).

La figure 88 montre que les Δt dépendent de l'énergie déposée dans le spectromètre germanium et non dans le scintillateur NaI. En effet, plus l'énergie déposée dans le germanium est faible et plus Δt est important alors que pour le scintillateur NaI, l'écart en temps entre deux dépôts d'énergie en coïncidence ne dépend pas de l'énergie déposée. Les mêmes matrices, avec des conditions temporelles, ont été tracées pour les coïncidences Ge/Ge (figure 89). Dans ce cas, on remarque toujours une évolution de l'écart en temps entre les deux dépôts en fonction de l'énergie déposée. De plus, on remarque que Δt et l'énergie déposée sont bien corrélés pour les détecteurs germanium car l'effet est symétrique sur les deux détecteurs.

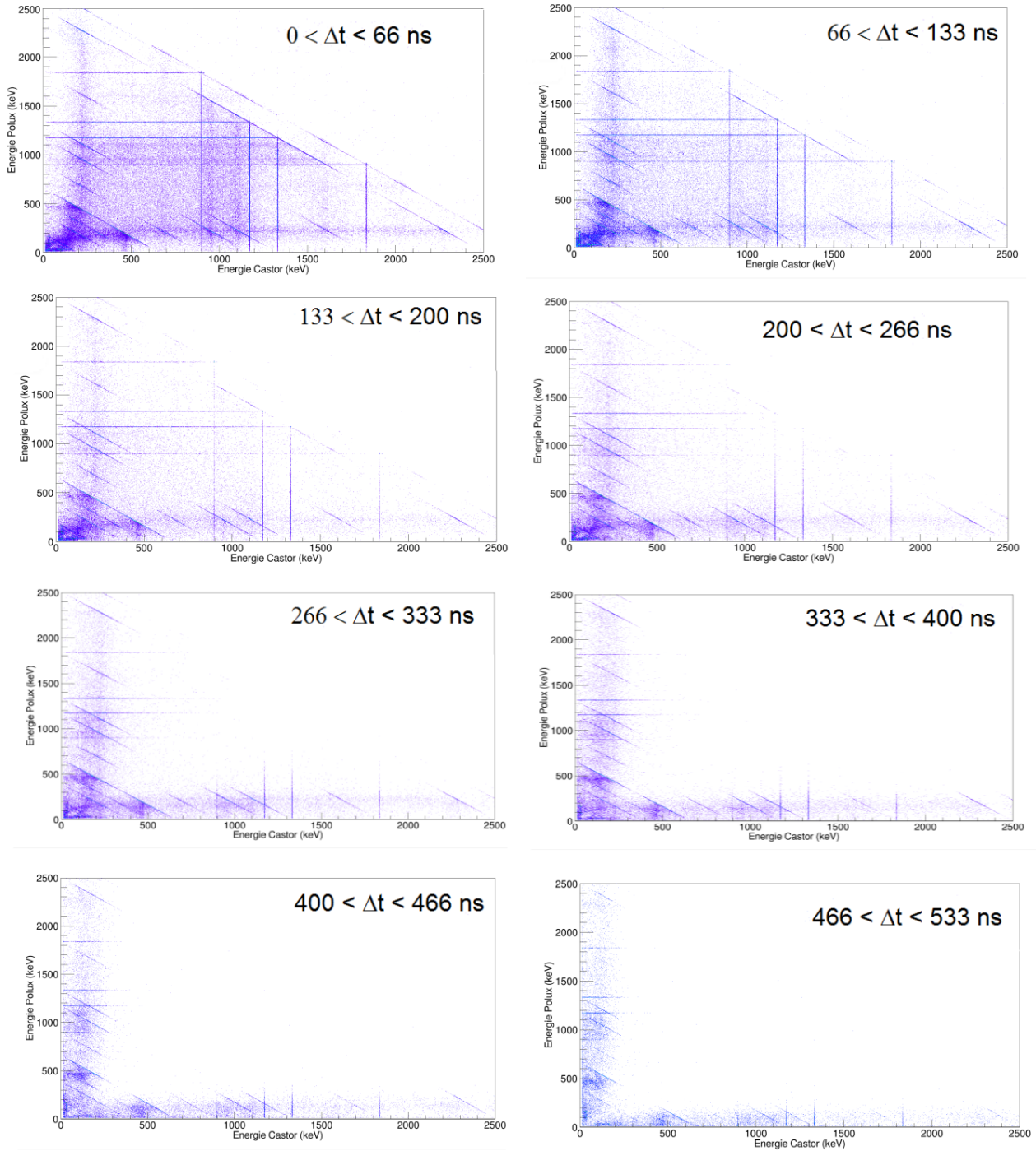


Figure 89 – Matrices de coïncidence "Ge/Ge" en fonction du temps entre les deux dépôts d'énergie en coïncidence (Δt).

La corrélation entre l'énergie déposée et l'écart en temps entre deux dépôts est due à la collecte des charges plus lente pour des dépôts de faible énergie. En effet, pour des dépôts de faible énergie, qui seront donc localisés à la surface du cristal (Knoll [34]), les trous des paires électron/trou, créés suite à l'interaction du photon incident seront collectés plus tardivement car ils devront parcourir les 3 cm de germanium avant d'arriver à l'anode. De plus, le temps de parcours moyen est de 100 ns/cm, ce qui est du même ordre de grandeur que le temps que nous pouvons identifier sur les figures 88 et 89.

La figure 90 représente les interactions des photons de 50 keV, 250 keV et 1 MeV, on voit clairement que le parcours des photons dépend de l'énergie de ces derniers. Le contact p+ sur lequel sont collectés les charges étant à l'arrière du cristal, les électrons engendrés par des photons de 50 keV auront en moyenne plus de chemin à parcourir pour atteindre ce contact que des photons plus énergétiques. En effet, les lignes de champ (91) à l'intérieur du cristal (Harkness-Brennan et al. [25]) induisent une collecte des charges plus lente pour des photons de faible énergie que ceux d'énergie élevée.

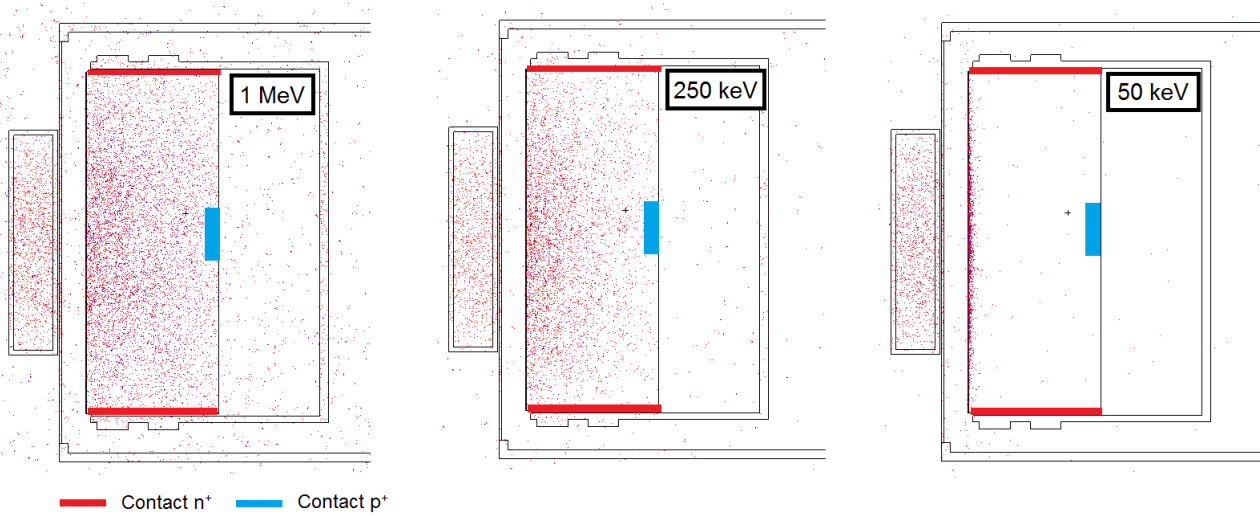


Figure 90 – Simulation des interactions des photons dans un détecteur BEGe pour 3 énergies initiales : 50 keV, 250 keV et 1 MeV.

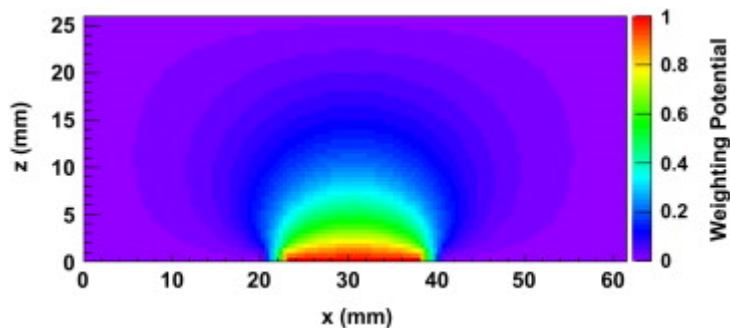


Figure 91 – Distribution du potentiel à l'intérieur d'un cristal de détecteur BEGe germanium (Harkness-Brennan et al. [25]).

6.2 Mesure d'un bruit de fond

Le tracé des Δt a été également réalisé sur une mesure de bruit de fond. La figure 92 représente les écarts en temps entre les dépôts d'énergie en coïncidence.

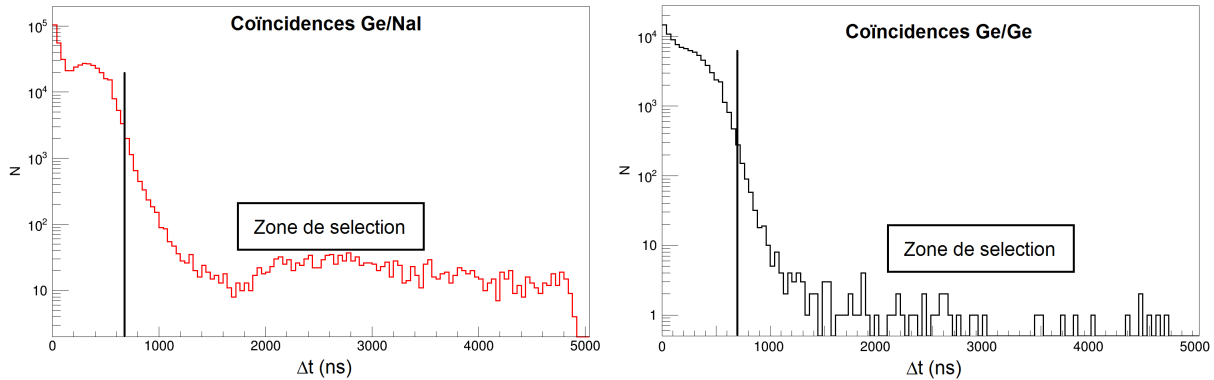


Figure 92 – Ecart en temps entre les dépôts en coïncidence (Δt) pour une mesure de bruit de fond pour les coïncidences Ge/NaI (gauche) et Ge/Ge (droite).

On remarque que les distributions des écarts en temps entre les coïncidences ont des formes similaires à celles obtenues pour une mesure de source. Cependant, dans un bruit de fond le taux de coïncidences fortuites est quasiment nul. Une zone de recherche a été définie avec des écarts en temps supérieurs aux Δt observés pour des coïncidences classiques (zone de sélection de la figure (92)). Cette sélection temporelle entre 667 ns et 5000 ns permet de tracer des spectres en coïncidence. Le spectre en coïncidence "Ge/Ge" ne présente aucun pic, par contre le spectre en coïncidence "Ge/NaI" (figure 93) permet de faire apparaître trois pics.

Le pic caractéristique à 511 keV est identifié ainsi que deux autres pics à 133 keV et 695 keV qui ne sont pas présents dans les spectres non conditionnés en Δt . Ces deux pics sont dus à des interactions du rayonnement cosmique dans les cristaux des détecteurs. 133 keV correspond à l'énergie du principal photon de désexcitation de ¹²⁸I suite à une réaction (n,γ) sur l'iode stable (¹²⁷I). Le pic à 695 keV correspond à l'énergie du photon de désexcitation de ⁷²Ge engendré par une réaction (n,n') sur ⁷²Ge, il est à noter que ce pic est triangulaire à cause de l'effet Doppler induit par le choc du neutron sur le noyau de ⁷²Ge qui va engendrer un noyau de recul.

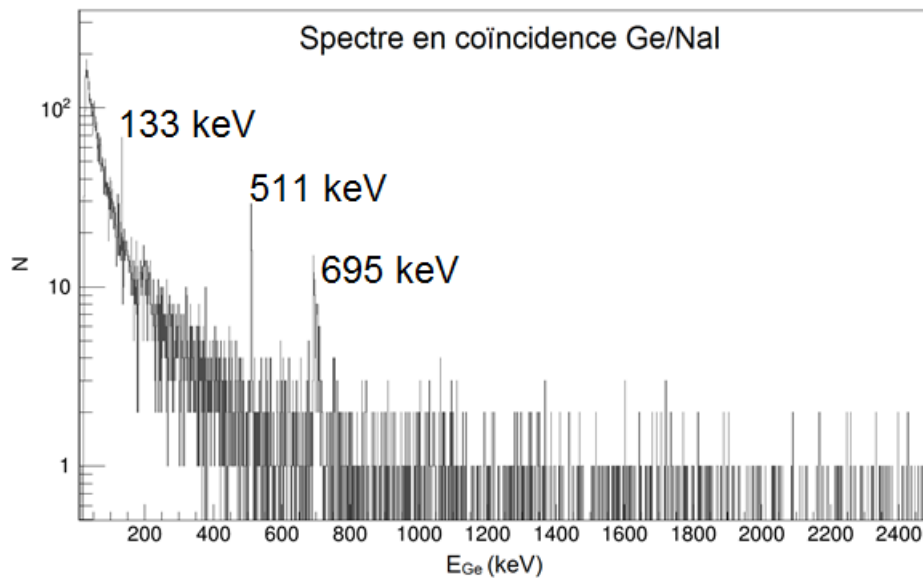


Figure 93 – Spectre germanium en coïncidence "Ge/NaI" correspondant aux dépôts d'énergie avec un Δt compris entre 0.67 μ s et 5 μ s.

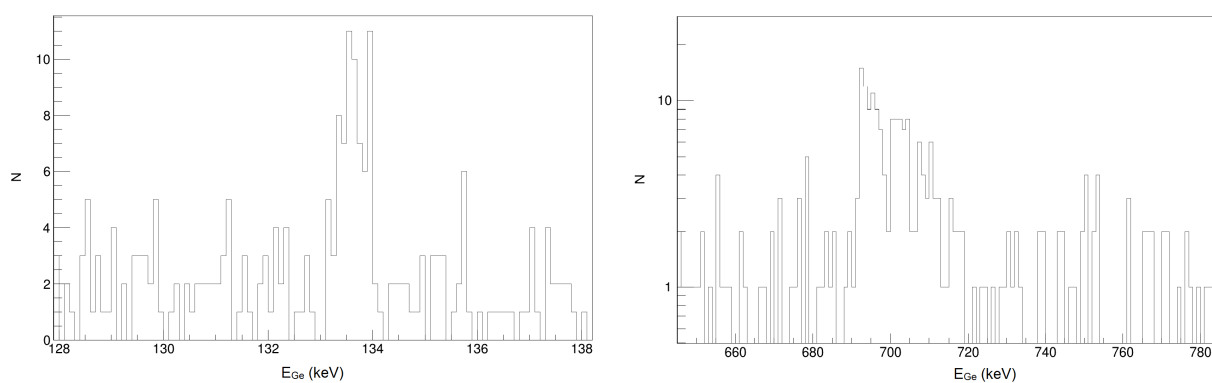


Figure 94 – Zooms sur le spectre en coïncidence "Ge/NaI" avec des dépôts en coïncidence compris entre $0.67 \mu\text{s}$ et $5 \mu\text{s}$, 133 keV de $^{128}\text{I}^*$ ((n, γ) sur ^{127}I) à gauche et 695 keV de $^{72}\text{Ge}^*$ ((n,n') sur ^{72}Ge) à droite.

Chapitre V

Résultats

Sommaire

1	Radionucléides concernés	108
1.1	Cobalt 60	108
1.2	Césium 137	109
1.3	Césium 134	109
1.4	Argent 108 métastable	110
1.5	Argent 110 métastable	110
1.6	Europium 152	111
2	Mesures d'échantillons	113
2.1	Mesures sur le système anti-Compton	113
2.2	Mesures sur Léda	116
2.2.1	^{137}Cs : spectre en anti-coïncidence	116
2.2.2	^{60}Co : matrice de coïncidence "Ge/NaI"	117
2.2.3	^{134}Cs : voies en coïncidence	118
2.2.4	^{108m}Ag : spectres en coïncidence	120
2.2.5	^{110m}Ag : spectres en coïncidence	122
2.2.6	Conclusion	122
3	Mesures rapides de filtres de prélèvement d'aérosols	124
4	Discussion et perspectives	126

1 Radionucléides concernés

Afin de valider les mesures par spectrométrie γ en coïncidence sur le système anti-Compton et sur Léda, des échantillons en provenance de l'environnement ont été mesurés. Tous les échantillons ont été au préalable mesurés sur des détecteurs du laboratoire et une analyse par spectrométrie γ classique avait été réalisée pour obtenir des valeurs d'activité. Ce sont ces valeurs, qui servent de référence et qui ont été comparées à celles obtenues par la mesure avec le système anti-Compton ou Léda. Les mesures sont réalisées dans les mêmes conditions (temps de mesure, type de détecteur) pour les deux techniques, les temps de mesures sont compris entre 1 et 3 jours.

L'ensemble des comparaisons sera présenté un peu plus loin dans ce chapitre, en premier lieu les schémas de désintégration des radionucléides recherchés sont détaillés ci-dessous. L'étude du schéma de désintégration permet de savoir sur quelle voie de Léda ce radionucléide sera mesuré.

Pour le système anti-Compton, la comparaison est essentiellement réalisée sur la mesure de ^{60}Co tandis que pour Léda, plusieurs radionucléides ont été étudiés : ^{108m}Ag , ^{110m}Ag , ^{137}Cs , ^{134}Cs et ^{60}Co . Les schémas de désintégration sont présentés dans ce chapitre ainsi que leurs émissions (en coïncidence ou non) et par conséquent la voie de mesure associée pour Léda.

1.1 Cobalt 60

^{60}Co est un isotope radioactif du cobalt, produit par activation neutronique de ^{59}Co , dont la période est 5.270 ans, comme cela est représenté sur la figure 95.

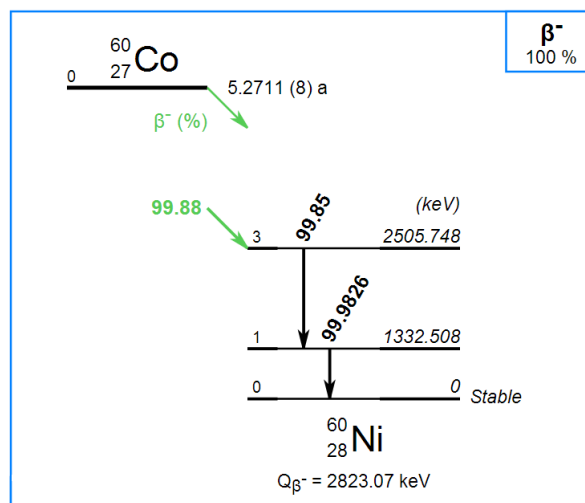


Figure 95 – Schéma de désintégration de ^{60}Co (CEA-LNHB [14]).

^{60}Co émet deux photons en coïncidence d'énergie respective 1173.2 keV et 1332.5 keV avec une probabilité d'émission conjointe de 99.67 %. La durée de vie du niveau à 1332 keV est de 0.713 ps, très inférieure aux temps de résolution de l'électronique, les deux photons paraissent donc émis en coïncidence. Comme ces deux photons sont émis en coïncidence et que les énergies sont importantes, ce radionucléide sera mesuré sur la matrice de coïncidence "Ge/NaI" (figure 68 du § 2.4 du chapitre IV). C'est ce radionucléide qui a permis de valider la mesure en coïncidence sur le système anti-Compton (voir chapitre III).

Pour chaque mesure, les deux empreintes sont analysées et permettent de calculer une activité massique. Lorsqu'il n'y a pas d'empreintes dans la matrice, le nombre d'événements de bruit de fond présent dans la zone de l'empreinte permet d'estimer les limites caractéristiques, soit le seuil de décision et la limite de détection.

1.2 Césium 137

^{137}Cs , produit de fission à période longue (30.05 ans), est présent dans l'environnement suite aux essais atmosphériques et à l'accident de Tchernobyl. Il présente un schéma de désintégration (figure 96) simple, avec l'émission d'un photon de 661.7 keV d'une intensité de 84.99 %. Pour chaque système de mesure (anti-Compton ou Léda), la voie anti-coïncidence sera donc utilisée.

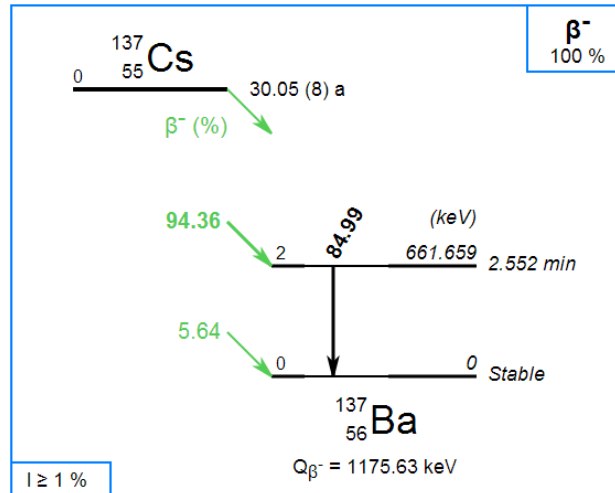


Figure 96 – Schéma de désintégration de ^{137}Cs (CEA-LNHB [14]).

1.3 Césium 134

^{134}Cs , produit d'activation dérivé d'un produit de fission neutronique, ^{134}Cs stable a un schéma de désintégration (schéma simplifié sur la figure 97) présentant l'émission en cascade de 3 photons. Compte tenu des intensités d'émissions des différents photons (15.37 % pour 569.3 keV ; 85.47 % pour 795.9 keV et 97.63 % pour 604.7 keV) l'intensité d'émission conjointe pour 604.7 keV et 795.9 keV est la plus importante avec 83.4 %. En règle générale, ce radionucléide sera mesuré à l'aide de la matrice Ge/Ge par le biais des deux empreintes à 604.7 et 795.9 keV. Cependant, dans certains cas où le radionucléide majeur ne va pas engendrer de fond Compton trop important dans la gamme d'énergie de ces deux pics, ^{134}Cs pourra être mesuré sur la voie spectre en coïncidence où le rendement de détection sera bien meilleur et tiendra compte de la coïncidence avec le photon de 569 keV.

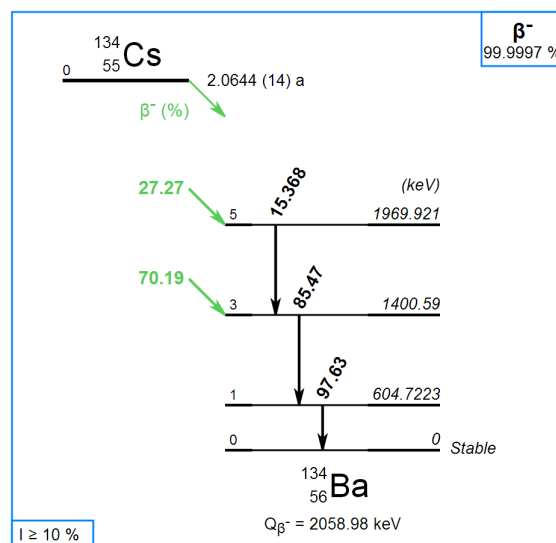


Figure 97 – Schéma de désintégration simplifié de ^{134}Cs (CEA-LNHB [14]).

1.4 Argent 108 métastable

Cet isotope radioactif de l'argent est produit par activation neutronique de ^{107}Ag stable, sa période est de 438 ans. Son schéma de désintégration présenté figure 98, montre qu'il se désintègre par deux modes : la capture électronique (ϵ) ou la transition interne (IT). Comme la capture électronique représente plus de 90 % des désintégrations, ce sont donc les photons γ émis à la suite qui seront mesurés.

Trois photons, de 433.9 keV, 614.3 keV et 722.9 keV respectivement, sont émis en cascade. Les durées de vie des niveaux intermédiaires sont de 5.9 ps et 23.4 ps ce qui engendre une émission en coïncidence des trois photons. De plus, la capture électronique est suivi d'un réarrangement du cortège électronique et donc de l'émission de photons X qui seront en coïncidence avec les photons de désexcitation. Comme les rendements de détection à ces énergies sont importants, la voie privilégiée sera la voie spectre en coïncidence "Ge/Ge" pour les trois photons γ de désexcitation.

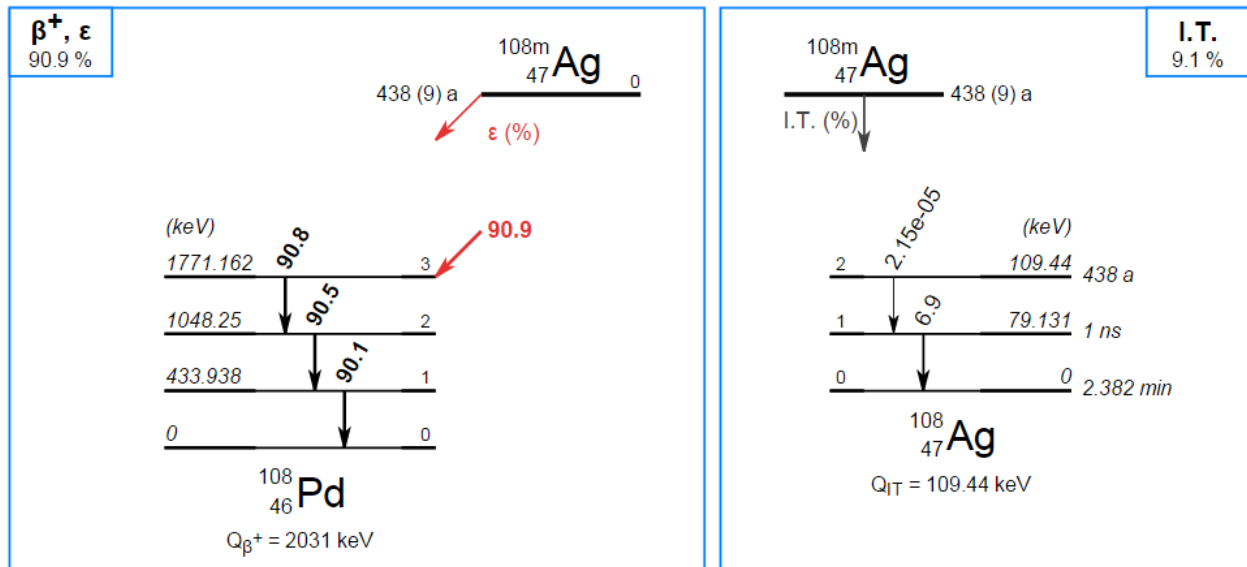


Figure 98 – Schéma de désintégration de ^{108m}Ag (CEA-LNHB [14]), par capture électronique (gauche) et transition interne (droite).

1.5 Argent 110 métastable

Ce second isotope de l'argent, produit d'activation de ^{109}Ag stable, a une période de 250 jours. Son schéma de désintégration (figure 99), montre l'émission de plusieurs photons, qui sont en partie en cascade et dont les intensités sont très variables. Seuls les photons de 657.8 keV (94.38 %) et 884.7 keV (74.0 %) ont des intensités d'émission très élevées. Toutes les durées de vie des différents niveaux sont faibles, de l'ordre de la dizaine de picosecondes au maximum. Pour mesurer ^{110m}Ag , les spectres en coïncidence sont utilisés car les rendements de détection sont élevés grâce aux nombreuses coïncidences. Les pics des photons de 657.8 et 884.7 keV sont analysés et le choix de la voie "Ge/Ge" ou "Ge/NaI" se fera en fonction du radionucléide majeur. Par exemple, dans un filtre de prélèvement d'aérosols où ^7Be avec son émission à 477 keV est majoritaire, la voie spectre "Ge/NaI" sera utilisée. A l'inverse, dans un échantillon biologique où ^{40}K est majoritaire et émet des photons de 1460 keV, le spectre "Ge/Ge" sera privilégié pour diminuer le bruit de fond.

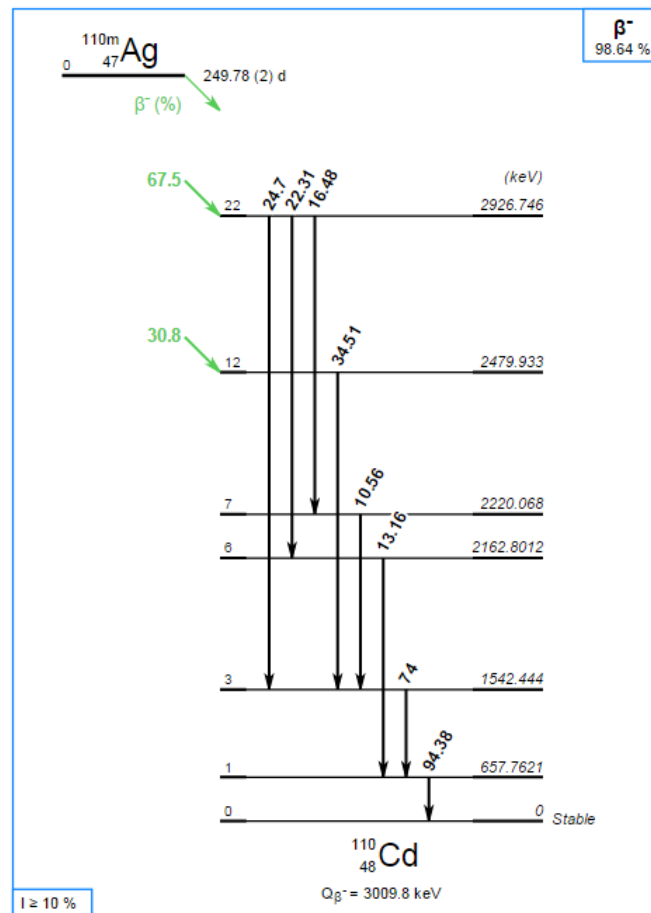


Figure 99 – Schéma de désintégration simplifié de ^{110m}Ag (CEA-LNHB [14]).

1.6 Europium 152

Enfin, ^{152}Eu a été mesuré dans deux échantillons à l'aide du système anti-Compton. Cet isotope de l'euporium, produit par activation neutronique de ^{151}Eu stable, a une période de 13.5 ans. Il n'est pas présent dans l'environnement français à l'heure actuelle dans des activités mesurables. Son schéma de désintégration (figure 100) montre qu'il se désintègre par deux modes distincts : la désintégration β^- et la capture électronique (CE). La capture électronique est plus fréquente (72 %) et présente l'avantage d'augmenter le taux de coïncidences grâce aux photons X émis suite à la capture d'un électron.

Le photon émis avec l'intensité la plus importante (28.4 %) est celui de 121.8 keV, de plus, il sera toujours en coïncidence avec un autre photon γ ou un photon X ce qui lui confère un rendement de détection important. Le spectre en coïncidence "Ge/Ge" permettrait d'avoir un rendement de détection maximal pour un bruit de fond le plus faible possible. Cependant, les échantillons n'ont pu être mesurés que sur le système anti-Compton car Léda n'était pas encore en fonctionnement et les échantillons ont dû être retournés au laboratoire les ayant prélevés, c'est pour cela que ^{152}Eu a été mesuré sur la matrice de coïncidence "Ge/NaI" du système anti-Compton avec les empreintes dues aux photons de 344.3 keV et 778.9 keV émis suite à la désintégration β^- .

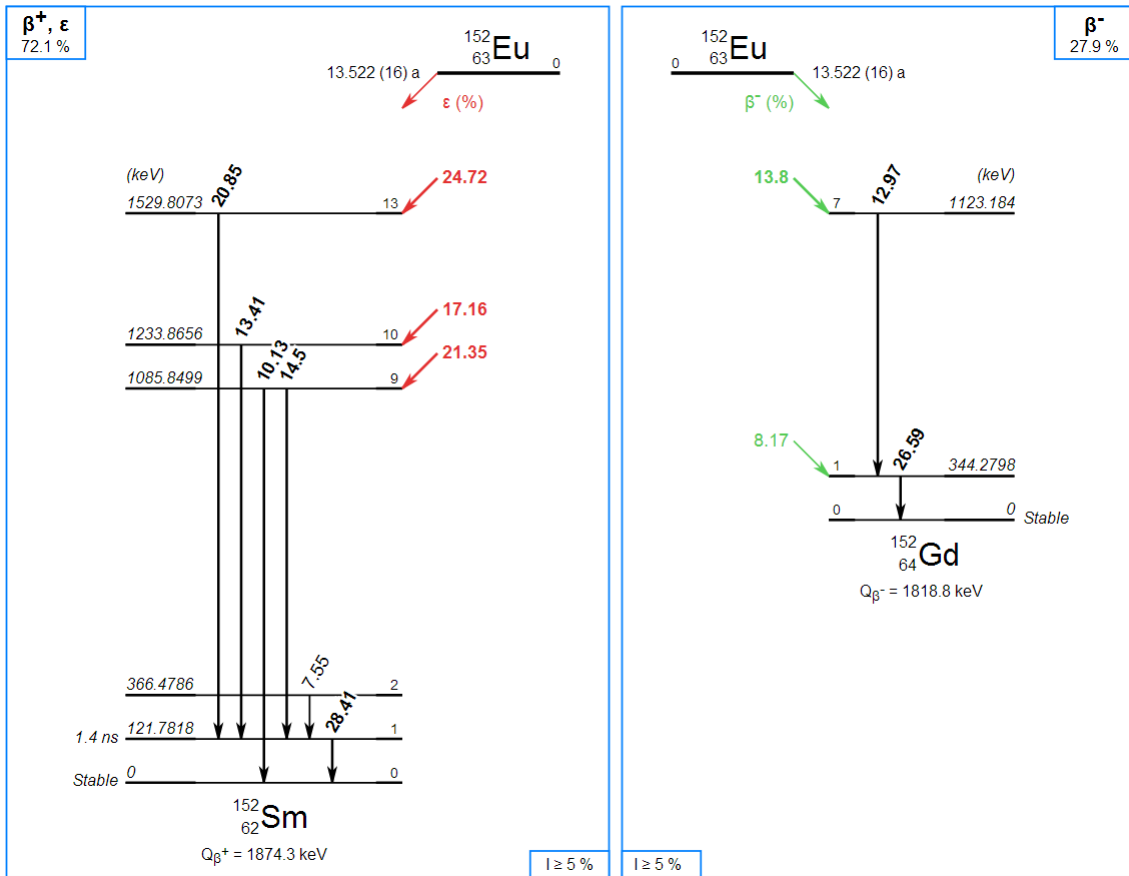


Figure 100 – Schéma de désintégration simplifié de ^{152}Eu (CEA-LNHB [14]), par capture électronique (gauche) et par désintégration β^- (droite).

2 Mesures d'échantillons

2.1 Mesures sur le système anti-Compton

La principale raison du développement de la mesure par spectrométrie γ en coïncidence sont les mesures très bas niveau de ^{60}Co dans les matrices biologiques de la Manche ou de la Méditerranée. Pour la Manche, sa présence est due aux rejets de l'usine de retraitement des combustibles usagés d'AREVA la Hague. De même, les rejets contrôlés dans le Rhône contribuent à la présence de ^{60}Co dans la mer Méditerranée.

Une cinquantaine d'échantillons, mesurés auparavant au laboratoire par spectrométrie γ classique, ont été mesurés sur le système anti-Compton et les activités massiques obtenues par les deux méthodes ont été comparées. Les temps de mesure sont identiques pour les deux mesures afin de pouvoir comparer les incertitudes de mesure et les limites de détection. Les résultats sont représentés sur le graphique (figure 101) en activité massique ($\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$) [marqueurs pleins] ou en limite de détection ($\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$) [marqueurs évidés]. Les échantillons sont classés en ordre croissant d'activité massique, les activités obtenues par spectrométrie classique sont en bleu et celles obtenues par la mesure en coïncidence en rouge.

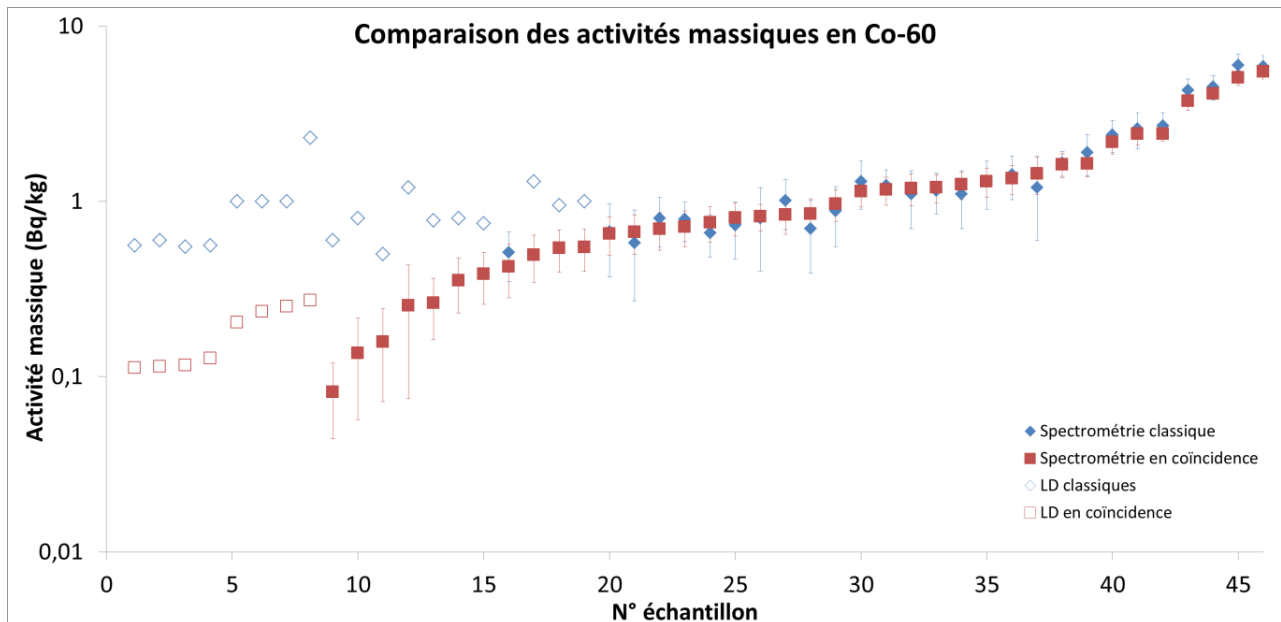


Figure 101 – Comparaison des activités massiques obtenues en spectrométrie classique (losanges bleus) et en spectrométrie en coïncidence (carrés rouge). Les activités massiques sont représentées par des symboles pleins et les limites de détection par des symboles vides.

Ce graphique montre un excellent accord entre les activités massiques obtenues par spectrométrie classique et par spectrométrie en coïncidence. Les activités correspondent parfaitement aux incertitudes près. De plus, il est à noter que les incertitudes sont diminuées grâce à la mesure en coïncidence. L'amélioration des incertitudes est due au faible bruit de fond environnant l'empreinte, comparé au bruit de fond soustrait au pic dans un spectre classique. Pour des activités massiques faibles, l'amélioration est plus importante que pour des activités massiques élevées car l'incertitude associée au bruit de fond devient prépondérante. Pour rappel, l'incertitude sur le comptage net est fonction du nombre d'événements net, du nombre d'événements de fond et du facteur de normalisation χ (équation (14) du chapitre II), la variation la plus importante entre les deux méthodes est sur le nombre d'événements de fond, parfois sur trois ou quatre ordre de grandeur. C'est pour cette raison que l'amélioration des incertitudes est plus importante à faible activité.

Pour un nombre d'événements net constant, c'est le nombre d'événements du fond qui prime pour le calcul d'incertitude. Les rendements de détection sont du même ordre de grandeur pour ^{60}Co en spectrométrie classique (2.2 %) et en coïncidence (0.8 %), seul un facteur 3 les sépare. Cependant, le bruit de fond est quant à lui diminué de 1 à 3 ordres de grandeur. Généralement le bruit de fond en spectrométrie classique oscille entre 100 et plusieurs milliers de coups, tandis qu'en spectrométrie en coïncidence il est inférieur à 10 coups et souvent proche de quelques coups (1 à 3).

La figure 102 montre les deux représentations d'une même mesure d'un échantillon : le spectre classique et la matrice de coïncidence. C'est un échantillon biologique dans lequel il y a une forte concentration de ^{40}K , de l'ordre de $1000 \text{ Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ et dans lequel est recherché ^{60}Co . Dans le spectre classique, ^{40}K engendre un important pic à 1460 keV et un fond Compton situé entre 100 keV et 1400 keV environ. Les pics de ^{60}Co sont fortement bruités à cause de ce fond Compton et leurs rapports signal sur bruit sont de l'ordre de 0.2. Pour la même mesure, la matrice de coïncidence quant à elle est peuplée de deux empreintes très peu bruitées avec un rapport signal sur bruit de l'ordre de 300.

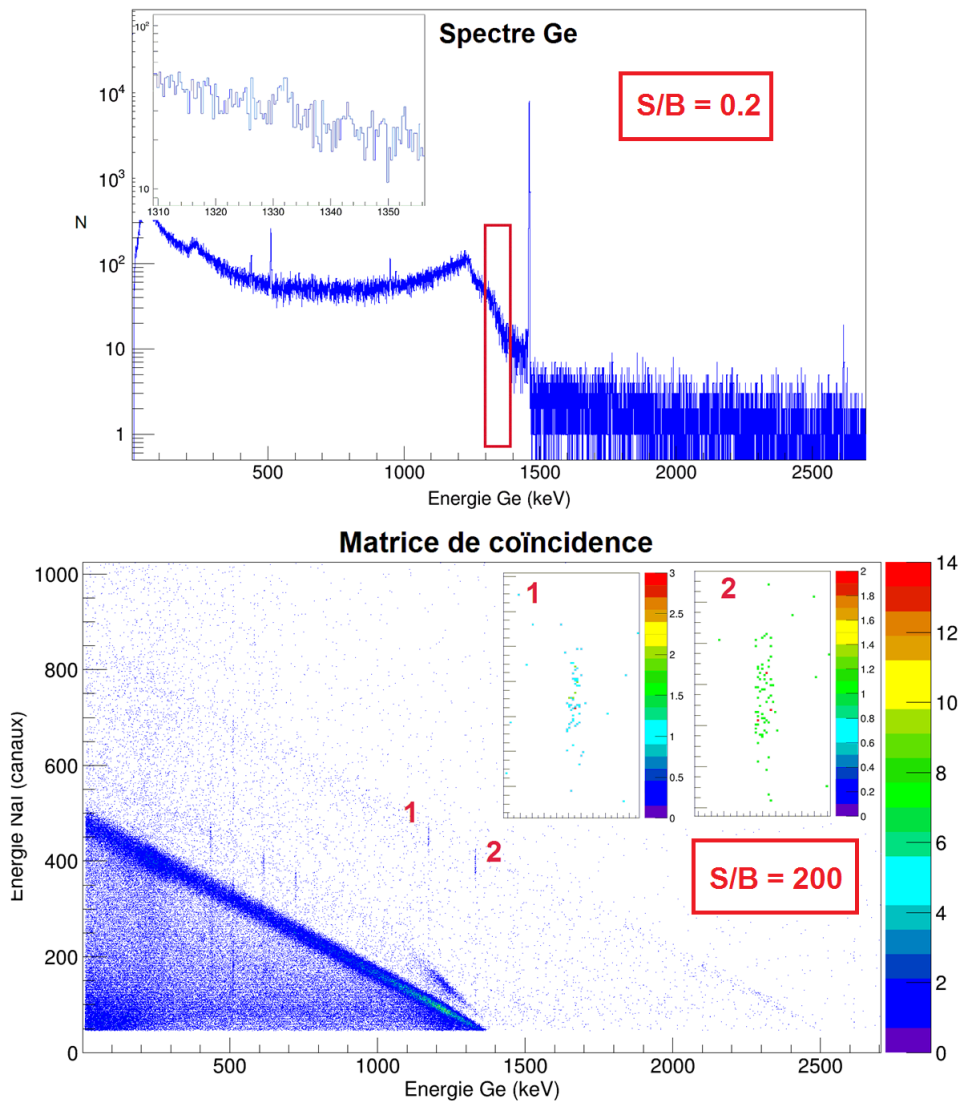


Figure 102 – Mesure d'un échantillon d'origine biologique en voie classique et en coïncidence sur le système anti-Compton avec recherche de ^{60}Co . Spectre classique en haut et matrice de coïncidence avec zoom sur les empreintes (1173-1332 keV ; 1332-1173 keV) de ^{60}Co en bas.

Cet exemple reflète le phénomène d'amélioration des incertitudes grâce à la mesure en coïncidence.

Enfin, le dernier point important est la diminution des limites de détection. Pour la même raison que l'amélioration des incertitudes, c'est le faible bruit de fond autour des empreintes qui permet d'atteindre des limites de détection très faibles. En moyenne, les limites de détection sont divisées d'un ordre de grandeur par rapport à celles obtenues en spectrométrie classique.

Cette amélioration des limites de détection a permis d'avoir plus de mesures significatives. ^{60}Co a pu être identifié et quantifié dans des échantillons pour lesquels la spectrométrie classique avait fourni des limites de détection.

D'autres échantillons, des sols de Fukushima contenant ^{134}Cs et des sédiments de fond prélevés dans la rivière de Seversk, contenant ^{152}Eu ont été mesurés. Seversk est une ville russe dans laquelle a eu lieu un accident nucléaire le 6 avril 1993 ; un réservoir contenant des éléments radioactifs explosa suite à l'emballement d'une réaction chimique. La figure 103 représente le rapport des activités massiques mesurées par spectrométrie classique et en coïncidence pour les deux radionucléides.

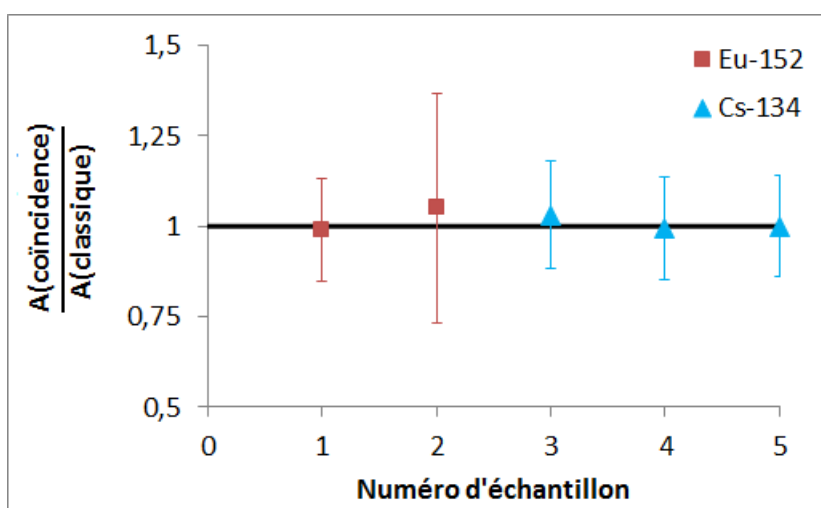


Figure 103 – Rapports entre les activités mesurées de ^{152}Eu (échantillon 1 et 2) et de ^{134}Cs (échantillons 3 à 5) en spectrométrie classique et en spectrométrie en coïncidence sur le système anti-Compton.

Comme expliqué au paragraphe précédent, ^{134}Cs a été mesuré avec ses empreintes à 604.7 keV et 795.9 keV et ^{152}Eu avec ses empreintes à 344.3 keV et 778.9 keV. La mesure de 5 échantillons (figure 103) montre que la méthode est juste pour ces deux autres radionucléides, les activités massiques correspondent aux incertitudes de mesure près.

La méthode est plus précise, les incertitudes sont améliorées grâce à un bruit de fond très faible. Enfin la méthode est plus sensible avec une diminution des limites de détection d'un facteur 10 pour la mesure de ^{60}Co . Une des limitations du système anti-Compton, comme le montre la figure 47 du chapitre IV, est la présence des radionucléides émetteurs simples en forte proportion dans l'échantillon, ils engendrent d'importantes diagonales dans la matrice. Ces diagonales peuvent masquer les empreintes de certains radionucléides, c'est le cas de ^{40}K dont la diagonale masque les empreintes de ^{134}Cs .

2.2 Mesures sur Léda

Comme pour le système anti-Compton, des échantillons préalablement mesurés en spectrométrie γ classique ont été mesurés sur Léda. En fonction du type de désintégration et des photons γ et X émis, la mesure se fait sur la voie la plus appropriée. Les paragraphes suivants récapitulent pour chaque radionucléide la comparaison des activités massiques obtenues avec des mesures classiques ou avec Léda et quelques exemples de spectres et/ou matrices pour illustrer les différents résultats.

2.2.1 ^{137}Cs : spectre en anti-coïncidence

Comme nous l'avons expliqué plus haut, ^{137}Cs est mesuré sur le spectre en anti-coïncidence qui permet d'abaisser le bruit de fond. La figure 104 représente les comparaisons entre la mesure sur Léda avec le spectre en anti-coïncidence et la mesure par spectrométrie classique.

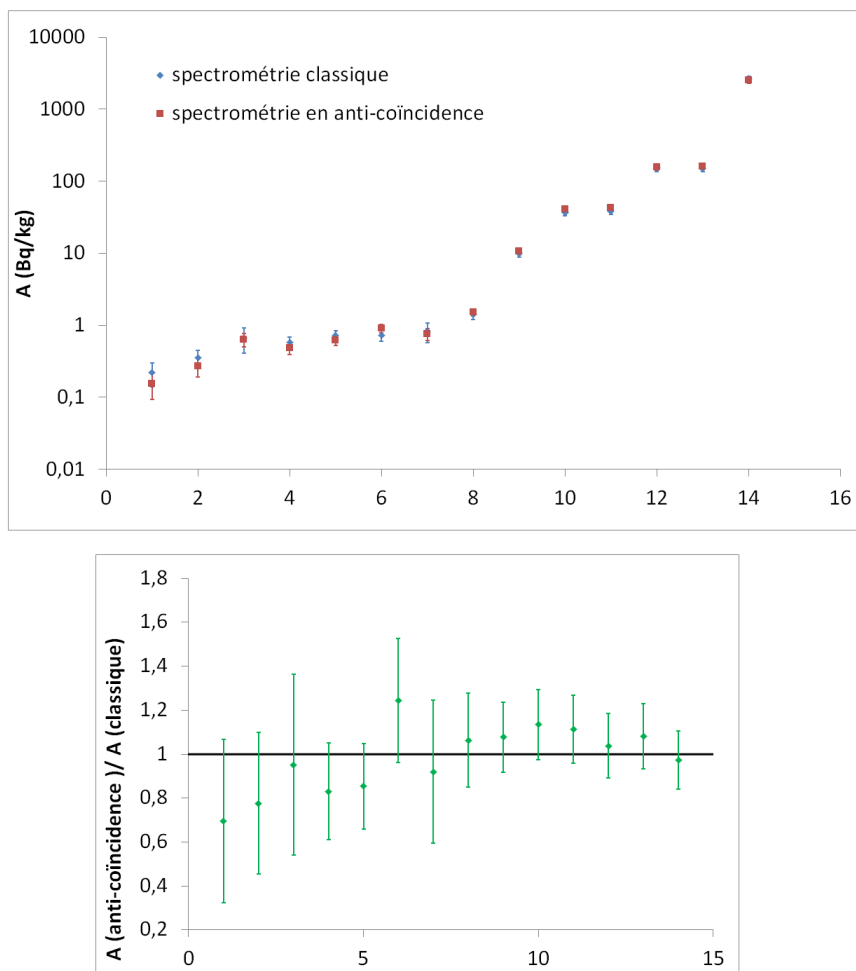


Figure 104 – Comparaison des activités massiques de ^{137}Cs entre la spectrométrie classique et la mesure en anti-coïncidence avec Léda. En haut activités massiques calculées à partir des deux méthodes et en bas ratio Léda sur spectrométrie classique.

Les activités massiques calculées correspondent aux incertitudes près à celles mesurées en spectrométrie classique. Un zoom sur la partie des basses activités massiques (figure 105) montre que les incertitudes obtenues avec Léda sont plus basses qu'en spectrométrie classique. Le bruit de fond est diminué jusqu'à un facteur 3 grâce à la voie en anti-coïncidence alors que le rendement de détection est strictement le même, ce qui améliore le rapport signal sur bruit et donc les incertitudes de mesure.

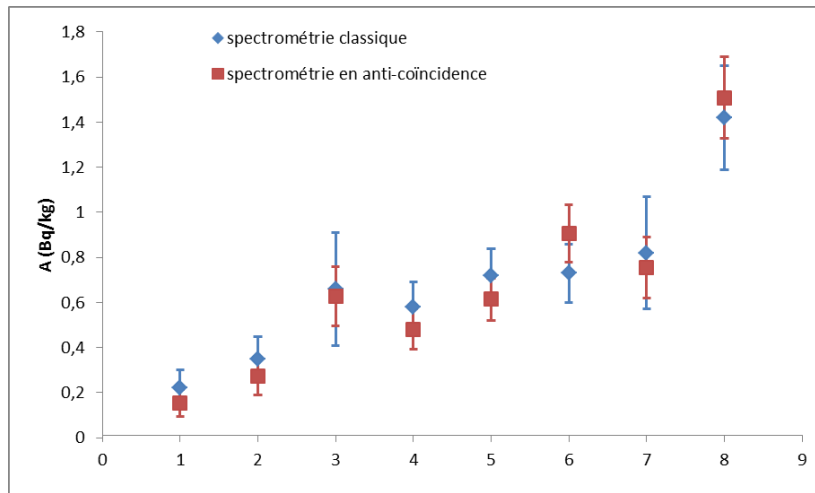


Figure 105 – Zoom sur les basses activités du graphique de comparaison des activités massiques de ^{137}Cs mesurées avec Léda et en spectrométrie classique.

Enfin, la comparaison des limites de détection (figure 106) montre que la mesure de ^{137}Cs avec Léda permet de diminuer les limites de détection. On observe en moyenne une division par un facteur 3 des limites de détection.

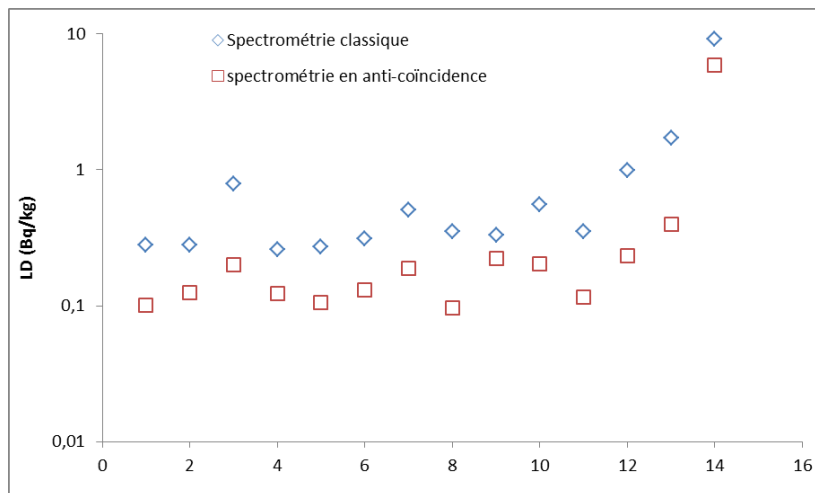


Figure 106 – Limites de détection des mesures de ^{137}Cs sur Léda (rouge) comparées à celles obtenues en spectrométrie classique (bleu).

2.2.2 ^{60}Co : matrice de coïncidence "Ge/NaI"

Le radionucléide ^{60}Co est analysé sur la matrice de coïncidence "Ge/NaI" grâce à la coïncidence entre les photons γ de 1173 keV et 1332 keV. La comparaison entre la mesure par spectrométrie γ classique et la mesure avec Léda est faite sur la figure 107. Comme pour le système anti-Compton, les activités massiques obtenues avec les deux méthodes de mesure correspondent aux incertitudes près. Les incertitudes sont améliorées grâce à un bruit de fond plus faible. Enfin, les limites de détection sont améliorées d'un ordre de grandeur environ, toujours à l'aide d'un bruit de fond très faible autour des empreintes de ^{60}Co .

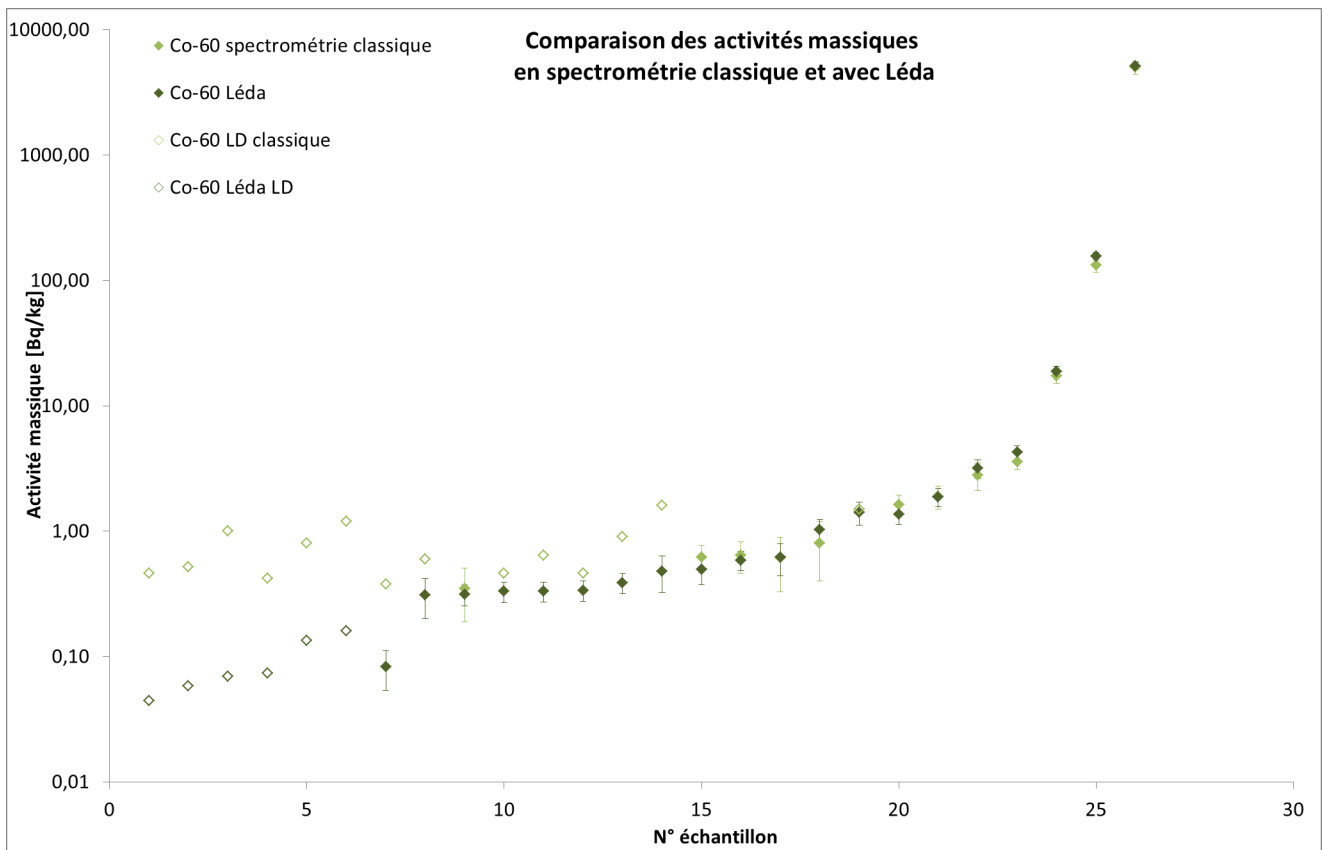


Figure 107 – Comparaison des activités massiques de ^{60}Co mesurées par spectrométrie classique (vert clair) et avec Léda (vert foncé) sur la matrice de coïncidence "Ge/NaI". Les symboles évidés représentent des limites de détection.

2.2.3 ^{134}Cs : voies en coïncidence

L'analyse de ^{134}Cs avec Léda se fait sur les voies en coïncidence sous forme de spectre ou matrice. Cependant, le choix de la voie la plus appropriée se fait en connaissant le radionucléide majeur dans l'échantillon. A titre d'exemple, si l'échantillon est un sol très riche en radionucléides naturels, seule la matrice de coïncidence permettra de bien séparer les empreintes de ^{134}Cs du bruit de fond. De même, dans un échantillon biologique, ^{40}K va engendrer une importante diagonale dans la matrice Ge/NaI qui va se superposer aux empreintes de ^{134}Cs à cause de la mauvaise résolution du scintillateur NaI. Dans ce cas, l'analyse se fera sur la matrice de coïncidence "Ge/Ge" ou le spectre en coïncidence "Ge/NaI" s'il n'est pas trop peuplé par les pics d'autres radionucléides émetteurs en coïncidence. Il est donc très important de choisir la meilleure voie possible lors de l'analyse d'une mesure.

La figure 108 montre un excellent accord entre les activités mesurées en spectrométrie classique et avec Léda. Une amélioration des incertitudes d'un facteur 2 à 3 est constaté, comme pour les autres radionucléides, il est dû au fond bien moins important sous les empreintes ou les pics utilisés pour calculer l'activité. En effet, les 5 échantillons mesurés sont des sols en provenance de Fukushima pour lesquels l'activité de ^{137}Cs est très importante comparée à celle de ^{134}Cs . Comme seul le pic à 605 keV est utilisé pour quantifier ^{134}Cs en spectrométrie classique, il est fortement affecté par le fond Compton du pic à 662 keV de ^{137}Cs (figure 109). Comme ce dernier n'a pas de coïncidence, il est très peu présent dans le spectre en coïncidence "Ge/NaI", uniquement à cause des coïncidences fortuites, et ne masque que peu le pic à 605 keV. On voit une diminution du fond au niveau de l'énergie 605 keV d'un facteur 60 environ, pourtant les rendements entre les spectres "SommeGe" (6.5 %) et en coïncidence "Ge/NaI" (4.3 %) sont proches.

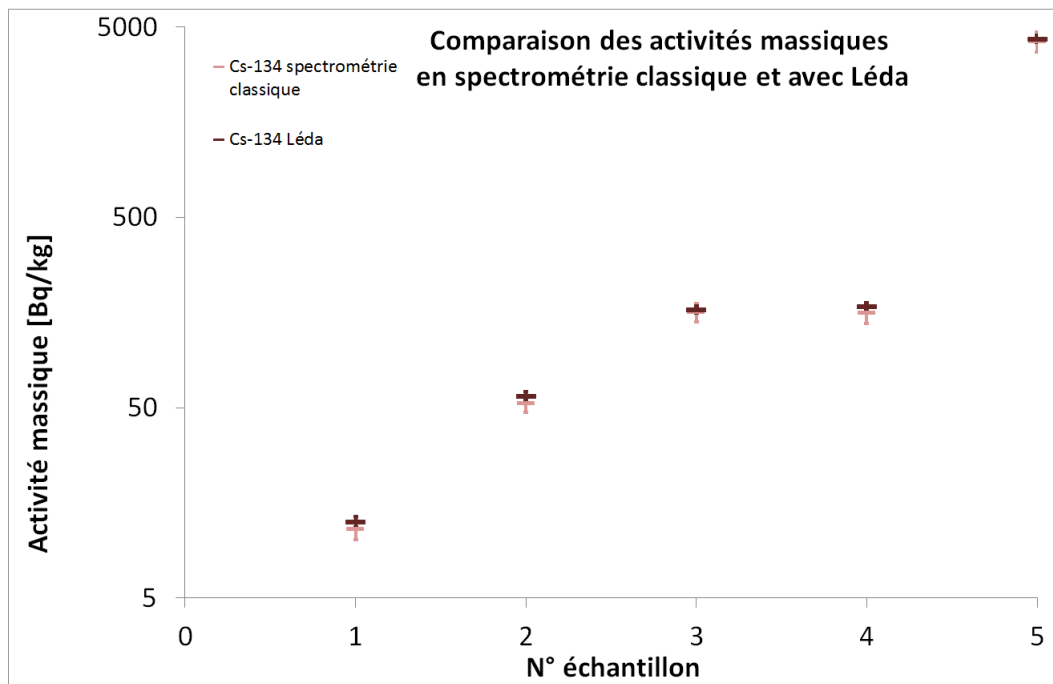


Figure 108 – Comparaison des activités massique de ^{134}Cs mesurées en spectrométrie classique (rose) et avec Léda (marron).

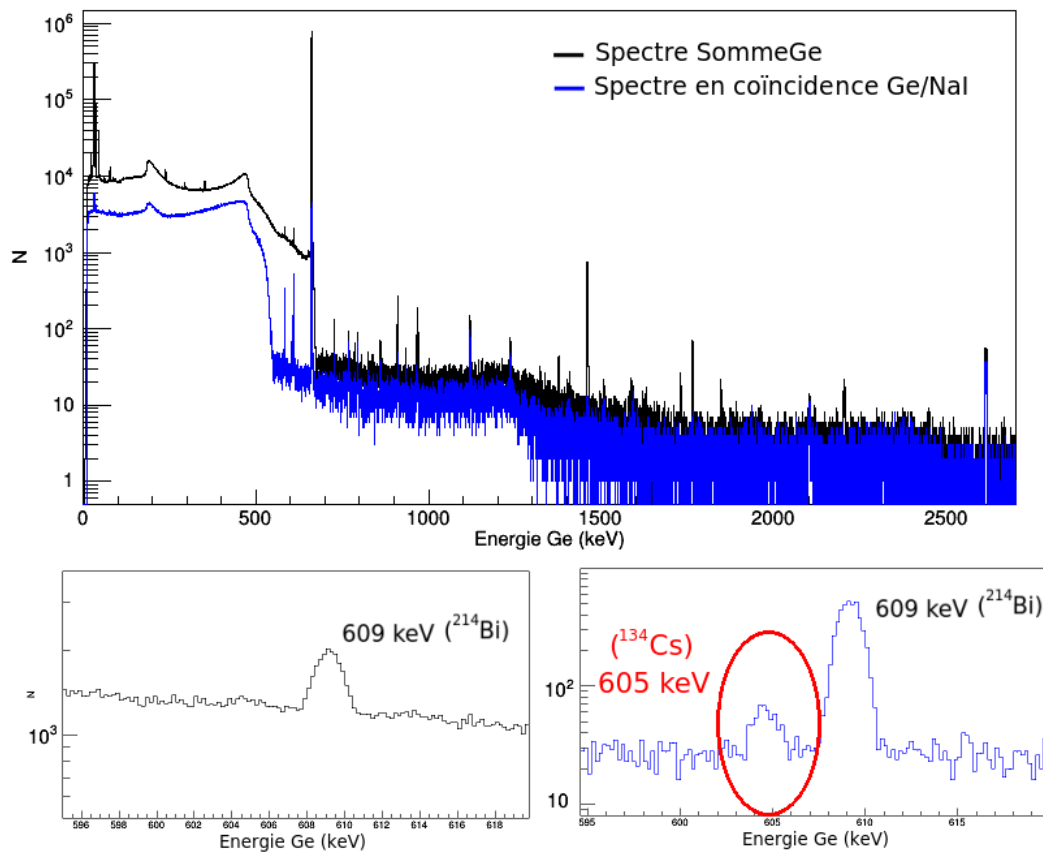


Figure 109 – Comparaison entre la mesure sur le spectre "SommeGe" et la mesure sur le spectre en coïncidence "Ge/NaI" sur Léda d'un échantillon contenant $4.4 \text{ Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ de ^{134}Cs et $23\,800 \text{ Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ de ^{137}Cs . En haut, spectre "SommeGe" en noir et spectre en coïncidence en bleu, en bas, zoom sur la zone du pic à 605 keV pour le spectre "SommeGe" (gauche) et pour le spectre en coïncidence (droite).

2.2.4 ^{108m}Ag : spectres en coïncidence

^{108m}Ag est analysé sur les spectres en coïncidence pour tout type d'échantillon et bien souvent sur le spectre Ge/Ge car les photons en coïncidence ont des énergies (433, 614 et 723 keV) ayant un bon rendement de détection dans les spectromètres germanium. La figure 110 représente la comparaison entre la spectrométrie classique et la mesure avec Léda. Comme pour les autres radionucléides, les activités massiques correspondent aux incertitudes près, les incertitudes sont diminuées et les limites de détection sont améliorées. On remarque que pour 3 échantillons, la mesure avec Léda a permis de quantifier ^{108m}Ag , ce qui n'avait pas été possible avec la méthode classique.

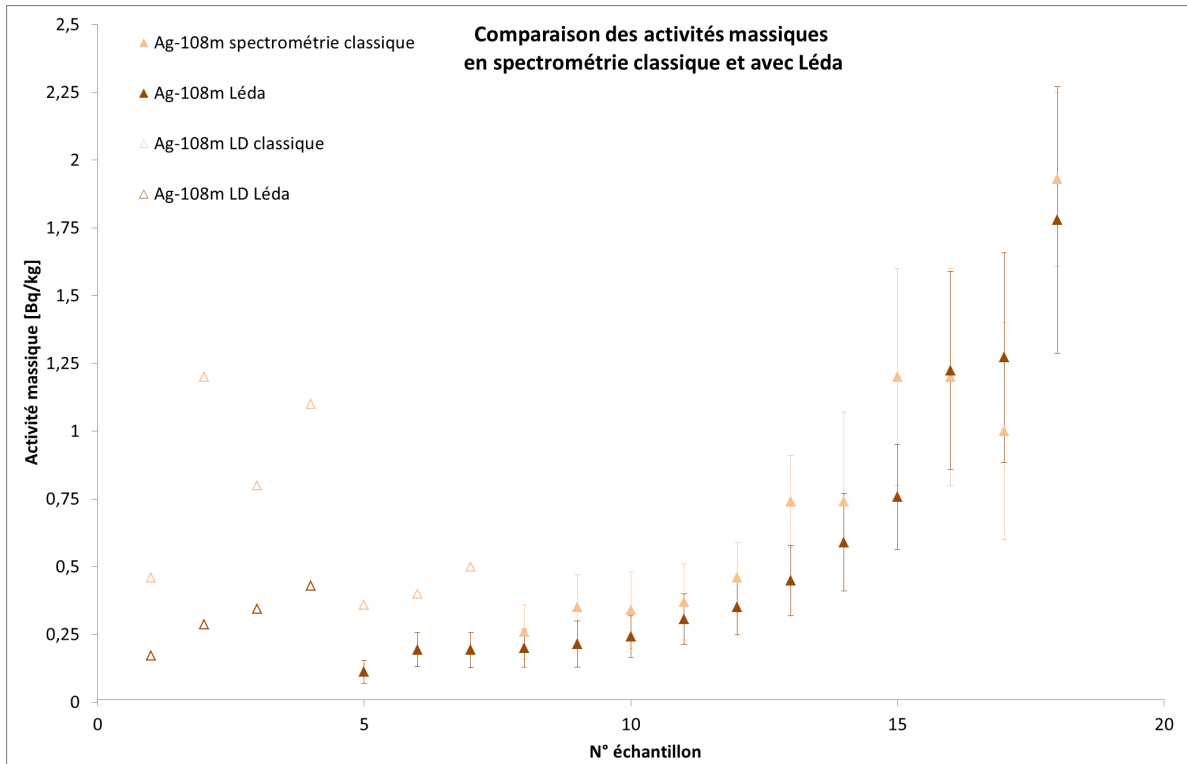


Figure 110 – Comparaison des activités massiques de ^{108m}Ag obtenues par spectrométrie classique et avec Léda.

Cependant, il est important d'apporter des précisions sur l'amélioration des incertitudes, qui est réelle lorsque l'activité massique est très faible mais est moins marquée lorsque l'activité augmente. On peut voir que pour les activités massiques inférieures à $1 \text{ Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$, Léda permet de diminuer les incertitudes, ce qui n'est pas le cas au dessus de cette valeur. ^{108m}Ag n'est pas disponible en source étalon et les coefficients d'étalonnage du spectre en coïncidence "Ge/Ge" sont obtenus par simulation Monte Carlo. Il est nécessaire de rappeler qu'une incertitude de 20 % à $k=2$ est associée aux coefficients simulés pour les spectres de coïncidence.

A très basse activité, le nombre d'événements dans les pics est faible et l'incertitude associée est donc importante et apporte la plus forte part dans l'incertitude totale associée à l'activité massique. Cependant, lorsque l'activité augmente, le nombre d'événements dans les pics est important et son incertitude associée faible. Dans ce cas, c'est l'incertitude sur le coefficient d'étalonnage qui engendre le plus d'incertitude, comme elle est faible sur les courbes d'étalonnage en rendement (de l'ordre de 5 %), la mesure classique est plus précise.

Comme pour les cas précédents, c'est le bruit de fond faible dans les spectres en coïncidence qui permet d'améliorer les limites de détection. La figure 111 représente les spectres obtenus par la mesure du même échantillon par spectrométrie classique et avec Léda.

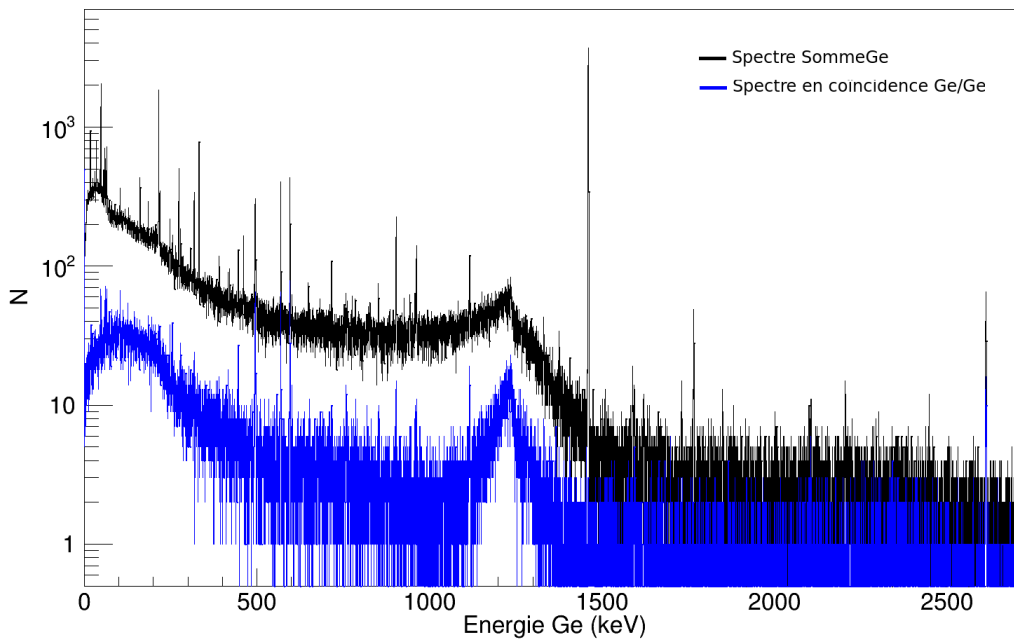


Figure 111 – Spectres "SommeGe" (noir) et en coïncidence "Ge/Ge" (bleu) d'une même mesure d'un échantillon d'origine biologique contenant $0.36 \text{ Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ de ^{108m}Ag et environ $1500 \text{ Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ de ^{40}K .

La figure 112 permet de comparer les zones des trois pics de ^{108m}Ag pour les deux spectres. Tout d'abord, il est facile de voir qu'un seul pic à 433 keV est identifiable en spectrométrie classique tandis qu'avec le spectre en coïncidence "Ge/Ge" les trois pics, à 433, 614 et 723 keV sont identifiables et quantifiables. De plus, le rapport signal sur bruit du pic à 433 keV est amélioré d'un ordre de grandeur.

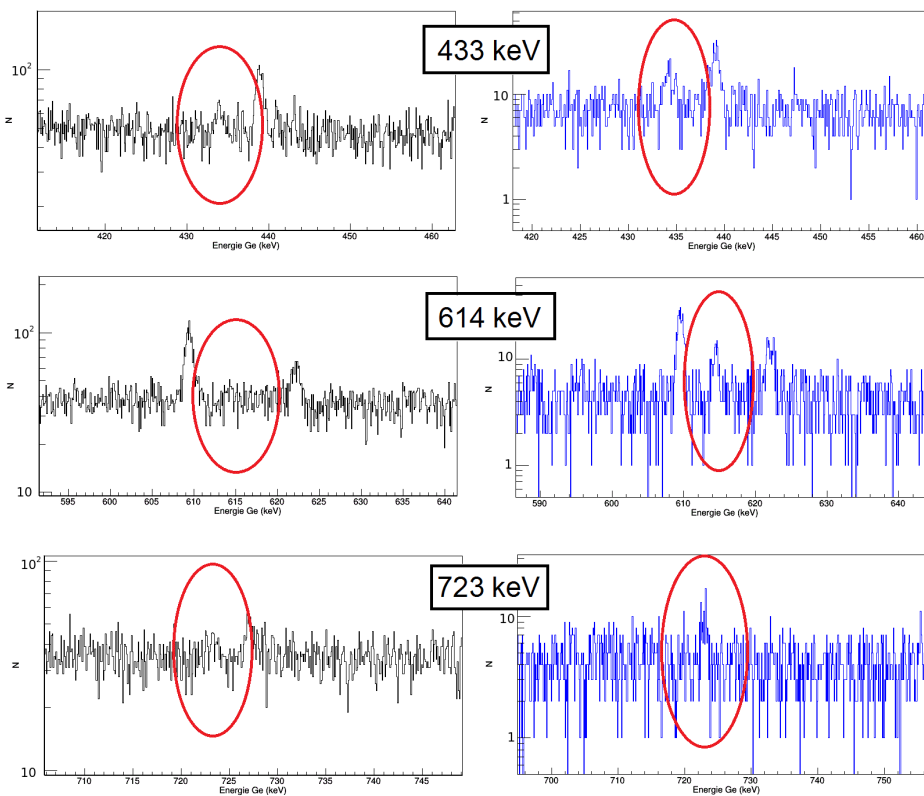


Figure 112 – Trois zooms sur les deux spectres présentés sur la figure 111 pour chacun des trois pics de ^{108m}Ag à 433 keV, 614 keV et 723 keV.

2.2.5 ^{110m}Ag : spectres en coïncidence

Comme pour ^{108m}Ag , ^{110m}Ag est analysé sur les spectres en coïncidence. En fonction du radionucléide majeur, la voie "Ge/Ge" ou la voie "Ge/NaI" sera employée. Par exemple, dans un échantillon biologique, la mesure sera effectuée sur le spectre en coïncidence "Ge/Ge" tandis que pour un filtre aérosol, la mesure se fera sur le spectre en coïncidence "Ge/NaI".

La figure 113 regroupe les résultats de mesure de 9 échantillons analysés avec Léda et en spectrométrie γ classique. Les mesures fournissent des activités massiques en parfait accord aux incertitudes près et les incertitudes sont améliorées à basse activité. Les limites de détection sont divisées par un facteur 3 environ ce qui a permis d'avoir 2 mesures significatives en plus.

Comme pour ^{108m}Ag , les coefficients d'étalonnage sont simulés et ont donc une incertitude relative associée de 20 %. Dans ce cas également, lorsque l'activité est importante, il est préférable de mesurer par spectrométrie classique pour avoir des incertitudes les plus faibles possibles.

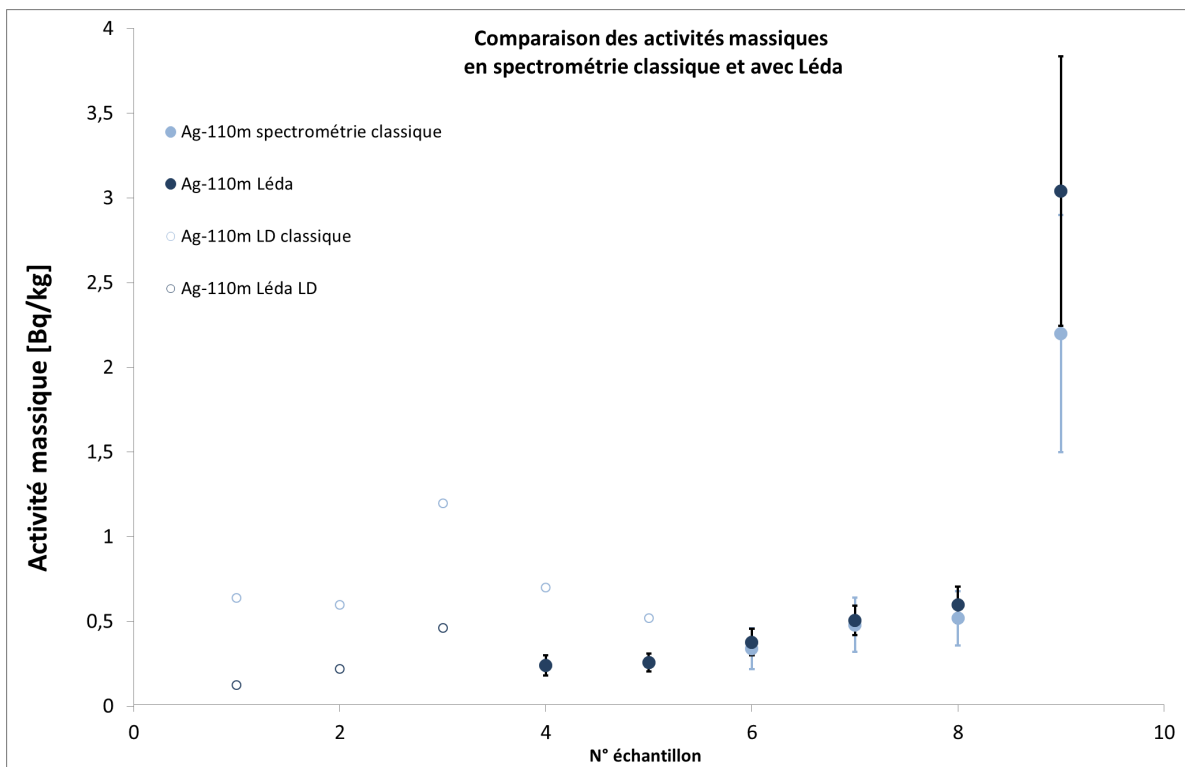


Figure 113 – Comparaison des activités massiques de ^{110m}Ag obtenues par spectrométrie classique et avec Léda.

2.2.6 Conclusion

Pour récapituler, 80 échantillons ont été mesurés sur Léda dans lesquels 5 radionucléides sont recherchés, avec des voies différentes dépendant du radionucléide. Les mesures réalisées avec Léda fournissent les mêmes activités massiques que celles obtenues par spectrométrie γ classique aux incertitudes près (figure 114). Les mesures sont plus précises, dans la majorité des cas, les incertitudes sont améliorées. Seuls les cas où les activités sont importantes et le radionucléide mesuré sur des voies en coïncidence avec des coefficients d'étalonnage simulés montrent qu'une mesure par spectrométrie classique serait plus adaptée en fournissant des incertitudes meilleures. Enfin, les mesures sont plus sensibles, dans tous les cas les limites de détection sont améliorées et ont permis d'avoir 19 mesures significatives en plus qu'avec la spectrométrie classique (figure 114).

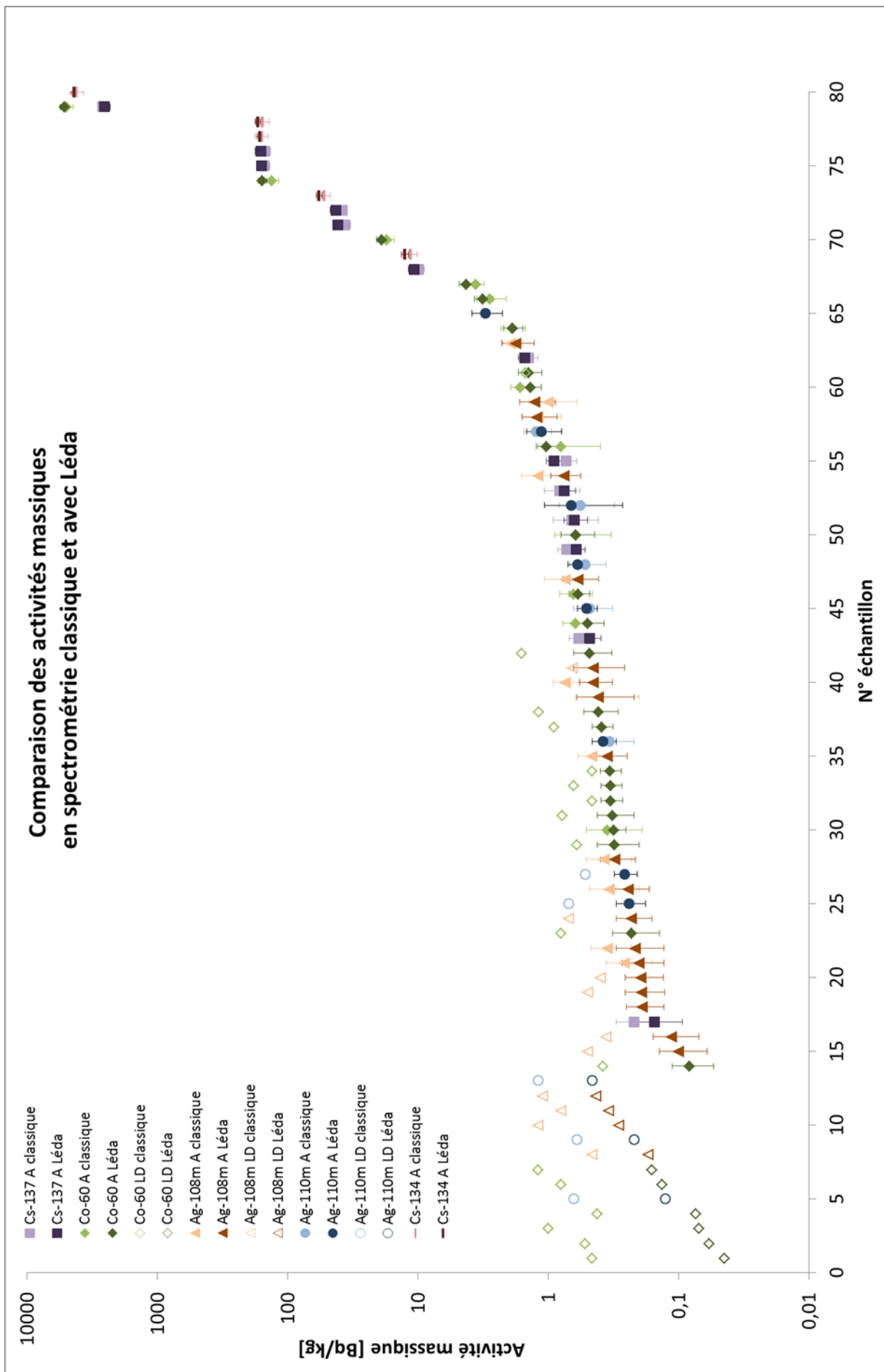


Figure 114 – Comparaison générale des activités massiques obtenues par spectrométrie classique et avec Léda.

3 Mesures rapides de filtres de prélèvement d'aérosols

Comme expliqué dans le chapitre I, mesurer à très bas niveau revient à mesurer plus rapidement pour des limites de détection identiques. Les résultats précédents ont montré que les limites de détection sont améliorées pour plusieurs radionucléides mesurés avec Léda. Des travaux ont déjà porté sur la mesure de filtres d'aérosols à l'aide de la spectrométrie γ en coïncidence, (Konki et al. [35]) et ont montré l'amélioration apportée par cette technique par rapport à la spectrométrie classique.

Il est nécessaire de rappeler qu'en cas d'accident avec des rejets dans l'environnement, un des moyens de les mesurer et de les quantifier est la mesure des filtres d'aérosols. Habituellement, ces filtres d'aérosols sont mesurés au moins 4 jours après prélèvement pour laisser décroître les descendants particuliers du radon qui engendrent un bruit de fond très important dans le spectre avec de multiples pics et leurs fonds Compton associés. La figure 115 présente les spectres classiques des mesures du même filtre d'aérosols directement après prélèvement puis après 4 jours de décroissance, pour un même temps de comptage. On peut voir que suite à la décroissance des descendants particuliers du radon, le spectre est plus simple. Seul ^7Be et son pic à 477 keV (et le fond Compton associé) est présent en forte proportion.

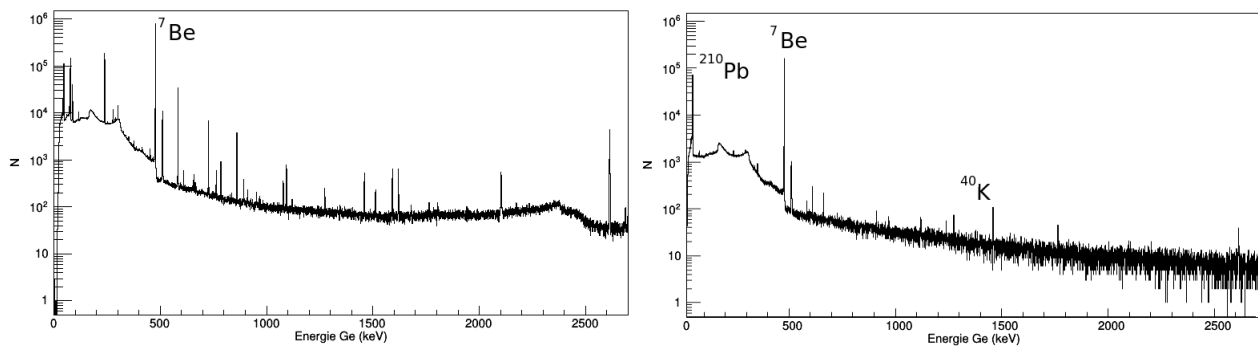


Figure 115 – Spectres d'un filtre d'aérosols mesuré 240 000 s, juste après le prélèvement (gauche) et après 4 jours de décroissance (droite).

Cependant, en cas de crise, il est nécessaire de mesurer les filtres d'aérosols rapidement après prélèvement pour obtenir des résultats le plus vite possible. Les différentes voies de mesure de Léda permettent d'améliorer les limites de détection pour plusieurs radionucléides. La figure 116 montre l'évolution des limites de détection en fonction du temps de mesure pour la spectrométrie classique en rouge et la mesure avec Léda en bleu pour ^{131}I , ^{137}Cs , émetteurs simples, et ^{134}Cs , émetteur en coïncidence. On voit que, pour les trois radionucléides, les limites de détection sont divisées par un facteur 3 environ. Mais cela peut être transposé en temps de mesure, par exemple pour avoir une limite de détection de $2 \mu\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ de ^{137}Cs pour un volume d'air prélevé de $120\,000 \text{ m}^3$, une mesure de 5 h est suffisante avec Léda alors qu'il est nécessaire de mesurer 22 h avec un système classique.

Enfin, plusieurs mesures de filtres d'aérosols de "routine" ont été mesurés après les 4 jours de décroissance usuels. Léda n'apporte pas d'amélioration des limites de détection sur les radionucléides habituellement mesurés (^{22}Na , ^7Be , ^{210}Pb , ^{137}Cs , ^{40}K). En effet, les filtres sont mesurés sur les systèmes anti-cosmiques qui présentent un bruit de fond très bas et dans les filtres seul persiste ^7Be comme radionucléide en forte proportion. Son pic à 477 keV ne masque que peu de pics recherchés. En revanche, le pic à 364 keV de ^{131}I est masqué par le fond Compton du pic de ^7Be . De plus, sa période relativement courte (8 jours) conduit à des limites de détection assez élevées et sa quantification est impérative car il fait partie des radionucléides rejetés qui contribuent le plus à la dose, il sera donc préférable de mesurer le filtre sans attendre de décroissance sur Léda.

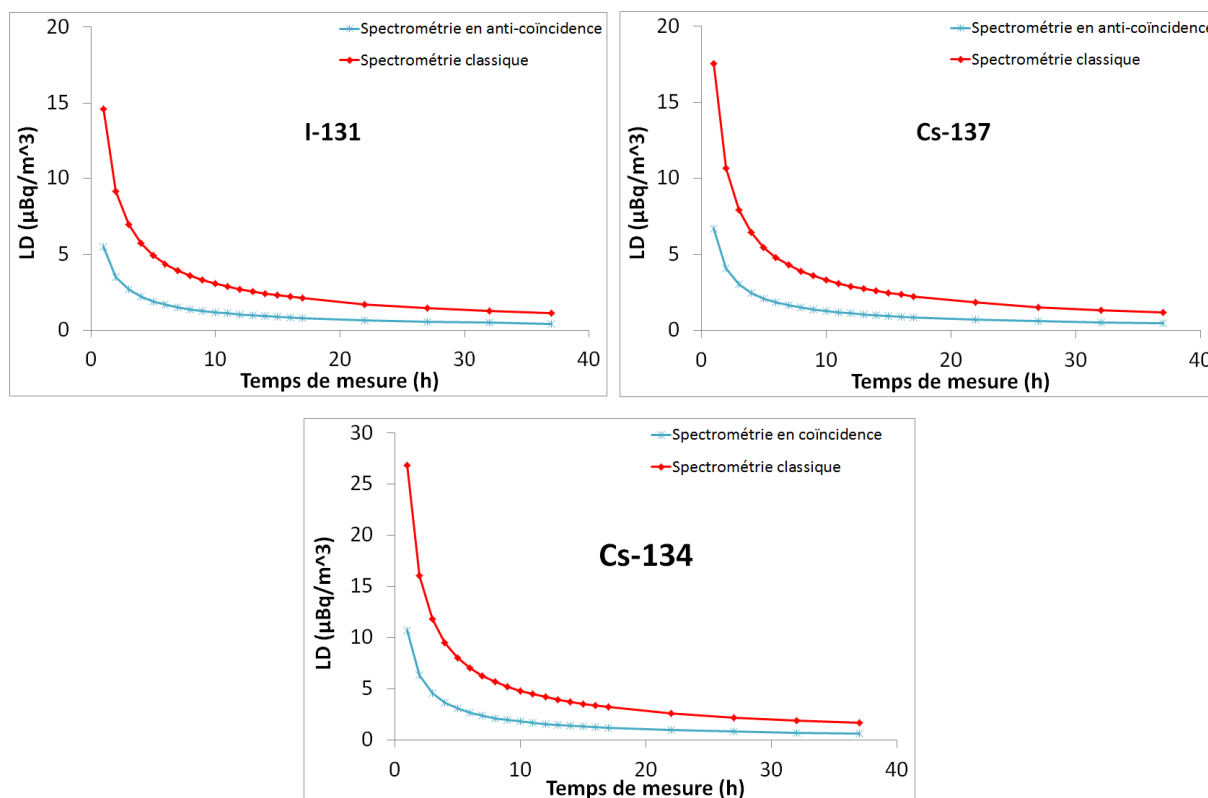


Figure 116 – Comparaison de l'évolution des limites de détection en spectrométrie classique et avec Léda pour un filtre d'aérosol mesuré avant la décroissance des descendants particulaires du radon pour trois radionucléides (^{131}I , ^{137}Cs et ^{134}Cs).

Pour terminer, un filtre aérosol prélevé à Orsay le 18 mars 2015 a été mesuré sur Léda durant 3 jours. Le spectre en anti-coïncidence (figure 117) montre la présence de ^{131}I , les quantités estimées sont très faibles, de $0.14 \pm 0.09 \mu\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$. Durant la même période, d'autres pays (Finlande, Norvège, Pologne, ...), ont également mesurés ^{131}I sur leurs filtres à des niveaux compris entre 1 et $10 \mu\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$. La détection à Orsay pourrait être reliée à ce même épisode dont la source serait éloignée, ce qui expliquerait une si large dispersion géographique. Mais on ne peut pas exclure l'hypothèse d'une autre source plus proche et par conséquent plus faible.

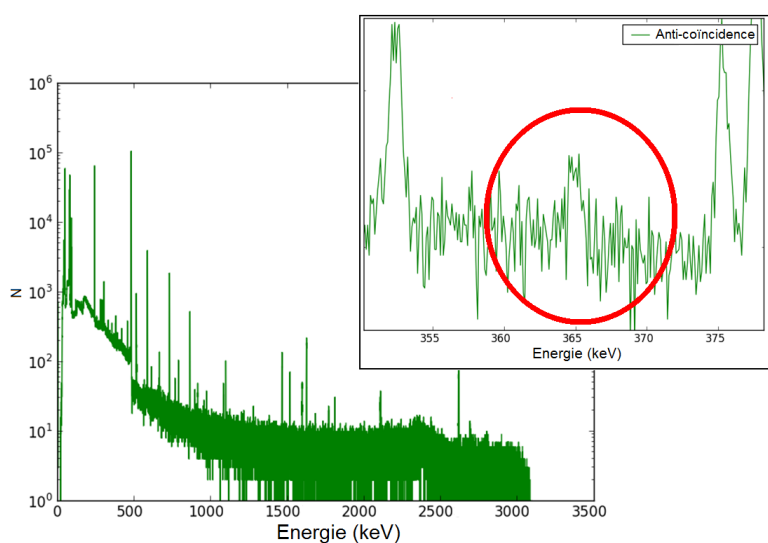


Figure 117 – Spectre en anti-coïncidence d'une mesure d'un filtre d'aérosols prélevé à Orsay et mesuré 3 jours, 2 jours seulement après prélèvement. Mise en évidence du pic caractéristique de ^{131}I à 364 keV.

4 Discussion et perspectives

Aujourd'hui, un nouveau système, Léda, est mis en service et permet de réaliser des mesures de radioactivité sur les échantillons conditionnés en géométrie 10, 17 et 60 mL. Cependant, certaines améliorations peuvent être apportées au système ; tout d'abord, l'analyse des données est réalisée à l'aide d'un algorithme, écrit en Python, qui possède une interface graphique sommaire. La prochaine étape sera le développement d'une interface utilisateur-machine permettant de charger des informations à partir d'une base de données et de fournir un rapport d'analyse, et donc d'avoir une utilisation simple en routine par tout le personnel du laboratoire.

Ensuite, l'efficacité du veto cosmique n'est pas optimale et cette voie pourrait être étudiée afin de l'améliorer. Deux solutions sont à envisager, la première le dédoublement du signal NaI pour avoir une voie anti-cosmique et une voie anti-Compton, chacune avec un réglage de l'électronique permettant d'identifier un maximum d'événements d'intérêt : les photons diffusés, dans une gamme d'énergie d'environ 0-2 MeV, pour la mesure anti-Compton et une gamme beaucoup plus étendue pour les dépôts cosmiques, qui peuvent être à haute énergie (plusieurs dizaines de MeV). La seconde méthode, plus coûteuse, serait la mise en place de scintillateurs plastiques à l'extérieur du blindage pour avoir une mesure anti-cosmique optimale. Cette technique mériterait une étude approfondie au niveau du coût et de la faisabilité.

Enfin, nous avons mis en évidence la mauvaise gestion des temps dans l'électronique numérique de Léda, le Pixie-4. C'est un problème connu sur les électroniques employées en spectrométrie γ (Lépy et al. [40]). En effet, les temps morts ne sont pas correctement mesurés, une étude à l'aide d'un générateur d'impulsions a montré des écarts de l'ordre de quelques pourcents entre les temps actifs fournis par l'électronique et ceux fournis par le générateur pour la mesure de sources étalons. Cet écart nous a conduit à utiliser des sources peu actives fournissant des taux de comptage à peine plus élevés que lors de la mesure d'échantillons, afin d'avoir des étalonnage en rendement justes. Cependant, si des échantillons fortement actifs, qui induiraient un taux de comptage élevé, sont mesurés, les temps actifs utilisés devront être corrigés.

Cette mauvaise gestion des temps pourrait conduire au développement d'une électronique adaptée à la mesure en coïncidence. La technologie actuelle permet d'avoir des cartes d'acquisition performantes dans lesquelles peuvent être développés des algorithmes permettant l'acquisition de données de mesure des détecteurs employés en spectrométrie γ .

Conclusion

Le développement de la mesure par spectrométrie γ en coïncidence a permis d'améliorer les limites de détection pour les mesures de radioactivité réalisées au laboratoire. Que ce soit pour les mesures à bas niveau de radioactivité pour la surveillance radiologique de l'environnement ou la recherche en radioécologie, ou les mesures rapides en cas de crise, des améliorations sont apportées pour tous les types de radionucléide.

La méthode a été développée sur un système du laboratoire, le système anti-Compton, les mesures d'échantillons ont montré que la méthode est plus précise et plus sensible que la spectrométrie γ classique. En effet, les mesures de ^{60}Co sur différents échantillons ont permis de valider la méthode, de plus les incertitudes de mesure sont diminuées grâce à un bruit de fond très faible. Enfin, les limites de détection sont en moyenne divisées par un facteur 10. La modélisation du système, à l'aide du code de calcul Monte Carlo MCNP_CP permet de simuler des coefficients d'étalonnage lorsque le radionucléide recherché n'est pas disponible en source étalon. Enfin, le développement d'une interface graphique est en cours pour permettre de calculer les activités et les limites caractéristiques sur tous les radionucléides artificiels recherchés au laboratoire.

Un nouveau système de mesure en coïncidence, Léda, a été mis en service pour pallier les limitations intrinsèques du système anti-Compton. Tout d'abord optimisé à l'aide de simulations Monte Carlo, le système a été installé dans la salle blindée du laboratoire. Un modèle MCNP_CP permet de calculer des coefficients d'étalonnage lorsque le radionucléide n'est pas disponible en source étalon. De nombreuses mesures, de plusieurs radionucléides : ^{108m}Ag , ^{110m}Ag , ^{137}Cs , ^{134}Cs et ^{60}Co , ont permis de valider ce système. Les différentes voies de mesure permettent d'avoir pour tous les radionucléides un meilleur rapport signal sur bruit et donc d'avoir de meilleures limites de détection. Comme pour le système anti-Compton, la méthode de mesure est plus précise et plus sensible que la spectrométrie classique. Les incertitudes sont diminuées grâce au faible bruit de fond et les limites de détection sont améliorées pour tous les radionucléides, qu'ils soient émetteurs simples ou en coïncidence.

Les résultats ont montré l'intérêt du développement de la mesure en coïncidence et/ou en anti-coïncidence. Compte tenu du coût du matériel, il ne sera pas possible d'installer de multiples systèmes de mesure comme Léda. C'est un système qui sera employé pour des études et des expertises en radioécologie, en particulier pour poursuivre les chroniques, par exemple ^{137}Cs et ^{60}Co dans des bio-indicateurs. De plus, le système pourra être mis à contribution en cas de crise pour la surveillance de l'environnement. Cependant, il serait intéressant de continuer les développements sur des systèmes de mesure en coïncidence, par exemple basés uniquement sur deux spectromètres germanium avec un veto cosmique ou alors sur des systèmes permettant de réaliser des coïncidences β - γ .

Communications

Ce travail a fait ou fera l'objet de plusieurs communications orales et écrites répertoriées ci-dessous :

Orales :

- Poster ICRM (International Conference on Radionuclide Metrology) ; Juin 2015, Vienne, Autriche ; H. Paradis, A. de Vismes Ott, X. Cagnat, F. Piquemal, R. Gurriaran
- Présentation orale, ICRM (International Conference on Radionuclide Metrology) ; Juin 2015, Vienne, Autriche ; H. Paradis , A. de Vismes Ott, X. Cagnat, F. Piquemal, R. Gurriaran
- Présentation orale, Congrès National de Radioprotection (SFRP) ; Juin 2015, Reims ; H. Paradis , A. de Vismes Ott, X. Cagnat, F. Piquemal, R. Gurriaran
- Présentation orale, ENVIRA (International Conference on Environmental Radioactivity) ; Septembre 2015, Thessalonique, Grèce ; H. Paradis, A. de Vismes Ott, X. Cagnat, F. Piquemal, R. Gurriaran
- Présentation orale, ICRM LLRMT (International Conference on Radionuclide Metrology Low Level Radioactivity Measurement Techniques) ; Septembre 2016, Seattle, Etats-Unis ; H. Paradis, A. de Vismes Ott, X. Cagnat, F. Piquemal, R. Gurriaran

Écrites :

- "Low level measurement of ^{60}Co by gamma ray spectrometry using γ - γ coincidence" (2016) H. Paradis, A. de Vismes Ott, M. Luo, X. Cagnat, F. Piquemal, R. Gurriaran Applied Radiation and Isotopes, v 109, 9 487-495
- "Leda : a new γ - γ coincidence measurement system" , H. Paradis, A. de Vismes Ott, X. Cagnat, F. Piquemal, R. Gurriaran, soumis à Applied Radiation and Isotopes

Bibliographie

- [1] Agostinelli, S., J. Allison, K. Amako, J. Apostolakis, H. Araujo, P. Arce, M. Asai, D. Axen, S. Bannerjee, G. Barrand, F. Behner, L. Bellagamba, J. Boudreau, L. Broglia, A. Brunengo, H. Burkhardt, S. Chauvie, J. Chuma, R. Chytraccek, G. Cooperman, G. Cosmo, P. Degtyarenko, A. Dell'Acqua, G. Depaola, D. Dietrich, R. Enami, A. Feliciello, C. Ferguson, H. Fesefeldt, G. Folger, F. Foppiano, A. Forti, S. Garelli, S. Giani, R. Giannitrapani, D. Gibin, J. G. Cadenas, I. González, G. G. Abril, G. Greeniaus, W. Greiner, V. Grichine, A. Grossheim, S. Guatelli, P. Gumplinger, R. Hamatsu, K. Hashimoto, H. Hasui, A. Heikkinen, A. Howard, V. Ivanchenko, A. Johnson, F. Jones, J. Kaltenbach, N. Kanaya, M. Kawabata, Y. Kawabata, M. Kawaguti, S. Kelner, P. Kent, A. Kimura, T. Kodama, R. Kokoulin, M. Kossov, H. Kurashige, E. Lamanna, T. Lampén, V. Lara, V. Lefebure, F. Lei, M. Liendl, W. Lockman, F. Longo, S. Magni, M. Maire, E. Medernach, K. Minamimoto, P. M. de Freitas, Y. Morita, K. Murakami, M. Nagamatu, R. Nartallo, P. Nieminen, T. Nishimura, K. Ohtsubo, M. Okamura, S. O'Neale, Y. Oohata, K. Paech, J. Perl, A. Pfeiffer, M. Pia, F. Ranjard, A. Rybin, S. Sadilov, E. D. Salvo, G. Santin, T. Sasaki, N. Savvas, Y. Sawada, S. Scherer, S. Sei, V. Sirotenko, D. Smith, N. Starkov, H. Stoecker, J. Sulkimo, M. Takahata, S. Tanaka, E. Tcherniaev, E. S. Tehrani, M. Tropeano, P. Truscott, H. Uno, L. Urban, P. Urban, M. Verderi, A. Walkden, W. Wander, H. Weber, J. Wellisch, T. Wenaus, D. Williams, D. Wright, T. Yamada, H. Yoshida, and D. Zschesche (2003). Geant4 a simulation toolkit. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment* 506(3), 250 – 303.
- [2] Antovic, N. and N. Svrkota (2009a). Development of a method for activity measurements of ^{232}Th daughters with a multidetector gamma-ray coincidence spectrometer. *Applied Radiation and Isotopes* 67(6), 1133–1138.
- [3] Antovic, N. and N. Svrkota (2009b). Measuring the radium-226 activity using a multidetector γ -ray coincidence spectrometer. *Journal of environmental radioactivity* 100(10), 823–830.
- [4] Berlizov, A. (2007). Mcnp_cp : A correlated particle radiation source extension of a general purpose Monte Carlo n-particle transport code. *ACS symposium series* 945(183-194).
- [5] BNL. Brookhaven national laboratory, ensdf. <http://www.nndc.bnl.gov/ensdf/>.
- [6] Boshkova, T. (2014). Experimental assessment of the coincidence summing corrections in gamma-ray spectrometry of bulk samples. *Applied Radiation and Isotopes* 83, 1–7.
- [7] Britton, R., A. Davies, J. Burnett, and M. Jackson (2015). A high-efficiency hpge coincidence system for environmental analysis. *Journal of environmental radioactivity* 146, 1–5.
- [8] Britton, R., M. Jackson, and A. Davies (2015). Quantifying radionuclide signatures from a $\gamma - \gamma$ coincidence system. *Journal of environmental radioactivity* 149, 158–163.
- [9] Burnett, J. L. and A. V. Davies (2014). Cosmic veto gamma-spectrometry for comprehensive nuclear-test-ban treaty samples. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment* 747, 37–40.
- [10] Cagniant, A., G. Douysset, J. Fontaine, P. Gross, and G. Le Petit (2015). An introduction to γ^3 a new versatile ultralow background gamma spectrometer. background description and analysis. *Applied Radiation and Isotopes* 98, 125–133.

- [11] Cagniant, A., G. Le Petit, P. Gross, G. Douysset, H. Richard-Bressand, and J. Fontaine (2014). Improvements of low-level radionuclide detection sensitivity by a state-of-the art coincidence setup. *Applied Radiation and Isotopes* 87, 48–52.
- [12] CANBERRA (2003). *Germanium Detectors, user's manual*.
- [13] CEA-LNHB (2016a). Interactions rayonnement-matière. [http : //www.nucleide.org/Gamma_spectro/interactions.htm](http://www.nucleide.org/Gamma_spectro/interactions.htm).
- [14] CEA-LNHB (2016b). Nucléide-lara, library for gamma and alpha emissions. [http : //www.nucleide.org/Laraweb/](http://www.nucleide.org/Laraweb/).
- [15] CETAMA (2002). *Dossier de recommandations pour l'optimisation des mesures : Spectrométrie gamma appliquée aux échantillons de l'environnement*. Number 216. Lavoisier.
- [16] de Vismes, A., X. Cagnat, S. Aubry, D. Mekhlouche, and R. Gurriaran (2012). Simple cost effective anti-cosmic device. 6th International Conference on Radionuclide Metrology - Low Level radioactivity Measurement Techniques.
- [17] de Vismes, A., R. Gurriaran, and X. Cagnat (2009). Anti-Compton gamma spectrometry for environmental samples. *Radioprotection* 44(5), 613–618.
- [18] Dias, M., M. Tongu, M. Takeda, and M. Koskinas (2010). Monte Carlo simulation to positron emitter standardized by means of $4\pi\beta-\gamma$ coincidence system-application to ^{22}Na . *Applied Radiation and Isotopes* 68(7-8), 1362–1366.
- [19] Done, L. and M.-R. Ioan (2016). Minimum detectable activity in gamma spectrometry and its use in low level activity measurements. *Applied Radiation and Isotopes* 114, 28 – 32.
- [20] Dziri, S., A. Nourreddine, A. Sellam, A. Pape, and E. Baussan (2012). Simulation approach to coincidence summing in γ -ray spectrometry. *Applied Radiation and Isotopes* 70(1141-1144).
- [21] EPA. Us Environmental Protection Agency, technologically enhanced naturally occurring radioactive materials. [https : //www.epa.gov/radiation/technologically-enhanced-naturally-occurring-radioactive-tenorm](https://www.epa.gov/radiation/technologically-enhanced-naturally-occurring-radioactive-tenorm).
- [22] FAST. Multiparameter multichannel analyzers. [http : //www.fastcomtec.com/products/mpa/](http://www.fastcomtec.com/products/mpa/).
- [23] Florence, D. Hartmann, P. (2003). Les rejets radioactifs et chimiques des centrales nucléaires d'EDF. In *Quatrième congrès national de radioprotection*.
- [24] Gastrich, H., C. Gobling, K. Klingenberg, K. Kroninger, T. Neddermann, C. Nitsch, T. Quante, and K. Zuber (2016). The dortmund low background facility - low-background gamma ray spectrometry with an artificial overburden. *Applied Radiation and Isotopes* 112(165-176).
- [25] Harkness-Brennan, L., D. Judson, A. Boston, H. Boston, S. Colosimo, J. Cresswell, P. Nolan, A. Adekola, J. Colaresi, J. Cocks, and W. Mueller (2014). An experimental characterisation of a broad energy germanium detector. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment* 760, 28–39.
- [26] Havelka, M. and J. Sochorová (2008). Standardisation of ^{56}Co and ^{57}Co using software coincidence counting system. *Applied Radiation and Isotopes* 66(6-7), 914–918.
- [27] Helene, O. and M. Moralles (1996). Comparison of two methods for relocation of multichannel spectra. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment* 378(3), 624–626.
- [28] Heusser, G. (1995). Low-radioactivity background techniques. *Annual Review of Nuclear and Particle Science* 45(1), 543–590.

- [29] IRSN. Principaux radionucléides rejetés en cas d'accident. [http : //www.irsn.fr/FR/connaissances/Installations_nucleaires/La_surete_Nucleaire/risque_nucleaire/mesures_radioactivite_crise/Pages/principaux_radionucleides_rejetes_en_cas_accident](http://www.irsn.fr/FR/connaissances/Installations_nucleaires/La_surete_Nucleaire/risque_nucleaire/mesures_radioactivite_crise/Pages/principaux_radionucleides_rejetes_en_cas_accident).
- [30] ISO (2010). Determination of characteristic limits (decision threshold, detection limit and limits of confidence interval) for measurements of ionizing radiation - fundamentals and applications. International Organization for Standardization.
- [31] Jurado Vargas, M., B. Caro Marroyo, and A. Martín Sánchez (2013). Measurements of alpha-gamma coincidences with an optimized dual-parameter multichannel system. *Applied Radiation and Isotopes* 82, 308–313.
- [32] Jutier, C. and G. Le Petit (2006). Activity measurement of ^{176}Lu sample using coincidence peaks and Monte Carlo simulations. *Applied Radiation and Isotopes* 64(1292-1296).
- [33] Kantele, J., O. Marttila, and J. Hattula (1966). Gamma spectrometer systems employing an anti-Compton annulus. *Nuclear Instruments and Methods* 39(2), 194 – 216.
- [34] Knoll, G. (1979). *Radiation detection and measurement*. John Wiley and Sons.
- [35] Konki, J., P. T. Greenlees, U. Jakobsson, P. Jones, R. Julin, S. Jutinen, S. Ketelhut, K. Hauschild, R. Kontro, A. Leppänen, A. Lopez-Martens, A. Mattila, P. Nieminen, M. Nyman, K. Peräjärvi, P. Peura, P. Rahkila, P. Ruotsalainen, J. Sarén, C. Scholey, J. Sorri, H. Toivonen, J. Turunen, and J. Uusitalo (2012). Comparison of gamma-ray coincidence and low-background gamma-ray singles spectrometry. *Applied Radiation and Isotopes* 70(2), 392–396.
- [36] Laurec, J., X. Blanchard, F. Pointurier, and A. Adam (1996). A new low background gamma spectrometer equipped with an anti-cosmic device. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment* 369(23), 566 – 571.
- [37] Le Petit, G., A. Cagniant, M. Morelle, P. Gross, P. Achim, G. Douysset, T. Taffary, and C. Moulin (2013). Innovative concept for a major breakthrough in atmospheric radioactive xenon detection for nuclear explosion monitoring. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 298(2), 1159–1169.
- [38] Lyoussi, A. (2010). *Détection de rayonnements et instrumentation nucléaire*. EDP sciences.
- [39] Lépy, M.-C., T. Altzitzoglou, M. J. Anagnostakis, D. Arnold, M. Capogni, A. Ceccatelli, P. De Felice, R. Dersch, P. Dryak, A. Fazio, L. Ferreux, M. Guardati, J. B. Han, S. Hurtado, K. L. Karfopoulos, S. Klemola, P. Kovar, K. B. Lee, R. Ocone, O. Ott, O. Sima, S. Sudar, A. avec, C. Van Tao, T. Thanh, and T. Vidmar (2010). Intercomparison of methods for coincidence summing corrections in gamma-ray spectrometry. *Applied Radiation and Isotopes* 68(7-8), 1407–1412.
- [40] Lépy, M.-C., O. Ibrahima Cissé, and S. Pierre (2014). Comparison of digital signal processing modules in gamma-ray spectrometry. *Applied Radiation and Isotopes* 87, 402–406.
- [41] Metropolis, N. and S. Ulam (1949). The Monte Carlo method. *Journal of the American Statistical Association* 44(247), 335–341.
- [42] NIST. Photons cross sections database. National Institute of Standards and Technologies, [http : //www.nist.gov/pml/data/xcom/index.cfm](http://www.nist.gov/pml/data/xcom/index.cfm).
- [43] Quintana, B. and C. Montes (2014). Summing-coincidence corrections with geant4 in routine measurements by γ spectrometry of environmental samples. *Applied Radiation and Isotopes* 87, 390–393.
- [44] Renaud, P., K. Beaugelin, H. Maubert, and P. Ledenic (1999). *Les retombées en France de l'accident de Tchernobyl*. EDP sciences.

- [45] Schroettner, T., I. Schraick, T. Furch, and P. Kindl (2010). A high-resolution, multi-parameter, $\beta\gamma$ coincidence, $\mu\gamma$ anticoincidence system for radioxenon measurement. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment* 621(1-3), 478–488.
- [46] Sempau, J., J. Fernández-Varea, E. Acosta, and F. Salvat (2003). Experimental benchmarks of the Monte Carlo code penelope. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B : Beam Interactions with Materials and Atoms* 207(2), 107–123.
- [47] Swiderski, L., M. Moszynski, A. Syntfeld-Kazuch, M. Szawlowski, and T. Szczesniak (2014). Measuring the scintillation decay time for different energy depositions in nai :tl, lso :ce and cebr3 scintillators. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment* 749, 68 – 73.
- [48] Tomarchio, E. and S. Rizzo (2011). Coincidence-summing correction equations in gamma-ray spectrometry with p-type hpgedetectors. *Radiation Physics and Chemistry* 80(3), 318–323.
- [49] Union-Européenne (2016). Règlement (euratom) 2016/05 du conseil du 15 janvier 2016 fixant les niveaux maximaux admissibles de contamination radioactive pour les denrées alimentaires et les aliments pour animaux après un accident nucléaire. Journal Officiel de l’Union Européenne.
- [50] Waters, L., G. McKinney, J. Durkee, M. Fensin, J. Hendricks, M. James, R. Johns, and D. Pelowitz (2007). The mcnp Monte Carlo radiation transport code. Volume 896, pp. 81–90. cited By 38.
- [51] XIA (2013). *User’s Manual Digital Gamma Finder (DGF) Pixie-4*.
- [52] Zhang, W. and A. Chatt (2013). Epithermal instrumental neutron activation analysis in conjunction with anti-coincidence gamma-ray spectrometry for investigating iodine levels in canadian foods. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 296(495-501).
- [53] Zhang, W., J. Yi, P. Mekarski, K. Ungar, B. Hauck, and G. Kramer (2011a). A gamma-gamma coincidence spectrometric method for rapid characterization of uranium isotopic fingerprints. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 288(1), 43–47.
- [54] Zhang, W., J. Yi, P. Mekarski, K. Ungar, B. Hauck, and G. Kramer (2011b). Quantification of ^{235}U and ^{238}U activity concentrations for undeclared nuclear materials by a digital gamma-gamma coincidence spectroscopy. *Applied Radiation and Isotopes* 69(6), 904–907.
- [55] Zhu, H. and A. Berlizov (2009). X-ray true coincidence summing correction in genie 2000. *Applied Radiation and Isotopes* 67(696-700).
- [56] Zhu, H., R. Venkataraman, N. Mena, W. Mueller, S. Croft, and A. Berlizov (2008). Validation of gamma-ray coincidence summing effects modeled by Monte-Carlo code MCNP_CP. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 278(359-363).

Annexes

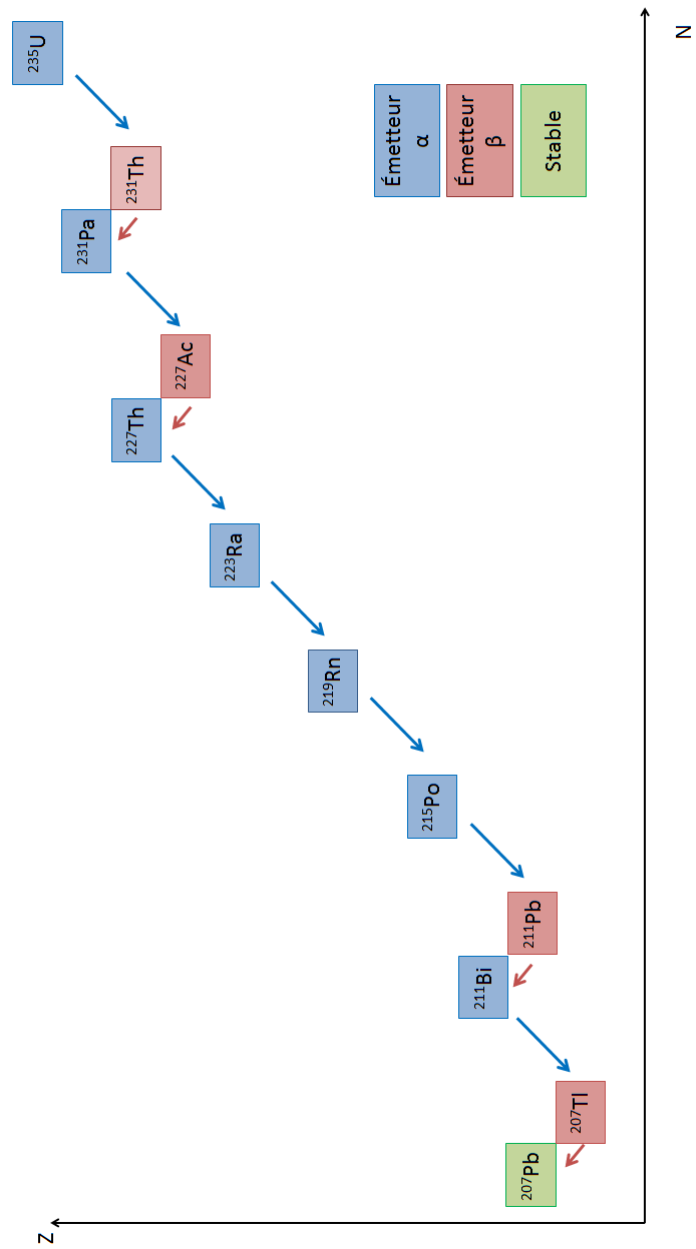
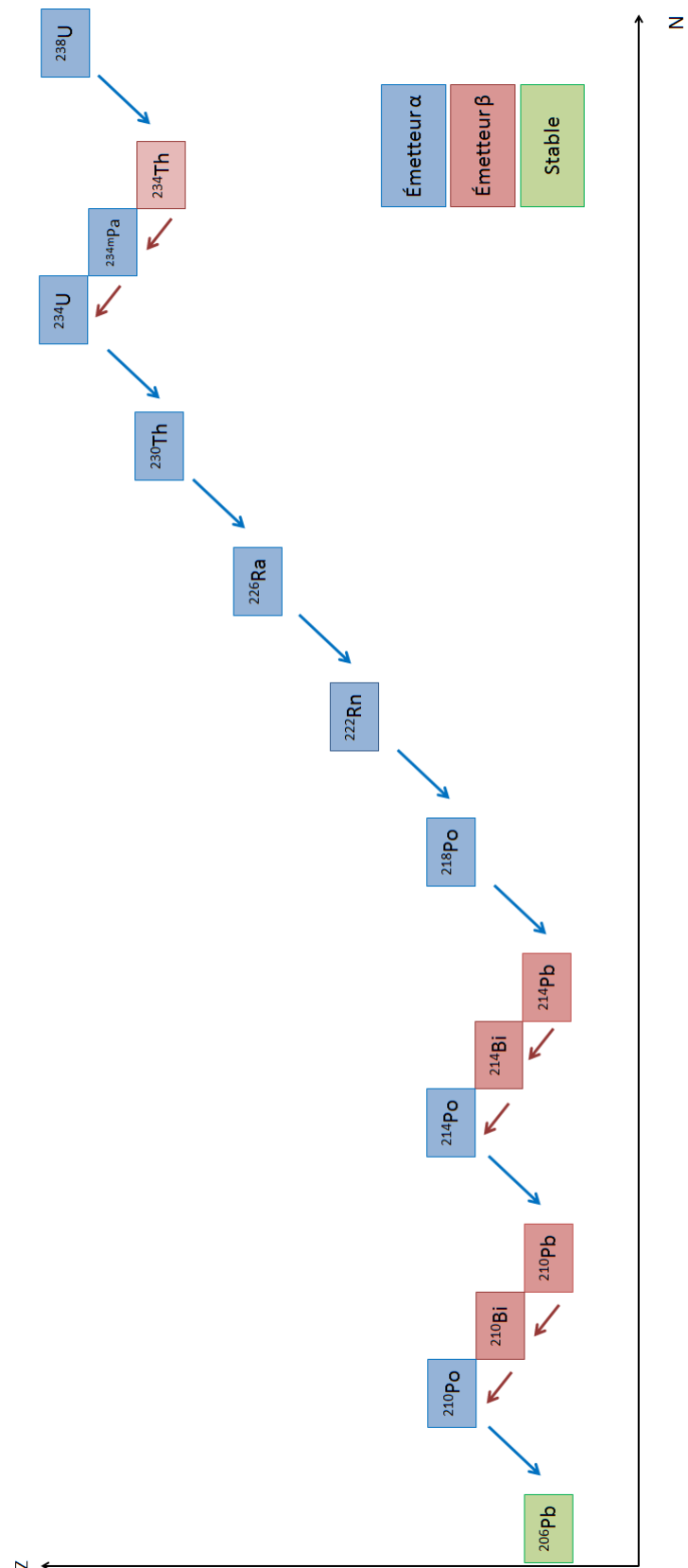


Figure 118 – chaîne de désintégration de ^{235}U .

Figure 119 – chaîne de désintégration de ^{238}U .

Titre : Développement de la mesure par spectrométrie γ en coïncidence.

Résumé :

Dans le cadre de la mission de surveillance radiologique de l'environnement de l'Institut de Radioprotection et de Sécurité Nucléaire (IRSN), le Laboratoire de Mesure de la Radioactivité dans l'Environnement (LMRE) réalise la mesure de la concentration en activité dans différentes matrices environnementales. Il s'agit de matrices biologiques (mousses aquatiques, algues, lait, légumes ...), de sols, d'eaux ou encore de filtres de prélèvement d'aérosols.

Les radionucléides artificiels recherchés sont en très faible proportion par rapport à certains radionucléides naturels : le potassium 40 dans les matrices biologiques ou encore les descendants particuliers du radon dans les filtres d'aérosols. L'important fond Compton induit par ces radionucléides naturels dans le spectre gamma complique la détermination des radionucléides présents au niveau trace.

Un moyen de s'affranchir de ce fond Compton est de faire une mesure par spectrométrie γ en coïncidence en utilisant au moins deux détecteurs. La méthode a été développée sur un système existant, le système anti-Compton constitué d'un détecteur germanium entouré d'un scintillateur NaI(Tl), avec le développement d'un algorithme d'analyse et de l'étalonnage par simulation Monte Carlo si nécessaire. De plus, un nouveau système de mesure en coïncidence a été conçu par simulation Monte Carlo puis mis en service pour pallier les limites du système anti-Compton. Ce nouveau système de mesure, nommé Leda, est composé de deux détecteurs germanium face à face, entourés d'un scintillateur NaI(Tl) ; il possède plusieurs voies de mesure, chacune présentant une amélioration en termes de limite de détection pour tous les radionucléides mesurés.

Mots clés : spectrométrie γ , coïncidence, radioactivité.

Title : Development of coincident measurement by γ ray spectrometry.

Abstract :

The French Institute of Radiation Protection and Nuclear Safety (IRSN) is in charge of the radiological surveillance of the environment. In this framework the Laboratory of Environment Radioactivity Measurement (LMRE) measures the radioactivity concentrations in various environmental samples : biological matrices (aquatic moss, seaweed, milk, vegetables ...), soils, waters or aerosol filters.

Artificial radionuclides searched are in low proportion compared to natural radionuclides : potassium 40 in biological matrices or radon particular daughters in aerosol filters. The significant Compton continuum induced in the gamma spectrum makes difficult the identification and the quantification of radionuclides present at trace level.

The use of two detectors enables to make coincident spectrometry in order to decrease this Compton background. This technique was developed with an existing system of the laboratory, the anti-Compton system, composed of a germanium detector surrounded by a NaI(Tl) scintillator. A data analysis algorithm was developed and also a Monte Carlo calibration if radionuclides measured are not available in standard source. Moreover a new coincident measurement system was designed by Monte Carlo simulation, called Leda consisting of two germanium detectors face to face surrounded by a NaI(Tl) scintillator. This new system overcomes the limits of the anti-Compton system. Different measurement channels improve the detection limits for all radionuclides measured in our laboratory.

Keywords : γ spectrometry, coincidence, radioactivity.