

EPUBLIQUE ALGERIENNE DEMOCRATIQUE ET POPULAIRE
MINISTERE DE L'ENSEIGNEMENT SUPERIEUR ET DE LA RECHERCHE
SCIENTIFIQUE

UNIVERSITE DE SETIF 1 – SETIF

THESE

Présentée à la faculté des Sciences
Département de Physique
Pour l'obtention du diplôme de
DOCTORAT EN SCIENCES

Option : physique du solide

Par

Mr AZLI TAREK

THEME

***Simulation de la détection des rayonnements
gamma par un détecteur en Germanium***

Soutenue le :

Devant la commission d'examen :

A. BOUCENNA	Professeur	UFA SETIF 1	Président
Z. CHAOUI	Professeur	UFA SETIF 1	Rapporteur
A. BELAFRITES	Professeur	UABH- JIJEL	Examineur
N. OUNOUGH	MCA	UABH- JIJEL	Examineur

REMERCIEMENTS

*Je tiens, en premier lieu à exprimer ma profonde gratitude à Monsieur **Zine - El-Abidine CHAOUI**, professeur à l'université de Sétif 1, pour m'avoir encadré et suivi mes travaux de thèse.*

Je tiens à exprimer mes remerciements aux membres du jury qui ont accepté d'évaluer mon travail de thèse.

*Merci à Mr **Ahmed BOUCENNA**, professeur à l'université de Sétif 1 pour l'honneur qu'il m'a fait en acceptant de présider le jury.*

*Je remercie monsieur, **Abdelfateh BELAFRITES** professeur à l'université de Jijel et monsieur, **Nabil OUNOUGH**, maitre de conférences A à l'université de Jijel, d'avoir accepté de juger ce travail.*

*Je remercie également tous mes collègues du laboratoire Optoélectronique à L'université Sétif 1, notamment Mr **Khelil BOUAMAMA** pour ces précieux conseils dont j'ai bénéficié.*

*Je remercie chaleureusement l'ensemble de mes collègues du centre de recherche nucléaire de DRARIA/COMENA: Mr **A.NEJAR**, Mr **M. MOUZAI**, Mme **Z. KHOUJA Z**, Mme **D. BOUKHADRA**, Mr **A. HABANI**.*

Merci à ma famille qui m'a soutenu tout au long de cette période.

Je voudrais remercier tous ceux qui ont participé de loin ou de près à l'aboutissement de ce travail.

TABLE DES MATIERES

TABLE DES MATIERES

TABLE DES MATIERES

Introduction Générale.....	2
I Théorie.....	7
I.1 Spectrométrie gamma fine.....	7
I.2 Le rayonnement gamma.....	7
I.3 Principes de détection :.....	8
I.4 Les détecteurs à semi-conducteurs.....	8
I.4.1 Principe de fonctionnement des détecteurs à semi-conducteurs.....	9
I.4.1.1 La production de charges.....	9
I.4.1.2 Détecteur Germanium hyper pure.....	12
I.4.1.2.1 Détecteur planaire.....	15
I.4.1.2.2 Détecteur coaxial.....	15
I.4.1.2.3 Détecteur puits.....	16
I.4.1.3 Sensibilité de la spectrométrie gamma.....	17
I.4.1.4 Détecteur Germanium hyper pure type-N.....	18
I.4.1.5 L'électronique associée de mise en forme.....	19
I.4.2 Bilan sur l'instrumentation d'une chaîne de mesure.....	20
I.4.3 Caractérisation des performances d'un spectromètre.....	20
I.4.3.1 Résolution en énergie.....	20
I.4.3.2 Etalonnage en efficacité.....	22
I.4.3.2.1 Correction des coïncidences des pics sommes.....	23
I.4.3.2.2 Correction de l'auto-absorption dans l'échantillon.....	27
I.4.3.3 Identification et quantification des radionucléides.....	30
I.4.3.4 Seuil et limite de détection.....	30
I.5 Les émissions gamma naturelles.....	32
I.5.1 Traitement des chaînes naturelles.....	32
I.5.1.1 Famille de l'uranium 238.....	33
I.5.1.2 Famille de l'uranium 235.....	34
I.5.1.3 Famille du thorium 232.....	35
I.6 Le code MCNPX.....	37

TABLE DES MATIERES

I.6.1	La trace de la particule.....	37
I.6.2	Utilisation de MCNPX.....	38
I.6.2.1	La définition de la géométrie dans MCNPX.....	39
I.6.2.2	Définition des matières.....	40
I.6.2.3	Définition des sources.....	41
I.6.2.4	Tallies.....	42
I.6.2.5	Bibliothèques des sections efficaces.....	43
I.6.2.6	Réduction de la variance.....	44
	Références bibliographiques.....	46
II	Optimisation de la géométrie du détecteur HPGe.....	49
II.1	Introduction.....	49
II.1.1	Evaluation des caractéristiques optimales de fonctionnement du détecteur.....	50
II.1.2	Procédure expérimentales.....	57
II.1.2.1	Calibration de la chaîne de mesure.....	57
II.1.2.1.1	Calibration expérimentale en efficacité.....	59
II.1.3	Simulation de la courbe d'efficacité du détecteur sur la base des données du constructeur.....	61
II.1.4	Processus d'Optimisation.....	69
II.1.4.1	Ajustement des contours supérieurs du cristal en germanium.....	70
II.1.4.2	Ajustement de la couche morte.....	75
II.1.4.3	Stratégie d'optimisation de la couche morte du Crystal en germanium.....	79
II.1.4.3.1	La surface horizontale supérieure du cristal.....	80
II.1.4.3.2	La surface latérale externe du cristal.....	80
II.1.4.3.3	La surface latérale interne du cristal.....	81
II.1.4.3.4	La surface inférieure du bas du cristal.....	81
II.1.4.4	Etude de la réponse spectrale.....	89
II.1.5	Validation du modèle optimisé du détecteur.....	97
	Références bibliographiques.....	101
III	Optimisation de la Spectrométrie gamma environnementale.....	105
III.1	Introduction.....	105
III.2	Dispositif Expérimentale.....	106
III.2.1	La géométrie béccher Marinelli.....	108
III.3	Efficacités de détection dans les conditions des mesures environnementales.....	108

TABLE DES MATIERES

III.3.1	Efficacités Expérimentale.....	111
III.3.2	Simulation MCNPX de l'efficacité de détection.....	113
III.3.2.1	Simulation de la réponse spectrale par le code MCNPX.....	118
III.3.3	L'effet de coïncidence des pics sommes.....	122
III.3.3.1	Effet des coïncidences sur un spectre de photons.....	122
III.3.3.2	Facteurs influant sur l'incidence de l'effet de coïncidence des pics sommes.....	123
III.3.3.3	Correction des coïncidences des pics sommes de la source d'Eu-152.....	124
III.3.3.4	Correction des coïncidences par le logiciel Gamma-Vision.....	126
III.3.3.5	Correction des coïncidences par le code MCNPX.....	133
III.3.3.6	Correction des coïncidences par la méthode semi expérimentale.....	133
III.3.3.6.1	Evaluation du coefficient d'auto-absorption.....	134
	Références bibliographiques.....	141
IV	Application.....	144
IV.1	Introduction :.....	144
IV.2	Procédure expérimentale.....	145
IV.2.1	Situation géographique du site.....	145
IV.2.2	Echantillonnage.....	147
IV.2.2.1	Préparation de l'échantillon d'analyse.....	148
IV.2.2.2	Emballage des échantillons à des fins de mesure.....	148
IV.2.3	Incertitude de comptages.....	149
IV.3	Chaîne d'acquisition.....	150
IV.3.1	Etalonnage de l'installation de mesure.....	151
IV.3.1.1	Etalonnage électronique.....	151
IV.3.1.2	Calibration en énergie.....	151
IV.3.1.3	Calibration en efficacité.....	151
IV.3.1.4	Le Bruit de fond.....	154
IV.3.1.5	Calcul de l'activité minimale détectable MDA.....	156
IV.3.1.6	Analyse qualitative.....	156
IV.3.1.7	Analyse quantitative.....	160
IV.4	Résultats et discussion.....	163
IV.4.1	Ra-226 mesure par spectrométrie gamma.....	164
IV.4.2	Mesure d'U-238 par spectrométrie gamma.....	167
IV.4.3	Le radioélément primordial ; isotope du potassium : 40K.....	168

TABLE DES MATIERES

IV.4.4	Mesure de nucléides de la chaîne de thorium par spectrométrie gamma.....	169
IV.4.4.1	Indice de risque de radiation.....	170
IV.4.4.2	Radium équivalent (Ra_{eq}).....	171
IV.4.4.3	Débit de dose Absorbé (D).....	171
IV.4.4.4	Indices de risque externe.....	172
IV.4.4.5	Indices de risque interne.....	172
	Références.....	175
	Conclusion générale.....	176

Introduction générale

Introduction Générale

Au début du 20^{ème} siècle, le développement impressionnant dans l'industrie des semi-conducteurs a permis l'innovation de nouvelles instrumentations impliquant le domaine de la science radio-analytique, conduisant vraisemblablement à un effet perceptible dans le sens de l'analyse des éléments traces. Au cours des décennies suivantes, en 1962 [Mayeen Uddin Khandaker, 2011], la première introduction des détecteurs à semi-conducteurs à base de Germanium a révolutionné le domaine de la recherche en analyse élémentaire; le pouvoir de résolution généralement élevé du détecteur et son grand potentiel d'analyse, la nature non destructive de la technique, ainsi que l'aspect relativement automatisé de la technique d'analyse par spectrométrie gamma, font du détecteur à semi-conducteur un dispositif incontournable dans la majorité des laboratoires dans le monde dans divers domaines d'analyse radio-analytique comme; l'analyse par activation neutronique, l'analyse des matériaux radioactif (MRN), l'analyse de la radioactivité environnementale, ainsi que l'ensemble des applications liées à la criminalistique nucléaire. Le développement rapide de ces techniques a été influencé principalement par la recherche de la limite inférieure de détection, ainsi que pour une analyse plus rapide et à moindre coût par analyte mesuré. En 2005, selon le laboratoire National d'Idaho, il y a plus de 200.000 spectromètres gamma utilisés dans les établissements académiques et industriels dans le monde (<https://www.inl.gov/>).

Dans le domaine environnemental, le détecteur en germanium hyper pure est un outil de choix qui permet d'effectuer des analyses performantes de la radioactivité environnementale. En effet, cette méthode non destructive permet de doser en une seule mesure l'ensemble des radioéléments émetteurs γ d'énergies comprises entre 20 et 2000 keV, présents dans divers nature d'échantillon.

Dans le centre de recherche nucléaire de Draria, on utilise un détecteur en germanium hyper pure de type N pour la détermination de la concentration élémentaire des échantillons irradiés dans le réacteur NUR. Ce détecteur a été réceptionné dans le laboratoire d'analyse par activation neutronique en 1995. Actuellement, on souhaite élargir le champ d'utilisation

Introduction générale

du système de détection, y compris le détecteur en germanium hyper-pur, dans les études environnementale.

La modification du champ d'analyse de l'installation de spectrométrie gamma, à partir de l'analyse instrumentale par activation neutronique des échantillons petits (mg), hautement actives (irradiés dans le réacteur), et mesurés à une large distance par rapport au capot du détecteur (géométrie simple, similitude à une source ponctuelle); à l'analyse de la radioactivité environnementale, qui est contestée par la capacité d'effectuer des mesures précises pour des échantillons caractérisés par ;

- Une faible radioactivité
- Le volume des échantillons à analyser est appréciable de l'ordre de Kg ou litre. Pour les échantillons volumineux, l'auto-absorption des photons dans l'échantillon et l'émergence des pics virtuelles dues aux pics –sommés constitue les majeurs sources d'erreurs.
- Les échantillons sont comptés en étroite géométrie par rapport au détecteur (géométrie complexe) dans le but d'augmenter l'efficacité de détection.
- Nécessite une préparation en laboratoire des sources étalons, qui doivent être adaptées à chaque type de matrice rencontrée. Or, la grande diversité des échantillons environnementales en matière de densité et de composition fait que ces dispositifs sont relativement trop lourds à mettre en œuvre.
- Les procédures expérimentales sont longues et coûteuse, car elles exigent la disponibilité d'un grand nombre de sources mono énergétiques. Cependant, les sources mono énergétiques disponibles ne sont pas nombreuses et coûtent cher, et certains d'entre eux ont de courtes demi-vies, ce qui nécessite un remplacement fréquent. A défaut, les sources multi-gamma sont utilisées, malheureusement, en étroite géométrie, l'efficacité mesurée à l'aide des sources multi-gamma donne des résultats erronés à cause de l'émergence des effets de coïncidences. Ce qui nécessite une maîtrise parfaite des corrections de coïncidences $X-\gamma$ et $\gamma-\gamma$.

Dans ces conditions de mesure environnementale, l'optimisation de la spectrométrie gamma, présente un défi intéressant à relever.

De nos jours, la disponibilité commerciale de certains codes de simulation pour le calcul de l'efficacité a été utilisée pour surmonter ces inconvénients. L'étalonnage des détecteurs par la méthode de simulation Monte Carlo a attiré l'attention des chercheurs dans le passé et la

Introduction générale

mise en œuvre de cette méthode de calcul a fait l'objet de recherches approfondies au cours de ces dernières années [Rodenas et al. 2000, 2007)]. Compte tenu de ses nombreux avantages à savoir;

- Ne nécessite pas l'utilisation des sources d'étalonnage coûteuses,
- Sans effet de coïncidence des pics sommes
- Ne nécessite pas de correction de la matrice.
- Le calcul de l'efficacité peut être tout à fait exact et rapide aussi longtemps que le détecteur est bien connu.

Les méthodes de Monte Carlo, une fois validés, permettent de réaliser des expériences virtuelles pour étendre les résultats des travaux expérimentaux. Toutefois, le calcul précis par de la méthode Monte-Carlo est conditionné par la connaissance exacte des caractéristiques intrinsèques du détecteur et les matériaux environnants. Cependant, même lorsque les données géométriques précises sont disponibles, il est nécessaire d'affiner le modèle en le nourrissant de retour avec des résultats expérimentaux lorsque la précision est souhaitée. En effet, certains paramètres impliqués dans la réponse du détecteur ne peuvent pas facilement être évalués. Ils comprennent la distribution du champ électrique dans le cristal ainsi que les dimensions et les propriétés des couches mortes qui ont tendance à augmenter pour les détecteurs à longue durée d'utilisation (aged detector) [Knoll].

Dans cet objectif, cette thèse vient pour étudier soigneusement la réponse d'un détecteur en HPGe de type N à longue durée de fonctionnement, et d'en déduire la cause de tout déficit d'efficacité éventuel trouvé. A cet effet, des mesures expérimentales et des calculs de simulation Monte-Carlo en utilisant le code MCNPX ont été réalisés afin d'optimiser la géométrie du détecteur.

Le model optimisé (MCNPX) du détecteur sera par la suite validé en le confrontant à des conditions de mesure environnementale. Une fois le model MCNPX du détecteur est validé, on pourra ainsi simuler des expériences qui, autrement, seraient trop difficile, voire impossible à réaliser pour des raisons pratiques.

Le présent manuscrit est scindé en quatre chapitres. Dans le premier chapitre, nous allons présenter brièvement les bases théoriques nécessaires à la compréhension des mécanismes d'interaction des rayonnements, le principe de détection des rayonnements à base des détecteurs à semi-conducteurs. Nous décrivons également les principales sources de la

Introduction générale

radioactivité naturelle, et pour finir une description générale de la simulation en utilisant le code MCNPX.

Le deuxième chapitre illustre les approches utilisées dans l'optimisation du détecteur HPGe, ou les mesures expérimentales seront confrontées aux calculs de modélisation MCNPX. Le troisième chapitre consiste en l'optimisation de la spectrométrie gamma dans les conditions des mesures environnementales en tirant profit des mesures expérimentales et du pouvoir de calcul du code MCNPX. Le quatrième chapitre traite l'évaluation de l'impact de la radioactivité naturelle au voisinage de la mine de phosphate de Bir-El-Ater à Tébessa (Algérie).

Chapitre I
Théorie

I Théorie

Ce premier chapitre présente le principe de la spectroscopie gamma fine en utilisant un détecteur à semi-conducteur dans le cadre de l'analyse de la radioactivité environnementale. La plupart des notions abordées sont essentielles à la compréhension des chapitres suivants. La première section présente une introduction au principe de fonctionnement des détecteurs à semi-conducteur (germanium hyper pure) et les critères utilisés pour caractériser leur performance (efficacité, résolution, sensibilité). La deuxième section présente une brève description de la nature et l'origine de la radioactivité environnementale, et finalement la troisième et dernière section traite un aperçu théorique de la simulation par le code MCNPX

I.1 Spectrométrie gamma fine

Par mesure de la spectrométrie gamma fine, il faut entendre celle des activités spécifiques dont le domaine considéré se situe au-dessous de 10^{-2} Bq par cm^3 ou par gramme. Les domaines concernés par ce type de mesure n'ont cessé de croître ces dernières années. Citons, entre autres: la surveillance de l'environnement, la surveillance des installations nucléaires, l'étude des retombées radioactives, la surveillance de la chaîne alimentaire, l'étude de la radioactivité naturelle, l'étude de la migration des radionucléides dans les déchets. De nombreux laboratoires sont donc aujourd'hui confrontés au problème de la mesure des activités à bas niveau en spectrométrie gamma. Si la technique employée reste identique à celle utilisée pour les radioactivités plus élevées, elle demande, cependant, un matériel plus adapté et des conditions de mesure particulières afin de réduire le bruit de fond des installations de mesure.

I.2 Le rayonnement gamma

Le rayonnement γ , mis en évidence par le physicien français Paul Villard en 1900, se trouve à l'extrême du spectre électromagnétique, à des énergies au-delà de 10 keV. De même nature physique que le rayonnement X, il se distingue de ce dernier par son origine: un rayon γ est produit par une transition nucléaire tandis qu'un rayon X est émis lors d'une transition entre couches électroniques d'un atome.

Le tableau I.1 reprend de manière synthétique les différentes radiations nucléaires, terme générique généralement employé pour désigner toute forme d'énergie émise lors d'un processus nucléaire: les radiations électromagnétiques, les particules chargées (principalement

protons, électrons β^- , positrons β^+ , mésons, particules α et ions plus lourds) ou encore les particules non chargées (neutrons ou neutrinos).

Radiation	Masse au repos	Charge	Spin
α	4.00 uma	2e	0
β^- (négatron)	$5.48 \cdot 10^{-4}$ uma	-e	1/2
β^+ (positron)	$5.48 \cdot 10^{-4}$ uma	e	1/2
Proton	1.0073 uma	e	1/2
Neutron	1.0086 uma	0	1/2
γ (photon)	-	0	1
Neutrino	-	0	1/2

Tab I.1: Principaux types de radiations nucléaires.

Pour introduire cette thèse, nous suivrons la logique de la détection: du photon gamma jusqu'au spectre en énergie. Nous justifierons ensuite le choix de détecteurs à semi conducteur à base de germanium.

I.3 Principes de détection :

La détection des rayonnements est fondée sur les phénomènes d'interaction avec la matière; les détecteurs permettent de connaître la nature, le nombre, et l'énergie des particules émises par les sources radioactives. On peut distinguer principalement deux groupes de détecteurs d'après leurs principes de fonctionnement: ionisation de la matière (compteur Geiger-Muller, semi-conducteurs); excitation des orbitales électroniques (détecteurs scintillants type NaI (TI)).

I.4 Les détecteurs à semi-conducteurs

Un semi-conducteur est un matériau qui peut être soit isolant soit conducteur. On appelle détecteur semi-conducteur un détecteur composé d'un cristal unique qu'il soit élémentaire ou composé, ayant un band Gap de l'ordre de 1 à 5 eV. Le groupe des Z^4 dont font partie la silicone et le germanium sont de loin les semi-conducteurs purs les plus utilisés. Les détecteurs semi-conducteurs ont une grande résolution par rapport aux autres types de détecteurs. Fondamentalement, cet avantage en résolution peut être attribué à la faible quantité d'énergie nécessaire au déplacement des charges.

Les tableau suivante I.2 exprime la valeur de la résolution énergétique pour les différents types de détecteur en fonction des photons incidents.

<i>Energie (KeV)</i>	5.9	1.22	1.332
<i>Compteur proportionnel</i>	1.2	–	–
<i>Rayon X NaI</i>	3	12	–
<i>3 X 3 NaI</i>	–	12	60
<i>Si (Li)</i>	0.16	–	–
<i>Germanium Plan</i>	0.18	0.5	–
<i>Germanium coaxial</i>	–	0.8	1.8

Tab I.2: Résolution énergétique en fonction du type de détecteur

L'efficacité de détection est aussi un paramètre très important dans la détection et dans la quantification de la radioactivité. Cette dernière est proportionnelle au numéro atomique qui est égale à 14 pour le Silicium, 32 pour le Germanium, 48-52 pour CdTe, 80-53 pour HgI₂, 31-33 pour GaAs. Ceci explique pourquoi le Silicone est relégué essentiellement au domaine des faibles énergies (rayons X). Les détecteurs de type Germanium coaxiaux sont spécifiques en terme d'efficacité pour les pics d'énergie totale par rapport au détecteur de Scintillation (NaI de 3 * 3 pouces). Des détecteurs de plus de 100% d'efficacité ont été obtenus pour des cristaux de Germanium de 75 mm de diamètre. Cela représente à peu près 2Kg de Germanium pur.

I.4.1 Principe de fonctionnement des détecteurs à semi-conducteurs

Les photons interagissent avec le détecteur en cédant une partie ou la totalité de leur énergie. Ce dépôt d'énergie génère une quantité de charges électriques proportionnelles à l'énergie déposée. Trois processus d'interaction peuvent avoir lieu, dont l'occurrence de chacun dépend notamment de l'énergie du photon incident et du numéro atomique Z de l'élément rencontre. Ces interactions (photoélectrique, Compton, création de paires) sont détaillées dans [Knoll].

I.4.1.1 La production de charges

Chaque photon qui interagit avec la matière du détecteur génère un certain nombre de paires électron/trou, l'équivalent d'une paire ion/électron dans un gaz. Le nombre de paires créées, n, dépend de l'énergie du photon incident déposée, E_{abs}, et de l'énergie moyenne nécessaire pour créer une paire, ε, tel que :

$$n = \frac{E_{abs}}{\varepsilon} \quad (I-1)$$

Pour le germanium, $\varepsilon = 2,96 \text{ eV}$ à $77K$.

Cependant, ε est une énergie moyenne et possède une dispersion due aux mouvements des électrons de valence à la bande de conduction. Le nombre de paires générées est proportionnel à l'énergie déposée par le photon et sa dispersion suit en première approximation une statistique de Poisson, en racine carrée de n . L'utilisation de la statistique de Poisson sous entend l'hypothèse que les événements sont indépendants. Cependant, l'existence d'une paire électron/trou influe sur la probabilité qu'une autre paire soit créée. Un facteur déterminé expérimentalement, le facteur de Fano, permet de corriger cet effet. Finalement, la dispersion associée à la production des porteurs de charges, σ_p , est donnée par:

$$\sigma_p = \sqrt{F.E.\varepsilon} \quad (I-2)$$

Le schéma de la Figure I-1 représente la disposition des électrons au sein d'un semi conducteur. La bande de valence est pleine en nombre d'électrons et la bande de conduction est vide. L'écart d'énergie entre les deux bandes est un peu inférieur à 1 eV pour le Ge.

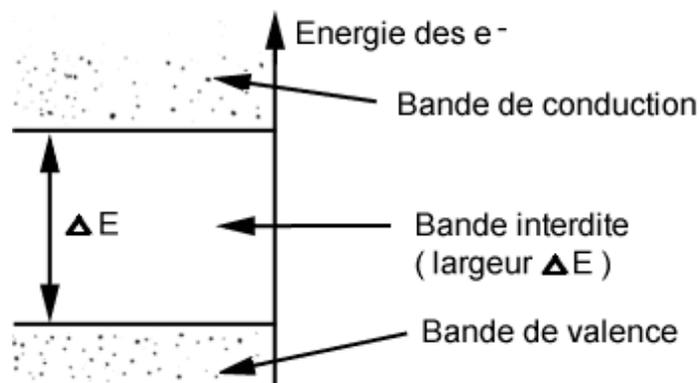


Figure I-1: schéma de niveaux dans un semi-conducteur

Or l'excitation thermique peut fournir l'énergie suffisante à un électron de la bande de valence pour passer à la bande de conduction.

De ce fait, il existe une population d'électrons dans la bande de conduction ce qui donne une conductivité au matériau. A température ambiante cela empêche toute mesure c'est pourquoi il faut refroidir le Ge à l'azote liquide (77 K).

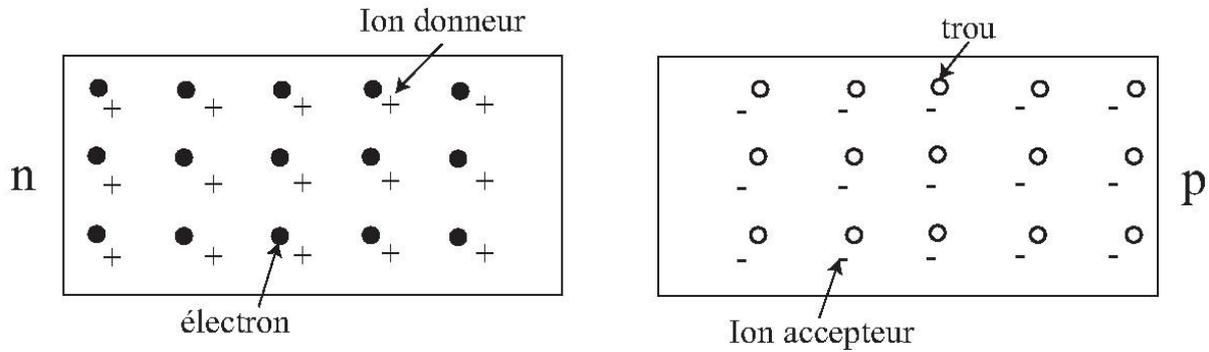


Figure I-2: réalisation d'une jonction P-N à partir de 2 semi-conducteurs P et N

Il y a deux types de semi-conducteurs. L'un dopé N et l'autre dopé P (Voir Figure I-2). Le dopage consiste à y mettre des impuretés créant des niveaux dans la bande interdite.

- Dopage N signifie qu'il y a un excès d'électrons (à cause d'impuretés donnant des électrons, par exemple du Phosphore).
- Dopage P signifie qu'il y a un excès de « trous » (à cause d'impuretés absorbant des électrons, par exemple du Lithium).

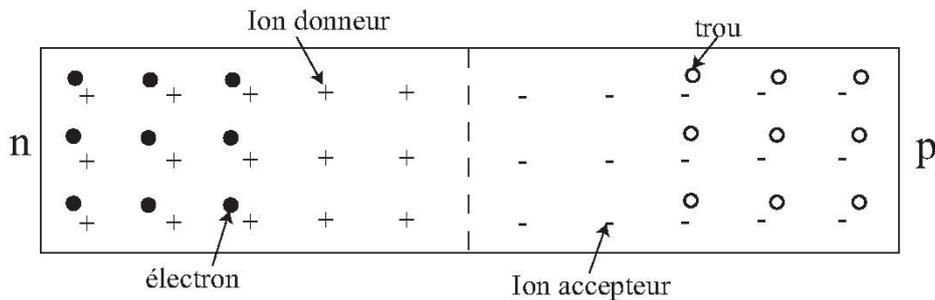


Figure I-3 : jonction P-N non polarisée

Pour créer une jonction, il faut accoler les deux semi conducteurs (N et P). Une fois l'accellement réalisé il y a une migration des électrons excédentaires de la zone N vers la zone P (recombinaison électron-trous) qui crée une zone sans porteurs de charge (ni électrons ni

trous) à l'interface (Voir Figure I.3). Cette zone est appelée zone déplétée. Mais la largeur de cette zone est faible car le champ électrique créé par cette migration de charges finit par contrebalancer la migration. Il faut donc élargir au maximum cette zone.

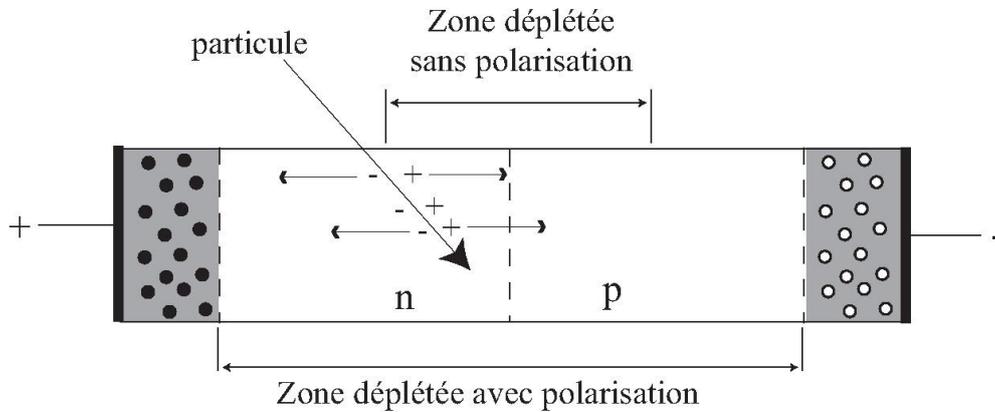


Figure I-4: jonction P-N polarisée

On polarise donc la jonction pour augmenter la zone d'épuisement qui est la zone active de détection. On effectue une polarisation inverse c'est-à-dire qu'on applique un champ électrique avec une forte différence de potentiel en sens inverse (Voir Figure I-4). Lorsqu'un photon gamma arrive sur la zone épuisée "déplétée" du détecteur, il interagit (par effet photoélectrique, effet Compton ou création de paires), en créant ainsi des paires (électrons, trous). sous l'effet d'un champ électrique dans le cristal, les porteurs de charge migrent vers les électrodes et sont alors collectés en produisant un courant.

1.4.1.2 Détecteur Germanium hyper pure

Un détecteur Germanium est un détecteur (de photons gammas et de particules chargées) à semi-conducteur. Selon la théorie des bandes, les électrons des couches externes d'un cristal de Germanium se répartissent en deux bandes continues: la bande de valence et la bande de conduction. Ces bandes sont séparées par un gap (bande d'énergie interdite) qui est de l'ordre de 0,75 eV pour le germanium (à 0°K).

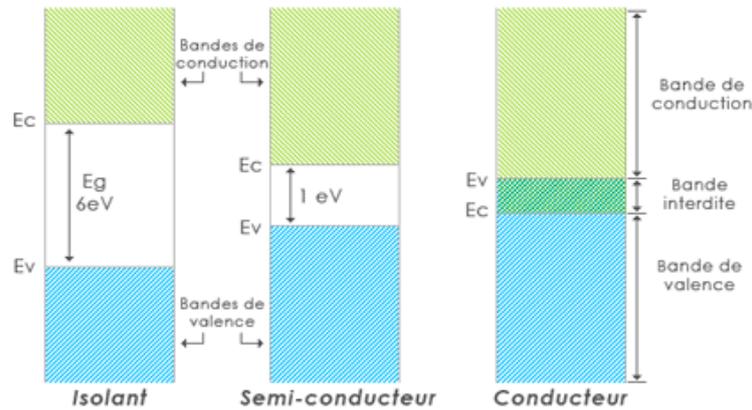


Figure I-5: Schéma de la théorie des bandes

La Figure I-5 schématise la théorie des bandes, on constate qu'un semi-conducteur se comporte comme un isolant à basse température et qu'une faible excitation permet à un électron de valence de se retrouver dans la bande de conduction.

À basse température, la bande de valence est pleine tandis que la bande de conduction est vide. Si la température augmente ou s'il y a photo-excitation, des électrons peuvent traverser le gap et se retrouver dans la bande de conduction, laissant derrière eux des trous. D'autres électrons peuvent prendre la place des trous et ainsi de suite, ce qui fait que chaque paire électron-trou est en mouvement et crée de fait un courant qui peut être mesuré. On s'affranchit du bruit thermique en refroidissant le détecteur avec de l'azote liquide (77K) pendant les mesures. Un photon pénétrant dans le détecteur va arracher (par effet photoélectrique) un électron de la bande de valence créant de fait une paire électron-trou (porteurs libres). Celle-ci est amplifiée par une différence de potentiel puis transformée en un pic dont la hauteur est proportionnelle à l'énergie du gamma par l'électronique associée.

Les principaux avantages de ce détecteur sont les suivants: sa chambre d'ionisation solide est de densité élevée (1022 atomes/cm³) et sa faible énergie moyenne de création de charges (~3eV contre 30 eV dans les scintillateurs) en font un bon détecteur de rayonnement gamma. Par ailleurs, le numéro atomique ainsi que la densité supérieure du germanium par rapport à celle du silicium en font un détecteur ayant une meilleure résolution en énergie.

On note n et p les parties négatives et positives d'un semi-conducteur; ces zones ont chacune leurs porteurs de charge associés: les électrons pour la zone n et les trous pour la zone p. La zone intermédiaire est qualifiée de zone d'épuisement ou de déplétion, la largeur de cette zone varie en fonction du champ électrique appliqué ϵ et de la concentration en impuretés N selon la formule suivante:

$$d = \frac{2\varepsilon V}{eN} \quad (\text{I-3})$$

C'est à dire que le champ doit être ajuste de telle sorte que la longueur de déplétion soit de l'ordre du volume actif du détecteur pour avoir une collecte de charges optimale; dans notre cas, $V = - 4500V$

Actuellement, il existe de nombreux types de détecteur en Germanium. Chacun type répond à une ou plusieurs besoins de l'utilisateur. Ainsi, certains offriront une efficacité ou une résolution optimale, d'autres ne seront véritablement efficaces que dans un intervalle d'énergie bien précis, etc. Cependant, on peut classer ces différents types de détecteurs selon trois grandes catégories:

- les détecteurs plans,
- les détecteurs coaxiaux,
- les détecteurs puits.

Ces trois catégorie de détecteurs se distinguent avant tout par leur géométrie qui leur fait procurer des caractéristiques distinctes. (Voire figure I-6)

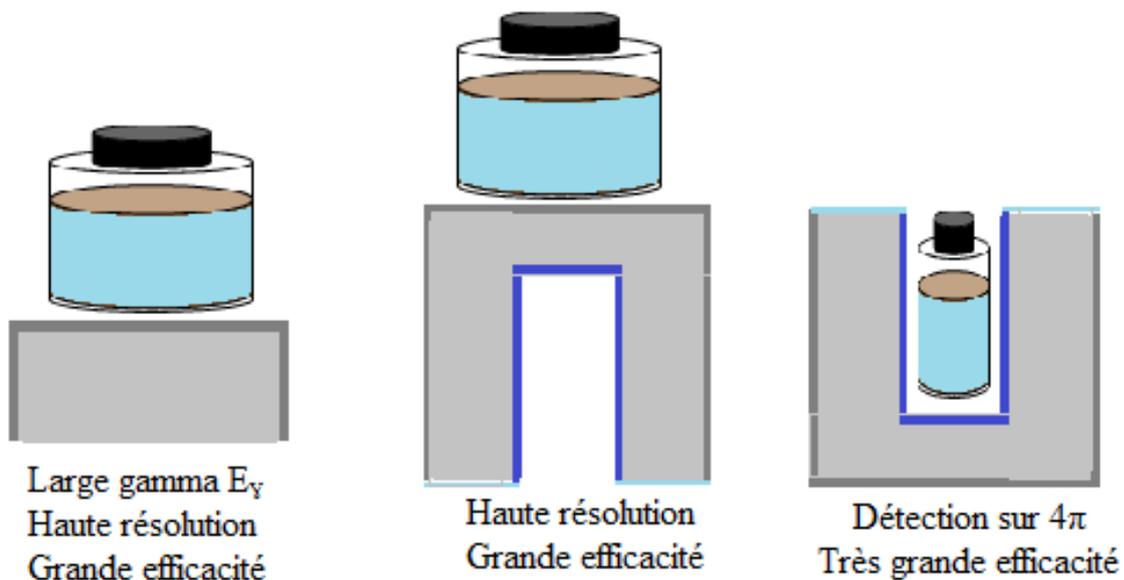


Figure I-6: Schéma de différentes configurations de détecteurs HPGe utilisées en spectrométrie γ . Détecteur planaire (gauche), coaxial (milieu) et détecteur puits (droite).

I.4.1.2.1 Détecteur planaire

Les détecteurs plans se présentent comme des parallélépipèdes rectangles de Germanium. Ces détecteurs sont utilisés pour des énergies comprises entre 1 keV et 1000 keV. Ces types de détecteurs restent donc adaptés aux faibles et moyennes énergies. Au-delà de 1000 keV, il faudra utiliser des détecteurs types coaxiaux ou puits. Le Germanium étant un corps lourd (son numéro atomique Z vaut 32), les détecteurs au Germanium possèdent une bonne efficacité pour les moyennes et hautes énergies. Par contre, en-dessous de 3 keV, l'efficacité et la forme des pics est nettement moins bonne. On peut cependant arriver à obtenir de bons résultats, même à de telles énergies, en modifiant légèrement la géométrie du détecteur (en particulier en disposant de manière adéquate les contacts N^+ et P^+ , ou en rajoutant des fenêtres au-dessus du détecteur dans une matière appropriée. On peut ainsi rajouter des fenêtres en polymère, en Béryllium ou en Aluminium pour les applications concernant des énergies supérieures à 30 keV. On peut aussi essayer de diminuer la capacité du détecteur pour éviter au maximum le phénomène de bruit et pour avoir ainsi une meilleure résolution. Ci-dessous est représenté figure I-7 un détecteur plan auquel on a ajouté une mince fenêtre en Béryllium (épaisseur de l'ordre de la dizaine de microns) et un tableau correspondant aux différents niveaux de résolution selon l'épaisseur du morceau de Germanium, son volume et l'épaisseur de la fenêtre de Béryllium.

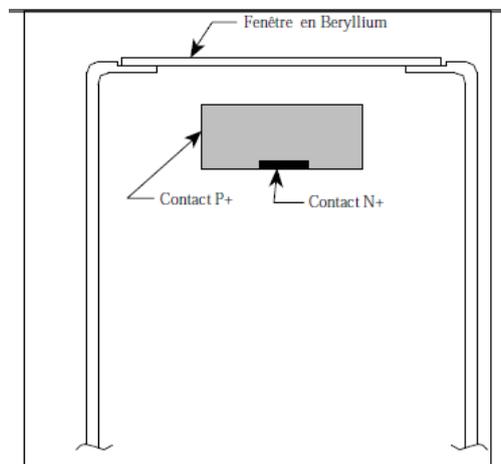


Figure I-7: détecteur plan au germanium

I.4.1.2.2 Détecteur coaxial

Comme l'indique le schéma présenté figure I-8, un détecteur au Germanium coaxial est un cylindre de Germanium, avec sur sa surface externe un contact de type p, et un contact de type n sur la surface d'un puits axial intérieur. Ces deux surfaces jouent évidemment le rôle d'électrodes et le courant créé est proportionnel à l'énergie incidente. Comme tout

détecteur au Germanium, les détecteurs coaxiaux doivent, lors de leur utilisation, être refroidis avec de l'azote liquide afin d'éviter les courants électriques dont la cause serait due à une simple agitation thermique. La bande d'énergie utilisable avec un tel détecteur va de 50 keV à plus de 10 MeV. Les principales qualités d'un tel détecteur sont sa large bande d'énergie, sa remarquable résolution et la qualité de la forme des pics. On peut, comme pour les générateurs plans, rajouter une mince fenêtre de Béryllium. Ceci a pour effet d'élargir la bande d'énergies utilisables à des énergies en-deça de 3 keV. On peut aussi remplacer la fenêtre de Béryllium par une fenêtre en Aluminium. (Voire Figure I-15)

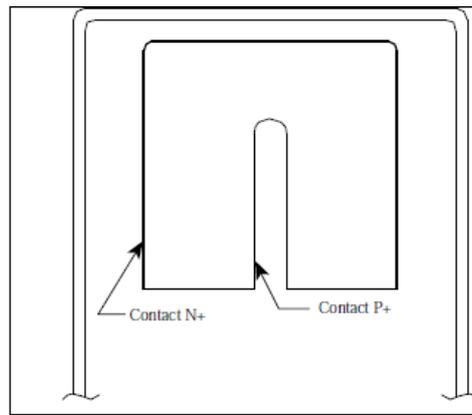


Figure I-8: détecteur coaxial au germanium

I.4.1.2.3 Détecteur puits

Pour la mesure de faibles activités, l'utilisation d'un détecteur volumineux est nécessaire afin d'augmenter l'efficacité de la détection tout en réduisant le temps d'acquisition. Cependant, pour des sources très actives, des détecteurs à faible volume sont préconisés. Par rapport aux gros volumes du détecteur, les détecteurs puits sont plus appropriés à la mesure de faibles quantités d'échantillons et aux basses énergies. Ils ont la même configuration que le coaxial sauf que le puits joue le rôle de réceptacle de l'échantillon. Ce dernier est positionné au centre du cristal, ce qui permet l'augmentation de l'efficacité de détection dans un angle proche les 4π . L'inconvénient majeur d'un détecteur puits est sa grande sensibilité aux effets de pic-somme. (Voire Figure I-9)

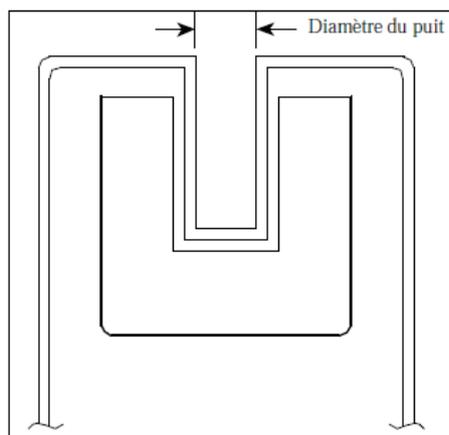


Figure I-9: détecteur puits au germanium

1.4.1.3 Sensibilité de la spectrométrie gamma

De nos jours, la spectrométrie gamma est parmi les techniques d'analyse multi-élémentaires les plus utilisées pour les mesures environnementales. Cependant, elle est concurrencée par d'autres techniques en termes de sensibilité, telle que les mesures par spectrométrie de masse ICP-MS (Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry), AMS (Accelerator Mass Spectrometry), par la méthode optique ICP-OES (Inductively Coupled Plasma Optical Emission Spectrometry) et les méthodes nucléaires (spectrométrie alpha, scintillation liquide, . . .).

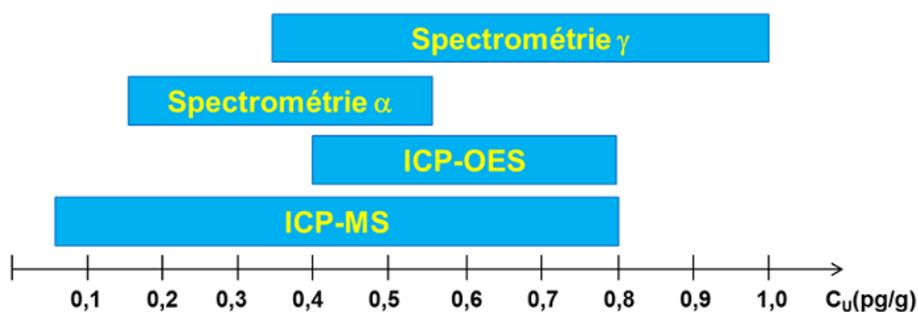


Figure I-10 : Schéma comparatif des sensibilités de mesure des différentes techniques pour l'uranium

Pour les mesures des faibles radioactivités, le choix d'une technique dépend essentiellement de la période du radioélément et de l'intensité d'émission pour les méthodes radiométriques. La figure I-10 montre une comparaison des sensibilités de mesures des différentes techniques pour l'uranium. Pour les radionucléides de longues périodes, la spectrométrie gamma est certainement la moins performante, néanmoins elle présente d'autres avantages du fait de sa nature non destructive et sa simplicité d'utilisation.

I.4.1.4 Détecteur Germanium hyper pure type-N

Le détecteur que nous utilisons comprend du Germanium de haute pureté (la concentration en impuretés ne s'élève guère au dessus de 10^{10} atomes/cm³) de géométrie coaxiale. De manière à établir une conductivité dans le germanium, on implante une impureté de type p (qui enrichie le germanium en trous) ainsi qu'une impureté de type n (qui enrichie le germanium en électrons). Cette impureté p et n sont respectivement du bore (3 électrons dans sa couche de valence) et du lithium (5 électrons dans sa bande de valence). Suivant la disposition de ces impuretés, le détecteur est dit de type n ou de type p. Par exemple, notre détecteur est de type n, c'est-à-dire que les impuretés de type n sont implantées sur la face intérieure tandis que les impuretés de type p sont situées sur sa face extérieure (à l'inverse des détecteurs de type p). Cela permet une meilleure résolution pour les hautes énergies car les électrons ont une plus grande mobilité que les trous. Il est aussi caractérisé par une meilleure détection pour les rayons X de faible énergie car le dépôt de dopant (bore) s'y fait sur une couche plus mince que l'on qualifie de couche morte. (Voire Figure I-11)

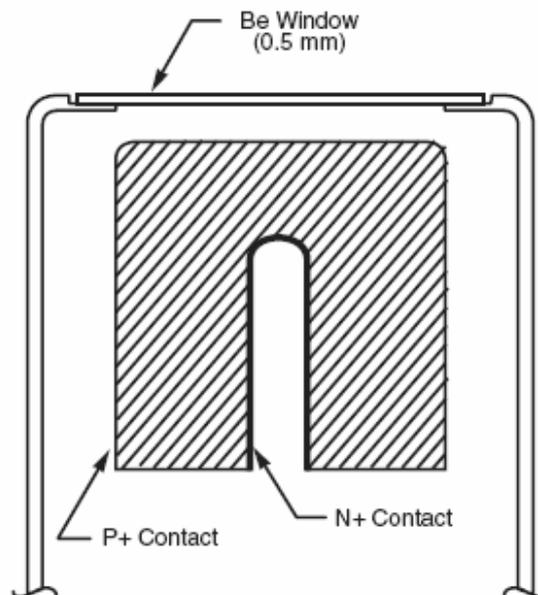


Figure I-11: Schéma simplifié d'un détecteur à semi-conducteur de type n, la partie hachurée représente le germanium. [KNOLL]

1.4.1.5 L'électronique associée de mise en forme

Les charges collectées sur les électrodes du détecteur après l'absorption d'un photon gamma, créent une impulsion de courant (Voir Figure I-12). Cette impulsion est transmise à un préamplificateur, placé très près du détecteur. Son rôle est de fournir une impulsion de tension dont l'amplitude sera proportionnelle à l'énergie déposée au niveau du détecteur. (Voir Figure I-19, Preamplifier).

L'amplificateur permet de mettre en forme le signal issu du préamplificateur ainsi que de réduire le bruit. L'amplitude du pic reste proportionnelle à l'énergie déposée dans le détecteur. (Voir Figure I-19: Amplifier).

L'ADC est un convertisseur analogique-numérique qui permet de convertir la valeur de crête de l'impulsion en une valeur numérique. Cette valeur est alors « codée » sur une échelle d'environ 8000 canaux. (Voir Figure I-19: ADC) Ces opérations se répètent pour chaque photon gamma absorbé. On obtient donc à la fin un spectre représentant le nombre de photons détectés par canal, c'est-à-dire en fonction de leur énergie.

L'analyse de l'amplitude de l'impulsion est effectuée par un analyseur multicanaux. Le Choix du nombre de canaux nécessaire pour l'acquisition dépend de la résolution du détecteur et de la plage d'énergie que l'on désire analyser. Pour un détecteur de germanium, la haute résolution en énergie requiert généralement un codage sur 13 bits (8192 canaux) ou 14 bits (16384 canaux) pour couvrir une plage de 0 à 8 MeV. Le refroidissement à température cryogénique est indispensable pour effectuer des mesures fines. Les détecteurs de type HPGe doivent être refroidis de manière à réduire l'agitation thermique des porteurs de charge. Dans le cas contraire, le courant de fuite induit un bruit qui influence la résolution en énergie du détecteur. Tout détecteur HPGe nécessite un apport d'azote liquide pour le maintenir à une température de 77 K soit à une température de -196°C. Il est aussi possible d'utiliser un refroidissement par des cryogénérateurs, ne nécessitant ni azote ni hélium liquide. Ils produisent du froid par compression et détente de gaz (Hélium).

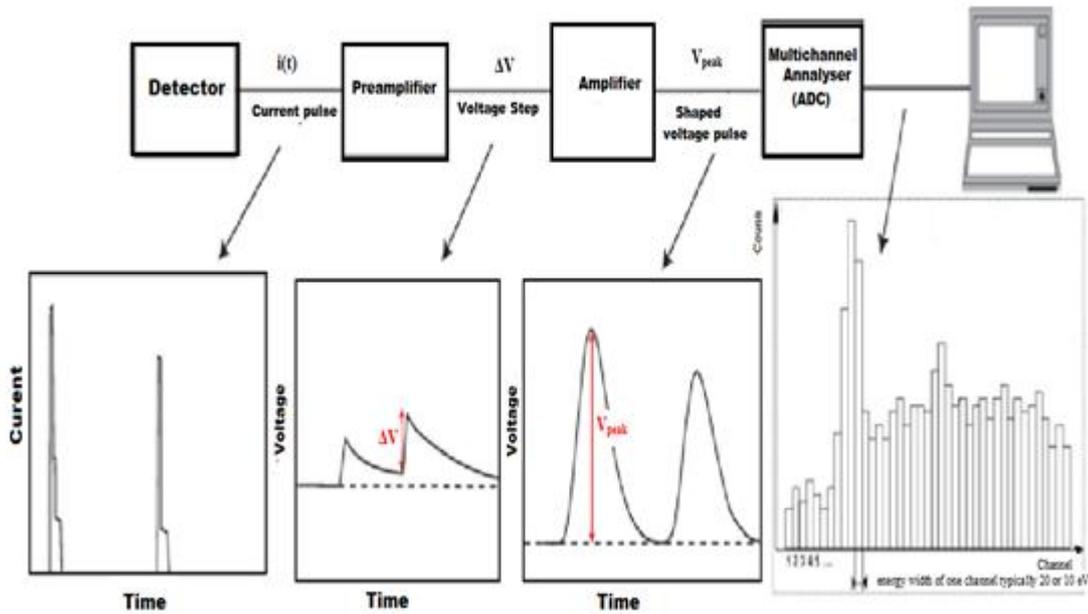


Figure I-12: schéma de l'électronique utilisée pour l'analyse du signal

I.4.2 Bilan sur l'instrumentation d'une chaîne de mesure

Une chaîne de détection fournit un spectre en énergie représentant le nombre de photons qui a interagi avec le détecteur en fonction d'un numéro de canal. La correspondance canal/énergie est réalisée par un étalonnage via une source étalon connue, généralement de l'euporium 152. Le principe est de vérifier que les énergies des pics de l'euporium se situent dans les canaux correspondant au gain de conversion fixe dans l'amplificateur.

I.4.3 Caractérisation des performances d'un spectromètre

La qualité d'un spectromètre gamma est liée à sa capacité d'une part à détecter des raies parfois peu intenses (critère d'efficacité) et d'autre part à les distinguer entre elles (critère de résolution). Cette section présente les différents critères généralement utilisés pour caractériser et comparer les performances des spectromètres. La performance de la chaîne de détection, en termes de discrimination en énergie, est directement liée à sa résolution.

I.4.3.1 Résolution en énergie

La résolution du détecteur s'exprime en fonction:

- des fluctuations statistiques dans la production de charges,
- des défauts de collecte de charge
- du bruit électronique.

Même avec des détecteurs de haute résolution, les pics d'absorption totale s'étalent sur plusieurs canaux, entre trois et dix canaux. Leur profil est symétrique et l'emplacement de l'axe de symétrie représente l'énergie du photon initial. La résolution en énergie d'un détecteur s'exprime par l'intermédiaire de la largeur à mi-hauteur des pics d'absorption, la FWHM. La figure I-13 illustre cette grandeur. La distribution de l'énergie des photons est théoriquement associée à une loi gaussienne de la forme :

$$f(x) = \frac{S}{\sigma\sqrt{2\pi}} e^{-\frac{(x-m)^2}{2\sigma^2}} \quad (\text{I-4})$$

Où :

x représente l'énergie, les centroïdes m correspondent aux énergies initiales des photons γ , l'étalement σ de chaque gaussienne dépend de l'énergie des photons et de la chaîne de mesure.

En première approximation, cet étalement suit une loi en racine de l'énergie. Les surfaces S sont reliées aux probabilités d'émissions des photons, à la quantité du radio élément émettant ces photons, au temps de mesure et au rendement de détection du système de mesure.

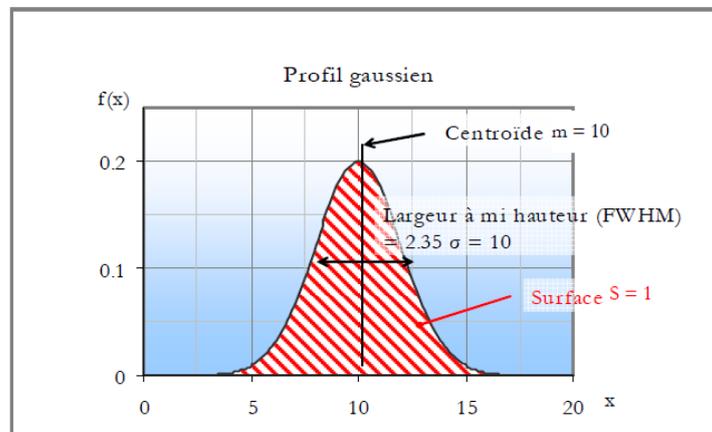


Figure I-13: Définition de la FWHM d'un pic d'absorption

Pour une distribution gaussienne, la FWHM vaut $2 (2.\ln)^{1/2} = 2,355$ fois l'écart-type σ .

Remarque : dans la pratique, des écarts par rapport à la loi gaussienne peuvent être constatés. Ces écarts viennent principalement de l'usure du cristal du détecteur ou lors de l'exposition à un flux neutronique intense qui endommage la structure cristalline du

germanium. Une solution est la vérification périodique du non déviation du profil des pics par rapport à une loi gaussienne.

1.4.3.2 Etalonnage en efficacité

Pour établir un étalonnage en efficacité, on doit utiliser des sources étalons qui sont de natures et de formes semblables à celles de l'échantillon à analyser. Elles sont référencées par une activité massique, volumique ou un taux d'émission photonique des principales raies γ . Une courbe de rendement en fonction de l'énergie est obtenue pour une géométrie et une matrice donnée. A partir de cette courbe, les efficacités de détection des différents pics du spectre de l'échantillon sont exploitées pour le calcul de l'activité. Cependant, lorsque l'échantillon est différent de l'étalon, il est nécessaire de corriger l'efficacité pour les effets de matrice et l'effet de pic-somme due aux transitions en cascade et aux empilements (cas des taux de comptage élevés). Pour une énergie E donnée, l'efficacité absolue se calcule en tenant compte des différentes corrections, selon la formule suivante:

$$N_{\text{net}}(E) = A \cdot t \cdot I_{\gamma} \cdot \varepsilon_E \cdot \underbrace{f_d \cdot f_{C-1,E} \cdot f_{S,E} \cdot f_{\text{att},E}}_{C_i} \quad (\text{I-5})$$

On déduit l'efficacité d'absorption totale telle que

$$\varepsilon_E = \frac{N_{\text{net}}(E)}{A \cdot t \cdot I_{\gamma} \cdot C_i} \quad (\text{I-6})$$

Où :

$N_{\text{net}}(E)$: taux de comptage net du pic d'énergie E coups⁻¹;

A : activité du radionucléide [Bq];

ε_E : efficacité du comptage pour l'énergie E;

t : temps d'acquisition [s];

I_{γ} : intensité d'émission de la raie d'énergie E;

C_i : produit de différents facteurs correctifs inhérents aux conditions de mesure

f_d : correction de la décroissance radioactive (indépendante de E)

$f_{C-1,E}$: correction des pertes par coïncidences pour l'énergie E

$f_{S,E}$: correction de sommation pour l'énergie E

$f_{\text{att},E}$: correction de l'auto-absorption à l'énergie E

I.4.3.2.1 Correction des coïncidences des pics sommes

L'effet de coïncidence se produit généralement pour les radio-isotopes qui émettent deux ou plusieurs photons dans le même ordre de délai de résolution du système de détection $\sim 10^{-7}$ secondes (Knoll., 2000). En effet, si deux rayons gamma arrivent au niveau du détecteur dans le délai de résolution de l'amplificateur, alors ils sont entièrement absorbés dans le volume actif du détecteur et vont contribuer à la création d'un pic plein énergie résultant de leurs sommes en énergie.

La mesure de coïncidences dépend de la probabilité que deux rayons gamma émis simultanément sont détectés également simultanément [Gilmore (2008)]. Par conséquent, ces effets sont indépendants de la fréquence de la source de comptage et dépendent uniquement des probabilités d'émission et de l'efficacité de détection des rayons gamma en cascade. Les probabilités d'émission des différents rayons gamma sont caractéristiques du radionucléide à l'étude. Les rendements de détection sont dépendants de la valeur de l'angle solide entre la source et la face avant du détecteur. Comme cela est représenté sur la figure I-14, s'il existe deux sources S1 et S2 d'intensité égale à S1 placé sur le capot du détecteur, et S2 placé à une certaine distance du capot du détecteur, étant donné que l'angle solide sous-tendu par S1 est supérieur à S2, la probabilité que deux rayons gamma atteignent le détecteur simultanément seront plus importante dans le premier cas que dans le deuxième cas.

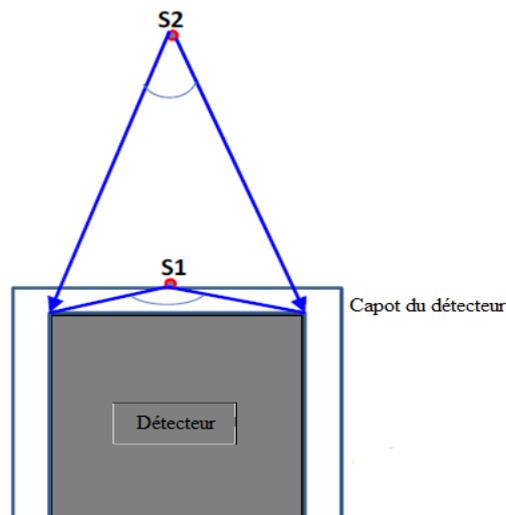


Figure I-14: Effet de l'angle solide sur les effets de coïncidence des pics sommes.

Les corrections des coïncidences des pics sommes peuvent être évité par le comptage de l'échantillon loin du détecteur, de sorte que la probabilité que deux rayons gamma atteignant le détecteur en même temps devient négligeable. Cela est tout à fait impraticable pour les échantillons avec une faible activité comme dans le cas des échantillons environnementaux, où les échantillons doivent être comptés aussi près que possible du détecteur. Une autre façon d'éviter les corrections de coïncidence des pics sommes en utilisant un standard contenant le même radionucléide que celui qui se trouve dans l'échantillon à analyser. Cela peut être pratique pour un laboratoire de routine où quelques radionucléides sont vérifiés en utilisant un ensemble de standards correspondant à ces nucléides. Mais dans le cas, ou une variété d'échantillons doivent être analysés tels que l'environnement, les produits de fission, des échantillons issues de l'activation neutronique, etc., il est quasiment impossible d'avoir des standards qui ont les mêmes radionucléides que l'échantillon à analyser; dans ces cas pareils il est préférable d'appliquer les corrections des coïncidences des pics sommes.

Une méthode générale pour le calcul des facteurs de correction de coïncidence a d'abord été démontrée par Andreev et al. (1972) et a été développée et appliquée en pratique par d'autres auteurs [Andreev et al. (1973), Debertain et Schotzig (1979), Mccallum et Coote (1975), Sinkko et Aaltonen (1985), Dziri (2013)]. Cette méthode analytique nécessite l'utilisation du pic plein énergie et de l'efficacité totale ainsi que d'autres informations portant sur les paramètres de désintégration nucléaires tels que le mode de décroissance du nucléide père, les énergies des transitions gamma, les probabilités d'émission de rayons gamma, les probabilités de capture de la couche K, l'énergie moyenne des rayons X issues de la couche K, le rendement de la fluorescence..Etc. Tous ces facteurs sont utilisés pour calculer la probabilité d'émission simultanée de deux ou plusieurs rayons gamma en cascade.

Dans cette méthode la correction des coïncidences (FCCS) est en général donnée par:

$$F_{CSC} = \frac{1}{1 - \sum_{i=1}^{i=n} p_i \epsilon_{\gamma_i}} \quad (I-7)$$

Où, “ n ” est le nombre total des rayons gamma en coïncidence avec le rayon gamma d'intérêt, p_i représente la probabilité d'une émission simultanée de i-ième gamma y compris le rayonnement gamma d'intérêt, ϵ_{γ_i} représente le rendement total du i-ième rayon gamma.

Pour calculer le facteur de correction de coïncidence des pics sommes (FCCS) par cette méthode, la probabilité p_i est calculée en tenant compte des paramètres appropriés

obtenus à partir des schémas de désintégration publiés des radionucléides [Dias et al. (2002)]. Cette méthode peut être expliquée par l'exemple suivant:

Considérons un nucléide X qui se transforme en Y par la désintégration bêta comme le montre la figure I-15, avec deux états excités qui se désexcite par l'émission de trois rayons gamma γ_1 ($2 \rightarrow 1$), γ_2 ($1 \rightarrow 0$) et γ_3 ($2 \rightarrow 0$), avec leurs probabilités respectives P1, P2 et P3.

En absence des coïncidences, le taux de comptage est donnée par:

$$N_{10} = A p_1 \varepsilon_1 \quad (\text{I-8})$$

Où A est le taux désintégration de la source, ε est le rendement en énergie, et P est la probabilité d'émission.

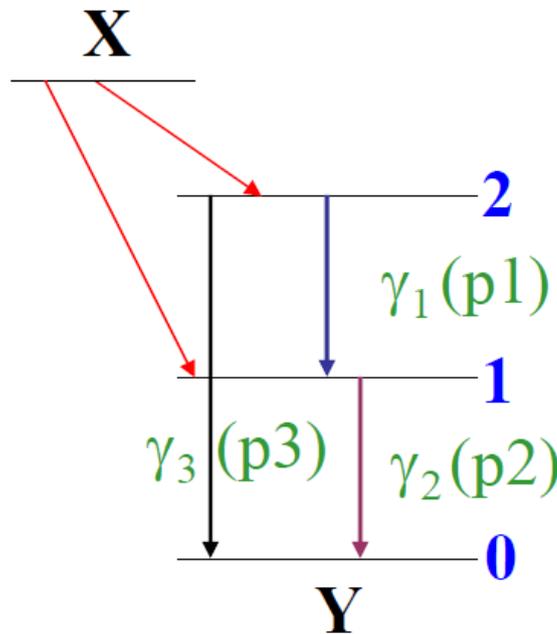


Figure I-15 Un schéma typique de désintégration d'un nucléide X qui se décroît à Y.

Mais, comme on le voit sur la figure I-15, dans ce cas, γ_1 et γ_2 sont en coïncidence les uns avec les autres. En présence des coïncidences, le taux de comptage observé N1 sera inférieur N10:

$$N_1 = A p_1 \varepsilon_1 - A p_1 \varepsilon_1 \varepsilon_{t2} \quad (\text{I-9})$$

Où le dernier élément indique la probabilité que deux rayons gamma γ_1 et γ_2 atteigne le détecteur simultanément. ε_{t2} est l'efficacité totale de la détection de γ_2 .

Ainsi, Le facteur de correction de coïncidence pour le gamma 1 est donnée par:

$$C_1 = \frac{N_{10}}{N_1} = \frac{1}{1 - \varepsilon_{t2}} \quad (\text{I-10})$$

Où, ε_{t2} est l'efficacité totale.

De même, pour le gamma 2, le taux de comptage observé N_2 est donnée par:

$$N_2 = A P_2 \varepsilon_2 - A P_1 \varepsilon_2 \varepsilon_{t1} \quad (\text{I-11})$$

Le facteur de correction de coïncidence pour le gamma 2 :

$$C_2 = \frac{N_{20}}{N_2} = \frac{1}{1 - \left(\frac{P_1}{P_2} \right) \varepsilon_{t1}} \quad (\text{I-12})$$

Pour gamma 3, le taux de comptage observé N_3 est augmentée en raison de la sommation de γ_1 avec γ_2 est donnée par:

$$N_3 = A P_3 \varepsilon_3 - A P_1 \varepsilon_1 \varepsilon_{t2} \quad (\text{I-13})$$

Ici, le deuxième terme correspond à la probabilité de deux rayons gamma γ_1 et γ_2 qui déposent simultanément leur énergie dans le détecteur. Par conséquent, le facteur de correction de coïncidence pour γ_3 est donnée par:

$$C_3 = \frac{N_{30}}{N_3} = \frac{1}{1 + \left(\frac{P_1 \varepsilon_1 \varepsilon_2}{P_3 \varepsilon_3} \right)} \quad (\text{I-14})$$

Ceci est le schéma le plus simple de désintégration, où seulement deux rayons gamma en coïncidence entre eux ont été considérés. Pratiquement les schémas de désintégration peuvent être très complexes, où un grand nombre de paramètres doivent être pris en compte.

La méthode analytique a également besoin du calcul du pic plein d'énergie et de l'efficacité totale sur toute la gamme d'énergie. Les efficacités (FEP) peuvent être obtenus en utilisant un ensemble de standards de rayons gamma mono énergétiques ou en utilisant un

standard de rayons gamma comportant plusieurs pics qui ne sont pas émis en cascade, comme par exemple le ^{125}Sb . En effet, la calibration de l'efficacité totale sur toute la gamme d'énergie entière nécessite de nombreux étalons mono énergétiques, ce qui rend le processus de calibration très lourd et fastidieux, car la disponibilité des sources mono énergétiques sur une large gamme d'énergie est aussi une contrainte. En outre, ces sources mono énergétiques sont chères, et souvent ils ont une courte demi-vie, ce qui oblige leur remplacement périodique. L'autre méthode décrite dans la littérature pour obtenir l'efficacité totale est de simuler les spectres de rayons gamma à chaque énergie et pour chaque géométrie en utilisant les méthodes de Monte Carlo [Haase (liste 1993a), Haase (1993b), Wang (2002), Decombaz et al. (1992), Sima et Arnold (2000)]. Toutefois, cette méthode nécessite la connaissance précise des composants internes et externes de la géométrie du détecteur, tels que le rayon du cristal, longueur du cristal, l'épaisseur de la couche morte, le rayon interne du trou, l'épaisseur du capot en Al capuchon et sa distance à la surface du cristal. Cette méthode peut être utilisée que si les efficacités calculées à partir de la méthode de Monte Carlo concordent parfaitement avec les efficacités expérimentales.

I.4.3.2.2 Correction de l'auto-absorption dans l'échantillon

Parmi les corrections appliquées dans la spectrométrie gamma dans le cas des échantillons volumineux, la correction de l'atténuation des photons dans le matériau de l'échantillon à analyser en lui-même est très importante; elle est connue sous le nom de l'auto-atténuation ou de correction d'absorption (Boshkova, 2001). Ainsi, pour une configuration géométrique donnée, le facteur de correction est exprimé par le rapport de l'efficacité de la norme (étalon) sur celle de l'échantillon:

$$F_{\text{Auto-absorption}}(E) = \frac{\varepsilon(E, \text{Standard})}{\varepsilon(E, \text{sample})} \quad (\text{I-15})$$

Dans les applications pratiques, les standards et des échantillons pourraient être tout à fait différent en termes de composition chimique. Les échantillons environnementaux peuvent considérablement différer par leur composition chimique, voire même leur matrices (telles que les échantillons de sol et de sédiments), ainsi que leur densité; allant de très faibles densités jusqu'aux valeurs très élevées pouvant atteindre $2,0 \text{ g/cm}^3$. La correction de l'auto-absorption peut être déterminée expérimentalement ou en utilisant les techniques de calcul de Monte Carlo, ou en utilisant des méthodes analytiques.

La procédure pour la détermination du facteur d'auto-absorption comprend tout d'abord le calcul du coefficient de densité que l'on obtient pour diverses densités ρ et énergies de photons E . Ensuite, les données recueillies pour chaque énergie des photons sont ajustés à une fonction appropriée $F_s(\rho)$ ou $F_s(E, \rho)$ qui sont écrits comme suit;

$$F_s(\rho) = a \exp^{(-b\rho)} \quad (\text{I-16})$$

Où

$$F_s(E, \rho) = a(E) \exp^{[-b(E)\rho]} \quad (\text{I-17})$$

Où a et b sont des paramètres ajustables.

Pour les énergies gamma faibles (inférieure à environ 100 keV), ces formules ne sont applicables que pour les matériaux dont la composition est similaire en raison de la relation entre le coefficient d'atténuation de masse et le numéro atomique (Jodlowski, 2006). Les photons gamma sont connus pour être atténué par le matériau selon la relation suivante;

$$I = I_o \cdot e^{(\mu_m \cdot x)} \quad (\text{I-18})$$

&

$$I = I_o \cdot e^{(\mu_m \cdot x \cdot \rho)} \quad (\text{I-19})$$

Où:

I_o : les photons, avec une énergie E , et une intensité sans atténuation

I : les photons, avec une énergie E , et une intensité après l'atténuation.

μ : le coefficient d'atténuation linéaire, cm^{-1} ,

μ_m : le coefficient d'atténuation massique, $\mu_m = \mu / \rho$, cm^{-2}/g .

x : l'épaisseur de l'échantillon (cm)

Jodlowski (2006) a énuméré les différentes méthodes de correction auto-absorption en spectrométrie gamma d'échantillons environnementaux ce qui lui a permis de conclure ce qui suit (Jodlowski, 2006):

- La méthode expérimentale est longue et peu pratique. Elle exige que les courbes soient ajustées sur la base d'un petit nombre de données expérimentaux, ce qui donne lieu à une incertitude relativement élevée.
- Les techniques de Monte Carlo sont pas largement adoptées dans les conditions de laboratoire, car ils nécessitent des compétences et de l'expérience dans les simulations informatiques considérables, ainsi que une connaissance détaillée les dimensions géométriques et compositions chimique des échantillons et containers utilisés.
- La méthode analytique qui est largement appliquée se traduit par une description simplifiée de l'auto-absorption dans des échantillons cylindriques en intégrant un photon d'une énergie E_i spécifique sur l'ensemble des couches qui composent l'échantillon à analyser. Ainsi, la correction de l'auto-absorption, pour l'échantillon en se référant à l'air (≈ 0 matrice) est donnée par l'équation suivante:

$$F_{\text{auto-absorption}}^{\text{echant/aire}} = \frac{\mu \cdot x}{1 - e^{-\mu x}} \quad (\text{I-20})$$

- La méthode de transmission développée par Cuthall et al (1983), qui nécessite la connaissance des coefficients d'atténuation du standard utilisé, ainsi que l'échantillon à analyser, au préalable avant d'appliquer des techniques de calcul $F_{\text{Auto-absorption}}$. Le principe consiste à positionné une source radioactive ponctuelle au-dessus de l'échantillon situé sur le détecteur, et où le nombre de coups dans le pic d'énergie totale est mesurée. Le facteur de correction de auto-absorption $F_{\text{Auto absorption}}$ de l'échantillon par rapport au standard est donnée par:

$$F_{\text{auto-absorption}} = \frac{\ln(I_c/I_s)}{1 - (I_c/I_s)} \quad (\text{I-21})$$

Où;

I_c , I_s sont les résultats de la transmission obtenus expérimentalement (taux de comptage du détecteur) pour le standard et l'échantillon, respectivement [Cuthall et al. 1983].

1.4.3.3 Identification et quantification des radionucléides

L'exploitation des spectres gamma nécessite deux étapes pour caractériser les radionucléides présents dans le spectre: L'extraction des informations utiles : les énergies et les surfaces nettes (c'est-à-dire après déduction du bruit de fond) des pics d'absorption totale. Cette étape permet aussi d'identifier les radionucléides par comparaison des énergies trouvées aux énergies d'émissions tabulées dans des bases de données nucléaires, la détermination du rendement de détection de la mesure. Il est défini comme le rapport du nombre de photons présents dans le pic d'absorption totale sur le nombre de photons de même énergie émis par le radionucléide.

L'activité (ou la masse) de chaque radionucléide identifié est calculée par :

$$A(E_i) = \frac{S(E_i)}{I(E_i) \cdot \varepsilon(E_i) \cdot t} \quad (\text{I-22})$$

Où

$$m(E_i) = \frac{A(E_i)}{a_m} \quad (\text{I-23})$$

Où :

E_i représente la ou les énergies des photons émis par le radionucléide considéré (en keV),

$A(E_i)$ est l'activité du radionucléide à l'énergie E_i (en Becquerel),

$S(E_i)$ est la surface nette du pic d'absorption totale à l'énergie E_i (en nombre de coups),

$I(E_i)$ est le rapport d'embranchement du radionucléide à l'énergie E_i ,

$\varepsilon(E_i)$ est le rendement de détection de la mesure à l'énergie E_i ,

t est le temps de mesure (en secondes),

$m(E_i)$ est la masse du radionucléide à l'énergie E_i (en grammes), a_m l'activité massique spécifique du radionucléide (en Bq/g).

1.4.3.4 Seuil et limite de détection

Lors de la mesure d'un échantillon de très faible activité, le résultat peut être très proche de celui obtenu lors de la détermination du bruit de fond (signal détecté en l'absence d'un radionucléide recherché). Compte tenu du caractère aléatoire du processus de désintégration radioactive, un résultat légèrement supérieur au bruit de fond mesuré ne donne pas l'assurance

de la présence d'un radionuclide, pas plus d'ailleurs qu'un résultat légèrement inférieur à ce même bruit de fond ne garantit l'absence de ce radioélément.

Les notions de limite de détection ainsi que de seuil de détection caractérisant la technique de mesure sont définies par la norme NF ISO 11929. Cette norme évalue les possibilités de la détection d'une grandeur que l'on souhaite mesurer (appelée mesurande), ainsi que l'effet physique quantifié. Pour cela, elle spécifie que « le seuil de détection permet de décider si l'effet physique quantifié par le mesurande est présent ou non » et que les extrémités de l'intervalle de confiance comprennent, si l'effet physique est reconnu comme présent, un intervalle de confiance comprenant la valeur vraie du mesurande avec une probabilité spécifiée »

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

La limite(LD) se trouve entre les événements détectables non quantifiables et quantifiables, tandis que le seuil de détection (SD) est limité entre les événements non détectable et détectable mais non contifiable.

La figure I-6 schématise de manière simplifiée ces définitions. Ces notions formulées par Curie sont encore employées aujourd'hui par les laboratoires.

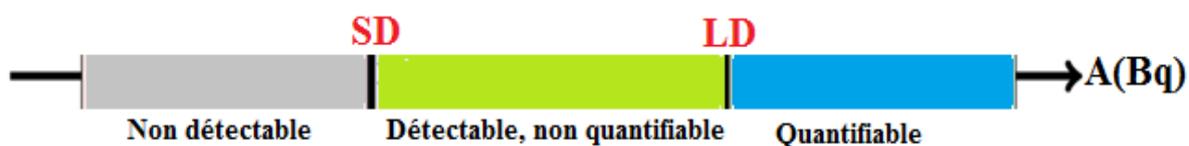


Figure I-16 : Schéma représentant le seuil de décision SD et la limite de détection LD.

I.5 Les émissions gamma naturelles

La radioactivité se trouve partout dans l'écorce terrestre avec des quantités différentes. Toutefois des différences importantes apparaissent au niveau des isotopes radioactifs naturels détectés et de leurs concentrations selon les caractéristiques géologiques et biologiques de la région. L'existence d'installations en fonctionnement ou à l'arrêt, qui produisent ou détiennent des matières radioactives d'origine naturelle, ajoutées aux différents gisements et minerais riches en uranium et en phosphate, peut également localement modifier les niveaux d'activité de ces isotopes ou éléments naturels de telle sorte que l'environnement est surexposé par rapport à la situation originelle: il s'agit alors de la radioactivité naturelle technologiquement renforcée qui engage des doses collectives et individuelles comparables aux doses de radioactivité artificielle émises par les pratiques nucléaires non accidentelles. La totalité des radioactivités naturelles technologiquement renforcées provient des industries extractives, du dé-confinement des minerais et des ressources géologiques et des étapes successives de séparation, d'épuration, de transformation, et d'utilisation des sous-produits et dans certains cas de produits. La radioactivité naturelle technologiquement renforcée justifie les préoccupations sur l'impact radiologique de ces installations sur l'environnement avoisinant qui justifient des mesures permanentes sur les niveaux d'activité des radionucléides dans l'environnement ainsi que l'évaluation de leurs impacts radiologiques sur la population humaine.

I.5.1 Traitement des chaînes naturelles

L'utilisation d'une instrumentation dédiée à mesures basse niveau ainsi que la prise en compte des corrections d'auto atténuation permet d'optimiser nos mesures. Toutefois, malgré de très bonnes conditions de mesure, tous les radionucléides ne sont pas décelables en raison de l'absence d'émission gamma ou d'intensités d'émission beaucoup trop faibles. Pour des mesures d'échantillon provenant de l'environnement, il existe trois familles radioactives naturelles qui sont celles de ^{238}U , ^{235}U et ^{232}Th , dont les caractéristiques sont détaillées ci-dessous. Le potassium 40, dont l'activité est souvent évaluée, est un isotope naturel dont l'abondance isotopique est de 0,0117 % du potassium naturel. Il se désintègre pour 89,14 % par émission bêta moins vers le niveau fondamental de ^{40}Ca et par capture électronique vers ^{40}Ar , pour 10,66 % vers le niveau du 1460 keV et pour 0,20 % vers le niveau fondamental.

1.5.1.1 Famille de l'uranium 238

La famille de ^{238}U , présentée sur la figure I-17, contient 14 radionucléides et constitue la plus importante des trois familles. Parmi ces radionucléides, 6 ne sont pas décelables en raison de l'absence d'émissions gamma ou à cause de leurs intensités d'émission très faibles. Cette famille contient 3 groupes, le groupe de l'uranium, le groupe de ^{222}Rn et le groupe de ^{210}Pb . Compte tenu des propriétés chimiques différentes entre les thoriums et les uraniums, il est possible de rencontrer une rupture de chaîne au niveau des thoriums. Toutefois, les périodes courtes de ^{234}Th (24,1 jours) et de $^{234\text{Pa}}$ (1,2 min) permettent un retour rapide à l'équilibre avec ^{238}U , mais ceci n'est pas le cas de ^{234}U ni de ^{230}Th qui ont des périodes très longues. Il est donc possible d'observer dans certain cas des activités différentes entre le précurseur, ^{238}U et ses descendants ^{234}U , ^{230}Th , ^{226}Ra , ^{210}Pb . Le ^{222}Rn , descendant du ^{226}Ra est un gaz qui diffuse lentement au travers des échantillons, et de ce fait provoque un déséquilibre radioactif avec ses descendants. Le choix d'un conteneur étanche et de géométrie bien définie, permet après environ un mois de stockage dans un tel conteneur, de rétablir cet équilibre entre ^{226}Ra et ses descendants jusqu'au groupe du ^{210}Pb . Les descendants de ^{222}Rn , ^{214}Pb et ^{214}Bi , présentent beaucoup d'émissions gamma qui permet de déterminer l'activité du ^{222}Rn et de vérifier l'équilibre radioactif retrouvé entre ^{226}Ra et les descendants du groupe de ^{222}Rn . Le ^{210}Pb est mesurable par spectrométrie gamma sur sa raie de 46,54 keV. Les autres radionucléides de la chaîne ont en général suffisamment de raies gamma pour pouvoir être déterminés correctement.

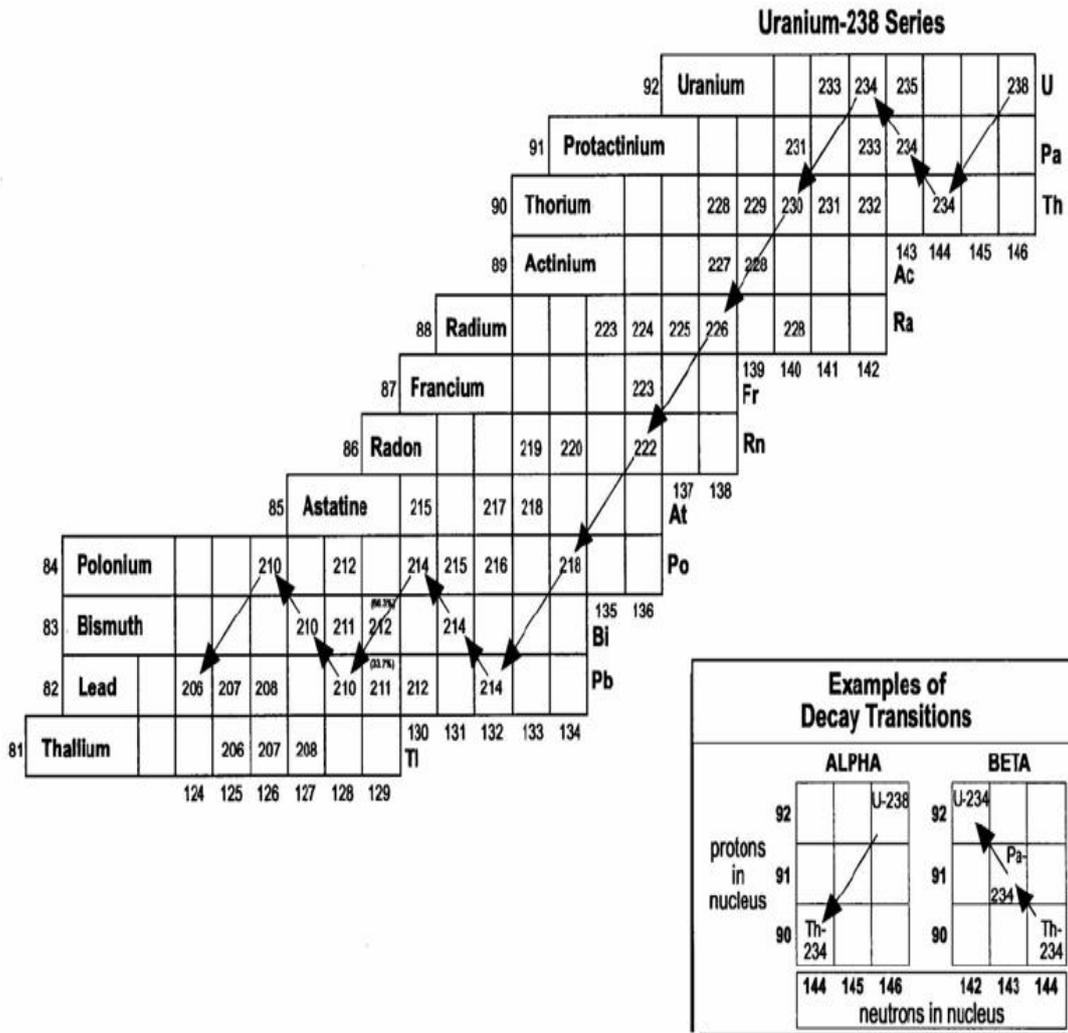


Figure I-17 : Famille de l'uranium 238

1.5.1.2 Famille de l'uranium 235

La famille de ^{235}U est présentée sur la figure I-18 et comporte 13 descendants. Tout comme la famille de ^{238}U , les uraniums et les thoriums présentant des propriétés chimiques différentes, on peut aussi avoir une rupture de chaîne entre ^{235}U et ^{231}Th au cours du temps, due à des lessivages successifs. Par conséquent, il est possible de ne pas trouver la même activité entre ^{235}U et ^{231}Pa et ses descendants. Compte tenu de la faible période de ^{231}Th (1,06 j), celui-ci revient rapidement à l'équilibre radioactif avec son précurseur ^{235}U . Cette chaîne radioactive peut être, à l'échelle géologique, regroupée en un seul groupe, le groupe de ^{231}Pa . Le ^{235}U est quant à lui rattaché au groupe des uraniums en raison de ses propriétés chimiques. La chaîne de ^{235}U peut donc être représentée de la façon suivante :

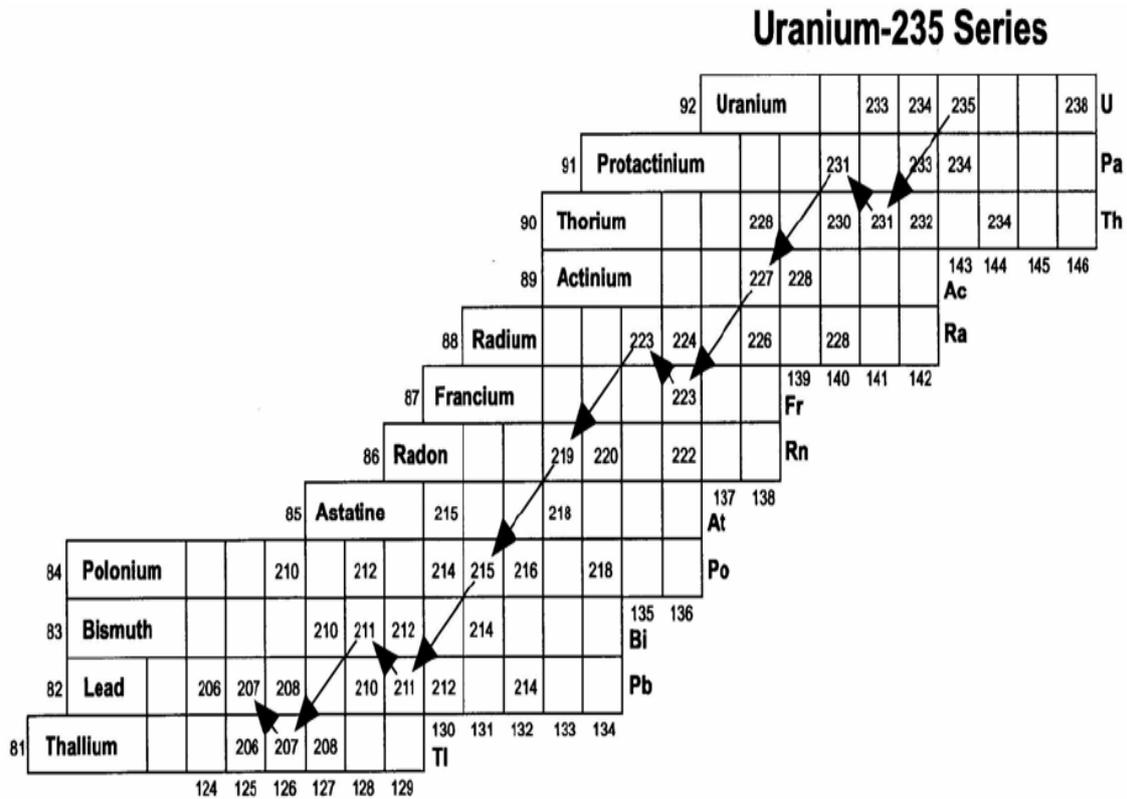


Figure I-18: Famille de l'uranium 235

Les radionucléides suivants : ^{227}Ac , ^{231}Th , ^{231}Pa , ^{223}Fr , ^{211}Bi , ^{211}Po et ^{207}Tl sont difficilement quantifiables par spectrométrie gamma, car ils possèdent des raies gamma avec des intensités d'émissions très faibles ou bien interférant avec celles d'autres radionucléides de mêmes énergies mais plus intenses ce qui implique une grande incertitude sur la capacité à déterminer leur activité. Il est alors possible que l'on ne puisse donner qu'une limite de détection pour ces radionucléides, les autres devant pouvoir être quantifiés plus précisément.

1.5.1.3 Famille du thorium 232

La famille de ^{232}Th contient 11 radionucléides; parmi ceux-ci, ^{212}Po n'est pas mesurable par spectrométrie gamma, car il n'est pas émetteur gamma (voir figure I-19).

La chaîne radioactive naturelle de ^{232}Th ne présente qu'un seul groupe. Même si leurs propriétés chimiques sont différentes, l'ensemble des radionucléides se met rapidement à l'équilibre, compte tenu des courtes périodes des descendants, comparativement aux échelles géologiques. De ce fait, cette chaîne est la plus simple à traiter, même si certains de ces

radionucléides ne sont pas faciles à déterminer par spectrométrie gamma. Ces difficultés sont dues aux faibles intensités d'émission gamma. C'est le cas de ^{232}Th , ^{228}Ra , ^{228}Th , ^{224}Ra , ^{220}Rn et ^{216}Po . Pour ces radionucléides, on se contentera de donner une limite de détection. Pour les autres radionucléides mesurables, on s'assurera qu'ils sont à l'équilibre radioactif, aux incertitudes près, y compris pour ^{208}Tl qui présente un rapport d'embranchement de 35,93 % avec ^{212}Bi .

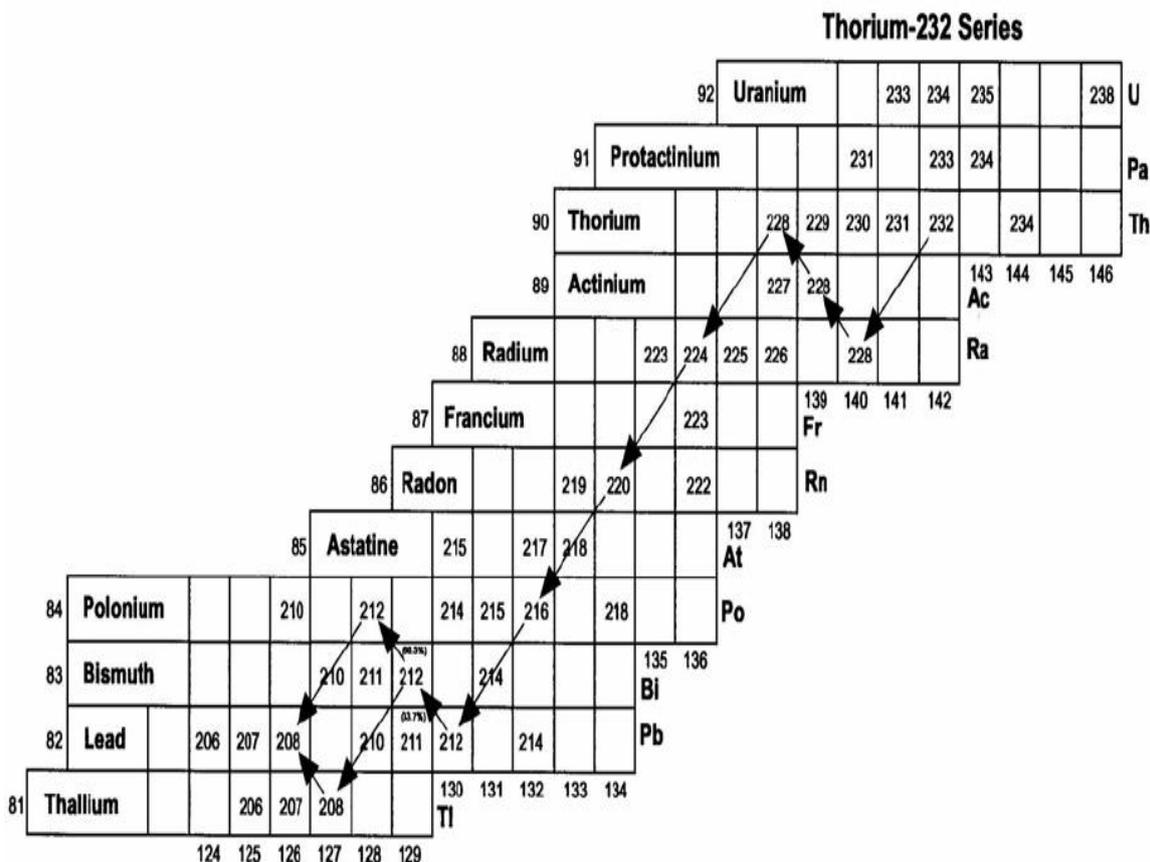


Figure I-19: Famille du thorium 232

I.6 Le code MCNPX

Le code Monte-Carlo N-Particle nommé MCNP a été développé au laboratoire national Los Alamos, pour le transport des neutrons, puis des photons et des électrons. Nous avons utilisé la version MCNPX 2.6.0 (X pour extended) tout au long de notre travail. Cette version est largement utilisée pour la simulation du transport des neutrons thermiques et rapides, des photons et des électrons sur une très grande gamme d'énergie et dans des géométries ou des configurations tridimensionnelles complexes constituées de divers matériaux. En ce qui concerne les photons, la gamme d'énergie se situe entre 1 keV et 1 GeV. Il est actuellement utilisé dans différents domaines tels que : la détection, la radioprotection pour la dosimétrie, le domaine médical, le domaine militaire, Le transport des particules peut être de forme individuelle (neutrons, photons ou électrons) ou combinée, l'embaras est de définir dans le fichier d'entrée la modalité choisie. Le code MCNPX consiste en une méthode probabiliste qui permet la résolution de l'équation de transport par une méthode de tirage aléatoire. Chaque particule émise aura une histoire propre à elle. Il suit chacune des particules émises depuis leur naissance jusqu'à leur disparition en tenant compte des probabilités d'interactions avec les différents matériaux rencontrés, représentées par les sections efficaces dans les bibliothèques annexes au code. Pour générer un fichier d'entrées, il est nécessaire de définir les cellules, les surfaces, les matériaux, les notions de tally (enregistreur), de trace (track) et de poids (weight) essentielles à la compréhension du processus de simulation MC. Le code MCNPX permet de transporter exclusivement soit les photons [mode p] soit les électrons [mode e], ou bien de transporter les deux types de particules [mode pe] sur une gamme de 1 keV à 1 GeV. Nous avons choisi de suivre les deux types de particules et donc d'utiliser le [mode pe] dans une perspective de quantification.

I.6.1 La trace de la particule

Chaque création d'une particule source initie une histoire. La trace reflète la trajectoire de la particule source durant son histoire. Il peut y avoir plusieurs traces pour une histoire si la particule source a interagi en engendrant une autre particule, etc. L'histoire d'une particule se termine lorsque celle-ci quitte la géométrie ou lorsque son énergie cinétique atteint un minimum (spécifié par l'utilisateur en utilisant la carte cut ou bien défini par défaut à 1 keV).

MCNPX échantillonne la position d'une particule source initiée avec un poids statistique de 1. Cela est pratique pour normaliser les résultats, nous pouvons également choisir une autre valeur. Ce poids intervient comme un élément de pondération. Par exemple une particule de poids 0,1 influencera 10 fois moins le résultat d'un tally qu'une particule de

poids égale à 1. Pour faire varier ce poids afin d'optimiser le temps de calcul, nous pouvons utiliser la carte « importance » défini comme suit :

imp : p,e = 1 (par défaut)

imp : p,e = 0 (pour ne pas suivre les particules dans la cellule)

La valeur « 0 », nous permet de ne pas suivre des particules dans des zones de la géométrie qui ne sont pas pertinentes pour la mesure de la grandeur d'intérêt. Cette carte s'utilise à la fin de la définition d'une cellule, suivie des lettres « p » et « e », spécifiant la particule associée au poids. Ce poids reste constant pendant la durée de l'histoire de la particule et de sa descendance. Une fois ce poids attribué, un photon peut engendrer une autre particule, un électron par exemple et continuer sa course. L'électron éjecté et le photon ainsi diffusé, se voient attribuer un poids divisé par deux et ainsi de suite; au fil des interactions, la somme des poids reste constante. Le poids est une notion essentielle, à deux niveaux. Le poids est en quelque sorte représentative de la contribution relative d'une particule au tally final. D'autre part, MCNPX offre la possibilité de biaiser la source ou bien d'augmenter l'importance de certaines zones afin d'accroître la vitesse de convergence du système. En effet, une particule entrant dans une zone généralement peu touchée sera enregistrée avec un poids élevé pour améliorer la statistique (vitesse de convergence), tout en respectant la proportionnalité vis-à-vis de sa probabilité de présence.

1.6.2 Utilisation de MCNPX

Le principe de fonctionnement consiste donc à ce que l'utilisateur définisse un fichier de données, décrivant les paramètres fondamentaux du problème à traiter. Ces paramètres sont :

- La définition de la géométrie du dispositif à simuler,
- La description des matériaux, notamment leur composition en terme des éléments simples, ainsi que le choix des sections efficaces les mieux adaptées à ces matériaux,
- La sélection des sections efficaces associées aux différents noyaux atomiques considérés
- La nature des particules à transporter,
- La définition des sources de particules en termes de spectre d'émission, volume d'émission, loi d'émission angulaire,

- Les définitions des observables désirées (fluence, flux, dépôt d'énergie) par l'utilisation d'estimateurs ("tallies").
- Des paramètres additionnels utilisés pour améliorer l'efficacité de la simulation.

1.6.2.1 La définition de la géométrie dans MCNPX

La définition de la géométrie utilise une décomposition en cellules de milieu homogène, limitées par des surfaces prédéfinies et codées au moyen d'une syntaxe spéciale. Par exemple **SO** désigne une sphère centrée sur l'origine. Chaque surface utilisée dans le fichier doit être numérotée. De plus l'utilisateur doit fournir les paramètres nécessaires pour la définition de cette surface de manière non ambiguë. Par exemple le rayon de la sphère pour la surface **SO**. La définition de la surface sur une ligne du fichier de données est donc :

- Numéro de la surface
- Code de la surface
- Valeurs numériques des paramètres de la surface, on peut utiliser 29 types différents de surface dont les plus importantes sont les suivantes :
- Plan normal à un axe, par exemple celui des x (code **PX**),
- Sphère centrée à l'origine (code **SO**),
- Sphère générale (code **S**),
- Sphère centrée sur un axe, par exemple celui des x (code **SX**),
- Cylindre parallèle à un axe, par exemple celui des x (code **C/X**),
- Cylindre dont l'axe coïncide avec un axe, par exemple celui des x (code **CX**).

Les surfaces peuvent être combinées pour définir des cellules géométriques. En utilisant la propriété que chaque point de l'espace peut être repéré selon qu'il est positionné d'un côté ou de l'autre de la surface, et des opérateurs logiques (OU pour l'union, ET pour l'intersection), il est alors facile de définir le sous-espace correspondant au volume de la cellule.

Pour chaque cellule, sont attribuées : la nature et la densité du matériau qui la remplit ainsi que l'importance de chaque particule dans cette cellule. L'importance correspond à une valeur précisant la contribution des particules dans la cellule : une importance 0 pour un type de particule dans une cellule donnée signifie que le transport de cette particule n'est pas pris en compte (la particule est « tuée »). Dans certaines configurations répétitives, une cellule peut apparaître plusieurs fois dans la structure globale. Dans ce cas, on définit cette cellule

une fois et on la duplique en différentes positions. Dans le tableau I-3 sont données les cartes des surfaces reconnues par le code MCNPX.

Mnemonic	Type	Description	Equation	Card Entries
P PX PY PZ	plane	general normal to x -axis normal to y -axis normal to z -axis	$Ax + By + Cz - D = 0$ $x - D = 0$ $y - D = 0$ $z - D = 0$	$A B C D$ D D D
SO S SX SY SZ	sphere	centered at origin general centered on x -axis centered on y -axis centered on z -axis	$x^2 + y^2 + z^2 - R^2 = 0$ $(x-x)^2 + (y-y)^2 + (z-z)^2 - R^2 = 0$ $(x-x)^2 + y^2 + z^2 - R^2 = 0$ $x^2 + (y-y)^2 + z^2 - R^2 = 0$ $x^2 + y^2 + (z-z)^2 - R^2 = 0$	R $x y z R$ $x R$ $y R$ $z R$
C/X C/Y C/Z CX CY CZ	cylinder	parallel to x -axis parallel to y -axis parallel to z -axis on x -axis on y -axis on z -axis	$(y-y)^2 + (z-z)^2 - R^2 = 0$ $(x-x)^2 + (z-z)^2 - R^2 = 0$ $(x-x)^2 + (y-y)^2 - R^2 = 0$ $y^2 + z^2 - R^2 = 0$ $x^2 + z^2 - R^2 = 0$ $x^2 + y^2 - R^2 = 0$	$y z R$ $x z R$ $x y R$ R R R
K/X K/Y K/Z KX KY KZ	cone	parallel to x -axis parallel to y -axis parallel to z -axis on x -axis on y -axis on z -axis	$\sqrt{(y-y)^2 + (z-z)^2} - t(x-x) = 0$ $\sqrt{(x-x)^2 + (z-z)^2} - t(y-y) = 0$ $\sqrt{(x-x)^2 + (y-y)^2} - t(z-z) = 0$ $\sqrt{y^2 + z^2} - t(x-x) = 0$ $\sqrt{x^2 + z^2} - t(y-y) = 0$ $\sqrt{x^2 + y^2} - t(z-z) = 0$ ± 1 used only for 1-sheet cone	$x y z t^2 \pm 1$ $x y z t^2 \pm 1$ $x y z t^2 \pm 1$ $x t^2 \pm 1$ $y t^2 \pm 1$ $z t^2 \pm 1$
SQ	ellipsoid hyperboloid paraboloid	axis parallel to x -, y -, or z -axis	$A(x-x)^2 + B(y-y)^2 + C(z-z)^2 + 2D(x-x) + 2E(y-y) + 2F(z-z) + G = 0$	$A B C D E$ $F G x y z$
GQ	cylinder, cone ellipsoid paraboloid hyperboloid	axis not parallel to x -, y -, or z -axis	$Ax^2 + By^2 + Cz^2 + Dxy + Eyz + Fzx + Gz + Hy + Jz + K = 0$	$A B C D E$ $F G H J K$
TX TY TZ	elliptical or circular torus. Axis is parallel to x -, y -, or z -axis		$(x-x)^2/B^2 + (\sqrt{(y-y)^2 + (z-z)^2} - A)^2/C^2 - 1 = 0$ $(y-y)^2/B^2 + (\sqrt{(x-x)^2 + (z-z)^2} - A)^2/C^2 - 1 = 0$ $(z-z)^2/B^2 + (\sqrt{(x-x)^2 + (y-y)^2} - A)^2/C^2 - 1 = 0$	$x y z A B C$ $x y z A B C$ $x y z A B C$
XYZP		surfaces defined by points - see pages 3-15 to 3-17		

Tableau I- 3: Bibliothèque des cartes des surfaces reconnues par MCNPX

I.6.2.2 Définition des matières

Comme il a été cité avant, dans la définition des cellules, on donne un numéro m à la matière qui constitue la cellule. Ce numéro m est repris dans la carte Mm , dont la formulation simplifiée est $Mm \text{ zaid1 fraction1 zaid2 fraction2} \dots$ où zaidi indique de quel élément il

s'agit, ainsi que la librairie des sections efficaces à utiliser. Cette entrée se décompose en $ZZZAAA.nnx$, où Z est le numéro atomique de l'élément considéré, A sa masse atomique, n la librairie des sections efficaces et x la classe de la donnée. Dans les calculs impliquant des photons et des électrons, les isotopes des éléments jouent le même rôle que les éléments naturels ; par conséquent, les A peuvent être mis à 0 et les nombres nnx oubliés. Les nombres fraction i sont les fractions atomiques du constituant i ou la densité atomique si elle est introduite avec un signe moins.

1.6.2.3 Définition des sources

MCNPX permet à l'utilisateur de définir une grande variété de sources. On peut spécifier :

- La nature des particules (électron, photon, neutron...),
- Leur énergie,
- La position initiale des particules sources,
- La direction initiale des particules sources,

Les paramètres des particules peuvent suivre des distributions de probabilité quelconques. D'ailleurs, certaines distributions types sont disponibles dans MCNPX: Distribution Gaussienne, distribution de Maxwell... En plus, une des variables peut être fonction d'une autre : par exemple l'énergie en fonction de l'angle de production d'une particule.

Une carte essentielle est celle qui définit la source : il s'agit de la carte (SDEF). Elle a la formulation suivante : SDEF source variable = spécification ... Si la spécification est précédée d'un D, le programme comprend qu'il s'agit d'une distribution; sinon, il s'agit d'une valeur explicite. Il existe de nombreux paramètres pour définir la source; nous n'en citerons que quelques-uns en guise d'exemples:

- CEL : précise quelle cellule sert de source, si cette dernière remplit entièrement la cellule,
- SUR : définit quelle surface est la source,
- ERG : définit l'énergie de la source, en MeV.
- POS : donne le point de référence du centre de la source,

- RAD : définit le rayon de la source. Lorsqu'une source n'est déposée que sur la surface d'une cellule, il est possible de définir des rayons interne et externe, comme nous le verrons pour la carte SIn.
- EXT: signifie l'extension de la source depuis POS, le long de AXS, AXS définit l'axe de la source. X, Y et Z donnent les coordonnées x y et z de la source.

1.6.2.4 Tallies

Différents types de tallies (enregistreurs) de particules existent dans MCNPX. Ils servent par exemple à estimer le courant ou le flux traversant une surface, ou encore l'énergie déposée dans un volume. Certains sont propres à un type de particule, d'autres sont adaptés à plusieurs particules et peuvent en assembler la contribution. Il s'agit d'une ligne de commande spécifiée par la lettre « F », à laquelle s'ajoutent un chiffre caractéristique et éventuellement un astérisque pour changer d'unité. Au cours de ce travail nous avons eu recours au tally F8. Ce tally représente l'énergie déposée dans la cellule considérée dont l'unité correspond à des [(MeV/ particules)].

Les estimateurs «tallies» dans MCNPX sont prédéterminés et permettent d'estimer des observables pour des détecteurs ponctuels, des surfaces, ou bien des volumes.

Voici maintenant les différents types de tallies :

- F1, pour N, P et E est le courant intégré sur une surface. Son unité est un nombre de particules ou des MeV.
- F2, pour N, P ou E est le flux moyenné sur une surface, en particules par cm² ou en MeV/cm².
- F4, pour N, P ou E est le flux moyenné sur une cellule, en particules par cm² ou en MeV par cm².
- F5, pour N et P est le flux en un point, en particules par cm² ou en MeV/cm².
- F6, pour N, P ou E est l'énergie déposée moyennée sur une cellule, en MeV/g ou en jerks/g.
- F7, pour N est l'énergie de fission moyennée sur une cellule, en MeV/g ou en jerks/g.
- F8, pour N, P, E ou PE est la distribution d'énergie des pulses déposée dans un détecteur, en pulses ou en MeV.

Si le tally concerne une surface ou une cellule, on note le numéro de la surface ou de la cellule directement après le nom du tally. La carte En $e_1 \dots e_k$ sert à définir l'énergie maximale dans le tally n. Cette valeur maximale en MeV est donnée dans les groupes e_k . Par exemple, une donnée E11 .1 1 20 sépare le tally 11 en quatre régions d'énergie :

- de l'énergie minimale à 0.1 MeV,
- de 0,1 à 1 MeV,
- de 1 à 20 MeV,
- et le total sur toutes les énergies

Une valeur E0 peut être utilisée pour donner une structure par défaut pour l'énergie dans tous les tallies, en n'oubliant pas qu'une donnée spécifique pour un tally primera sur cette valeur par défaut. Si des résultats d'un tally doivent tous être multipliés par une constante, par exemple pour convertir des unités, il est possible d'utiliser la carte FMnk, où n est le numéro du tally et k le facteur multiplicatif. Dans cette étude nous avons travaillé avec des photons et avec le mode de réponse F8 qui détermine le dépôt en énergie dans le détecteur, en introduisant la résolution associée au détecteur en fonction de l'énergie à l'aide de la commande FGB.

1.6.2.5 Bibliothèques des sections efficaces

Une des spécificités majeures du code MCNPX est l'utilisation de tables de sections efficaces expérimentales. Les sections efficaces de réactions considérées par MCNPX proviennent de nombreuses compilations effectuées dans différents centres ou laboratoires comme le « Applied Nuclear Science (T-2) Group » de Los Alamos [LOS], ou le Laboratoire « Livermore » [LIV]. Ces données ont été constamment complétées et améliorées depuis plus de 30 ans par les développeurs de MCNP. Elles sont contenues dans des tables couvrant une grande gamme d'énergies pour les particules essentielles (neutrons, photons et électrons, protons, ions (Voire figure I-20)

	Protons	Electrons	Neutrons	Protons	Autres
TeV	TABLES		TABLES	MODELES	
GeV					
MeV		TABLES			
KeV					
eV					

Figure I-20: Distribution des tables des sections efficaces pour différentes particules suivant différentes gammes d'énergie.

1.6.2.6 Réduction de la variance

Pour réduire les erreurs liées à la statistique, on peut augmenter le nombre de particules générées. Cependant, cette méthode est gourmande en temps de calcul. Pour cette raison, la méthode de réduction de variance a été développée pour réduire l'incertitude sur la mesure sans pour autant augmenter trop le temps de calcul. Plusieurs méthodes de réduction de variance existent, dont la méthode de troncature qui consiste à tronquer les espaces qui ne contribuent pas d'une manière significative aux tallies. Elle permet de réduire le temps de calcul. Pour le faire, d'une part on varie les importances des cellules et/ou, d'autre part, ne modélise pas les parties à moindre importance.

Références bibliographiques

Références bibliographiques

- Andreev D.S., Erokhina K.I., Zvonov V.S., Lemberg I.Kh., Consideration of Cascade Transitions in Determining the Absolute Yield of Gamma Rays. Translated from *Pribory i Tekhnika Éksperimenta*, No. 5, 63-65, 1972
- Baudry G. Correction des effets de matrice par spectrométrie des rayonnements gamma de capture : application à la mesure par Interrogation Neutronique Active (I.N.A.). These Université de Strasbourg 2003.
- Bonnemains, J. La Radioactivité Naturelle Technologiquement Renforcée, Jacky Bonnemains La Radioactivité Naturelle Robin des Bois (association de protection de l'Homme et de l'environnement).164p , 2005.
- Boshkova T, Minev L (2001) Corrections for self-attenuation in gamma-ray spectrometry of bulk samples. *Appl Radiat Isot* 54:777–783
- Courtine F. Etalonnage d'un spectromètre gamma en vue de la mesure de la radioactivité naturelle. Mesures expérimentales et modélisation par techniques de Monte-Carlo. thèse 2007. Université Blaise Pascal.
- Custhall N. H., Larsen I. L., Olsen C.R., 1983. Direct analysis of ^{210}Pb in sediment samples: self-absorption corrections. *Nuclear Instruments and Methods* 206, 309-312.
- Decombaz, M., Gostely, J.-J., Laedermann, J.-P., Coincidence summing corrections for extended sources in gamma-ray spectrometry using Monte Carlo simulation. *Nucl. Instrum. and Methods in Phys. Res. A* 312 (1992) 152-159
- Debertin K., Schötzig U. Coincidence Summing Corrections in Ge(Li)-Spectrometry at Low Source-to-Detector Distances *Nuclear Instruments and Methods* 158 (1979), 471-477.
- Dziri S., Etudes expérimentale et simulations Monte Carlo en spectrométrie gamma: correction des effets de cascade et de matrice pour des mesures environnementales. these 2013, Université de Strasbourg.
- Gilmore, G. R John Wiley & Sons., *Practical gamma-ray spectrometry* 2nd edition, Nuclear training services Ltd–british library 381P., 2008.
- Haase. G.,Tait. D., Wiechen. A., Monte Carlo simulation of several gamma-emitting source and detector arrangements for determining corrections of self-attenuation and coincidence summation in gamma spectrometry., *Nucl. Instrum. and Methods in Phys. Res. A* 329 (1993) 483-492
- Haase. G., D.Tait, A. Wiechen., Application of a new Monte Carlo method for determination of summation and self-attenuation corrections in gamma spectrometry. *Nucl. Instrum.and Methods in Phys. Res. A* 336 (1993) 206-214

- Jodłowski P (2006) Self-absorption correction in gamma-ray spectrometry of environmental samples – an overview of methods and correction values obtained for the selected geometries. *Nukleonika* 51;S2:S21–S25
- Khandaker, Mayeen Uddin; High purity germanium detector in gamma-ray spectrometry, *International journal of fundamental physical sciences*; june 2011
- Knoll, G.F., *Radiation Detection and Measurement*, third ed., Wiley, New York, 2000.
- McCallum, G.J., Coote, G.E., Influence of source-detector distance on relative intensity and angular correlation measurements with Ge(Li) spectrometers, *Nucl. Instrum. and Methods* 130 (1975) 189-197
- Nachab, A., Benjelloun, M., Nourreddine, A., Pape, A; *Physical and Chemical News*, 7 (2002) 52.
- Nafaa, R., *Gamma Ray Spectrometry*, 2006.
- Nachab, A., *Etudes expérimentales et modélisations Monte Carlo de l'auto-absorption gamma et de la dosimétrie active par capteurs CMOS*, THESE en physique subatomique, 2003.
- Natural Decay Series, (Uranium, Radium, and Thorium) Argonne National Laboratory, *EVS Human Health Fact Sheet.*, 4p, 2005.
- Pelowitz, D.B., ed., 2008. *MCNPX User's Manual, Version 2.6.0*, Los Alamos National Laboratory report LA-CP-07-1473.
- Rodenas, J., Pascual, A., Zarza, I., Serradell, V., Ortiz J., Ballesteros, L., 2003. Analysis of the influence of germanium dead layer on detector calibration simulation for environmental radioactive samples using the Monte Carlo method. *Nucl. Instrum. Meth. A* 496, 390-399.
- Sima, O., Dirk, A., 2000. Accurate computation of coincidence summing corrections in low level gamma-ray spectrometry. *Appl. Radiat. Isot.* 53, 51-56
- Sinkko K., Aaltonen H., *Calculation of the True Coincidence Summing Correction for Different Sample Geometries in Gamma-Ray Spectroscopy*, Report STUK-B-VALO 40, Finnish Centre for Radiation and Nuclear Safety, Helsinki, 1985.
- Tsoufanidis, N., *Measurement and Detection of Radiation*, Second Edition University of Missouri-Rolla Taylor & Francis U S A ,636p, 1995.
- Wang, Z., Kahn, B., Valentine, J.D., Efficiency calculation and coincidence summing correction for germanium detectors by Monte Carlo simulation. *IEEE Trans. Nucl. Sci.* 49 N°4 (2002), 1925-1931

Chapitre II

Optimisation de la géométrie du détecteur HPGe.

II Optimisation de la géométrie du détecteur HPGe

II.1 Introduction

Le détecteur à semi conducteur utilisé dans la présente étude est un germanium hyper pure de type N. Ce dernier a fait l'objet récemment d'un processus de réparation lié à des défaillances électroniques au niveau du préamplificateur. Le processus de réparation a été réalisé avec la collaboration des laboratoires associés à l'AIEA. Le dommage a été exprimé par la détérioration de la résolution du détecteur qui a atteint la valeur de 4 keV au lieu de 1,8 keV pour le pic 1332 keV de ^{60}Co dans des conditions de mesure assez spatiales; avec une tension de polarisation de -2000V au lieu -4000 V recommandé par le constructeur. Le préamplificateur a été vérifié, et ils ont découvert que le câble de tension à l'intérieur du préamplificateur avait une fuite de la tension qui s'est traduite par la génération d'un court-circuit. La partie électronique endommagée a été réparée en changeant des composants internes du préamplificateur. Après un nettoyage studieux, le détecteur a été assemblé de nouveau; ou plusieurs cycles de refroidissement ont été réalisés pour garantir le bon fonctionnement du détecteur. Dans ce but, il est important d'étudier les performances du détecteur après sa réparation.

La qualité d'un spectromètre gamma est liée à sa capacité à la fois de détecter les rayonnements parfois pas très faible intensité (critère d'efficacité de détection) et d'autre part de faire la distinction entre elles (critère de résolution de détection). Ces deux critères sont étroitement liés à la tension de polarisation appliquée. En effet, si un champ électrique est appliqué dans le semi-conducteur, les électrons présents dans la bande de conduction (et les trous correspondants dans la bande de valence) deviennent mobiles et créent un courant. Le dépôt d'une quantité d'énergie E par un rayonnement ionisant peut se traduire par la création d'un nombre proportionnel de paires électrons trous: (voire équation II-1)

$$N_{\text{eh}} = \frac{E_{\gamma}}{W_{\text{eh}}} \quad (\text{II-1})$$

Où W_{eh} est l'énergie nécessaire pour créer une paire électron-trou. Afin de drainer les porteurs de charge jusqu'aux bornes du semi-conducteur (électrodes de collecte) sans recombinaison, il est nécessaire de former une zone désertée de tout porteur libre. Ce type de

zone, dite zone de déplétion, est obtenue avec les semi-conducteurs par une polarisation inverse des jonctions PN ou PIN. (Voire figure II-1)

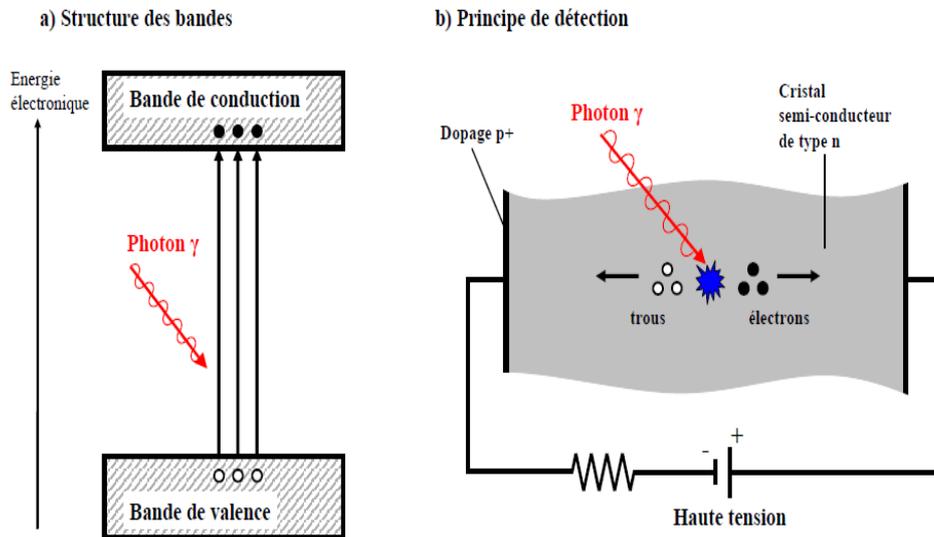


Fig. II.1: Principe du semi-conducteur : structure des bandes et fonctionnement.

Si la tension appliquée est suffisamment élevée, la région appauvrie au milieu du cristal en germanium, sans porteurs libres, va s'étendre à l'ensemble du cristal. Cette configuration est appelée «complètement épuisée» et est le plus favorable pour l'utilisation du dispositif comme détecteur de rayonnement, étant donné que la région appauvrie est également la région qui comporte le volume actif du détecteur. Pour ces raisons, cette tension est choisie suffisamment élevée pour assurer une complète collection de charge et en même temps suffisamment basse pour éviter la tension de claquage.

II.1.1 Evaluation des caractéristiques optimales de fonctionnement du détecteur

Dans cette partie du travail, nous allons étudier les caractéristiques de fonctionnement de base du détecteur ainsi que sa réponse aux événements successifs des rayonnements. Le principe consiste à tester la sensibilité de la réponse du détecteur à une augmentation graduelle de la tension de polarisation du détecteur. Dans cette partie du travail on augmente graduellement la haute tension appliquée au cristal jusqu'à atteindre la valeur recommandée par le constructeur qui est affichée égale à -4000 V, en même temps on enregistre les changements aperçus dans la réponse du pic d'énergie 1332.5 keV du Co-60. Ainsi, La largeur à mi-hauteur (keV), la position et les taux de comptages (comptages / s) de la région d'intérêt ont été enregistrées en faisant varier la tension de polarisation.

La distance de la source du ^{60}Co utilisée par rapport au capot du détecteur a été fixée à 5 cm, où l'incertitude dans la surface du pic 1332.5 keV est égale à moins de 3%.

Les figures suivantes (II-2,3 et 4) montrent l'évolution de la résolution, le taux de comptage (comptages/second), ainsi que la position du pic photo électrique associés au pic 1332.5 keV du cobalt 60, en fonction de la tension de polarisation appliquée (V).

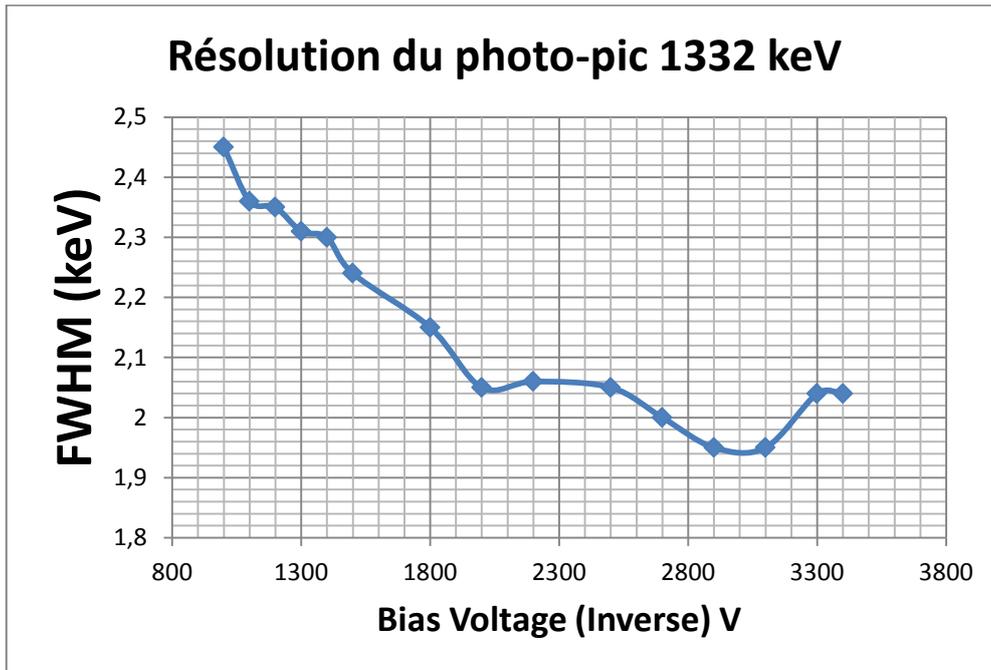


Figure II-2 : Spectre de la résolution en fonction de la tension appliquée (V)

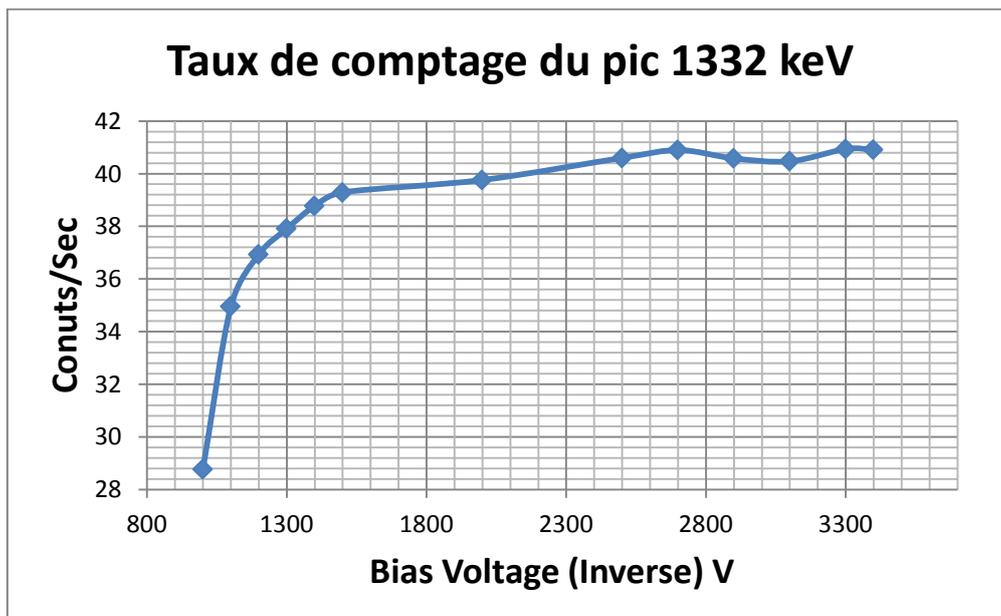


Figure II-3 : Spectre du taux de comptage en fonction de la tension appliquée (V)

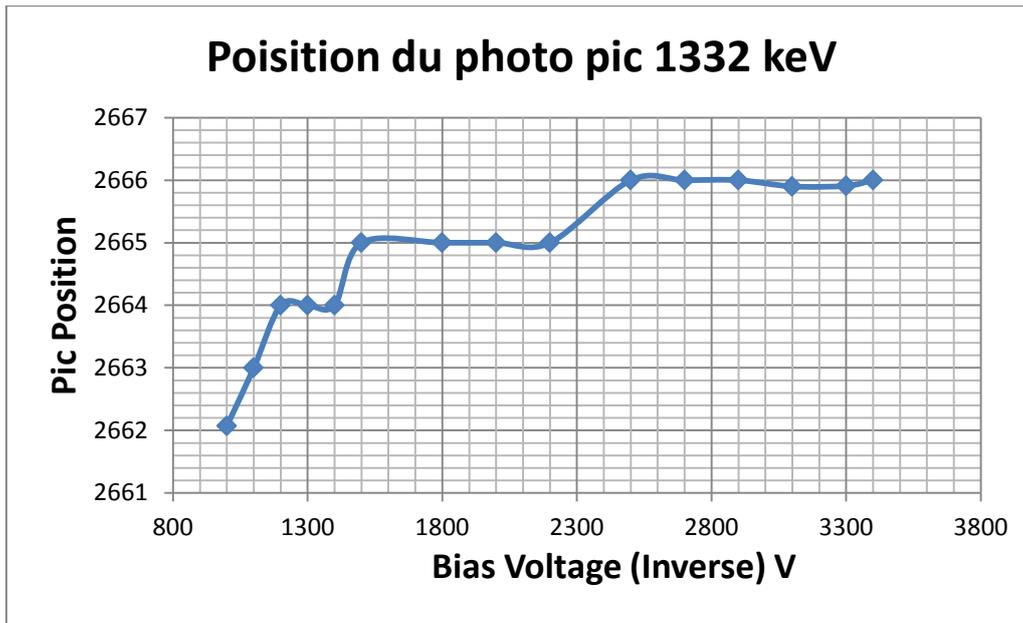


Figure II-4 : position du pic 1332 keV en fonction de la tension appliquée (V)

L'analyse de l'évolution de la position du pic et le taux de comptage par seconde pour le pic plein énergie en fonction de la tension de polarisation (Figure II-3) révèle sans surprise, la présence d'une inflexion correspondant à la tension d'épuisement (-2500 V), au-delà de cette valeur de tension de polarisation, on remarque qu'il n'y a pas une grande évolution dans la position ainsi que dans le taux de comptage malgré une augmentation graduelle de la tension de polarisation.

Selon la figure II-2, la résolution (FWHM) atteint sa valeur optimale égale à 1.94 keV qui correspond à une tension de polarisation équivalente à la valeur -3200 V. Au-delà de cette valeur de tension, on voit (par l'intermédiaire de l'oscilloscope) une augmentation progressive du courant de fuite (de moins de 10 volts jusqu'à 15 millivolts) qui a pour effet de détruire la résolution du détecteur. En effet en augmentant de la tension de polarisation au-delà de -3200 volts on remarque une détérioration progressive de la résolution du détecteur. Nous avons arrêté notre investigation sur une tension de polarisation égale à -3500 V, car nous avons constaté une remontée brusque du courant inverse dans l'oscilloscope, ainsi une augmentation graduelle au dessus de -3500 V risquerai d'endommager le détecteur en atteignant la tension de claquage du transistor.

Un faible taux de comptage (Comptes/sec) signifie que le cristal n'est pas épuisé suffisamment, car dans ce cas seulement les régions appauvries en porteur de charge du cristal sont sensibles au rayonnement. A cet effet on remarque que le taux de comptage augmente en

fonction de la tension de polarisation en atteignant une valeur optimale équivalente à une tension de polarisation égale à -2500 V. Au-delà de -2500 V le taux de comptage reste presque stable malgré l'augmentation de la tension de polarisation.

Contrairement aux taux de comptages (comptages/ sec), une augmentation de la tension de polarisation au-delà du seuil de déplétion montre une dérive importante de la position du photo- pic de 1332 keV vers les hautes énergies. Cependant le pic de 1332 keV atteint une position final pour une tension de polarisation équivalente à -2500 V, eu delà de -2500 V il garde toujours cette position malgré l'augmentation de la tension de polarisation, Cela est dû à une mobilité accrue des porteurs de charge en fonction du champ électrique appliqué.

On pourra ainsi conclure que dans le cas du pic 1332 keV do Co-60, la tension de fonctionnement nominale étant déduite égale à -2500 V, caractérisée par une bonne résolution en énergie égale à 2 keV, ainsi qu'une position maximale pour le pic pleine énergie.

La réponse du détecteur HPGe de type n en fonction de la polarisation haute tension (HT) a été aussi étudiée en irradiant le cristal de Ge avec trois sources non collimatés de différentes énergies qui sont, Am-241, Co-60, et la source de 137Cs, ces derniers émettent des rayons gamma couvrant les basses énergies avec 59.54 keV, moyennes énergies avec 661 keV et les hautes énergies avec 1332 keV. Les sources sont placées sur la face avant du détecteur sur son axe de symétrie vertical, à quelques centimètres au-dessus du capot du détecteur.

Le spectre II-5, montre l'évolution de l'efficacité de détection en fonction de la tension de polarisation pour les trois différentes énergies, qui représente, les basses énergies, les moyennes énergies et les hautes énergies.

D'après le spectre II-5, on a remarqué qu'il y a une tension de polarisation seuil, où, au dessous de cette valeur on n'aura aucune collection de charge. Cette dernière varie selon l'énergie du photon déposée, ainsi pour les faibles énergies (60keV) cette tension seuil est égale à -100V, pour les moyennes énergies (661 keV) est évaluée à -500 V, et finalement pour les hautes énergies de 1,3 MeV est égale à -1000 V. On a aussi remarqué l'existence d'un point d'inflexion qui correspond à un changement brusque vers l'efficacité optimal de détection. Ce dernier se situe à une tension de polarisation égale à -1000V pour les faibles

énergies (60keV), dans les alentours de -1100 V pour les énergies supérieurs à 661 keV, et à 1220 V pour les énergies supérieurs à 1332 keV.

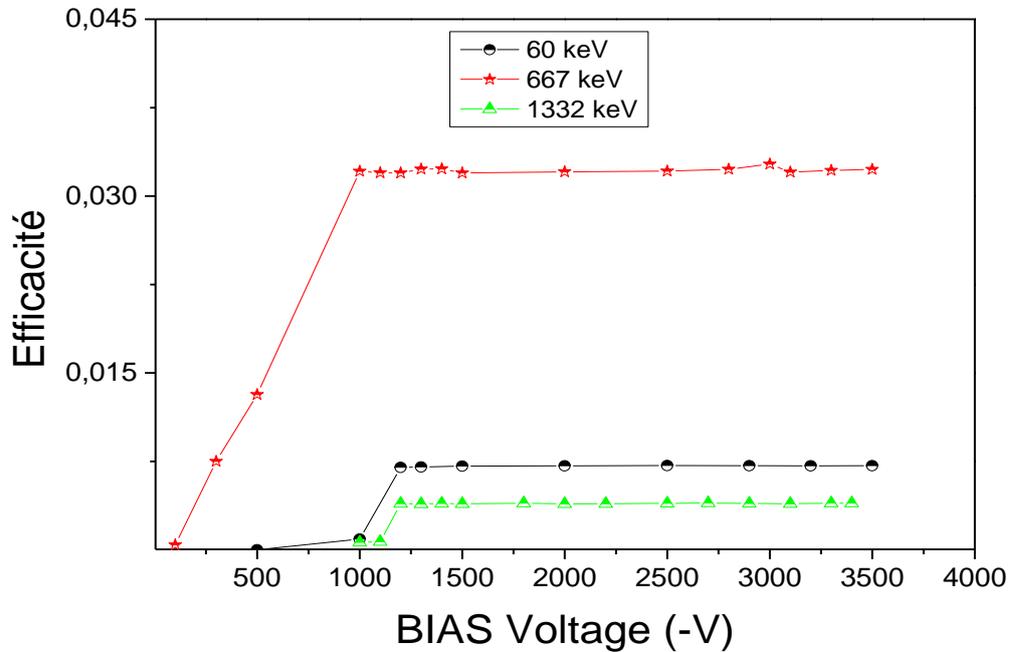


Figure II-5: Spectre de l'évolution de l'efficacité de détection en fonction de la tension appliquée (V)

Ainsi, il apparait que le volume du cristal est défini par les alentours des zones de contact HV, où les charges sont efficacement collectées et un plus grand volume à l'intérieur du Crystal où les charges sont mal collectées, et qui nécessite de plus en plus une tension de polarisation croissante.

La figure II-6, représente l'évolution de la résolution du détecteur en fonction de la tension de polarisation appliquée et en fonction de l'énergie déposée. On remarque que les spectres de différente énergie (60 keV, 662 keV et 1332 keV) se composent de trois parties distinctes.

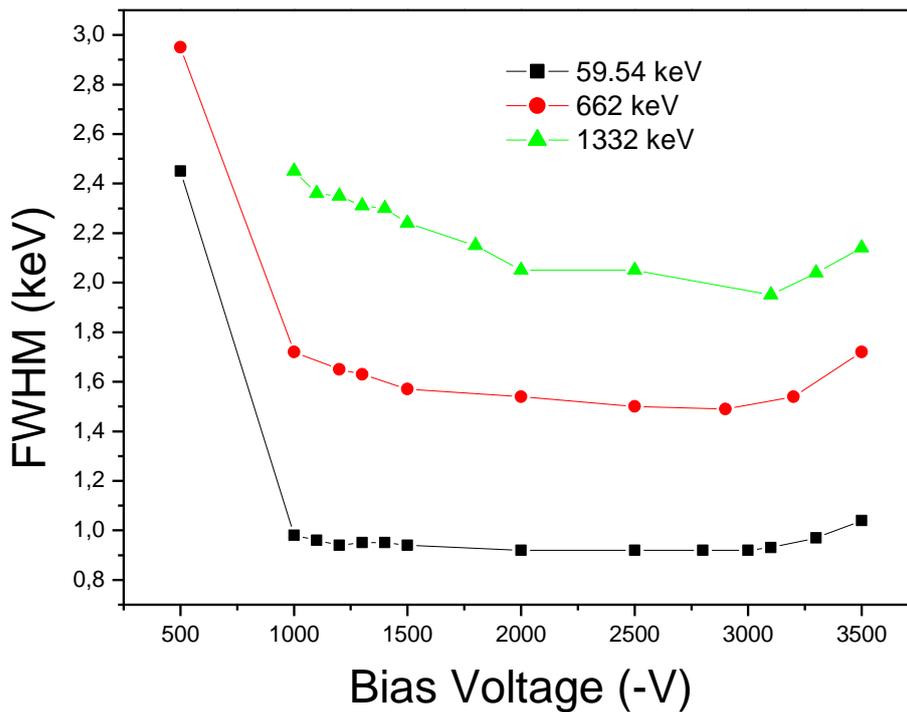


Figure II-6: Spectre de l'évolution la résolution (FMHM) en keV en fonction de la tension appliquée (- V)

La première partie se distingue par une variation rapide de la résolution en fonction de la tension de polarisation appliquée. On a remarqué aussi que l'évolution de la résolution en fonction de la tension appliquée est plus rapide pour les basses énergies que pour les moyennes énergies (- 600 keV) et les hautes énergies (1.3MeV); cela est expliqué par le faite que les photons de basse énergie déposent localement leurs énergies à proximité des zones de contacts, ce qui nécessite une faible tension polarisation pour la transmission de toutes les charges aux zones de contacts limitrophe, ce qui engendre une bonne résolution en énergie. Cependant pour les photons de hautes énergies qui déposent leurs énergies dans les profondeurs du cristal, où les particules primaires et secondaires se dispersent dans le volume du cristal, nécessitent une tension de polarisation conséquente pour avoir un champ électrique intense afin de collecter toutes les charges qui se sont dispersées dans tout le volume du cristal et les drainer jusqu'aux bornes du semi-conducteur (électrodes), cependant, à défaut d'une tension de polarisation suffisante on aura une collection de charge incomplète ce qui engendre par conséquent une mauvaise résolution de détection.

La deuxième partie du spectre est caractérisée par une variation très lente de la résolution en fonction de la tension de polarisation, jusqu'à atteindre une valeur optimale de la résolution qui est de 0.8 keV, 1.5 keV et 1.94 keV, respectivement pour les énergies 60 keV, 662 keV et 1332. KeV.

La troisième partie survient à partir des valeurs des résolutions optimales pour les trois valeurs d'énergie. En effet en augmentant la tension de polarisation au-delà des valeurs optimales, on remarque une détérioration rapide de la résolution qui est dû à une augmentation brutale du courant inverse jusqu'à 16 millivolts. Ainsi en augmentant la tension de polarisation au-delà de -3500 V, risquerait de provoquer la rupture directe de liaisons covalentes et le passage d'électrons de la bande de valence dans la bande de conduction (mécanisme de claquage du transistor)

La performance de Germanium GER3019 a été étudiée de façon systématique et on a constaté qu'il a perdu ses performances d'origine. Néanmoins malgré l'effet de l'âge du détecteur (plus de 20 ans en fonctionnement), il affiche toujours une excellente résolution en énergie de 1,95 keV pour le pic en 1333 keV du 60 Co, pour une tension polarisation égale à -3200 V à la place -4000 indiqué par le constructeur.

La tension d'épuisement a été trouvée égale à -2500 V au lieu de -3000 V tel que spécifié par le fabricant, Nous suggérant que le bon fonctionnement du détecteur est conditionné par l'application d'une tension de polarisation optimale de l'ordre de -3200 V, qui correspond à la valeur de la résolution de 1,95 keV, au lieu de -4000 V de tension de polarisation qui correspond à une résolution de 1,8 keV tel que affichée par le constructeur. A ce titre et par le biais de cette étude, on peut confirmer aussi qu'un détecteur dont la tension de polarisation préconisé par le constructeur est égale à - 4 kV peut également être utilisé à une tension de polarisation avoisinant les - 3 kV. Il est important de signaler que cette étude ne concerne que le détecteur utilisé dans ce travail, en effet d'autres détecteurs peuvent se comporter différemment. Nous pensons que l'effet du vieillissement du cristal exprimé par une mauvaise collection de charge et une mauvaise répartition du champ électrique dans le cristal, ajouter à cela un mauvais refroidissement du cristal qui provoque une augmentation du courant de fuite et une réduction de la zone de déplétion, a pour effet d'augmenter l'épaisseur de la couche morte (insensible aux rayonnements), et par conséquent une réduction de l'efficacité de détection. Dans cet objectif ce travail vise à caractériser le détecteur pour déterminer l'épaisseur de la couche morte et d'optimiser ensuite la réponse du détecteur.

Dans ce travail nous allons déterminer l'efficacité d'un détecteur HPGe qui a été en opération depuis plus de deux décennies. La calibration en efficacité ne peut se faire entièrement expérimentalement. En effet, pour des géométries et des matrices complexes, les mesures d'efficacité nécessitent l'utilisation d'un grand nombre de sources gamma standards couvrant la gamme d'énergie d'intérêt. Les sources étalons disponibles ne sont pas nombreuses et sont coûteux. Dans de tels cas, la simulation de Monte Carlo peut être effectuée pour aider à calculer l'efficacité d'un détecteur de germanium en utilisant un modèle qui représente le cristal du détecteur ainsi que les matériaux environnants. Une fois que la géométrie du détecteur est optimisée et validée, l'efficacité peut alors être simulée pour une variété de formes et de matrices. L'avantage de cette méthode est que l'efficacité du détecteur peut être estimée exempte de tout effet de coïncidences. Cependant, la simulation est contestée par l'absence de description précise de la géométrie d'un Ge-cristal en raison de droits de propriété du fabricant, et l'augmentation de l'épaisseur de la couche morte dans le temps.

L'approche de l'optimisation du détecteur suggérée, consiste à simuler la réponse du détecteur à l'aide de ses dimensions nominales indiquées par le fabricant, puis en ajustant le modèle jusqu'à obtenir une bonne compatibilité de la réponse simulé par rapport aux mesures expérimentales. Nous rappelons ici, que notre objectif dans ce travail est de détecter et de déterminer l'activité de radionucléides émetteurs gamma, dans un intervalle d'énergie allant de 20 keV à 1500 keV.

II.1.2 Procédure expérimentales

II.1.2.1 Calibration de la chaîne de mesure

L'étalonnage en énergie permettra de convertir les canaux en énergie. Pour cela il faudra correspondre les énergies des photons gamma émis par une source étalon connue avec les canaux appropriés. Dans ce cas, il est préférable d'utiliser les sources étalons qui peuvent couvrir un spectre énergétique très large 30 keV à 1500 keV. Dans le présent travail, l'étalonnage en énergie a été réalisé avec une source d' ¹⁵²-Eu. La courbe de la figure II-7 illustre l'évolution de l'énergie des photons gamma en fonction de la position du canal correspondants.

Le tableau ci-dessous renferme les raies utilisées pour l'étalonnage ainsi que les canaux correspondants tableau II-1 :

Canal	Energie (keV)
405.80	121.78
815.20	244.70
1146.82	344.28
2594.67	778.91
3211.53	964.13
3630.09	1089.70
3704.92	1112.12
4690.64	1408.01

Tab II-1 correspondance canal énergie

La droite de calibration en énergie de la chaîne de mesure est donnée par la figure II-7.

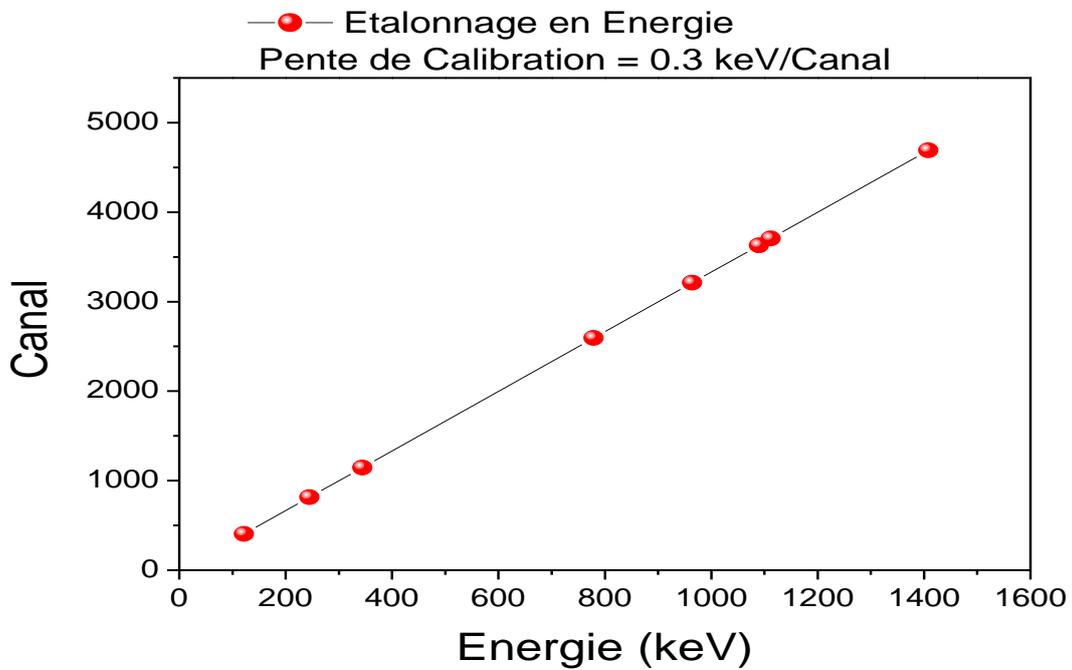


Figure II-7: Courbe d'étalonnage en énergie.

Une commande du logiciel GAMMAVISION permet de générer automatiquement la courbe d'étalonnage. E représente dans l'équation l'énergie des photons gamma et X la position du canal dans le spectre.

II.1.2.1.1 Calibration expérimentale en efficacité

Pour établir la relation entre l'efficacité et l'énergie, il est nécessaire d'acquérir un spectre calibré en énergie des sources radioactives standards connues, pendant un temps suffisamment long pour obtenir des pics avec une petite incertitude.

Le détecteur HPGe utilisé dans le présent travail a été calibré à l'aide de plusieurs standards sources ponctuelles afin d'établir la courbe d'étalonnage expérimental et à la comparer par la suite avec les résultats calculés par le code MCNP. Les sources ponctuelles utilisées sont; l'Europium152, l'Américium 241 et le Césium 137. L'acquisition des données, pendant un temps de comptage suffisant égal à 3600 secondes a été effectuée. Une fois l'acquisition terminée, on détermine le nombre net des coups sur chaque pic de la source, caractérisé par une énergie spécifique, en utilisant le logiciel Gammavision.

Les sources sont placées sur la face avant du détecteur, sur son axe de symétrie vertical, à 21 centimètres au-dessus du capot du détecteur. L'utilisation des sources de géométries ponctuelles à une telle grande distance par rapport au détecteur est choisie afin d'éviter toute incertitude dans la courbe de rendement du fait des effets de coïncidences.

La calibration en efficacité de la chaîne de mesure est faite à partir du calcul de l'efficacité absolue de chaque rayonnement gamma émis tel que :

$$\varepsilon_{\text{absolue}} = \frac{C_{\text{det}}}{C_{\text{emis}}} \quad (\text{II-2})$$

Avec :

ε_{abs} : L'efficacité absolue calculée de la source radioactive.

C_{det} : C'est le nombre des rayonnements détectés.

C_{emis} : C'est le nombre de rayons gammas émis par la source radioactive

Sachant que la distance entre la source radioactive et le détecteur est égale à 21 cm.

Où

$$C_{\text{emis}} = \left(\frac{T_{1/2}}{\ln 2} \right) * \left(A_0 * e^{-t_d * \frac{\ln 2}{T_{1/2}}} \right) * \left(1 - e^{-t_c * \frac{\ln 2}{T_{1/2}}} \right) * P \quad (\text{II-3})$$

t_d : Temps de décroissance des la date de fabrication de la source jusqu'aux jours de mesure.

T_c : Temps de comptage.

$T_{1/2}$: Demi-vie de l'élément radioactif

P : C'est le taux d'embranchement du rayonnement γ émis.

Le terme $\left(A_0 * e^{-t_d * \frac{\ln 2}{T_{1/2}}} \right)$ reflète la décroissance radioactive de l'élément radioactif dès la date de fabrication jusqu'aux jours de la mesure.

Le terme $\left(1 - e^{-t_c * \frac{\ln 2}{T_{1/2}}} \right)$ reflète la décroissance radioactive de l'élément radioactif durant le temps de comptage.

Les sources radioactives utilisées dans cette expérience sont présentées dans le tableau II-2 conjointement avec leurs activités initiales (Bq), énergies (keV), intensités (%), le taux de comptage total (cps), l'efficacité expérimentale, et l'incertitude absolue (%) qui est calculée par l'expression suivante ;

$$\sigma_{\varepsilon_{Abs}} = \varepsilon_{Abs} \sqrt{\left(\frac{\partial \varepsilon}{\partial C} \right)^2 \sigma_C^2 + \left(\frac{\partial \varepsilon}{\partial A_0} \right)^2 \sigma_A^2 + \left(\frac{\partial \varepsilon}{\partial p_\gamma} \right)^2 \sigma_{p_\gamma}^2} \quad (\text{II-4})$$

OU σ_C , σ_A et σ_{p_γ} sont les incertitudes coassociées respectivement aux quantités suivantes, C, A_0 et P_γ

Nuclide	Activité initiale (Bq)	Energie (keV)	Gamma intensité (Y γ)(%)	Comptage totale rate (cps)	Efficacité Expérimentale	Incertitude Absolue (%)
²⁴¹ Am	3.69+004	59,54	35.9	39.28	3,11E-03	0.39
¹⁵² Eu	6.845+005	121,78	28.31	57.522	3,12E-03	0.67
¹⁵² Eu		244,66	7.5	10.273	2,1E-03	0.78
¹⁵² Eu		344,28	26.6	27.056	1,56E-03	0.73
¹⁵² Eu		411,12	2.27	1.956	1,32E-03	0.63
¹³⁷ Cs	2.72+004	661,66	85.1	19.53	8,51E-04	0.79
¹⁵² Eu		779	12.9	6.588	7,80E-04	0.76
¹⁵² Eu		964,05	14.6	6.229	6,54E-04	0.71
¹⁵² Eu		1085,8	10.03	3.895	5,96E-04	0.69
¹⁵² Eu		1112	13.56	5.089	5,76E-04	0.65
¹⁵² Eu		1408	20.85	6.556	4,82E-04	0.7

Table II-2 : Caractéristiques expérimentales des sources utilisées

Les résultats expérimentaux de l'efficacité du détecteur en utilisant des sources ponctuelles à une distance de 21 cm du capot du détecteur dans la plage d'énergie de 59.54 keV à 1408.01 keV sont présentés dans la figure II-7.

II.1.3 Simulation de la courbe d'efficacité du détecteur sur la base des données du constructeur.

Nous avons vu précédemment qu'un étalonnage entièrement expérimental du détecteur est impossible. Il faut avoir recours à des simulations par l'élaboration d'un modèle qui représente le détecteur, le valider avec des mesures expérimentales pour pouvoir ensuite faire des extrapolations dans des domaines non accessibles à l'expérience. Ainsi, nous avons utilisés la technique de simulation pour modéliser le détecteur. En effet, en recherche nucléaire, la simulation du transport des particules résout deux problèmes.

D'abord le coût des installations qui restreint la création des dispositifs expérimentaux lourds et coûteux et ensuite la complexité des équations en jeu. Il existe deux écoles de simulation numérique: les codes déterministes et les codes stochastiques. L'approche probabiliste est plus précise que les codes déterministes du fait qu'elle prend en compte le caractère stochastique lié aux phénomènes physiques au niveau atomique et nucléaire, c'est pourquoi on utilise des méthodes de Monte-Carlo basées sur des tirages de nombres aléatoires.

Notre choix dans ce présent manuscrit est porté sur le code MCNPX Monte Carlo (Pelowitz, 2008), largement utilisé dans la détection et les applications nucléaires. Les capacités du code MCNPX comprennent la géométrie en trois dimensions, des modèles physiques flexibles ainsi que la disponibilité d'une riche bibliothèque de sections efficaces à énergie continue tirées des fichiers de données nucléaires expérimentales. D'autres parts, le code MCNPX offre une grande flexibilité sur les paramètres d'entrée et de sortie de la simulation. De plus, il dispose d'un grand nombre de techniques de réductions de variances permettant de diminuer le temps de calcul des simulations. Conjointement à ces techniques, le code dispose d'outils statistiques permettant de tester la convergence mathématique des résultats obtenus en fonction du nombre de particules modélisées. La version 2.6.0 du MCNPX a été utilisée dans ce travail pour simuler la réponse du détecteur de HPGe. Cette version est couplée avec une interface (Visual Editor) afin d'aider à la création de fichiers d'entrée MCNPX et faciliter la modélisation par la visualisation de la géométrie. Le premier modèle est basé uniquement sur les informations fournis par le constructeur CANBERRA comme le montre la figure II-8 ainsi que le tableau II-3.

Nous allons essayer de reproduire par simulation les mesures expérimentales faites avec les sources ponctuelles suivantes; ^{241}Am , ^{137}Cs et ^{152}Eu à une distance de 21 cm du capot du détecteur, de manière à vérifier la réponse du détecteur en se basant sur les dimensions du détecteurs fournis par le constructeur suivant le schéma II-8.

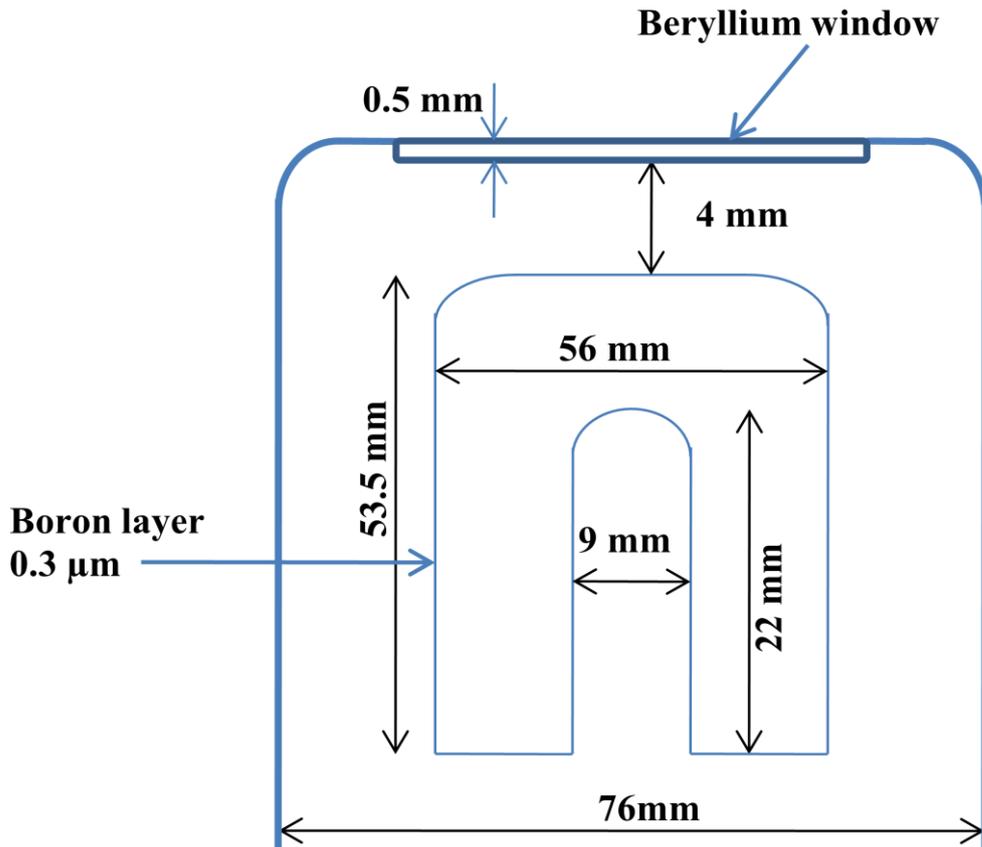


Figure II-8: Le schéma de la géométrie du détecteur spécifié par le fabricant

Dans la simulation nous avons pris en considération le cristal en germanium ainsi que toutes les couches et tous les matériaux absorbants qui composent le détecteur en se basant sur les informations fournies par le constructeur.

Ainsi, la zone de contact en bore a été initialement simulée avec la valeur nominale de $0,3 \mu\text{m}$ (p^+ contact), de même pour la zone de contact interne en Li qui a été simulée avec la valeur nominale de $600 \mu\text{m}$ (n^+ contact).

Il est aussi important de signaler que selon le schéma fournit par le fabricant il apparait que le cristal a les bords supérieurs arrondis, toutefois, aucune autre information portant sur la valeur de courbure du cristal n'a été donnée. Cependant, nous avons commencé nos calculs en négligeant l'effet de courbure du Crystal et en considérant que le Crystal à des bords supérieurs vifs. En utilisant l'outil 'Vised' couplé avec le code MCNPX nous avons illustré la figure II-9 qui reproduit la structure du détecteur considéré dans la simulation MCNPX.

<i>Les paramètres du cristal en germanium hyper pure</i>	
Densité du germanium	5.33 (g/cm ³)
Diamètre	56 mm
Longueur	53.5 mm
<i>Paramètres de la cavité intérieure en germanium hyper pure</i>	
Diamètre	9 mm
Longueur	22 mm
<i>Les paramètres du cristal en germanium hyper pure</i>	
Densité en germanium	0.532 (g/cm ³)
Diamètre	9 mm
Longueur	22 mm
<i>Les paramètres du couvercle (capot) en aluminium</i>	
Densité de l'aluminium	2.72 (g/cm ³)
diamètre	76 mm
longueur	140 mm
Epaisseur du couvercle en aluminium	1.3 mm
<i>Les paramètres du support en aluminium</i>	
Diamètre	56mm
Longueur	53.5 mm
<i>Les paramètres de la fenêtre en béryllium</i>	
Densité du béryllium	1.85 (g/cm ³)
Diamètre	60 mm
Epaisseur	0.5 mm
Distance fenêtre en béryllium - cristal	4 mm
<i>Les paramètres de la zone de contact externe en bore</i>	
Densité du bore	2.37 (g/cm ³)
Epaisseur	0.3 µm
<i>Les paramètres de la zone de contact interne en lithium</i>	
Densité du lithium	0.534 (g/cm ³)
Epaisseur	0.6 mm

Table II-3: Paramètres du détecteur HPGe- type N, Model GR3019

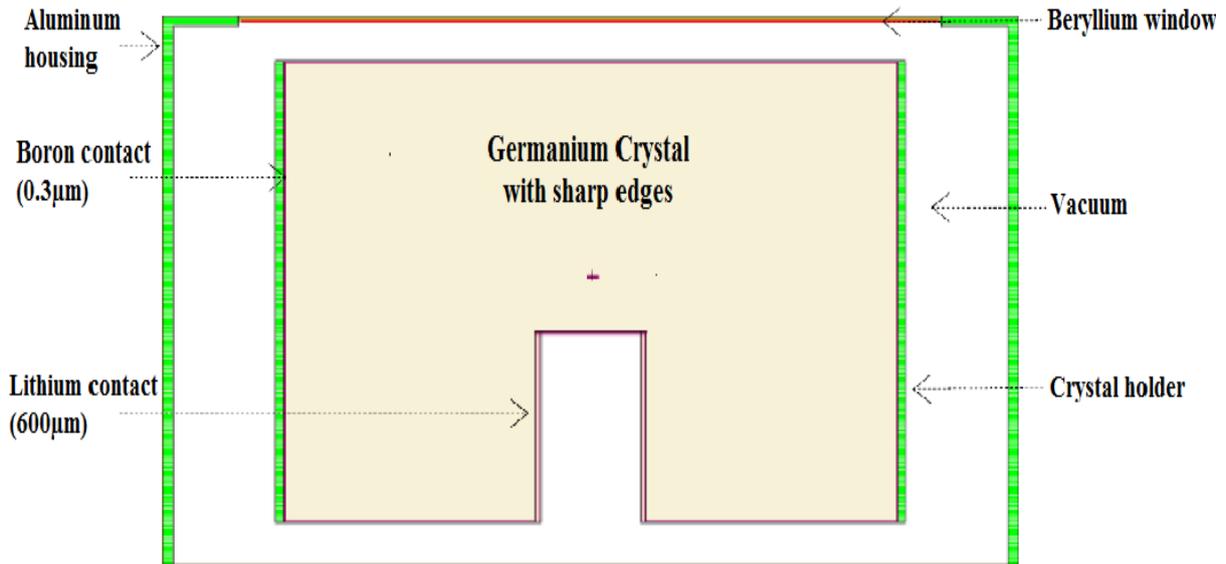


Figure II-9 : Une vue schématique (MCNPX Vised) de la géométrie spécifiée par le fabricant

Le code MCNPX suit la particule de son origine jusqu'au point de son absorption complète ou la sortie de la géométrie modélisée. Toutes les collisions primaires ainsi que les interactions secondaires sont pris en compte. Dans nos simulations, nous avons considéré l'étude dans l'intervalle d'énergie allant de 10keV à 1500 keV. L'énergie de coupure (cut-off) des photons et des électrons a été déposée égale à 10 keV, ce qui permet de gagner un facteur significatif sur le temps de calcul.

Le code MCNPX a plusieurs types d'observables (Tally) pour enregistrer les différentes interactions de rayonnement dans les composantes du système, l'efficacité du détecteur a été obtenue avec le tally F8 (distribution d'énergie d'impulsion dans le détecteur) qui permet d'obtenir un spectre d'énergie déposée dans une cellule de note choisie, dans ce travail c'est le volume active du Crystal en germanium. Ce tally n'exprime pas l'énergie déposée en fonction de l'énergie incidente, mais un nombre d'événement en fonction de l'énergie déposée, compte tenu de son fonctionnement un peu particulier il ne peut être appliqué qu'aux photons et aux électrons. Le tally F8 est en général combiné avec un découpage en énergie. La description de la géométrie du détecteur a été détaillée dans les cartes des cellules et des surfaces du fichier d'entrée MCNPX.

Le principe de calcul est de garder l'erreur relative inférieure à 0,1%, selon le manuel de MCNPX [Pelowitz, 2008]. Lorsqu'un nombre de particules égale à 10^8 est initialisé, on

obtient généralement une erreur relative inférieure à 0,03%; par conséquent, ce nombre de particules initiales a été adopté pour tous les essais.

Nous avons commencé les simulations MCNPX pour la géométrie de source ponctuelle en injectant les caractéristiques des sources suivantes 241Am, 137Cs et 152Eu à une distance de 21 cm du capot du détecteur.

La Fig. II-10 et le tableau II-4, montre les résultats concernant l'efficacité simulés pour le modèle de détecteur basé sur les dimensions fournis par le constructeur. On note ainsi que les résultats de simulation sont exempts de tout ajustement de paramètre géométrique. Il est aussi inclus les efficacités expérimentales mesurées dans les mêmes conditions initialisées dans les calculs MCNPX.

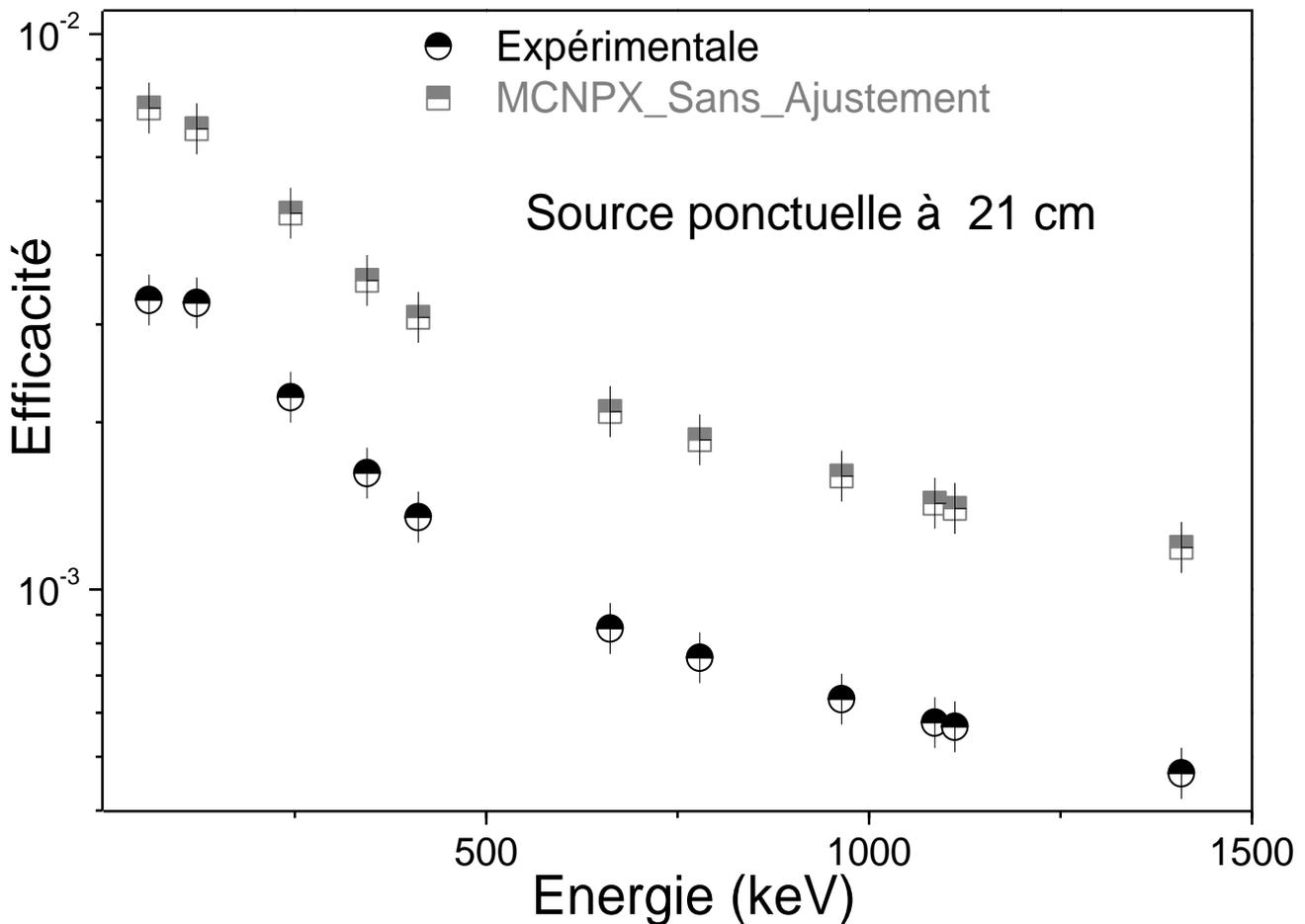


Figure II-10 La courbe d'efficacité Expérimentale du détecteur HPGe (cercles) comparée à l'efficacité de MCNPX (carrés) sur la base des dimensions physiques du détecteur comme indiqué par le constructeur.

Afin de montrer la différence entre les efficacités expérimentales ($\epsilon^{\text{expérimentale}}$) et celles simulées ($\epsilon^{\text{Simulée}}$) par le code MCNPX, nous utiliserons le terme d'erreur relative qui est défini comme suit:

$$\text{Erreur relative (\%)} = 100 \times \frac{(\epsilon^{\text{simulée}} - \epsilon^{\text{expérimentale}})}{\epsilon^{\text{expérimentale}}} \quad (\text{II-5})$$

Energie (keV)	Efficacités Expérimentales	Efficacités MCNPX	Différence Relative
59,54	7,360E-03	3,110E-03	136,656
121,78	6,750E-03	3,120E-03	116,346
244,66	4,760E-03	2,100E-03	126,667
344,28	3,600E-03	1,560E-03	130,769
411,12	3,090E-03	1,320E-03	134,091
661,66	2,090E-03	8,510E-04	145,657
779	1,860E-03	7,800E-04	138,462
964,05	1,600E-03	6,540E-04	144,648
1085,8	1,430E-03	5,960E-04	139,933
1112	1,400E-03	5,760E-04	143,056
1408	1,190E-03	4,820E-04	146,888

Table II-4 : Efficacité Expérimentale et MCNPX (géométrie spécifié par le fabricant)

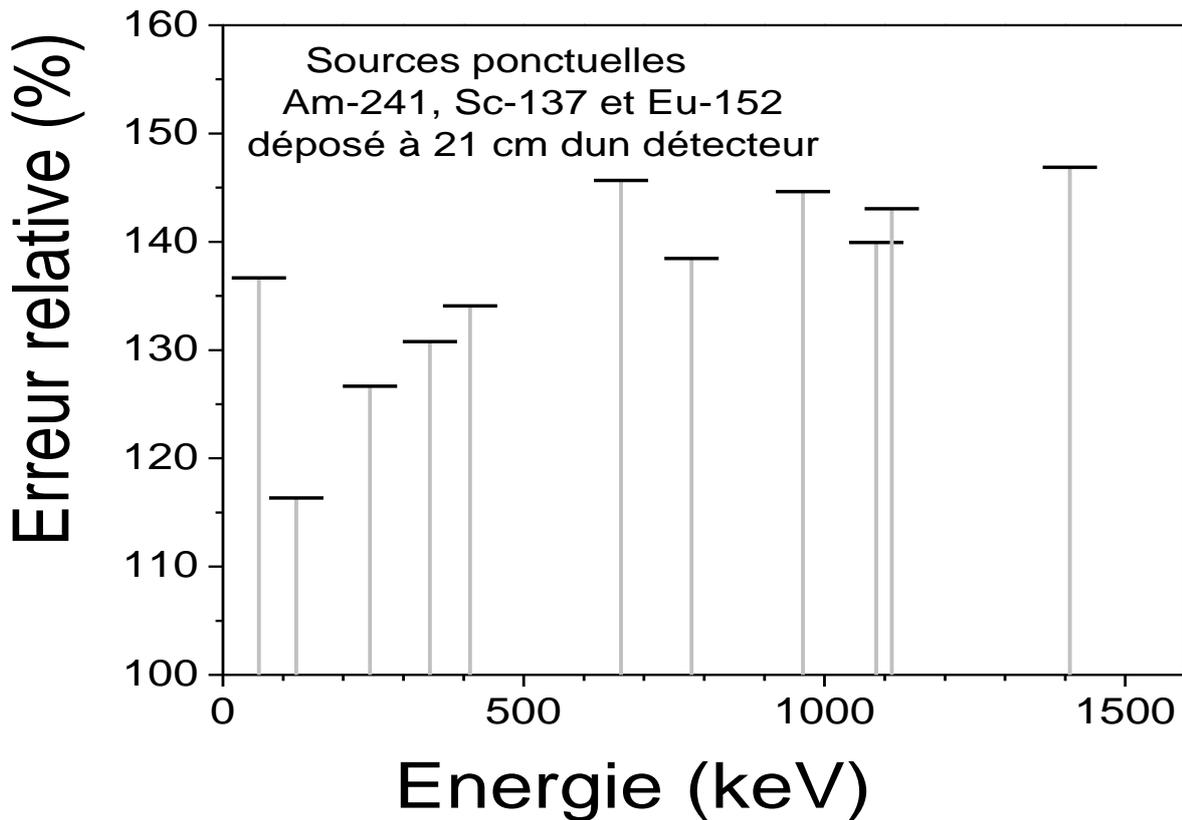


Figure II-11 : Erreurs relatives des efficacités expérimentales et MCNPX sur la base des dimensions du détecteur spécifiées par le constructeur

Comme le montre la figure II-11 et le tableau II-4, en utilisant l'équation II-5, une différence significative (plus de 100%) est obtenue entre les résultats expérimentaux et les calculs MCNPX sur la base des dimensions physiques du détecteur comme indiqué par le fabricant. En effet, en raison des incertitudes liés aux paramètres géométriques de détection, les calculs de l'efficacité ne concordent pas généralement avec les données expérimentales comme indiqué dans les travaux suivantes (Rodenas et al., 2003; Dryak et Kovar, 2006; Huy, 2010; Hernández et ElDaoushy, 2003; Marzocchi et al, 2010; Mesradi et al., 2008; Courtine et al, 2008; Huy, 2011; Berndt et Mortreau, 2012; Boson et al, 2008). Ce large écart très répandu dans la littérature est dû à l'insuffisance des valeurs des paramètres géométriques de détecteur fournies par le fabricant, ou à une collection de charge incomplète dans le cristal. On suspecte aussi que la différence est due à la dégradation des performances du détecteur au fil du temps. Cette déduction est en conformité avec les différents travaux sur le

comportement des détecteurs HPGe au fil du temps, menée par L.Sajo-Bohus et al, où 51 détecteurs de HPGe de type-n ont été étudiés. Ces dispositifs ont été utilisés fréquemment de manière satisfaisante sur une période de plus de deux décennies. Selon cette étude, ces détecteurs ont souffert de la dégradation au fil du temps, soit en raison de la perte du vide à l'intérieure du détecteur, soit une défaillance des composants électroniques, où à une mauvaise manipulation.

II.1.4 Processus d'Optimisation

Dans le chapitre précédent, nous avons vu qu'il était impossible de reproduire de façon satisfaisante les mesures expérimentales par la simulation en utilisant un modèle de détecteur basé sur les dimensions géométriques fournies par le constructeur.

Pour remédier à cela, des paramètres ajustables ont été introduits dans le modèle en prenant en compte l'évolution des couches mortes en germanium au fil du temps. Il est à noter que ces paramètres ne représentent pas seulement les dimensions physiques des zones mortes mais aussi d'autres phénomènes qui ne sont pas pris en compte, comme le courant de fuite et les problèmes de collection de charge.

Le processus d'optimisation des paramètres de détection est ainsi effectué dans les simulations afin de combler l'écart entre les efficacités calculées et celles mesurées. Deux approches essentielles sont élaborées dans la littérature et utilisées à cet égard.

La première approche consiste à vérifier les paramètres géométriques du détecteur, qui auraient pu être changé pendant la construction ou pendant la réparation lors de l'assemblage du détecteur (Sajo-Bohus et al., 2011). Divers travaux affichent l'importance de la vérification de la géométrie strict du Crystal, dont sa dimension réelle qui est très influente dans la détection, ainsi que la forme exacte des bords supérieurs du Crystal (Berndt et Mortreau, 2012; Higgs et al, 2008; Gasparro et al, 2008). D'autres travaux ont insistés sur la possibilité du mouvement du cristal dans le couvercle du détecteur dans le temps, qui pourrait provoquer un défaut d'alignement de l'axe du cristal par rapport à l'axe du couvercle du cristal. Ce dernier est induit généralement par la force mécanique exercée par le support du cristal en aluminium, ce qui conduit à un déplacement du cristal due au stress, et à la contraction lors du refroidissement à des températures de l'azote liquide, ou au cours de l'assemblage du détecteur après maintenance (Johnston et al., 2006)

La seconde approche consiste à augmenter l'épaisseur de la couche morte en germanium, qui a pour effet de réduire le volume actif du cristal et d'atténuer en même temps les photons qui le traversent (Bochud et al. 2006).

Dans les simulations, les zones mortes seront modélisées par des volumes remplis de germanium, dans lesquels aucune perte d'énergie ne sera comptabilisée. Compte tenu de l'effet important de l'épaisseur de la couche morte dans la détection, qui a une densité relativement élevée (5,32 g / cm³); de nombreux auteurs ont réajusté la valeur de l'épaisseur la couche morte en l'utilisant comme unique paramètre dans le processus d'optimisation du détecteur (Courtine et al, 2008; Andreotti et al, 2014; Santo et al, 2012). En effet, ces études portant sur l'influence de l'épaisseur de la couche morte sur l'efficacité de détection sont largement réponsus (Rodenas et al., 2003; Huy, 2010., 2011; Chaoui et Azli, 2010; Broniatowski et al., 2006; Huy et al., 2007). Ces travaux ont montré qu'une augmentation de l'épaisseur de la couche morte conduit à une diminution ascendante dans l'efficacité du détecteur, non seulement en raison de l'atténuation des rayons gamma dans la couche morte, mais aussi en raison de la réduction du volume actif du détecteur.

Selon (Knoll, 2000) l'épaisseur de cette couche morte est très petite juste après la fabrication du cristal puis elle augmente graduellement au fil du temps, en raison de la contribution des différents phénomènes physiques et électroniques tels que, la diffusion des atomes de lithium dans le volume actif du cristal, l'effet du champ électrique, polarisation inverse, les courants de fuite et le problème de la collection de charge. De ce fait, il est recommandé de réévaluer l'efficacité d'un détecteur de HPGe après un usage prolongé.

II.1.4.1 Ajustement des contours supérieurs du cristal en germanium

Selon le schéma (fig. II-8) fournit par le constructeur Canberra, les bords avant de notre cristal de Germanium sont courbés; selon Knoll une telle configuration est importante dans la mesure où la courbure en haut du cristal est faite pour éviter des effets de frange du champ électrique dans le Crystal.

Nous pensons que ce détail géométrique a un effet non négligeable sur la détection en particulier pour les photons de faibles énergies. À première vue, on constate que le modèle de cristal avec des bords vifs a un plus grand volume actif et un angle solide plus large par rapport au modèle aux bords arrondis. Afin de vérifier l'impact dans la détection des deux formes de Crystal, à savoir, le cristal aux bords arrondis et le Crystal aux bords vifs, une inter

comparaison entre les deux modèles a été effectuée en utilisant les capacités de calcul du code MCNPX.

Le modèle de détecteur aux bords vifs est aisément élaboré en supposant que le cristal en germanium est semblable à un cylindre droit dont le diamètre et la hauteur sont égaux à la longueur et au diamètre du cristal (voir figure II-9).

Le cristal de germanium aux bords arrondis a été modélisé en détail à l'aide d'une variété d'éléments géométriques disponibles dans le code MCNPX (voir figure II-12). Il est élaboré par la combinaison de cinq variétés de formes géométriques imbriquées ensemble à savoir; quatre surfaces planes (3, 5, 9 et 11), deux cylindres (2 et surfaces: 12), un tore (surface 13), une sphère (surface 14) et un cylindre creux (surface 15) (voir figure II-12).

Le rayon de courbure des bords arrondis a été fixé à 1 cm dans l'input de l'entrée du MCNPX, cette valeur de courbure du Crystal de 1 cm a été choisie en se basant sur plusieurs travaux dans la littérature. En effet, Selon C.C. Conti et al, ce rayon de courbure est considéré égal à 1 cm. S. Hurtado et al, ont également obtenu la même valeur de rayon de courbure en faisant la radiographie du détecteur qui est caractérisé par la même efficacité relative (30%) que le détecteur étudié dans ce travail. D'autres travaux menés par Sy Tuan Minh Hoang et al, et Jonas Boson et al, ont estimé le rayon de courbure de cristal égale à 8 mm.

A titre d'évaluation objective de cette valeur, une comparaison entre l'efficacité expérimentale et calculée en utilisant une source ponctuelle (Am-241) à différentes positions et angles par rapport à l'axe du détecteur ont été réalisées. Les calculs MCNPX ont été ainsi effectués pour les deux valeurs de rayons de courbures 1 cm et 0,8 cm. Les résultats de cette comparaison représentés dans le tableau II-5, montrent que le détecteur dont le rayon de courbure du cristal égal à 1 cm donne relativement de meilleurs résultats qui se rapprochent légèrement de l'efficacité expérimentale, contrairement aux calculs basés sur le rayon de courbure égal à 0,8 cm.

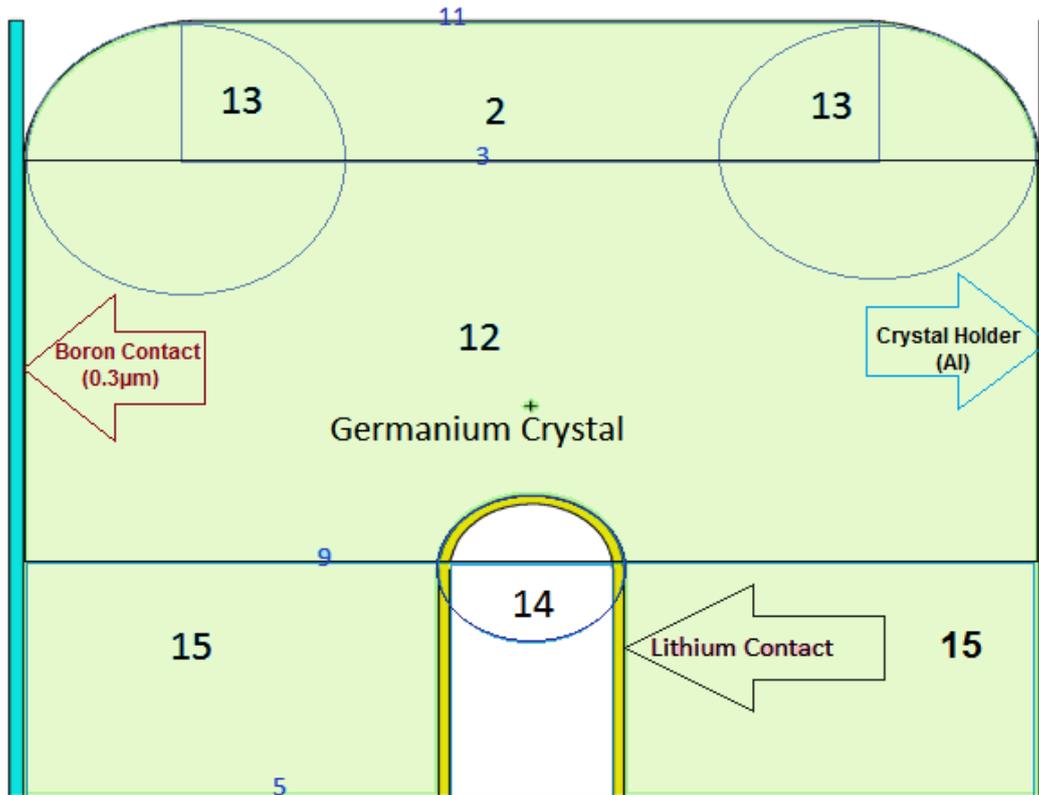


Figure II-12: Une vue schématique (MCNPX-Vised) de la géométrie du cristal en germanium, en incluant la courbure des bords supérieurs du cristal et le creux à l'intérieur du cristal.

Angles	EXP	Rayon=0,8cm		Rayon=1cm	
		MCNPX	Ratio (%)	MCNPX	Ratio (%)
7°	1.25E-02	5.18E-02	3.15E+02	5.14E-02	3.12E+02
30°	1.85E-02	8.90E-02	3.82E+02	7.59E-02	3.11E+02
45°	3.37E-02	1.24E-01	2.68E+02	1.20E-01	2.57E+02
60°	2.97E-02	8.39E-02	1.83E+02	7.64E-02	1.58E+02

Table II-5: Efficacité (59.54 keV) mesurée (expérimentale) et calculée (MCNPX) pour différents angles d'incidences

Après avoir fixé le rayon de courbure du cristal en germanium aux bords arrondis à 1cm dans toutes les simulations (MCNPX), nous avons commencé une série de calculs et de mesures ayant pour objectif d'estimer l'influence de la courbure du cristal dans la détection. Le principe consiste à effectuer des calculs de l'efficacité de détection pour les deux modèles de cristal en germanium; avec les bords avant vifs et arrondis, dans la gamme d'énergie de photons de 20 keV à 500 keV, à une distance de 21 cm du capot du détecteur. Une étude expérimentale a été aussi menée en utilisant les sources ponctuelles suivantes ^{241}Am , ^{137}Am et ^{133}Ba à une distance de 21 cm du capot du détecteur; une telle distance a été choisit afin d'atténuer l'influence des pics sommes liées à l'utilisation de la source multi gamma du ^{133}Ba .

Dans la fig. II-13, les résultats des calculs (MCNPX) d'efficacités pour les deux modèles cristallines (bords vifs et bords arrondis), dans la gamme d'énergie de photons de 20 keV à 500 keV, sont tracés et comparés avec les efficacités mesurées dans la gamme d'énergie de 26,25 keV à 662 keV à 21 cm du capot du détecteur .

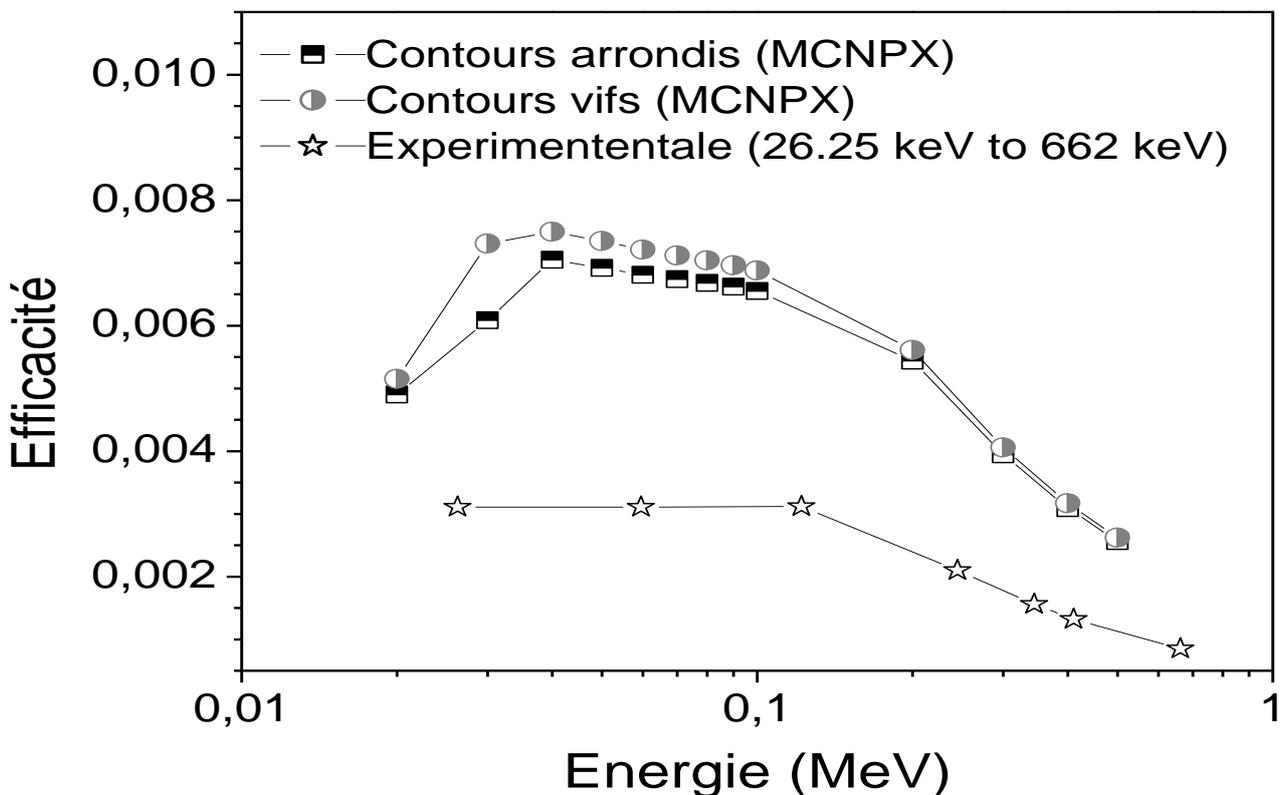


Figure II-13: Comparaison des courbes d'efficacité MCNPX du détecteur (model bords arrondis et vifs) et les efficacités expérimentales à 21 cm du capot du détecteur.

Dans la figure II-13, on voit clairement que l'utilisation d'un modèle de cristal aux bords arrondis permet effectivement d'améliorer l'efficacité de détection par rapport au modèle de cristal aux bords vifs. La différence relative des efficacités calculées entre les deux modèles est représentée sur la figure II-14.

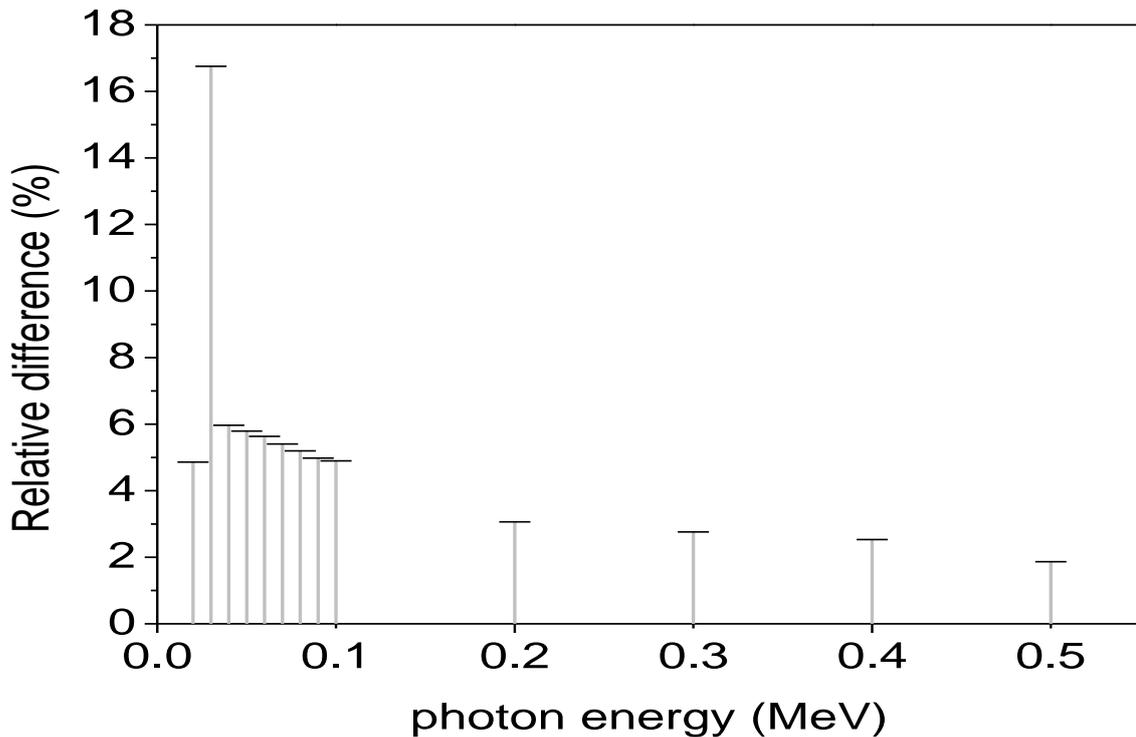


Figure II- 14: Différence relative de l'efficacité calculée (MCNPX) du détecteur, basée sur les modèles de cristal avec les bords arrondis et vifs, dans une gamme d'énergie s'étalant de 20 keV à 500 keV.

Les résultats affichés dans la figure II-14 montrent que l'écart relatif d'efficacité entre les deux modèles varie de 2% à 17%. Pour des énergies inférieures à 100 keV, cette différence relative augmente rapidement pour atteindre un écart maximal de 17% à 30 keV. A ces faibles énergies, le modèle de cristal de germanium avec des bords vifs conduit à une absorption complète de photons qui traversent cette zone. En effet, ces photons peuvent atteindre le volume actif du cristal qui est présent dans le modèle avec des bords vifs, mais

absent dans le modèle avec des bords arrondis. Ces résultats sont amplement compatibles avec l'étude menée par J. Gasparro et al, où l'effet géométrique du modèle de cristal du détecteur aux bords arrondis est comparé à celui aux bords vifs en utilisant le code EGS4. Ils ont démontré que les études qui ne prennent pas en considération la courbure du Crystal dans le model de Crystal aux bords arrondis se traduisent en général par une surestimation de l'efficacité de détection par plusieurs pourcents, et que cet effet est plus important pour les basses énergies.

Il est important de souligner qu'il est possible de parvenir à un bon résultat de l'efficacité calculée (MCNPX) en négligeant l'effet de courbures en haut du cristal (en supposant que le cristal a des bords vives); mais en compensant ce détail géométrique par une surestimation de l'épaisseur de la couche morte de sorte à forcer l'efficacité modélisée pour correspondre étroitement à l'efficacité expérimentale. Pour cela, il est important de vérifier d'abord les détails géométriques du détecteur avant de réajuster l'épaisseur de la couche morte.

II.1.4.2 Ajustement de la couche morte

Dans la littérature il est reconnu que les détecteurs coaxiaux avec un contact central n^+ sont désignés comme des détecteurs de type n, tandis que les détecteurs de type p ont un contact central p^+ . L'épaisseur de ces contacts représente une couche morte autour de la surface du cristal dans lequel les dépôts d'énergie n'entraînent pas des signaux du détecteur. Théoriquement, l'épaisseur de la couche morte est de plusieurs centaines de micromètres pour une couche de diffusion de Lithium, et de quelques dixièmes de micromètres pour une couche de déposition de Bore. En supposant que les données géométriques délivrées par le constructeur sont exactes, notamment celles qui concerne l'épaisseur des ces couches mortes qui sont évalués juste après leur production. Néanmoins, il restera toujours des paramètres qui influent sur la réponse du détecteur et qui ne peuvent pas être mesurée directement comme, la mauvaise répartition du champ électrique à l'intérieur du cristal, les problèmes de courant de fuite et les fluctuations électroniques.

Une première approche selon Knoll, considère que le volume actif du détecteur est considéré simplement comme la partie du cristal qui se situe entre les zones de contacts n^+ (surface interne, dopé avec du lithium) et P^+ (extérieure, dopé au bore) pour un détecteur de type n. Cet auteur mentionne que ces zones de contacts peuvent avoir une épaisseur considérable et peuvent agir comme une couche morte sur la surface du cristal par lequel le rayonnement doit passer. Il souligne aussi que l'épaisseur de ces couches mortes peut évoluer

lentement, ce qui réduit l'efficacité du détecteur au fil du temps principalement pour les mesures de faible énergie.

La variation du champ électrique à l'intérieure du cristal est un autre paramètre qui influe sur la réponse du détecteur dont il faut prendre en considération. Selon Knoll, Il est possible que la variation du champ électrique tout au long du diamètre du cristal puisse entraîner une différence de réponse pour les photons de même énergie et qui interagissent par effet photo-électrique dans les différents partie du cristal, du faite que dans le cas d'un détecteur coaxial le champ électrique varie en fonction de $1/r$, où r est le rayon du cristal. D'autres fluctuations électroniques peuvent aussi entraîner des variations de la réponse en particulier lorsque la source est plus proche du détecteur comme l'effet d'empilement (pile-up) et le temps mort.

Une approche récente, selon Aguayo et al (2013), considère que la couche morte du détecteur est constituée de deux parties distinctes à savoir; la couche de contact défini par la zone de contact en bore et la zone de contact en lithium, ainsi que la couche de transition en germanium dans le cas d'un Crystal en germanium. Cette couche de transition qui est délimitée par le volume active en germanium et les zones de contactes (inactives), peut évoluer dans le temps en augmentant son épaisseur lentement, ce qui fait réduire l'efficacité de collection de charges. En effet, l'épaisseur de cette couche de transition (morte) est la plus petite possible juste après la fabrication du cristal et augmente graduellement au fil du temps, en raison de la contribution des différents phénomènes électroniques tels que, l'effet du champ électrique, polarisation inverse, les courants de fuite et le problème de la collection de charge. Cette couche de transition peut aussi augmenter si le détecteur n'est pas stocké dans un état de refroidissement cryogénique pendant un intervalle de temps comme il est préconisé (Huy et al. 2007). Dans notre travail, nous avons adopté cette approche dans l'estimation de l'évolution de l'épaisseur de la couche morte en utilisant les capacités de calculs du code MCNPX.

Le code MCNPX peut simuler tous les effets nucléaires qui se produisent à l'intérieur du détecteur, mais il ne tiendra pas compte des influences électroniques, tels que l'influence du champ électrique, les courants de fuite et le problème de la collection de charge, l'effet d'empilement (pile-up) et le temps mort.

Afin de contourner ces limitations dans la simulation MCNPX, nous considérons que toute perte possible dans le pic photoélectrique causé par l'influence du champ électrique pile-

up et le temps mort se traduit par une augmentation de l'épaisseur de la couche morte. Ainsi, nous remplaçons ces caractéristiques électroniques non simulable par le code MCNPX par des augmentations dans la couche morte du détecteur, à partir du moment que tous ces effets électroniques qui se produisent dans les différentes régions du cristal du détecteur ont pour effet de ne pas comptabiliser les photons qui y passent à travers. En d'autres termes, les pertes qui peuvent survenir dans le pic photoélectrique par les effets du champ électrique, pile-up, temps mort ou d'autres effets secondaires, ont été compensé dans la simulation en les incluant dans le modèle de Monte Carlo sous la forme d'une augmentation de l'épaisseur de la couche morte (DL).

Dans notre travail, la stratégie d'optimisation de l'épaisseur de la couche morte a été élaborée par la méthode de comparaison entre les efficacités mesurés (expérimentale) et les résultats de la simulation Monte Carlo. Les calculs MCNPX sont effectués dans les mêmes conditions expérimentales telle que; la forme, la géométrie, la densité de la source utilisée ainsi que la distance entre la source et le capot du détecteur.

Dans un premier lieu nous avons considéré que toutes les dimensions du détecteur fourni par le fabricant sont fiables. En conséquence, nous avons commencé à modéliser notre détecteur en modifiant seulement l'épaisseur de la couche morte graduellement jusqu'à obtenir une réponse du pic photoélectrique simulé du détecteur compatible avec la réponse expérimental du détecteur. Ainsi, la couche morte interne a été simulée avec la valeur nominale fournie par le fabricant pour la zone de contact n^+ , à savoir, 600 μm (ou 0,6 mm), et la couche morte externe a été simulé par la valeur nominale de la zone de contact p^+ (0,3 μm). Le cristal de germanium de type coaxial a été simulé en prenant en compte la valeur de courbure en haut du cristal égale à 10 mm, vérifiée précédemment. Les compositions chimiques et les densités des zones de contacts ne sont pas données par le constructeur, ainsi nous avons considéré que ces zones ont les mêmes densités et compositions du germanium pur, du faite que ces zones se trouvent à l'intérieur du Crystal en germanium, malgré qu'ils ne contribuent pas à la formation de l'impulsion, bien qu'ils fassent atténuer le faisceau de photon incident.

Comme l'épaisseur de la couche morte du germanium est fortement dépendante de l'efficacité calculée à la fois pour les basses et hautes énergies. Par conséquence, deux sources mono-énergétiques, quasi-ponctuelles, ^{241}Am avec 59,54 keV et ^{137}Cs avec 662 keV ont été employées. Nous avons tiré profit de ces deux énergies, car elles ne sont pas affectées par les

effets des pics sombres dans les expériences, et ils nous offrent aussi la possibilité de sonder la surface longitudinale du Crystal ainsi que les autres surfaces, due à leur valeur du libre parcours moyen qui augmente avec l'énergie. Ainsi, l'énergie des photons de 59,54 keV est suffisamment faible pour être affectée que par la couche morte externe en haut du cristal (libre parcours moyen et de ≈ 1 mm), tandis que l'énergie de photons de 662 keV est assez élevée pour atteindre les couches mortes latéral et à l'intérieur du cristal (Libre parcours moyen plus élevé (26,5 mm)).

Dans un premier temps, nous avons défini une géométrie avec des couches mortes d'épaisseur homogène. Nous allons donc à partir des valeurs des couches mortes fournis par le fabricant les faire varier pas à pas en comparant à chaque fois l'efficacité absolue simulée à l'efficacité absolue expérimentale obtenue dans les mêmes conditions de mesure (énergie des photons et positions de la source). Les meilleures épaisseurs des couches mortes sont celles qui permettent d'avoir le meilleur accord entre la simulation et l'expérimentale.

En utilisant la source d'Am-41, nous avons commencé d'abord par l'ajustement de l'épaisseur de la couche morte latérale en haut du cristal en germanium supposée homogène, ce qui a permis de rapprocher l'efficacité absolue simulée des valeurs expérimentales pour les faibles énergies. L'optimisation de la réponse du détecteur pour les hautes énergies est effectuée en utilisant la source de Cs-137, et en réajustant l'épaisseur de zones morte latéral ainsi que la zone morte à l'intérieur du Crystal, et cela en minimisant le rapport de l'efficacité simulé sur l'efficacité expérimental. Malheureusement; en essayant d'optimiser la détection pour les hautes énergies, on a remarqué qu'on perd complètement notre optimisation pour les faibles énergies ajuster précédemment. Après plusieurs tentatives d'ajustements, nous avons conclu que lorsqu'on considère une couche morte avec une épaisseur homogène (épaisseur uniforme en germanium), il est quasiment impossible de parvenir à un accord entre les efficacités de détection simulées et mesurées, à la fois, pour les photons de faibles énergies et hautes énergies en même temps.

L'hypothèse la plus plausible, est que l'épaisseur de ces zones mortes n'est pas homogène. Par conséquent, nous avons utilisé l'approche qui considère que l'épaisseur de ces couches mortes évolue d'une façon inhomogène (épaisseur non uniforme) au fil du temps.

Actuellement, nous avons trouvé seulement deux références bibliographique très récente qui qualifie l'évolution de l'épaisseur de la couche morte comme étant inhomogène; Andreotti et al, et Courtine et al. Le premier en utilisant un scanner à balayage automatique

autour d'un détecteur du type P, et l'autre en utilisant une source collimatée dans diverses positions autour d'un détecteur en germanium à puits (type p), et en calculant le rapport efficacité expérimental sur efficacité simulé en utilisant le code Geant4. Nous notons que pour un détecteur HPGe de type P, l'évolution de l'épaisseur de la couche morte la plus importante se situe dans la surface extérieure du Ge-cristal, en raison du chevauchement des phénomènes physiques suivants : la déficience du champ électrique et la diffusion des atomes de lithium dans la même zone.

L'originalité de ce travail, consiste à étudier la topographie des couches morte d'un détecteur en germanium de type N en fonctionnement depuis plus de deux décennies, en tenant compte de toutes les zones et surfaces du cristal (intérieure, extérieure, haut et bas).

En effet, dans un détecteur germanium de type-N, l'épaisseur de la couche morte et son évolution dans le temps est plus compliquée et différente de celle du détecteur de type-P. L'approche adoptée dans ce travail est originale dans la mesure où l'étude de l'évolution de la couche morte du cristal en germanium est élaborée sur la base d'une variation spatiale réaliste, qui reflète le mode et les conditions d'utilisation du détecteur à semi conducteur. Ainsi, cette approche est fondée d'abord sur les rapports des efficacités mesurées (expérimentales) et celles calculées (MCNPX), en utilisant des sources gamma, quasi-punctuelles, mono-énergétiques, dans une position fixée à 210 mm par rapport au capot du détecteur, et d'autre part sur la base des informations détaillées sur la physique des détecteurs à semi-conducteurs et de leur mode de fonctionnement comme il est détaillé ci-dessous.

II.1.4.3 Stratégie d'optimisation de la couche morte du Crystal en germanium

Dans cette vision, nous avons considéré que le Crystal en germanium est composé de quatre zones mortes majeurs comme il est indiqué dans la figure II-15.

1. La surface latérale externe du Crystal
2. La surface intérieure du Crystal (trous du Crystal)
3. La surface inférieure externe du Crystal (en bas du Crystal)
4. La surface supérieure du Crystal

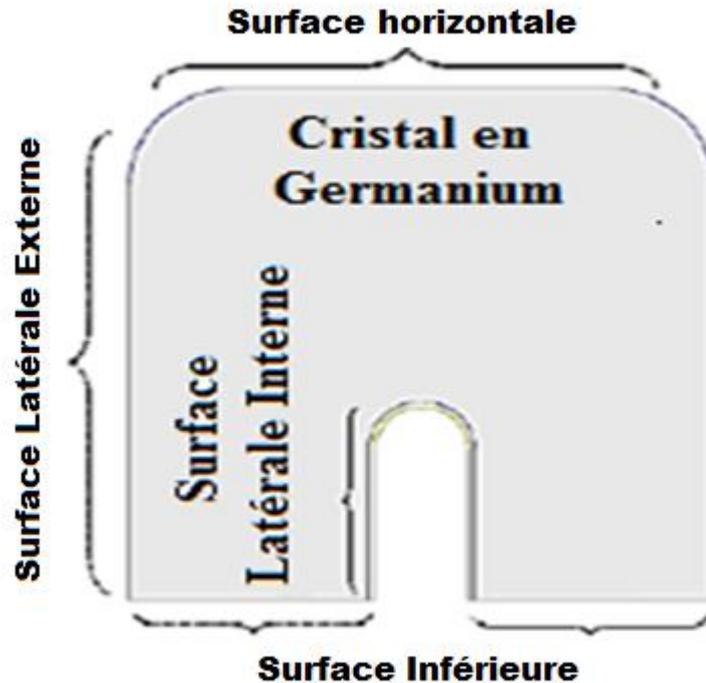


Figure II-15: Zones morte majeurs considérées du cristal en germanium

Chaque zone morte doit être étudiée séparément comme il est détaillé ci-dessous selon :

- La sensibilité de la zone morte ;
- La surface de la zone morte mise en jeux ;
- La proximité de la zone morte aux rayonnements incidents.

II.1.4.3.1 La surface horizontale supérieure du cristal

Nous avons imaginés cette zone comme étant composée de dix cylindres creux de diamètre croissant entrelacés entre elles du plus petit jusqu'au plus grand, recouvrant ainsi toute la surface supérieure du cristal (Voire figure II-16). L'ajustement de l'épaisseur de cette zone morte a été réalisé en faisant varier de façon arbitraire la hauteur de chaque cylindre creux, et en minimisant le rapport entre l'efficacité expérimentale et l'efficacité simulée.

II.1.4.3.2 La surface latérale externe du cristal

Cette zone morte à été imaginée comme étant composé de six cylindres creux posés l'un au-dessus de l'autre le long de la hauteur du cristal. Ces cylindres ont la même hauteur et le même rayon extérieur que le cristal du détecteur (Voire figure II-16). L'ajustement de cette

zone morte se fait en faisant varier de façon aléatoire le rayon interne pour chaque cylindre creux, et en minimisant le rapport entre l'efficacité expérimentale et l'efficacité simulée.

II.1.4.3.3 La surface latérale interne du cristal

En sachant que la longueur et le diamètre du cristal sont les paramètres les plus influents pour décrire l'efficacité du détecteur; la zone morte représentée par la surface cylindrique interne "trou" a été imaginée comme étant constituée d'un seul cylindre creux (Voire figure II-16). En effet, en raison du faible diamètre du creux de cristal par rapport au diamètre du cristal de Germanium, et compte tenu aussi que cette zone ne soit pas exposée directement aux radiations, nous l'avons modélisé par un seul cylindre creux avec un rayon interne égal au rayon du creux du cristal du détecteur. L'ajustement de la couche morte dans cette zone a été réalisé en faisant varier aléatoirement le rayon extérieur du cylindre creux et en minimisant le rapport entre l'efficacité expérimentale et l'efficacité simulée.

II.1.4.3.4 La surface inférieure du bas du cristal

Comme la surface inférieure du cristal est complètement passive (non affectée à la diffusion d'ions), et a également une petite surface par rapport au diamètre et la longueur du cristal; de même la zone morte inférieure du cristal a été modélisée avec seulement un cylindre creux (voire fig. II-16). L'ajustement a été effectué en faisant varier la hauteur de ce cylindre et en minimisant le rapport entre l'efficacité expérimentale et l'efficacité simulée.

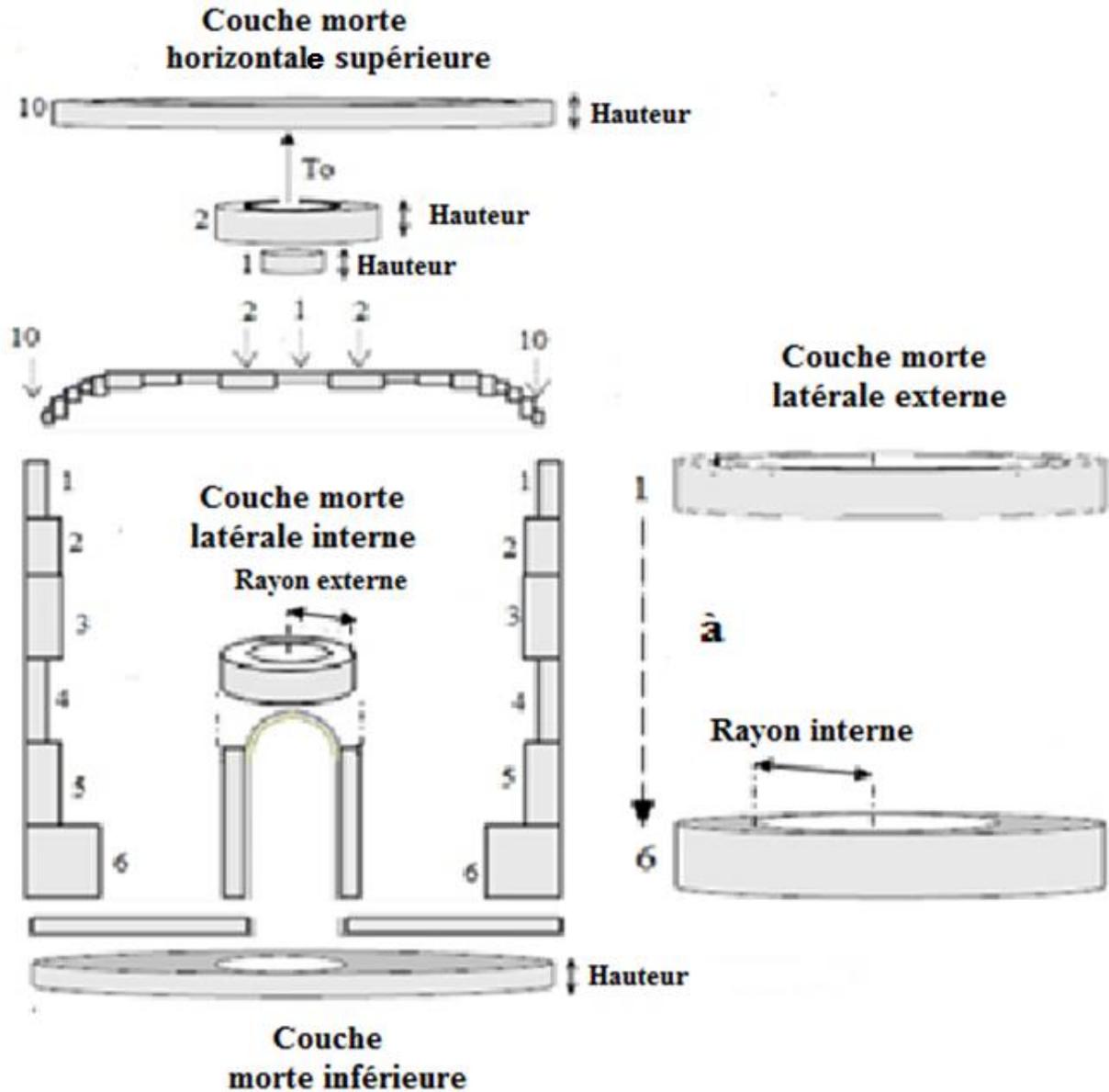


Figure II-16: Description des zones mortes majeurs DL: Vue schématique de la couche morte supérieure, externe, interne et inférieure du cristal.

Comme indiqué précédemment, la topographie de chaque zone morte a été établit sur la base des informations détaillées relatives à la physique du détecteur semi-conducteur et de son mode de fonctionnement, et en minimisant le rapport entre l'efficacité mesurée (expérimentale) et calculé (MCNPX).

En effet, en tenant compte des travaux ultérieurs de F. Hernández et Bak et al, qui ont montrés que la partie la moins efficace d'un détecteur est dans les coins supérieurs du cristal, en raison de l'efficacité de la collection de charge qui a une valeur minimale au voisinage de

l'angle en haut du cristal; due à l'intensité du champ électrique la plus faible dans cette partie du cristal.

D'autres auteurs ont étudiés les propriétés des événements limitrophes à la zone de contact en lithium; Clouvas et al ont notés que la mesure d'efficacité pour leur détecteur a conduit à évaluer une épaisseur de la couche morte à proximité de la zone de contact en lithium, qui est cinq fois supérieure à la valeur fournie par le fabricant. Rodenas et al; ont montrés que la zone de contact en lithium diffuse des atomes de lithium dans les profondeurs du volume actif du cristal au fil du temps, ce qui conduit à modifier à la fois le volume actif du détecteur et l'efficacité de détection pour les photons de basses énergie (< de 800 keV). Huy et al, ont aussi montrés que la profondeur de diffusion de la couche de lithium augmente avec l'âge du détecteur de HPGe, en conséquence elle est assez importante pour les anciens détecteur, en raison de la diffusion des atomes de lithium dans le temps.

Dans le présent travail, ces deux phénomènes qui contribuent à la réduction de l'efficacité du détecteur à travers le temps ont donc été adoptés, en sachant que le détecteur utilisé dans ce travail est très ancien (plus de 20 ans de fonctionnement).

Sur la base des conclusions citées ci-dessus, notre stratégie d'optimisation a été construite sur l'hypothèse que la diminution de l'efficacité est principalement due a:

- La déficience du champ électrique près de l'encoignure avant du cristal (correspondant aux cylindres 1 à 2 et 5 à 10 qui comprennent respectivement la surface latérale externe du cristal et la surface horizontale supérieure du cristal (Voire figure II-16).
- L'efficacité est également réduite en raison de la diffusion en continue des atomes de lithium dans le temps (à proximité de la surface latérale interne de la figure II-16).

Il est important de noter que la partie la plus difficile dans le réglage de la couche morte est située dans la partie supérieure de la surface du cristal, où l'efficacité de comptage est très sensible à toutes variations de l'épaisseur de la couche morte. Bochud et al; ont observés qu'avec le diamètre et la longueur du cristal, c'est la zone morte en haut du Crystal qui affecte le plus l'efficacité du détecteur. Une faible variation de l'épaisseur de la couche morte dans cette région conduit à une grande variation de la valeur d'efficacité. Par conséquent, si la zone en haut du Crystal est bien ajustée, il est moins difficile d'ajuster les autres zones mortes du cristal.

Dans cette logique nous avons commencé notre optimisation par l'ajustement de la zone morte en haut Crystal, en utilisant la source de l'Am-241 dont l'énergie est de 59.54 keV à une distance de 21 cm du capot du détecteur. Nous avons commencé notre ajustement en donnant une valeur maximal à l'épaisseur de la couche morte en haut du Crystal qui correspond à la hauteur des cylindres (de 5 à 10) constituant cette zone, qui est caractérisée par une mauvaise collection de charge. Une valeur maximal de l'épaisseur de la couche correspond à une absorption totale d'un photon de 59,54 keV dans le matériau de germanium y compris la contribution des électrons secondaires, cela correspond à une augmentation graduelle des hauteurs des cylindres de 5 à 10 jusqu'à ce que l'efficacité cesse de diminuer malgré l'augmentation de l'épaisseur de la couche morte. Après plusieurs réglages, la valeur moyenne de la hauteur des cylindres de 5 à 10 a été optimisée à 4,77 mm. Afin d'affiner en permanence le rapport efficacité expérimentale sur efficacité calculée qui doit être inférieure à 10%, des simulations ont été réalisées en faisant varier lentement avec 0,01 mm à chaque fois, de la hauteur du cylindre 1 à 4 aléatoirement, jusqu'à l'obtention d'un rapport entre l'efficacité MCNPX sur l'efficacité expérimentale inférieure à 5%. Ainsi, une valeur moyenne de 50 μm d'épaisseur de la couche morte au milieu de la partie supérieure du cristal, qui correspond à la hauteur des cylindres de 1 à 4 est atteinte.

En utilisant la source de Cs-137 dont l'énergie est de 662 keV à une distance de 21 cm du capot du détecteur, la seconde phase d'optimisation commence par l'affectation au rayon extérieur de la surface intérieure (près du contact de lithium), une valeur initiale de 3 mm dans une première étape, qui est de cinq fois la valeur du fabricant, comme cela a été estimé pour les détecteurs HPGe très anciens (aged detector) par Clouvas et al. De même, une valeur proche de 5 mm a été affectée au rayon intérieur des cylindres 1 et 2 appartenant à la surface externe (près des bords arrondis), compte tenu de la déficience du champ électrique dans cette région. Nous poursuivons cet ajustement en augmentant le rayon externe correspondant à la surface cylindrique intérieure (près du contact de lithium), ainsi que le rayon interne des cylindres 1 et 2 appartenant à la zone latérale externe, jusqu'à ce que le rapport MCNPX/expérimentale se rapproche de 10%.

Afin réduire le rapport MCNPX/Expérimentale au dessous de 5%, plusieurs simulations ont été réalisées en faisant varier lentement et de manière aléatoire la hauteur du cylindre de la surface inférieure externe, ainsi que le rayon interne des cylindres (3-6) appartenant à la surface cylindrique extérieure. Finalement, une valeur moyenne de l'épaisseur de la couche morte affectée à la surface intérieure est optimisée à 6 mm. Tandis que les

valeurs moyennes de 4,23 mm et de 1 mm ont été attribuées respectivement à l'épaisseur de la couche morte de la surface cylindrique extérieure et de la surface inférieure.

Dans la figure II-17, nous avons tracé la courbe de l'efficacité simulée (MCNPX) du détecteur HPGe, sur la base du modèle optimisé du détecteur. La courbe d'efficacité expérimentale est aussi tracée en utilisant les sources ponctuelles d'Am-241, Cs-137 et de l'Eu-152, à une distance source détecteur de 210 mm.

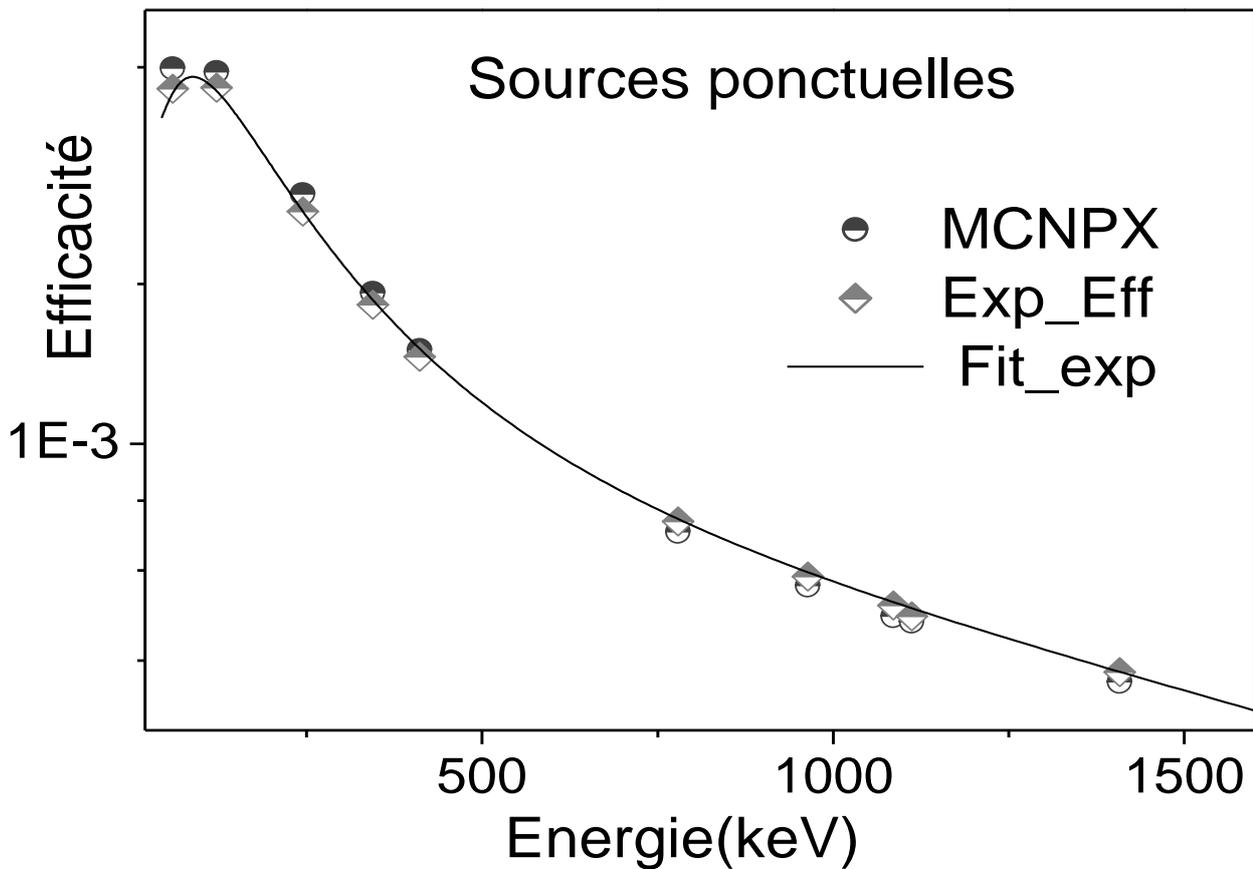


Figure II-17: Courbe de l'efficacité expérimentale du détecteur HPGe, comparée avec la courbe de l'efficacité MCNPX (modèle optimisé du détecteur).

La comparaison des efficacités expérimentales et MCNPX obtenues dans les différentes phases de l'optimisation du modèle de cristal de Ge est représentée dans figure II-8

A noter que l'effet de l'ajustement de la couche morte sur le rendement est plus important que l'effet de la courbure du cristal.

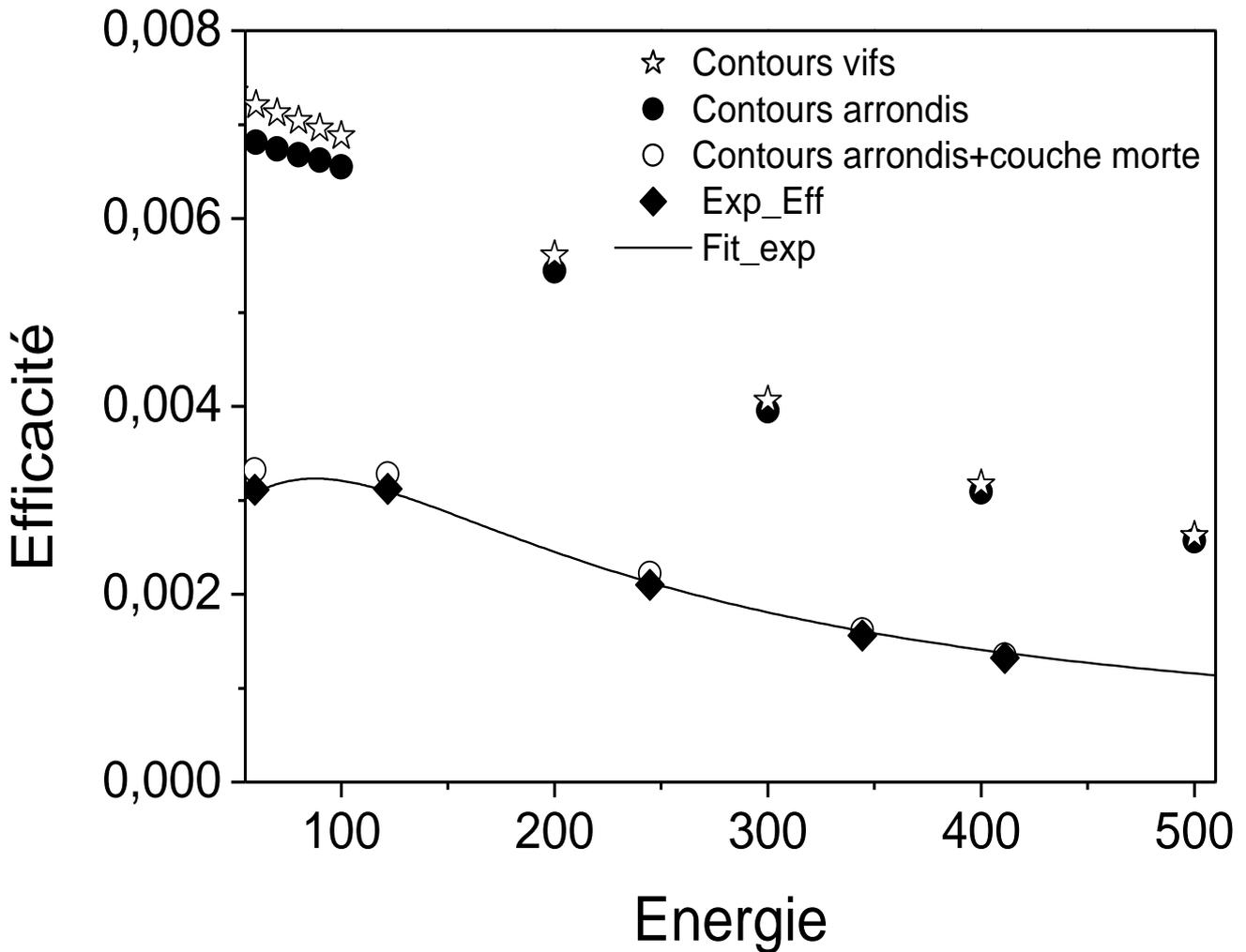


Figure II-18: Courbe d'efficacité expérimentale du détecteur HPGe comparée aux résultats MCNPX d'un cristal en germanium dont les bords supérieurs sont vifs (étoiles) et arrondis (cercles pleins) et d'un détecteur optimisé (les bords avant arrondis et la couche morte est ajustée) (cercles vides).

La figure .II-19 montre la différence relative entre l'efficacité expérimentale et les résultats obtenus par simulation MCNPX en utilisant :

1. Le modèle basé sur les dimensions du détecteur délivré par le fabricant.
2. Le model basé sur les dimensions optimisés du détecteur

Nous notons que pour le modèle optimisé, un écart moyen de 3% est atteint sur la gamme d'énergie de 50 keV à 1500 keV.

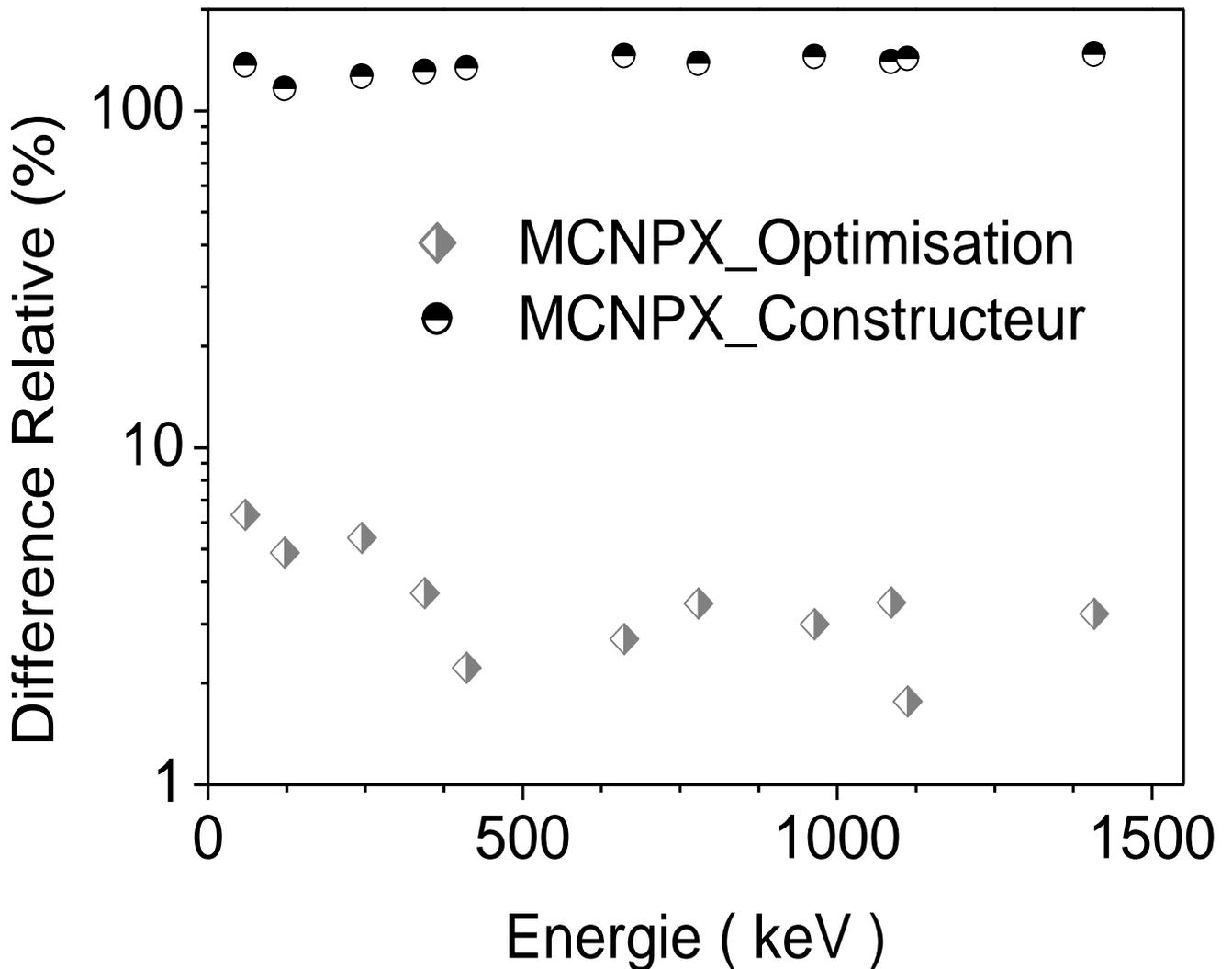


Fig. II-19: Erreurs relatives entre les efficacités expérimentales et les efficacités simulées pour les sources ponctuelles (Am241, Cs137 et la source multi gamma d'Eu152)

Les résultats exprimés par les figures II-17, 18 et 19 montrent le bon accord entre les mesures expérimentales et les calculs MCNPX de l'efficacité de détection pour les énergies des photons de 59,54 keV à 1400 keV, en utilisant des sources ponctuelles positionnées à une distance fixe de 21 cm par rapport au capot du détecteur. Nous notons que les calculs de l'efficacité de détection effectués par le code MCNPX sont basés sur le modèle optimisé (ajustement à la fois de l'épaisseur de la couche morte et des bords arrondis du cristal) du détecteur.

La représentation MCNPX de la géométrie optimisée du détecteur, en particulier le cristal en germanium et le cryostat en aluminium, sont représentée en coupe transversale dans le sens de la longueur sur la Figure II-18.

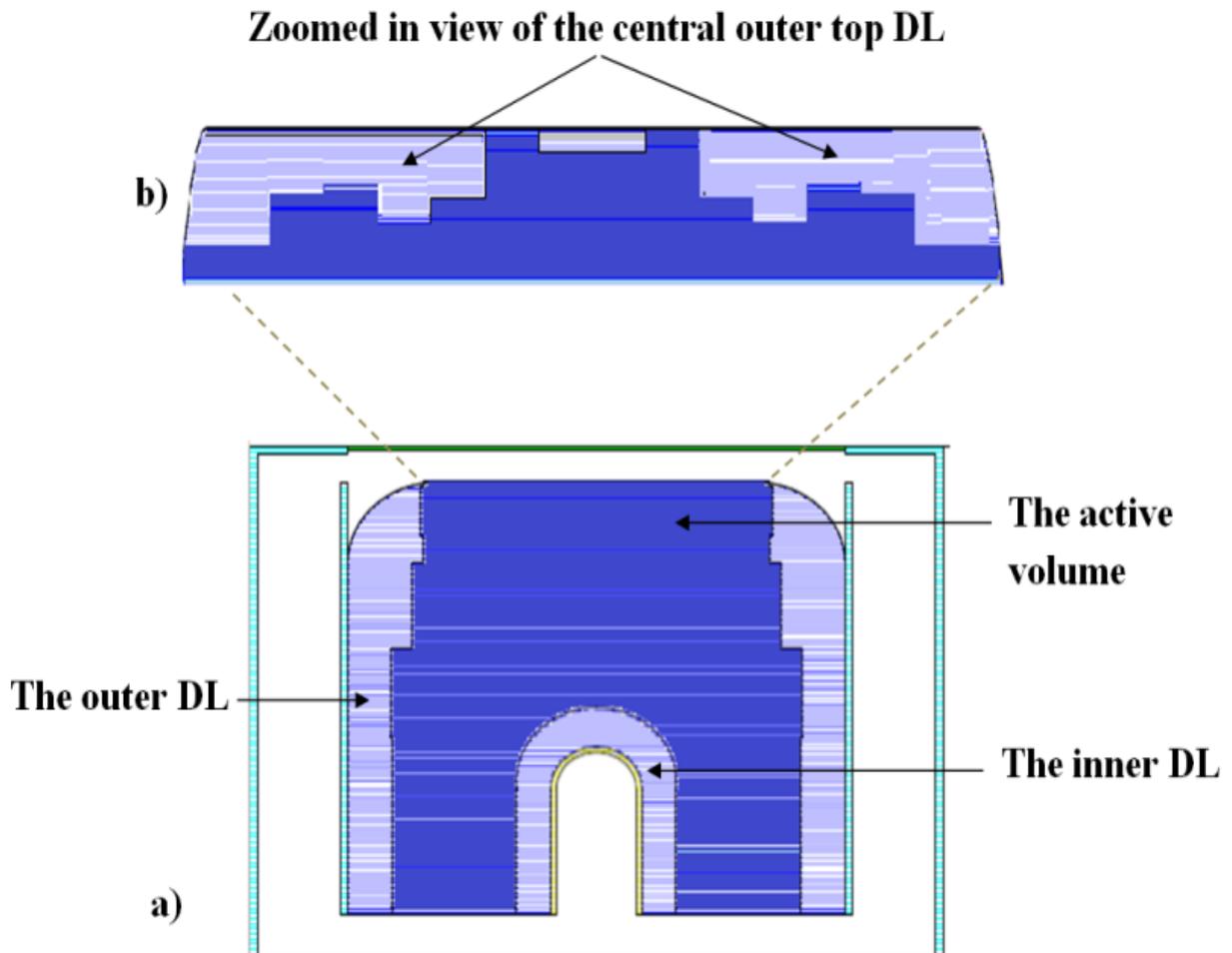


Figure II-18: Vue de la géométrie optimisée du détecteur HPGe, générée par le code MCNPX Vised : Coupe transversale du cryostat et du cristal en Germanium: (a) une vue plein écran, (b) une vue zoomée. A noter que la vue représentée en (b) ne couvre que la surface supérieure centrale du Ge-cristal qui est délimitée par des lignes en pointillées.

II.1.4.4 Etude de la réponse spectrale

Dans le but de visualiser l'effet de l'optimisation de la géométrie du détecteur sur la réponse spectrale, nous avons comparé les spectres expérimentaux à ceux obtenus par la simulation MCNPX en se basant d'une part sur la géométrie du détecteur fournit par le constructeur, et d'autre parts sur le model du détecteur que nous avons optimisé dans ce travail (**chapitre II**), et cela on utilisant trois sources radioactives ponctuelles comptés à 21cm par rapport au capot du détecteur dont deux sources mono énergétique ^{137}Cs et ^{241}Am , et une source multi- γ de ^{152}Eu (voir tableau II-5).

Les sources utilisées ne sont pas choisit fortuitement, en effet, la source de l'Am-241 avec une unique émission gamma de 59.54 keV pour vérifier la réponse spectrale du modèle optimisé du détecteur sur les basses énergies, de même pour la source mono-énergétique du Cs-137 avec une énergie égale à 661.66 keV pour vérifier la réponse du modèle optimisé du détecteur sur les émissions gamma de moyenne énergie, et finalement nous avons choisis d'utiliser la source multi-gamma de l'Eu-152 qui a un schéma de décroissance très complexe avec plusieurs émissions X et également plusieurs émissions gamma, afin de tester la réponse spectrale du modèle optimisé du détecteur sur une large gamme d'énergie qui s'étale de 30keV jusqu'à 1500 keV.

Dans le but d'effectuer une comparaison entre les résultats expérimentaux et ceux obtenus par simulations, nous avons procédé à la simulation de la réponse spectrale pour les trois sources citées précédemment. Le Tally F8 du Code MCNPX nous a permit d'obtenir les distributions spectrales des photons en fonction de l'énergie à l'intérieur du détecteur.

Afin de réaliser des calculs MCNPX précises pour la réponse spectrale du détecteur HPGe, il est indispensable de contrôler minutieusement les conditions expérimentales qui ne sont pas simulables, et de savoir par la suite les accommoder pour les injecter dans le code MCNPX; comme le bruit électronique, la dérive des paramètres de fonctionnement, et d'autres fluctuations de traitement des impulsions électroniques du montage expérimental (analyseur multi-canal MCA). En-effet, afin de surmonter les limitations du code MCNPX à simuler ses paramètres; le code offre des cartes supplémentaires pour compenser les effets électroniques et les conditions physiques qui ne sont pas pris en considération par la simulation.

Premièrement, la réponse spectrale à l'aide du code MCNPX doit être normalisée en multipliant les efficacités avec la somme des probabilités d'émissions inscrite dans le spectre d'émission. Par conséquent, le premier paramètre supplémentaire à introduire dans l'input du

code MCNPX est la distribution d'énergie de la source Dx, qui se réfère aux cartes d'informations introduites S1x et SPx. Ces dernières cartes représentent respectivement; l'information de la source contenant les énergies des émissions X et gamma exprimées en MeV, ainsi que les probabilités d'émissions de la source à l'énergie (x) correspondante.

Dans le modèle MCNPX nous avons aussi introduit une carte de tally spéciale qui est ; FTn, avec l'option d'élargissement de l'énergie suivant une gaussienne en utilisant la carte GEB (Pelowitz, 2008). Cette carte particulière est très importante dans la mesure où elle permet de définir la résolution du détecteur (MeV) dans la gamme d'énergie qui nous intéresse afin d'obtenir un spectre réaliste. En effet, dans les spectres expérimentaux, les lignes d'énergie ont une forme gaussienne, influencées par les effets tels que le bruit de l'électronique, les variations dans l'efficacité de la collection de charge dans les différentes parties du cristal, ainsi que la dérive des paramètres de fonctionnement. Avec le code MCNPX, ces limitations ont été résolues par la détermination des coefficients qui sont calculés sur la base d'une méthode d'ajustement sur le spectre mesuré expérimentalement. Ainsi, la largeur du gaussien est relié à la largeur à mi-hauteur (FWHM) par l'expression suivante :

$$A = \frac{FWHM}{2\sqrt{\ln 2}} \dots\dots\dots \quad (II-6)$$

La FWHM est calculée sur la base des valeurs des résolutions expérimentales sur un large spectre d'énergie.

L'énergie du pic à mi hauteur est représentée graphiquement en fonction de la valeur de FWHM, et les données ont été ajustées (extrapolation) selon l'équation II-7, en utilisant le logiciel ORIGIN 7.

$$FWHM = a + b\sqrt{E + cE^2} \quad (II-7)$$

Où

E est l'énergie des rayons gamma mesurée en MeV; a (MeV), b ($\text{MeV}^{1/2}$) et c (MeV^{-1}) sont des paramètres obtenus à partir de la remise en forme (ajustement). Ces derniers

sont injectés par la suite dans le fichier d'entrée du code MCNPX pour simuler la résolution du détecteur en fonction de l'énergie.

Comme le montre la figure II-19, la fonction d'ajustement de la largeur à mi hauteur FWHM (E) en fonction de l'énergie des photons incidents est basée sur un ajustement expérimental de quatorze points dans la gamme d'énergie de 30 keV à 1500 keV, où, la courbe d'ajustement selon la fonction mathématique introduite par la carte de GEB est représentée conjointement avec les coefficients d'ajustement FWHM, ainsi que l'erreur type correspondante.

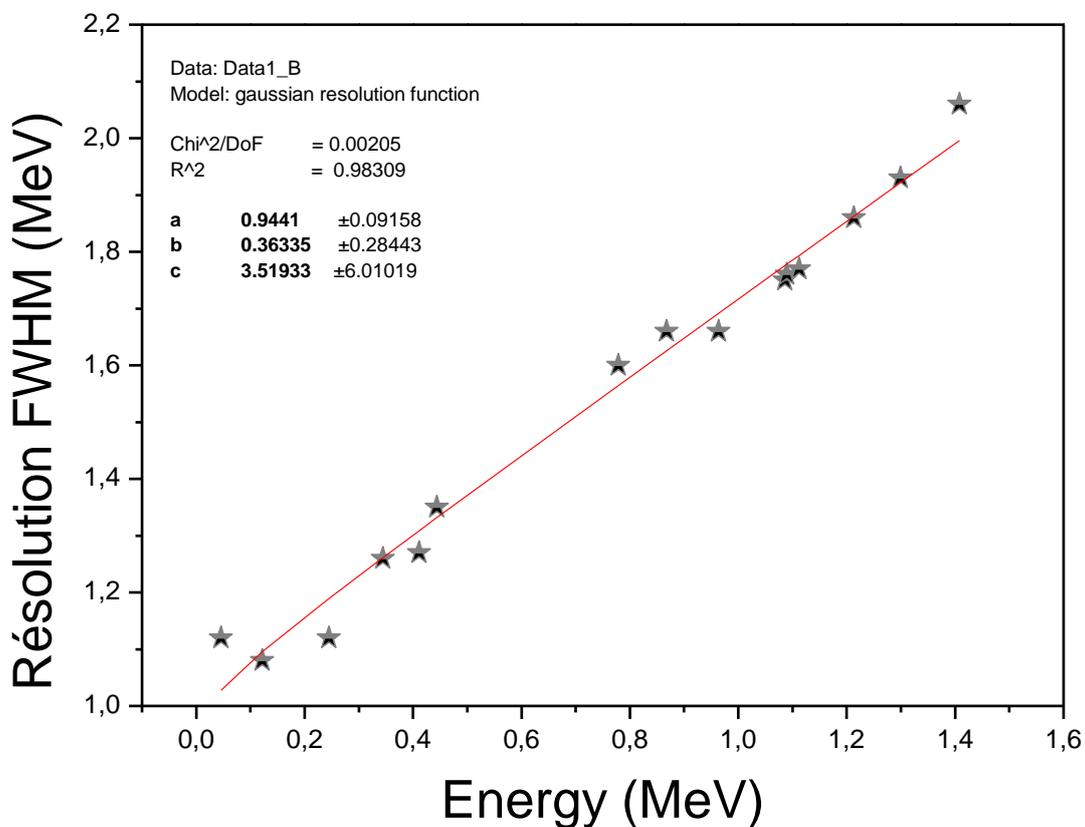


Figure II-19: Diagramme de la résolution (FWHM) en fonction de l'énergie gamma

Par conséquent, les trois coefficients; $a = 0.9441 \text{ E-4}$, $b = 0,363 \text{ E-4}$, et $c = 3,5$ sont injectés l'un après l'autre dans le fichier d'entrée du code MCNPX.

Afin de faciliter la comparaison directe du comptage du spectre calculé par rapport au spectre expérimentale, il est nécessaire de prendre en compte le nombre total réel des

émissions par les calculs de MCNPX. Par conséquent, nous avons introduits la notion du poids des photons (WGT) dans la carte de définition de la source dans le code MCNPX. Cela est effectué en prenant en compte tous les photons émis pendant le temps de comptage (temps expérimental de la mesure), L'expression (II-8) exprime la formule mathématique du poids de la source, qui inclut le temps de comptage expérimental, les probabilités d'émissions de la source utilisée, ainsi que l'activité totale de la source d'étalonnage utilisée au moment des mesures.

$$WGT = \sum_{\text{radionuclide}(r)} A_r \left(\sum_{\text{ray}(i)} I_{ri} \right) * t \quad (\text{II-8})$$

Où, t est le temps de comptage exprimé en secondes, I est la probabilité d'émission, et A est l'activité totale du radionucléide.

Selon l'expression mathématique (II-8), la valeur du poids (WGT) pour les trois sources utilisées (voire le tableau II-5), seront injectées dans la carte SDEF.

Source	Activité	Poids (WGT)
Am-241	3.844E+4 (Bq)	268828455
Cs137	4.79E+4 (Bq)	495082081
Eu-152	12.67 (µCi)	2917151

Table II-5: Activité des sources utilisées et leurs poids respectif dans le code MCNPX

La simulation du spectre MCNPX doit aussi prendre en charge l'étalonnage électronique de la chaîne gamma, conformément à l'étalonnage effectué expérimentalement. Cela est effectué en utilisant la carte En. Cette carte joue le rôle du module (MCA) analyseur multi-canal en expérimentale. La carte En permet le séquençage de l'énergie en fonction du canal correspondant, en fixant la limite inférieure par l'énergie qui correspond au premier canal, et la limite supérieure par l'énergie correspondante au dernier canal et on divisant par l'intervalle d'énergie en nombre de canal. Ainsi, suivant les conditions expérimentales

électroniques initiées par l'analyseur multi-canal (MCA), nous avons séquenciez les calculs MCNPX dans les différents canaux sur la base de la calibration expérimentale du détecteur de 0.3 keV/ Canal pour 4096 canaux utilisés.

Le spectre de réponse du détecteur analysé par le logiciel Gamma Vision et transféré par la suite au logiciel Origin 7 afin de permettre sa comparaison avec le spectre simulé dans la même échelle. Pour mieux visualiser la comparaison, les spectres simulés ont été décalés de 10 keV à droite.

Les résultats obtenus pour les sources d' ^{241}Am , ^{137}Cs , ^{152}Eu sont présentés dans les figures III- 20, 21 et 22. Les trois figures montrent que la simulation à l'aide du code MCNPX, qui est basée sur le modèle optimisé du détecteur présente une très bonne concordance avec l'expérimentale. Contrairement à la simulation spectrale basée sur les dimensions du détecteur comme fournit par le constructeur, où on voit clairement un large décalage par rapport aux spectres expérimentaux, à la fois en comptage dans les pics d'absorption totale que dont le plateau Compton. On peut donc conclure que le model du détecteur ajusté dans le présent travail est réellement optimisé, et que la simulation par le code MCNPX prend en compte correctement chaque paramètre entrant dans le calcul, pas seulement les interactions physiques avec les différents matériaux que constitue le détecteur, mais aussi les fluctuations électroniques telle que le bruit électronique, la variation du champ électrique, la collection de charges, ainsi que la fonction de l'échantillonnage qu'effectue le module MCA (analyseur multi canal).

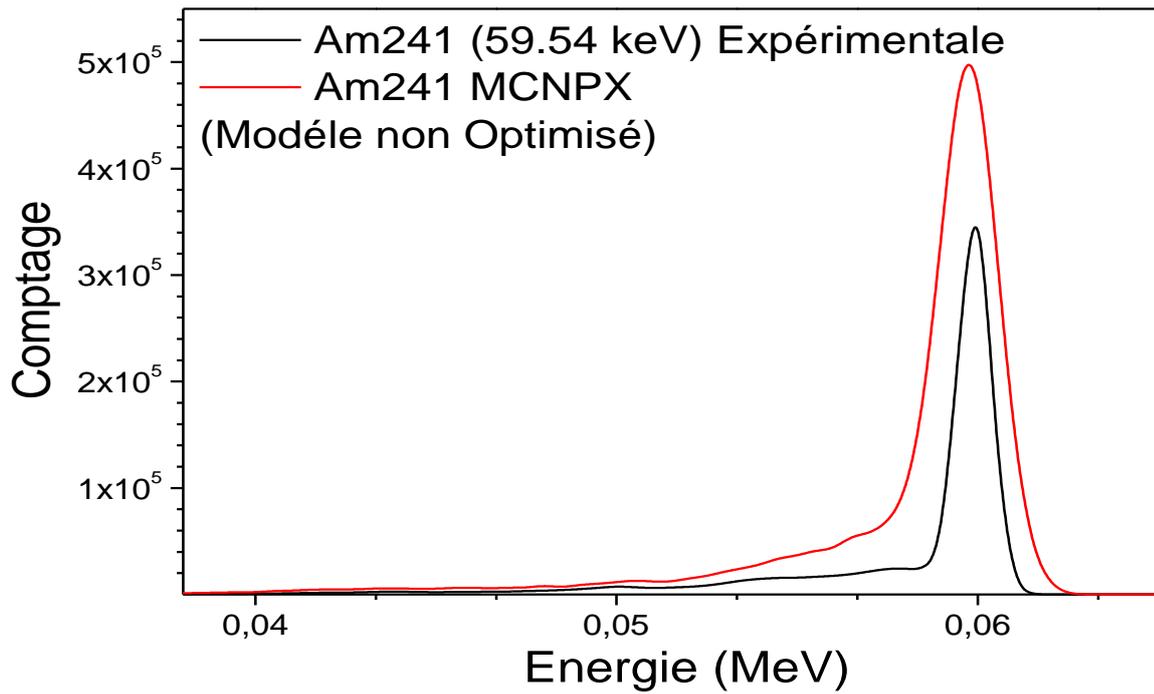


Figure II-20: Spectre Am-241; Expérimentale et MCNPX (Modèle non optimisé)

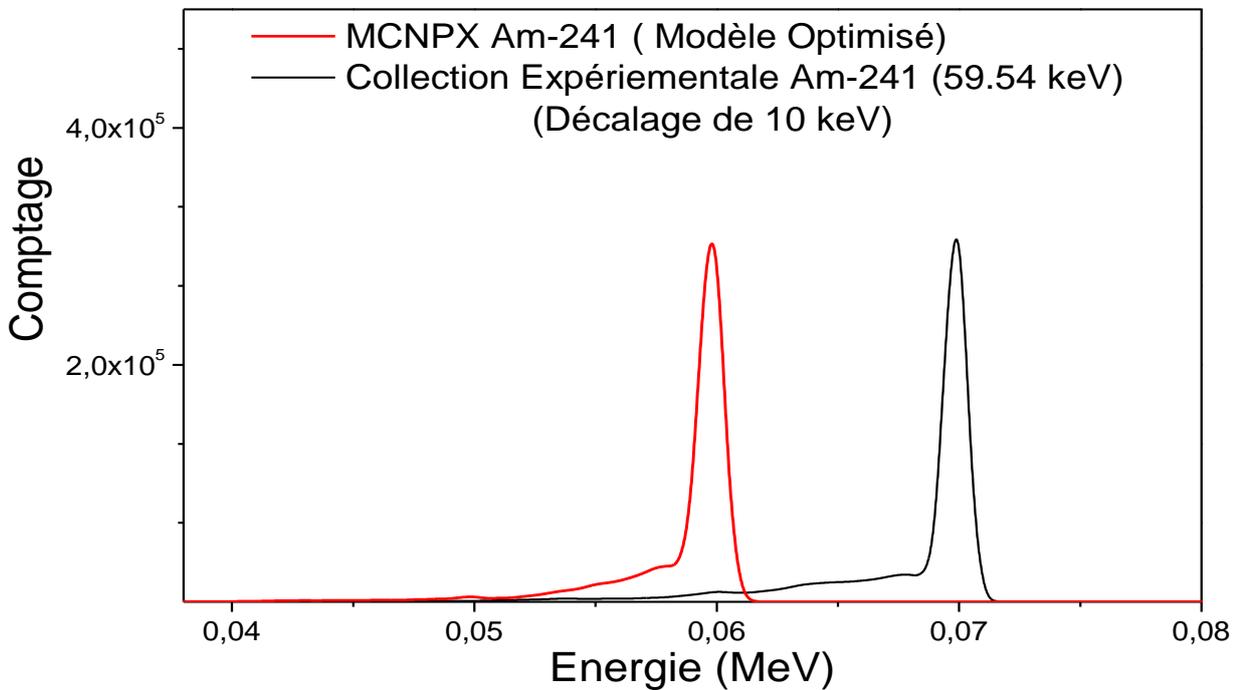


Figure II-21: Réponse spectrale (Am-241), Expérimentale et MCNPX (Modèle optimisé)

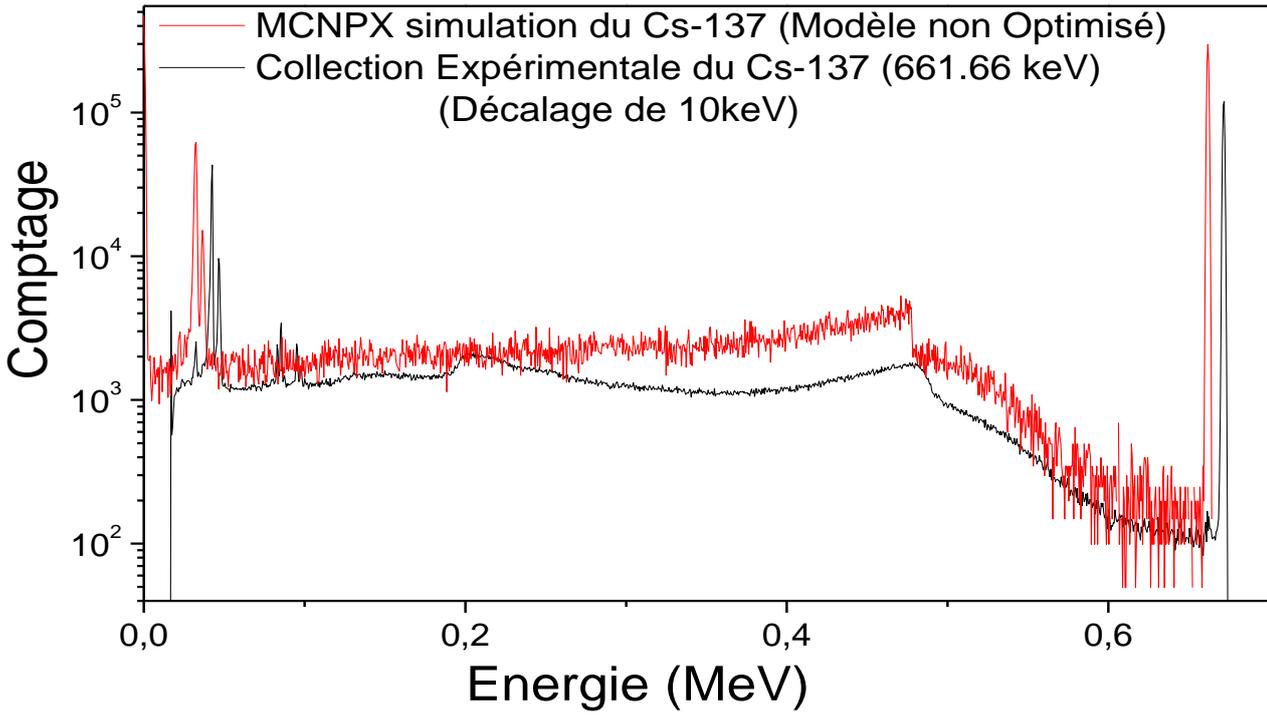


Figure II-22: Spectre Cs-137, Expérimentale et MCNPX (Modèle non optimisé)

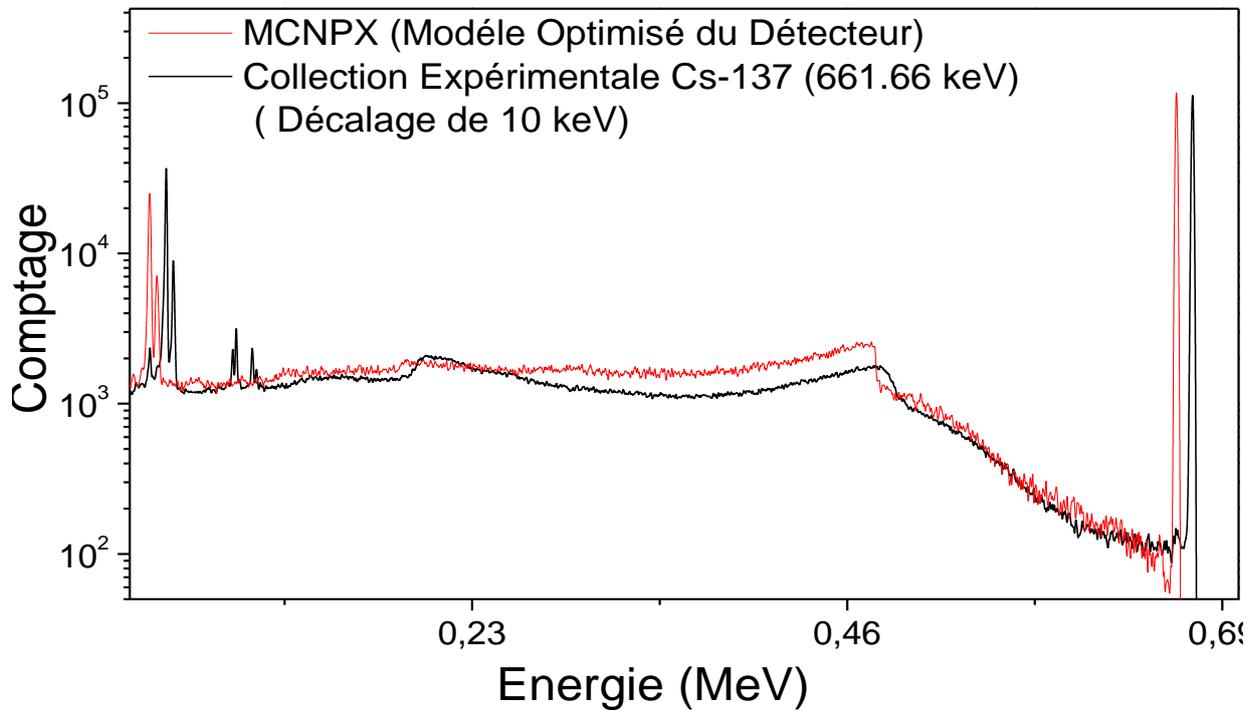


Figure II-23: Spectre Cs-137, Expérimentale et MCNPX (Modèle optimisé)

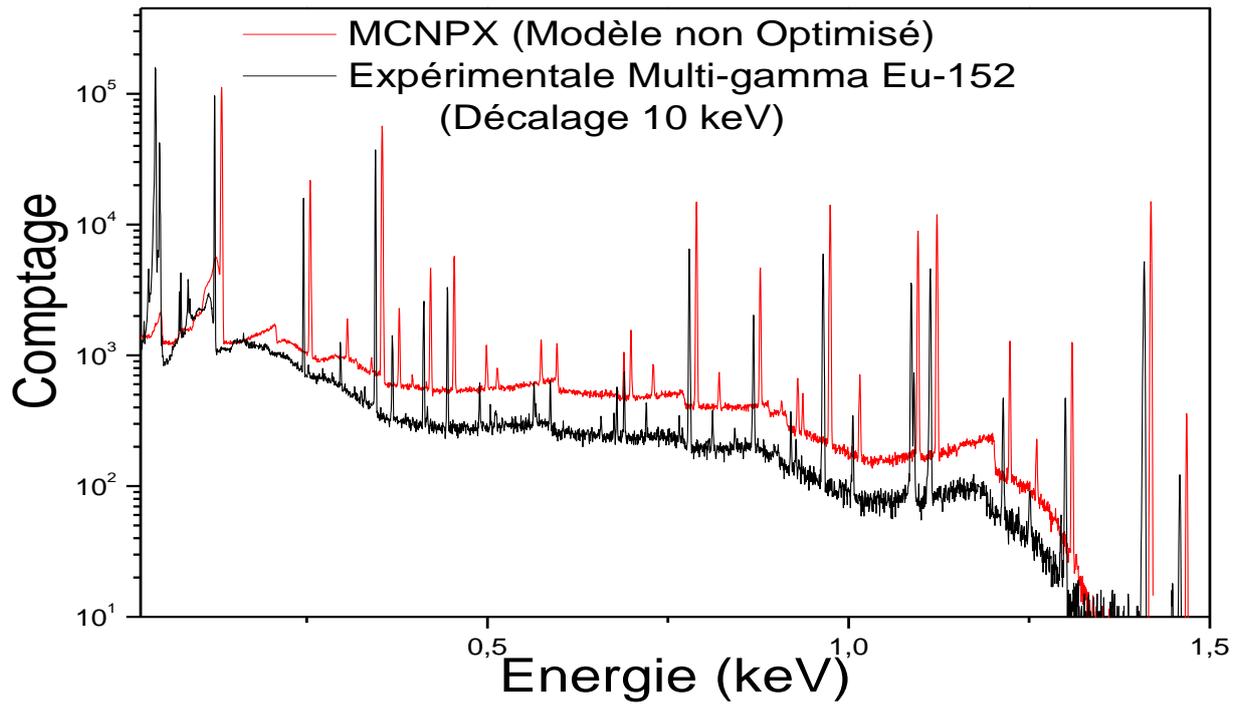


Figure II-24: Spectre Eu-152, Expérimentale et MCNPX (Modèle non optimisé)

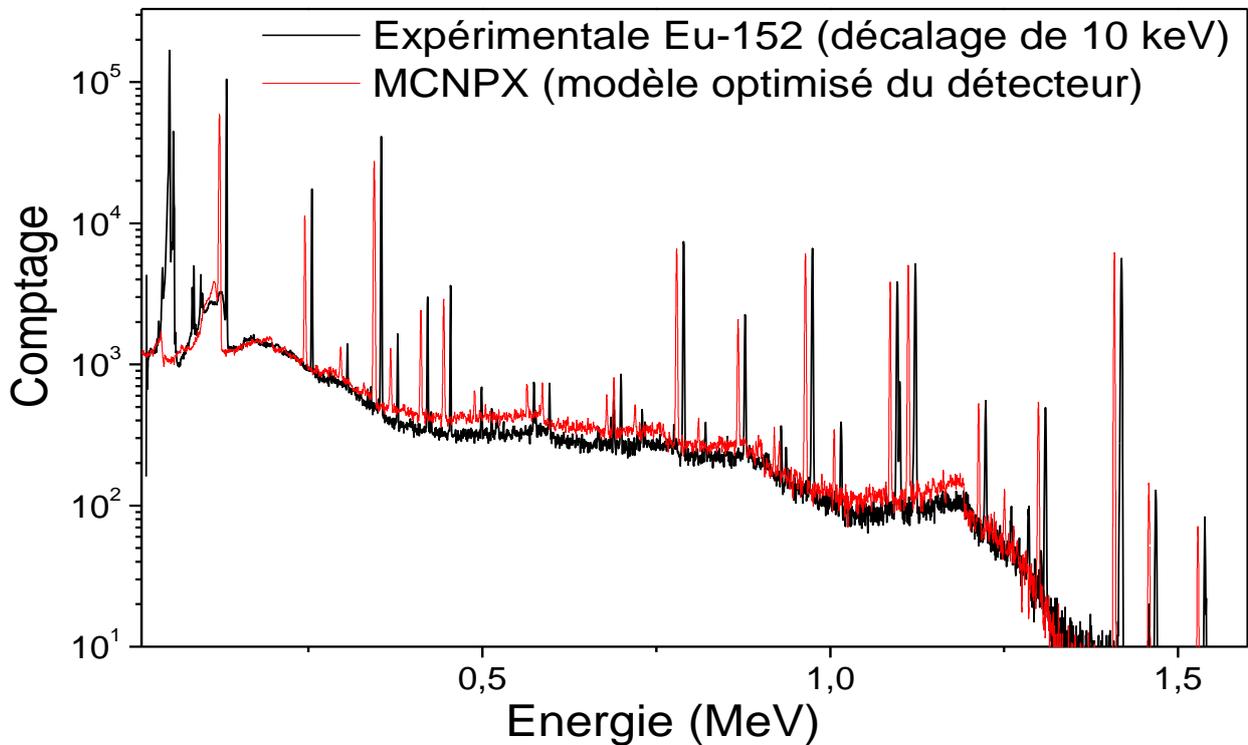


Figure II-25: Spectre Eu-152, Expérimentale et MCNPX (Modèle optimisé)

II.1.5 Validation du modèle optimisé du détecteur

Pour vérifier la fiabilité du modèle MCNPX de la géométrie optimisé du détecteur ; l'efficacité du détecteur a été vérifié en changeant deux paramètres qui sont la forme de la source et de la distance source-détecteur. L'efficacité du détecteur a été mesurée avec des sources dont la forme géométrique correspond à des disques de rayon égale à 10 mm et de hauteur égale à 2mm, les sources utilisées sont des sources multi-gamma ^{133}Ba et ^{152}Eu , qui couvrent la gamme d'énergie de 50 keV à 1500 keV. La distance entre la source et le capot du détecteur a été choisit égale à 150 mm. Les efficacités MCNPX pour ces énergies (à partir de 50 keV à 1500 keV) ont été calculées en utilisant la géométrie optimisée du détecteur. La figure II-26 montre les courbes d'efficacité obtenus expérimentalement et par simulation MCNPX du détecteur de HPGe.

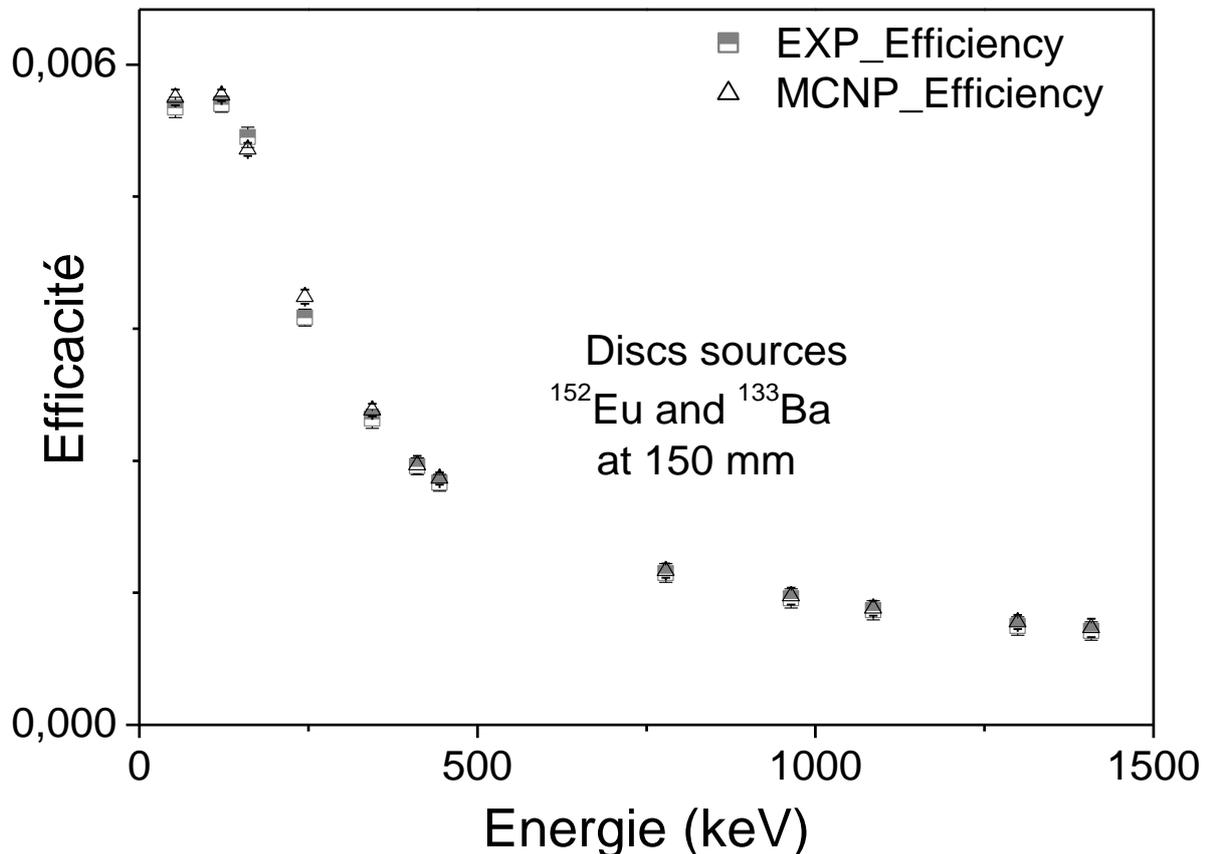


Figure II-26: Efficacité expérimentale et MCNPX, pour une source de forme disque à une distance source détecteur de 150 mm du capot du détecteur.

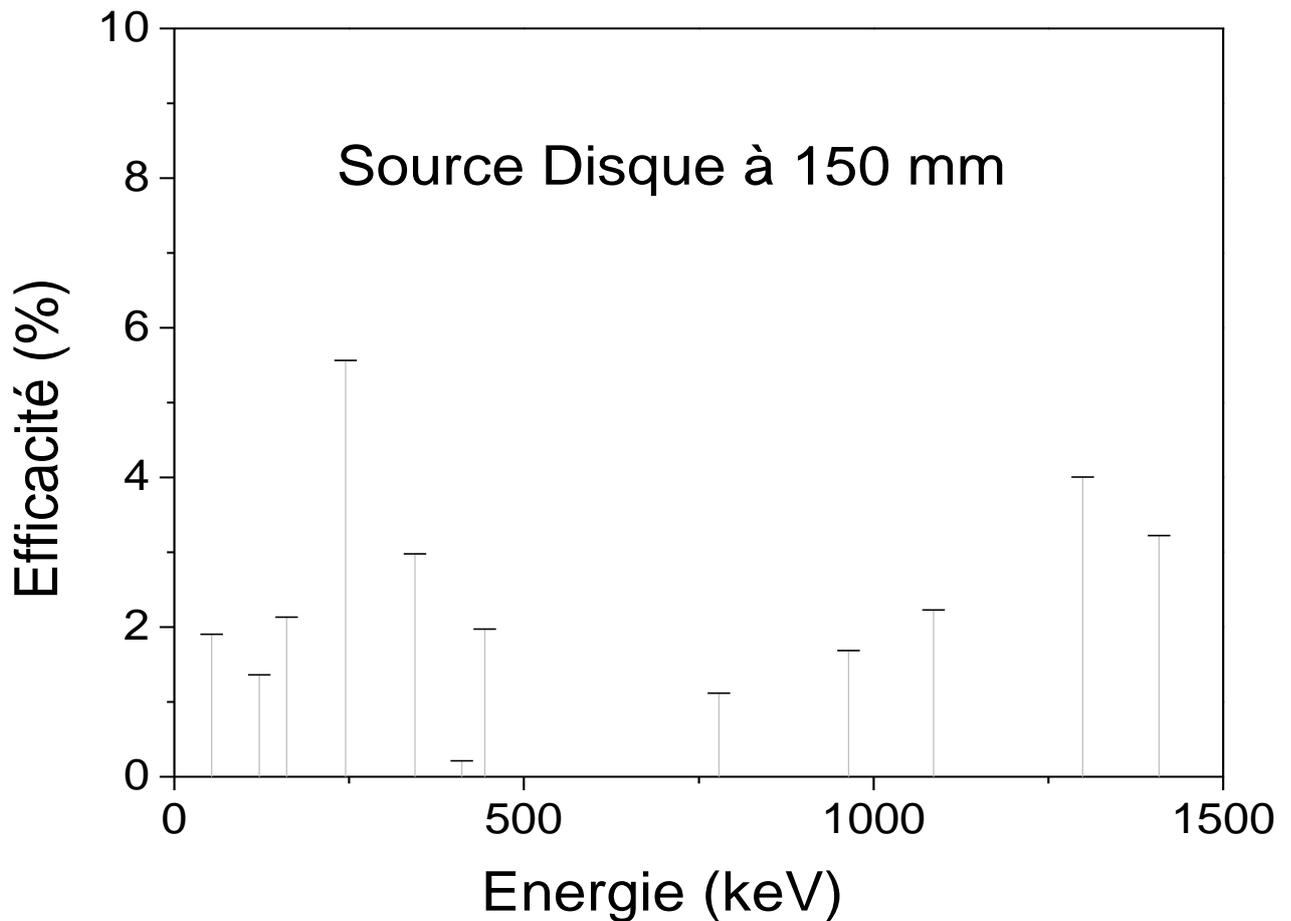


Figure II-26: La différence relative en efficacité (%) entre les valeurs expérimentales et les calculs MCNPX (les calculs MCNPX sont basées sur le modèle optimisé du détecteur).

En dépit du changement de la forme de la source; d'une source ponctuelle à une source de forme disque, ainsi que le changement de la distance source- détecteur, la figure II-26 montre un très bon accord entre les efficacités simulées et expérimentales. En effet, selon la figure II26, une différence relative moyenne inférieure à 2,36% entre les efficacités simulées obtenues à partir de la géométrie optimisée du détecteur, et les efficacités mesurées obtenues pour toute la gamme d'énergie. A ce niveau, on peut conclure que le modèle optimisé du détecteur est valide à la fois pour les sources ponctuelles et disques à des distances égale ou supérieure à 150 mm.

Néanmoins, pour effectuer des études environnementales caractérisées par une très faible radioactivité, le modèle optimisé du détecteur doit aussi être valide dans les conditions de mesures spécifiques à l'environnementale qui sont :

- Echantillons volumineux.
- Géométrie de mesure très réduite (déposée carrément sur le capot du détecteur).
- Matrice complexe des échantillons.
- Correction de l'effet de l'auto-absorption.
- Correction de l'effet des coïncidences des pics sommes.

Dans cet objectif, le prochain chapitre (chapitre III) va traiter la vérification de la réponse du modèle optimisé du détecteur dans les conditions de mesures environnementales.

Références bibliographiques

Références bibliographiques

- Aguayo, E., et al., 2013. Characteristics of signals originating near the lithium-diffused N+ contact of high purity germanium p-type point contact detectors. Nucl. Instrum. Meth. A 701, 176-185
- Andreotti, E., Hult, M., Marissens, G., Lutter, G., Garfagnini, A., Hemmer, S. von Sturm, K., 2014. Determination of dead-layer variation in HPGe detectors, Appl. Radiat. Isot.87, 331-335.
- Bak, H.I., Bae, Y.D., Kim, M.S., Choi, H.D., Peak energy shift dependent on source position in γ -ray energy measurement by using a closed-ended coaxial HPGe detector. Nucl. Instrum. Meth. A 366 (1YYJ) 334-337.
- Berndt, R., Mortreau, P., 2012. Monte Carlo modeling of a N-type coaxial high purity germanium detector. Nucl. Instrum. Meth. A 694, 341-347.
- BAUDRY G. Correction des effets de matrice par spectrométrie des rayonnements gamma de capture : application à la mesure par Interrogation Neutronique Active (I.N.A.). These Université de Strasbourg 2003.
- Boson, J., Agren, G., Johansson, L., 2008. A detailed investigation of HPGe detector response for improved Monte Carlo efficiency calculations. Nucl. Instrum. Meth. A 587, 304-314.
- Bochud, F., Bailat, C.J., Buchillier, T., Byrde, F., Schmid, E., Laedermann, J-P., 2006. Simple Monte-Carlo method to calibrate well-type HPGe detectors. Nucl. Instrum. Meth. A 569, 3790-795.
- Broniatowski, A., Censier, B., Juillard, A., Berge', L., 2006. The Edelweiss Collaboration. Dead layer and degradation effects in cryogenic germanium detectors for dark matter search. Nucl. Instrum. Meth. A 559, 402-404.
- Chaoui, Z., and Azli, T., 2010. Dead-layer effect in silicon detectors: yield spectra of reflected electrons. Surf Interface Anal. 42, 1089-1092.
- Conti, C.C., Salinas, I.C.P., Zylberberg, H., 2013. A detailed procedure to simulate an HPGe detector with MCNP5. Prog Nucl Energ.66, 35-40
- Courtine F. Etalonnage d'un spectromètre gamma en vue de la mesure de la radioactivité naturelle. Mesures expérimentales et modélisation par techniques de Monte-Carlo. thèse 2007. Université Blaise Pascal.
- Courtine, F., Pilleyre, T., Sanzelle, S., Miallier, D., 2008. Ge well detector calibration by means of trial and error procedure using the dead layers as unique parameter in a Monte Carlo simulation. Nucl. Instrum. Meth. A 596, 229-234.

- Clouvas, A., Xanthos, S., Antonopoulos-Domis, M., Silva, J., 1998. Monte Carlo Based Method for Conversion of In-Situ Gamma Ray Spectra Obtained with a Portable Ge Detector to an Incident Photon Flux Energy Distribution. *Health Phys.* 75(2), 216-230.
- Dryak, P., Kovar, P., 2006. Experimental and MC determination of HPGe detector efficiency in the 40–2754 keV energy range for measuring point source geometry with the source-to-detector distance of 25 cm. *Appl. Radiat. Isot.* 64, 1346-1349.
- Elanique, A., Marzocch, O., Leon, D., Hegenbart, L., Breustedt, B., Oufni, L., 2012. Dead layer thickness characterization of an HPGe detector by measurements and Monte Carlo simulations. *Appl. Radiat. Isot.* 70, 538-542.
- Gasparro, J., Hult, M., Johnston, P.N., Tagziria, H., 2008. Monte Carlo modeling of germanium crystals that are tilted and have rounded front edges. *Nucl. Instrum. Meth. A* 594, 196–201.
- Hardy, J.C., Jacob, V.E., Sanchez-Vega, M., Effinger, R.T., Lipnik, P., Mayes, V.E., Willis, D.K., Helmer, R.G., 2002. Precise efficiency calibration of an HPGe detector: source measurements and Monte Carlo calculations with sub- percent precision. *Appl. Radiat. Isot.* 56, 65-69.
- Hansen, J.S., McGeorge, J.C., Nix, D., Schmidt-Ott, W.D., Unus, I., Fink, R.W., 1973. Accurate efficiency calibration and properties of semiconductor detectors for low-energy photons. *Nucl. Instrum. Meth. A* 106, 365-379.
- Huy, N.Q., Binh, D.Q., An, V.X., 2007. Study on the increase of inactive germanium layer in a high-purity germanium detector after a long time operation applying MCNP code. *Nucl. Instrum. Meth. A* 573, 384-388.
- Hernández, F., El-Daoushy, F., 2003. Accounting for incomplete charge collection in Monte Carlo simulations of the efficiency of well-type Ge-detectors, *Nucl. Instrum. Meth. A* 498, 340-351.
- Hurtado, S., Garcia-Leon, M., Garcia-Tenorio, R., 2004. Monte Carlo simulation of the response of a germanium detector for low-level spectrometry measurements using GEANT4. *Appl. Radiat. Isot.* 61,139-143.
- Johnston, P.N., Holt, M., Gasparro, J., 2006. Cascade summing effect in close geometry gamma-ray spectrometry. *Appl. Radiat. Isot.* 64, 1323-1328.
- Jonas Boson, Goran Agren, Lennart Johansson. 2008, A detailed investigation of HPGe detector response for improved Monte Carlo efficiency calculations. *Nucl. Instrum. Meth. A* 587, 304–314.
- Knoll, G.F., *Radiation Detection and Measurement*, third ed., Wiley, New York, 2000.

- Marzocchi, O., Breustedt, B., Urban, M., 2010. Characterization, modeling and optimization of the model of an HPGe detector with the aid of point sources. *Appl. Radiat. Isot.* 68, 1438-1440.
- Mesradi, M., Elanique, A., Nourreddine, A., Pape, A., Raiser, D., Sellam, A., 2008. Experimental characterization and Monte Carlo simulation of Si (Li) detector efficiency by radioactive sources and PIXE. *Appl. Radiat. Isot.* 66, 780-785.
- Mohanty, B.P., Balouria, P., Garg, M.L., Nandi, T.K., Mittal, V.K., Govil, I.M., 2008. Comparison of experimental and theoretical efficiency of HPGe X-ray detector. *Nucl. Instrum. Meth. A* 584, 186-190.
- Ngo Quang Huy., 2010. The influence of dead layer thickness increase on efficiency decrease for a coaxial HPGe p-type detector. *Nucl. Instrum. Meth. A* 621, 390-394.
- Ngo Quang Huy., 2011. Dead-layer thickness effect for gamma spectra measured in an HPGe p-type detector. *Nucl. Instrum. Meth. A* 641, 101-104.
- Pelowitz, D. B., MCNPX User's Manual, Version 2.6.0, Los Alamos National Laboratory report LA-CP-07-1473 (April 2008).
- Review of the Physics of Semiconductor Detectors.
- Rodenas, J., Pascual, A., Zarza, I., Serradell, V., Ortiz J., Ballesteros, L., 2003. Analysis of the influence of germanium dead layer on detector calibration simulation for environmental radioactive samples using the Monte Carlo method. *Nucl. Instrum. Meth. A* 496, 390-399.
- Santo, Aline S.E. , Wasserman, Francis G., Conti, Claudio C., 2012. HPGe well detector calibration procedure by MCNPX5 Monte Carlo computer code. *Ann Nucl Energy* 46, 213-217.
- Sajo-Bohus, L., Rosso, D., Sajo Castelli, A.M., Napoli, D.R., Fioretto, E., Menegazzo, R., Barros, H., Ur, C.A. , Palacios, D., Liendo, J., 2011. HPGe detectors long time behavior in high-resolution γ spectrometry. *Nucl. Instrum. Meth. A* 648, 132-138.
- Sy Minh Tuan Hoang, Sangho Yoo, Gwang Min Sun., 2011. Experimental validation of the backscattering gamma-ray spectra with the MONTE CARLO code. DOI: 10.5516/NET.2011.43.1.013.

http://www.ortec-online.com/detectors/review_physics/intro.htm

Chapitre III
Optimisation de la
Spectrométrie gamma
environnementale

III Optimisation de la Spectrométrie gamma environnementale

III.1 Introduction

L'analyse de la radioactivité environnementale est contestée par la possibilité de faire des mesures précises pour des échantillons complexes (solides ou liquides), caractérisées par une très faible radioactivité. Afin de remédier à ses difficultés de détection et de mesure, il est impératif d'augmenter l'efficacité de détection en procédant par :

- Diminution du bruit de fond (blindage, anti-Compton,...)
- Augmentation du volume du Crystal du détecteur
- Réduisant la distance source-détecteur
- Augmentation du volume de l'échantillon
- Augmentation de l'angle d'incidence entre l'échantillon et le détecteur

Cependant cet arrangement n'est pas sans conséquence; en effet en réduisant la distance entre la source et le détecteur, nous aurons une augmentation de l'effet de coïncidence des pics sommes, dont le phénomène prend de l'ampleur en utilisant des sources caractérisées par un mode de désintégration complexe, où plusieurs rayonnements X ou gammas sont émises en cascade.

L'augmentation du volume de l'échantillon est aussi appréciable pour la mesure des échantillons de faible activité, car il permet d'augmenter l'angle d'incidence des rayonnements, ce qui fait augmenter par conséquent l'efficacité de détection. Toutefois, l'auto absorption des rayonnements émis à l'intérieur de l'échantillon lui-même à des proportions variantes dépendante du volume de l'échantillon ainsi que la densité de sa matrice, peuvent donner des faux résultats de l'analyse quantitative de la radioactivité s'il n'est pas pris en considération.

A défaut des mesures correctives adéquates, ces deux phénomènes physiques à savoir, l'auto-absorption dans l'échantillon lui-même, ainsi que l'effet de coïncidence des pics sommes peuvent engendrer une surestimation ou une sous estimation du comptage des pics photo-électrique concernés par la mesure quantitative, ainsi on aura une efficacité de détection en fonction de l'énergie erronée, ce qui pourrait par conséquent fausser complètement nos mesures quantitatives de la radioactivité.

III.2 Dispositif Expérimentale

Dans l'objectif d'une analyse de la radioactivité environnementale, nous avons utilisé un détecteur de germanium hyper pur (HPGe) de marque Canberra Modèle GR3019 avec fenêtre en béryllium permettant l'accroissement du rendement de détection pour les faibles énergies des photons gamma ou X. Un volume de cristal appréciable avec une efficacité relative égale à 30%, ainsi qu'un pouvoir de résolution égale à 1,9 keV pour le pic 1332 keV du Cobalt-60. Pour atteindre ses performances optimales, le détecteur est polarisé à une tension de -3500 volts. Cette tension est délivrée par un module Haute tension modèle 659 du fabricant ORTEC. Pour réduire le bruit de fond dû à l'agitation thermique des électrons, le cristal de germanium est refroidi à la température de l'azote liquide (77°K).

Le détecteur est incorporé dans un blindage en plomb (figure III-1) de 10 cm d'épaisseur pour diminuer le rayonnement cosmique et celui de l'environnement du détecteur. Une mince couche de cuivre de quelques millimètres couvre le château de plomb à l'intérieur, afin de stopper les rayonnements betas émises par l'échantillon lors du comptage, pour qu'elle n'atteigne pas la couche de plomb, ce qui pourrait engendrer un rayonnement caractéristique dit de freinage (Bremsstrahlung).



Figure III-1: Détecteur HPGe inséré à l'intérieure d'un blindage en plomb avec une couche en cuivre

Dans le même esprit, afin de réduire les bruits de rayonnement thermique dans le cristal; le détecteur HPGe est refroidi à l'azote liquide (77° K) pendant son utilisation. Le dispositif de mesure a été installé au milieu du laboratoire afin d'éviter les rayonnements de diffusion sur un objet à côté du détecteur et son support.

Comme le diamètre du capot (endcup) du cryostat du détecteur est légèrement inférieure au diamètre de la cavité du béccher Marinelli, nous avons roulé une bande de carton de 1 cm de largeur autour du sommet du capot du détecteur jusqu'à diminuer le vide à un minimum absolu, entre le sommet du capot du détecteur et la cavité du béccher Marinelli. Cette méthode de positionnement nous a aidés à centrer le béccher Marinelli et d'assurer ainsi une bonne reproductibilité de positionnement, en dépit des actions répétitives de retrait et de remplacement de chaque échantillon mesuré. (Voire fig. III-2).



Figure III-2: Une vue ouverte montrant le détecteur et un conteneur type béccher Marinelli posé au-dessus du détecteur.

III.2.1 La géométrie béccher Marinelli

Les échantillons environnementaux de très faible radioactivité sont souvent mesurés dans des containers spécialement conçus pour assurer un maximum d'efficacité de détection, appelées géométrie béccher Marinelli qui présentent les caractéristiques suivantes:

- Elles sont constituées de matériaux ayant une faible absorption de rayons gamma.
- Ayant un volume du creux interne à la forme du détecteur pour une efficacité maximale.
- Etanche à l'air et ne réagissant pas avec le contenu de l'échantillon, ayant une ouverture à col large pour faciliter leurs fermetures.

Ces conteneurs ont été conçus pour rendre la géométrie échantillon-détecteur la plus symétrique possible et pour augmenter l'angle solide entre l'échantillon et le détecteur. Les containers béccher Marinelli ont des couvercles avec une conception de verrouillage unique qui exclu tout déversement ou fuite de la matière de l'échantillon. Le schéma et les dimensions du container béccher Marinelli utilisé dans ce travail est représenté dans la figure suivante. (Voire figure III-4)

III.3 Efficacités de détection dans les conditions des mesures environnementales

La calibration en efficacité du détecteur est une caractéristique fondamentale du détecteur qui est nécessaire pour déterminer la radioactivité d'un nucléide inconnu [Roderas et al. 2003, 2007]. Traditionnellement, l'approche la plus conventionnelle pour l'étalonnage des détecteurs germanium en efficacité est la détermination expérimentale en préparant des sources standards qui se rapprochent le plus possible des échantillons environnementaux (sol, eau, plantes ... etc.) tout en respectant les dimensions, la matrice, la densité et la géométrie des systèmes d'emballage. Cela peut être fait préférentiellement en utilisant un ensemble de sources gamma mono- énergétique comme; (^{241}Am (60 keV), ^{109}Cd (88 keV), ^{139}Ce (166 keV-T1), ^{51}Cr (320 keV), ^{85}Sr (514 keV), ^{137}Cs (662 keV), ^{54}Mn (834 keV), ^{57}Co (122.06 keV), ^{203}Hg (279,2 keV), ^{65}Zn (1115,5 keV)), ou en utilisant des sources standards multi-gamma comme ^{152}Eu , ^{133}Ba . Les sources mono énergétiques sont coûteuses, et certaines d'entre eux ont de courtes demi-vies comme par exemple le ^{51}Cr (27.7 jours) et le ^{203}Hg (46 jours), ce qui nécessite un remplacement fréquent.

Dans cette étude, nous avons utilisé la source multi-gamma de ^{152}Eu , en raison de sa disponibilité dans notre laboratoire. Cette source a aussi l'avantage d'avoir une période radioactive très longue de 13.5 année et une très large gamme d'énergie de plusieurs émissions X et gamma allant de 40 keV jusqu'à 1500 keV; ce qui nous fait éviter l'utilisation de plusieurs sources gamma mono-énergétique très coûteuse. Malheureusement, l'efficacité mesurée en utilisant la source multi gamma de ^{152}Eu en étroite géométrie par rapport au capot du détecteur est affectée par les effets de coïncidences. En outre, lors du comptage à proximité d'un détecteur en germanium de type n qui est caractérisé par des zones de contact minces (en bore) dans la surface extérieure, ainsi qu'une fenêtre d'entrée très mince en béryllium dédié pour le comptage des rayons x, la situation devient particulièrement compliquée par la contribution des rayons X à côté des rayons gamma dans l'effet de coïncidence des pics sommes.

De nos jours, la disponibilité commerciale de certains codes de simulation pour le calcul de l'efficacité est largement utilisée pour surmonter les inconvénients dus à la non-disponibilité des sources d'étalonnage adéquates en termes d'énergie, densité, et géométrie. Le pouvoir de calcul de ces codes est aussi utilisé dans la résolution des problèmes liés à la correction des effets des pics sommes, de géométrie, ou de matrice.

En effet, l'étalonnage en efficacité des détecteurs en utilisant la simulation Monte Carlo a attiré l'attention des chercheurs dans le passé et l'optimisation de ces techniques de calcul a fait l'objet de recherches approfondies au cours des dernières années [Rodenas et al., 2000, 2007]. Compte tenu de ses nombreux avantages à savoir;

1. Ne nécessite pas l'utilisation des normes coûteuses (Standard),
2. Sans aucun effet de coïncidence de pic somme,
3. Ne nécessite pas des corrections de géométrie ou de matrice,
4. Le calcul de l'efficacité peut être tout à fait exact et rapide aussi longtemps que le détecteur est bien connu.

Toutefois, le calcul précis de l'efficacité du détecteur est conditionné par la connaissance précise des deux aspects suivant :

1. Les caractéristiques intrinsèques du détecteur et les matériaux environnants.
2. Les caractéristiques associées aux échantillons; géométrie des échantillons, géométrie de mesure, et leur composition chimique et physique.

En se basant sur les travaux mentionnés précédemment (Chapitre II), le premier aspect a été étudié et succinctement détaillé par l'optimisation des dimensions qui sont liées aux caractéristiques intrinsèques du détecteur germanium de type n de HPGe, ou nous avons réévalués l'efficacité de détection dans le cas des sources ponctuelles et sources discs jusqu'à a une distance source-capot du détecteur égale à 15cm. Notre objectif dans cette partie du travail est tout d'abord de vérifier la viabilité de la géométrie du modèle optimisé du détecteur HPGe dans les conditions de mesure environnemental, en utilisant une source volumineuse emballée dans un container de type béccher Marinelli de 0,45 litre. Ce dernier sera posé directement sur le capot du détecteur. En effet, le niveau bas de la radioactivité des échantillons environnementaux, nécessite l'utilisation d'une quantité appréciable d'échantillon qui sera mesurée dans un volume plus large et déposée directement sur le détecteur afin d'augmenter l'efficacité de détection. Dans cette logique, une série de calculs (MCNPX) et de mesures expérimentales de l'efficacité de détection sera réalisée dans la gamme d'énergie de 30 keV à 1400 keV, en utilisant une source multi-gamma d'Eu 152 dont la matrice est une résine emballée dans un container de 450 cm³ de type béccher Marinelli. L'activité de la source est d'environ 200 kBq avec une incertitude relative de 3%. Cette source a été commandée de la Commission française de l'énergie atomique en l'an 2000. Elle a été choisi parmi un large panel des sources proposées. Le choix de cette de cette source a été motivée par son faible coût, sa demi-vie très longues ($13,4 \pm 0,1$ ans) ainsi que ses multiple émissions de rayons X et gamma qui s'étend de 30keV jusqu'à 1500 keV, couvrant ainsi la plage d'énergie de notre intérêt. (Voire fig. III.3).

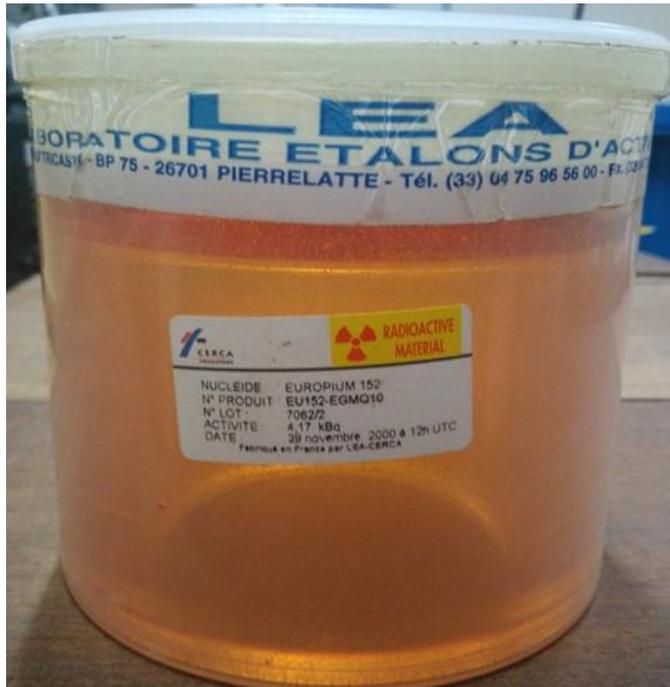


Figure III-3: source multi-gamma d'Eu 152 en résine époxy, emballée dans un container de 450 cm³ de type béccher Marinelli.

III.3.1 Efficacités Expérimentale

Les efficacités de détection HPGe ont été mesurées expérimentalement dans l'intervalle d'énergie de 40 keV à 1408 keV dans la base de la méthode théorique décrite précédemment dans le chapitre II. Un temps d'acquisition correspondant à 10.000 secondes sous le pic photoélectrique a été choisit pour assurer une bonne statistiques de comptage.

Les caractéristiques de la source de calibration ¹⁵²Eu utilisée sont énumérées dans le tableau III-1, ainsi que son activité, la probabilité d'émissions, l'efficacité expérimentale et enfin l'incertitude combinée qui est estimée à partir des erreurs de l'activité certifiée et les résultats de comptage liées aux pic photoélectrique.

Isotope	Activité initiale Bq	Energie (keV)	Gamma intensité (%)	Efficacité Expérimentale	Incertitude Absolue
Eu-152	2000	39.52	16.00	4.05E -2	±3.04E-03
		45.40	9.00	4.62 E -2	±3.16E-03
		121.78	28.32	5.66 E -2	±3,34E-03
		244.70	7.51	3.55 E -2	±2,17E-03
		344.28	26.67	3.21 E -2	±1,44E-03
		778.90	12.96	2.42 E -2	±1,40E-03
		964.22	14.62	1.51 E -2	±7,35E-04
		1112.08	13.56	1.19 E -2	±6,07E-04
		1408.01	20.85	1.11 E -2	±6,99E-04
	1529.82	0.30	9.13 E -3	±3,93E-04	

Tableau III- 1: Caractéristiques de la source bécher Marinelli

Dans le cas d'un comptage à proximité d'un détecteur, les inconvénients d'une source multi gamma émettrice des rayonnement en cascade comme celle utilisée dans ce travail (152Eu) est en premier lieu l'émergence d'un large plateau Compton qui peut couvrir les photo-pics de basses énergie et de faible comptage, et essentiellement en second lieu l'apparition des pics sommes qui sont associés à chaque photo-pic ayant pour conséquence une diminution ou une augmentation du nombre de coups dans le pic photoélectrique appartenant à la source émettrice.

Afin de présenter un aperçu globale de l'influences de ces effets sur l'ensemble du spectre, nous avons augmenté le temps de collection de la source l'Eu 152 à 24 heures, ce qui permettra d'accroître le comptage des pics sommes qui immergent à coté des pics associés au spectre de désintégration du nuclide Eu152. Le bruit de fond est également collecté pendant la même durée de collection (24 heures). Le Programme de Gamma vision est utilisé pour obtenir la superficie nette de chaque pic en soustrayant le comptage du bruit de fond de la surface net du pic. Le spectre de réponse du détecteur est analysé ainsi par le logiciel Gamma Vision et transféré par la suite au logiciel Origine 7 afin de permettre sa comparaison avec le spectre simulé dans la même échelle.

III.3.2 Simulation MCNPX de l'efficacité de détection

Dans le chapitre précédent nous avons optimisé la structure du détecteur de HPGe de type- n sur la base :

- Des spécifications du détecteur fournis par le constructeur CANBERRA ;
- En minimisant le rapport de l'efficacité expérimental sur l'efficacité calculée (MCNPX), en utilisant des sources mono- énergétiques (^{241}Am et ^{137}Cs), comptés à une large distance par rapport au capot du détecteur.
- Par conséquent, nous avons réexaminé la courbure des bords supérieurs de cristal de germanium et nous avons aussi réévalué la topographie de la couche morte avec une représentation inhomogène le long de son épaisseur.

Dans le même esprit d'analyse, nous souhaitons dans ce chapitre vérifier la fiabilité du modèle optimisé du détecteur, dans les conditions de mesures environnementales; en adoptant l'ensemble des paramètres géométriques du modèle optimisé du détecteur comme une base des calculs MCNPX. De plus, nous avons ajouté au model optimisé les spécifications de la source d'étalonnage $\text{Eu}152$ en incluant la géométrie du béccher Marinelli. Dans cette partie de travail, nous avons préféré utiliser aussi le même code de calcul utilisé précédemment dans le processus d'optimisation des dimension du détecteur, à savoir, le code MCNPX version 2.6.1 [Pelowitz., 2008].

Les dimensions de la géométrie de la source béccher Marinelli fournis par la fabricant sont égale à: 114 mm de diamètre et 101 mm de hauteur pour le support externe, les dimensions du support interne est de 77 mm de diamètre et 68 mm. L'influence de la composition chimique du support du béccher Marinelli en polypropylène, ainsi que la densité de la matrice de résine ($1,15 \pm 0,01 \text{ g.cm}^{-3}$) sont prises en considération dans le calcul MCNX. (Voire figure III-4)

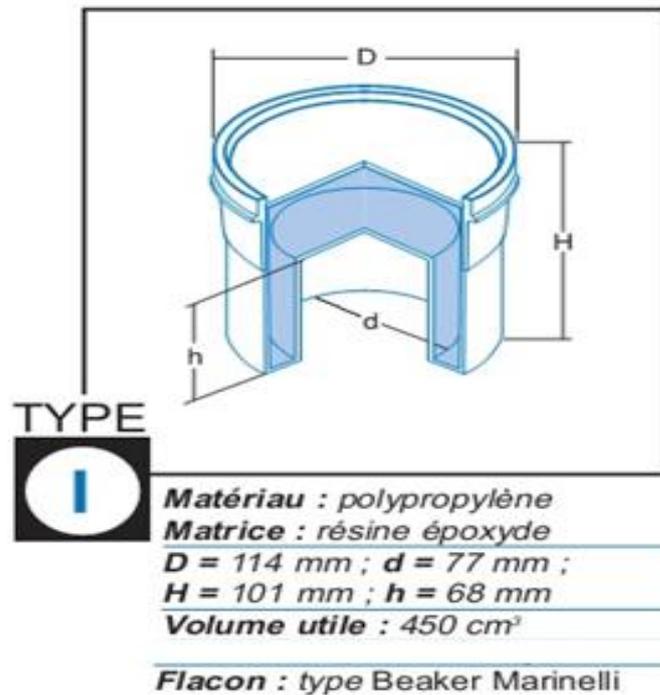


Figure III-4: Dimensions de la source d'Eu-152, type bécquer Marinelli

Dans cette partie nous avons utilisé l'estimateur «tallies» F8 qui a été placé dans le volume actif du détecteur en germanium, ce qui permet d'enregistrer les dépôts d'énergie des photons dans cette partie sensible du détecteur [Pelowitz 2008]. Comme le transport des photons est indissociable de celui des électrons puisque leurs interactions respectives avec la matière entraînent la création ou mise en mouvement de particules secondaires électroniques ou photoniques. Ces particules secondaires interagissent à leur tour avec la matière. Nous avons utilisé un traitement de la physique détaillée, mode photons/électrons (MODE PE) qui inclut non seulement, l'effet photoélectrique, diffusion Compton et production de paire mais aussi la diffusion cohérente (Thomson-Rayleigh) ainsi que la fluorescence issue de l'absorption photoélectrique, en se basant sur la bibliothèque de section efficace de transport très riche que contient le code MCNPX pour la simulation des électrons et des photons, à savoir, la bibliothèque de section efficace de J.H. Hubbell pour les éléments de $Z=1$ jusqu'à $Z=94$ dans la gamme d'énergie s'étalant de 1 keV à 100 MeV [Man01, Hen03].

Dans la simulation, le nombre total d'histoires considérées dans chaque simulation doit être suffisant pour obtenir des résultats escomptés avec une incertitude minimale associée à l'efficacité de calcul. Selon le manuel de MCNPX [Pelowitz., 2008], le principe est de garder l'erreur relative (Le nombre d'histoires N est liée à l'erreur relatif R estimée par $R = 1 /$

(N)^{1/2}) au dessous de 0.10. Quand une centaine de millions de particules est initialisée, nous obtenons une erreur relative d'environ 1%. Par conséquent, ce nombre total d'histoires a été adopté pour toutes les simulations.

Une vue 3D de la géométrie du modèle utilisé dans la simulation de code MCNPX est facilitée par l'utilisation de Vised- MCNPX comme indiqué dans la Fig.III-4

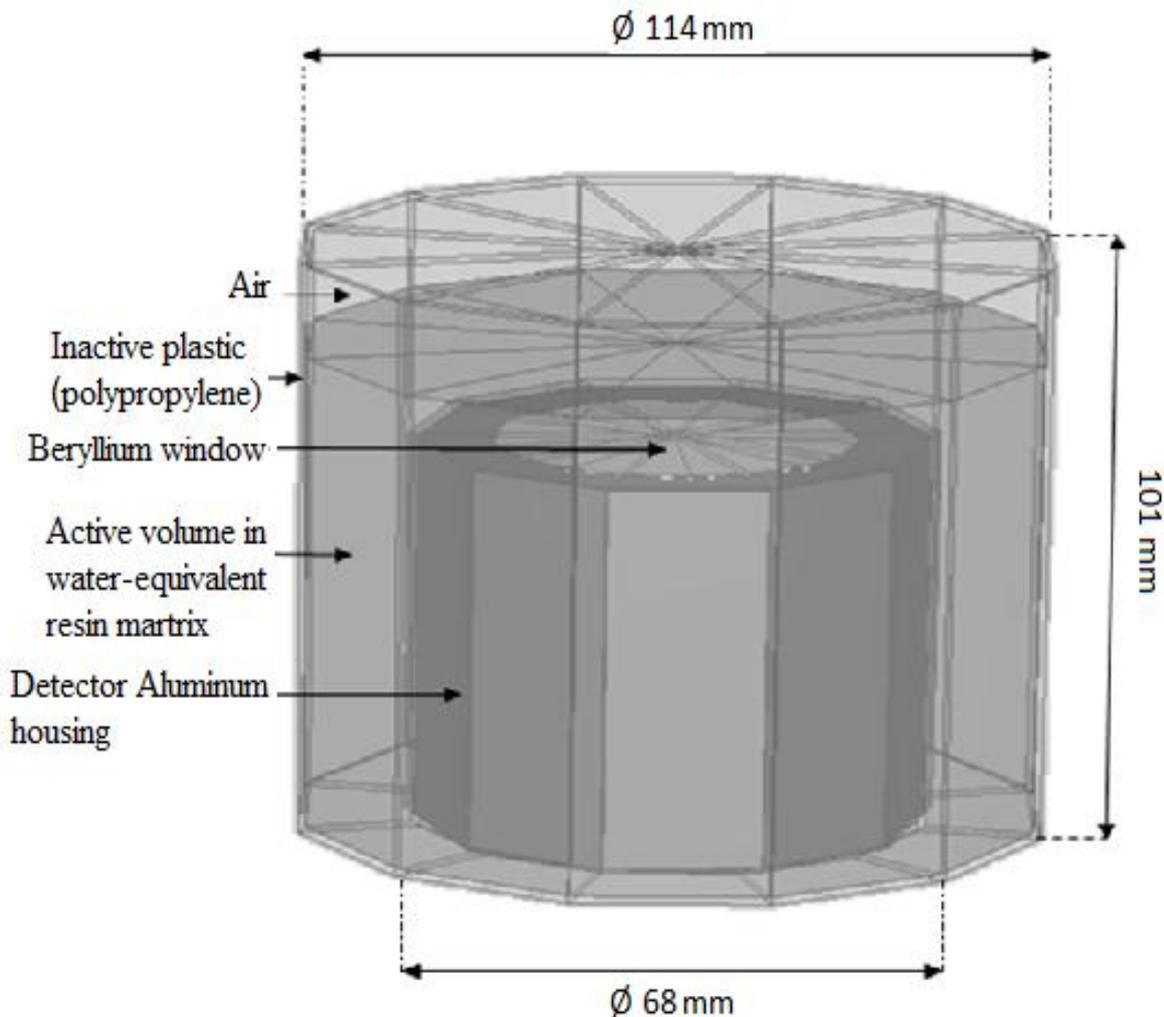


Figure III-4: Vue 3D de la géométrie béccher Marinelli avec le détecteur HPGe modélisé avec MCNPX-Vised

Les résultats expérimentaux des efficacités de détection d'une source volumineuse multi-gamma de ^{152}Eu , posée en géométrie ferme avec le détecteur germanium hyper pure sont répertoriés avec les efficacités calculés pour les 8 pics majeurs de l'Eu-152 dans le tableau III- 2. Les ratios des efficacités MCNPX sur l'expérimentales sont également répertoriés dans le même tableau. L'incertitude relative de l'efficacité MCNPX et l'efficacité expérimentale sont exprimés en pourcentage entre parenthèses(%).

Energie (KeV)	Efficacité Expérimentale	Efficacité MCNPX	Rapport MCNPX/EXP
121.78	0.0566 (5.9)	0.0648 (0.23)	1.145 (0.07)
244.7	0.0355 (6.1)	0.0452 (0.34)	1.273 (0.21)
344.28	0.032 (4.5)	0.0332 (0.15)	1.0375 (0.01)
411.11	0.0242 (5.8)	0.0282 (0.25)	1.1653 (0.15)
778.91	0.015 (4.9)	0.0161 (0.38)	1.073 (0.33))
964.13	0.0119 (5.1)	0.0137 (0.26)	1.152 (0.23)
1112.12	0.0111 (6.3)	0.0124 (0.19)	1.117 (0.14)
1408.01	0.00913 (4.3)	0.0105 (0.32)	1.150 (0.32)

Tableau III- 2: Comparaison entre l'efficacité expérimentale et MCNPX (Source ^{152}Eu type bécher Marinelli)

On peut distinguer à première vue dans le tableau III-2 que les efficacités simulés par le code MCNPX sont toujours supérieures aux efficacités expérimentales, un diagramme à barres illustre que le rapport reste compris dans l'intervalle entre 1 et 1,3 pour toutes les émissions gamma analysés.

Sur la base du modèle optimisé du détecteur en germanium, la figure III-5 montre la courbe d'efficacité MCNPX de la source ^{152}Eu en géométrie bécher Marinelli. On trouvera également les efficacités expérimentales mesurées précédemment.

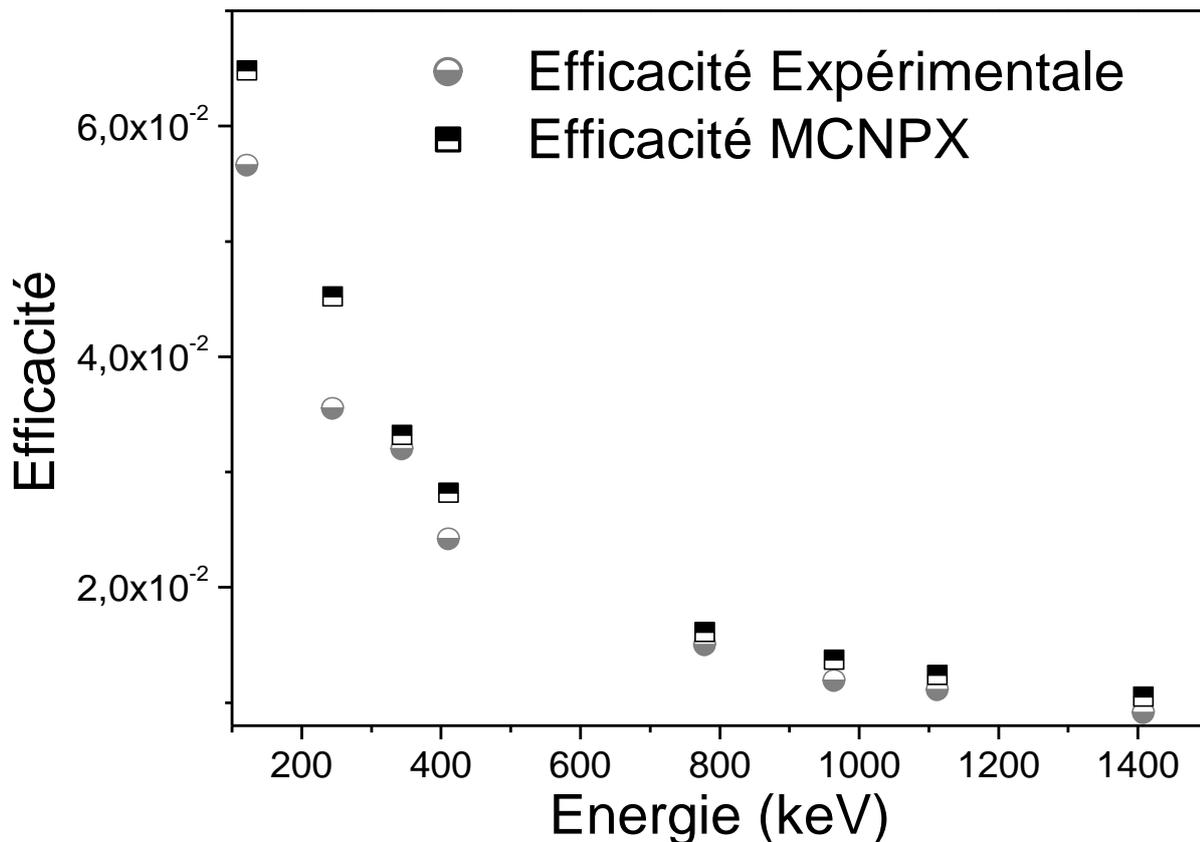


Figure III-5: Comparaison des efficacités expérimentales et simulées pour la source ^{152}Eu en géométrie béccher Marinelli.

La figure III-5 montre que la superposition entre les efficacités simulées et expérimentales sont faibles en particulier pour les basses énergies. Nous constatons également que les points expérimentaux par rapport aux points MCNPX calculées ne se trouvent pas sur une ligne ordonnée, d'où il serait difficile de tracer une courbe acceptable à travers eux. La raison la plus plausible de cette différence est probablement liée à l'effet de coïncidence des paires.

Selon les résultats exprimés dans le tableau III-2 et tracer dans la figure III-5, nous constatons des écarts plus grands entre les efficacités expérimentales et calculées, cet écart est encore plus grand pour les faibles énergies, avec un rapport égal à 1,27 pour la ligne d'énergie 244 keV et 1,16 pour la ligne 411 keV, toutes fois le rapport n'excède pas la valeur de 1,1 pour le reste des émissions gamma de ^{152}Eu . Un tel écart peut être attribué sans aucun

doute à l'effet de coïncidence des pics sommes dues à utilisation d'une source d'étalonnage multi-gamma avec les contributions des rayons Kx de 40 keV et 39 keV de ^{152}Eu , mesurés à une géométrie étroite par rapport au détecteur germanium hyper pure. En effet, les études [Dirk et Sima., 2006. Semkow., 1990] montrent que l'amplitude de l'erreur liée aux effets des coïncidences des pics sommes est fortement corrélé par les conditions de mesure suivantes :

- L'utilisation d'une source d'étalonnage dont le schéma de désintégration est complexe.
- Géométrie de mesures étroite par rapport à un détecteur.
- L'utilisation d'un détecteur caractérisée par une grande efficacité
- L'utilisation d'un détecteur à semi conducteur de type n, ce qui fait inclure la contribution des rayons gamma, ainsi que les rayons X dans la composition des pics sommes

En fonction des considérations citées ci-dessus; de nombreuses études montrent que l'ampleur des erreurs relatives aux effets coïncidence des pics sommes se situe généralement dans un éventail de 5% à 30%, et dans certains cas peut être supérieure à 50% selon les combinaisons source d'étalonnage-détecteur et géométrie de détection [Sima et Dirk ., 2000; Semkow., 1990; Gehrke., 1977; McCallumand et Coote., 1975; Bronson (Canberra Industries)].

Dans cette étude, malgré les 13% de la valeur de l'écart moyen entre les efficacités calculées et expérimentales pour l'ensemble des émissions de l'Eu-152; les résultats sont situées dans un écart toléré pour valider le modèle optimisé du détecteur de germanium de type n, dans les conditions de mesures environnementales (échantillons volumineux, géométrie ferme de détection).

III.3.2.1 Simulation de la réponse spectrale par le code MCNPX

Afin de mieux comprendre l'influence des mécanismes physiques des coïncidences des pics sommes dans l'ensemble du spectre de la source d'Eu152 caractérisées par des émissions gamma et x en cascade, et mesurée à proximité du détecteur de HPGe type n; le spectre de réponse MCNPX du détecteur n'étant pas affecté par l'effet de coïncidence des pics somme du faite que dans la simulation les photons sont traité individuellement un par un, et comparé au spectre expérimental qui est collecté pendant un temps de collection de 24 heures afin d'amplifier le comptage des pics sommes.

Il est important de noter que le détecteur de type n utilisé dans ce travail est caractérisé pour permettre l'acquisition des rayons gamma sur une large gamme d'énergie. Le détecteur est aussi caractérisé par une fenêtre très mince en béryllium qui lui permet de comptabiliser en plus des rayons gamma de faible énergie, les rayons X au-delà de 20 keV. Si on ajoute à cela les conditions de comptage à une géométrie étroite par rapport au détecteur, la correction des effets des coïncidences des pics sommes devient pertinente, et aussi compliquée par la contribution des deux rayonnements; gamma et les rayons x [Dirk Arnold, Octavian Sima., 2006)]. Par conséquent, les deux émissions, gammas et les rayons X doivent être pris en compte dans le calcul MCNPX. Ainsi en utilisant l'éditeur nucléide-navigateur qui est jumelé au logiciel Gamma vision, nous avons choisis selon le schéma de désintégration de ^{152}Eu vers le ^{152}Sm et le ^{152}Gd , et selon le degré de probabilité des émissions; 8 rayons X dont l'énergie se situe entre 39,52 à 50 keV, ainsi que 30 rayons gamma de 121,78 keV à 1528,1 keV pour être introduite dans le fichier d'entrée MCNPX.

En utilisant le Tally F8 du Code MCNPX la simulation nous a permis d'obtenir les distributions spectrales des photons en fonction de l'énergie à l'intérieur du détecteur. Le spectre simulé a été normalisé par rapport à l'activité de la source et le temps d'acquisition du spectre en introduisant la notion du poids des photons (WGT). L'estimation du poids de la source est effectuée en prenant en compte l'activité de la source, le temps de comptage (temps expérimental de la mesure) qui est égale à 86000 secondes, ainsi que la somme des probabilités d'émissions des 8 rayons X et les 30 rayons gamma de la source de l'Eu-152 introduites précédemment dans le fichier d'entrée du code MCNPX.

Ainsi, la valeur du poids (WGT) égal à 360410295 a été injectée aussi dans la carte SDEF.

Finalement, nous avons séquenciez les calculs MCNPX dans les différents canaux sur la base de la calibration expérimentale du détecteur de 0.3 keV/ Canal pour 8192 canaux utilisés.

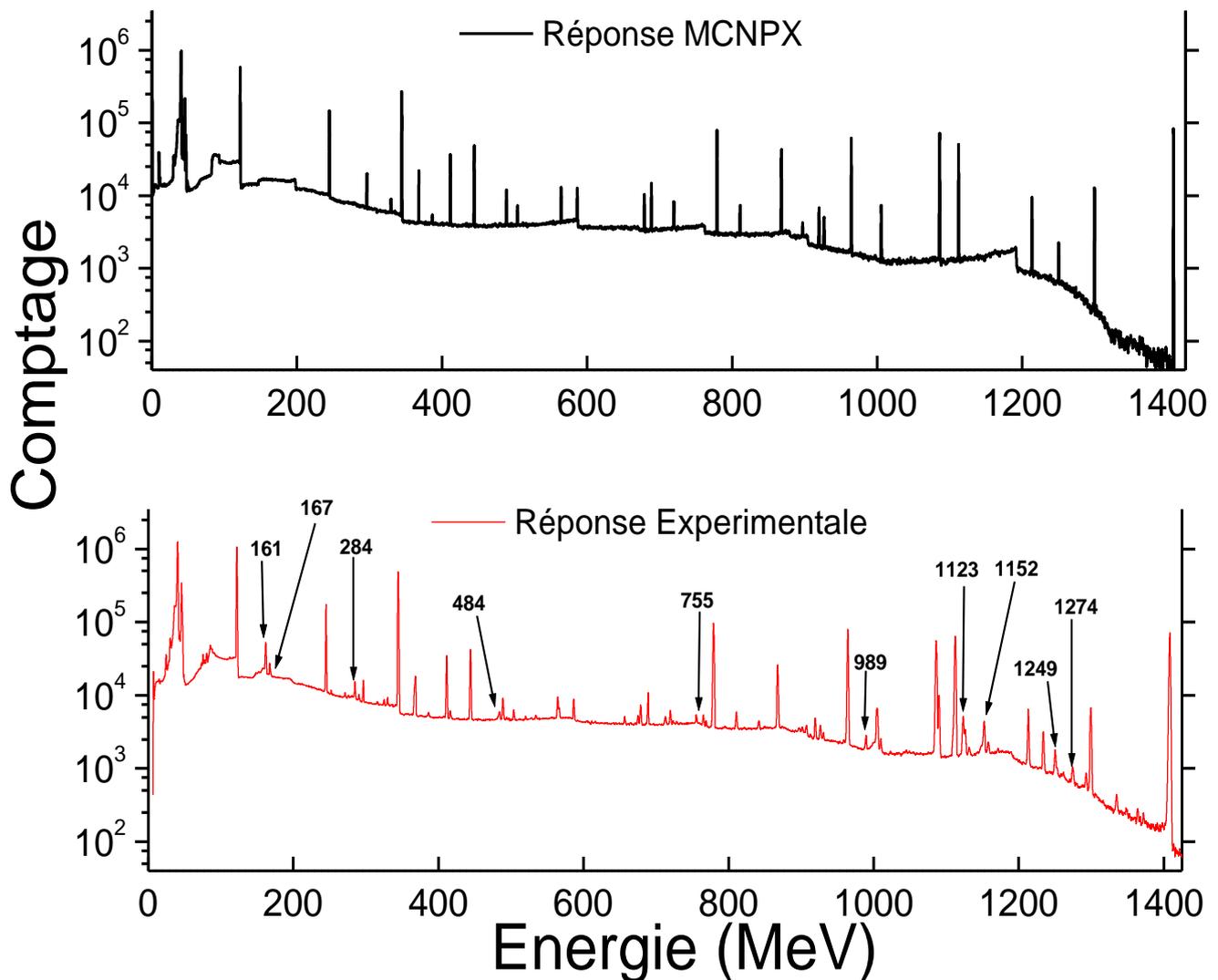


Figure III-6: Comparaison entre la réponse spectrale Expérimental et MCNPX de la source ^{152}Eu , en géométrie bûche Marinelli, compté pendant 24 heures.

Comme on peut le voir dans la figure III-6, en utilisant les cartes supplémentaires du code MCNPX dans le calcul des spectres, nous obtenons un excellent accord entre le spectre simulé (basé sur de modèle optimisé du détecteur HPGe) et la mesure expérimentale; tant bien dans la résolution des pics, que dans la forme du plateau Compton ce qui représente un soutien supplémentaire pour la validation du modèle optimisé de la géométrie du détecteur HPGe dans les conditions d'analyse environnementale.

Néanmoins, une minutieuse comparaison entre le spectre expérimental et le spectre simulé (MNCPX) révèle la présence de plusieurs pics virtuels émergés dans le spectre expérimental dont l'énergie n'appartient pas réellement aux émissions de la source d'étalonnage de ^{152}Eu . Cela confirme que l'écart observé précédemment dans la figure II-5 entre l'efficacité expérimental et calculé est dû essentiellement à l'influence de l'effet de coïncidence des pics sommes. Parmi les pics sommes émergés dans le spectre expérimental on peut distinguer la présence de plusieurs formes et degrés de pic sommes, à savoir ;

1. Les pics virtuels correspondant aux coïncidences respectives entre rayonnement gamma-gamma de l' ^{152}Eu :
 - Pic virtuel à 755 keV issu de la somme de (411 keV avec 344 keV)
 - Pic virtuel à 989 keV issu de la somme de (121 keV avec 867 keV)
 - Pic virtuel à 1123 keV issu de la somme de (344 keV avec 779 keV)

2. Les pics sommes avec la combinaison des rayons X; 40 keV et 45 keV issus de la couche K lors de la désintégration de ^{152}Eu vers le ^{152}Sm , avec les émissions gammas de l' ^{152}Eu ;
 - Pic virtuel à 161 keV issu de la somme de (121 keV + 40keV)
 - Pic virtuel à 167 keV issu de la somme de (121 keV + 45 keV)
 - Pic virtuel à 284 keV issu de la somme de (244 keV +40keV)
 - Pic virtuel à 484 keV issu de la somme de (444 keV + 40 keV)

3. Nous avons également l'émergence des pics de coïncidence avec une triple sommation, Gamma-Gamma-rayon-X;
 - Pic virtuel à 1152 keV issu de la somme de (121,8 keV + 1086keV+ rayon-X de 40 keV)
 - Pic virtuel à 1274 keV issu de la somme de (121,8 keV + 964 keV + rayon-X de 40 keV)
 - Pic virtuel à 1249 keV issu de la somme de (244,7 keV + 964 keV + rayon-X de 40 keV)

Il est important de souligner la possibilité d'émergence d'autres coïncidence des pics sommes Gamma-Gamma qui ne figurent pas dans le spectre expérimental, car les énergies additionnées sont ajouté aux pics plein énergie d'un autre photon émis dans le processus de

désintégration du nucléide ^{152}Eu , et qui peuvent se confondre ainsi avec les pics qui appartiennent aux émissions de la source de ^{152}Eu comme ;

- Le pic 1086 keV issu de la somme de (121,8 keV à 964 keV)
- Le pic 1112 keV issu de la somme de (244,8 keV 867 keV)
- Le pic 1408 keV issu de la somme de (444 keV à 964 keV)

La conséquence de tous ces pics virtuels est une évidente diminution ou une augmentation du nombre de coups dans le pic photoélectrique réel appartenant à la source émettrice. Ce qui a pour effet de rendre les mesures de l'efficacité de détection en fonction de l'énergie incorrecte. Cela se répercutera sur l'exactitude des calculs quantitatifs des échantillons analysés. A cet effet des corrections pertinentes de l'effet des pics sommes est nécessaire pour une mesure de haute précision dans la détermination de l'activité d'un radionucléide.

Les résultats obtenus confirment aussi la contribution substantielle des rayons x dans l'effet coïncidence des pics sommes dans un spectre acquis avec un détecteur en germanium de type n.

III.3.3 L'effet de coïncidence des pics sommes

Les mesures par spectrométrie gamma reposent sur l'exploitation d'un ou plusieurs pics d'absorption totale. Lorsque le niveau d'activité est faible, l'échantillon doit être placé aussi près que possible du détecteur; ces conditions ont pour avantage de favoriser l'efficacité de détection et pour inconvénient de perturber notablement les comptages en raison des coïncidences entre les raies gamma et X. Si aucune correction n'est effectuée, l'étalonnage correspondant à ces conditions géométriques est erroné comme le sont également les mesures d'échantillons.

Plusieurs auteurs ont fait état de travaux concernant les perturbations des mesures dues aux coïncidences entre les raies gamma et X; quelques programmes de calcul de corrections ont été proposés, cependant ils ne semblent être adaptés que partiellement aux besoins des laboratoires du fait de leurs mise en œuvre délicate.

III.3.3.1 Effet des coïncidences sur un spectre de photons

Lorsqu'un radionucléide présente un schéma de désintégration complexe, il peut y avoir détection simultanée d'impulsions provenant de transitions en cascade. Ce phénomène se traduit alors par deux sortes d'effets: une perte de comptage dans les spectres et les pics d'absorption totale correspondants, et l'apparition de "spectres et pics sommes"

d'énergie égale à la somme des énergies cédées au détecteur qui se superposent aux autres comptages. De manière générale le facteur de correction de coïncidence (F_{CCS}) est défini comme le rapport du taux de comptage en l'absence de la coïncidence par rapport au taux de comptage en présence d'une coïncidence:

$$F_{csc} = \frac{\text{Taux de comptage en absence des coïncidence}}{\text{Taux de comptage en presence des coïncidence}} \quad (\text{III-1})$$

III.3.3.2 Facteurs influant sur l'incidence de l'effet de coïncidence des pics sommes

Les conditions qui peuvent contribuer à l'ascension du phénomène de coïncidence des pics sommes peuvent être résumées comme suit:

- Le phénomène est prévisible dans le cas des nucléides dont le schéma de désintégration est complexe.
- Le degré de la sommation ne dépend pas du taux de comptage.
- Le phénomène augmente si on rapproche la source au détecteur (géométrie étroite).
- Le phénomène augmente pour les détecteurs dotés d'un cristal très large.
- Le phénomène augmente pour les détecteurs de type puits, (Well detector).
- Le phénomène augmente pour les détecteurs dotés d'une fenêtre mince, ce qui permet aux rayons X d'atteindre le volume actif du cristal en plus des rayons gamma.

Dans de tels cas, la correction des effets de coïncidences devient pertinente, où plusieurs méthodes de correction dans la littérature ont été bien établies pour corriger ce phénomène.

Diverses actions ayant été entreprises ces dernières années pour normaliser les géométries de mesure à bas niveau d'activité, l'une des préoccupations majeurs des chercheurs est l'élaboration d'un programme de correction des pertes de comptage dues aux coïncidences gamma-gamma, gamma-X et X-X. Ces programmes opérationnels sur ordinateur ou système d'analyse programmable, doivent permettre de traiter les échantillons ponctuels, les sources surfaciques ainsi que les conteneurs cylindriques, où tous les radionucléides pouvant être pris en compte; leur utilisation doit être simple, ils doivent aussi permettre de répondre aux exigences diverses des utilisateurs. A ce titre, plusieurs études ont été réalisées pour corriger ce phénomène ; la méthode de correction expérimentale consiste à comparer les surfaces des pics pour le même γ d'un échantillon positionné dans deux distances distinctes du détecteur

[Ramos-Lerate 1997]. Où, la source de référence est placée loin du détecteur pour s'affranchir des effets de sommation, et la seconde source est positionnée à l'emplacement voulu [Quintana 1995]. Le rapport entre les efficacités absolues correspondant aux deux géométries fournit le facteur correcteur. D'autres méthodes ont été élaborées pour la correction de PS telles que, la méthode dite semi-expérimentale [Moens 1981], la méthode de Simulation de Monte Carlo [Decombaz et al, 1992-2012. Sima, 2001], la méthode mathématique [Blaauw et Gelsema, 2003, LEPY 2007...; Sima et Arnold., 2000; De Felice et all., 2000].

Par conséquent, un ensemble de formules mathématiques structurées dans des algorithmes efficaces sont mis en œuvre dans des logiciels tels que (la Gammavision-32 d'ORTEC, GENIE2000 de CANBERRA), ainsi que des codes de calcul dédiés comme (GEANT, MCNP-CO MCNPX-VGSL, TRUECOINC, EFFRAN, ETNA, GESPECOR), ont été développés pour corriger les données d'analyse spectroscopique pour des événements de coïncidence [LEPY et al. 2010].

III.3.3.3 Correction des coïncidences des pics sommes de la source d'Eu-152

Le noyau du nuclide ^{152}Eu se désintègre soit par désintégration β^- et devenir ^{152}Gd ou, plus probablement (72.08% du temps) subissent la capture électronique et devient ^{152}Sm (Figure III-7). Dans les deux modes de désintégration, la désexcitation se fait en émettant un certain nombre de rayons gamma jusqu'à la formation d'un noyau stable. Comme la durée de vie de ses niveaux discrets nucléaire est beaucoup plus courte que le temps de résolution du système de détection, où chaque désintégration d'un atome de la source ^{152}Eu va libérer un certain nombre de rayons gamma et, éventuellement, les rayons X, il y a une forte probabilité que le détecteur détecte plus d'un d'entre eux dans le délai de résolution du détecteur. Lorsque cela se produit, une impulsion est enregistrée qui représente la somme des énergies déposées dans le détecteur. On appelle cela une coïncidence pics sommes (summing out), qui, comme pour les pics sommes aléatoires, les conséquences d'un tel événement est la perte de comptage dans le photo-pic et subséquemment une perte dans l'efficacité du photo-pic.

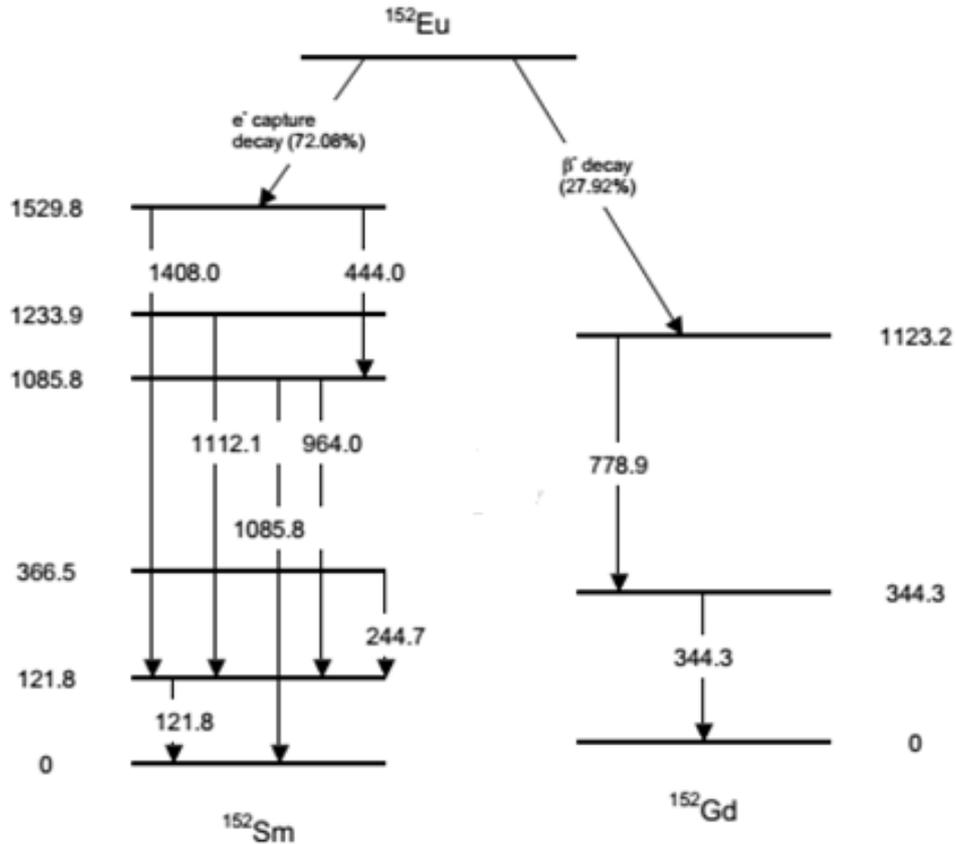


Figure III-7: schéma de décroissance simple pour le nuclide Eu152

Dans ce travail, la disponibilité du logiciel Gamma- vision 32 et le code MCNPX dans notre laboratoire, nous a permis d'adopter leur capacité de calcul comme une alternative pour évaluer les facteurs de correction de l'effet de coïncidence des pics sommes de la source de ^{152}Eu , pour une géométrie volumineuse, type béccher Marinelli, qui est posée directement sur le capot du détecteur en germanium hyper pure de type N, en utilisant trois méthodes différentes à savoir;

1. La méthode de calcul automatique incorporé dans le logiciel GammaVision
2. La méthode semi empirique.
3. La méthode de calcul MCNPX

En sachant que chaque méthode a ses atouts, une comparaison entre les deux méthodes utilisées est décrite ci-dessous.

III.3.3.4 Correction des coïncidences par le logiciel Gamma-Vision

Dans le présent travail, nous avons utilisé la capacité du logiciel Gammavision-32 qui offre une solution pratique et commode pour les problèmes de coïncidences des pics sommes rencontrées dans le cas d'une géométrie comptage ferme. La procédure de correction Gammavision-32 tcc est basée sur des travaux antérieurs mis au point par le groupe du Prof. Menno-Blaauw et al [Blaauw et Gelsema., 2003], chercheurs de l'Université technique de Delft (Pays-Bas). L'approche est semi empirique et basée sur des informations obtenues directement à partir du spectre d'étalonnage et le schéma de cascade détaillé de la désintégration du radionucléide. Dans cette méthode, la correction TCC pour une source ponctuelle peut être calculée à partir de la détermination de l'efficacité du pic d'énergie totale ainsi que le rapport pic sur total (P/T). Cette méthode a été étendu à la géométrie en introduisant en plus une troisième courbes d'efficacité, appelée « the linear-to-square curve ».

Pour une facilité d'utilisation, ORTEC a adapté et mis en œuvre cette approche dans l'environnement du logiciel Gamma-vision. Toutefois, la méthode de correction dans le logiciel gammaVision n'est pas détaillée dans le document accompagnant le logiciel afin d'inciter les futures intéressés à suivre une formation adéquate, qui se tient régulièrement chaque année par CANBERRA. Dans notre cas, après une longue investigation, nous avons réussi à utiliser cette option du logiciel, en collectant les morceaux de différents travaux publiés dans le domaine, et essentiellement en arrachant quelques informations précieuses de la part du professeur Menno-Blaauw, lors de notre participation à une conférence au pays bas.

Dans ce travail, je donne une description succincte de la méthode de correction de l'effet de coïncidence des pics sommes incorporé dans le logiciel Gammavision. Ainsi, après avoir effectué une calibration en énergie et en efficacité de la source multi-gamma, la correction est effectuée par une simple cochez dans la case "TCC" dans les paramètres de l'assistant de l'étalonnage (calibration Wizard) figure III-8, et les algorithmes de Gammavision-32 appliquent les facteurs de correction aux résultats, en suivant une succession d'étapes sur la base des informations obtenues directement à partir;

- Du spectre acquis de la source d'étalonnage,
- La géométrie de la source de référence, qui peut être une source ponctuelle ou une source étendue (voire figure III-9).
- Le schéma détaillé de la désintégration du radionucléide.

L'assistant d'étalonnage dans le logiciel Gamma-Vision effectue automatiquement la correction par le calcul de l'efficacité pleine d'énergie, l'efficacité du pic d'énergie totale qui englobe le calcul du rapport pic sur total (P/T), et finalement les conditions qui corrigent l'efficacité dans le cas d'une source étendue, dont la correction de l'auto-absorption.

Comme la correction TCC exige des détails et des informations supplémentaires sur les produits de filiations de la série de désintégrations, le chemin de décroissance, et la valeur de l'intensité du nuclide père et sa progéniture; on a utilisé la base de données très riche incorporé dans le logiciel NUCLEIDES-NAVIGATOR III (ORTEC). En effet, en utilisant le logiciel Nuclide-Navigator qui est jumelé avec le logiciel gamma vision, nous avons généré une bibliothèque appropriée au mode de désintégration de l'Eu-152 par la combinaison de nombreuses bibliothèques de radionucléides (Eu152, Sm152, Gd152) au format Microsoft ACCESS (figure III-10 et 11). Le processus de calcul nécessite également d'intégrer le fichier de certificat standard qui contient; l'activité de la source d'étalonnage, sa demi-vie, son certificat de fabrication, l'énergie de ses photons émis (rayons gamma et rayons X) ainsi que les incertitudes associées. Ce certificat peut être généré en utilisant l'éditeur fichier de certificat du logiciel Gammavision (voire figure III-12). Finalement, sur la base du spectre de la source Eu152 dans la géométrie de béccher Marinelli situé à proximité du détecteur de germanium, le système a été calibré pour l'énergie et l'efficacité corrigée de l'effet des coïncidences des pics sommes en utilisant l'assistant d'étalonnage de Gammavision (voire figure III-13).

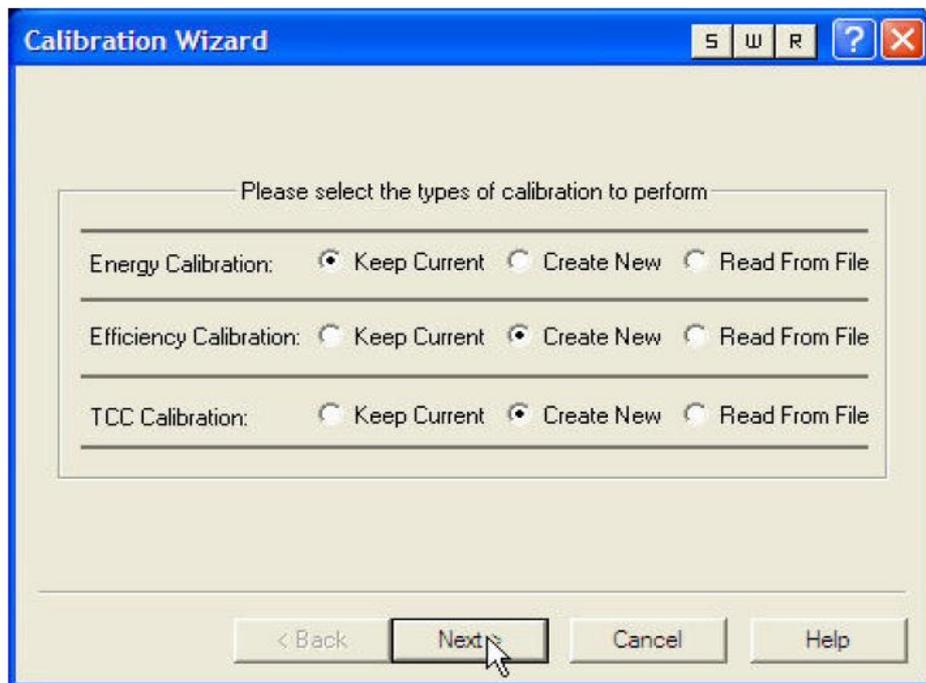
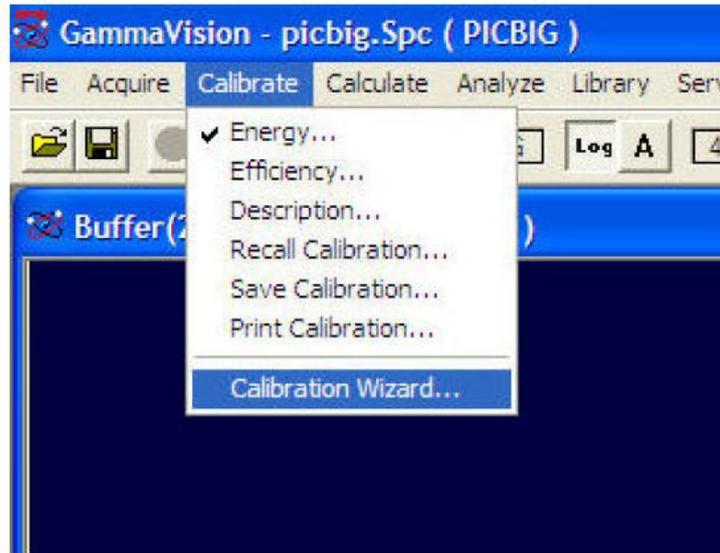


Figure III-8: l'assistant de l'étalonnage

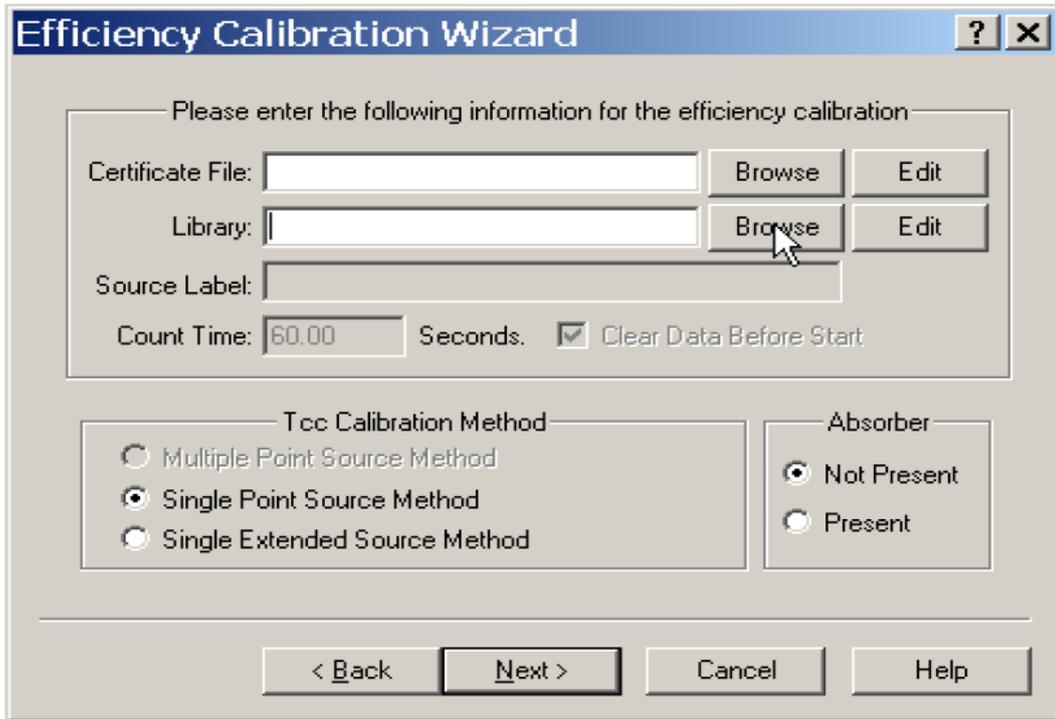


Figure III-9: Définition de la géométrie de la source

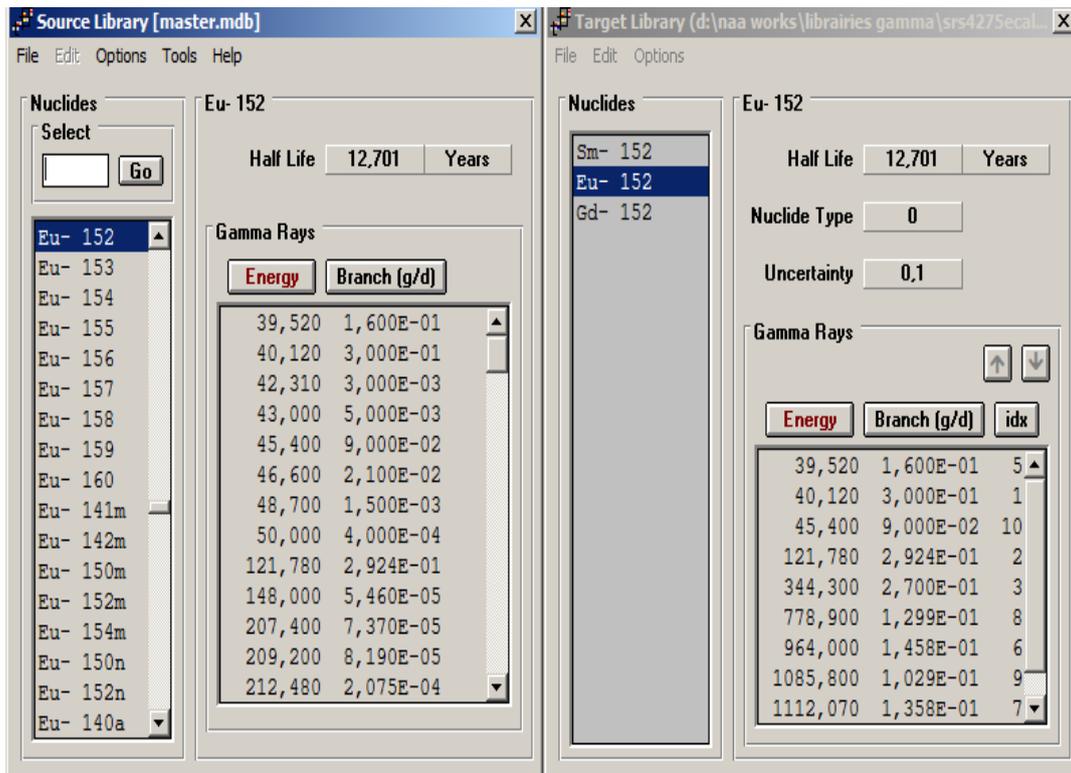


Figure III-10: Création de la librairie du nuclide en format Microsoft Access. mdb

Nuclide	Energy	Percent	Half-Life
Eu-152	39.52	16.0000	12.7 Yrs.
Eu-152	40.12	30.0000	12.7 Yrs.
Eu-154	42.31	7.3000	8.502 Yrs.
Eu-152	42.31	0.3000	12.7 Yrs.
Eu-154	43.00	13.1000	8.502 Yrs.
Eu-152	43.00	0.5000	12.7 Yrs.
Eu-152	45.40	9.0000	12.7 Yrs.
Eu-152	46.60	2.1000	12.7 Yrs.
Eu-152	48.70	0.1500	12.7 Yrs.
Eu-152	50.00	0.0400	12.7 Yrs.
Eu-152	121.78	29.2400	12.7 Yrs.
Eu-154	123.10	40.4600	8.502 Yrs.
Eu-152	148.00	0.0055	12.7 Yrs.
Eu-152	207.40	0.0074	12.7 Yrs.
Eu-152	209.20	0.0082	12.7 Yrs.
Eu-152	212.48	0.0207	12.7 Yrs.
Eu-152	238.80	0.0682	12.7 Yrs.
Eu-152	244.67	7.6160	12.7 Yrs.
Eu-154	248.04	6.6000	8.502 Yrs.
Eu-152	251.62	0.0764	12.7 Yrs.
Eu-152	269.40	0.0033	12.7 Yrs.
Eu-152	271.03	0.0764	12.7 Yrs.
Eu-152	275.40	0.0328	12.7 Yrs.
Eu-152	285.80	0.0068	12.7 Yrs.
Eu-152	295.95	0.4395	12.7 Yrs.
Eu-152	315.18	0.0437	12.7 Yrs.
Eu-152	316.00	0.0049	12.7 Yrs.
Eu-152	324.90	0.0778	12.7 Yrs.
Eu-152	329.41	0.1269	12.7 Yrs.
Eu-152	330.90	0.0063	12.7 Yrs.
Eu-152	340.50	0.0232	12.7 Yrs.
Eu-152	344.30	27.0000	12.7 Yrs.
Eu-152	352.00	0.0183	12.7 Yrs.
Eu-152	367.73	0.8735	12.7 Yrs.
Eu-152	385.70	0.0232	12.7 Yrs.
Eu-152	411.09	2.2640	12.7 Yrs.
Eu-152	416.07	0.1065	12.7 Yrs.
Eu-152	423.70	0.0055	12.7 Yrs.
Eu-152	444.00	0.3139	12.7 Yrs.
Eu-152	444.00	2.8390	12.7 Yrs.
Eu-152	482.70	0.0273	12.7 Yrs.
Eu-152	488.46	0.4095	12.7 Yrs.
Eu-152	493.60	0.0410	12.7 Yrs.
Eu-152	493.70	0.0262	12.7 Yrs.
Eu-152	493.90	0.0156	12.7 Yrs.
Eu-152	496.30	0.0055	12.7 Yrs.
Eu-152	496.40	0.0027	12.7 Yrs.
Eu-152	503.37	0.1501	12.7 Yrs.
Eu-152	520.22	0.0546	12.7 Yrs.
Eu-152	523.20	0.0109	12.7 Yrs.
Eu-152	527.30	0.0095	12.7 Yrs.
Eu-152	534.30	0.0382	12.7 Yrs.
Eu-152	535.30	0.0055	12.7 Yrs.
Eu-152	556.50	0.0205	12.7 Yrs.
Eu-152	561.40	0.0027	12.7 Yrs.
Eu-152	563.97	0.5159	12.7 Yrs.

Figure III-11: librairie du nuclide en format (mdb)

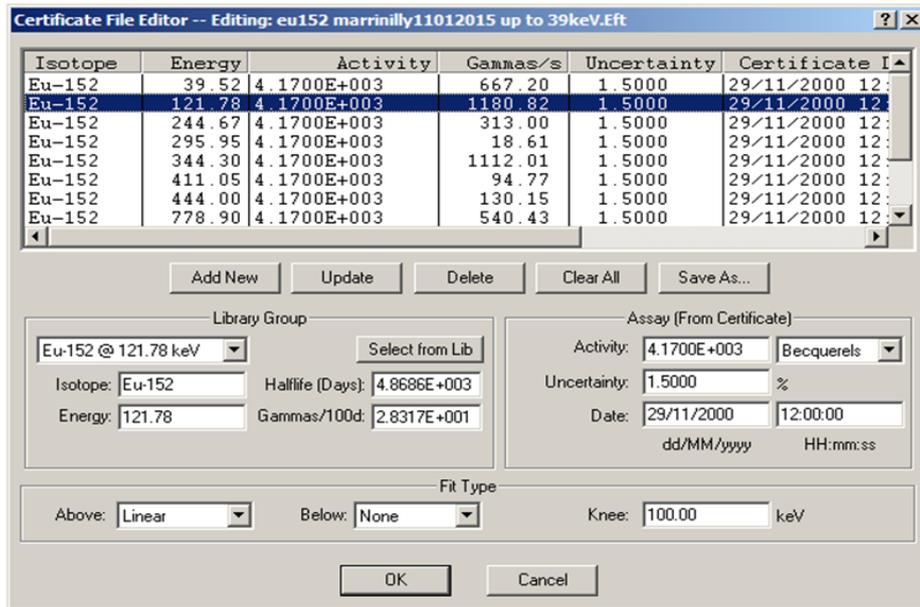


Figure III-12: édition du fichier de certificat du standard

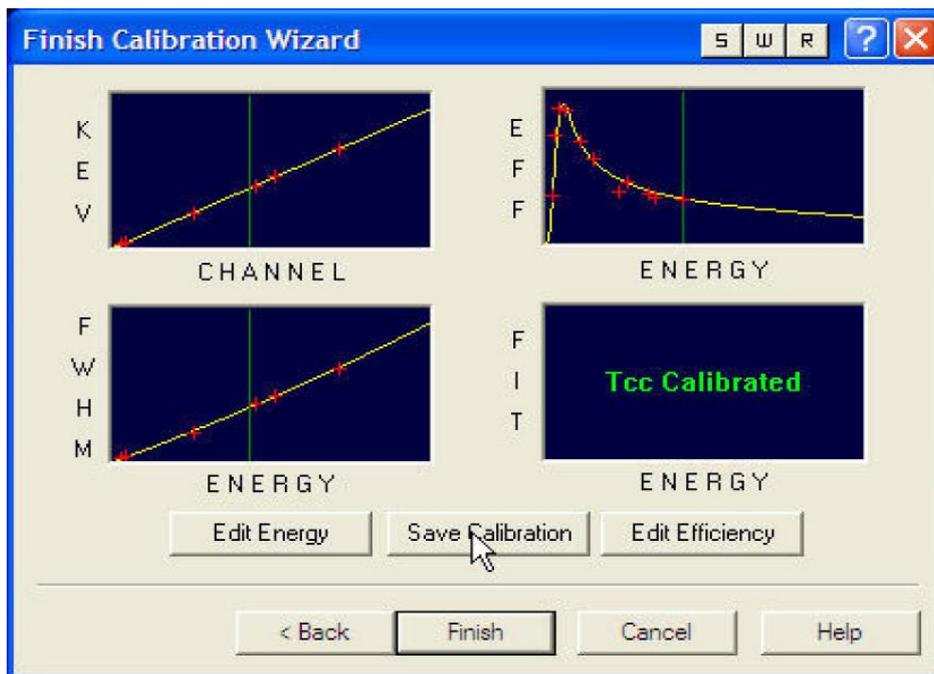


Figure III-13: Confirmation de l'assistant de calibration de la prise en compte des corrections des coïncidences des pics sommes

Dans le but de valider la méthode de correction automatique de l'effet de coïncidence des pics somme par le logiciel gamma vision, nous avons calculé l'activité de la source d'étalonnage de ^{152}Eu comme si elle était un échantillon inconnu, et de voir si les activités calculés sont en accord avec l'activité certifiées connues de cette source d'étalonnage.

Dans cet objectif, le spectre de la source certifié de l'Eu-152 a été analysé avec le logiciel Gamma-Vision une fois avec la correction en cascade activée (TCC On), puis de nouveau avec la correction désactivée (TCC Off). Les résultats des activités par rapport à l'activité certifiée sont présentés dans le tableau suivant (Tableau III-3)

Radionucléide	Activité Certifiée (Bq)	GV-TCC correction Off		GV-TCC Correction On	
		Activité Mesurée (Bq)	Déviations	Activité Mesurée (Bq)	Déviations
		^{152}Eu	2000 ± 0.5	1649	0,1755

Table III-3: The certified and measured activity of the ^{152}Eu calibration source

Les résultats de la mesure de l'activité de la source d'étalonnage de Eu152 exprimé dans le tableau 4, montre que l'activité mesurée de la source d'étalonnage de ^{152}Eu en utilisant un logiciel gamma-vision et en incluant la correction de tcc, donnent un bon résultat avec une précision d'environ 2,7% de la valeur de déviation par rapport à la valeur certifiée du ^{152}Eu la source d'étalonnage. L'inter-comparaison ci-dessus indique également que l'activité mesurée avec le logiciel de GammaVision sans tenir un compte de la correction de la coïncidence des spics sommes peut dévier de la valeur certifiée de la source d'étalonnage d'environ 17,5%.

Nous avons vérifié dans cette inter comparaison que les mesures d'activité en utilisant une source volumineuse et on utilisant un nuclide dont le chemin de décroissance et complexe peuvent conduire à des valeurs d'activité mesuré sous-estimé si les effets de coïncidence-des pics sommes ne sont pas prise en compte.

III.3.3.5 Correction des coïncidences par le code MCNPX

A partir du modèle optimisé du détecteur HPGe, le calcul MCNPX a été effectué pour corriger l'effet coïncidence des pics sommes. En effet, puisque les calculs MCNPX sont effectués indépendamment du schéma de décroissance, les efficacités de détection simulés avec le code MCNPX sont alors libres de toute influence de l'incidence des effets de coïncidence des pics sommes. Par conséquent, les facteurs de correction des coïncidences des pics sommes en fonction de l'énergie est défini comme le rapport d'efficacité MCNP sur l'efficacité expérimentale selon l'équation III-2

$$K_{TCS} = \frac{\epsilon_{MCNPX}}{\epsilon_{Expérimentale}} \quad (III-2)$$

III.3.3.6 Correction des coïncidences par la méthode semi expérimentale

Les facteurs de correction de coïncidence des pics sommes en fonction de l'énergie (F_{CSC}), sont obtenues en divisant l'activité de 152Eu mesurée en laboratoire pour chaque énergie gamma sans correction, par l'activité de référence certifiée par le CEA, selon les équations suivantes:

$$A_{Expérimentale}^{Non\ corrigée}(E) = \frac{Comptage}{\epsilon * P * t_{collection}} \quad (III-3)$$

$$A_{Etalon\ (CEA)}(E) = \frac{Comptage}{\epsilon * P * t_{collection} * F_{auto-absorption} * F_{CSC}} \quad (III - 4)$$

Ainsi le facteur de correction de coïncidence du pic somme en fonction de l'énergie est déduit comme suit;

$$F_{CSC} = \frac{Comptage}{\epsilon * P * t_{collection} * F_{auto-absorption} * A_{Etalon\ (CEA)}(E)} \quad (III-5)$$

Avec ;

F_{CSC} : facteur de correction de coïncidence des pics sommes en fonction de l'énergie

ε : efficacité expérimentale

P : probabilité d'émission gamma

$F_{\text{auto absorption}}$: facteur de correction de l'auto absorption dans un échantillon volumineux

$A_{\text{Etalon (CEA)}}$: activité de la source étalon en fonction de l'énergie d'émission.

$t_{\text{Collection}}$: est le temps réel de comptage.

Selon l'équation précédente, afin de calculer facteur de correction de l'incidence des coïncidences de pics sommes en fonction de l'énergie, il est indispensable d'évaluer en premier lieu le facteur de correction d'auto-absorption dans la source elle-même, qui n'est pas négligeable dans le cas des sources volumineuses.

III.3.3.6.1 Evaluation du coefficient d'auto-absorption

Dans cette partie de thèse ; compte tenu que nous avons obtenus par le fournisseur CEA, les caractéristiques géométriques exactes du container de la source bécher Marinelli ainsi que la composition chimique de la source en résine époxyde, voire figure III-4. Nous allons déterminer le coefficient d'auto-absorption à l'aide de la simulation par le code MCNPX. Et cela en calculant le rapport de l'efficacité simulée de la source d'Eu152 emballée dans une géométrie standardisée en bécher Marinelli une fois sur la base d'une matrice de référence composée de l'air, et une seconde fois sur la base d'une matrice en résine époxyde, ainsi le facteur de correction de l'auto-absorption en fonction de l'énergie est calculé suivant l'équation suivante (Eq. III-6).

$$F_{\text{Auto-absorption}}(E) = \frac{\varepsilon_{\text{simulé}}(E, \text{matrice Air})}{\varepsilon_{\text{simulé}}(E, \text{matrice résine époxyde})} \quad (\text{III-6})$$

$F_{\text{auto-absorption}}$: le facteur de correction en fonction de l'énergie.

$\varepsilon_{\text{matrice -Air}}$: l'efficacité mesurée où simulée d'un échantillon de matrice air, emballé dans une géométrie bécher Marinelli en polypropylène de volume 450 cm³.

$\epsilon_{\text{matrice résine époxyde}}$: l'efficacité mesurée ou simulée de l'étalon, dans notre cas c'est une matrice en résine époxyde emballé dans une géométrie béccher Marinelli en polypropylène de volume 450 cm³.

Les résultats des simulations des facteurs d'auto absorption en fonction de l'énergie de la source étalon Eu152 dont la matrice est en résine époxyde, emballée dans un conteneur de type béccher Marinelli de volume 450 cm³ sont donnés dans le tableau ci-après :

Energy (keV)	Efficacité MCNPX matrice résine époxyde	Efficacité MCNPX matrice -Air	F auto-absorption
121.78	6,48E-02	7,60E-02	0,852
244.7	4,52E-02	5,15E-02	0,877
344.28	3,32E-02	3,73E-02	0,890
411.11	2,82E-02	3,14E-02	0,898
778.91	1,61E-02	1,76E-02	0,916
964.13	1,37E-02	1,48E-02	0,923
1112.12	1,24E-02	1,33E-02	0,935
1408.01	1,05E-02	1,12E-02	0,940

Table III-4: calcul du facteur d'auto-absorption dans le volume béccher Marinelli par le code MCNPX

Selon l'équation (III-5), les valeurs calculées du facteur de correction de coïncidence des pics sommes en fonction de l'énergie gamma de la source de L'Eu-152 sont répertoriés comme suit dans le tableau suivant (tableau III-4).

Energie (keV)	p	Efficacité Expérimentale	Comptage	F_{auto-absorption}	F_{CSC}
121,78	28,32	5,66E-02	2755216	8,52E-01	1,17
244.7	7,51	3,55E-02	455548	8,77E-01	1,13
344.28	26,67	3,20E-02	1445064	8,91E-01	1,10
411.11	2,27	2,42E-02	93469	8,98E-01	1,10
778.91	12,96	1,50E-02	333838	9,16E-01	1,08
964.13	14,62	1,19E-02	301843	9,23E-01	1,09
1112.12	13,58	1,11E-02	259714	9,35E-01	1,07
1408.01	20,85	9,13E-03	325920	9,41E-01	1,05

Table III-4: calcul du facteur de correction des coïncidences des pics sommes(F_{CSC})

Les résultats des valeurs des coïncidences des pics sommes déterminée par les trois méthodes à savoir; le logiciel Gamma-Vision, le calcul MCNPX et la méthode semi empirique sont présenter dans le tableau suivant. Ainsi, dans la première colonne, nous présentons les lignes gamma principales de la source Eu-152, dans la deuxième colonne, la valeur du facteur de coïncidence réelle calculée en utilisant le code MCNPX sur la base du modèle optimisé du détecteur HPGe, dans la troisième colonne, la véritable facteur de coïncidence calculée à partir du logiciel Gamma vision, et finalement dans le quatrième colonne le facteur de coïncidences des pics sommes calculés par la méthode semi-empirique

Energie (keV)	F _{CSC} Gammavision (GV)	F _{CSC} MCNPX	F _{CSC} Semi- expérimentale	Erreur relative F _{CSC} MCNPX/GV
121,78	1,132	1,144	1,17	0.010
244,7	1,28	1,273	1,13	0.005
344,28	1,075	1,037	1,10	0.036
411,11	1,21	1,165	1,10	0.038
778,91	1,133	1,073	1,08	0.055
964,13	1,193	1,151	1,09	0.036
1112,12	1,135	1,117	1,07	0.016
1408,01	1,128	1,15	1,05	0.019

Table III-4: facteur de correction des coïncidences des pics sommes (F_{CSC}) en géométrie bécher Marinelli, calculé avec MCNPX et logiciels gamma-Vision.

Nous notons que le rapport du facteur de correction de coïncidence des pics sommes, calculé par les trois méthodes, le logiciel Gamma Vision, les calculs MCNPX, ainsi que par la méthode semi-Expérimentale, pour les émissions gamma majeures du nucléide ¹⁵²Eu sont supérieure à 1.

Nous avons également démontré la capacité du calcul MCNPX pour déterminer les facteurs de correction de coïncidence des pics sommes pour n'importe qu'elle nuclide, en préparant seulement un fichier de données d'entrée avec les données nucléaires appropriés.

Dans la figure III-14, les efficacités déterminés expérimentalement et qui sont affectés par les effets de coïncidence des pics sommes sont tracés avec les efficacités MCNPX et les efficacités corrigée par le logiciel Gamma-vision.

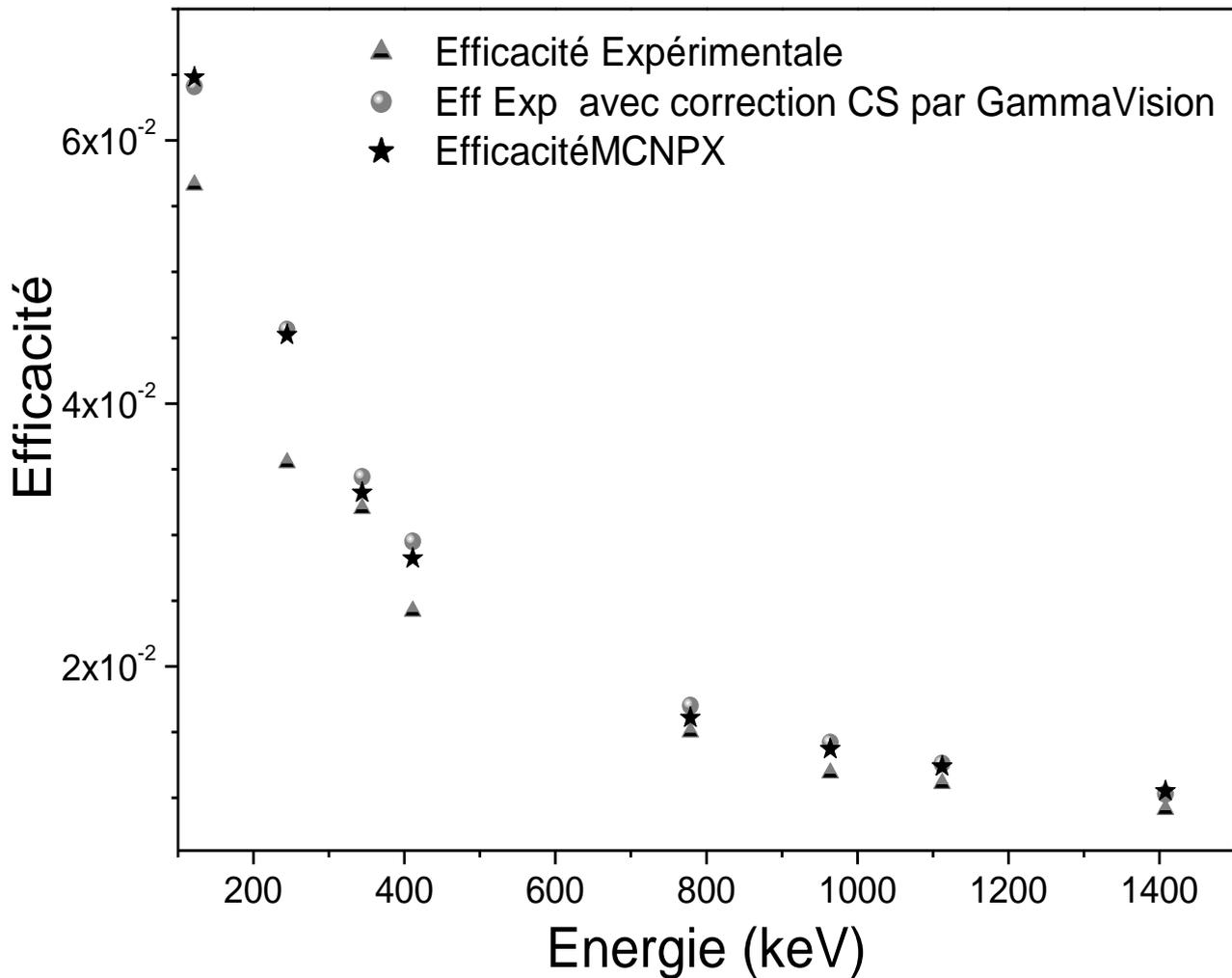


Figure III-14: Comparaison entre l'efficacité expérimentale, l'efficacité MCNPX, et l'efficacité corrigée par le logiciel Gamma-vision.

Les efficacités corrigées des effets de coïncidences intégrées dans le logiciel gamma vision sont en bon accord avec les efficacités calculées par le code MCNPX. En effet, après l'application de la correction, l'erreur moyenne liée aux effets de cascade des pics sommes qui est évaluée à plus de 13% dans la gamme d'énergie de 40 keV jusqu'à 1408 keV est sensiblement réduite dans toute la gamme d'énergie. Nous pouvons donc conclure que les effets de sommation sont importants pour des mesures fiables dans une telle géométrie étroite, en particulier lorsque de mode de désintégration du nuclide est complexe avec une grande multiplicité de coïncidences en cascade sont impliqués (gamma et X). Les méthodes appliquées pour la correction de l'effet de coïncidence en cascade avec le code MCNPX et le

logiciel Gammavision (GV) sont efficaces et précises dans le cas du radionucléide avec un schéma de désintégration complexe, impliquant la contribution des rayons X, et qui sont comptés en étroite géométrie par rapport à un détecteur en germanium de type n.

Il convient également de souligner la simplicité des corrections des effets de coïncidence des pics sommes incorporé dans le logiciel Gamma-vision-32, où la détermination de la courbe de l'efficacité corrigée de effet de coïncidence en cascade, ainsi que le calcul de l'activité de la source est entièrement automatisé. Le code MCNPX à prouvé aussi qu'il peut reproduire l'efficacité de détection pour n'importe qu'elle configuration et géométrie de détection, il peut également calculer fidèlement le facteur de coïncidence, la facteur d'au absorption de n'importe qu'elle matrice, ainsi que la réponse spectrale sur une large gamme d'énergie, et cela en élaborant un simple input d'entrer qui inclue les données physiques, géométriques et les compositions chimiques de tous les équipements utilisé dans la mesure.

Références bibliographiques

Références bibliographiques

- Azli , T., Z Chaoui., 2015. Performance reevaluation of a N-type coaxial HPGe detector with front edges crystal using MCNPX. *Appl. Radiat. Isot.* 97, 106-112.
- Begona Quintan and francis cofernandez ., 1995. An Empirical Method to Determine Coincidence-Summing Corrections in Gamma Spectrometry; *Appl. Radiat. Isot.* 46. 9, 961-964
- Boshkova, T., 2014. Experimental assessment of the coincidence summing corrections in gamma-ray spectrometry of bulk samples. *Appl. Radiat. Isot.*83, 1-7.
- Bronson. F, W. R. Russ, and R.Venkataraman., GENIE2000 CASCADE SUMMING CORRECTION VALIDATION TESTING., Canberra Industries, 800 Research Parkway, Meriden, CT 06450, USA.
- Blaauw, M., Gelsema Sjoerd, J., 2003. Cascade summing in gamma-ray spectrometry in bécher Marinelli geometries: the third efficiency curve. *Nucl. Instr.Meth. A* 505, 311-315.
- Cutshall N. H., Larsen I. L., Olsen C.R., 1983. Direct analysis of ²¹⁰Pb in sediment samples: self-absorption corrections. *Nuclear Instruments and Methods* 206, 309-312.
- Decombaz, M., Gostely, J.-J., Laedermann, J.-P., 1992. Coincidence summing corrections for extended sources in gamma-ray spectrometry using Monte Carlo simulation. *Nucl. Instr. Meth.A* 312, 152-159.
- De Felice, P., Angelini, P., Fazio, A., Biagini, R., 2000. Fast procedures for coincidence summing correction in γ -ray spectrometry. *Appl. Radiat. Isot.* 52, 745-752.
- Dirk, A., Sima, O., 2006. Calculation of coincidence summing corrections for X-ray peaks and for sum peaks with X-ray contributions. *Appl. Radiat. Isot.* 64, 1297-1302
- Gehrke, R.J ., Helmer, R.G. , Greenwood, R.C., 1977. *Nucl . Instr . and Meth .* 147 405.
- Idaho National Laboratory. <https://www.inl.gov>.
- Knoll, G.F., 2000. *Radiation Detection and Measurement*, third ed. Wiley, New York.
- Lépy, M.-C., 2007. Total efficiency calibration for coincidence-summing corrections. *Nucl. Instr. Meth. A* 579, 284-287.
- Lépy and al; 2010. Intercomparison of methods for coincidence summing corrections in gamma-ray spectrometry. *Appl. Radiat. Isot.* 68, 1407-1412
- Mayeen Uddin Khandaker., 2011. *IJFPS.* 1, No.2, 42-46
- McCallumand, G.J., Coote, G.E ., *Nucl . Instr . and Meth.,* 1975.130-189.

- Moens, L and Hoste, J., 1983. Calculation of the peak efficiency of high-purity germanium detectors. *Appl. Radiat. Isot.* 34. 8, 1085-1095
- Pelowitz, D.B., ed., 2008. MCNPX User's Manual, Version 2.6.0, Los Alamos National Laboratory report LA-CP-07-1473.
- Ramos-Lerate, I., Barrera, M., Ligeró, R.A., Casas-Ruiz, M; 1997. A new summing-correction method for gamma-efficiency calibration with multi-gamma-ray radionuclides method. *Nucl. Instrum. Methods A*395. 2, 202-206
- Rodenas, J., Pascual, A., Zarza, I., Serradell, V., Ortiz, J., Ballesteros, L., 2003. Analysis of the influence of germanium dead layer on detector calibration simulation for environmental radioactive samples using the Monte Carlo method. *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. A* 496, 390-399.
- Ródenas, J., Gallardo, S., Ballesterá, S., Primault, V., Ortiz, J; Application of the Monte Carlo method to the analysis of measurement geometries for the calibration of a HPGe detector in an environmental radioactivity laboratory; 2007. *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B* 263. 1. 144-148
- Ródenas, J., Martinavarro, A., Vicente, R; 2000. Validation of the MCNP code for the simulation of Ge-detector calibration. *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. A*450, 88-97
- Roper, L., 1990. Toxicological profile for radium, Agency for Toxic Substances and Disease Registry U.S. Public Health Service In collaboration with: U.S. Environmental Protection Agency.
- Semkow, T. M., Ghazala Mehmood., Parekh, Pravin. P., Virgil, Mark., 1990. COINCIDENCE SUMMING IN GAMMA-RAY SPECTROSCOPY., *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res A*290, 437-444.
- Sima, O., Dirk, Arnold., 2000. Accurate computation of coincidence summing corrections in low level gamma-ray spectrometry. *Appl. Radiat. Isot.* 53, 51-56

Chapitre VI: Application

Détermination de la radioactivité naturelle des échantillons d'eaux à proximité du gisement de phosphate à Bir-El-Ater (Tébessa).

I Application

I.1 Introduction :

Dans le présent travail nous nous sommes intéressés à la radioactivité naturelle technologiquement renforcée liée à l'industrie du phosphate. La radioactivité liée aux phosphates qui provient des chaînes de ^{238}U et du ^{232}Th avec une teneur moyenne en uranium dans l'ordre de 30 à 40 ppm a toujours constitué un souci des opérateurs dans le domaine des phosphates, des responsables et des importateurs des phosphates et de leurs dérivées. Les risques radiologiques sont différents suivant le mode d'exposition au radioélément, ainsi le risque majeur lié aux radioéléments émetteurs existe lorsqu'il y a risque d'absorption de poussières par ingestion contenant ce type de radioélément [James, H. et al. 2016; Ajmal, P.Y et al., 2014; Natasa Todorovic et al., 2015; Mattiello, E et al., 2016; Eliana Aparecida Nonato Knupp et al., 2014.].

Dans cette vision, l'objectif de cette étude est de fournir des données pour la distribution des différents radioéléments dans les rejets liquides issues de l'installation de traitement et d'enrichissement des phosphates extraits des gisements de la région de Djebel-El-Onk au sud de la wilaya de TEBESSA. Les ressources prouvées de ces gisements sont estimées à plus de 2 milliards de tonnes de phosphate. Ils sont exploités par la Société Minière des Phosphates (SO.MI.PHOS)- filiale de Ferphos.

Parmi les radioéléments analysés, nous nous sommes focalisés sur l'estimation de la concentration du ^{226}Ra et son fils directe le ^{222}Rn qui provient de la désintégration de l'uranium présent dans la plupart des roches. Ce choix est motivé par le pouvoir de solubilité du ^{226}Ra dans l'eau et les effets néfastes qu'il peut engendrer sur la santé [Marques, et al, 2004; Gaso, M.I et al. ,2015;]. Le ^{226}Ra est considéré avec le ^{222}Rn comme dangereux et cancérigènes par l'OMS [Kozłowska, et al, 1999]. En effet, en se désintégrant le radon émet des particules alpha et engendre des descendants gazeux et solides, qui sont eux même radioactifs. Ces particules peuvent être fixées sur les aérosols atmosphériques ou diluées dans les eaux et peuvent être inhalées ou ingérées. Une forte concentration de ^{226}Ra dans l'eau ou dans l'air (poussières) peut susciter des inquiétudes quant à ses effets nocifs sur la santé, engendrant une augmentation du risque de décès par cancer. Les Chercheurs des pays tels que l'Autriche [Gruber, et al, 2009], l'Arabie saoudite [Alabdula'aly, 1999], Allemagne [Kiisters,

et al, 2009] et l'Algérie [Amrani, et al 1999] ont rapportés des effets néfastes des irradiations liés au ^{226}Ra ainsi que son fils directe le ^{222}Rn .

Afin de fournir plus d'informations sur l'impact radiologique de ces installations sur l'environnement avoisinant, et d'apporter par la suite des solutions palliatives locales dans la gestion des déchets; l'analyse de la radioactivité d'un ensemble d'échantillons de rejets liquides issues de l'industrie de phosphate, ainsi que différentes sources d'eaux naturelles « eaux de puits, de robinet » sera effectuée à proximité de la zone phosphaté.

L'identification et la mesure quantitative des éléments de faibles concentrations présentes dans les échantillons environnementales sont réalisée grâce à la technique d'analyse par spectrométrie gamma, en utilisant un détecteur en Germanium hyper pur, avec une résolution de l'ordre 1.8 keV, qui offre un outil d'analyse très sensible.

I.2 Procédure expérimentale

I.2.1 Situation géographique du site

L'Algérie est classée dans le monde parmi les pays disposant d'importantes réserves de phosphate estimées à environ deux milliards de tonnes. Ces ressources sont concentrées principalement au niveau du bassin minier de Djebel Onk – Tébessa (Nord Est algérien) sont exploitées pour le développement de l'agriculture en améliorant le rendement des exploitations agricoles, et pour la production de l'acide phosphorique. Elles sont malheureusement exporté presque en totalité sous forme de minerai enrichi par la Société des Mines de Phosphates SOMIPHOS–Filiale de FERPHOS Group actuellement seul propriétaire des mines de Kef Es Sennoun, de Djemi Djema, de Djebel Onk Nord, de Oued Betita et de Bled El Hadba. L'usine de traitement se trouve à quelques kilomètres de la ville de Bir el Atter.

Le gisement de Kef Essenoun, principale source d'alimentation de l'usine de traitement, fait partie du bassin phosphaté de Djebel Onk. Il se situe au Nord-est de l'Algérie à environ 100 Km au Sud de la ville de Tébessa et à 20 Km de la frontière Algéro-tunisienne (Fig. IV-1), à l'extrémité orientale des monts des Nememcha.

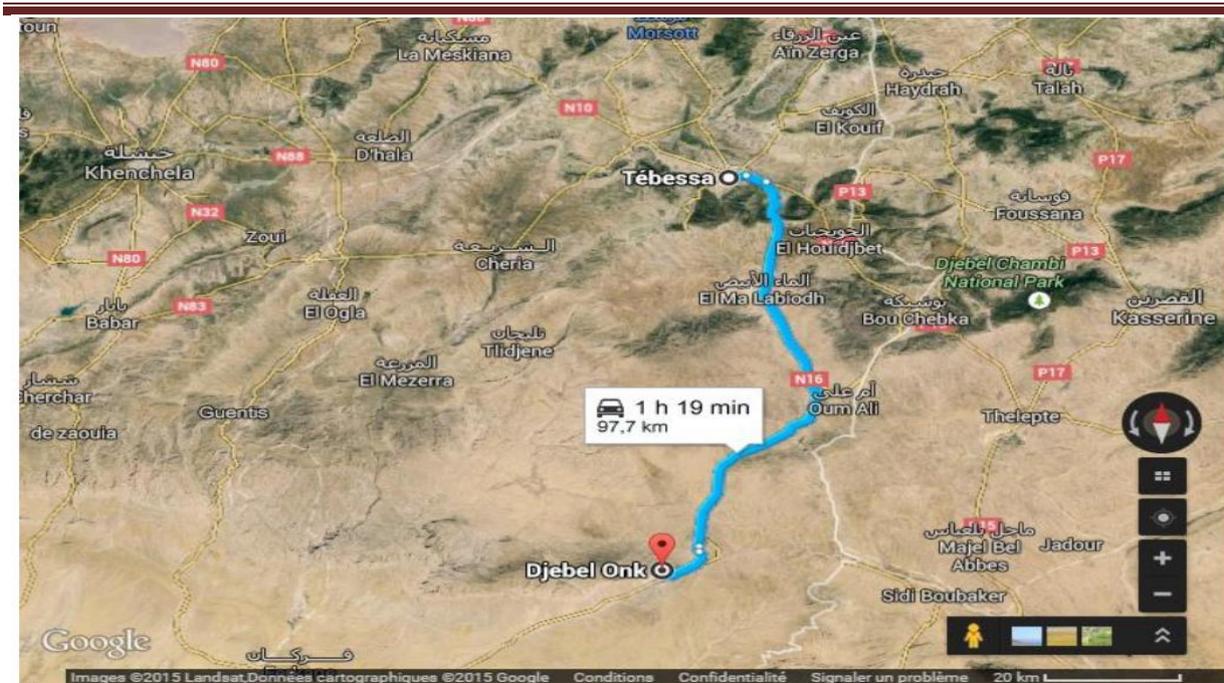


Figure IV-1: Carte de situation géographique Djebel Onk

Ce bassin minier renferme 5 gisements de phosphate qui sont: le gisement de Djemidjema, gisement de Djebel Onk Nord, gisement de Bled El Hadba, gisement de Oued-Betita, et le gisement de Kef Essenoun (voire figure IV-2).

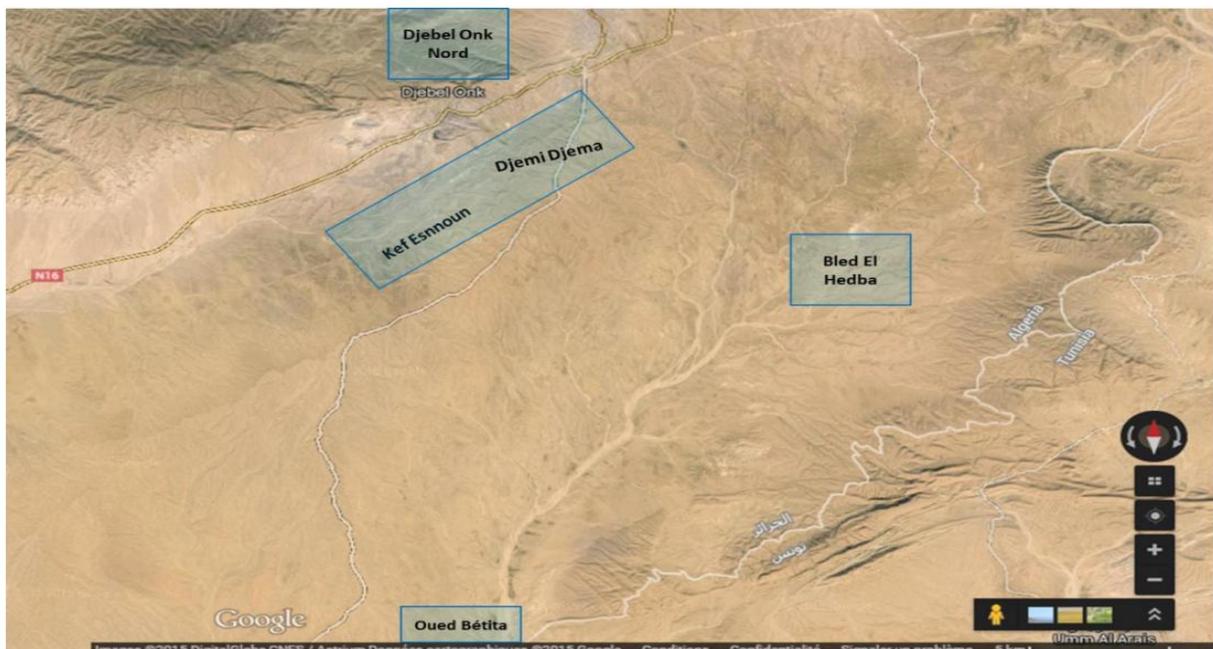


Figure IV-2: Carte de situation géographique et géologique des gisements de Djebel Onk

Le gisement de Kef Essennoun est situé sur le flanc méridional de l'anticlinal de Djebel Onk, à environ 09 Km au Sud-Ouest de la ville de Bir el Ater. Le Djebel Onk se présente sous forme d'un massif calcaireux de 20 Km de long qui culmine à 1198 m d'altitude au Djebel Tarfaya et qui constitue la limite des hauts plateaux constantinois et du domaine saharien ou prés saharien. Il se situe à la limite de la zone des climats subdésertiques. Il en résulte une végétation pratiquement inexistante. La pluviométrie se caractérise par des taux très faibles et le réseau hydrographique est rarement mis à contribution. La violence des pluies périodiques provoque des ruissellements torrentiels qui inondent et peuvent changer l'ancienne allure de quelques ravins. Les vents de sables sont fréquents en saison sèche. La population est peu dense. L'installation du complexe minier à Bir el Ater a contribué à l'agrandissement et au développement de la ville ce qui a engendré l'amélioration de la situation économique de la population.

I.2.2 Echantillonnage

L'échantillonnage consiste à prélever des échantillons représentatifs des eaux issues de différentes origines et milieux à proximité de l'installation de traitement de phosphate dans la région de Bir-El-Ater à Tébessa, à ce titre nous avons prélevé un litre et demi d'eau représentative du milieu de prélèvement. Pour cela, quatre milieux de prélèvement ont été choisis :

- l'eau de forage qui est utilisé par le complexe de traitement de phosphate dans le processus d'enrichissement et de traitement des roches et produits bruts prélevés des différents minerais de phosphate.
- Le deuxième échantillon d'eau est prélevé au niveau de l'épaisseur qui représente l'output des eaux de forage qui sont utilisés pour le traitement des phosphate par le procédé de la voie humide, ces eaux sont généralement déversés dans la nature après la récupération des boues qui sont riches en phosphates.
- Le troisième échantillon est prélevé est issu de l'eau robinet au niveau de la localité de Bir-el- Ater (Tébessa) dont l'installation de traitement des phosphates se trouve.
- Le dernier échantillon d'eau de forage est prélevé au niveau de la ville d'Alger (utiliser comme comparateur ou échantillon témoin).

Ce protocole de prélèvement permet de déterminer :

1. L'impact du processus d'enrichissement de phosphate sur l'accroissement de la radioactivité du liquide rejeté, et de ce fait, une modification de l'équilibre radioactif naturel du milieu.
2. L'effet engendré par la présence des mines de phosphate dans la région sur le niveau de radioactivité des eaux de forage et de robinet.

Les prélèvements ont été effectués dans des bouteilles en plastique d'un litre et demi préalablement lavés à l'eau distillée, séchés et rincés plusieurs fois avec l'eau du milieu de prélèvement. Pour prévenir l'accumulation des radionucléides sur les parois du conteneur, nous avons immédiatement procédé à l'acidification du prélèvement en ajoutant environ 10 ml d'acide chlorhydrique de grade analytique, à une concentration de 11 Moles pour un litre de liquide prélevé [E.A Agbalagba et al, 2011].

1.2.2.1 Préparation de l'échantillon d'analyse

Les mesures faisant intervenir de faibles activités radioactives comparables au bruit de fond comme c'est le cas dans notre étude, exigent des rendements de détection élevés. Pour cela il faut disposer d'un détecteur germanium de gros volume très couteux, où en augmentant l'angle solide entre l'échantillon et le détecteur. C'est ce dernier choix qui a été utilisé. Pour un angle solide maximum d'environ 4π , il suffit que l'échantillon puisse englober quasi complètement le détecteur. Le récipient béccher Marinelli en polyéthylène (Figure III-2) permet d'assurer ce type de géométrie 4π . Avant qu'ils soient remplis, les récipients béccher Marinelli sont nettoyés avec de l'acide chlorhydrique et rincer plusieurs fois à l'eau bi-distillée.

1.2.2.2 Emballage des échantillons à des fins de mesure

La procédure d'emballage a été effectuée comme suit:

- Le récipient a été fermé après le remplissage. Pour diminuer les effets d'auto-absorption, la hauteur du contenu a été maintenue au niveau minimum, exactement au même niveau que le niveau de la matrice radioactive de l'étalon utilisée.
- Le volume de l'échantillon a été noté, cette information a été utilisée lors de la préparation des résultats des activités spécifiques,
- Le niveau supérieur de l'échantillon doit être horizontal avant la mesure.

- les récipients sont nettoyés à l'extérieur pour éliminer les risques de contamination au cours du processus de remplissage.
- Les conteneurs ont été scellés hermétiquement avec du para-film pour éviter toute fuite du gaz Radon ^{222}Rn .

Les échantillons fermés hermétiquement doivent être conservés pendant 30 jours pour atteindre l'équilibre séculaire du ^{226}Ra avec ses descendants. Cette durée représente environ 7 fois la période radioactive du ^{222}Rn , comme le montre la figure IV-3.

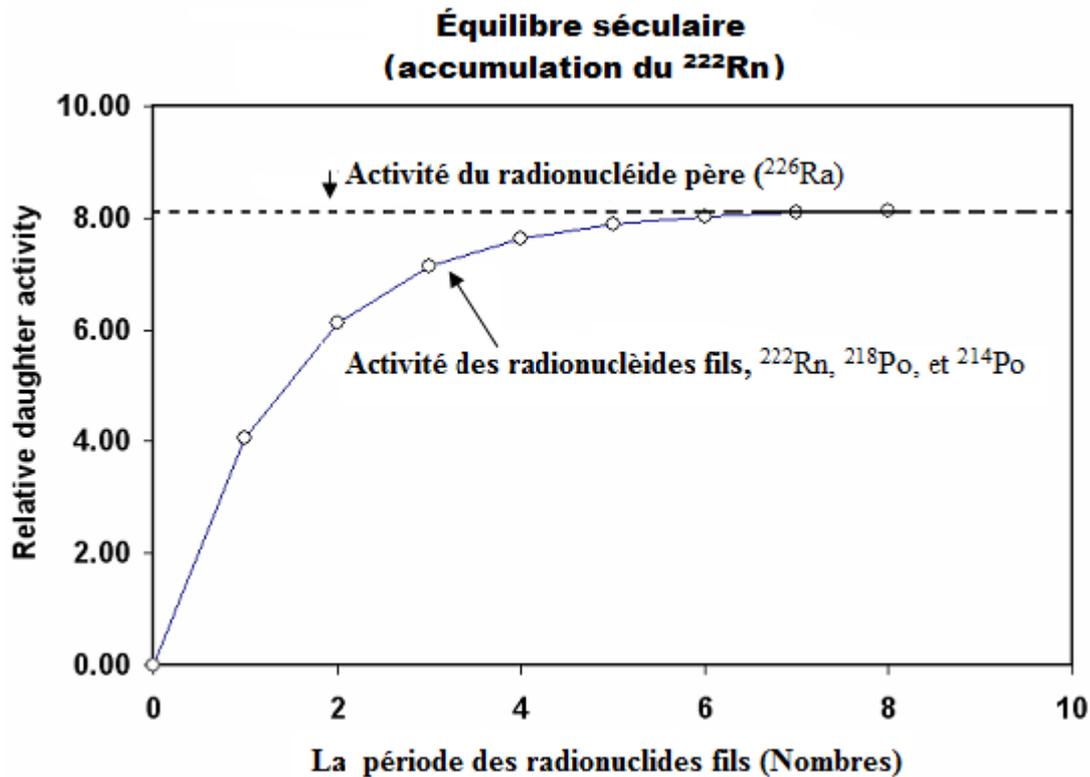


Figure IV-3: Equilibre séculaire du ^{222}Rn

I.2.3 Incertitude de comptages

Les incertitudes statistiques de comptage ne peuvent pas être négligées, ils sont toujours pris en compte dans l'analyse du spectre. Compte tenu que ces incertitudes diffèrent d'un échantillon à un autre, et d'un nuclide à un autre dans le même échantillon, et souvent d'un pic à un pic pour chaque nuclide, nous avons pris en considération ces variables par l'estimation des incertitudes de comptage. Par conséquent, les résultats de concentration d'activité présente un niveau de confiance de 68%, caractérisé par les valeurs $\pm 1\sigma$. La

formule suivante représentée dans l'équation IV-6 a été utilisée pour calculer l'incertitude dans les valeurs de concentration d'activité ;

$$\sigma = \frac{\sqrt{(\sigma_E)^2 + (\sigma_B)^2}}{T * \varepsilon * Y * V} \quad (\text{IV-1})$$

Où ;

σ : incertitude combiné de la concentration de l'activité

σ_E : incertitude dans le comptage de l'échantillon

σ_B : incertitude dans le comptage du bruit de fond

T: temps de comptage en secondes

ε : Efficacité de détection

Y: probabilité d'émission gamma du radionucléide à une énergie donnée

V: volume de l'échantillon.

I.3 Chaîne d'acquisition

Le spectromètre de rayons gamma utilisé est un détecteur HPGe avec un analyseur multicanaux à 8192 canaux. Les caractéristiques du détecteur HPGe de type n utilisé dans cette analyse sont décrites en détail dans chapitre III section 2. Le détecteur est placé dans un château en plomb pour protéger l'installation de mesure contre la radioactivité ambiante (voire Figure III-2). Les échantillons sont ensuite placés respectivement dans le détecteur pour une durée de 24 heures. Le détecteur plongé dans un Dewar est refroidi par l'azote liquide à une température égale à (77°K). L'eau dés-ionisé a été utilisée pour estimer le taux du bruit de fond. Les spectres collectés pendant 24 heures ont été évalués par le logiciel GammaVision. Le calcul des concentrations d'activité des différents radioéléments présents dans les échantillons a été effectué à la fois manuellement en utilisant un tableur (Microsoft Excel), et avec le logiciel GammaVision.

Après la mesure et la soustraction du bruit de fond, les concentrations d'activité ont été estimées.

La mesure de l'activité des éléments des chaînes naturelles dans des échantillons prélevés dans l'environnement est un processus complexe car les activités mises en jeu sont très faibles. Pour cela, il est nécessaire avant toute mesure de l'énergie de maîtriser parfaitement les différentes étapes menant à la détermination des activités incluant deux paramètres essentiels à savoir; la calibration en énergie et l'étalonnage en efficacité.

I.3.1 Etalonnage de l'installation de mesure

I.3.1.1 Etalonnage électronique

Lorsque le photon dépose son énergie dans le volume actif du détecteur, un signal de tension est généré. Ce signal est mise en forme, amplifié et converti en un signal numérique pour permettre un affichage sous forme d'histogramme. Il existe une relation de proportionnalité entre l'énergie déposée par le photon et le canal qui lui correspond. Cette relation dépend principalement de deux ajustements. Le premier est réalisé sur l'amplificateur afin de régler le gain d'amplification fixé à 65 ; le second réglage est effectué sur le module MCB en choisissant un gain de conversion de 8192 canaux. Cette opération d'étalonnage électronique de la chaîne permet de s'assurer du bon fonctionnement électronique de la chaîne de mesure et d'afficher grossièrement la position des pics photoélectrique d'intérêt. Cette opération doit être suivie par un étalonnage précis en énergie et efficacité.

I.3.1.2 Calibration en énergie

L'analyse du spectre nécessite premièrement l'alignement respectif des raies de la source d'étalonnage qui émet des gammas d'énergies et intensité bien connus aux canaux correspondant. Dans le but de couvrir toute la gamme d'énergie qui nous intéresse, nous avons choisis un nombre maximal de canaux, à savoir, 8192 canaux avec une pente de conversion égale à 0.3 KeV /canal. Dans le chapitre II, nous avons effectués une calibration en énergie en utilisant comme source d'étalonnage en énergie la source multi-gamma d'Eu-152 (tableau II-1). Une commande du logiciel GAMMAVISION permet de générer automatiquement la courbe d'étalonnage (voire Figure II-7). L'expression liant l'énergie au canal obtenu est la suivante :

$$E = -0.0619 + 0.300272X - 1.8493e-008X^2 \quad \text{(IV-2)}$$

Où E est l'énergie en keV et X est le canal correspondant à l'énergie E

1.3.1.3 Calibration en efficacité

Dans la mesure de spectrométrie gamma la connaissance de l'efficacité du détecteur est indispensable, car elle permet de retrouver l'activité des radioéléments dans l'échantillon à analyser. Afin d'atteindre cet objectif, il est nécessaire d'acquérir un spectre calibré en énergie des sources radioactives standards connues, pendant un temps suffisamment long pour obtenir des pics avec une petite incertitude. Pour minimiser les sources d'erreur liées au calcul de l'activité d'un radionucléide dans un échantillon environnemental, il est préférable que cette source étalon (sources radioactives standards) ait une matrice (densité) et une géométrie proche de la matrice et de la géométrie des échantillons à analyser afin de ne pas effectuer des corrections de l'auto-absorption. Dans notre laboratoire on dispose d'une source l'Europium-152 qui offre un panel de pics isolés couvrant une gamme d'énergie de 40 keV jusqu'au 1408 keV. La source d'Eu152 est composée d'une résine dont la densité est équivalente à la densité de l'eau et d'un volume de 450 cm³ contenu dans une géométrie béccher Marinelli (Figure III.3). Ce qui offre un facteur géométrique favorable et très large du fait que cette géométrie (béccher Marinelli) couvre totalement le Crystal du détecteur.

Dans ce chapitre, nous avons préféré d'utiliser les efficacités calculées précédemment (chapitre III) par le code MCNPX, sur la base du modèle optimisé du détecteur HPGe effectué dans le chapitre 1. Compte tenu que les calculs MCNPX sont accomplis indépendamment du schéma de décroissance de la source, les efficacités de détection simulés avec le code MCNPX sont alors libres de toute influence de l'incidence des effets de coïncidence des pics sommes. Ceci nous permet de contourner les problèmes liés aux pics sommes, et nous évitera par conséquent d'effectuer des corrections supplémentaires liées aux phénomènes des coïncidences des pics sommes engendrés par la mesure expérimentale d'une source émettant des gammas en cascade à une géométrie ferme par rapport au détecteur HPGe.

Les valeurs de l'étalonnage en efficacité, réalisé par le code MCNPX par la simulation d'une source l'Europium-152 (0.45 litre) adaptées à la géométrie de mesure ferme (Close) par rapport à un détecteur HPGe de type N, sont présentées dans le tableau suivant IV-2.

Energie	Efficacités (MCNPX)
121.78	5.6616E-002
244.70	3.5452E-002
295.94	3.0114E-002
344.28	3.2001E-002
411.11	2.4191E-002
443.98	2.1645E-002
778.91	1.5034E-002
964.13	1.1948E-002
1112.12	1.1082E-002
1408.01	9.1281E-00

Tableau IV-2: Raies gamma de ^{152}Eu utilisées pour simuler l'efficacité de détection (MCNPX)

La courbe représentative de l'efficacité en fonction de l'énergie est présentée dans la figure 4. Le traçage de la courbe $\text{Ln}(\epsilon) = f(\text{Ln}(E))$ va servir ultérieurement au calcul des activités des radionucléides présents dans l'échantillon (Figure IV-6). En effet, connaissant l'énergie du radionucléide en question on peut déduire la valeur de son efficacité de détection, à partir de la courbe, et la reporter dans l'expression de l'activité.

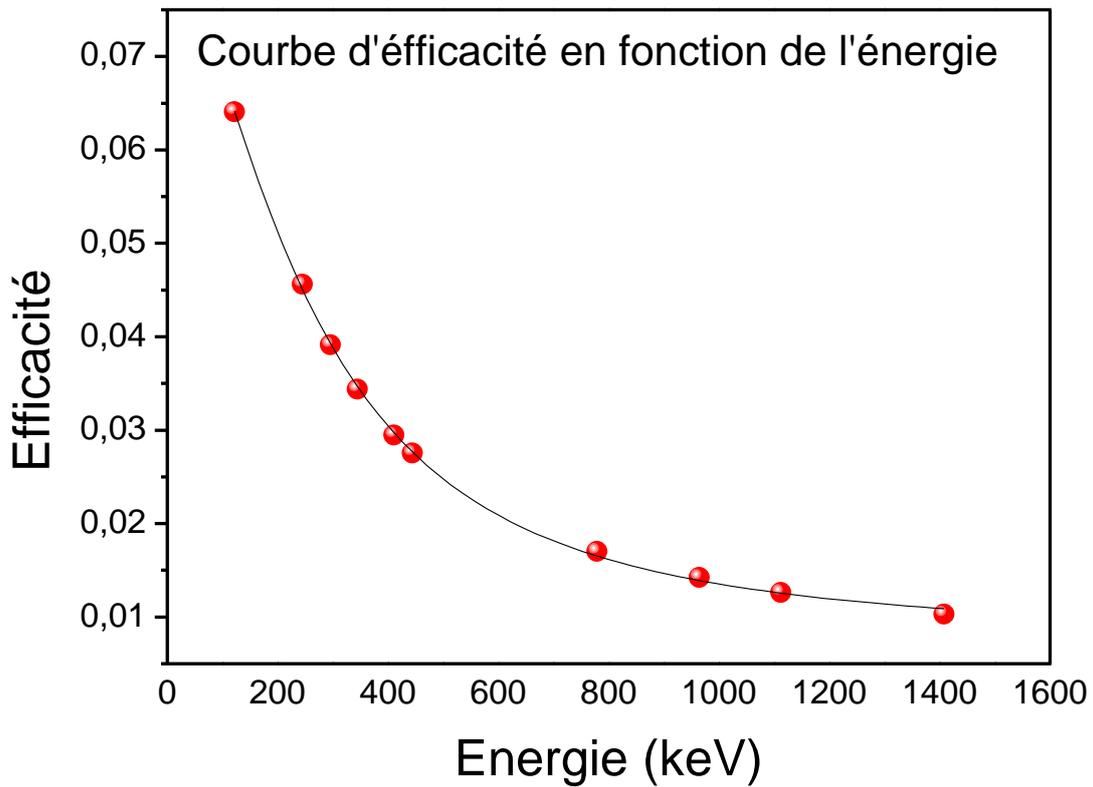


Figure IV-6: Courbe d'efficacité MCNPX du détecteur à germanium hyper pur en fonction de l'énergie.

1.3.1.4 Le Bruit de fond

La mesure du bruit de fond est essentielle pour notre étude car les activités mesurées issues des échantillons sont relativement très faibles. Afin de garder les mêmes conditions de mesure, le spectre de bruit de fond émanant de l'installation de mesure et de son environnement a été déterminé en présence d'un échantillon d'eau bi-distillée ou dés-ionisée (ne contient pratiquement pas d'ions) conditionné dans un récipient béccher Marinelli type I et entreposé sur le détecteur de la même manière que les échantillons. La durée de l'acquisition de spectre est de 24 heures. Le spectre de cette eau est présenté dans la figure ci-dessous :

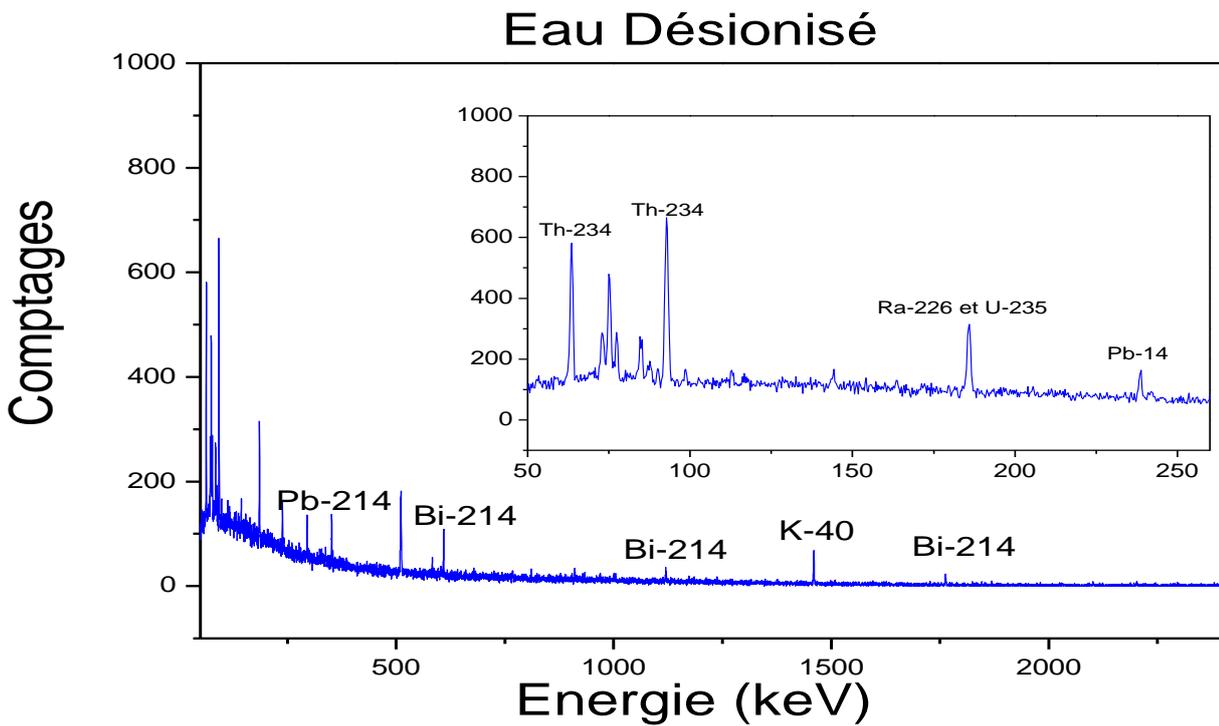


Figure IV-7: le spectre de bruit de fond (Eau dés- ionisé)

Le spectre mesuré représente le spectre en énergie du rayonnement absorbé par le détecteur. Il est constitué de la superposition du spectre produit par la radioactivité de l'échantillon analysé et de la contribution parasite apportée par différentes composantes de bruits de fond :

- Le bruit de fond provoqué par l'électronique de mesure.
- Le bruit de fond ambiant provenant des matériaux environnant le cristal de germanium et du rayonnement cosmique.
- Le bruit de fond de la matrice vierge appelée " blanc" qui est dans notre cas l'eau dés-ionisée.

Le spectre de bruit de fond de la figure ci-dessous révèle la présence des radionucléides de la série de l'uranium et du Thorium.

1.3.1.5 Calcul de l'activité minimale détectable MDA

La limite de détection (LD) fixe le seuil en dessous duquel les équipements de mesure ne sont plus assez sensibles pour l'analyse l'échantillon. Ainsi, lors du calcul des activités des différents radionucléides, si on trouve une activité négative on doit passer au calcul de l'activité minimale détectable. Pour se faire, il faut d'abord passer par le calcul de la limite de détection (LD), qui varie avec les caractéristiques de l'échantillon (homogénéité, densité, dimensions, ...). La limite de détection d'un radionucléide à une énergie bien précise, qui est calculée par la formule suivante :

$$LD= 2.71 + 3.27 \times \sqrt{(\text{la surface totale du pic})^2} \quad (\text{IV-3})$$

L'activité minimale détectable est calculée comme suit :

$$MDA=LD/\varepsilon.p_{\gamma}.t.v \quad (\text{IV-4})$$

Avec:

ε : efficacité du radioélément.

p_{γ} : Probabilité d'émission de chaque radioélément à une énergie bien précise.

t: temps d'acquisition de l'échantillon qui est de l'ordre de 86487 s.

v: le volume de chaque échantillon qui est égal à 450 ml.

1.3.1.6 Analyse qualitative

L'analyse d'un échantillon par spectrométrie gamma donne naissance à un spectre: histogramme du nombre de photons détectés en fonction de leurs énergies. Le spectre est caractérisé par la présence de plusieurs pics. Chaque pic correspond à une énergie de rayonnement gamma issu de la désexcitation des noyaux instables ou atomes radioactifs présents dans l'échantillon.

L'analyse des spectres se fait à partir aux caractères des pics:

- Par la position des pics (ou énergie des photons), on entreprend l'analyse qualitative du spectre : on détermine les radioéléments présents dans l'échantillon analysé.
- Par la surface des pics (ou nombre d'impulsions), on entreprend l'analyse quantitative du spectre: on détermine pour chaque radioélément (présent dans

l'échantillon) son activité en becquerels ramenée à la masse ou au volume de l'échantillon (Bq/ kg ou Bq/ m³).

Le dépouillement du spectre obtenu à partir les échantillons d'eaux sont réalisés à l'aide du logiciel GammaVision, qui calcule l'activité volumique de chaque radioélément dans l'échantillon

A partir de la surface (Comptages) des pics, on détermine l'activité de ces radionucléides. Seules les activités supérieures à la limite de détection de la chaîne d'analyse sont exprimées L'activité de chaque radioélément présent dans l'échantillon sera donnée en becquerel par litre (Bq/L).

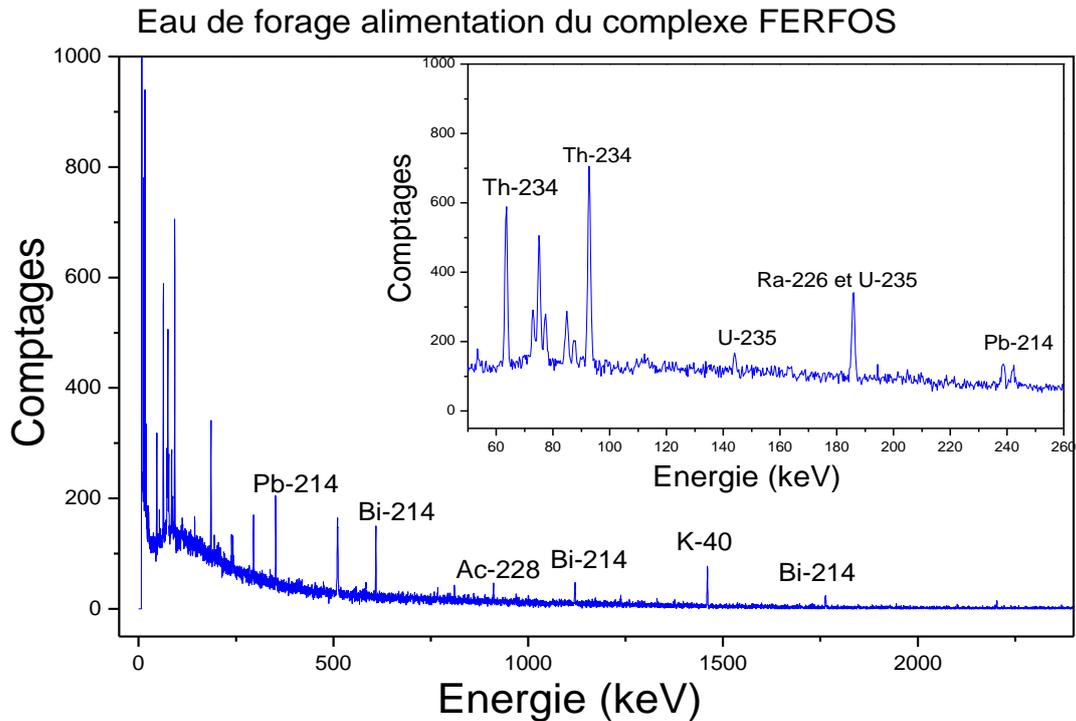


Figure IV-8: Spectre des rayonnements γ émis par l'échantillon d'eau de forage issue de la zone phosphaté.

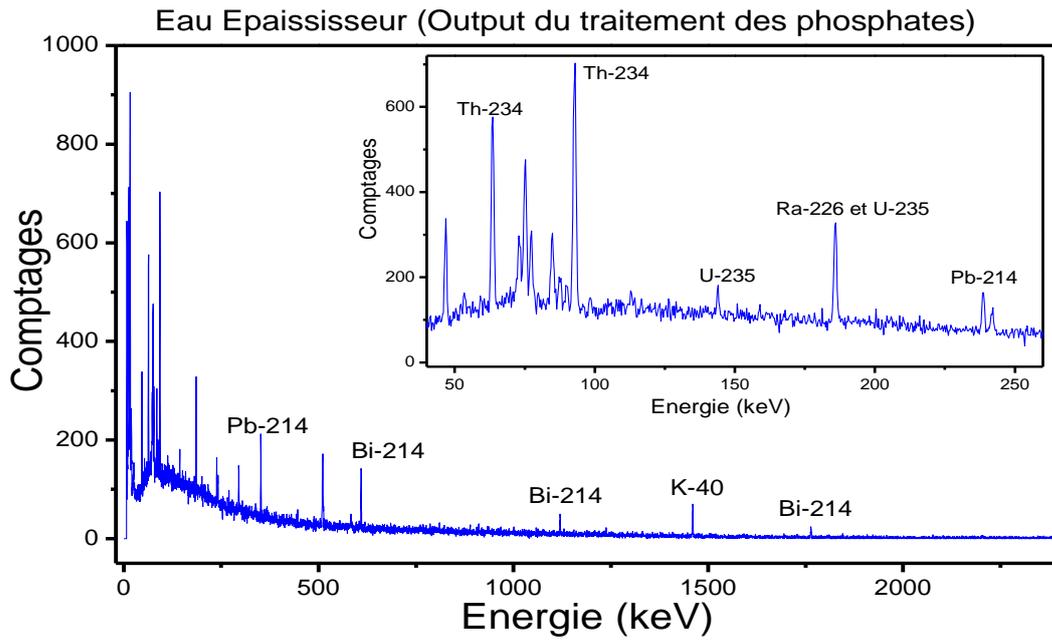


Figure IV-9: Spectre des rayonnements γ émis par l'échantillon d'eau issue de l'épaisseur (procédé de traitement des phosphates par la voie humide)

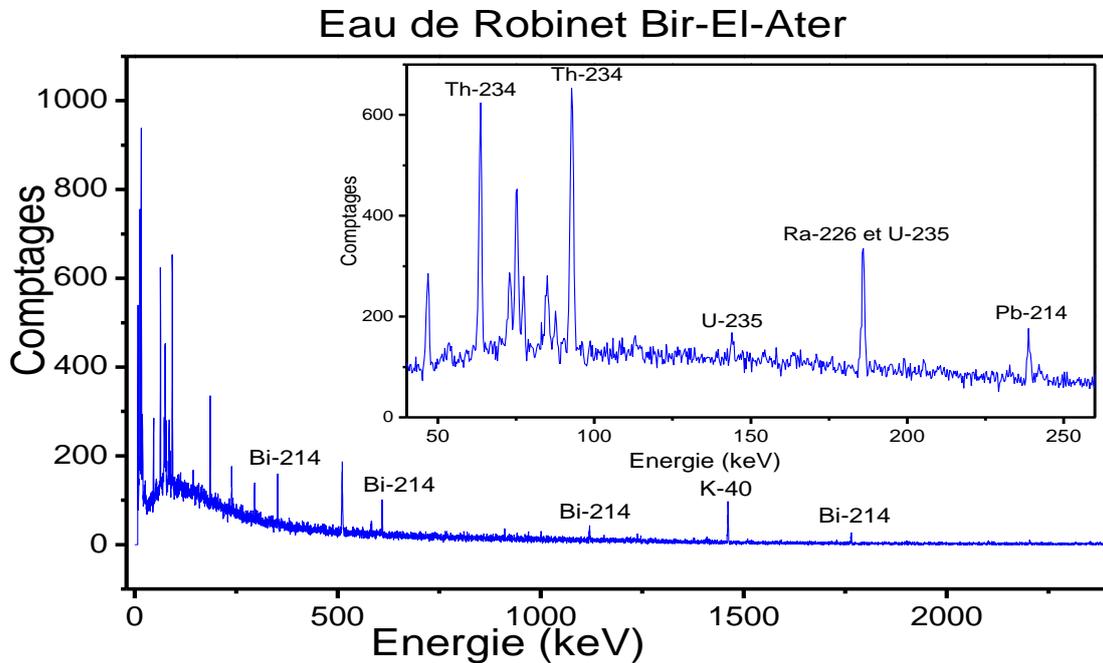


Figure IV-11: Spectre des rayonnements γ émis par l'échantillon d'eau de robinet à Bir-El-Ater à proximité du complexe de traitements des phosphates FERFOS

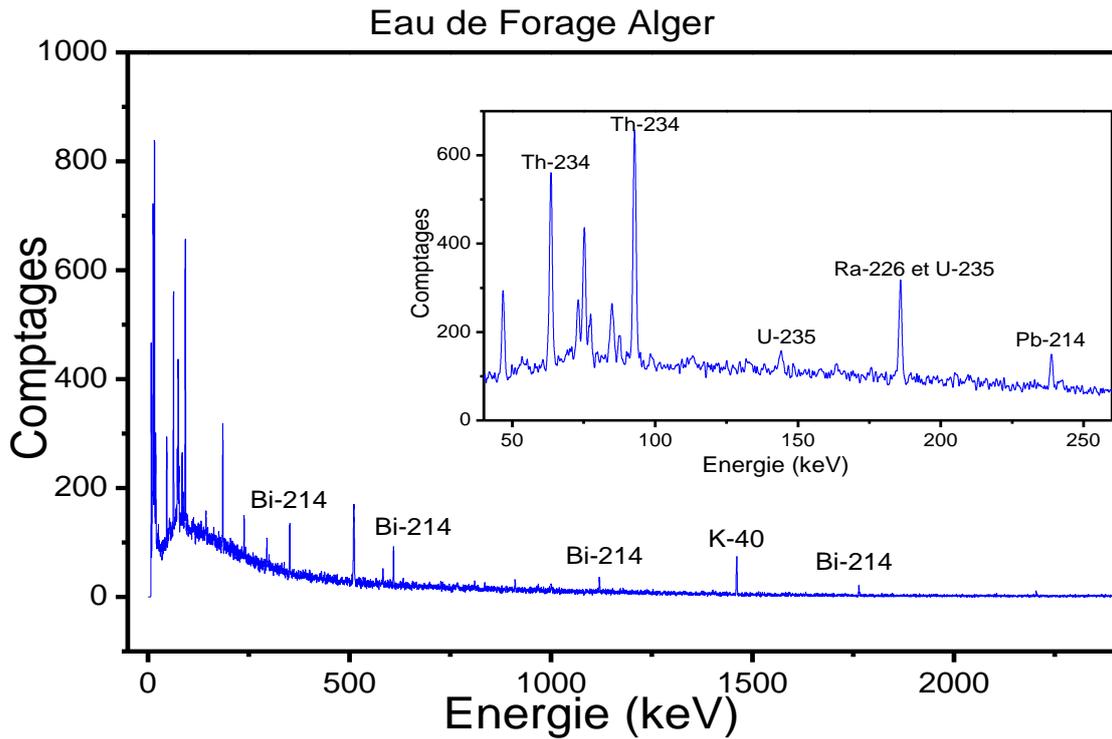


Figure IV-10: Spectre des rayonnements γ émis par l'échantillon d'eau de forage à Alger

Les échantillons ont été analysés dans les mêmes conditions que la mesure du bruit de fond. La durée de l'acquisition des spectres est de 24 heures. Les spectres (les figures IV-8, 9,10 et11) illustrent la présence et les niveaux d'activité des radioéléments des trois séries naturelles. Le tableau IV-3 renferme les niveaux de comptage des principaux radioéléments présents dans les spectres.

Chapitre VI: Application

	Raie spécifique (keV)	Eaux Dés-ionisé (BGK)	Eau Epaissiseur (Mine)	Eaux robinet (Mine)	Eau forage (Mine)	Eau forage Alger
<i>Comptage</i>						
Th-234	63,3	1705	1752	1814	1739	1880
Pb-214	241,98	108	195	98	200	76
	351,9	427	777	538	748	437
Bi-214	609,3	421	699	452	681	435
	1120,28	181	238	198	244	213
	1238,11	93	109	111	112	49
Ac-228	338,3	74	60	58	21	92
	911,6	106	150	137	226	145
	964,64	15	40	46	37	54
	968,97	74	76	86	87	73
Tl-208	583,2	149	134	161	125	163
	860,5			61	55	42
U-235	143,7	150	247	167	186	140
K-40	1460,8	454	486	630	564	574
Pa-134m	1001,03	77	125	109	108	128

Tableau IV-3: Les comptages des différents radioéléments identifiés dans les différents échantillons d'eaux.

1.3.1.7 Analyse quantitative

L'activité d'un radionucléide est donné par :

$$A = \frac{n_s - n_b}{\epsilon_\gamma \times a \times f_a \times f_{sa}} \quad (\text{IV-5})$$

$$n_s = \frac{N_s}{t_s} \quad (\text{IV-6})$$

$$n_b = \frac{N_b}{t_b} \quad (\text{IV-7})$$

Avec

a: probabilité d'émission

N_s : surface nette du pic de l'échantillon

N_B : surface nette du pic du bruit de fond

t_S: temps de comptage de l'échantillon : 86487s

t_B: temps de comptage du bruit de fond : 86487 s

ϵ_{γ} : efficacité de détection à l'énergie du radionucléide

f_a: facteur d'absorption entre l'échantillon et le détecteur

f_{sa}: facteur d'auto-absorption

Les facteurs de corrections correspondants à l'absorption entre l'échantillon et le détecteur ainsi dans l'échantillon lui-même f_a, f_{sa} sont négligées du fait que nous avons utilisé une source étalon d'Eu152 dont la géométrie est semblable à la géométrie des échantillons analysés, de même pour la matrice de la source étalon qui a une densité équivalente à la densité des échantillons d'eaux analysés.

Dans le tableau IV-4, nous avons rassemblé les énergies des rayonnements gammas avec leur intensité respective ainsi que les efficacités correspondantes, des différents radionucléides émetteurs, obtenus par l'analyse des spectres obtenus des différents échantillons.

	Raie spécifique (keV)	Intensité (%)	Efficacités (MCNPX)
Th-234	63,3	3,8	5,84E-02
Pb-214	241,98	7,12	4,79E-02
	351,9	37,2	3,51E-02
Bi-214	609,3	46,3	2,18E-02
	1120,28	15,1	1,30E-02
	1238,11	5,9	1,20E-02
Ac-228	338,3	11,4	3,63E-02
	911,6	27,7	1,55E-02
	964,64	5,05	1,48E-02
	968,97	16,6	1,47E-02
Ti-208	583,2	84,2	2,26E-02
	860,5	12,5	1,63E-02
U-235	143,7	10,5	6,43E-02
K-40	1460,8	10,67	1,04E-02
Pa-134m	1001,03	3,28	5,73E-02

Tableau IV-4: Les différents radionucléides détectés lors de la radio analyse.

I.4 Résultats et discussion

Les activités obtenues pour les radioéléments présentés dans les 4 échantillons analysés par la spectrométrie gamma sont regroupées dans le tableau ci-dessous:

Tableau IV-5 :			Tableau IV-6 :		
Eau de forage (zone phosphatée) : input du traitement des phosphate par la voie humide)			Eau Epaisseur (output du traitement des phosphates par la voie humide)		
Nuclide	Activity Bq/l	1 Sigma Total	Nuclide	Activity Bq/l	1 Sigma Total
K40	2.6753E+00	3.089E+01%	K40	1.2642E+00	6.238E+01%
PB210	2.1883E+00	4.468E+01%	PB214	7.4265E-01	1.463E+01%
PB214	6.9086E-01	1.824E+01%	BI214	7.6692E-01	1.860E+01%
BI214	7.9858E-01	1.818E+01%	AC228	2.633E-01	2.874E+01%
AC228	07. 18 E-01	2.323E+01%	228Ra	4.8437E-01	2.773E+01%
TH228	6.3973E+00	3.992E+01%	TH228	9.1785E+00	2.995E+01%
Pa234M	9.7927133	6.918E+01%	PA234M	1.5226E+01	5.344E+01%
U235	2.9117E01	7.887E+01%			

Tableau IV-7:		
Eaux de robinet de Bir-El-Ater (Mine)		
Nuclide	Activity Bq/l	1 Sigma Total
K40	4.6083E+00	1.883E+01%
PB214	2.1848E-01	4.542E+01%
BI214	2.2220E-01	1.973E+01%
AC228	1.90 E-01	2.21 E+01%
TH228	5.8349E+00	5.651E+01%
TH234	1.5832E+00	7.618E+01%
Pa234M	1.0178E+01	3.767E+01%

Tableau IV-8 :		
Eau de forage Alger		
Nuclide	Activity Bq/l	1Sigma Total
K40	3.3248E+00	2.178E+01%
PB210	1.7185E+00	5.676E+01%
BI212	6.5004E-01	6.297E+01%
AC228	2.33 E-01	2.173E+01%
TH228	5.7139E+00	5.080E+01%
TH234	2.3376E+00	4.214E+01%
PA234M	16.11059 E+00	4.477E+01%

Les Tableaux IV- 5, 6, 7 et 8 expriment les activités obtenues pour les radioéléments présentés dans les 4 échantillons analysés

Le tableau (4,5, 6, 7) donne les concentrations d'activité de la série de ^{232}Th , la série de ^{238}U , ^{40}K , ^{235}U , en Bq/litre. Le processus d'analyse mené a permis d'analyser six radio-isotopes qui sont : ^{228}Th , ^{214}Pb , ^{214}Bi , $^{234\text{m}}\text{Pa}$, ^{226}Ra et le ^{40}K . Le premier appartient à la série du ^{232}Th ; les suivants exceptés le ^{40}K sont les descendants de l' ^{238}U .

I.4.1 Ra-226 mesure par spectrométrie gamma

La mesure du Ra-226 représente un cas difficile dans la spectrométrie gamma du faite que l'unique pic du Ra-226 qui correspondant à 186.2 keV coexiste simultanément avec le pic de U- 235 qui à la même énergie. Normalement, l'activité du Ra-226 peut être obtenue à partir du pic à 186 keV après soustraction de l'activité d'U-235 mesurée à 144 keV. Malheureusement, l'erreur de calcul est très élevée à cause du faible comptage du pic U-235 centré autour de 144 keV, ce qui rend très difficile la quantification par la méthode directe.

Une seconde méthode est proposée pour mesurer Ra-226 d'une manière plus appropriée, qui est basé sur la quantification des descendants du Ra-226. Toutefois, le Rn-222

Chapitre VI: Application

le radioélément père direct du Ra-226 est un gaz très mobile avec une demi-vie de 3,8235 jours. Lors de la préparation de l'échantillon, il est inévitable que certaines au moins atomes du Rn-222 sont perdus, ce qui signifie que tout l'équilibre séculaire possible est perturbé. Dans cet objectif, dans le présent travail, nous avons fermé hermétiquement sur les échantillons qui sont mis dans des conteneurs de 450 cm³ de type béccher Marinelli. Afin d'assurer que l'équilibre séculaire est établi entre le Ra-226 et ses descendants dont le Rn-226, le Bi214 et le Pb-214. Cette méthode indirecte est importante parce que les descendants du radon fournissent la meilleure façon de mesurer avec précision l'activité Ra-226 dans un échantillon. Dans ce cas, le meilleur choix est porté sur le Pb-214 qui a une ligne de gamma à 351,9 keV avec un rapport de branchement élevé (35,14%). Un inconvénient évident de cette approche est bien sûr que l'échantillon doit être préparé au moins quelques semaines avant les mesures afin d'assurer que Pb-214 est vraiment à l'équilibre séculaire avec 226Ra. D'autre part, cela permet la correction de l'ingérence dans le pic 185/186 keV de sorte que l'activité 235U est accessible.

Dans notre travail nous avons utilisé cette deuxième méthode afin de mesurer l'activité du 226Ra, en supposant que le radium est en équilibre avec ses descendants en particulier 214Pb et 214Bi. Dans ce cas l'activité du 226Ra est donnée par:

$$A_{\text{Ra226}} = \frac{1}{2} (A_{\text{Pb214}} + A_{\text{Bi214}}) \quad (\text{IV-8})$$

La similitude des activités spécifiques du 214Pb et 214Bi montre que l'équilibre séculaire entre le 226Ra et ses descendants a été bien établi. Les mesures spectrales ont clairement révélé la présence de Ra-226 dans trois échantillons avoisinant le complexe de traitement des phosphates (Ferfos) dans la région de Bir-El-Ater à Tébessa. Le radium est plus soluble que l'uranium et le thorium et sous certaines conditions physico-chimiques va passer de la roche phosphatée à l'eau sous terrain.

Les activités du Ra- 226 dans les différents sites étudiés sont présentées dans la figure suivante (figure IV-12) sous forme d'histogramme.

Sur la base des résultats obtenus, on constate que le radium 226Ra, élément très soluble dans l'eau, est présent dans les trois échantillons liquides prélevés dans la région de Djebel Onk à savoir l'eau de forage de Kef-Essnoun, rejet liquide de l'épaisseur et eau de robinet de Bir-El -Ater. L'activité maximale du Ra-226 de l'ordre de 0.8 Bq/L correspond aux

échantillons de l'eau issue du forage alimentant l'usine et le rejet liquide. Ces deux derniers présentent une activité spécifique en ^{226}Ra quasi-égale. Ceci montre que le processus d'enrichissement n'apporte pas un supplément d'activité au liquide rejeté. de l'eau prélevé du l'épaississeur qui est l'output de l'eau de forage issue de la zone phosphaté qui est réutilisé pour le traitement et l'enrichissement des minerais des phosphates par la voie humide. La présence du ^{226}Ra dans l'eau de forage alimentant l'usine et le rejet liquide issu de l'épaississeur supérieure à la limite maximale admissible (LMA) égale à 185 mBq/L établie pour l'eau de consommation par l'agence Américaine de protection de l'environnement [L. Roper]. Une activité spécifique en ^{226}Ra supérieure au LMA a été aussi mesurée dans l'eau de robinet de Bir El Ater, région riche en phosphate. La présence du radium émetteur alpha par excellence peut affecter la santé de la population de la région.

En revanche le radium n'a pas été détecté dans l'échantillon issu de la région d'Alger. Sa concentration est inférieure à la limite de détection évaluée à 0.14 Bq/l.

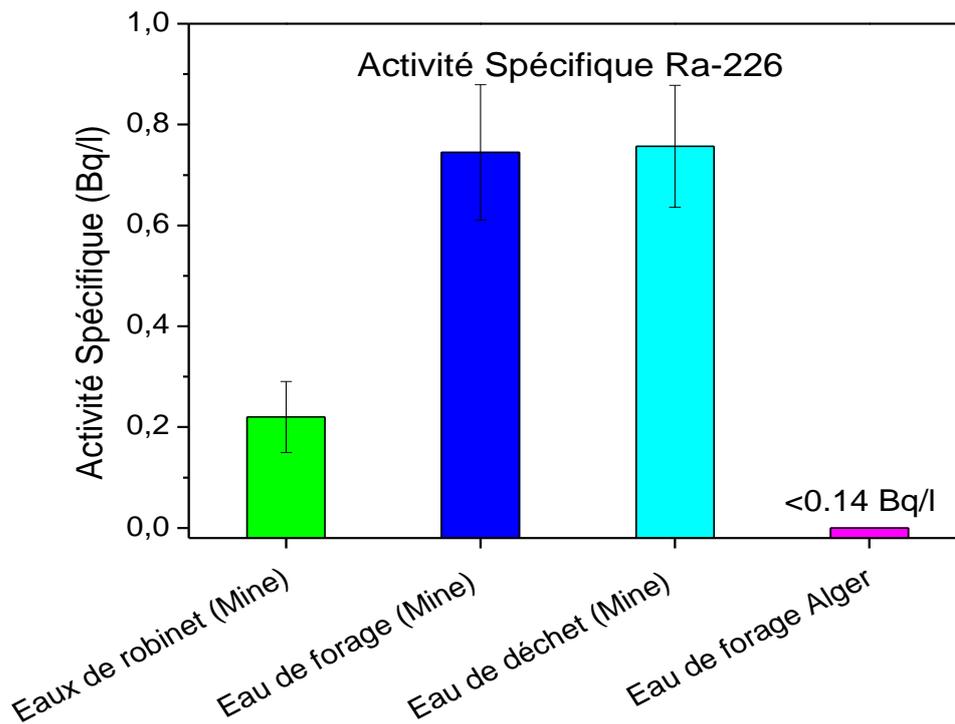


Figure. IV-12 les activités du Ra-226 dans les différents échantillons d'eaux

I.4.2 Mesure d'U-238 par spectrométrie gamma

^{238}U est le premier des radionucléides dans la chaîne de l'uranium important et il a été utilisé pour une large échelle des applications dans les études environnementales. Toutefois, en raison ^{238}U est un émetteur gamma très pauvres, des mesures directes de celle-ci sont impossibles dans les échantillons environnementaux. La probabilité d'émission pour la ligne de rayons gamma le plus intense (49,5 keV) est seulement 0,070%. Pourtant, la spectrométrie gamma peut être utilisée pour mesurer ^{238}U grâce à l'équilibre séculaire. ^{238}U sera en équilibre séculaire avec sa fille, ^{234}Th , dans les quatre mois tout au plus, et donc ^{234}Th peut être adressée à la place. El-Daoushy et Hernández (2002) ont montré comment il est possible de faire des déterminations absolues précises de l'activité ^{234}Th dans les échantillons environnementaux. Au moment de conclure, à 92,5 keV on a un pic doublet est souvent perturbé par rayons X, qui dans la plupart des cas, il est fiable pour des mesures absolues.

Vue que ^{238}U n'a pas d'émissions gamma mesurables, on peut utiliser un de ses descendants pour déduire son activité [8] :

$$A_{\text{U}238} = A_{\text{Pa}234\text{m}} \quad (\text{IV-9})$$

Si l'activité ^{235}U est connue, on peut supposer que l'uranium a une abondance isotopique naturelle et on peut dégager la relation suivante :

$$A_{\text{U}238} = 21.489 A_{\text{U}235} \quad (\text{IV-10})$$

L' ^{238}U est dosé généralement par ses descendants (^{234}Th et ^{234}Pa). Les raies les plus intenses du ^{234}Th sont situées dans les basses énergies et peuvent être fortement atténuées. Le dosage du ^{234}Th est donc difficile. L' ^{238}U est donc quantifié préférentiellement par l'intermédiaire du ^{234}Pa ($T = 1.17\text{min}$) qui émet à une énergie de l'ordre de 1001 keV avec une probabilité d'émission égale à 0.837%. On trouve souvent un pic très petit qui est, dans les plupart des cas, inférieur à la MDA.

Dans le présent travail L' ^{238}U , a été quantifié à partir du ^{234}Pa ($T = 1.17\text{min}$), les erreurs liés aux calculs de son activités sont très élevée à cause du faible comptage du pic PA-234 centré autour de 1001 keV, ajoutons a cela le bruit de fond ambiant l'U-238 ainsi que le bruit de font provoqué par l'électronique de mesure.

Les activités de l'U-238 dans les différents sites étudiés sont présentées dans la figure suivante (figure IV-13) sous forme d'histogramme.

Le radionucléide ^{234m}Pa , émetteur gamma utilisé pour la quantification indirecte de l'U-238, indique une activité spécifique à Alger supérieure aux régions de Bir-El-Ater et Kef-Essnoun. En réalité, ceci ne peut être affirmé en raison des incertitudes élevées associées aux valeurs de concentration. Néanmoins, sa n'empêche pas de confirmer l'existence de U-238 dans les différents échantillons étudiés.

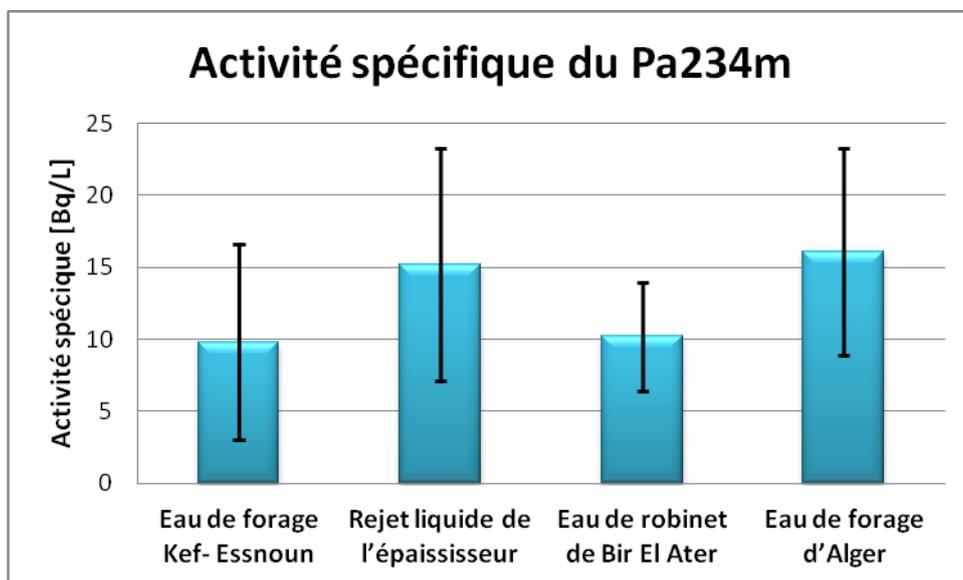


Figure. IV-13 : Activité spécifique du ^{234m}Pa dans les échantillons

I.4.3 Le radioélément primordial ; isotope du potassium : 40K

Le 40K appartient au groupe des métaux alcalins, il est largement dispersé dans l'ensemble des sphères environnementales, notamment dans l'hydrosphère, en raison de sa sensibilité à l'altération par les agents météorologiques. La forme naturelle du potassium est composée des 3 isotopes 39K (93,26 %), 40K (0,01167 %) et 41K (6,73 %). Cet élément représente environ 2,58 % du poids total de la croûte terrestre, dont il est un des 7 éléments les plus abondants. Les variations des activités du 40K dans les différents échantillons étudiés sont présentées dans le diagramme suivant (Voire Figure. IV-14).

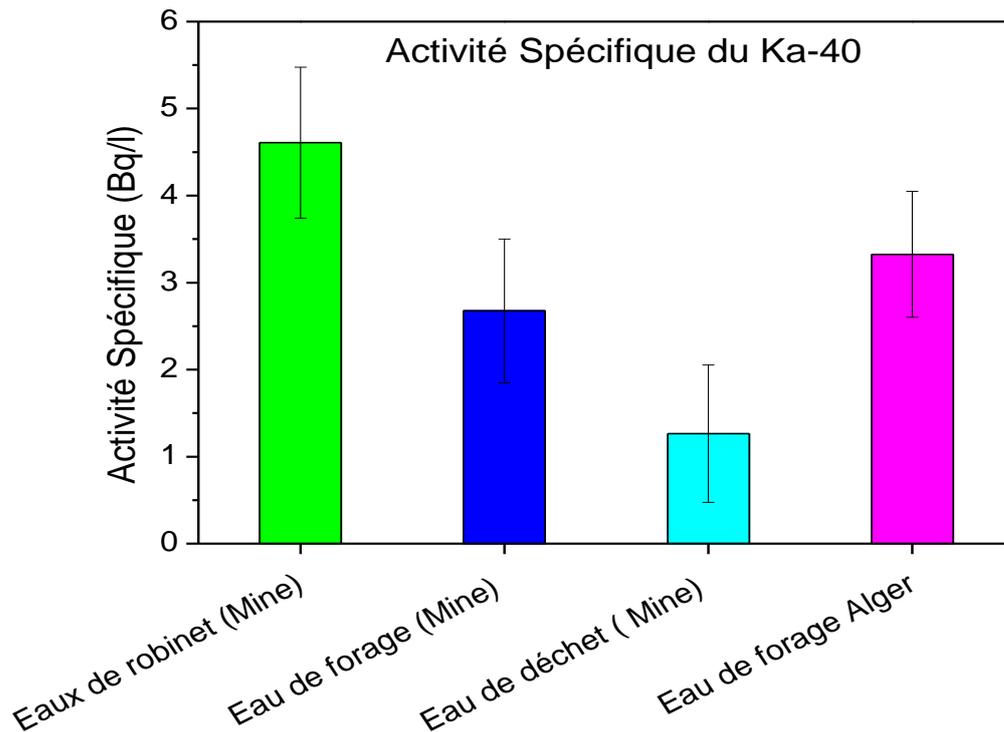


Figure. IV-14: les activités du K-40 dans les différents échantillons d’eaux

D’après l’histogramme des activités du ^{40}K dans les différents échantillons (Voir figure IV-14), on remarque que parmi la plus grande contribution de la concentration globale de l’activité dans tous les différents échantillons d’eau produits provient principalement sous forme ^{40}K avec la plus faible concentration de 1.2642 Bq l^{-1} et la concentration la plus élevée étant 4.6083 Bq l^{-1} dans l’échantillon d’eau de Bir El Ater qui se révèle aussi plus chargé en ^{40}K que les autres lieux de prélèvement. Cette concentration relativement plus élevée de ^{40}K peut être attribuée à la présence d’argile en abondance dans la croûte terrestre [Ajayi et al, 2009].

I.4.4 Mesure de nucléides de la chaîne de thorium par spectrométrie gamma

Il existe essentiellement trois radionucléides dans la chaîne du thorium qui sont intéressants dans ce genre d’études, ^{232}Th , ^{228}Ra et ^{228}Th . Le Thorium-232 a une demi-vie de $1,41 \times 10^{10}$ ans et est le radionucléide père de la série de désintégration du thorium comme le montre la figure IV-15. Le Thorium-232 a une ligne de rayons gamma à 63,81 keV qui chevauche avec la ligne gamma de ^{234}Th à 63,28 keV. Pour cette raison ^{232}Th ne peut être

déterminée directement par spectrométrie gamma dans les milieux naturels. Sa détermination est effectuée à travers sa progéniture notamment le radionucléide ^{228}Ac , qui est supposé en équilibre séculaire radioactif avec le ^{232}Th en raison de sa courte demi-vie de 6,15 h. Ainsi, le radionucléide ^{228}Ac , émetteur gamma utilisé pour la quantification indirecte du ^{232}Th , indique une activité spécifique dans l'eau de forage à proximité de la mine de phosphate à Bir-El-Ater supérieure aux autres échantillons, avec une concentration égale à 0.718 Bq/l. Les autres échantillons issues de ; forage Alger, eau de robinet et eau de déchet avoisinant la mine de phosphate, affichent une concentration d'activité en ^{232}Th quasi égal de l'ordre de 0.2 Bq/l.

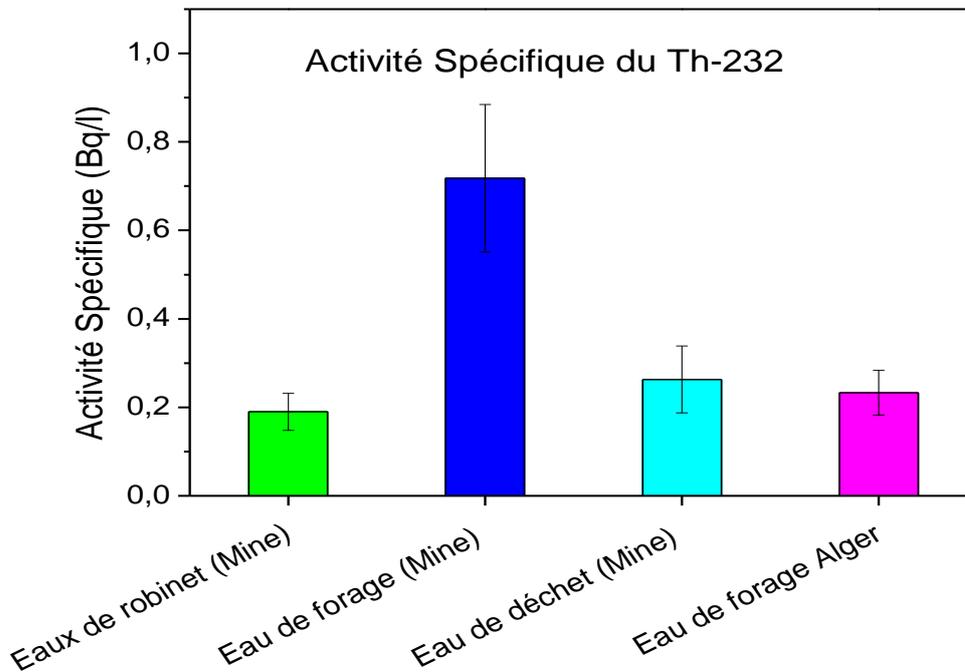


Figure. IV-15: les activités du TH-232 dans les différents échantillons d'eaux

1.4.4.1 Indice de risque de radiation

Il est justifié d'exploiter différents rayonnement connue par l'analyse des indices de risque pour la santé pour arriver à une conclusion meilleure et plus sûre sur l'état de santé d'une personne rayonnée ou irradié et de l'environnement. Pour évaluer les risques

radiologiques associés aux sources d'échantillons d'eau examinés, trois quantités ont été définies [Zari et Al Mogren, 2010; Agbalagba et Onoja, 2011].

1.4.4.2 Radium équivalent (Ra_{eq})

Pour représenter les niveaux d'activité du ^{226}Ra , ^{228}Ra et ^{40}K par une seule quantité qui prend en compte les risques liés aux rayonnements qui leur sont associés, un indice radiologique commun a été utilisé [Dieb et al. 2008]. Cet indice est appelé Radium Equivalent Activité (RA_{eq}).

Il est défini mathématiquement par (UNSCEAR, 2000).

$$R_{eq} = C_{Ra} + 1.43C_{Th} + 0.077C_K \quad (\text{IV-11})$$

Où

C_{Ra} , C_{Th} et C_K , sont les concentrations en ^{226}Ra , ^{232}Ra et ^{40}K respectivement.

Le R_{eq} a permis depuis 40 ans d'évaluer les risques radiologiques dus à la radioactivité dans les échantillons de l'environnement.

1.4.4.3 Débit de dose Absorbé (D)

UNSCEAR (2000) a donné les facteurs de conversion de dose suivantes 0,462, 0,621 et 0,0417 pour convertir respectivement les concentrations d'activité de ^{238}U , ^{232}Th et ^{40}K en doses (nGy/h par Bq/l). Ainsi, les doses de rayonnement gamma reçus par la population qui vivent dans la région sont données par:

$$D = 0.462A_{Ra} + 0.621A_{Th} + 0.0417A_K \quad (\text{IV-12})$$

Où

D est le débit de dose dans nGy/h

A_{Ra} , A_{Th} et A_K sont les concentrations en radium, thorium et potassium respectivement.

Trois radionucléides naturels ^{40}K , ^{226}Ra et ^{228}Ra ont été déterminées dans tous les différents échantillons d'eaux et les résultats sont présentés dans les tableaux 1, conjointement avec le radium équivalent et le débit de dose absorbé.

Chapitre VI: Application

	K-40 (Bq/l)	Th-232 (Bq/l)	Ra-226 (Bq/l)	Radium équivalent (Ra-eq) (Bq/l)	Débit de dose Absorbé(D) (mSv/Année)
Eaux de robinet(Mine)	4,60±18%	0,19±22%	0,22±32%	0,85 ± 0,20	0,412
Eau de forage (Mine)	2,67±30%	0,72±23,2%	0,75±18%	1,98± 0,43	0,901
Eau déchet (Mine)	1,26±62%	0,26±28,7%	0,76±16%	1,23 ± 0,90	0,566
Eau de forage Alger	3,32±21,7 %	0,23±21,7%	<	0,55± 0,13	0,283

Tableau IV-9: les résultats de concentration des radionucléides (40K, 226Ra et 228Ra), avec le radium équivalent et le débit de dose absorbé.

Le radium équivalent activité affiche la plus haute valeur de concentration $1.98 \pm 0.43 \text{Bq l}^{-1}$ dans l'échantillon issue du forage à proximité de la mine de phosphate à Bir-El-Ater, et la plus faible concentration de $0,55 \pm 0,13 \text{Bq l}^{-1}$ dans l'échantillon de forage à Alger.

1.4.4.4 Indices de risque externe

Les indices de risques sont définis par un modèle [Krisiuk et al, 1971], [Straden et al, 1979], en tenant compte de l'activité maximale du Raeq (370 Bq/kg). L'indice de risque externe (Hex) est défini par l'équation suivante :

$$\text{Hex} = C_{\text{Ra}} / 370 + C_{\text{Th}}/259 + C_{\text{K}}/4810 \quad \text{IV-13}$$

1.4.4.5 Indices de risque interne

En plus de l'indice de risque externe, le radon et sa progéniture de demi-vie courte sont également dangereux pour les organes respiratoires, en raison de la consommation d'eau. Il est quantifié par l'indice de danger interne Hin, qui est donnée par l'équation

$$\text{Hin} = C_{\text{Ra}}/185 + C_{\text{Th}}/259 + C_{\text{K}}/4810 \quad \text{IV-14}$$

Les valeurs des indices (Hex, Hin) doivent être inférieure à l'unité pour que le risque d'irradiation soit pour négligeable [Diab, et al, 2008].

Les indices de risques internes et externes calculés à partir de la concentration de l'activité de 40K, 226Ra et 228Ra en utilisant les équations 2- 6 sont affichées dans la figure IV-14.

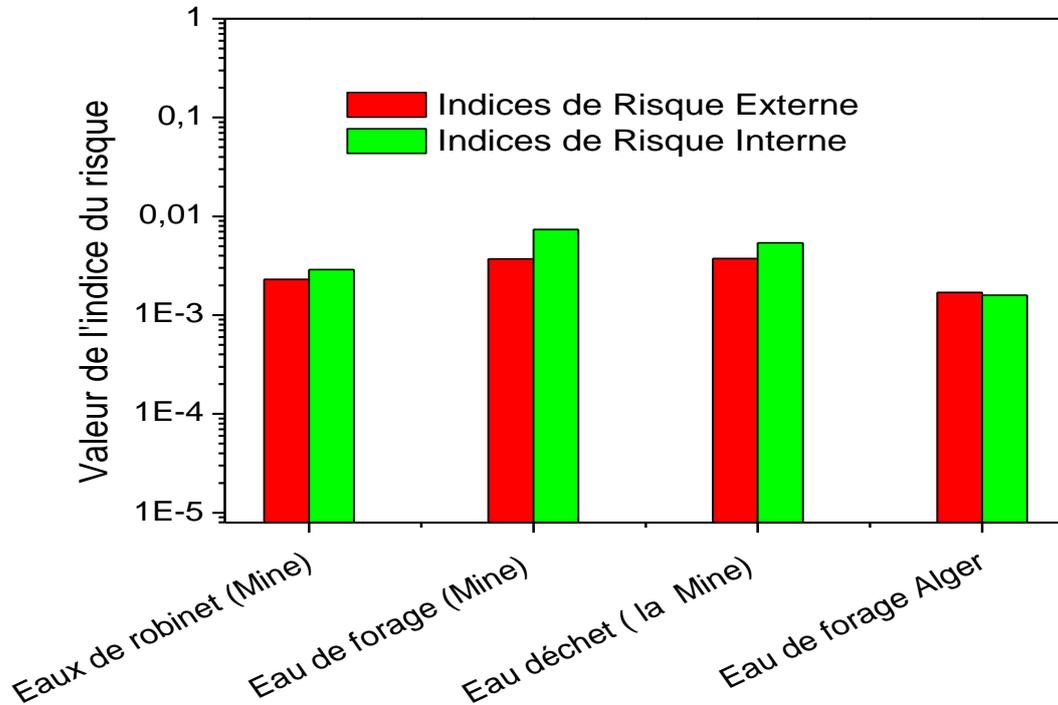


Figure. IV-14 : Les indices de risques internes et externes dans les différents échantillons d'eaux

La valeur de l'indice de risque interne variait de 0.00288 à 0.00735 et l'indice de risque externe varie 0,0029 à 0,00374 dans les différents échantillons prélevés à proximités de la mine de phosphate, alors qu'à Alger il se situe à 0.00159 pour l'indice de risque interne et à 0.00169 pour l'indice de risque externe. . Ces indices inferieur à 1 prédit que le niveau de danger à l'homme est encore dans les limites recommandé.

Références bibliographiques

Références

- Agbalagba, E.O., Onoja, R.A., Evaluation of natural radioactivity in soil, sediment and water samples of Niger Delta (Biseni) flood plain lakes, Nigeria, *Journal of Environmental Radioactivity* 102 pp 667-671, 2011.
- Ajayi OS, Adesida G (2009). Radioactivity in some sachet drinking water samples produced in Nigeria. *Iran. J. Radiat. Res.*, 7(3) 151-153.
- Ajmal .P. Y et al. ; External gamma radiation levels and natural radioactivity in soil around a phosphate fertilizer plant at Mumbai. *J Radioanal Nucl Chem* (2014) 300:23–27
- Alabdua'aly, AI, (1999). Présence de radon dans les eaux souterraines de la région centrale de l' Arabie Saoudite. *J. Environ. Radioactivité*, 44: 85-95
- Amrani, D., & Cherouati, DE. (1999). Health effects from radon-222 in drinking water in Algiers. *Journal of Radiological Protection*, 19, 275.
- Cielensky., Benchernine. , Travaux de prospection et d'évaluation des phosphates dans la région de Bir El Ater, Rapport interne, EREM., 1987.
- Diab, H. M., S.A. Nouh, A. Hamdy and S.A. El- Fiki, 2008 .Evaluation of natural radioactivity in a cultivated area around a fertilizer factory. *J. Nucl. and Rad. Phys.* 3(1): 53-62.
- Eliana Aparecida Nonato Knupp et al. ; Radionuclide, Metal and Non-metal Levels in Percolated Water from Soils Fertilized with Phosphogypsum . *J Radioanal Nucl Chem* (2014) 299:321–327
- Farid El-Daoushy., Francisco Hernández; Gamma spectrometry of ^{234}Th (^{238}U) in environmental samples. *Analyst*, 2002,127, 981-989
- Garnier-Laplace J. Colle, C. Morello, M, fiche radionucléide environnement: Uranium naturel et environnement, Institut de Radioprotection et de sûreté Nucléaire 19P, 2010
- Gaso, M et al. ; Gamma dose rate and ^{226}Ra activity concentrations in the soil around a Mexican radioactive waste-storage center. *J Radioanal Nucl Chem* (2015) 303:2321–2331
- Gruber, V., Maringer, FJ, & Landstetter, C. (2009). Radon and other natural radionuclides in drinking water in Austria: Measurement and assessment. *Applied radiation and isotopes*, 67(5), 913-917.
- James, H. et al.; A Study Update of Mortality in Workers at a Phosphate Fertilizer production Facility . *American journal of industrial medicine* 59: 12 –22 (2016)

Chapitre VI: Application

-
- Kechiched, R., Typologie géochimique et géostatistique des minerais de phosphates du gisement de Bled El Hadba – Djebel Onk (Algérie Orientale), Mémoire de Magister Option: Les gisements des substances utiles: géologie et développement Université de BADJI MOKHTAR-ANNABA 163 P., 2011.
- Kozłowska, B., Hetman, A., Zipper, W., Determination of ^{222}Rn in natural water samples from health resorts in the Sudety mountains by the liquid scintillation technique, *Applied Radiation and Isotopes*, 51 (1999), pp. 475–480
- Krisiuk, E., Tarasov, S., Shamov, V., Shalk, N., Lisachenkov, E., Gomelesky, L.G., A study of radioactivity in building materials. Research institute for radiation hygiene, 1971.
- Kusters, M., & Schraven, W. (2009). Determination and differentiation of ^{226}Ra and ^{222}Rn by gamma-ray spectrometry in drinking water. *Journal of radioanalytical and nuclear chemistry*, 280(3), 475-480.
- Laurence B., Etude de la radioactivité des eaux potables de Bretagne et perspective d'évaluation du risque sanitaire éventuel lié au radon, BOHM Laurence Etude de la radioactivité des eaux potables de Bretagne et perspective d'évaluation du Mémoire d'ingénieur. Option : génie sanitaire. Ecole Nationale de la santé publique DRASS de Bretagne. 57p, 2007.
- Mattiello, E et al. ; Soluble phosphate fertilizer production using acid effluent from metallurgical industry . *Journal of Environmental Management* 166 (2016) 140 -146
- Michael F. L'Annunziata, Handbook of Radioactivity Analysis. 2nd Edition.
- Natasa Todorovic et al. ; Radioactivity in fertilizers and radiological impact . *J Radioanal Nucl Chem* (2015) 303:2505–2509
- Natural Decay Series, (Uranium, Radium, and Thorium) Argonne National Laboratory, EVS. Human Health Fact Sheet, 4p, 2005.
- Semakalu, A., Gamma spectrometrical measurement of radium content in water – validation of analysis procedure, Institute of physics university of Tartu, 2012.
- Straden, E., some aspects on radioactivity of building materials. *physic Norvegica*, vol.8, n3, 1976
- UNSCEAR, 2000. Sources and Effects of Ionizing Radiation. United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, United Nations, New York.
- Zarie, K.A. and K.S. Al Mugren, 2010. Measurement of natural radioactivity and assessment of radiation hazard in soil samples from Tayma area (KSA). *Isotope and Rad. Res.*42(1):1-9.

Conclusion Générale

Conclusion générale

Ce travail de thèse vient pour étendre l'exploitation de la chaîne de détection gamma dans le domaine de la spectrométrie gamma environnementale. Le détecteur utilisé dans ce travail est un détecteur en germanium hyper pure de type N. La procédure d'optimisation commence par l'évaluation des performances du détecteur après plus de deux décennies d'utilisation. Le premier modèle (MCNPX) du détecteur est basé sur les dimensions du détecteur fournis par le constructeur (Canberra). Suite aux résultats primaires qui ont révélés une différence significative (plus de 100%) entre les résultats expérimentaux et les calculs MCNPX, il est apparu que le recours à des paramètres ajustables pour affiner le modèle (MCNPX) est inévitable.

Dans les procédures d'ajustement, nous avons commencé par introduire une géométrie plus réaliste qui tient compte de la courbure des bords du cristal, ce qui a conduit à l'amélioration de l'efficacité de calcul MCNPX par rapport à l'efficacité mesurée, en particulier pour les photons de faibles énergies. Dans la seconde démarche d'optimisation du détecteur, nous avons introduit une nouvelle procédure qui permet une description plus précise de l'épaisseur de la couche morte inhomogène. Cette procédure est basée sur une variation spatiale réaliste de la couche morte dans le cristal. Ainsi, en utilisant des sources ponctuelles de basse et haute énergie à une position fixe de 210 mm du capot du détecteur, l'épaisseur de la couche morte est ajusté sur la base des informations détaillées relatives à la physique des détecteurs à semi-conducteurs et de leur mode de fonctionnement, et en minimisant le rapport d'efficacité expérimental et calculé (MCNPX). Les procédures d'optimisations effectuées on permet d'atteindre un très bon accord entre les efficacités expérimentales et calculées (MCNPX), avec une différence moyenne de 1,54% dans la gamme d'énergie de 50 keV à 150 keV.

Dans l'objectif de valider la géométrie du model optimisé (MCNPX) du détecteur, on a procédé par le calcul (MCNPX) de la réponse du détecteur, en changeant à la fois la forme de la source et la géométrie de mesure, par l'utilisation des sources multi-gamma en forme de disque, mesurées à une distance de 150 mm par rapport au détecteur. Les résultats obtenus,

Conclusion Générale

montrent un bon accord entre la simulation (MCNPX) et l'expérimentale avec une différence moyenne égale à 2,36% dans la gamme d'énergie de 50 keV à 150 keV.

Dans le but d'étendre l'utilisation du détecteur HPGe dans les études de la radioactivité dans l'environnement, le modèle optimisé (MCNPX) du détecteur est testé dans les conditions de mesure extrêmes en utilisant une source volumineuse (Type bécquer Marinelli), et en impliquant un nucléide caractérisé par un schéma de décroissance compliquée (Source 152Eu) mesuré à une géométrie ferme par rapport au détecteur HPGe de type N.

Les procédures de validation en utilisant l'expérimentale et les calculs MCNPX ont été détaillées, et la précision des calculs MCNPX a été atteinte en utilisant des cartes supplémentaires du code MCNPX, ce qui a permis de reproduire étroitement les conditions des mesures expérimentales qui ne sont pas simulables. Globalement, les comparaisons de la simulation et les mesures ont montré un assez bon accord pour valider le modèle optimisé du détecteur HPGe dans les conditions de mesure environnementale. Cependant on a remarqué que le peu d'écart entre la réponse expérimentale et calculée était due essentiellement à l'effet de coïncidence des pics sommes, avec une contribution substantielle des rayons X dans toute la gamme d'énergie du spectre de l'Eu-152, acquis avec le détecteur de type n.

En utilisant le logiciel Gamma-Vision, les capacités de calcul du code MCNPX, ainsi qu'une méthode semi-expérimentale, nous avons déterminé les facteurs de correction de coïncidence des pics sommes, pour les principales émissions de la source 152Eu. Les facteurs de correction de coïncidence des pics sommes (CSC) ont été trouvés dans la gamme de 1,1 à 1,3 pour les émissions les plus importantes de la source 152Eu avec une valeur d'écart moyen de 2% entre les résultats des méthodes utilisées.

De plus, l'activité de la source 152Eu mesurée et corrigée (F_{CSC}) en utilisant l'assistant Gamma-Vision a été comparée à l'activité certifiée de la source 152Eu. Les résultats obtenus attestent que les corrections effectuées par les trois méthodes (Gamma Vision, MCNPX, et semi-expérimentale) de l'effet de coïncidences sont effectives et précises dans le cas extrême de mesure; en utilisant un radionucléide avec un schéma de décroissance complexes, impliquant des rayons X et des rayons gamma, et comptés en étroite géométrie par rapport à un détecteur en germanium de type n.

L'utilisation des méthodes combinées; calcul MCNPX et le logiciel Gamma-Vision se révèle être couronnée de succès; dans la mesure où elle offre une validation réciproque du

Conclusion Générale

facteur CSC, en même temps que la validation du modèle optimisée (MCNPX) du détecteur HPGe dans les conditions de mesure environnementales. Il convient également de souligner la facilité de correction des coïncidences des pics sommes (CSC) incorporé dans le logiciel Gammavision-32, où la détermination de la courbe de d'efficacité corrigée (CSC) et l'activité de la source, se font de manière totalement interactive.

Le bon accord entre l'efficacité calculé (MCNPX) et mesurée (Gammavision-32) donne un support de plus sur la validation du model optimisé (MCNPX) du détecteur HPGe, ce qui permet sont utilisation dans le cas de l'indisponibilité des sources d'étalonnages, ou dans le domaine inaccessible à l'expérience.

Les valeurs des efficacités MCNPX dans les conditions de mesure environnementales, on été utilisées pour évaluer la radioactivité naturelle dans des échantillons d'eau, prélevées à proximité du gisement de phosphate de Bir-El-Ater à Tébessa. Les résultats préliminaires confirment l'impact environnemental du gisement de phosphate dans l'environnement avoisinant. En effet, les mesures ont dévoilées dans l'eau de boisson de Bir El Ater une activité en ^{226}Ra supérieure à la concentration maximale admissible établie par l'agence américaine de protection radiologique de l'environnement.

Résumé

Le code MCNPX a été utilisé pour réévaluer l'efficacité d'un détecteur de GeHP de type N, après deux décennies de fonctionnement. En comptant sur une description détaillée des courbures des bords avant du cristal, ainsi qu'une description inhomogène des couches mortes du détecteur ont montrés une meilleure concordance entre les mesures et les calculs MCNPX. Le model optimisé (MCNPX) du détecteur a été validé, en changeant à la fois, la densité et la forme de la source en même temps que la géométrie de mesure. Les résultats montrent un bon accord entre la simulation (MCNPX) et l'expérimentale. Ce qui permet de valider le model optimisé (MCNPX) du détecteur, et de l'utiliser par la suite dans le domaine inaccessible à l'expérimentale. Les valeurs de l'efficacité MCNPX (modèle optimisé) ont été utilisées pour évaluer la radioactivité naturelle dans des échantillons d'eaux prélevés à proximité du gisement de phosphate de Bir-El-Atter à Tébessa.

Abstract

The aim of the present study is to model by means of the MCNPX code an n-type HPGe detector in view to predict its efficiency after two decades of operation. Germanium crystal was modified by changing the crystal front edges and the dead layer thickness. We have adopted a new approach based on a mathematical description of the inhomogeneous dead layer by using geometric elements available in MCNPX. The suggested model was validated by using disc sources and voluminous geometry conditions. The quite convincing results of this study permit the reevaluation of the HPGe detector performance, and the approach developed in this work give a helpful tool for precise evaluation of inhomogeneous dead layer thickness. We have also extended the use of the HPGe detector in environmental radioactivity studies, by the validation of the optimized model geometry of germanium detector in close voluminous geometry conditions, involving nuclides with complicated decay scheme. The present validation work, including MCNPX efficiency calculation was used to evaluate the level of naturally occurring in drinking water samples, close to the very big phosphate deposit in TEBESSA (Algeria).

ملخص

الهدف من هذه الدراسة هو تقييم كفاءة كاشف من نوع (HPGe)، بعد عقدين من الاستعمال عن طريق المحاكاة باستخدام طريقة مونتى كارلو (MCNPX) و مقارنتها بالنتائج التجريبية. وقد تم إتباع نهج جديد وشامل في تطبيق طريقة مونتى كارلو (MCNPX)، وذلك بتعديل الحواف الأمامية لبلورة (الكريستال) الجرمانيوم وأيضاً عن طريق تغيير سماكة الطبقة الميتة في بلورة الجرمانيوم. وتظهر النتائج المتحصل عليها على اتفاق جيد بين المحاكاة و النتائج التجريبية و هم ما يؤكد أن النموذج المطور المستعمل للكاشف هو الأمثل و بهذا يمكن استخدامه في وقت لاحق في المجالات التي يصعب تطبيقها تجريبياً. وقد استعملنا قيم المرودية المحسوبة بطريقة المحاكاة (MCNPX) على أساس النموذج الأمثل و المطور للكاشف لتقييم النشاط الإشعاعي الطبيعي في عينات المياه التي تم جمعها بالقرب من حقل الفوسفات المتواجد بالقرب من بلدية بنرالعاتر بتبسة.