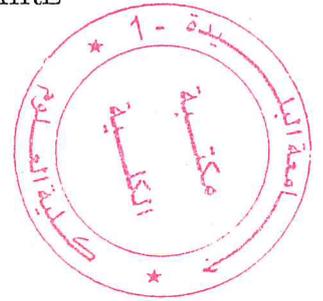


RÉPUBLIQUE ALGÉRIENNE DÉMOCRATIQUE ET POPULAIRE

Université Saâd DAHLAB-Blida 1



Faculté des Sciences
Département de Physique
Laboratoire de Physique Théorique et Interactions Rayonnement-Matière
(LPTHIRM)

Mémoire de Master

présenté pour l'obtention du diplôme en :

PHYSIQUE NUCLÉAIRE

MESURE ET SIMULATION MONTE CARLO DE LA RADIOACTIVITÉ NATURELLE DANS LES MATERIAUX DE CONSTRUCTION

présenté par :

Salma Boukhalfa

obtenu le 04 juillet 2017 devant le jury composé de :

MA-530-138-1

- | | | | |
|------------------|-------------------------|------------------|------------|
| Mr. A. MOUZALI | Maître de conférences B | U. S. D.-Blida 1 | Président |
| Mr. M. CHEKIRINE | Maître de conférences B | U. S. D.-Blida 1 | Examineur |
| Mr. R. KHELIFI | Professeur | U. S. B.-Blida 1 | Rapporteur |

Blida 2017

Table des matières

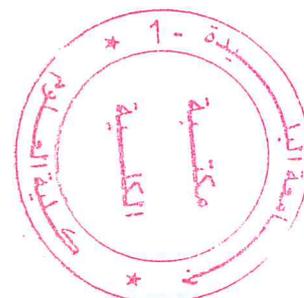


Table des matières	ii
Table des figures	iii
Liste des tableaux	iv
Remerciements	v
Introduction	1
1 Généralités sur la radioactivité	4
1.1 Définition	4
1.1.1 Les divers modes de la désintégration	4
1.1.2 La radioactivité α	4
1.1.3 La radioactivité β	5
1.1.4 Émission γ	6
1.1.5 Autres voies de désintégration	7
1.2 Origine de la radioactivité	8
1.2.1 La radioactivité naturelle	8
1.2.2 La radioactivité artificielle	9
1.3 Les filiations radioactives	10
1.3.1 Série de ${}_{92}^{238}\text{U}$ ($4n + 2$)	10
1.3.2 Série de ${}_{92}^{235}\text{U}$ ($4n + 3$)	11
1.3.3 Série de ${}_{90}^{232}\text{Th}$ ($4n$)	11
1.3.4 Le potassium ${}^{40}\text{K}$	11
1.4 Equilibres radioactifs	12
1.4.1 Equilibre transitoire	13
1.4.2 Equilibre séculaire	13
1.5 Loi de l'émission radioactive	14
1.5.1 Constante radioactive	14
1.5.2 La période radioactive	15
1.5.3 L'activité	15
1.5.4 Relation masse activité	16
1.6 Interaction du rayonnement gamma avec la matière	16
1.6.1 L'effet photo électrique	16
1.6.2 La diffusion Compton	17
1.6.3 La production de paire	19

1.6.4	Autres interactions possibles	20
1.7	Dosimétrie	21
1.7.1	Grandeurs physiques	21
1.7.2	Grandeurs de protection	23
2	Matériels et Méthodes	25
2.1	Définition	25
2.2	Préparation de l'échantillon	25
2.3	Chaîne de spectroscopie gamma	27
2.3.1	Détecteur NaI(Tl)	27
2.3.2	Calibration de la chaîne de spectrométrie gamma	28
2.4	Bruit de fond	32
2.5	Concentrations d'activité des radionucléides : Activité massique	33
2.6	Atténuation des rayons gamma	34
2.7	Méthodes de correction d'auto-absorption	35
2.7.1	Méthode de correction	35
2.7.2	Méthode de transmission	36
2.7.3	Principe	36
2.8	Estimation de la dose	37
2.8.1	L'activité de l'équivalent radium et l'indice de risque externe	37
2.8.2	Indice de risque interne	38
2.8.3	Dose absorbée due aux matériaux de construction	38
2.8.4	Dose efficace annuelle	39
3	Simulation Monte-Carlo à l'aide du code GEANT 4	40
3.1	Introduction	40
3.2	Principe de la méthode monte Carlo	40
3.3	Variables aléatoires	41
3.4	Présentation de l'outil de simulation GEANT4	42
3.5	Architecture générale du code Geant4	42
3.5.1	Description de la géométrie	43
3.5.2	Définition des particules et des processus physiques	45
3.5.3	Le suivi des particules	45
3.6	Traitement et analyse des résultats avec la session ROOT	46
3.7	Modèle utilisé pour la simulation de la dose	46
4	Résultats et Discussion	50
4.1	La résolution en fonction de la tension de polarisation d'un scintillateur	50
4.2	Analyse par spectrométrie gamma	52
4.2.1	Etalonnage en énergie	52
4.2.2	Etalonnage en efficacité	53
4.3	Analyse qualitative des spectres	56
4.4	Correction de coefficient d'atténuation linéaire	60
4.5	Dosimétrie des rayonnements γ	65
4.6	Radium équivalent	66
4.7	Indice du risque interne et externe	68
4.8	La dose absorbée	71

TABLE DES MATIÈRES

iv

4.9 La dose efficace annuelle	72
4.10 Une visualisation de la distribution de dose selon le modèle local	74
Conclusion générale	78
A Raies d'émission gamma	80
B La base de données des matériaux fournis par NIST	85
Bibliographie	87

Table des figures

1.1	Désintégration bêta du Cs et du Co.	6
1.2	Shéma de désintégration de sodium ^{22}Na	7
1.3	Chaîne d'une filiation radioactive.	10
1.4	Chaines radioactives naturelles de $^{238}_{92}\text{U}$, $^{235}_{92}\text{U}$ et $^{232}_{90}\text{Th}$	12
1.5	Les voies de désintégration de potassium $^{40}_{19}\text{K}$	13
1.6	Les types d'interaction prépondérants suivant l'énergie du photon et le numéro atomique Z	17
1.7	Effet photoélectrique.	18
1.8	Diffusion Compton.	18
1.9	Spectre en énergie d'électron suite à des diffusions Compton. N_e est le nombre d'électrons sur lesquels le photon a réalisé une diffusion Compton.	19
1.10	La production de paires.	20
1.11	La dose transférée dans un milieu élémentaire de masse dm	23
2.1	Pesage des échantillons.	26
2.2	Etiquetage des échantillons.	27
2.3	Schéma de dispositif de spectrométrie γ	28
2.4	Détecteur NaI(Tl) $3^n \times 3^n$ modèle 905-4.	29
2.5	Un spectre gamma de ^{137}Cs obtenu à l'aide d'un détecteur NaI(Tl).	29
2.6	Efficacité de détecteur d'une source ponctuelle en fonction de l'énergie.	31
2.7	Efficacité de détecteur d'une source étalée en fonction de l'énergie.	31
2.8	Spectre gamma de 72 heures de comptage enregistré à l'aide d'un détecteur NaI(Tl). Toutes les raies observées (ainsi que le continuum) proviennent de la radioactivité naturelle, c'est-à-dire de la désintégration des éléments K, U et Th présents dans l'environnement du détecteur (essentiellement le sol et les murs).	33
2.9	La loi fondamentale de l'atténuation des gammas.	35
2.10	Schéma descriptif de la méthode de transmission.	37
3.1	Architecture d'un code de simulation dans Geant4. Dans ce diagramme, chaque bloc correspond à une classe (en gras le nom générique, en italique le nom donné par l'utilisateur). Seules les 4 classes en gris sont obligatoires, les autres sont optionnelles.	48
3.2	Fonctionnement de Geant4 pour une expérience de physique.	49
3.3	Le pas des particules dans GEANT 4.	49
3.4	Simulation selon le modèle local.	49
4.1	La résolution d'un détecteur à scintillation.	51

4.2	Chaîne de spectroscopie gamma.	53
4.3	Rayonnements gamma de ^{60}Co et ^{137}Cs avec la courbe de la calibration de l'énergie.	54
4.4	La droite de la calibration en énergie de la chaîne de mesure.	55
4.5	Courbe d'efficacité en fonction de l'énergie du détecteur à scintillation NaI(Tl) à une distance 8.9cm entre la source et le détecteur avec un temps de comptage de 1800s.	56
4.6	Spectre de bruit de fond.	57
4.7	Spectre des rayonnements γ émis par l'échantillon de brique.	57
4.8	Spectre des rayonnements γ émis par l'échantillon de Tuf.	58
4.9	Spectre des rayonnements γ émis par l'échantillon du Sable.	60
4.10	Spectre des rayonnements γ émis par l'échantillon du Béton ordinaire.	61
4.11	Spectre des rayonnements γ émis par l'échantillon du Ciment.	62
4.12	Spectre des rayonnements γ émis par l'échantillon du Gravier.	63
4.13	Spectre des rayonnements γ émis par l'échantillon du Carrelage.	64
4.14	Dispositif expérimentale pour la correction de l'effet d'atténuation.	65
4.15	La variation de coefficient d'atténuation de brique en fonction de l'énergie.	66
4.16	La variation de coefficient d'atténuation de sable en fonction de l'énergie.	67
4.17	La variation de coefficient d'atténuation de gravier en fonction de l'énergie.	68
4.18	La variation de coefficient d'atténuation de tuf en fonction de l'énergie.	69
4.19	La variation de coefficient d'atténuation de carrelage en fonction de l'énergie.	71
4.20	La variation de coefficient d'atténuation de ciment en fonction de l'énergie.	72
4.21	La variation de coefficient d'atténuation de béton en fonction de l'énergie.	73
4.22	Les valeurs de radium équivalent pour les différents types des matériaux de construction.	74
4.23	Indices de risque externe et interne calculés selon le modèle.	75
4.24	Dose absorbée pour un adulte au-delà de 14 ans.	76
4.25	Dose efficace annuelle pour un bébé de 8 semaines, un enfant et un adulte au-delà de 14 ans.	76
4.26	Distibution de dose naturelle à l'intérieur de la salle.	77

Liste des tableaux

1.1	Radioéléments d'origine cosmique.	9
1.2	Les isotopes de potassium.	11
1.3	Valeurs des facteurs de pondération radiologiques selon les recommandations de la CIRP.	24
3.1	Modèle utilisé pour la simulation de la dose.	47
4.1	La résolution en fonction de la haute tension.	50
4.2	Les sources radioactives utilisées en laboratoire pour la calibration en énergie pour la chaîne de spectrométrie gamma.	52
4.3	Efficacité de détection en fonction de l'énergie.	54
4.4	Rais gamma observées dans le spectre de bruit de fond pour 28 heures de comptage.	56
4.5	Echantillon de Brique.	58
4.6	Echantillon de Tuf.	58
4.7	Echantillon de Sable.	59
4.8	Echantillon de Béton ordinaire.	59
4.9	Echantillon de Ciment.	59
4.10	Echantillon de Gravier.	59
4.11	Echantillon de Carrelage.	59
4.12	Les coefficients d'atténuation linéique des échantillons en fonction de l'énergie.	61
4.13	Les facteurs de correction de l'auto-absorption des échantillons qui sont obtenus par la méthode de transmission.	64
4.14	Activités spécifiques en Bq/kg corrigées par les coefficients du tableau 4.13. A1 et A2 sont les activités avant et après la correction de l'effet.	65
4.15	Valeurs mesurées du radium-équivalent.	66
4.16	Comparaison des valeurs de radium équivalent dans les matériaux de constructions avec d'autre pays.	70
4.17	Comparaison des valeurs des indices de risques externes et internes dans les matériaux de constructions avec d'autre pays.	70
4.18	Coefficients de conversion du KERMA dans l'air à la dose efficace pour les rayonnements gamma pour un bébé, un enfant et un adulte.	73
4.19	Les valeurs de la dose absorbée et de la dose efficace annuelle pour un bébé, un enfant et un adulte.	74
4.20	Comparaison des valeurs de la dose efficace annuelle E (mSv/ans) dans les matériaux de construction pour les autres pays.	75

A.1	les principales raies gamma des sources de calibration utilisées pour caractériser le détecteur NaI(Tl) lors des tests expérimentaux.	81
A.2	Principales raies gamma de radioactivité naturelle :potassium, thorium et uranium dans une gamme d'énergie de 46 à 270 KeV	82
A.3	Principales raies gamma de radioactivité naturelle :potassium, thorium et uranium dans une gamme d'énergie de 277 à 806 KeV	83
A.4	Principales raies gamma de radioactivité naturelle :potassium, thorium et uranium dans une gamme d'énergie de 835 à 2614 KeV	84
B.1	Définition des éléments dans GEANT4.	86

Remerciements

Le présent travail de mémoire a été réalisé au sein du laboratoire de physique théorique et interaction rayonnement matière (LPTHIRM) à l'Université Blida 1. Je tiens à exprimer toute ma reconnaissance à mon directeur de mémoire Monsieur R. KHELIFI Professeur à l'université de blida 1, pour son soutien, son encouragement et sa compréhension dans les moments difficiles du mémoire. Je le remercie chaleureusement pour tous ses efforts, son dévouement dans le suivi de ce travail, ainsi que son professionnalisme et sa grande générosité scientifique et humaine. Je remercie Monsieur M. CHEKIRINE, docteur à l'université de Blida 1, et Monsieur A.-A. MOUZALI, docteur à l'université de Blida 1, qui m'ont fait l'honneur d'être les rapporteurs de mon travail et ont accepté de consacrer du temps pour la lecture et le jugement de mon mémoire. Leurs remarques et suggestions lors de la lecture du mémoire m'ont permis d'apporter des améliorations de ce dernier. Je voudrais adresser un grand merci à Mr. M. OULD MOHAMED, Mr. M. CHEKIRINE, Mr. S.-A. YAHIAOUI, Mme S. SAIDANI, Mme A. CHERFI, Mme L. OUZRI et Mme K. LARABI. Maîtres de conférences à l'université de Blida 1 pour leurs supports et leurs conseils scientifiques pour ce travail. Mes sincères remerciements à Monsieur S. KENAI, Professeur à l'université de blida 1 et directeur du laboratoire Géo-matériaux de génie civil, de m'avoir accueilli au sein du Laboratoire Géo-matériaux, Je remercie également les personnels, doctorants-chercheurs de laboratoire géo-matériaux Mr A.-K. FORTASE Mr Y. MOKRANE et Mr H. BENSACI de m'avoir fait profiter de leurs grandes aides et leurs expériences. J'adresse de chaleureux remerciements à toutes les équipes des laboratoires de départements de chimie et chimie industrielle pour leur soutien ainsi que leurs aides. Je souhaite exprimer ma profonde gratitude à mes parents, mon frère et mes sœurs pour leur soutien indéfectible depuis toujours. Je tiens également à remercier mes collègues qui étaient présents au cours de ce travail, sans oublier TOUAT Khadidja et SAIB Imèn.

LISTE DES TABLEAUX

...

Introduction

La radioactivité est un phénomène naturel qui nous entoure et se trouve dans l'air, les plantes, l'eau, les roches, les matériaux de construction. . .

Elle se présente partout dans l'écorce terrestre avec des quantités différentes, dépendant à la fois de la nature de la terre et de la position géologique sur une zone géographique. Les préoccupations concernant la présence de substances radioactives naturelles justifient des mesures sur les niveaux d'activité des radionucléides dans l'environnement et des évaluations de leurs impacts radiologiques sur la population humaine. En revanche, la surveillance de la radioactivité dépasse donc les simples contrôles de routine et comprend également un axe de recherches multidisciplinaires (Physique, chimie, Sciences de l'environnement . . .).

Afin de recenser avec suffisamment de précision les sources de radioactivité naturelle, des programmes de mesures, des points de prélèvement et des méthodes d'analyses sont choisies et mis en œuvre avec le plus grand soin.

En effet, dans le cadre de la mesure de la radioactivité naturelle, plusieurs études et plusieurs techniques d'analyse sont mis en œuvre pour des études d'environnement. Pour un but de mesurer qualitativement et quantitativement les éléments radioactifs des familles ^{235}U , ^{238}U , ^{232}Th et le ^{40}K (primordiaux) ainsi que leurs activités spécifiques dans : les sédiments [1-8], l'eau [9], le sol pour une cartographie d'une zone [10-14] et même dans les matériaux de construction [15-18] les études ont été basées sur les technique d'analyse nucléaire : XRF, NAA, PGNAA, et la spectroscopie gamma.

Les travaux de ce mémoire s'inscrivent dans le cadre de la mesure de la radioactivité par spectrométrie γ à bas bruit de fond à l'aide de détecteur a scintillation NaI(Tl) pour certains matériaux de construction utilisés en Algérie. Cette technique de mesure offre un outil d'analyse performant pour identifier et quantifier les éléments de faible concentration présents dans un échantillon donné. Elle a l'avantage d'être performante et non destructive d'échantillons volu-

mineux. Elle permet le dosage en une seule mesure de l'ensemble des radionucléides émetteurs γ ayant des énergies comprises entre 20 et 3000 KeV .

Les travaux de recherche se sont déroulés selon trois phases. La première est focalisée sur l'étude expérimentale pour la détermination de l'activité des radionucléides présents dans chaque matériau de construction, ce qui nécessite un étalonnage permettant de relier les valeurs obtenues à l'activité par le biais de l'efficacité de détection. La deuxième partie traite les effets de la densité des échantillons sur l'auto-absorption des photons à basse énergie. Ce phénomène conduit alors à une variation du nombre d'impulsions mesuré dans le pic d'absorption totale. En effet, la correction de l'auto-absorption s'effectue généralement par le calcul du coefficient de correction de l'auto-absorption obtenu par le rapport des impulsions des photons d'une énergie donnée au travers de l'échantillon et celles de la source étalon. L'application de la correction est finalisée par les calculs de dose due aux matériaux de construction. La troisième partie s'est focalisée sur la modélisation par le code Monte-Carlo, GEANT4 d'une salle standard de dimensions 4x4x2.8 m pour calculer la distribution de dose induite par les matériaux de construction dans cette salle.

Le présent mémoire comporte quatre chapitres. Le premier chapitre rappelle brièvement les notions de la radioactivité et les différents processus d'interaction des photons avec la

matière, ainsi que les définitions utilisées en métrologie des rayonnements ionisants à savoir les grandeurs dosimétriques et opérationnelles sont présentées.

Le deuxième chapitre est consacré à la technique de spectrométrie gamma utilisée lors des mesures de la radioactivité dans les produits de construction en question sur la préparation des échantillons ainsi que les méthodes et les procédures utilisées pour la détermination de l'activité spécifique des radionucléides, ainsi que la correction de l'auto absorption qui dépend de l'énergie du photon incident, de la densité, du volume de l'échantillon. Le calcul et l'estimation de risque radioactif sont montrés après la correction du phénomène de l'auto absorption.

Le troisième chapitre présente la simulation Monte-Carlo qui repose sur le logiciel GEANT4. Ce logiciel permet, entre autres, de simuler le détecteur et les interactions entre les rayons gamma issus de la désintégration des radionucléides naturels comme le ^{238}U , le ^{232}Th et le ^{40}K , et le détecteur lui-même. La simulation du détecteur avec GEANT4 devrait conduire, en fin de calcul, de déterminer la quantité d'énergie déposée à l'intérieur d'un volume donné, ce qui résulte une visualisation des résultats expérimentaux par un modèle choisie, d'une distribution

dosimétrique dans chaque point à l'intérieur de ce volume. Il est donc nécessaire de définir un modèle de détecteur, c'est-à-dire de décrire sa géométrie et ses propriétés physiques, et de plus de décrire tous les propriétés géométriques de modèle de simulation.

Le quatrième chapitre traite la caractérisation de la chaîne de la spectroscopie gamma, et de même le calcul de l'activité avant et après la correction de phénomène d'auto-absorption, en estiment ainsi les doses et en signalent ainsi les limites et les explications correspondant. Enfin une visualisation de la distribution de dose est faite à l'aide de code GEANT4.

Chapitre 1

Généralités sur la radioactivité

1.1 Définition

Certains nucléides instables peuvent se transformer spontanément au cours du temps [19]. Ils possédant un excès des protons ou neutrons ou les deux qui les conduisent à se transformer en d'autres noyaux d'atome avec l'émission d'une autre particule, suivie parfois, d'un rayonnement électromagnétique caractéristique. Le noyau résiduel peut être lui aussi radioactif et subir d'autres transformations ou bien être stable [20].

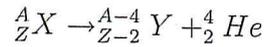
1.1.1 Les divers modes de la désintégration

Les principaux modes de désintégration d'un radioélément sont l'émission de particules α ou β , souvent accompagnée par l'émission d'un rayonnement γ . Il y a aussi la possibilité de désintégration par capture électronique, par fission spontanée, ou par l'émission d'un proton (suite à une désintégration β^+ ou une capture électronique) ou d'un neutron (suite à une désintégration β^-) [21].

1.1.2 La radioactivité α

C'est une forme de désintégration radioactive où un noyau atomique éjecte une particule alpha (${}^4_2\text{He}$) et se transforme en un noyau de nombre de masse diminué de 4 et de numéro atomique diminué de 2.

L'équation de la désintégration alpha est :



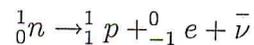
Les éléments qui existent dans la nature et qui sont susceptibles d'émettre des particules alpha sont tous lourds [20, 22] et leurs périodes sont généralement très longues [22].

1.1.3 La radioactivité β

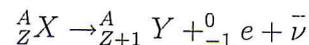
Elle concerne les noyaux instables riches en protons ou en neutrons ou le noyau se désintègre par l'émission d'un électron positif ou négatif. Le noyau produit est un isobare du noyau initial. Cette désintégration est possible quelle que soit la valeur du nombre atomique, et jusqu'au neutron ($Z = 0$) [22]. Ce type de transformation se trouve sous deux processus différents :

La radioactivité β^-

Elle correspond à la désintégration des noyaux qui ont un excès de neutrons, en conséquence un neutron se transforme spontanément en un proton avec émission d'un électron et un anti-neutrino [20, 22]. L'équation de la désintégration β^- est :



En effet :



Après cette transformation le noyau fils se trouve quelque fois dans un état métastable, Il se désexcite en émettant un ou plusieurs photons gamma.

La radioactivité β^+

Dans la radioactivité bêta plus le noyau a un excès de protons il se désintègre par émission d'un électron positif et un neutrino [19, 22] :



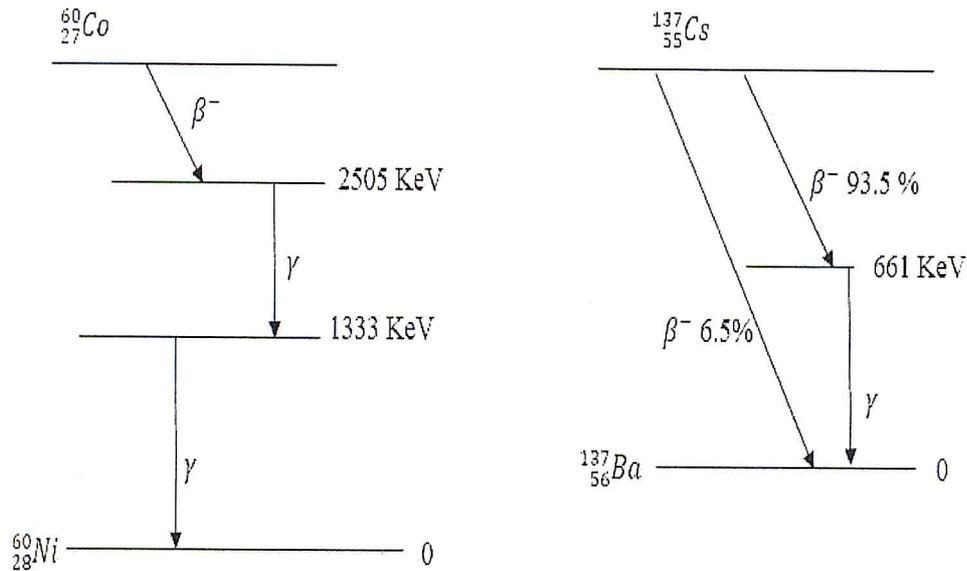
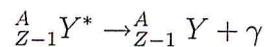


FIG. 1.1: Désintégration bêta du Cs et du Co.

Le noyau fils obtenu peut être dans un état excité, il désintègre par une émission d'un photon gamma selon l'équation :

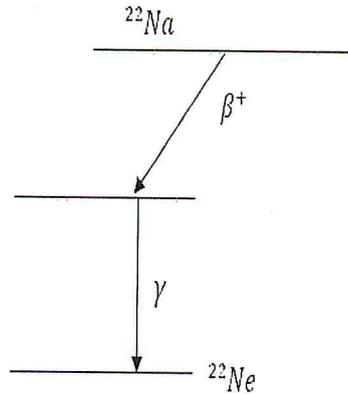
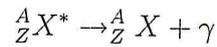


1.1.4 Émission γ

Le rayonnement gamma est une radiation électromagnétique émise à la suite d'un rayonnement alpha ou bêta lorsque ceux-ci produisent un noyau fils dans un état excité. L'excès d'énergie est libéré sous forme de photons de hautes énergies possédant un fort potentiel de pénétration dans la matière.

Le spectre photonique est discret, car il correspond à la différence d'énergie entre les niveaux du noyau fils ; il représente ainsi un moyen univoque d'identification de chaque radio-isotope. L'énergie de rayonnement γ issue de la radioactivité est comprise entre quelque dizaine de KeV jusqu'à MeV.

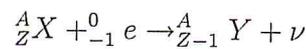
Dans une transition gamma le nombre des nucléons est conservé.

FIG. 1.2: Schéma de désintégration de sodium ^{22}Na .

1.1.5 Autres voies de désintégration

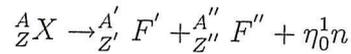
Il existe d'autres voies de désintégration, mais d'importance moindre que celle des processus indiqués précédemment :

1. *La désintégration par capture électronique* : c'est une désintégration isobarique due à un excès de proton [21]. En effet le noyau radioactif capte un électron des couches internes (le plus souvent de la couche K) [19], et un proton est transformé en un neutron et un neutrino est émis selon la réaction :



2. *La désintégration par fission spontanée* : c'est une désintégration par partition dans laquelle le noyau se casse spontanément en deux (ou trois) fragments très excités. Deux à quatre neutrons prompts sont émis en moyenne au moment de la fission. Les produits de fission (fragments), souvent produits à un niveau d'énergie excité, rejoignent leur niveau de stabilité respectif par désintégration β^- et émission γ . Ainsi que, dans certain cas, par

émission des neutrons dits retardés [21].



3. *La transformation par l'émission d'un neutron* : dans certains cas le retour à l'état fondamental d'un noyau excité à lieu par l'émission d'un neutron. Cela peut être un retour partiel, si toute l'énergie d'excitation n'a pas comptée par le neutron. Dans ce cas, le retour est complété par l'émission d'un ou plusieurs gammas. L'émission des neutrons retardés de fission illustre ce mode de transformation [21].

1.2 Origine de la radioactivité

1.2.1 La radioactivité naturelle

La radioactivité naturelle est due aux rayons cosmiques et aux radio-isotopes contenus dans l'écorce terrestre [23, 26, 32]. Dans le premier cas, il s'agit de désexcitations des noyaux instables créés par le bombardement des particules énergétiques du rayonnement cosmique d'origine galactique et, dans une moindre mesure, d'origine solaire. Dans le second cas il s'agit de la désexcitation de radionucléides primordiaux. La radioactivité naturelle est présente dans les roches, le sol et dans l'eau et dans nos matériaux de construction.

Les rayonnements d'origine cosmique

On appelle rayonnement cosmique le flux de noyaux atomique (rayons primaire) de très hautes énergies d'origine cosmique ou galactique constitué principalement des protons, ainsi que des rayonnements secondaires (cosmogénique) produits par ces noyaux dans l'atmosphère terrestre.

Les rayons cosmiques secondaires se produisent au cours des collisions des rayons primaires avec les noyaux des atomes d'azote et d'oxygène de l'air dans les couches supérieures de l'atmosphère [26].

TAB. 1.1: Radioéléments d'origine cosmique.

Groupe de noyau	Numéro atomique Z	Densité du flux ($m^{-2}s^{-1}$)	% Dans le flux
Proton	1	1300	92.8
Noyau d'Hélium	2	88	6.3
Noyau léger	3 – 5	1.9	0.13
Noyau moyen	6 – 9	5.6	0.4
Noyaux lourd	$\succeq 10$	2.5	0.18
Noyau très lourd	$\succeq 20$	0.7	0.05

Les rayonnements d'origine terrestre

Il s'agit des radionucléides primordiaux existant au moment de la formation de la terre et qui sont présents dans l'écorce terrestre dont leur demi-vie est supérieure ou de même ordre de grandeur que l'âge de système solaire (environ $4.6 \times 10^9 \text{ans}$) [25].

Les principaux éléments participant à la radioactivité naturelle sont les chaînes de désintégration du thorium ${}_{90}^{232}\text{Th}$ ($T_{\frac{1}{2}} = 14.05 \times 10^9 \text{ans}$), de l'uranium ${}_{92}^{238}\text{U}$ ($T_{\frac{1}{2}} = 4.47 \times 10^9 \text{ans}$) et de ${}_{92}^{235}\text{U}$ ($T_{\frac{1}{2}} = 7.1 \times 10^8 \text{ans}$) qui se désintègrent et produisent des noyaux fils formant une série d'extrémité radionucléide avec le plomb, ainsi que le potassium ${}^{40}\text{K}$, sans filiation [26]. Une liste des raies γ de radioactivité naturelle est donnée en annexe A.

1.2.2 La radioactivité artificielle

La radioactivité artificielle est obtenue par la transformation des noyaux stables en noyaux instables lesquels émettent, au bout d'un certain temps, des particules (électrons, alpha, ...) ou bien des rayonnements (photons) énergétique. La transformation est obtenue par choc des particules projectiles plus souvent des protons, neutrons, noyau d'hélium ou de deutérium sur des noyaux cibles [19].

Après la découverte de la radioactivité artificielle en 1934 par Joliot et Curie, nombreuse applications ont été réalisées dans différents domaine : la médecine nucléaire (scintigraphie), l'industrie (production des produits pharmaceutiques et des sources radioactifs) et même dans le secteur militaire (les armes nucléaire par les réactions de fission), et dans les établissements de recherches (universités, CRN, ...).

1.3 Les filiations radioactives

Une filiation radioactive se définit comme une désintégration successive d'un radioélément par l'émission des particules major β d'une manière naturelle jusqu'à un état stable. En effet on parle de filiation radioactive lorsque le noyau fils est également radioactif. Chacune des désintégrations est caractérisée par sa propre constante de désintégration λ qui est liée à la période de l'élément radioactive.

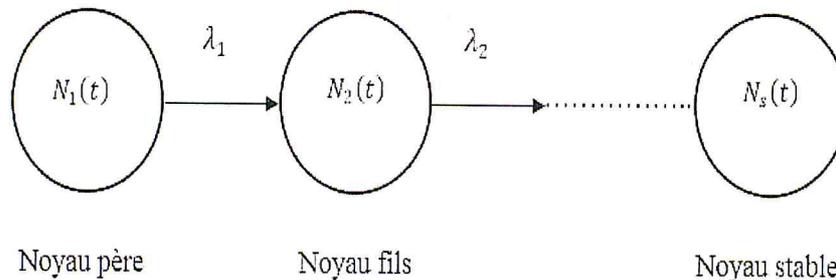


FIG. 1.3: Chaîne d'une filiation radioactive.

Les noyaux qui donnent lieu à des désintégrations naturelles successives sont regroupés en trois séries qui sont considérés parmi les éléments chimiques les plus lourds de la classification périodique.

1.3.1 Série de ${}_{92}^{238}\text{U}$ ($4n + 2$)

L'élément de départ, ou élément père est l'uranium de masse atomique relative 238. L'abondance de ${}_{92}^{238}\text{U}$ est 99.27% de l'uranium naturel. Il se désintègre très lentement, jusqu'à ${}_{82}^{206}\text{Pb}$ stable par un processus qui s'étale sur 14 désintégrations avec émission de 8 particules α et 6 particules β^- .

Le radon ${}^{222}\text{Rn}$ est le sixième descendant de la filiation radioactive de l'uranium 238. Il est issu de la désintégration de radium ${}^{226}\text{Ra}$ et se désintègre lui-même en quelques jours en polonium ${}^{218}\text{Po}$, en émettent une particule α [27].

La mesure de l'activité de ${}_{92}^{238}\text{U}$ par des transitions gamma est déterminée par les pics de ${}^{234}\text{Th}$ (63.28 KeV et 92.37 KeV), ainsi que l'activité de ${}^{222}\text{Rn}$ est calculé à partir des pics de ${}^{214}\text{Pb}$ (295.22 et 351.93 KeV) et de ${}^{214}\text{Bi}$ (619.31, 1120 et 1764 KeV).

TAB. 1.2: Les isotopes de potassium.

Nucléide	^{39}K	^{40}K	^{41}K
Masse atomique	38.964	39.974	40.972
Abondance %	93.958	0.0117	6.730
Période (ans)	stable	1.28×10^9	stable

1.3.2 Série de $^{235}_{92}\text{U}$ ($4n + 3$)

Appelé aussi série de l'Actinium, elle est issue de $^{235}_{92}\text{U}$ de période égale à 7.1×10^8 ans avec une abondance de 0.72% de l'uranium naturelle. Le produit final stable est l'isotope de plomb $^{207}_{82}\text{Pb}$ [27].

Les nombres de masse des éléments de cette famille peut être exprimée par la formule $A = 4n + 3$, sa décroissance est le siège de 11 désintégrations dont 7 émissions α et 4 émissions β^- .

La mesure par spectrométrie gamma de sa raie principale (185 KeV) coïncide, étant donné la résolution, avec celle du ^{223}Ra (186, 21 KeV) de la chaîne de $^{238}_{92}\text{U}$ ce qui induit des problèmes d'interférences dans l'analyse des échantillons.

1.3.3 Série de $^{232}_{90}\text{Th}$ ($4n$)

Le premier élément de cette série est le $^{232}_{90}\text{Th}$, dont la demi-vie est égale a 14.05×10^9 ans, le dernière élément est le $^{208}_{82}\text{Pb}$ [27], L'abondance du $^{232}_{90}\text{Th}$ constitue la totalité du thorium naturel. Durant la décroissance des différents noyaux constituant la chaîne, 6 particules α et 4 particules β sont émises. Tous les descendants du thorium 232, possèdent, comme lui, un nombre de masse égal à un multiple de 4 [28].

La concentration de $^{232}_{90}\text{Th}$ est calculé à partir des pics gamma de ^{212}Pb (238.63 KeV), ^{228}Ac (209.25 KeV, 911.2 KeV et 968.9 KeV) et de ^{208}Tl (583.19 KeV).

1.3.4 Le potassium ^{40}K

Le potassium naturel est formé par trois isotopes, dont le potassium $^{40}_{19}\text{K}$ est le moins stable et qui désintègre selon une longue période en deux voies de désintégration pour produire en deux produits fils : le calcium $^{40}_{20}\text{Ca}$ et l'argon $^{40}_{18}\text{Ar}$.

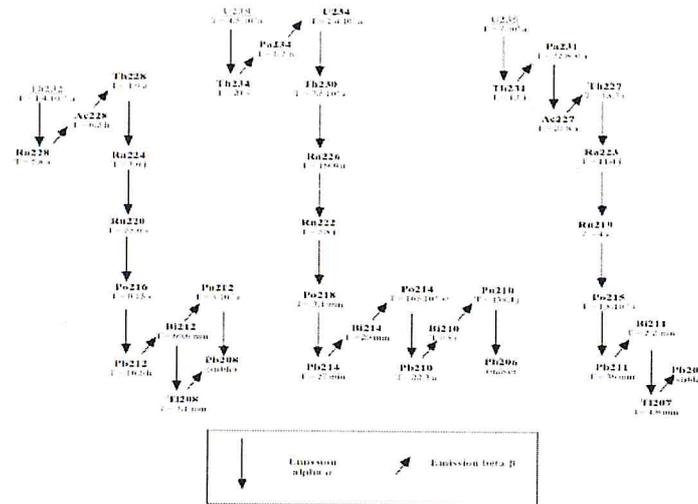


FIG. 1.4: Chaines radioactives naturelles de $^{238}_{92}\text{U}$, $^{235}_{92}\text{U}$ et $^{232}_{90}\text{Th}$.

Le potassium $^{40}_{19}\text{K}$ est déterminé par la transition gamma de $^{40}_{18}\text{Ar}$ à l'énergie de 1460 KeV [29].

1.4 Equilibres radioactifs

Dans une chaîne de décroissance radioactive, les activités de certains radionucléides peuvent s'égaliser après une durée bien déterminée qui dépend des périodes relatives de ces radionucléides pour lequel il y a égalité entre la production et la désintégration des noyaux du produit fils. En effet, l'équilibre radioactif de ces derniers permet de déterminer l'activité, le nombre de noyau et la dose émanant d'un échantillon.

Une équation générale qui peut relier l'activité de noyau père et le noyau fils est [19, 25] :

$$A_2 = A_1 \frac{\lambda_2}{\lambda_2 - \lambda_1} (1 - e^{-(\lambda_2 - \lambda_1)t}) \quad (1.1)$$

En termes de périodes :

$$A_2 = A_1 \frac{T_1}{T_1 - T_2} \left(1 - e^{-\left(\ln 2 \frac{T_1 - T_2}{T_1 T_2}\right)t} \right)$$

A_1 , A_2 , λ_1 et λ_2 sont respectivement les activités et les périodes de noyau père et de noyau fils.

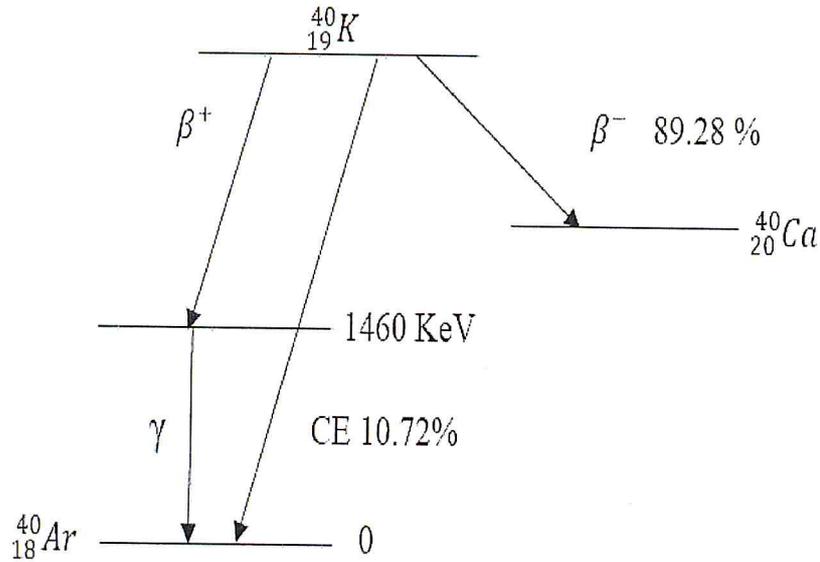


FIG. 1.5: Les voies de désintégration de potassium $^{40}_{19}\text{K}$.

En effet, on distingue deux types d'équilibres :

1.4.1 Equilibre transitoire

Si la période de noyau père est grande par rapport à celle de noyau fils et après un temps t_{\max} assez grand par rapport à la période de noyau fils, les activités des deux nucléides évoluent en restant dans un rapport constant [25]. En effet, l'activité de noyau fils atteint une activité maximale à t_{\max} , après quoi il semble décroître avec la période du noyau père. L'équation d'évolution de l'activité devient :

$$A_2 = A_1 \frac{\lambda_2}{\lambda_2 - \lambda_1}$$

avec :

$$t_{\max} = \frac{\ln\left(\frac{\lambda_2}{\lambda_1}\right)}{(\lambda_2 - \lambda_1)}$$

1.4.2 Equilibre séculaire

Cet équilibre est atteint lorsque la période du noyau père est très longue devant celles des noyaux fils, c'est le cas des filiations à très longue période [19, 25, 32]. En effet λ_1 est très grande

devant λ_2 . Dans ce cas l'équation (1.1) devient :

$$A_2 = A_1 (1 - e^{-\lambda_2 t}) \quad (1.2)$$

Après un certain temps, le produit $\lambda_2 t$ augmente et le terme exponentiel disparaît de l'équation (1.2) et dans ce cas on atteint un état d'équilibre séculaire de telle façon que les activités sont indépendantes :

$$A_1 = A_2$$

or

$$\lambda_1 N_1 = \lambda_2 N_2$$

Dans les filiations, le radon est un excellent exemple pour un équilibre séculaire, en effet l'équilibre entre le radium ${}^{226}_{88}\text{Ra}$ et le radon ${}^{222}_{86}\text{Rn}$ s'établit en quelque semaine (environ de sept fois la période de noyau fils) et après quel que soit le temps, les deux activités vont être égales, dans ce cas tous les produits fils ont la même activité avec les noyaux père [25]:

$$\lambda_1 N_1 = \lambda_2 N_2 = \lambda_3 N_3 = \dots$$

1.5 Loi de l'émission radioactive

1.5.1 Constante radioactive

Chaque substance radioactive d'une population identique d'atome possède une probabilité de se désintégrer, par unité de temps. Le nombre d'atome se désintègront durant l'intervalle de temps dt est donné comme suit [24] :

$$dN(t) = -\lambda N(t) dt$$

où $N(t)$ est le nombre d'atome présents à l'instant t , λ est la constante radioactive caractéristique pour chaque radionucléide et qui représente la probabilité de désintégration d'un noyau par unité de temps.

Le nombre de noyau radioactif d'un échantillon décroît exponentiellement avec le temps d'où la solution :

$$N(t) = N_0 e^{-\lambda t} \quad (1.3)$$

où N_0 est le nombre d'atome présent dans l'échantillon à l'instant initial ($t = 0$).

1.5.2 La période radioactive

La période radioactive d'un radionucléide, $T_{\frac{1}{2}}$, est le temps nécessaire pour que la moitié des atomes radioactifs présents initialement se soient désintégrés.

Au bout d'un temps t correspondant à une période $T_{\frac{1}{2}}$, compte tenue la relation (1.3) :

$$N\left(T_{\frac{1}{2}}\right) = N_0 e^{-\lambda T_{\frac{1}{2}}} = \frac{N_0}{2}$$

donc

$$T_{\frac{1}{2}} = \frac{\ln 2}{\lambda}$$

Le temps nécessaire pour passer de N_0 à $\frac{N_0}{2}$ est identique que celui nécessaire pour passe de $\frac{N_0}{2}$ à $\frac{N_0}{4}$, donc on peut écrire :

$$N\left(nT_{\frac{1}{2}}\right) = \frac{N_0}{2^n}$$

où n est le nombre des périodes.

1.5.3 L'activité

L'activité A est le nombre moyen de désintégration par seconde [19] :

$$\frac{dN}{dt} = -\lambda N$$

L'évolution temporelle de l'activité est déduite de la relation (1.3) :

$$A(t) = \lambda N(t) = \lambda N_0 e^{-\lambda t} = A_0 e^{-\lambda t}$$

L'unité de mesure de l'activité est le Becquerel (Bq), qui correspond à une désintégration par seconde. Autre unité de mesure de l'activité : le Curie, qui correspond à l'activité de un gramme de radium :

$$1 \text{ Ci} = 3.7 \times 10^{10} Bq$$

1.5.4 Relation masse activité

L'activité par unité de masse d'un radionucléide est définie par *l'activité spécifique* [25], elle représente la masse m de N atomes avec une activité A :

$$m = \frac{M}{\lambda N_A} A$$

ou M est la masse molaire exprimé en $g.mol^{-1}$ et N_A est le nombre d'Avogadro, correspond à 6.023×10^{23} atomes présent en une mole d'atome.

1.6 Interaction du rayonnement gamma avec la matière

Lorsqu'ils traversent la matière, les photons γ peuvent subir différents types d'interactions en fonction de leur énergie et du milieu en présence (densité, type d'atome, etc.) : l'effet photoélectrique, la production de paires électron-positron, la diffusion Compton, la diffusion Rayleigh, la photodésintégration ou encore la diffusion nucléaire résonante (ou effet Mössbauer) [30, 33]. Parmi ces processus, seuls les trois premiers sont significatifs et décrits ci-dessous.

La figure 1.6 représente les importances relatives des différents processus d'interaction en fonction de l'énergie et du Z du milieu traversé. L'effet photoélectrique prédomine à basse énergie, la création de paire est prépondérante pour les hautes énergies et la diffusion Compton pour des énergies intermédiaires [33].

1.6.1 L'effet photo électrique

Dans une collision photoélectrique, le photon incident disparaît et cède totalement son énergie E_γ à un électron fortement lié (la couche la plus probable est la couche K) de l'atome cible, et photoélectron est éjecté avec une énergie cinétique :

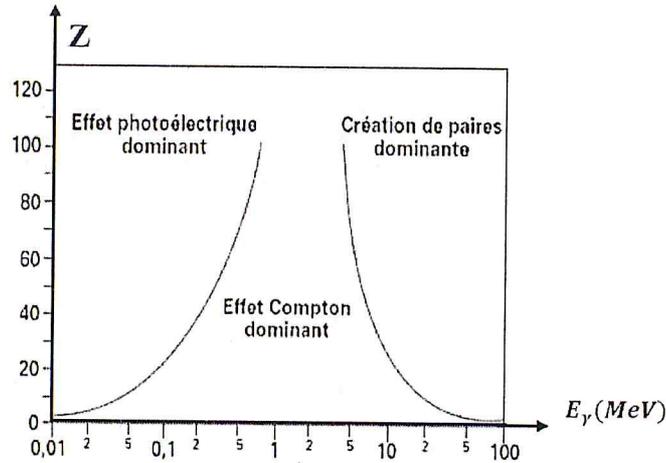


FIG. 1.6: Les types d'interaction prépondérants suivant l'énergie du photon et le numéro atomique Z

$$E_{\dot{e}} = E_\gamma - E_{(L,\dot{e})}$$

où $E_{(L,\dot{e})}$ est l'énergie de liaison de l'électron dans l'atome dans les couches les plus profondes, E_γ représente l'énergie du photon incident et $E_{\dot{e}}$ est l'énergie cinétique de l'électron arraché. Le niveau d'énergie vacant est alors rempli à partir de niveaux supérieurs via des transitions : émissions des rayons X caractéristiques de fluorescence ou électrons d'Auger (émission non radiative).

La probabilité d'interaction d'un photon avec un atome est prédominant pour des photons de basse énergie ($E \preceq 0.2 \text{ MeV}$), en particulier pour les éléments de Z élevé. La section efficace pour l'effet photoélectrique est [30, 33] :

$$\sigma_{pe} = Const \times \frac{Z^{n(E)}}{E_\gamma^3}$$

où $n(E)$ varie entre 4 et 5. L'effet photoélectrique n'a lieu que si $E_\gamma \succ E_{(L,\dot{e})}$.

1.6.2 La diffusion Compton

Lors d'une diffusion Compton, le photon incident d'énergie E_γ perd une partie de son énergie qui est transférée à un des électrons des couches extrêmes de l'atome (les moins liés) que l'on peut considérer comme libres ou en repos.

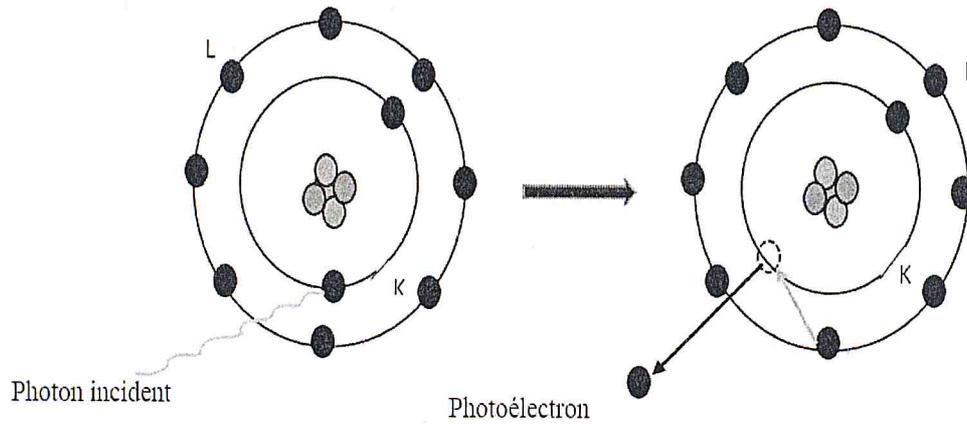


FIG. 1.7: Effet photoélectrique.

Le photon Compton est diffusé avec une énergie E'_γ selon l'angle $0 \leq \theta \leq \pi$ par rapport à la direction du photon incidente et qui pourra éventuellement donner lieu à d'autre diffusion compton. L'électron Compton recule selon l'angle φ avec une énergie cinétique E_ϵ (Fig. 1.9).

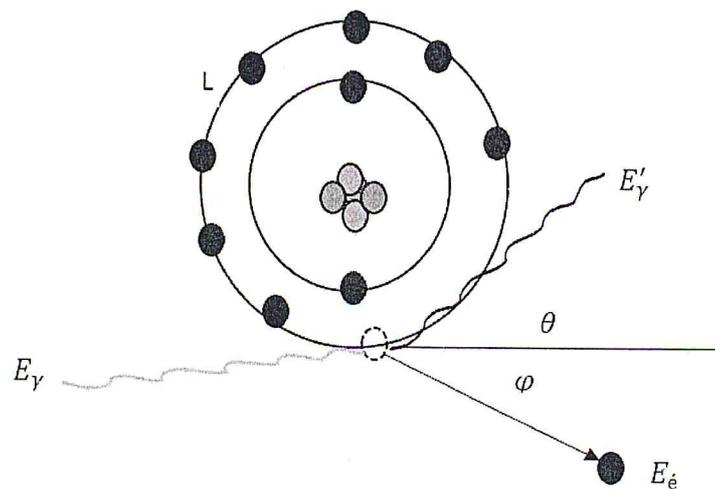


FIG. 1.8: Diffusion Compton.

Les deux grandeurs E'_γ et $E_\epsilon = E_\gamma - E'_\gamma$ peuvent se calculer par les relations de conservation de l'énergie totale et de l'impulsion [30, 33] :

$$E'_\gamma = \frac{E_\gamma}{1 + \frac{E_\gamma}{m_0 c^2} (1 - \cos \theta)}$$

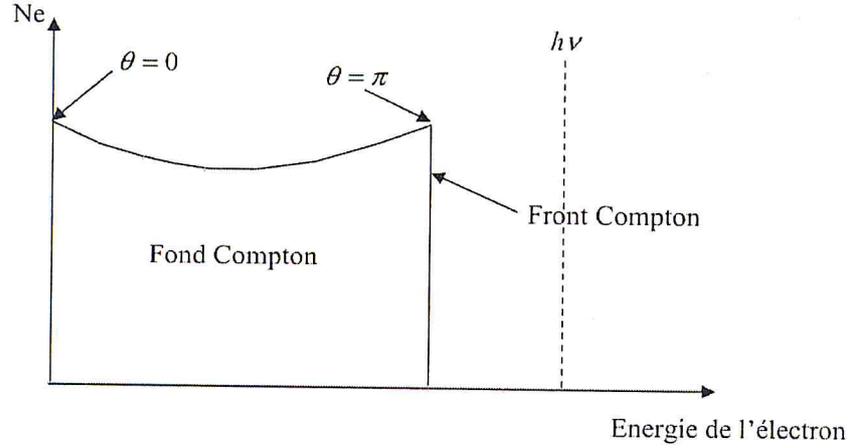


FIG. 1.9: Spectre en énergie d'électron suite à des diffusions Compton. N_e est le nombre d'électrons sur lesquels le photon a réalisé une diffusion Compton.

L'énergie de l'électron compton est :

$$E_e = E_\gamma \frac{2 \frac{E_\gamma}{m_0 c^2}}{1 + 2 \frac{E_\gamma}{m_0 c^2} + \left(1 + \frac{E_\gamma}{m_0 c^2}\right)^2 \tan^2 \varphi}$$

où m_0 est la masse au repos de l'électron ($m_0 c^2 = 511 \text{ KeV}$). en effet, l'énergie cinétique de l'électron est comprise entre 0 pour $\theta = 0$ et $\left(E_\gamma \frac{2 \frac{E_\gamma}{m_0 c^2}}{1 + 2 \frac{E_\gamma}{m_0 c^2}}\right)$ pour $\theta = \pi$. Les angles de diffusion de l'électron et du photon sont reliés par la relation suivante :

$$\cot \varphi = \tan \frac{\theta}{2} \left(1 + \frac{E_\gamma}{m_0 c^2}\right)$$

La probabilité pour qu'un photon subir une diffusion Compton augmente linéairement avec le nombre Z d'électrons disponibles par atome cible, et elle diminue lorsque l'énergie augmente :

$$\sigma_c \propto \frac{Z}{E_\gamma}$$

1.6.3 La production de paire

Ce phénomène consiste en la disparition d'un photon et la création d'un positron et d'un électron dans le champ coulombien du noyau. On parle aussi de matérialisation d'un photon en un électron et un positron (e^-, e^+). C'est une réaction à seuil qui n'est possible que pour des énergies des photons incidents supérieures à $2m_0 c^2 = 1,022 \text{ MeV}$. L'électron et le positron

sont ralentis dans la matière environnante. A la fin de son parcours, le positron interagit avec un électron et s'annihile ce qui engendre l'émission de deux photons de 511 KeV.

la conservation de l'énergie s'écrit :

$$E_\gamma = E_{e^-} + E_{e^+} + 2m_0c^2$$

Les lois de conservation du moment cinétique font que ces deux photons sont émis dans des directions opposées [30, 33] .

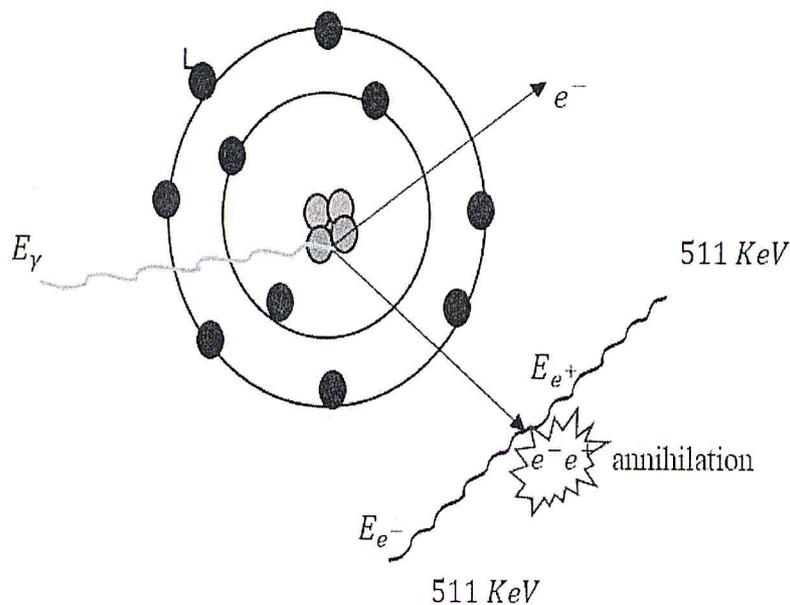


FIG. 1.10: La production de paires.

1.6.4 Autres interactions possibles

D'autres phénomènes d'interaction rayonnement-matière existent, mais contribuent très peu à la section efficace totale à nos énergies (30 KeV à 3 MeV).

1. *Diffusion Thomson* : Cette interaction contribue relativement peu au coefficient d'atténuation totale à basse énergie. C'est une diffusion élastique est la limite à basse énergie de la diffusion Compton, où les photons de faible énergie diffusent sur un électron quasi-libre. L'énergie de liaison doit être négligeable devant l'énergie du photon et son transfert d'énergie [22].

2. *Diffusion Rayleigh* : dite aussi élastique ou cohérente où le photon est diffusé sur un électron lié avec la même énergie que le photon incident mais avec un changement de direction.

1.7 Dosimétrie

La dosimétrie est un domaine de la radioprotection, qui a pour objet de quantifier la dose absorbée par l'organisme humain et les dégâts biologiques y résultant. Pour évaluer les effets observés en fonction des quantités des rayonnements reçues en un lieu (dosimétrie de zone) ou sur une personne (dosimétrie individuelle), on se réfère à des grandeurs et unités de mesure définies par l'ICRU et par l'UNSCEAR suivant que l'on considère la source, les rayonnements émis et la cible irradiée.

La radioprotection est l'ensemble des dispositions (règles, normes, procédures), des moyens de prévention et de surveillance visant à empêcher ou réduire les effets nocifs des rayonnements directement ou indirectement ionisants produits sur des personnes.

Les grandeurs en radioprotection peuvent être classées en trois grandes catégories : grandeurs physiques, grandeurs de protection et grandeurs opérationnelles [19, 31].

1.7.1 Grandeurs physiques

Les grandeurs physiques sont des grandeurs accessibles quantitativement par le calcul ou par la mesure. On distingue parmi ces grandeurs : l'énergie, l'activité, le taux d'émission, l'intensité d'émission, les grandeurs radiométriques et dosimétriques.

Les grandeurs radiométriques

Elles servent à caractériser le champ de rayonnements, on peut citer le flux, la fluence et le débit de fluence [19] :

1. *La fluence* Φ : elle représente le nombre de particules incidents dN sur une sphère de section droite dS :

$$\Phi = \frac{dN}{dS}$$

2. *Le débit de fluence $\dot{\Phi}$* : c'est la dérivée de la fluence par rapport au temps :

$$\dot{\Phi} = \frac{d\Phi}{dt} = \frac{d^2N}{dt dS}$$

3. *Le flux ϕ* : il représente le nombre de photon émis par unité de temps :

$$\phi = \frac{dN}{dt}$$

Les grandeurs dosimétriques

Elles caractérisent l'effet physique des rayonnements sur la matière en termes d'énergie transférées ou reçue.

Dose transférée ou le KERMA Le KERMA (*Kinetic Energy Released in the Medium*) est définie par la formule [19, 25] :

$$K = \frac{dE_d}{dm} = \frac{dE_e - dE_s}{dm}$$

où dE_d est la somme des énergies cinétiques initiales de toutes les particules chargées de la cible (électrons et positrons) mise en mouvement par les particules incidentes (photons) dans l'élément de volume de masse dm . Il traduit le transfert d'énergie aux particules secondaires chargées directement ionisants (énergie déposée) [25]. Son unité est le Gray ($J.Kg^{-1}$).

Le Kerma est donc utilisé pour caractériser les effets des rayonnements indirectement ionisants comme les photons et les neutrons [19, 25].

La dose absorbée La dose absorbée D est le rapport entre l'énergie moyenne cédée par le rayonnement aux électrons à l'intérieur de l'élément de volume après absorption à l'intérieur et à l'extérieur de à l'élément de volume dv de masse dm . Mais des ionisations réalisées en dehors de cette sphère peuvent aboutir à un dépôt d'énergie, elle est exprimée en Gray ($J.Kg^{-1}$) [19, 25, 35] :

$$D = \frac{\Delta E_a}{\Delta m}$$

TAB. 1.3: Valeurs des facteurs de pondération radiologiques selon les recommandations de la CIRP.

Rayonnement	Gamme d'énergie	W_R
Photon, Electron et Muon	Toute l'énergie	1
Proton, Pion	Toute l'énergie	2
α , Fragment de fission	Toute l'énergie	20
Neutron	$\begin{cases} E_n < 1MeV \\ 1MeV \preceq E_n \preceq 50MeV \\ E_n \succ 50MeV \end{cases}$	$\begin{cases} 2.5 + 1.18e^{-\ln(E_n)^2/6} \\ 5 + 17e^{-\ln(2E_n)^2/6} \\ 2.5 + 3.25e^{-\ln(0.04E_n)^2/6} \end{cases}$

La dose absorbée moyenne dans un tissu ou dans un organe T pour un rayonnement R est exprimée en Sievert (Sv).

Dose efficace Chaque tissu ou organe, possède sa propre radiosensibilité. Ainsi pour la même dose équivalente (H_T) nous avons des risques et des effets biologiques différents en fonction de tissu ou de l'organe irradié. L'ICRP a introduit une grandeur caractérisant l'effet des rayonnements sur les tissus appelé dose efficace E . L'équivalent de la dose efficace est la somme des doses équivalentes dans les différents organes pondérées par le facteur tissulaire W_T qui représente la radiosensibilité de tissu considéré. La dose efficace est donné par :

$$E = \sum_T W_T H_T = \sum_T W_T \sum_R D_{TR}$$

Lorsque l'irradiation est homogène ($D_{TR} = \text{constante}$), l'expression ci-dessus devient [19] :

$$E = H_T$$

Chapitre 2

Matériels et Méthodes

2.1 Définition

La spectrométrie gamma est l'une des techniques de mesure des éléments émetteurs gamma. C'est une technique d'analyse très précise dont l'objet est d'identifier et de quantifier les radioéléments naturels émetteurs des rayonnements gamma par désexcitation des radioéléments dans un échantillon à analyser. Son principe consiste à obtenir un spectre gamma qui représente la distribution des nombres de photons en fonction de l'énergie dont l'aire d'une raie gamma est représentative de la quantité du radioélément émetteur.

La technique de mesure par spectrométrie gamma passe par des étapes qui peuvent se résumer comme suit. D'abord la préparation de l'échantillon à mesurer suivie par le réglage de la chaîne de spectrométrie gamma. Ensuite, viennent les étapes de calibration (l'étalonnage en énergie et l'étalonnage en efficacité) et d'acquisition (bruit de fond et échantillon). Enfin, la recherche des pics en identifiant ainsi les radionucléides et en calculant par la suite les activités correspondantes.

2.2 Préparation de l'échantillon

La préparation de l'échantillon est l'action de le conditionner de telle sorte qu'il doit suivre une préparation et un stockage suivant la norme internationale [16]. Le processus décrit ci-dessus vise à rendre l'échantillon homogène afin d'éviter une sous-estimation de l'activité réellement présente.

1. *La collection des échantillons* : les prélèvements des échantillons des matériaux de construction a été faite dans de petits sacs en plastique qui sont secs et propres. Les échantillons utilisés se résument comme suit : brique rouge, gravier, sable, ciment, carrelage, tuf et le béton.
2. *Le séchage* : afin d'éviter la présence de l'humidité dans les matériaux de construction, les échantillons ont été séchés dans les fours "MLW WS 200 " à 100 °C pendant 24 heures.
3. *Le broyage* : le broyage des matériaux de construction est effectué dans un broyeur de céramique "MASTER MILL 23 " pendant dix minute afin qu'il permette d'avoir une granulométrie des échantillons.
4. *Le tamisage* : il permet de retirer les débris divers et assurer une homogénéité de l'échantillon afin de le tamiser à 200 μm dans un tamiseur de fréquence " RETCH " à 1.5 Hz pendant dix minute.

Le mesurage de la radioactivité gamma dans les matériaux de construction nécessite la mise en œuvre des conteneurs d'échantillon adapté à la spectrométrie gamma ; on a choisi un conteneur en polyéthylène (polymère) dont la géométrie d'étalonnage est égale à 200 cm^3 avec une forme cylindrique.

Après le choix du conteneur le mieux adapté à l'analyse, nous pesons chaque échantillon et sa masse correspondante est notée.

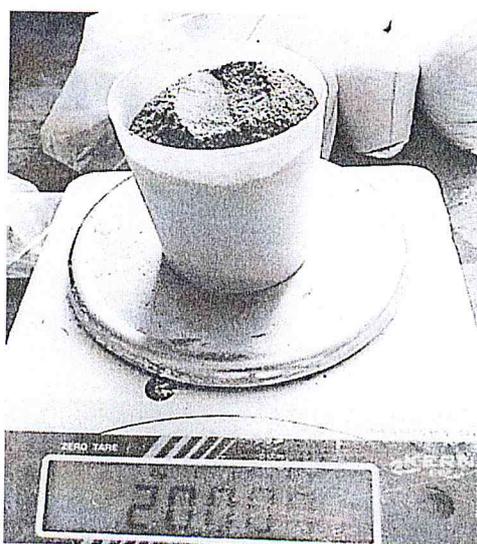


FIG. 2.1: Pesage des échantillons.

Par la suite, l'échantillon est scellé et étiqueté et enfin entreposé suffisamment longtemps afin de lui permettre d'atteindre l'état d'équilibre radioactif.

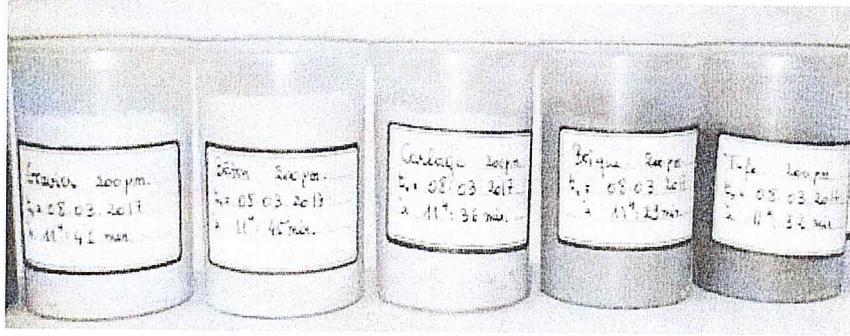


FIG. 2.2: Etiquetage des échantillons.

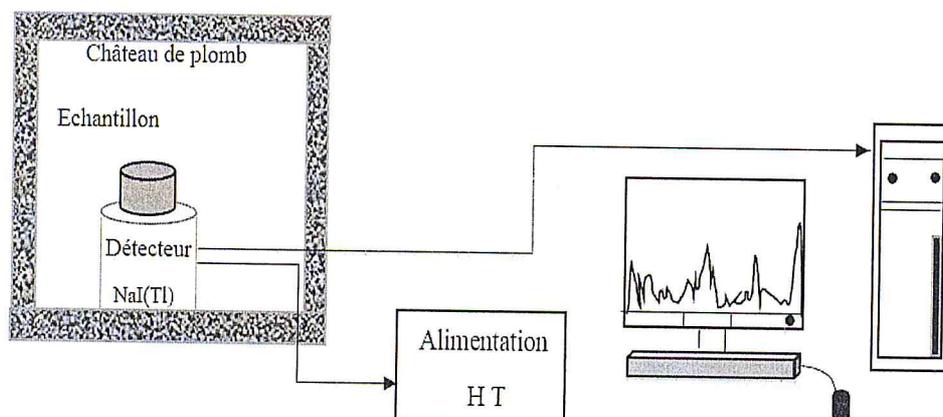
2.3 Chaîne de spectroscopie gamma

De façon générale, tous les éléments qui composent une chaîne de spectrométrie gamma doivent avoir la propriété de la linéarité autrement dit contribuer à la proportionnalité entre l'énergie cédée et l'impulsion finale obtenue. Une chaîne de spectrométrie gamma (Figure 2.3) est associée à un détecteur à scintillation $3^n \times 3^n$ "Alpha spectra Inc" modèle 905 - 4 (Fig. 2.4) placée verticalement dans un château de plomb afin de recueillir les gammas émis par l'échantillon. Ce dernier est associé à un tube photomultiplicateur de 10 dynodes "Samsung" avec une carte d'acquisition "Via digibase" (Ortec) de 1024 canaux servant à la collecte du spectre gamma. Il permet le stockage des impulsions de même amplitude dans un canal. On obtient ainsi un spectre qui représente le nombre de coups reçus en fonction de l'énergie. Enfin un ordinateur muni d'une carte d'acquisition et un logiciel de traitement des données "GAMMA VISION", permettent de recueillir le spectre en temps réel.

Pour fonctionner, le détecteur est polarisé par une alimentation de haut tension 700 Volt.

2.3.1 Détecteur NaI(Tl)

La détection de la radioactivité repose sur l'interaction rayonnement-matière. Le but est de convertir les rayonnements invisibles émis par les éléments radioactifs en un signal mesurable. Le choix du détecteur se fait selon la nature du rayonnement et le type de son interaction

FIG. 2.3: Schéma de dispositif de spectrométrie γ .

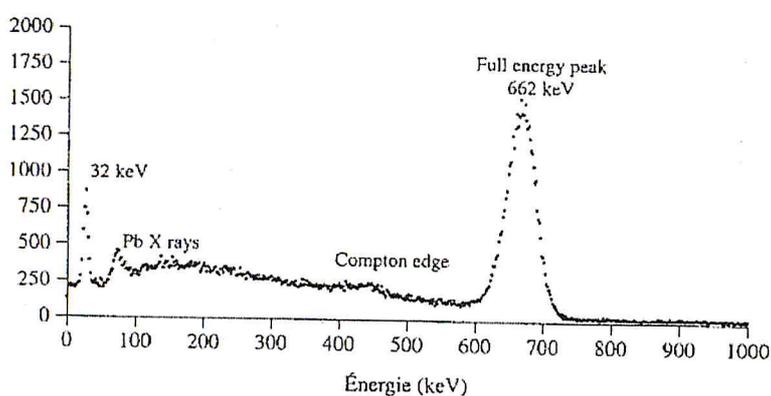
avec la matière constituant le détecteur. Parmi les détecteurs gamma qui ont une bonne résolution en énergie pour effectuer les mesures spectroscopiques sont les scintillateurs et les semi-conducteurs.

Le système d'analyse mis en œuvre pour la réalisation de la partie expérimentale est composé d'un cristal de scintillation activé au thallium (NaI(Tl)). L'introduction de thallium à une très faible concentration ((10^3) en proportion atomique) augmente considérablement l'intensité lumineuse produite à la température ambiante [24]. Sa réponse aux photons est très rapide ce qui rend le scintillateur comme un excellent spectromètre pour les rayons X ou γ en analyse quantitative. Sa résolution en énergie est 7% à l'énergie de 661 KeV. La section efficace de l'effet photoélectrique dépend de $Z^{4.5}$ ce qui implique que la détection des rayonnements gammas s'effectue avec une meilleure efficacité [30, 36]. Cet avantage est dû aux matériaux composant le scintillateur (nombre atomique élevée et grande densité).

L'association d'un photomultiplicateur et d'un scintillateur forme un compteur à scintillation, un guide de lumière fait parvenir les photons sur la photocathode. Les électrons ainsi produit sont multipliés sur les dynodes (ou électron à émission secondaire); ils arrivent sur l'anode, produisent une impulsion qui est analysée par le circuit associé [19, 24].

2.3.2 Calibration de la chaîne de spectrométrie gamma

La calibration de la chaîne de spectrométrie gamma comporte deux étapes : l'étalonnage en énergie qui consiste à vérifier la linéarité du détecteur, ainsi que l'identification des radio-

FIG. 2.4: Détecteur NaI(Tl) $3^n \times 3^n$ modèle 905-4.FIG. 2.5: Un spectre gamma de ^{137}Cs obtenu à l'aide d'un détecteur NaI(Tl).

nucléides existants dans les échantillons à analyser et l'étalonnage en efficacité qui permet de remonter à l'activité des radionucléides existant dans cet échantillon.

Étalonnage en énergie

Pour avoir une bonne analyse qualitative, il faut bien calibrer en énergie notre chaîne de spectrométrie gamma, pour cela on utilise les sources radioactives émettrices de rayonnement γ (annexe A). De telle sorte que les raies d'absorption totale sont classées par leurs amplitudes. Chaque canal est associé à une énergie. La droite de calibration en énergie de la chaîne de mesure est donnée par relation polynomiale [33] :

$$E(\text{KeV}) = A_0 + A_1C + A_2C^2 + A_3C^3 \dots$$

A_0 , A_1 , A_2 et A_3 sont les coefficients à déterminer et C est le canal. Pour augmenter l'ordre du polynôme, un plus grand nombre de points d'étalonnage sont nécessaires. Le coefficient A_0 représente le décalage du point de départ par rapport à zéro, A_1 représente le gain et les autres coefficients représentent la partie non linéaire de la courbe d'étalonnage.

Etalonnage en efficacité

Dans un spectre γ , les photons de même énergie donnent lieu à un pic, dont l'abscisse représente l'énergie des photons, sa surface, proportionnelle aux taux d'émission photonique, permet de connaître l'intensité relative ou absolue de la raie gamma.

On obtient l'efficacité absolue de détecteur par la relation [30] :

$$\varepsilon_p(E) = \frac{N_{détectés}(E)}{N_{émis}(E)}$$

avec $N_{détectés}(E)$ est le nombre de photons détectés et $N_{émis}(E)$ est nombre de photons émis par l'échantillon.

Pour la calibration en efficacité du détecteur, un standard donnant des gammas de différentes énergies et d'intensités connues. Ce standard est une source point d' ^{152}Eu ayant une activité connue, placée à une distance de 8.9 cm du détecteur NaI(Tl) (Fig. 2.6). Un temps de mesure de 1800 s a été utilisé pour collecter le spectre gamma de la source.

Pour tous les pics, l'aire est mesurée et l'efficacité calculée à partir de la relation définit par :

$$\varepsilon(E) = \frac{R}{I_\gamma t_c A} \quad (2.1)$$

avec R est l'aire sous le pic gamma donnant le nombre de photons détectés, A est l'activité de la source d' ^{152}Eu , I_γ est intensité de la raie gamma en % d' ^{152}Eu , et t_c est le temps de comptage.

La courbe d'efficacité expérimentale caractérisant notre détecteur en fonction de l'énergie E_γ est représenté sur la figure 2.6. La relation qui relie les deux efficacités : intrinsèque et absolue est donnée par :

$$\varepsilon_{abs} = \varepsilon_{int} \frac{\Omega}{4\pi} \quad (2.2)$$

Où l'angle solide Ω représente la direction de l'impulsion de particule primaire sous lequel

la source est vue par le détecteur.

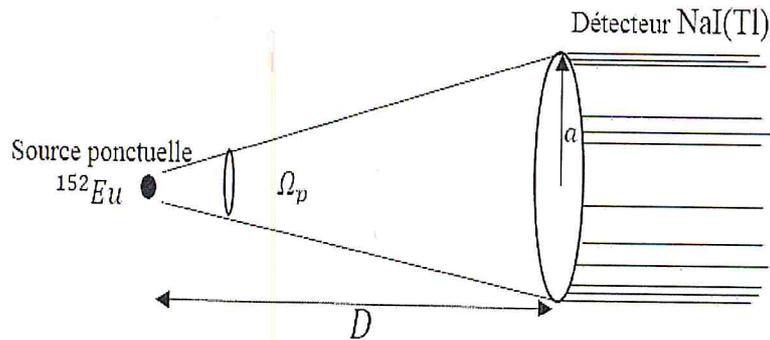


FIG. 2.6: Efficacité de détecteur d'une source ponctuelle en fonction de l'énergie.

L'angle solide est donné par la formule suivante :

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

Pour une source de radiation possédant une forme géométrique circulaire (Figure 2.7) [30], l'angle solide est donné par :

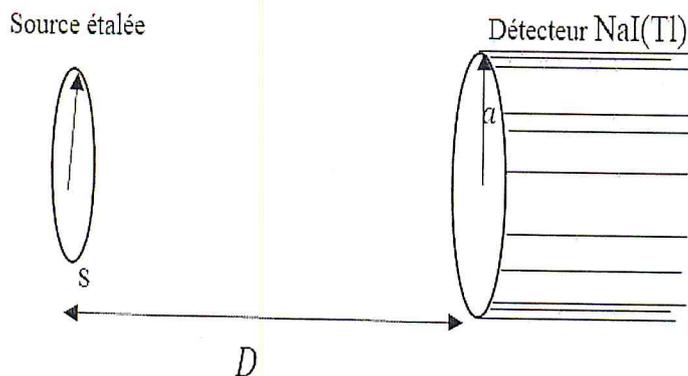


FIG. 2.7: Efficacité de détecteur d'une source étalée en fonction de l'énergie.

$$\Omega_{absolue} \simeq 2\pi \left[1 - \frac{1}{(1+\beta)^{\frac{1}{2}}} - \frac{3}{8} \frac{\alpha\beta}{(1+\beta)^{\frac{5}{2}}} + \alpha^2 [F_1] - \alpha^3 [F_2] \right] \quad (2.3)$$

$$F_1 = \frac{5}{16} \frac{\beta}{(1+\beta)^{\frac{7}{2}}} - \frac{35}{16} \frac{\beta^2}{(1+\beta)^{\frac{9}{2}}}$$

$$F_2 = \frac{35}{128} \frac{\beta}{(1+\beta)^{\frac{9}{2}}} - \frac{315}{256} \frac{\beta^2}{(1+\beta)^{\frac{11}{2}}} + \frac{1155}{1024} \frac{\beta^3}{(1+\beta)^{\frac{13}{2}}}$$

ou

$$\alpha \equiv \left(\frac{a}{D} \right)^2 ; \beta \equiv \left(\frac{S}{D} \right)^2$$

Le passage d'une source ponctuelle à une source étendue :

$$\varepsilon_e = \frac{\Omega_e}{\Omega_p} \varepsilon_p \quad (2.4)$$

2.4 Bruit de fond

En absence de source radioactive, le détecteur enregistre des impulsions qui proviennent de rayonnements naturels parasites, tellurique (chaînes naturelles) et cosmique (primaire et secondaire) et aussi de signaux émis par l'électronique de la chaîne [19, 30, 34]. Soit N_{BF} ce nombre d'impulsions enregistrées après un temps de comptage t_{BF} . Le nombre d'impulsions spécifique d'une source radioactive est :

$$N_{net} = \frac{N_{s,n}}{t_c} - \frac{N_{BF}}{t_{BF}}$$

avec N_{net} est le nombre totale d'impulsions enregistrées et t_c est temps de comptage.

Comme les radionucléides présents dans les échantillons se retrouvent également dans l'environnement, le détecteur et l'échantillon doivent être protégés par un blindage afin de réduire le bruit de fond qu'ils génèrent. En général, il suffit de protéger le détecteur par un blindage en plomb ayant un bas bruit de fond [34].

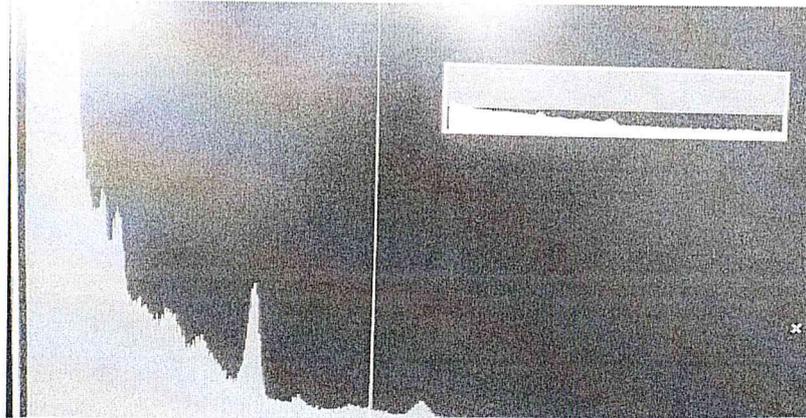


FIG. 2.8: Spectre gamma de 72 heures de comptage enregistré à l'aide d'un détecteur NaI(Tl). Toutes les raies observées (ainsi que le continuum) proviennent de la radioactivité naturelle, c'est-à-dire de la désintégration des éléments K, U et Th présents dans l'environnement du détecteur (essentiellement le sol et les murs).

2.5 Concentrations d'activité des radionucléides : Activité massique

L'activité par unité de masse (concentration radiologique) d'un radionucléide détecté à partir de pic photoélectrique est donné par :

$$A_{specific} = \frac{\frac{N_{s,n}}{t_c} - \frac{N_{BF}}{t_{BF}}}{I_\gamma \varepsilon_e m} \quad (2.5)$$

où $N_{s,n}$ est la surface nette de pic photoélectrique de l'échantillon, N_{BF} est la surface nette de pic photoélectrique du bruit de fond, t_{BF} est le temps de comptage de bruit de fond, m est la masse de l'échantillon en kg et I_γ est le nombre de photon gamma par désintégration.

Le calcul d'erreur sur l'activité est donné par la formule qui suit :

$$\sigma_A^2 = \left(\frac{\partial A}{\partial S}\right)^2 \sigma_S^2 + \left(\frac{\partial A}{\partial I_\gamma}\right)^2 \sigma_{I_\gamma}^2 + \left(\frac{\partial A}{\partial \varepsilon_e}\right)^2 \sigma_{\varepsilon_e}^2 + \left(\frac{\partial A}{\partial m}\right)^2 \sigma_m^2$$

où σ_A , σ_S , σ_{I_γ} , σ_{ε_e} , σ_m sont l'écart type sur l'activité, l'air, l'intensité de la raie et l'efficacité étalée.

2.6 Atténuation des rayons gamma

Lorsqu'un faisceau mono-énergétique de photon d'intensité I_0 pénètre dans la matière (Fig. 2.9), on a une diminution progressive de l'intensité de ce faisceau dans le milieu traversé. Cette diminution de photons incidents ou atténuation est caractérisé par un coefficient d'atténuation qui dépend de l'énergie du photon et des caractéristiques du matériau traversé.

La loi d'atténuation d'un faisceau de photon mono-énergétique est donnée par :

$$I(x) = I_0 e^{-\mu x} \quad (2.6)$$

où $I(x)$ est l'intensité de photons sortant d'un milieu absorbant d'épaisseur x , μ est le coefficient d'atténuation linéaire (cm^{-1}), propre à chacune des interactions mentionnées. En revanche, la somme de ces coefficients est égale au coefficient global proportionnel à la section efficace totale d'interaction σ_{tot} [30, 33] :

$$\mu = n\sigma_{tot} = n(\sigma_{pe} + \sigma_c + \sigma_{pp})$$

ou $n = \frac{\rho N_A}{M}$ est la densité atomique du milieu (cm^{-1}), N_A est le nombre d'Avogadro, ρ la densité et M la masse molaire. On définit le coefficient d'atténuation massique $\mu_m = \frac{\mu}{\rho}$ exprimé en ($.Atom.cm^{-3}$).

On appelle la couche de demi atténuation CDA, notée $x_{\frac{1}{2}}(E)$ l'épaisseur de matériau nécessaire pour atténuer la moitié des photons incidents, et l'épaisseur dixième $x_{\frac{1}{10}}(E)$ comme l'épaisseur nécessaire pour atténuer avec un facteur de 10 le flux des photons incident.

$$CDA = x_{\frac{1}{2}} = \frac{\ln 2}{\mu} \quad \text{et} \quad I\left(nx_{\frac{1}{2}}\right) = \frac{I_0}{2^n}$$

$$x_{\frac{1}{10}} = \frac{\ln 10}{\mu} \quad \text{et} \quad I\left(nx_{\frac{1}{10}}\right) = \frac{I_0}{10^n}$$

On définit le libre parcours moyen λ (cm) des photons dans un milieu par :

$$\lambda = \frac{1}{\mu}$$

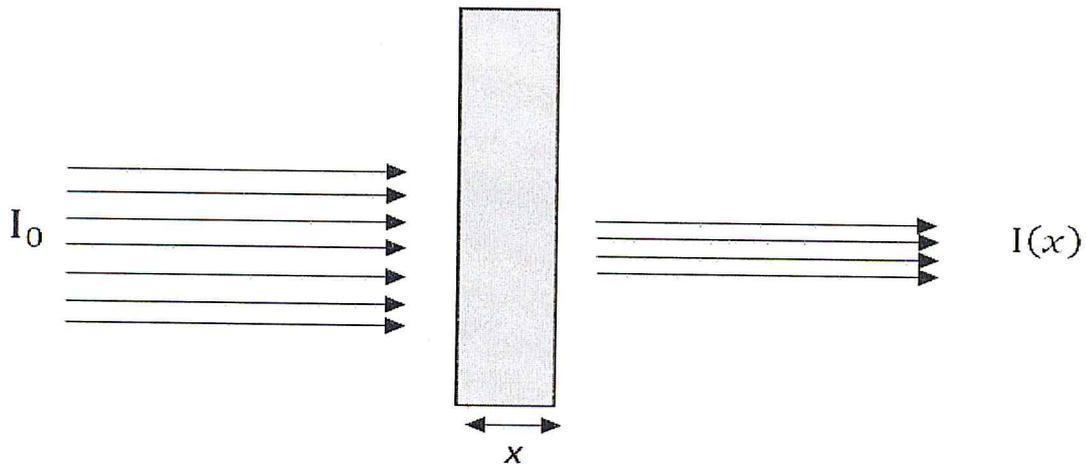


FIG. 2.9: La loi fondamentale de l'atténuation des gammas.

2.7 Méthodes de correction d'auto-absorption

L'auto-absorption est un facteur déterminant en spectrométrie γ . Elle traduit les pertes d'impulsions et à la suite de la sous-estimation de l'efficacité pour un rayonnement γ d'une énergie donnée. Elle est en fonction de l'énergie incidente, la densité de la cible, le volume et du nombre atomique Z du milieu (matrice). Afin de prendre en considération les pertes causées par ce phénomène, il est nécessaire de corriger la surface du pic d'absorption totale. L'auto-absorption concerne les photons qui n'atteignent pas le détecteur à cause de leur atténuation dans la matrice elle-même.

2.7.1 Méthode de correction

Pour la correction de l'effet de l'auto-absorption, plusieurs études ont été proposées pour la correction. La méthode mathématique de Jaegers et Landsberger, consiste à calculer le coefficient de correction d'une source ponctuelle, de telle sorte que tous les gammas émis entrent dans le détecteur avec une direction perpendiculaire à la surface [37]. Ou encore à l'aide de la simulation Monte Carlo (Sima and Dovlete, 1997) [38]. Expérimentalement, la correction de l'auto-absorption est réalisée à l'aide d'un dispositif expérimental, de telle sorte que la méthode utilisée est la méthode de transmission.

2.7.2 Méthode de transmission

Elle est basée sur deux hypothèses : la première est l'homogénéité de l'échantillon qui dépend des conditions de préparation de l'étalon ou de l'échantillon. La deuxième hypothèse est que le parcours des photons soit normal à l'échantillon et au détecteur. Cette hypothèse est d'autant plus vraie que l'échantillon est positionné loin du détecteur. En effet, à grande distance, l'angle solide est quasiment le même quel que soit le point d'émission dans la source. La trajectoire de chaque photon émis est quasiment normale à la surface d'entrée du détecteur. Cependant l'efficacité de détection est réduite.

Formalisme Quand un photon gamma traverse une tranche d'écran, il ne dépose pas son énergie au fur et à mesure comme une particule alpha. Soit il interagit et disparaît en tant que tel ; soit il n'interagit pas et rien ne se passe. Dans le cas d'un grand nombre de gamma un certain nombre est atténué. Utilisant l'équation (2.6) et la définition de coefficient d'atténuation massique, l'atténuation dans l'échantillon $F_{atté}$ est définie [39, 50] par :

$$F_{atté} = \frac{\frac{I}{I_0} - 1}{\ln\left(\frac{I}{I_0}\right)} \Rightarrow F_{atté} = \frac{1 - e^{-\mu x}}{\mu x} \quad (2.7)$$

On définit le facteur de correction de l'auto-absorption C_{auto} comme étant le rapport du facteur d'auto-absorption de l'échantillon à celui de l'étalon (équation 2.7).

$$C_{auto} = \frac{F_{atté\acute{e}chant}}{F_{atté\acute{e}talon}} = \frac{\left(\frac{1 - e^{-\mu x}}{\mu x}\right)_{\acute{e}chantillon}}{\left(\frac{1 - e^{-\mu x}}{\mu x}\right)_{\acute{e}talon}} \quad (2.8)$$

2.7.3 Principe

Dans ce travail, nous avons utilisé la méthode proposée par Cutshall [40] que nous avons adaptée à notre dispositif expérimental. Les coefficients d'atténuations linéiques ont été déterminés expérimentalement en positionnant la source en amont de l'échantillon aligné horizontalement avec le détecteur (Figure 2.10). La source d' ^{152}Eu est couramment utilisée car elle couvre une large gamme d'énergie (voir Annexe A). Un flacon vide (air) de géométrie cylindrique d'une épaisseur équivalente soit à la hauteur du flacon, soit à son diamètre (notre cas) noté X, est placé entre la source et le détecteur. Le nombre N_i enregistré par le détecteur permet de déterminer le facteur d'atténuation linéique de l'air μ_{air} et par la relation (2.6) on remonte

au coefficient d'atténuation linéique de l'échantillon $\mu_{échan}$.

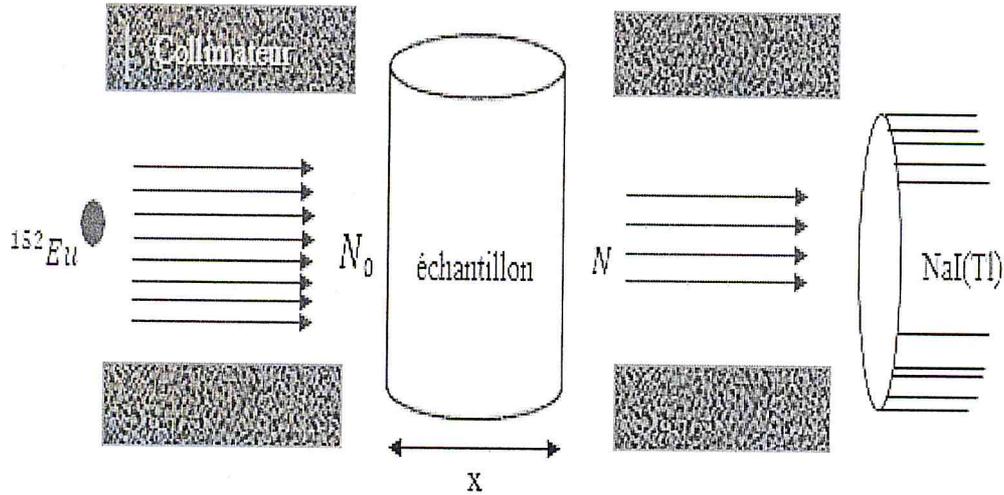


FIG. 2.10: Schéma descriptif de la méthode de transmission.

$$\mu_{échan} = \mu_{air} + \frac{1}{X} \ln \left(\frac{N_{air}}{N_{échantillon}} \right)$$

2.8 Estimation de la dose

2.8.1 L'activité de l'équivalent radium et l'indice de risque externe

La distribution des radionucléides naturels dans les échantillons étudiés n'est pas constante. Par conséquent, un index radiologique commun a été introduit pour évaluer les activités spécifiques réelles de ^{238}U , ^{232}Th et de ^{40}K , et même d'estimer les risques de la radiation associée à ces radionucléides dans le système respiratoire. Cet index est connu comme une activité de l'équivalent radium symbolisé par $Ra_{éq}$ [41] :

$$Ra_{éq} = \mathcal{A}_{Ra} + 1.43\mathcal{A}_{Th} + 0.077\mathcal{A}_K \leq 370 \quad (2.9)$$

qui est équivalent à un indice de risque externe H_{ex} donnée par la CE en 1999 [49] :

$$H_{ex} = \frac{A_{Ra}}{370} + \frac{A_{Th}}{253} + \frac{A_K}{4810} = 0.0027A_{Ra} + 0.0039A_{Th} + 0.000208A_{Th} \leq 1 \quad (2.10)$$

avec A_{Ra} , A_{Th} et A_K les activités spécifiques correspondantes au ^{226}Ra , ^{232}Th et de ^{40}K respectivement en $Bq.kg^{-1}$. Cette relation est obtenue en considérant que les activités de 370 $Bq.kg^{-1}$ de ^{226}Ra , 253 $Bq.kg^{-1}$ de ^{232}Th et 4810 $Bq.kg^{-1}$ de ^{40}K .

Des corrections ont été apportées pour prendre en considération des murs finis avec des fenêtres et des portes. Avec ce modèle amélioré et en considérant que l'activité maximum du radium-équivalent est de 370 $Bq.kg^{-1}$ [47], l'indice de risque externe devient :

$$H_{ex} = \frac{A_{Ra}}{740} + \frac{A_{Th}}{520} + \frac{A_K}{4810}$$

2.8.2 Indice de risque interne

Tenant compte de ^{222}Rn et ses descendants, il est donné par [42] :

$$H_{in} = \frac{A_{Ra}}{185} + \frac{A_{Th}}{259} + \frac{A_K}{4810} \leq 1 \quad (2.11)$$

Si les indices de risques sont inférieurs à l'unité, donc on dit qu'il y'a une absence de contamination.

2.8.3 Dose absorbée due aux matériaux de construction

Le calcul de la dose absorbée $D(nGy.h^{-1})$ provenant des matériaux de construction est donné par :

$$D(nGy.h^{-1}) = 0.462A_U + 0.604A_{Th} + 0.0417A_K \quad (2.12)$$

Les coefficients 0.462, 0.604 et 0.0417 représentent des facteurs de conversion donnés par UNSCEAR 2000. A partir de cette formule on évalue le taux de dose absorbée dans l'air à 1 m de hauteur du niveau du sol avec une limite de 55 $nGy.h^{-1}$.

2.8.4 Dose efficace annuelle

Rappelons que la dose efficace est une dose biologique très utilisée en radioprotection, qui sert à évaluer l'exposition d'une personne individuelle aux rayonnements. Son expression a été définie par UNSCEAR (2000) :

$$E(mSv/y) = D(nGy.h^{-1}) \times 8766 \times 0.8 \times 0.7 \times 10^{-6} \leq 1 \quad (2.13)$$

où 8766 (exprimé en heures) représente le nombre d'heures pour une année, 0.8 est le facteur de pondération qui implique que 80 % du temps est dépensé à l'intérieur de ces constructions, alors que 0.7 représente le facteur de conversion d'une dose absorbée à une dose efficace.

Dans le dernier chapitre, on revient sur les applications de ces différentes grandeurs par la spectrométrie γ .

Chapitre 3

Simulation Monte-Carlo à l'aide du code GEANT 4

3.1 Introduction

La technique de Monte-Carlo est une méthode statistique basée sur des tirages de nombres aléatoires suivant des lois de probabilité (ou densité de probabilité) qui décrivent les phénomènes physiques mis en jeu et permettent de simuler leur caractère aléatoire (simuler la génération d'une particule, l'interaction des particules avec la matière), la méthode de Monte-Carlo est issue du calcul des probabilités qui trouve ses origines dans les jeux de hasard. Le jeu consiste en la réalisation d'une trajectoire, et à chaque fois que la particule traverse la surface, le score est de 1, sinon 0.

Devant la complexité croissante des expériences de physique des particules et de physique nucléaire, il est nécessaire d'avoir des logiciels de simulation robustes et performants. Geant4 (Géant) a été développé pour répondre à cette demande.

3.2 Principe de la méthode monte Carlo

L'approche, permet de simuler "l'histoire" d'une particule individuelle dans un milieu at-ténuateur, en tenant compte du caractère probabiliste des différents phénomènes physiques pouvant être rencontrés lors de sa traversée. Cette historique prend en compte les éventuelles particules secondaires et s'arrête dès lors que l'énergie de la particule et en dessous d'un niveau

seuil ou que celle-ci atteinte une zone de réjection. La méthode Monte Carlo peut se décomposer en différents étapes :

- Construction d'un processus statistique que l'on appelle jeu,
- Attribution d'un score numérique à une certaine réalisation du jeu,
- Calcul d'une moyenne de ces scores et d'une dispersion statistique (écart type) permettant d'estimer la précision des résultats.

Une histoire commence par la naissance de la particule (émission à partir d'une source) et se termine par sa mort (absorption ou fuite) [43].

3.3 Variables aléatoires

Pour appliquer la méthode Monte-Carlo, on génère des nombres aléatoires de différentes manières :

- Tables de nombres aléatoires établies à partir de certains phénomènes physiques (roulette),
- Génération de nombre aléatoires : cette méthode fait appel aux ordinateurs. Les nombres obtenus doivent constituer une série non reproductible, mais le test de non reproductibilité est difficile à réaliser. De plus, le stockage des résultats au cours du calcul, encombre la mémoire de l'ordinateur pour contourner ces difficultés, on utilise actuellement des nombre pseudo aléatoires.
- Les nombres pseudo aléatoires différents des nombres aléatoires par le fait que lorsque le premier est arbitrairement choisi, toute la suite est complètement déterminée et reproductible. par cette effet, on peut appliquer des tests de qualité et vérifier le programme dans lequel ils sont utilisés. Une des formules les plus utilisées pour engendrer des nombres pseudo aléatoires à distribution uniforme, est :

$$X_i = aX_{i-1} + c \pmod{m}$$

Cependant, la périodicité de la séquence limite la validité du générateur de variable aléatoire. On a donc intérêt à ce que cette période soit très grande. pour cela, on prend $c = 0$ et $m = 2^N$ ou N est généralement de l'ordre de 30 ou 40.

Les nombres obtenus ont une distribution uniforme. pour obtenir ces nombres dans l'intervalle $[0, 1]$, on divise les X_i par $(m - 1)$ et on obtient la relation d'échantillonnage suivante :

$$\epsilon_i = \frac{X_i}{m-1} = \frac{a}{m-1} X_{i-1}, \epsilon_i \in [0, 1]$$

3.4 Présentation de l'outil de simulation GEANT4

Le code Geant4 (GEometry ANd Tracking) est un outil de simulation Monte-Carlo, développé par la communauté de physique des hautes énergies au CERN (Centre Européen pour la Recherche Nucléaire) qui sert à déterminer par calculs numériques le comportement d'un détecteur, le passage des particules à travers la matière ainsi que des interactions qui en résultent. Il offre la possibilité d'étudier plusieurs aspects d'une expérience : géométrie du système, matériaux utilisés, particules et processus physiques mis en jeu, génération des particules primaires, suivi des particules au travers des matériaux, réponse du détecteur, visualisation du détecteur et des interactions.

GEANT4 a été utilisé dans un vaste panel d'applications : expériences de physique des particules, de physique nucléaire, d'astrophysique et de physique médicale.

3.5 Architecture générale du code Geant4

Le code GEANT se présente sous la forme d'une bibliothèque de données et d'outils que l'utilisateur peut assembler ensemble selon ses besoins spécifiques (object-oriented technology). La dernière version est écrite en C++ au lieu du Fortran. Il est très complet en ce qui concerne les types de particules qui sont suivies : photons, électrons, hadrons et ions [48].

La figure 3.1 montre l'architecture minimale que doit posséder un programme GEANT4 pour fonctionner correctement. Chacun des modules de Geant4 a un rôle bien spécifique (Fig. 3.2) :

1. *Run* : c'est une collection d'événements produits dans des conditions identiques, de tels sorts qu'à l'intérieur d'un run, l'utilisateur ne peut pas changer la géométrie des détecteurs et les réglages des processus physiques. Au démarrage du run, la géométrie est optimisée pour la navigation et les sections efficaces sont calculées en fonction des matériaux dans le dispositif simulé et les coupures de suivi à basse énergie sont définies. La classe G4Run représente un run.

2. *Event* (événement) : Au début du traitement, un événement contient les particules primaires (émises par un générateur, par un "particle gun", ...). Elles sont poussées vers une pile (stack). Pendant le traitement, chaque particule est récupérée sur la pile et suivie. Quand la pile est vide, le traitement de l'événement s'arrête. La classe *G4Event* représente un événement.
3. *Track* (trace) : contient un ensemble de fonctionnalités liées à la vie de la particule ainsi qu'au découpage de la trajectoire en un ensemble de steps. Ce module est utilisé par les processus, il est perdu si la particule sort de l'environnement "World". La classe *G4Track* représente une track.
4. *Step* (pas) : considéré comme unité de base de la simulation (pas), cette classe est associée à *G4Step*. Chaque pas est représenté par deux points, un pré et un post-step. Dans un pas on collecte les informations relatives aux processus physiques (énergies perdue, temps écoulé, ...). A l'interface de deux matériaux, le post-step appartient au volume suivant. Cette dernière caractéristique permet de simuler des processus tels que la réfraction et la radiation de transmission.

Pour réaliser une simulation, il faut définir la géométrie du détecteur et les processus physiques mis en jeu, générer des événements primaires. Il est possible de réaliser des simulations avec un minimum de ces trois classes. Les autres classes sont opérationnelles.

3.5.1 Description de la géométrie

Cela se fait dans la classe "*G4VUserDetectorConstruction*". De telle sorte qu'on utilise les modules Matériaux et Géométrie de Geant4. Cela consiste à définir des matériaux, puis des volumes. Chacun des volumes doit être rempli d'un matériau, puis on doit lui assigner des propriétés physiques et finir par le placer.

Trois classes sont dédiées à la nature des matériaux : *G4Isotope*, *G4Element* et *G4Material*

Définition des matériaux

Un matériau est constitué d'un ou plusieurs éléments qui peuvent avoir plusieurs isotopes. De manière à refléter cette réalité, le GEANT4 offre la possibilité de définir directement un matériau ou bien de le construire à partir des éléments qui le constituent :

- *Les éléments* : les éléments peuvent être définis en utilisant des propriétés atomiques, à savoir le numéro atomique et la masse molaire. il faut en plus spécifier un nom et un symbole pour chaque élément, ce qui va permettre de l'utiliser ensuite pour construire des matériaux. Exemple : Hydrogène de symbole H, de numéro atomique 1 et de masse molaire 1,01 g/mol.

```
z=1.; G4double a = 1.01*g/mole;
```

```
G4Element*elH = new G4Element ("Hydrogen", symbol="H", z, a);
```

- *Les matériaux* : pour définir un matériau, il faut le construire à partir d'un ensemble d'éléments. donc il s'agit d'une molécule auquel cas il faut au préalable avoir défini chacun des éléments présents dans la molécule et préciser le nombre d'atomes pour chaque élément ou par leurs fractions en masse.

Exemple : L'air qui contient 79 % d'azote, 21 % d'oxygène avec une densité 1.290 mg.cm³.

```
G4double density = 1.290*mg/cm3;
```

```
G4Material*air = new G4Material ("Air", density, ncomp=2);
```

```
G4doublefracMass;
```

```
air->AddElement(elN,fracMass=79.0*perCent);
```

```
air->AddElement(elO, fracMass=21.0*perCent);
```

La NIST (National Institute of Standards) fournit une base de données détaillée des propriétés des matériaux [48], qui ont été décrits en Annexe B.

Création des volumes La description de la géométrie du système à simuler nécessite la détermination des dimensions et même les formes du détecteur. GEANT 4 considère trois sortes de volume : solide, logique et physique [48].

1. *Volume solide* : il sert à préciser la forme géométrique du volume ainsi que ses dimensions. Les solides peuvent être combinés en utilisant les opérations booléennes telles que G4UnionSolid, G4SubtractionSolid et G4IntersectionSolid. Le résultat d'une opération booléenne devient un solide appliqué sur des géométries de base.
2. *Volume logique* : le volume logique sert à attribuer des propriétés physiques au volume solide précédemment créé. Il s'agit de la nature du matériau constituant le volume, le champ magnétique ou électrique appliqué à ce volume, la sensibilité...

Un volume logique peut être placé plusieurs fois dans un volume mère. La relation mère-fille est une information entre `G4LogicalVolume`.

3. *Volume physique* : le volume physique est une représentation d'une zone expérimentale qui doit être obligatoirement défini et qu'il doit contenir tous les autres volumes. Le premier volume physique que l'on place s'appelle le "World". Celui-ci doit être placé sans aucune translation ni rotation. C'est ce volume qui sert de repère. Tous les autres volumes sont contenus dans le World. Lorsque l'on insère un volume dans un autre, on dit que le volume contenu est le volume fille et l'autre le volume mère. L'imbrication des petits volumes (fille) dans d'autres volumes (mère) doit se faire en évitant les chevauchements. Les opérations de translation, de rotation et de positionnement sont déclarées dans ce volume.

3.5.2 Définition des particules et des processus physiques

1. *G4VUserPrimaryGeneratorAction* : Une classe qui contient les informations nécessaires à la génération des particules primaires comme le type de particule à générer, la position initiale de la particule primaire, son énergie ou le module de son impulsion, la direction de l'impulsion de particule primaire (angle solide dans lequel elle est émise), le nombre de particules primaires à générer pendant le run, ainsi que la taille de la source (ponctuelle ou étendue).

Il y a aussi la possibilité non plus de définir les particules comme mono-énergétiques mais suivant une loi de puissance, ou bien une loi en température comme le corps noir, ou encore une exponentielle. De même, GEANT4 permet de simuler directement des filiations radioactives comme dans le cas de la série de l'uranium et du thorium.

2. *G4VUserPhysicsList* : qui contient la description de la physique (particules, des processus et modèles physiques affectés à chaque particule, etc..).

3.5.3 Le suivi des particules

A chaque processus physique le long de la trajectoire d'une particule, la simulation génère un élément de type `G4Step` qui contient l'information sur la position de la particule, l'énergie déposée, le type d'interaction. On peut voir une représentation du parcours d'une particule sous

forme de step sur la figure 3.3. Lorsque les particules interagissent dans la couche du détecteur, qui est de type `G4VSensitiveDetector`, les informations sur l'interaction sont sauvegardées dans un élément `G4THitsCollection`. Cet élément contient tout l'historique des interactions dans le détecteur et sera primordial pour effectuer la distribution de l'énergie. La simulation répète le même mécanisme jusqu'à ce que la particule initiale ait déposé toute son énergie ou soit sortie des limites de la simulation, ainsi que pour les particules secondaires générées lors des interactions. L'énergie déposée à chaque pas est sommée pour avoir l'énergie totale déposée par la particule, de même que la distance parcourue par la particule dans le détecteur [43, 48].

Chaque point (en jaune) représente un pas effectué par la particule dans le détecteur. Un pas est créé chaque fois qu'une particule subit une interaction sur sa trajectoire.

3.6 Traitement et analyse des résultats avec la session ROOT

ROOT (Racine) est une plateforme "orientée objet" développée au sein du CERN (Centre Européen des Recherches Nucléaire). A l'origine elle était conçue pour l'analyse des données relatives à la physique des hautes énergies et contient plusieurs outils spécifiques à ce champ. ROOT est écrite en C++, elle offre une plateforme basée sur des classes représentant des couches d'abstraction communicante avec les ressources de l'ordinateur. Il fournit aussi la possibilité de visualiser les données par le biais d'histogrammes, de graphiques en deux et en trois dimensions et de faire du lissage de courbes. Root permet aussi à l'utilisateur d'implémenter une interface graphique avec des boutons et des fenêtres pour lancer des applications.

3.7 Modèle utilisé pour la simulation de la dose

Cette partie est réalisée pour faire une visualisation pour les résultats obtenus par les mesures selon le modèle proposé ci-dessous et qui représente une pièce de dimensions de $4m \times 4m \times 2.8m$ et de densité liée au matériau considéré.

La simulation consiste à modéliser la dose absorbée due aux rayonnements γ des radioéléments suivants : ^{226}Ra , ^{232}Th et du ^{40}K .

Avec la simulation du modèle (Tab. 3.1), on peut visualiser la contribution de chaque mur

dans la dose finale. La modélisation est opérée par GEANT4 qui permet un maillage de la pièce. Selon les différents axes (x, y, z) , le long des murs, la dose est relevée dans différents points positionnés à 10 cm l'un de l'autre dans les deux plans et à 5 cm selon l'axe des z . Pour obtenir cette distribution, on a considéré des pièces construites uniquement avec de béton.

Le béton a une masse volumique apparente de $2.564 \text{ (g.cm}^{-3}\text{)}$. L'activité de radium-équivalent obtenue est de $67.838 \text{ Bq.kg}^{-1}$. La multiplication de cette valeur par la masse de la pièce donne une activité totale de 389.618 KBq . Pour la modélisation par GEANT4, cette activité est le taux d'émission des photons considéré pour la simulation.

Le tableau suivant représente les différents modèles utilisés pour la simulation et le calcul dosimétrique [47] :

TAB. 3.1: Modèle utilisé pour la simulation de la dose.

Sources d'exposition	E(mSv/y)		
	^{226}Ra	^{232}Th	^{40}K
<i>Plancher,plafond et murs(ensemble)</i>	0.67	1.10	0.08
Plancheretmurs (plafond en bois)	0.24	0.78	0.057
Plancher (maisonenbois)etplancherenbéton.	0.24	0.28	0.020

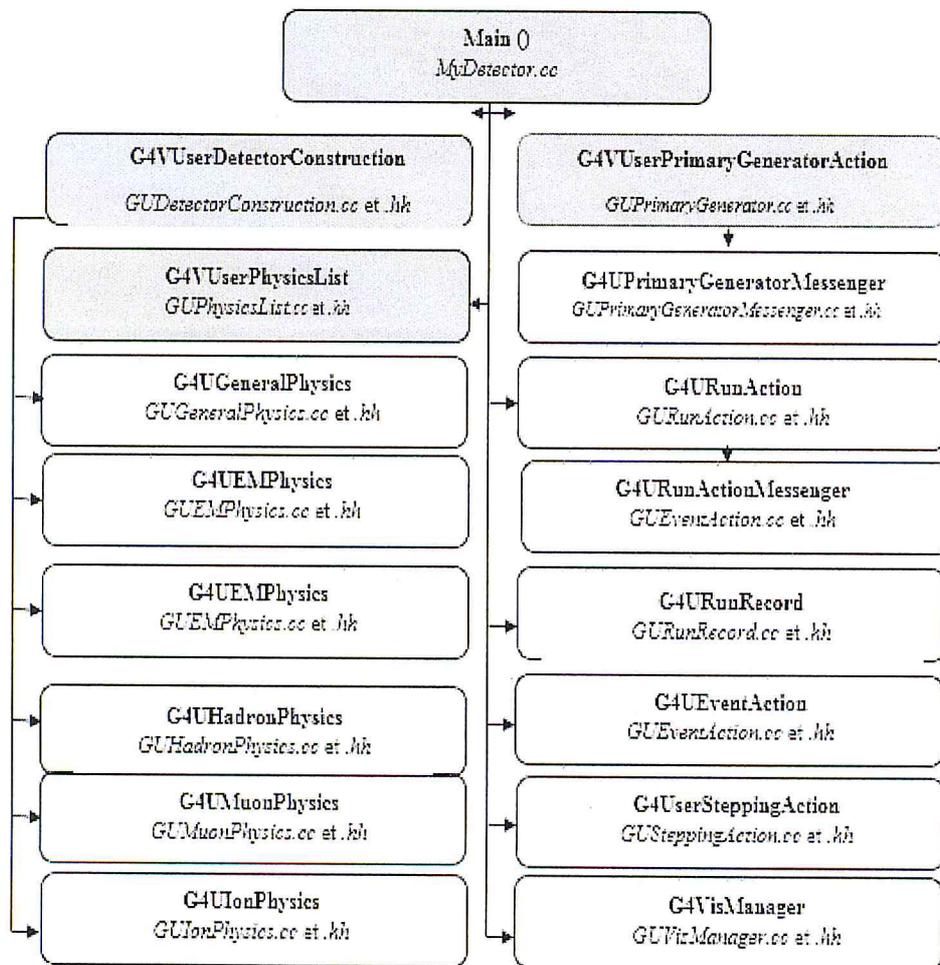


FIG. 3.1: Architecture d'un code de simulation dans Geant4. Dans ce diagramme, chaque bloc correspond à une classe (en gras le nom générique, en italique le nom donné par l'utilisateur). Seules les 4 classes en gris sont obligatoires, les autres sont optionnelles.

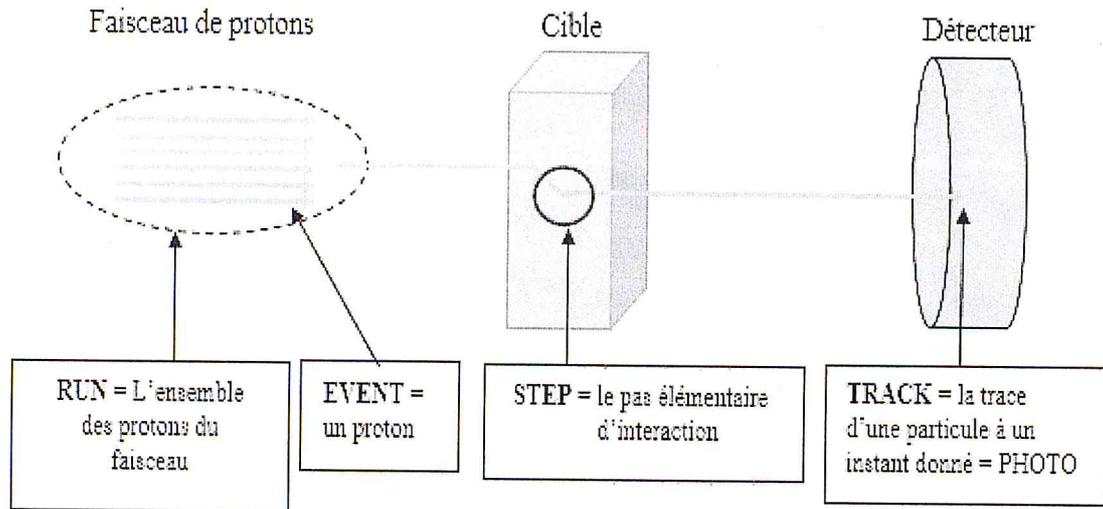


FIG. 3.2: Fonctionnement de Geant4 pour une expérience de physique.

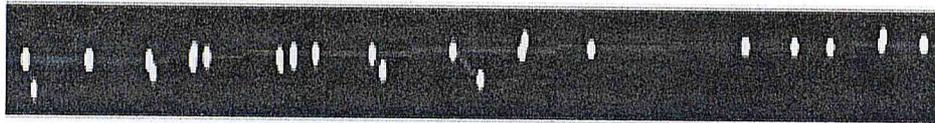


FIG. 3.3: Le pas des particules dans GEANT 4.

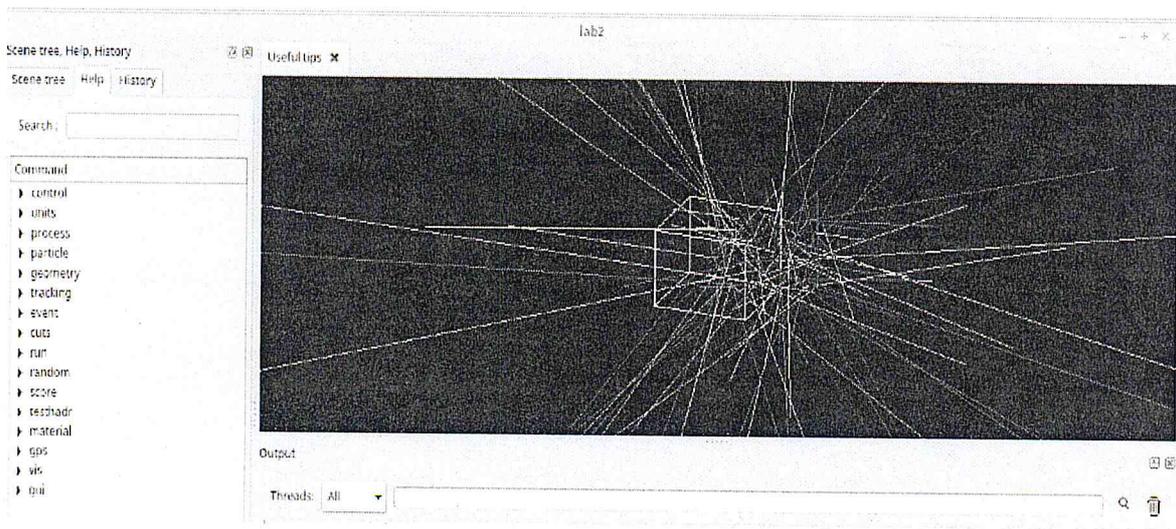
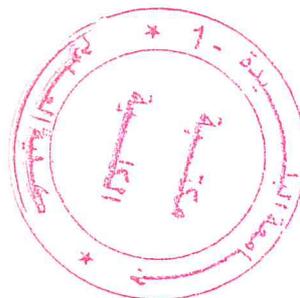


FIG. 3.4: Simulation selon le modèle local.

Chapitre 4

Résultats et Discussion



4.1 La résolution en fonction de la tension de polarisation d'un scintillateur

L'alimentation haute tension est un élément indispensable, il a pour but d'accélérer les électrons issus de l'interaction des photons avec le matériau du détecteur. Le choix de la tension de polarisation est basée sur les conditions suivantes : d'abord, elle doit être réglée par une tension imposée par le détecteur pour avoir une bonne résolution.

L'étude expérimentale de la résolution en fonction de la haute tension du détecteur à scintillation utilisé (Tableau 4.1) a permis donc de déterminer que la tension de polarisation de ce dernier est de 700 V.

La résolution d'un détecteur est caractérisée par la largeur à mi-hauteur du pic obtenu. Pour un rayonnement donné [37, 47], et pour une mesure précise de l'énergie d'un rayonnement, la bonne résolution d'un détecteur lors d'une expérience, peut être influencée par plusieurs facteurs : la résolution intrinsèque du détecteur, la chaîne électronique de détection, la cinématique des noyaux produits par réactions d'ions lourds et notamment l'effet Doppler [30, 44].

TAB. 4.1: La résolution en fonction de la haute tension.

Haute tension (V)	600	650	700	750	800
Résolution	7.7	7.62	7.06	9.96	14

La résolution totale peut donc s'écrire sous la forme suivante :

$$(FWHM)^2 = (FWHM)_{intrinsic}^2 + (FWHM)_{electronique}^2 + (FWHM)_{Doppler}^2 + \dots$$

Expérimentalement, on peut aussi déterminer la résolution du détecteur en pourcentage en divisant FWHM par la valeur de l'énergie du rayonnement E_0 (figure 4.1) :

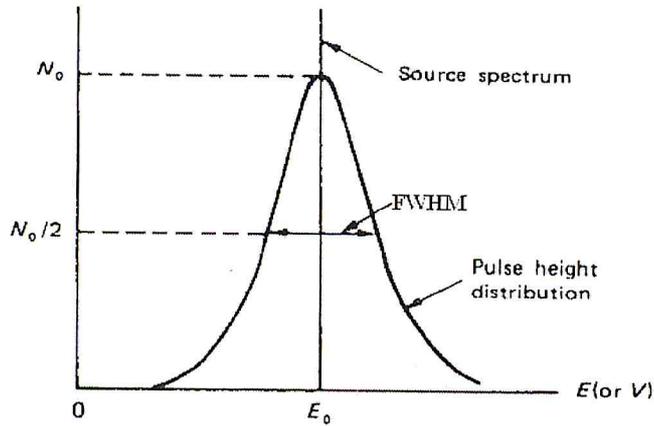


FIG. 4.1: La résolution d'un détecteur à scintillation.

$$R(\%) = \frac{FWHM}{E_0} \times 100$$

Enfin, une autre expression définit la largeur à mi-hauteur des pics gaussiens est également utilisée pour la simulation des spectre [45, 46] à savoir :

$$FWHM = a + b\sqrt{E} + cE^2$$

En revanche, les coefficients a , b et c ont été calculés par le logiciel "Mathematica" : $a = -88.7888 \text{ KeV}$, $b = 8.57634$ et $c = 0.000558254$.

La fonction $f(E)$ est aussi une fonction gaussienne, qui nous permet de déterminer la largeur à la mi-hauteur de chaque pic (fonction gain) quel que soit l'énergie de photon incident.

$$f(E) = Ce^{-\left(\frac{2\sqrt{\ln 2}(E-E_0)^2}{FWHM}\right)}$$

TAB. 4.2: Les sources radioactives utilisées en laboratoire pour la calibration en énergie pour la chaîne de spectrométrie gamma.

Source	E(KeV)	A ₀ (μ Ci)	Date de fabrication	T($\frac{1}{2}$)ans
⁶⁰ Co	1332	2	18/03/1982	5.3
	1773			
¹³⁷ Cs	661	9	25/03/1982	30.1

où

E est l'énergie à la mi-hauteur, E_0 est l'énergie du pic et C la constant de normalisation.

4.2 Analyse par spectrométrie gamma

L'analyse d'un échantillon par spectrométrie gamma donne la naissance à un spectre : un 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 des caractéristiques des pics :

1. 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.
2. 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 de l'échantillon ($Bq.kg^{-1}$).

La chaîne de la spectroscopie gamma utilisée pour l'analyse qualitative et quantitative est présentée par la figure 4.2.

4.2.1 Etalonnage en énergie

Pour établir la relation entre les numéros des canaux de l'analyseur et les énergies connus des photons (chapitre 2), nous utilisons les deux sources de calibration : le cobalt et le césium, dont l'activité et les rayonnements gamma émis sont connus (Annexe A).

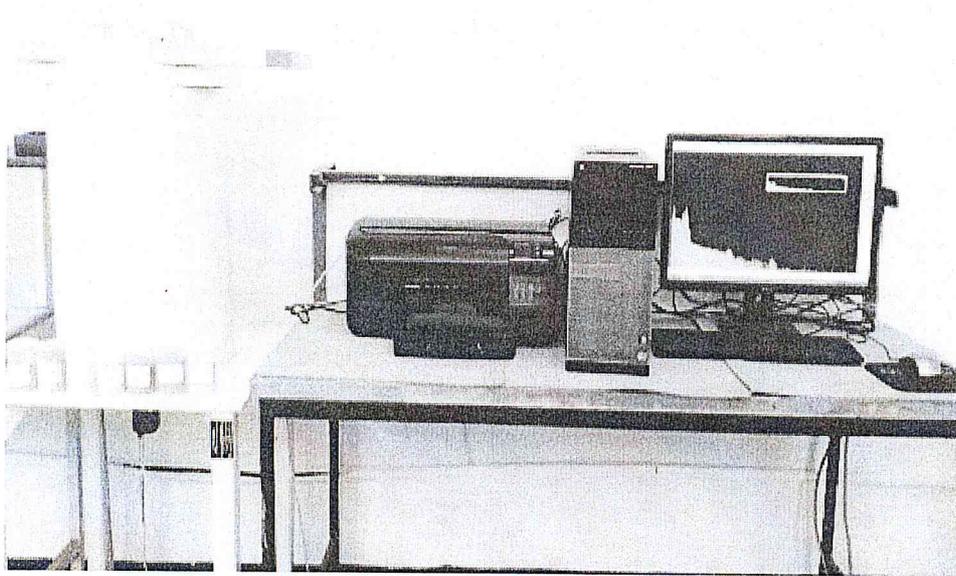


FIG. 4.2: Chaîne de spectroscopie gamma.

Cet étalonnage permet d'établir la relation entre les numéros des canaux de l'analyseur et l'énergie connue des photons. Généralement cette opération est accomplie avec le logiciel "*Gamma vision*".

L'enregistrement des valeurs des énergies se fait à l'aide de ce logiciel d'après les images suivante (figure 4.3) :

La droite de calibration en énergie de la chaîne de mesure est donnée par la figure 4.4.

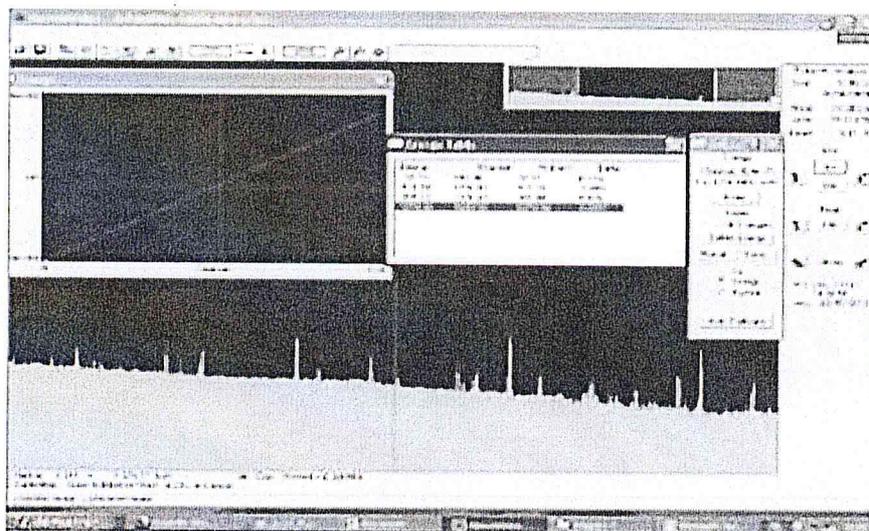
Les valeurs obtenues après l'étalonnage montrent que l'écart entre l'énergie de référence et l'énergie trouvée est inférieure à $\pm 0.5 \text{ KeV}$ ce qui prouve que cet étalonnage a été validé.

4.2.2 Etalonnage en efficacité

La calibration en efficacité de la chaîne de mesure est faite à partir du calcul de l'efficacité absolue de chaque rayonnement gamma émis de la source utilisée (chapitre 2), tel que l'activité de la source est calculée à partir de la formule suivante :

$$A(t) = A_0 \cdot e^{-\left(\frac{\ln 2}{T_{1/2}}(t_d)\right)}$$

où

FIG. 4.3: Rayonnements gamma de ^{60}Co et ^{137}Cs avec la courbe de la calibration de l'énergie.

TAB. 4.3: Efficacité de détection en fonction de l'énergie.

E (KeV)	122	244	344	779	964	1408
$S_{Nette} \pm \sigma_S$	434655±787	105947±579	307032±810	66426±639	53912±563	73172±440
I(%)	28.586	7.583	26.54	12.942	14.605	21.005
ε_{abs} (%)	2.1380	1.9654	1.6279	0.7230	0.5194	0.4900

t_d : temps de décroissance depuis la date de fabrication de la source jusqu'au jour de mesure,

$T_{\frac{1}{2}}$: demi-vie de la source d' ^{152}Eu .

En effet, l'efficacité absolue est calculée à l'aide de l'équation (2.4). La figure 4.5 et le tableau 4.3 montrent la courbe de l'efficacité absolue d'une source ponctuelle d' ^{152}Eu et les valeurs obtenues respectivement.

La courbe d'étalonnage de l'efficacité de détection du détecteur utilisé est tracée par "Origine 9.0".

Le traçage de la courbe $\varepsilon_{abs} = f(E_\gamma)$ suivante va servir au calcul de l'efficacité de chaque radioélément présent dans l'échantillon par un ajustement des points expérimentaux, et donc au calcul de son activité :

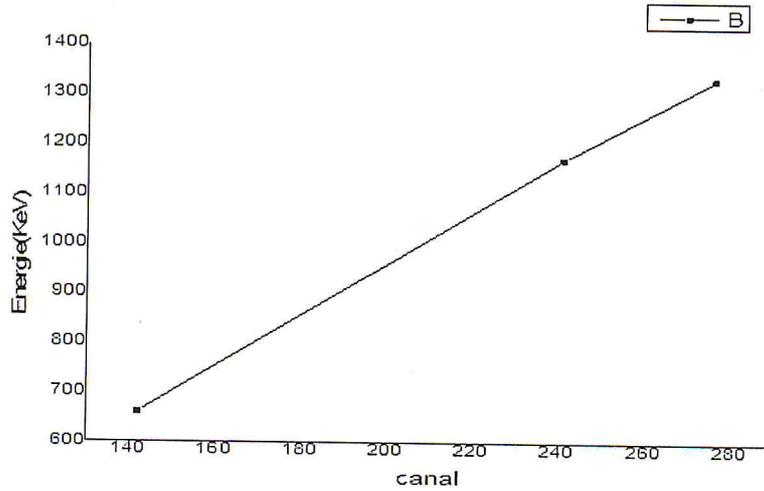


FIG. 4.4: La droite de la calibration en énergie de la chaîne de mesure.

$$\varepsilon_{abs} = 0.0225398 - 8.66793 \times 10^{-7} E - 7.0751 \times 10^{-8} E^2 + 7.82841 \times 10^{-11} E^3 - 2.4090 \times 10^{-14} E^4$$

En effet, connaissant l'énergie du radionucléide en question on peut déduire la valeur de son efficacité de détection par un passage d'une source ponctuelle vers une source étendue par la relation (2.4).

Les deux valeurs de Ω_e et de Ω_p sont calculées par un étalonnage semi-expérimentale (équation 2.2). Sachant que la distance entre le détecteur et la source ou l'échantillon est égale à 8.9 cm, et le diamètre du cristal de notre détecteur est égale à 7.62 cm et celui de l'échantillon égale 5.4 cm.

Donc, en appliquant la formule de Ω_{abs} on obtient :

$$\Omega_e = 6.21 \text{ Steradian}$$

et

$$\Omega_p = 0.52 \text{ Steradian}$$

Le terme correctif ($\frac{\Omega_e}{\Omega_p} \varepsilon_p$) de l'efficacité dans l'équation (2.5) est obtenu en appliquant l'équation (2.4), afin de vérifier la linéarité du détecteur, ainsi que l'étalonnage en efficacité qui per-

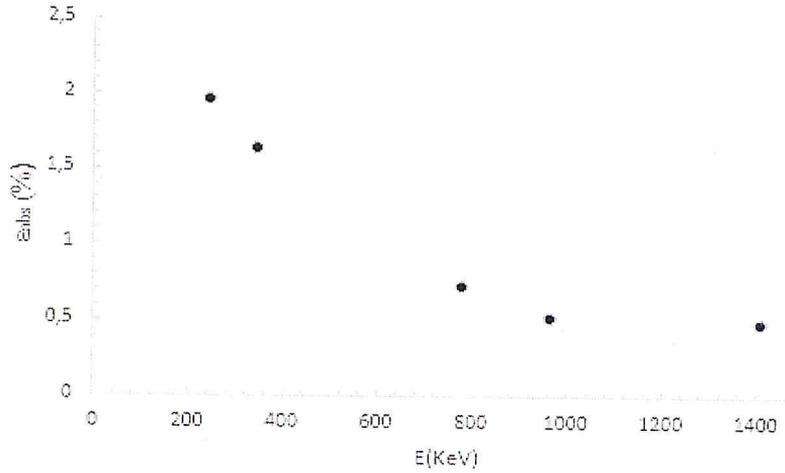


FIG. 4.5: Courbe d'efficacité en fonction de l'énergie du détecteur à scintillation NaI(Tl) à une distance 8.9cm entre la source et le détecteur avec un temps de comptage de 1800s.

TAB. 4.4: Raies gamma observées dans le spectre de bruit de fond pour 28 heures de comptage.

Energie(KeV)	Élément	I (%)	Origine	$A_{spécifique} (Bq.Kg^{-1})$	Moyenne
1764.5	^{214}Bi	15.28	Chaîne de ^{238}U	3.547	3.744
1120.3	^{214}Bi	14.907		3.941	
2614.6	^{208}Tl	35.85	Chaîne de ^{238}Th	3.870	2.932
583.1	^{208}Tl	30.6		0.914	
1460.8	^{40}K	10.66	^{40}K	66.105	66.105

met de remonter à l'activité des radionucléides existants dans les échantillons à analyser. Mais avant de faire une analyse quantitative il nous faut commencer par une analyse qualitative des spectres.

4.3 Analyse qualitative des spectres

D'abord, on commence par la mesure du bruit de fond. c'est un spectre sans absorbeur (porte échantillons vide) est mesuré pendant 24 heures, et il est présenté par la figure ci-dessous. Le spectre de bruit de fond représente le spectre d'énergie absorbé par le détecteur, il est provoqué par l'électronique de mesure. Soit il est ambiant provenant des matériaux environnant de cristal à iodure de sodium et des rayonnements cosmiques soit il appartient à la matrice vierge qui est dans notre cas sans échantillon.

Le tableau 4.4 représente les raies gamma observées dans le spectre de bruit de fond.

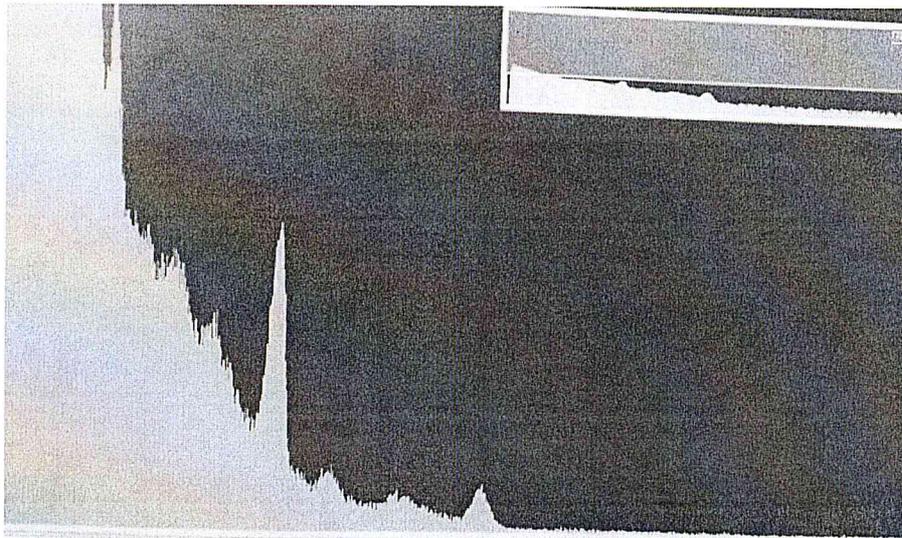
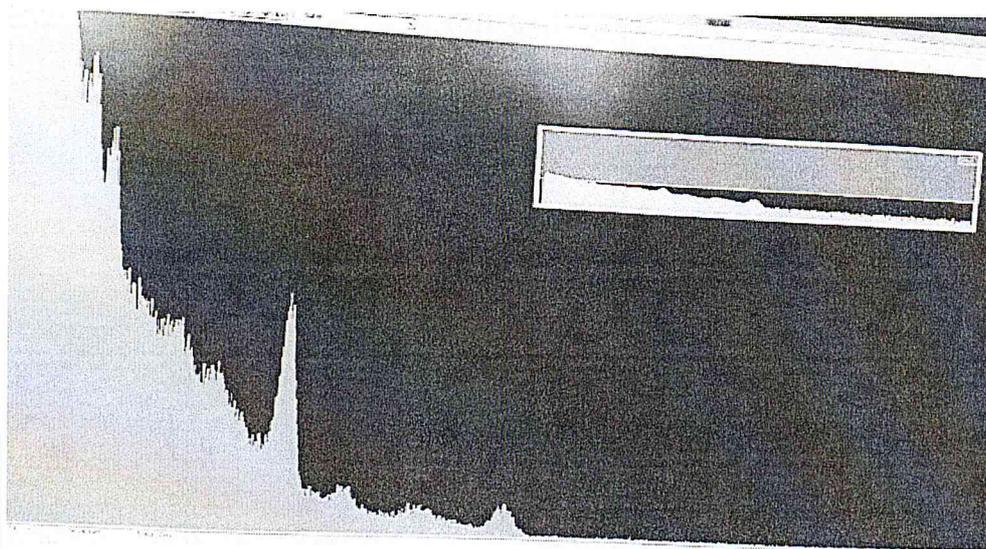


FIG. 4.6: Spectre de bruit de fond.

Puis pour un autre temps de comptage, on mesure les échantillons l'un après l'autre après d'avoir un équilibre séculaire dans tous les échantillons. Ils sont placés à une distance égale à 0.1 cm du détecteur. Le temps de comptage varie de 8 jusqu'à 16 heures. Les figures (4.7, 4.8, 4.9, 4.10, 4.11, 4.12 et 4.13) présentent les spectres obtenus par la spectrométrie γ pour les sept échantillons de matériaux de construction :

FIG. 4.7: Spectre des rayonnements γ émis par l'échantillon de brique.

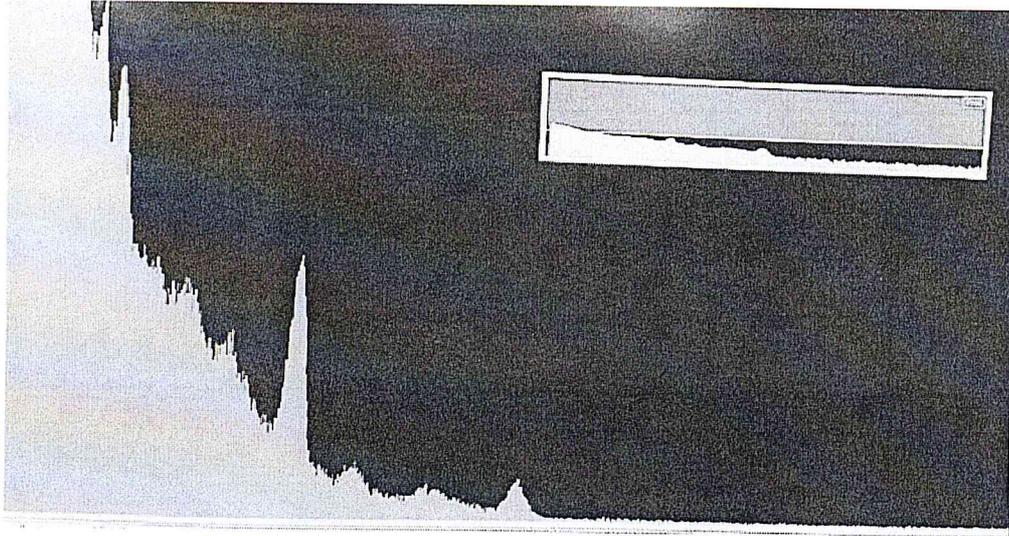


FIG. 4.8: Spectre des rayonnements γ émis par l'échantillon de Tuf.

TAB. 4.5: Echantillon de Brique.

Energie(KeV)	Élément	I (%)	Origine	$S_1 \pm \sigma_1$
1764.5	^{214}Bi	15.28	Chaîne de ^{238}U	3386 ± 123
1120.3	^{214}Bi	14.907		1763 ± 387
2614.6	^{208}Tl	35.85	Chaîne de ^{238}Th	3386 ± 192
583.1	^{208}Tl	30.6		3457 ± 256
1460.8	^{40}K	10.66	Primordial	20759 ± 274

Pour une analyse qualitative, les tableaux de 4.5 à 4.11 représentent les raies gamma observées dans les spectres des échantillons, avec $S_1, S_2, S_3, S_4, S_5, S_6$ et S_7 l'aire nette des pics photoélectriques.

D'après les résultats des tableaux de 4.5 jusqu'à 4.11, on remarque que l'analyse des échantillons de matériaux de construction révèle la présence de la radioactivité naturelle due au ^{226}Ra ,

TAB. 4.6: Echantillon de Tuf.

Energie(KeV)	Élément	I (%)	Origine	$S_2 \pm \sigma_2$
1764.5	^{214}Bi	15.28	Chaîne de ^{238}U	1508 ± 367
1120.3	^{214}Bi	14.907		1732.5 ± 416
2614.6	^{208}Tl	35.85	Chaîne de ^{238}Th	3366.5 ± 203
583.1	^{208}Tl	30.6		5910.5 ± 503
1460.8	^{40}K	10.66	Primordial	18710 ± 541

TAB. 4.7: Echantillon de Sable.

Energie(KeV)	Élément	I (%)	Origine	$S_3 \pm \sigma_3$
1764.5	^{214}Bi	15.28	Chaîne de ^{238}U	1525 ± 248
1120.3	^{214}Bi	14.907		791 ± 416
2614.6	^{208}Tl	35.85	Chaîne de ^{238}Th	3389 ± 203
583.1	^{208}Tl	30.6		4182.5 ± 503
1460.8	^{40}K	10.66	Primordial	17701 ± 541

TAB. 4.8: Echantillon de Béton ordinaire.

Energie(KeV)	Élément	I (%)	Origine	$S_4 \pm \sigma_4$
1764.5	^{214}Bi	15.28	Chaîne de ^{238}U	608 ± 121
1120.3	^{214}Bi	14.907		ND
2614.6	^{208}Tl	35.85	Chaîne de ^{238}Th	2091 ± 105
583.1	^{208}Tl	30.6		2818 ± 235
1460.8	^{40}K	10.66	Primordial	11975 ± 320

TAB. 4.9: Echantillon de Ciment.

Energie(KeV)	Élément	I (%)	Origine	$S_5 \pm \sigma_5$
1764.5	^{214}Bi	15.28	Chaîne de ^{238}U	1192.5 ∓ 217
1120.3	^{214}Bi	14.907		1120.5 ∓ 339
2614.6	^{208}Tl	35.85	Chaîne de ^{238}Th	2193 ∓ 150
583.1	^{208}Tl	30.6		3082 ∓ 324
1460.8	^{40}K	10.66	Primordial	11973 ∓ 391

TAB. 4.10: Echantillon de Gravier.

Energie(KeV)	Élément	I (%)	Origine	$S_6 \pm \sigma_6$
1764.5	^{214}Bi	15.28	Chaîne de ^{238}U	1095 ± 204
1120.3	^{214}Bi	14.907		1137 ± 195
2614.6	^{208}Tl	35.85	Chaîne de ^{238}Th	2117 ± 157
583.1	^{208}Tl	30.6		2809.5 ± 333
1460.8	^{40}K	10.66	Primordial	11267 ± 292

TAB. 4.11: Echantillon de Carrelage.

Energie(KeV)	Élément	I (%)	Origine	$S_7 \pm \sigma_7$
1764.5	^{214}Bi	15.28	Chaîne de ^{238}U	1598.5 ± 256
1120.3	^{214}Bi	14.907		2221 ± 472
2614.6	^{208}Tl	35.85	Chaîne de ^{238}Th	3521 ± 194
583.1	^{208}Tl	30.6		3675 ± 410
1460.8	^{40}K	10.66	Primordial	16346 ± 511

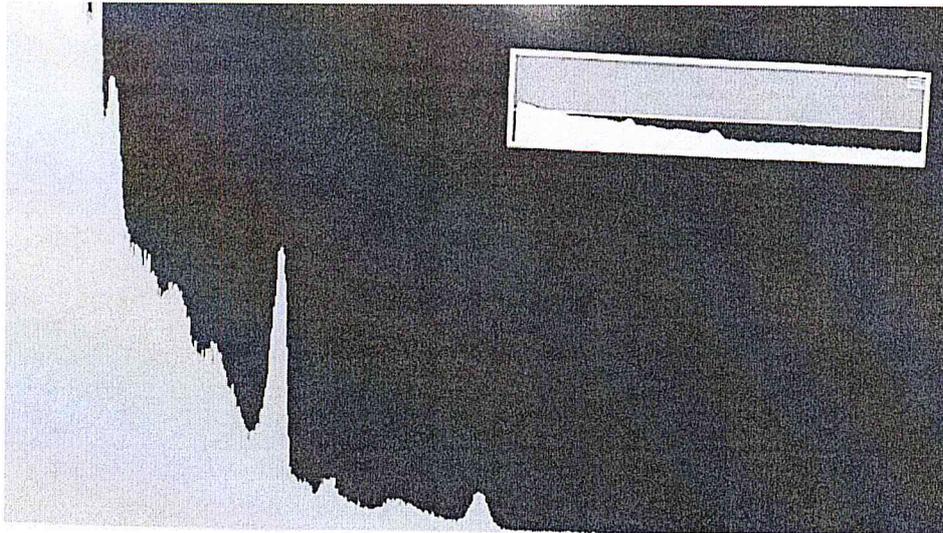


FIG. 4.9: Spectre des rayonnements γ émis par l'échantillon du Sable.

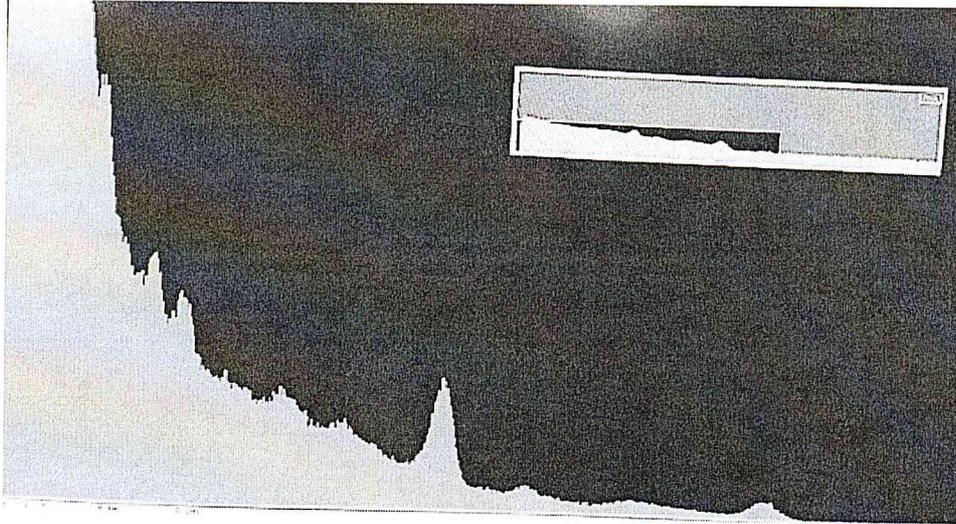
^{232}Th et ^{40}K dans ces matériaux. En effet, connaissant la radioactivité de ces trois éléments on peut remonter à la dose absorbée (KERMA). Pour ce faire la correction de l'effet de l'auto-absorption est effectuée en parallèle avec le calcul de l'activité comme on pourra le voir le long de cette partie.

4.4 Correction de coefficient d'atténuation linéaire

La correction de l'auto-absorption dans les matériaux de construction est effectuée à l'aide de la méthode de transmission. De telle sorte, que la détermination de ce facteur avant le calcul de l'activité spécifique, nous permette d'avoir une précision dans toute la procédure de mesure des paramètres dosimétrique. Pour ce faire, nous avons élaboré un dispositif expérimentale basé sur la méthode de transmission (Figure 4.14) pour le calcul des coefficients de correction.

La table 4.12 représente les coefficients d'atténuation linéaire pour les différents matériaux de construction en fonction de l'énergie.

On remarque dans la table 4.12 que certaine pics sont indétectables (ND) à cause de la résolution du détecteur qui est de l'ordre de 10% , et en plus l'existence de chevauchements des

FIG. 4.10: Spectre des rayonnements γ émis par l'échantillon du Béton ordinaire.

TAB. 4.12: Les coefficients d'atténuation linéique des échantillons en fonction de l'énergie.

E(KeV)	122	344	778	976	1112	1408
$\mu_{Brique} (cm^{-1})$	0.0776	0.0685	0.0495	ND	0.0476	0.0417
$\mu_{Sable} (cm^{-1})$	0.0937	0.0826	0.0674	ND	0.0527	0.0475
$\mu_{Gravier} (cm^{-1})$	0.0758	0.0643	0.0426	ND	ND	0.0426
$\mu_{Béton} (cm^{-1})$	0.0819	0.0691	ND	0.0675	0.0543	0.0379
$\mu_{Carrelage} (cm^{-1})$	0.0976	0.0758	ND	0.0658	0.0631	0.0183
$\mu_{Tuf} (cm^{-1})$	0.0807	0.0711	0.0569	ND	0.0558	0.0327
$\mu_{ciment} (cm^{-1})$	0.0892	0.0654	ND	0.065	0.0460	0.0458

pics. Pour les autres pics, on remarque que si on fixe la densité de chaque matériau le facteur d'atténuation décroît quand l'énergie augmente, ce qui est en accord avec la théorie; en effet, le coefficient d'atténuation des photons gamma est inversement proportionnel à l'énergie de photon incident, ce qui implique que l'atténuation des photons gamma de faible énergie est plus importante à celle des photons de haute énergie. Par contre, si on fixe l'énergie on observe que le coefficient d'atténuation varie d'un matériau à un autre selon la densité de chaque milieu. En effet, et selon les résultats du tableau 4.12 on constate que le carrelage est le milieu le plus absorbant, par contre le gravier est le moins absorbant.

En revanche, pour appliquer ces corrections, il faut tenir compte les énergies et le nombre des raies choisies. Pour cela, un ajustement des points expérimentaux va servir au calcul des facteurs de corrections pour chaque radioélément présent dans chaque échantillon et donc la

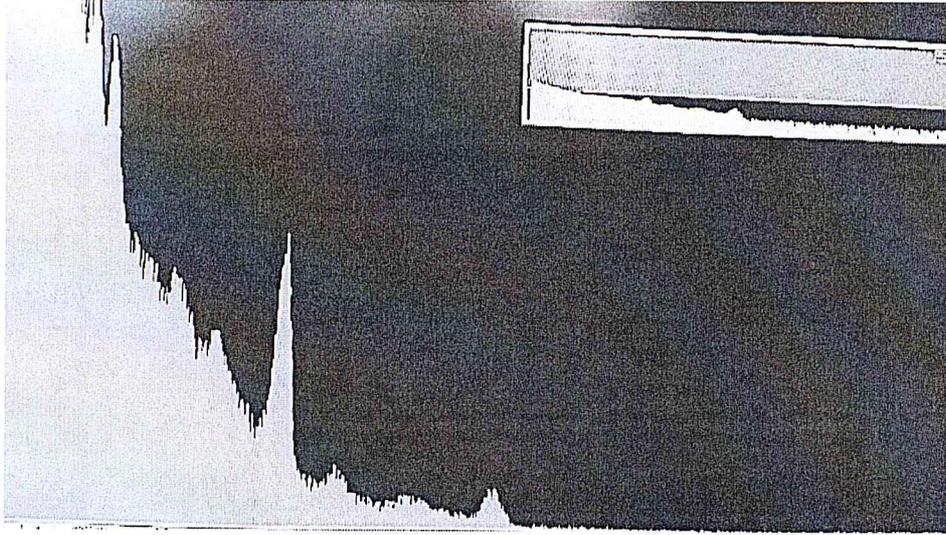


FIG. 4.11: Spectre des rayonnements γ émis par l'échantillon du Ciment.

correction de l'activité. Les courbes 4.15, 4.16, 4.17, 4.18, 4.19, 4.20 et 4.21 représentent la variation du coefficient d'atténuation en fonction de l'énergie.

Les courbes obtenues expérimentalement sont ajustées par des équations qui expriment la variation de coefficient d'atténuation linéique en fonction de l'énergie.

$$\mu_{Brique}(E) = 0.086219 - 6.87186 \times 10^{-5}E + 3.79391 \times 10^{-8}E^2 - 8.04152 \times 10^{-12}E^3$$

$$\mu_{Sable}(E) = 0.0979863 - 3.82408 \times 10^{-5}E - 1.03012 \times 10^{-8}E^2 + 8.81146 \times 10^{-12}E^3$$

$$\mu_{Gravier}(E) = 0.0830671 - 6.21547 \times 10^{-5}E + 2.16972 \times 10^{-8}E^2 + 1.46624 \times 10^{-12}E^3$$

$$\mu_{Tuf}(E) = 0.101573 - 4.62448 \times 10^{-5}E + 1.90823 \times 10^{-8}E^2 - 89.6979 \times 10^{-12}E^3$$

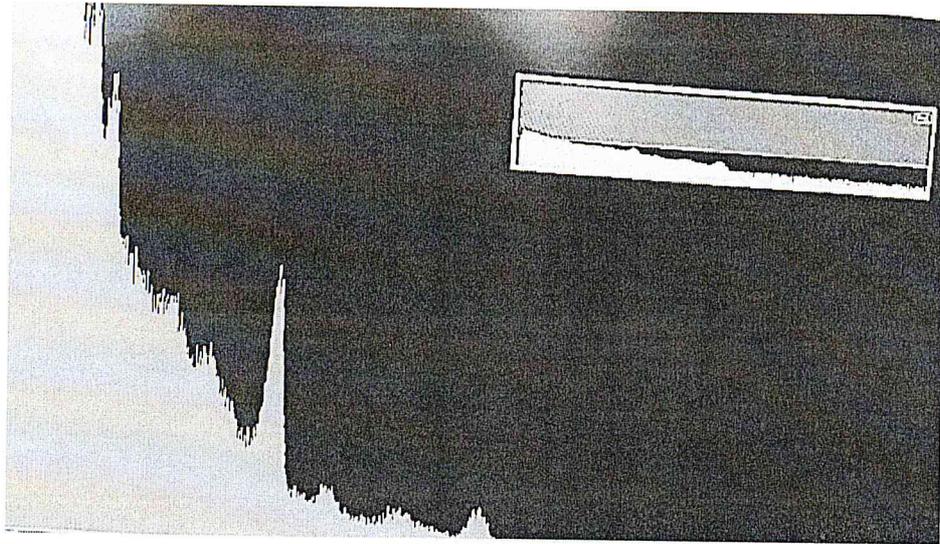


FIG. 4.12: Spectre des rayonnements γ émis par l'échantillon du Gravier.

$$\mu_{\text{Carrlage}}(E) = 0.120686 - 0.000228273E + 3.39914 \times 10^{-7}E^2 - 1.62975 \times 10^{-10}E^3$$

$$\mu_{\text{Ciment}}(E) = 0.108077 - 0.00017324E + 1.59718 \times 10^{-7}E^2 - 4.86662 \times 10^{-11}E^3$$

$$\mu_{\text{Béton}}(E) = 0.0941057 - 0.00011457E + 1.26086 \times 10^{-7}E^2 - 5.18912 \times 10^{-11}E^3$$

La correction de l'auto-absorption de certains radio-isotopes trouvés dans ces échantillons est présentée dans la table 4.13, qui donne la liste des radio-isotopes analysés à savoir : ^{40}K , ^{208}Tl et ^{214}Bi . Tous les échantillons ont été analysés : sable, gravier, béton ordinaire, brique rouge, tuf, calrreage et ciment.

4.5 Dosimétrie des rayonnements γ

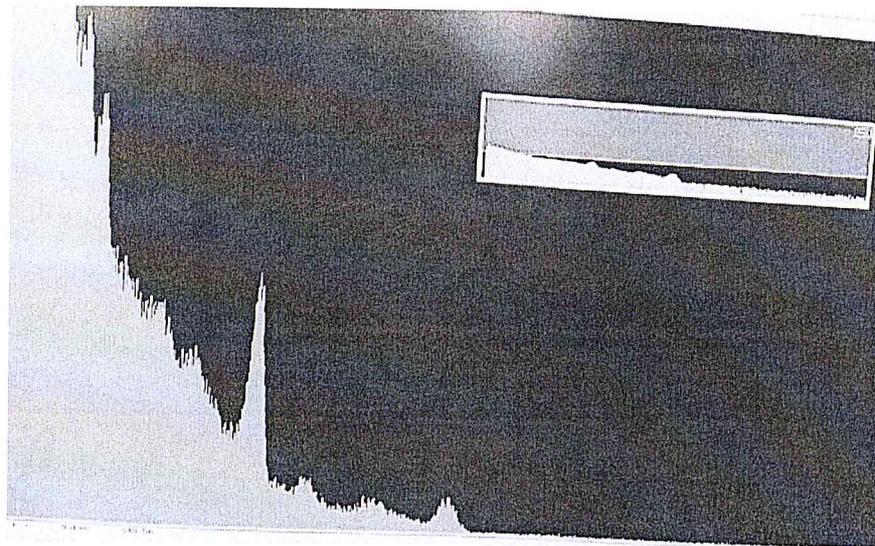


FIG. 4.13: Spectre des rayonnements γ émis par l'échantillon du Carrelage.

TAB. 4.13: Les facteurs de correction de l'auto-absorption des échantillons qui sont obtenus par la méthode de transmission.

Elément	E(KeV)	I(%)	C_{auto}						
			ciment	brique	sable	gravier	tuf	béton	carrelage
^{214}Bi	1764.5	15.28	0.9147	0.8985	0.8795	0.8745	0.9303	0.9434	0.9890
^{214}Bi	1120.3	14.90	0.8815	0.8826	0.8615	0.8893	0.8491	0.8698	0.8439
^{208}Tl	2614.6	35.85	0.9695	0.9404	0.7955	0.7753	0.9784	0.9768	0.9946
^{208}Tl	583.1	30.60	0.8682	0.8573	0.8188	0.8618	0.8077	0.8496	0.8255
^{40}K	1460.8	10.66	0.8860	0.8973	0.8777	0.8883	0.8850	0.9103	0.8776

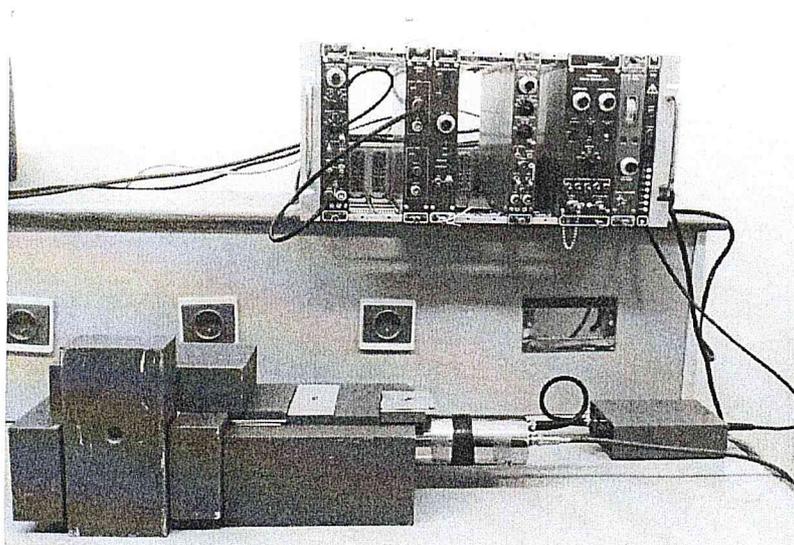


FIG. 4.14: Dispositif expérimental pour la correction de l'effet d'atténuation.

TAB. 4.14: Activités spécifiques en Bq/kg corrigées par les coefficients du tableau 4.13. A1 et A2 sont les activités avant et après la correction de l'effet. .

	^{40}K		^{208}Tl		^{214}Bi	
	$A_1 \pm \sigma_{A_1}$	A_2	$A_1 \pm \sigma_{A_1}$	A_2	$A_1 \pm \sigma_{A_1}$	A_2
Brique	414.84 ± 0.27	466.47	18.51 ± 0.12	26.45	19.26 ± 0.33	25.40
Ciment	376.88 ± 3.23	425.37	17.81 ± 0.14	19.26	25.11 ± 0.03	27.95
Sable	352.04 ± 0.12	401.09	17.23 ± 0.05	19.75	15.54 ± 0.22	24.09
Gravier	329.92 ± 0.46	376.68	17.08 ± 0.05	20.91	25.53 ± 0.33	27.55
Tuf	368.78 ± 0.28	416.69	18.69 ± 0.13	21.03	23.14 ± 1.53	26.07
Béton	329.79 ± 0.17	362.28	17.04 ± 4.35	17.31	13.52 ± 0.31	15.18
Carrelage	319.19 ± 0.29	363.69	15.26 ± 5.34	16.35	22.84 ± 0.37	28.87

Avant d'aborder le calcul de la dosimétrie des rayonnements γ , la correction de l'auto-absorption est prise en compte. La table 4.14 récapitule les activités des radioéléments avant et après les corrections. La formule du calcul de l'activité est rappelée ci-dessous en injectant le facteur de correction de l'effet de l'auto-absorption :

$$A_{\text{specific}} = \frac{\frac{N_{s,n}}{t_c} - \frac{N_{BF}}{t_{BF}}}{I_{\gamma} \epsilon_e m C_{\text{auto}}}$$

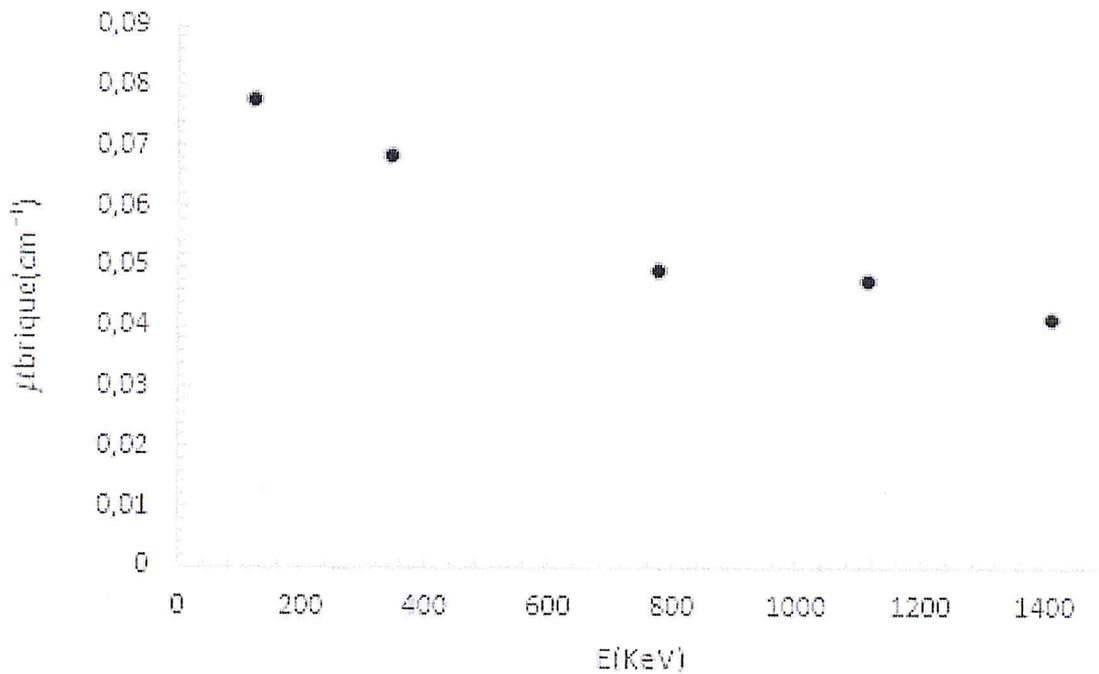


FIG. 4.15: La variation de coefficient d'atténuation de brique en fonction de l'énergie.

TAB. 4.15: Valeurs mesurées du radium-équivalent.

Echantillon	ρ ($g.cm^{-3}$)	\mathcal{A}_{Ra}	\mathcal{A}_{Th}	\mathcal{A}_K	$Ra_{\text{éq}}$
Ciment	3.030	27.950	19.261	425.378	88.248
Brique	2.558	25.401	26.452	466.474	99.145
Sable	2.530	24.098	19.750	401.093	83.217
Gravier	2.654	27.558	20.910	376.680	86.463
Tuf	2.560	26.077	21.030	416.692	88.256
Béton	2.564	15.180	17.316	362.288	67.838
Carrelage	2.580	28.875	16.354	363.698	80.266

4.6 Radium équivalent

Plusieurs travaux ont été consacrés ces dernières années pour la mesure de radium-équivalent [49, 18]. En utilisant la formule 2.9 du modèle proposé dans le chapitre 2, on trouve les valeurs enregistrées dans le tableau 4.15 avec les notations ci-dessous :

Les valeurs résumées dans la table 4.15 permettent de comparer l'activité spécifique des matériaux de construction contenant du ^{222}Ra , du ^{232}Th et du ^{40}K . Leurs activités varient de 15.180 à 28.875 $Bq.Kg^{-1}$, de 17.316 à 26.452 et de 362.288 à 466.474 $Bq.Kg^{-1}$, respectivement. Comme on peut le voir dans ce même tableau les variations considérables du radium-équivalent

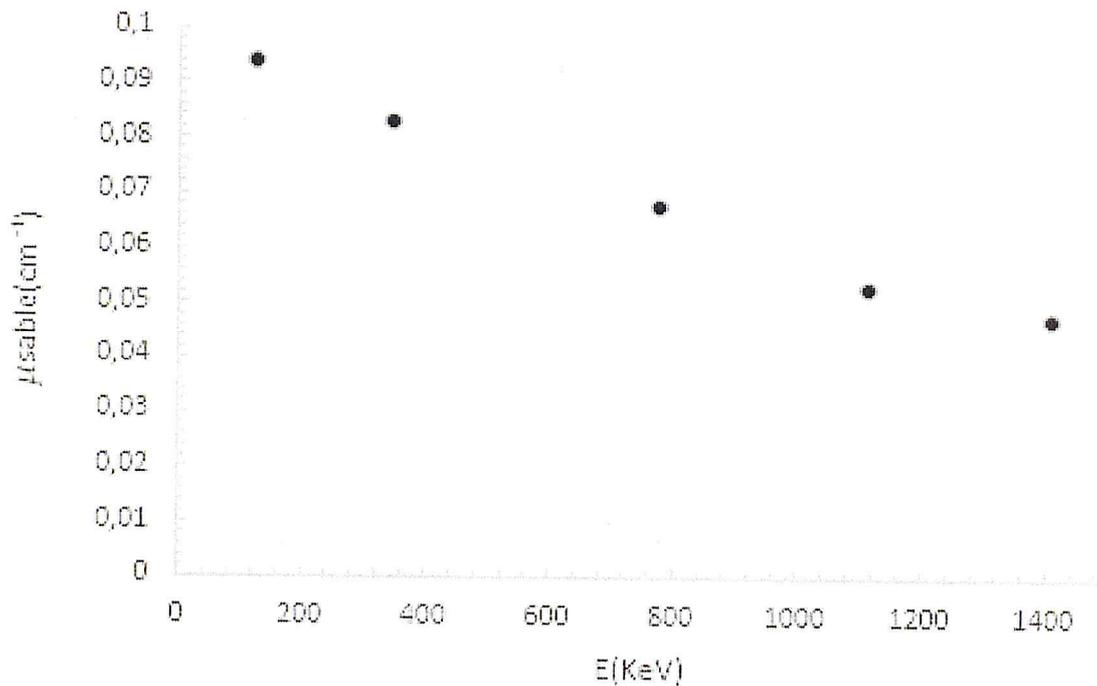


FIG. 4.16: La variation de coefficient d'atténuation de sable en fonction de l'énergie.

$Ra_{\text{éq}}$ pour les différents matériaux sont inférieures à la valeur maximale de 370 Bq.Kg^{-1} (voire chapitre 2).

La figure (4.22) représente les différentes valeurs de radium équivalent pour tous types de matériaux de construction. D'après la figure (4.22) nous pouvons remarquer que tous les matériaux possèdent des valeurs acceptables qui sont comprises entre 67.838 et $99.145 \text{ Bq.Kg}^{-1}$. Par comparaison avec d'autres pays (Table 4.16) pour quelques matériaux de construction (ciment, brique, sable, gravier et béton), nous remarquons que les échantillons étudiés présentent des activités de $Ra_{\text{éq}}$ comparables à celle des pays cités et ils restent toujours au-dessous de la limite (370 Bq.Kg^{-1}). Sauf pour l'échantillon de brique qui a une valeur inférieure à celui d'Australie, Malaisie et de l'Allemagne.

(*) : Le présent travail.

(**) : Pas d'information.

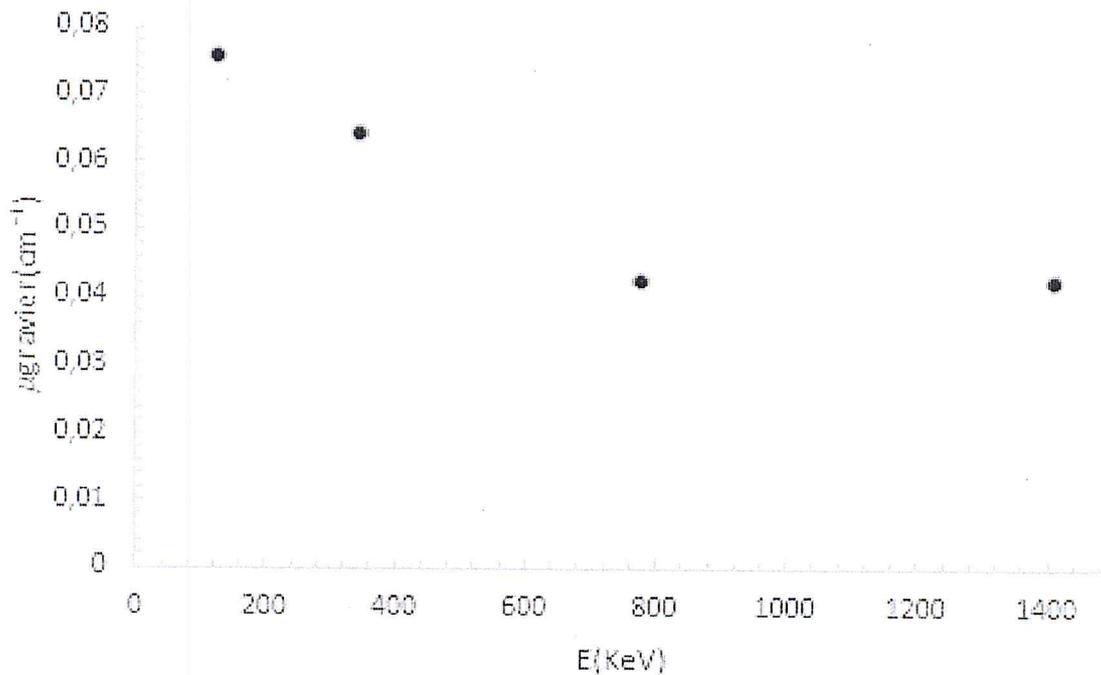


FIG. 4.17: La variation de coefficient d'atténuation de gravier en fonction de l'énergie.

4.7 Indice du risque interne et externe

Pour maintenir la dose d'exposition externe et interne due aux matériaux de construction à une valeur inférieure ou égale à 1 mSv.ans^{-1} (voir chapitre 2), les indices de risque externe et interne ont été calculés à partir d'un modèle qui considère des murs d'épaisseur finie, sans fenêtres et sans portes. En effet, l'indice de risque externe est due aux radiations gamma issues des différents radionucléides, alors que l'exposition interne est due à l'inhalation de radon ^{222}Rn qui issue de la chaîne de désintégration de l'uranium présent dans les matériaux de construction.

En se basant sur les formules (2.11) et (2.12). Les indices obtenus (figure 4.23) sont inférieures à l'unité de la norme :

Les valeurs de risques externes et internes sont présentées dans un histogramme (Figure 4.23) qui relie la variation de ces deux indices en fonction de chaque type de matériau construction. Ce qui concerne les indices de risque externe nous avons trouvé des valeurs différentes d'un échantillon à un autre, où l'émetteur majeur est le béton et la brique, alors que la valeur minimale d'émission de rayonnement gamma est due à l'échantillon de carrelage.

Pour les indices de risque interne, on remarque que toutes les valeurs qui correspondent à

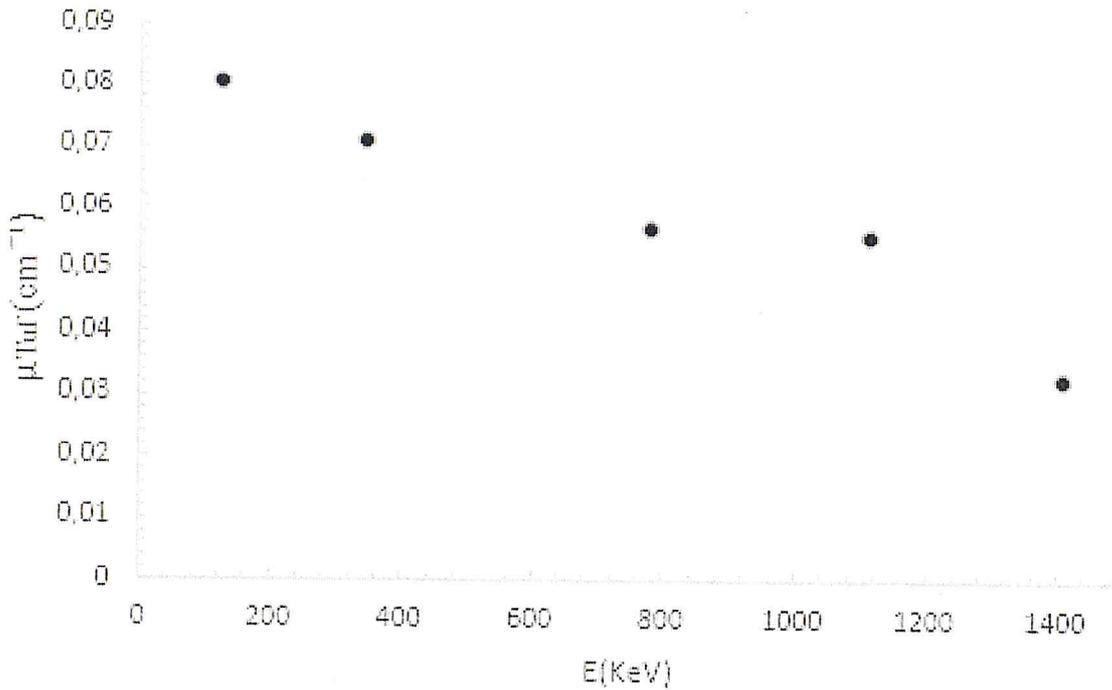


FIG. 4.18: La variation de coefficient d'atténuation de tuf en fonction de l'énergie.

tous les échantillons sont supérieures aux valeurs de risques interne à cause de l'exposition interne (inhalation) du radon et de ses descendants.

D'après les résultats présentés par figure 4.23, on remarque que la valeur maximale est due à l'échantillon de brique, par contre la valeur minimale correspond à l'échantillon de gravier et de même pour l'échantillon de tuf.

En effet, tous les échantillons présentent des valeurs de risque internes inférieur à 1 et c'est une valeur qui ne peut pas poser un problème de santé.

Par la comparaison de ces résultats (Table 4.17) avec d'autre pays, nous observons que les valeurs de H_{ex} pour le présent travail varient de 0.146 jusqu'à 0.187, alors que les valeurs du Nigeria varient de 0.18 jusqu'à 0.25 pour tous les échantillons à l'exception du béton et le tuf qui n'ont pas été calculés.

D'après les résultats de la table 4.17 et celle la figure 4.23 on constate que les résultats trouvés sont en bon accord avec la littérature.

TAB. 4.16: Comparaison des valeurs de radium équivalent dans les matériaux de constructions avec d'autre pays.

	Ciment	Brique	Sable	Gravier	Tuf	Béton	Carrelage
Le PT(*)	88.248	99.145	83.217	86.463	88.256	67.838	80.266
Algérie	112	190	28	58	—	—	—
Allemane	70	640	59	115	—	—	—
Australie	115	883	70	115	—	—	—
Brésil	—(**)	—	34	—	—	—	—
Nigeria	74	—	91	—	—	—	—
Malaysia	188	895	136	—	—	—	—
Inde	104.7	—	—	—	—	—	—
Italie	92	—	—	—	—	—	—
Cameron	70	—	—	—	—	—	—
Zambie	79	—	—	—	—	—	—

TAB. 4.17: Comparaison des valeurs des indices de risques externes et internes dans les matériaux de constructions avec d'autre pays.

	Présent travail		Nigeria	
	H_{ex}	H_{in}	H_{ex}	H_{in}
Ciment	0.165	0.314	0.21	—
Brique	0.182	0.336	0.25	—
Sable	0.153	0.290	0.20	—
Gravier	0.156	0.308	0.18	—
Tuf	0.162	0.308	—	—
Béton	0.187	0.194	0.21	—
Carrelage	0.146	0.295	—	—

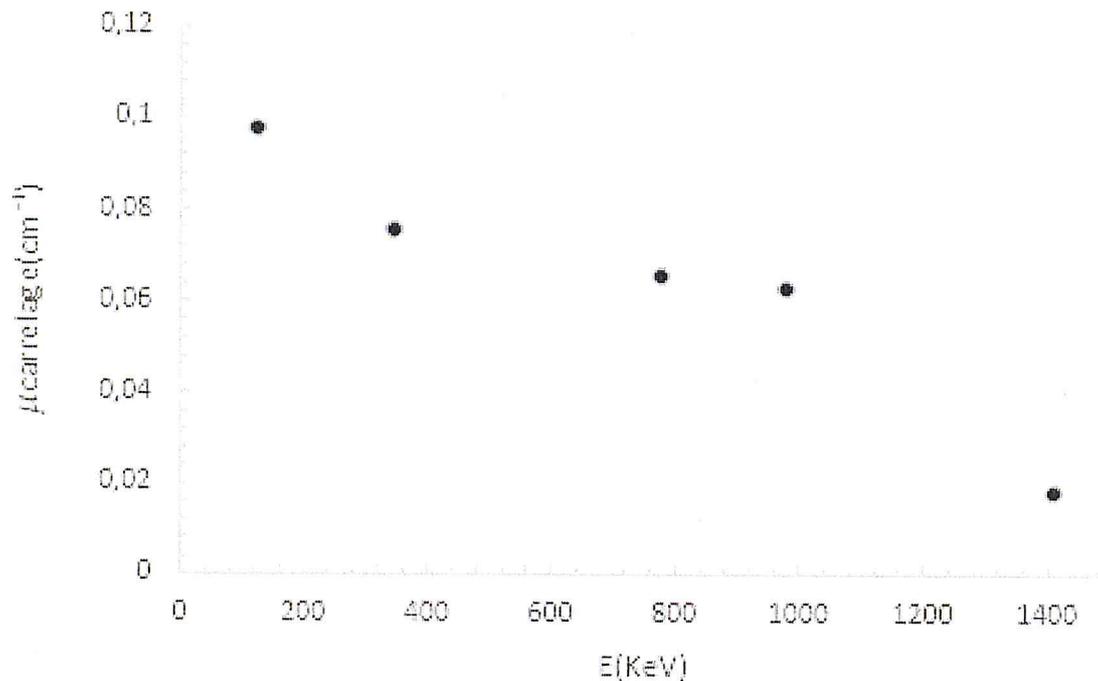


FIG. 4.19: La variation de coefficient d'atténuation de carrelage en fonction de l'énergie.

4.8 La dose absorbée

Elle traduit la quantité d'énergie absorbée localement dans un volume donnée de masse dm . Les valeurs de la dose absorbée à partir des matériaux de construction sont calculées en utilisant la formule (2.12) qui nous permet d'évaluer le taux de dose absorbée dans l'air à 1 m de hauteur du niveau du sol.

Les quantités de cette dernière sont présentées dans un histogramme qui relie la variation de la dose en fonction de chaque type de matériaux analysé.

Selon la figure 4.24, on remarque que les valeurs de dose sont inférieures à la norme imposée par l'UNSCEAR qui est estimée par 55 nGy.h^{-1} . Notons que la dose absorbée ne rend pas en compte des effets biologiques des rayonnements sur les tissus vivants, d'où la nécessité de définir la dose efficace annuelle.

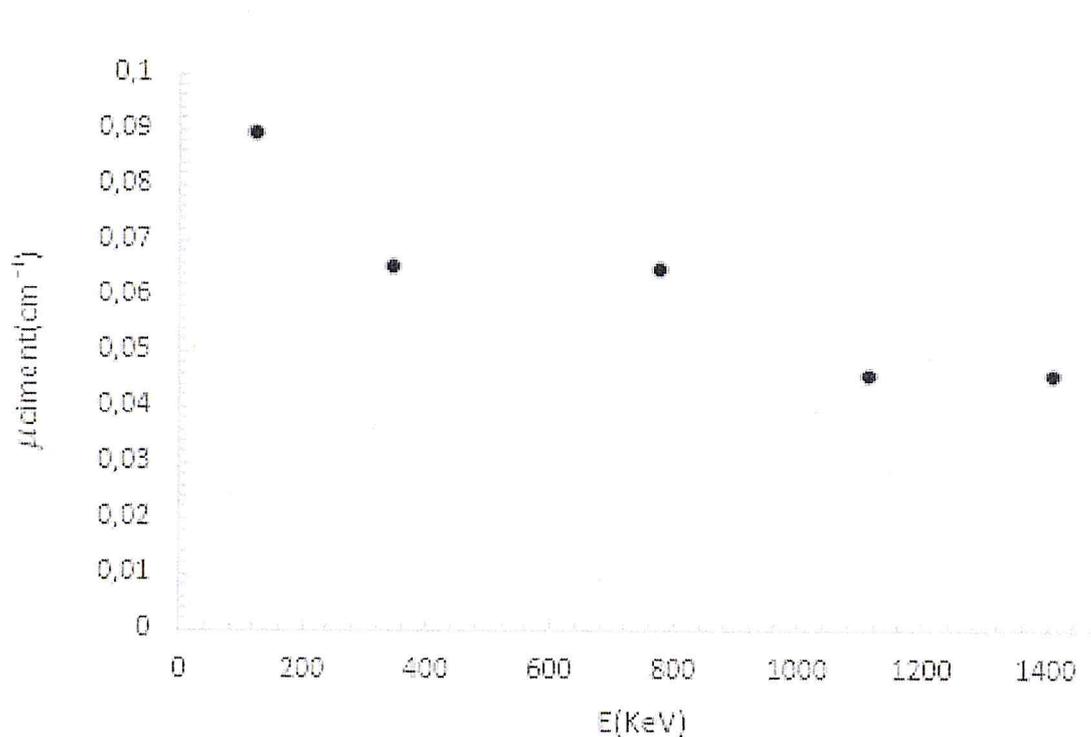


FIG. 4.20: La variation de coefficient d'atténuation de ciment en fonction de l'énergie.

4.9 La dose efficace annuelle

Rappelons que la dose efficace annuelle est un indicateur des effets stochastiques des radiations des rayonnements gamma terrestres en unités de $mSv.ans^{-1}$.

C'est la somme des doses équivalentes pondérées délivrées aux différents tissus et organes du corps où la dose équivalente est la dose absorbée par le tissu ou l'organe, pondérée suivant le type et l'énergie du rayonnement. L'équation générale pour l'équivalent de dose efficace annuelle à partir des rayonnements gamma terrestres extérieurs en unités de mSv est calculée par la formule (2.13). La dose efficace annuelle est calculée pour un bébé, un enfant et pour un adulte selon le modèle proposée (voir chapitre 3).

La table 4.18 résume les coefficients de conversion de la dose absorbée dans l'air à une dose efficace.

Les résultats des doses calculées sont regroupés dans la table 4.19 :

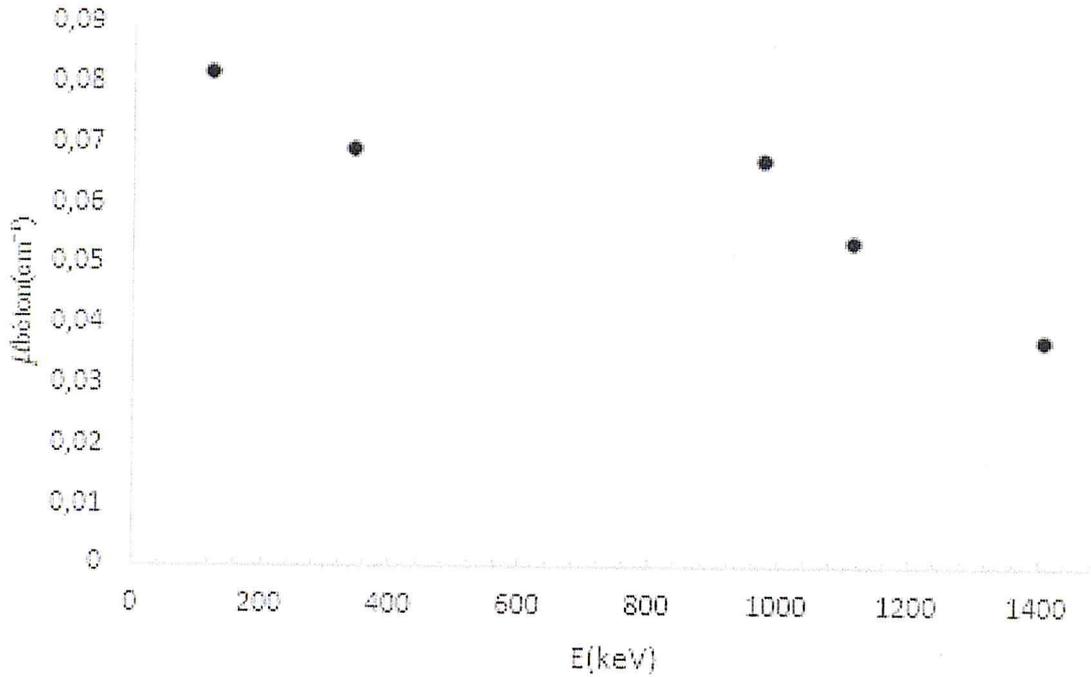


FIG. 4.21: La variation de coefficient d'atténuation de béton en fonction de l'énergie.

TAB. 4.18: Coefficients de conversion du KERMA dans l'air à la dose efficace pour les rayonnements gamma pour un bébé, un enfant et un adulte.

	Dose efficace (Sv.Gy ⁻¹)		
	Bébé	Enfant	Adulte
⁴⁰ K	0.926	0.803	0.709
²³² Th	0.907	0.798	0.695
²³⁸ U	0.899	0.766	0.672
Moyenne	0.91	0.79	0.69

Les valeurs de la dose efficace annuelle sont estimées pour chaque échantillon et représentés dans un histogramme (figure 4.25), d'après les résultats obtenus nous pouvons confirmer que tous les produits de construction algériens étudiés montrent des valeurs inférieures au seuil ; ce qui implique qu'ils sont dans la norme soit pour un bébé, un enfant ou bien pour un adulte.

Les valeurs de dose pour un adulte sont comprises entre 0.158 et 0.232 $mSv.ans^{-1}$. La comparaison de ces valeurs avec ceux d'une autre étude faite sur la dose dans les matériaux de construction (Tableau 4.20), nous permettent de remarquer que les résultats obtenues sont comparables pour le brique, le sable et le ciment, mais concernant le béton les valeurs trouvées dans le cadre de ce travail sont inférieurs à celle du Nigeria .

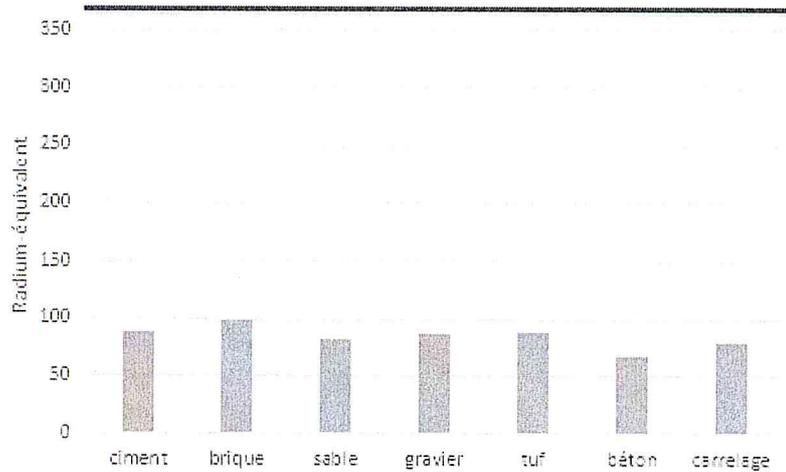


FIG. 4.22: Les valeurs de radium équivalent pour les différents types des matériaux de construction.

TAB. 4.19: Les valeurs de la dose absorbée et de la dose efficace annuelle pour un bébé, un enfant et un adulte.

Matériau	$E (mSv.ans^{-1})$			$D (nGy.h^{-1})$
	Bébé	Enfant	Adulte	Adulte
Ciment	0.270	0.235	0.208	42.285
Brique	0.301	0.262	0.232	47.261
Sable	0.254	0.220	0.195	39.724
Gravier	0.269	0.234	0.207	42.168
Tuf	0.270	0.233	0.207	42.126
Béton	0.208	0.181	0.158	32.558
Carrelage	0.245	0.213	0.188	38.384

Pour le gravier il présente une dose efficace annuelle important par rapport à celle utilisé en Nigeria, mais sa valeur reste toujours dans les normes recommandées $1 mSv.ans^{-1}$.

4.10 Une visualisation de la distribution de dose selon le modèle local

La distribution de la dose dans une pièce avec des dimensions $4m \times 4m \times 2.8m$ et des murs de $20 cm$ (selon le modèle local) d'épaisseur est homogène. En revanche, pour une pièce avec

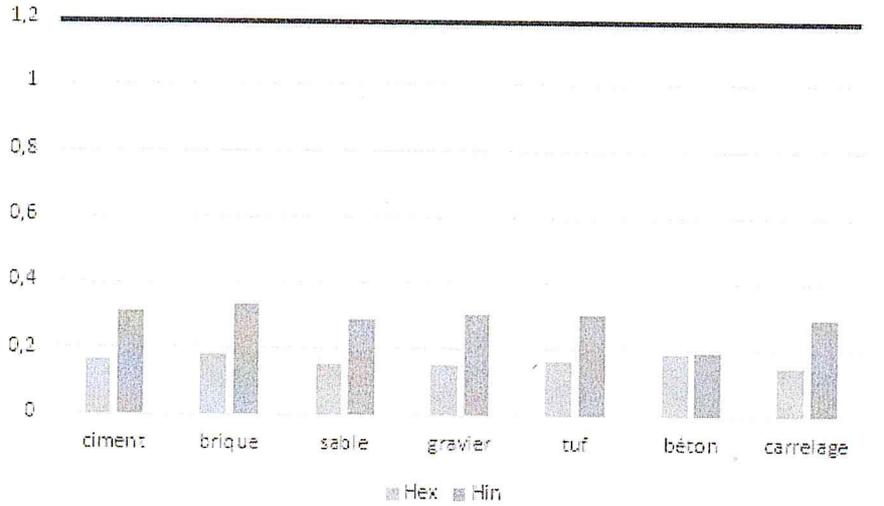


FIG. 4.23: Indices de risque externe et interne calculés selon le modèle.

TAB. 4.20: Comparaison des valeurs de la dose efficace annuelle E (mSv/ans) dans les matériaux de construction pour les autres pays.

Matériau	E (mSv.ans ⁻¹)	
	PT	Nigeria
Ciment	0.208	0.18
Brique	0.232	0.22
Sable	0.195	0.18
Gravier	0.207	0.15
Tuf	0.207	-
Béton	0.158	0.18
Carrelage	0.188	-

des dimensions supérieures, la dose au centre de cette dernière est largement inférieure à la dose enregistrée le long des murs, mais beaucoup plus au niveau des coins (intersection de deux ou bien de trois murs) selon la figure 4.26.

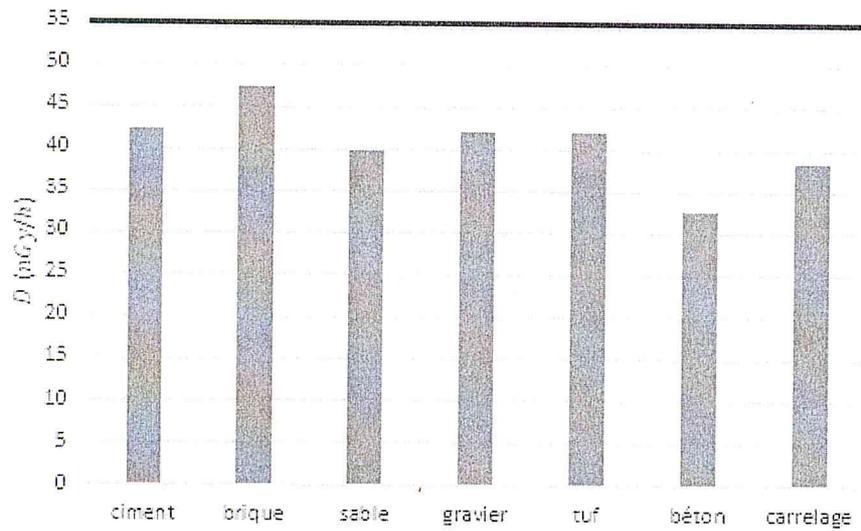


FIG. 4.24: Dose absorbée pour un adulte au-delà de 14 ans.

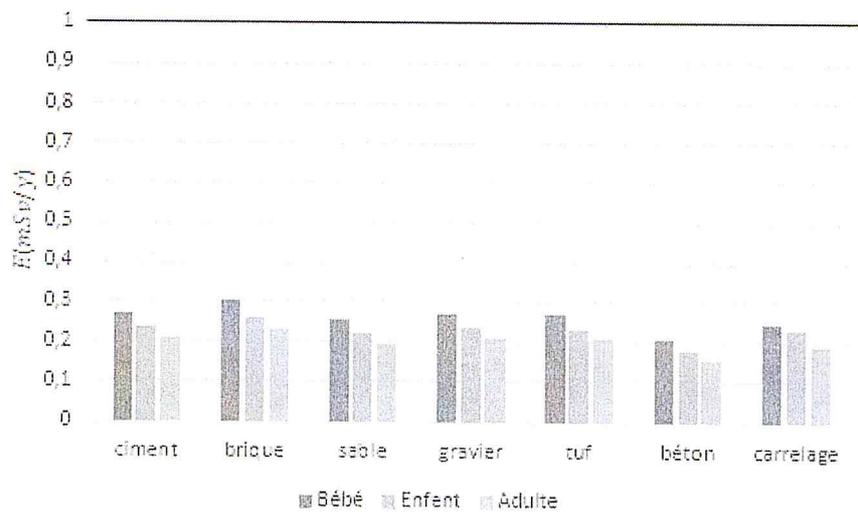


FIG. 4.25: Dose efficace annuelle pour un bébé de 8 semaines, un enfant et un adulte au-delà de 14 ans.

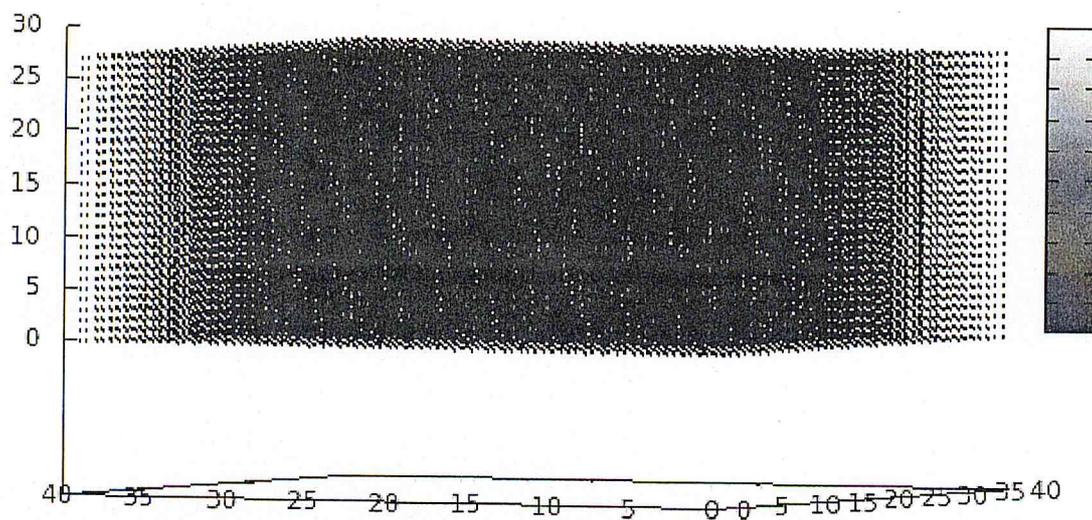


FIG. 4.26: Distribution de dose naturelle à l'intérieur de la salle.

Conclusion générale

Le travail proposé dans ce mémoire porte, sur la mesure de la radioactivité naturelle dans certains matériaux de construction utilisée en Algérie, que ce soit nationaux ou importés. L'objectif est de déterminer qualitativement et quantitativement leur radioactivité en utilisant la spectrométrie gamma, cette dernière est considérée comme étant une technique très puissante pour déterminer l'activité spécifique de chaque radionucléide. L'analyse des sept échantillons a été effectuée au laboratoire lpthirm de l'université Blida1.

Nous avons constaté la présence des radioéléments suivants dans les sept échantillons (brique, sable, ciment, carrelage, béton, tuf et gravier) : la famille de ^{238}U , qui est calculée à partir des rais gamma de ^{214}Bi (1764.5 KeV et 1120.3 KeV), la famille de ^{232}Th qui est calculée à partir des rais gamma de ^{208}Tl (2614.6 KeV et 583.1 KeV), et le ^{40}K à partir de la rais 1460.8 KeV . L'absence des éléments d'origine cosmique est due à leurs faibles concentrations et leurs courtes demi-vies.

L'activité spécifique des matériaux de construction est corrigée par la méthode de transmission qui est basé sur la correction de phénomène de l'auto-absorption des gammas émis. La densité apparente des matériaux est mesurée expérimentalement à l'aide des solvants (Toluène). Les activités spécifiques de ^{238}U , ^{232}Th et de ^{40}K varie avec une valeur moyenne entre 25.019, 20.135 et 401.757 Bq.Kg^{-1} respectivement. Les valeurs obtenues sont comparables à celles des autres pays. Les valeurs des activités de ces radionucléides ne reflètent pas clairement le risque des rayonnements ce qui nous amené a calculer d'autres valeurs comme les activités de radium équivalent, les indices de risque externes et internes (H_{ex} et H_{in}) . Ces valeurs indiquent que nos échantillons ne sont pas des éléments dangereux. Pour un calcul dosimétrique, la dose efficace annelle due à ces matériaux varie entre 0.158 et 0.232 mSv/ans , et qui ne représente en aucun cas, un risque sanitaire pour le public, selon les normes européennes.

La distribution de dose à l'aide de code GEANT4 dans une pièce de dimensions $4\text{m} \times 4\text{m} \times 2.8\text{m}$

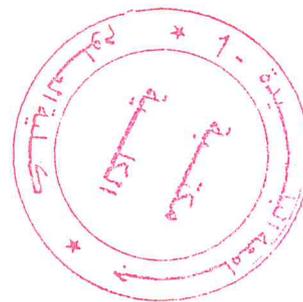
et des murs de 20 *cm* d'épaisseur, est homogène. En revanche, la dose au centre de cette dernière est largement inférieure à la dose enregistrée le long des murs.

Annexe A

Raies d'émission gamma

Le tableau A.1 liste les principales raies γ des sources de calibration utilisées pour caractériser le détecteur NaI(Tl) lors des tests expérimentaux.

Les tableaux A.2, A.3 et A.4 liste les principales raies γ de radioactivité naturelle intervenant dans la désintégration du potassium, thorium et de l'uranium.



TAB. A.1: les principales raies gamma des sources de calibration utilisées pour caractériser le détecteur NaI(Tl) lors des tests expérimentaux.

Nucléide	Demi-vie $T_{\frac{1}{2}}$ (ans)	Energie E_{γ} (KeV)	I_{γ} (%)
^{60}Co	5.3	1773.238	99.85
		1332.502	99.98
^{137}Cs	30.1	661.660	84.99
^{133}Ba	10.7	80.998	34.11
		276.398	7.147
		302.853	18.30
		356.017	61.94
		383.851	8.905
^{152}Eu	13.53	121.7824	28.37
		244.6989	7.53
		344.2811	26.57
		411.126	2.238
		443.965	3.125
		778.903	12.97
		867.390	4.214
		964.055	14.63
		1085.842	10.13
		1089.767	1.731
		1112.087	13.54
1212.970	1.412		
1299.152	1.626		
1408.022	20.85		

TAB. A.2: Principales raies gamma de radioactivité naturelle :potassium, thorium et uranium dans une gamme d'énergie de 46 à 270 KeV .

E(KeV)	Radionucléide	I(%)	Pics associés(KeV)	Origine
46.54	²¹⁰ Pb	4.25	-	²³⁸ U
53.23	²¹⁴ Pb	1.06	295, 351	²³⁸ U
53.44	^{73m} Ge	10.34	-	⁷² Ge (<i>n</i> , γ), ⁷⁴ Ge (<i>n</i> , 2 <i>n</i>)
63.28	²³⁴ Th	4.8	92.58	²³⁸ U
74.82	BiK α_2	27.7	77.11	^{212,214} Pb
74.97	PbK α_1	46.2	72.81	²⁰⁸ Tl
77.11	PbK α_1	46.2	74.82	^{212,214} Pb
84.94	PbK β_1	10.7	74.97	²⁰⁸ Tl
87.30	PbK β_2	3.91	74.97	²⁰⁸ Tl
87.35	BiK β_1	10.7	74.82	^{212,214} Pb
89.78	BiK β_2	3,93	74.82	^{212,214} Pb
89.96	ThK α_2	28.1	93.35	²³⁵ U, ²²⁸ Ac
92.58	²³⁴ Th	5.58	63.28	²³⁸ U
93.35	ThK α_1	45.4	89.96	²³⁵ U, ²²⁸ Ac
105.60	ThK β_1	10.7	93.35	²³⁵ U, ²²⁸ Ac
109.16	²³⁵ U	1.54	185.72	Primordial
112.81	²³⁴ Th	0.28	63.28, 92.58	²³⁸ U
122.32	²²³ Ra	1.192	269.49	²³⁵ U
129.06	²²⁸ Ac	2.42	911.20, 968.97	²³² Th
163.33	²³⁵ U	5.08	185.72	Primordial
174.95	^{71m} Ge	faible	198.39	⁷⁰ Ge (<i>n</i> , γ)
185.72	²³⁵ U	57.2	143.76	Primordial
186.21	²²⁶ Ra	3.55	-	²³⁸ U
205.31	²³⁵ U	5.01	185.72	Primordial
209.26	²²⁸ Ac	3.89	911.20, 968.97	²³² Th
238.63	²¹² Pb	43.6	300.09	²³² Th
242.00	²¹⁴ Pb	7.268	295.22, 351.93	²³⁸ U
269.49	²²³ Ra	13.79	122.32	²³⁵ U
270.24	²²⁸ Ac	3.46	911.20, 968.97	²³² Th

TAB. A.3: Principales raies gamma de radioactivité naturelle :potassium, thorium et uranium dans une gamme d'énergie de 277 à 806 KeV .

E(KeV)	Radionucléide	I(%)	Pics associés(KeV)	Origine
277.37	²⁰⁸ Tl	2.37	583.19, 2614.51	²³² Th
295.22	²¹⁴ Pb	18.50	351.93	²³⁸ U
300.09	²³¹ Pa	3.18	238.63	²³² Th
328.00	²²⁸ Ac	2.95	911.20, 968.97	²³² Th
336.24	^{115m} Cd/ ^{115m} In	45.9	527.90	Activ de Cd
338.32	²²⁸ Ac	11.27	911.20, 968.97	²³² Th
351.93	²¹⁴ Pb	35.60	295.22	²³⁸ U
300.09	²³¹ Pa	3.18	238.63	²³² Th
328.00	²²⁸ Ac	2.95	911.20, 968.97	²³² Th
336.24	^{115m} Cd/ ^{115m} In	45.9	527.90	Activ de Cd
338.32	²²⁸ Ac	11.27	911.20, 968.97	²³² Th
351.93	²¹⁴ Pb	35.60	295.22	²³⁸ U
409.46	²²⁸ Ac	1.92	911.20, 968.97	²³² Th
447.60	⁷ Be	10.44	911.20, 968.97	Cosmic
462.00	²¹⁴ Pb	0.213	295.22, 351.93	²³⁸ U
463.00	²²⁸ Ac	4.40	911.20, 968.97	²³² Th
510.7	²⁰⁸ Tl	6.29	583.19, 2614.51	²³² Th
511.00	Annihilation	-	-	β^+
527.90	¹¹⁵ Cd	27.5	336.2	Activ ¹¹⁴ Cd (n, γ)
570.82	²²⁸ Ac	0.182	911.20, 968.97	²³² Th
583.19	²⁰⁸ Tl	30.6	2614.51	²³² Th
609.31	²¹⁴ Bi	45.49	1120.29, 1764.49	²³⁸ U
661.66	¹³⁷ C	84.99	-	Fission
726.86	²²⁸ Ac	0.62	911.20, 968.97	²³² Th
727.33	²¹² Bi	6.74	1620.74	²³² Th
755.31	²²⁸ Ac	1.00	911.20, 968.97	²³² Th
768.36	²¹⁴ Bi	4.891	609.31, 1764.49	²³⁸ U
794.95	²²⁸ Ac	4.25	911.20, 968.97	²³² Th
806.17	²¹⁴ Bi	1.262	609.31, 1764.49	²³⁸ U

TAB. A.4: Principales raies gamma de radioactivité naturelle :potassium, thorium et uranium dans une gamme d'énergie de 835 à 2614 KeV .

E(KeV)	Radionucléide	I(%)	Pics associés(KeV)	Origine
835,71	²²⁸ Ac	1,61	911,20, 968,97	²³² Th
839,04	²¹⁴ Pb	0,587	295,22, 351,93	²³⁸ U
860,56	²⁰⁸ Tl	4,48	583,19, 2614,51	²³² Th
911,20	²²⁸ Ac	25,8	968,97	²³² Th
934,06	²¹⁴ Bi	3,096	609,31, 1764,49	²³⁸ U
964,77	²²⁸ Ac	4,99	911,20, 968,97	²³² Th
968,97	²²⁸ Ac	15,8	911,20	²³² Th
1097,3	¹¹⁶ In	56,2	1293,54	¹¹⁵ In (<i>n, γ</i>)
1120,29	²¹⁴ Bi	14,907	609,31, 1764,49	²³⁸ U
1155,56	²¹⁴ Bi	1,635	609,31, 1764,49	²³⁸ U
1173,23	⁶⁰ Co	99,85	1332,49	Activ
1238,11	²¹⁴ Bi	5,827	609,31, 1764,49	²³⁸ U
1377,67	²¹⁴ Bi	3,967	609,31, 1764,49	²³⁸ U
1407,98	²¹⁴ Bi	2,389	609,31, 1764,49	²³⁸ U
1459,14	²²⁸ Ac	0,83	911,20, 968,97	²³² Th
1460,82	⁴⁰ K	10,66	-	Primordiale
1588,20	²²⁸ Ac	3,22	911,20, 968,97	²³² Th
1620,74	²¹² Bi	1,51	727,33	²³² Th
1630,63	²²⁸ Ac	1,51	911,20, 968,97	²³² Th
1729,60	²¹⁴ Bi	2,843	609,31, 1764,49	²³⁸ U
1847,42	²¹⁴ Bi	2,023	609,31, 1764,49	²³⁸ U
2204,21	²¹⁴ Bi	4,913	609,31, 1764,49	²³⁸ U
2614,51	²⁰⁸ Tl	35,85	583,19	²⁰⁸ Pb (<i>n, p</i>)
1293,54	¹¹⁶ In	84,4	1097,3	Activ ¹¹⁵ In (<i>n, γ</i>)
1332,49	⁶⁰ Co	99,98	1173,23	Activ

Annexe B

La base de données des matériaux fournit par NIST

la table B.1 décrit les éléments définis en GEANT4 par leur nom, leur symbole, leur numéro atomique et leur masse molaire.

– Pour un matériau constitué d'un seul élément il est défini par : le symbole et la densité :

```
G4double density = 1.390*g/cm3;
```

```
G4double a = 39.95*g/mole;
```

```
G4Material* lAr =new G4Material("liquidArgon",18.,a,density);
```

– Si le matériau est constitué à partir d'une molécule (exemple : eau) :

```
a = 1.01*g/mole;
```

```
G4Element* elH =new G4Element("Hydrogen",symbol="H",z=1.,a);
```

```
a = 16.00*g/mole;
```

```
G4Element* elO =new G4Element("Oxygen",symbol="O",z=8.,a);
```

```
density = 1.000*g/cm3;
```

```
G4Material* H2O =new G4Material("Water", density,ncomp=2);
```

```
H2O->AddElement(elH, natoms=2);
```

```
H2O->AddElement(elO, natoms=1);
```

– Le matériau est composé par plusieurs matériaux :

```
G4Element* elC = ... ; // define "carbon" element
```

TAB. B.1: Définition des éléments dans GEANT4.

### Elementary Materials from the NIST Data Base			
Z	Name	ChFormula	density(g/cm ³)
1	G4_H	H_2	2 8.3748e-05
2	G4_He		0.000166322
3	G4_Li		0.534
4	G4_Be		1.848
5	G4_B		2.37
6	G4_C		2
7	G4_N	N_2	0.0011652
8	G4_O	O_2	0.00133151
9	G4_F		0.00158029
10	G4_Ne		0.000838505
11	G4_		0.97
12	G4_Na		1.74
13	G4_Mg		2.6989
14	G4_Al		2.33

G4Material* SiO2 = ... ; // define "quartz" material

G4Material* H2O = ... ; // define "water" material

density = 0.200*g/cm3;

G4Material* Aerog =new G4Material("Aerogel", density,ncomponents=3);

Aerog->AddMaterial(SiO2,fractionmass=62.5*perCent);

Aerog->AddMaterial(H2O , fractionmass=37.4*perCent);

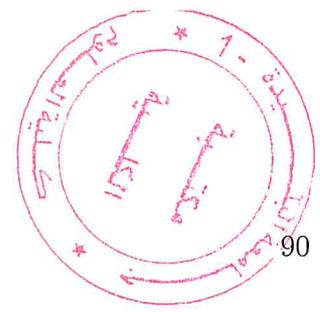
Aerog->AddElement (eIC , fractionmass= 0.1*perCent);

Bibliographie

- [1] H. Papaefthymiou, G. Papatheodorou, A. Moustakli, D. Christodoulou and M. Geraga, "Natural Radionuclides and ^{137}Cs Distributions and Their Relationship With Sedimentological Processes In Patras Harbour, Greece", *Journal of Environmental Radioactivity*, 94, 55-74, 2007.
- [2] M.H. El-Mamoney and A.E.M. Khater, "Environmental Characterization and Radio ecological Impacts of Non-Nuclear Industries on the Red Sea Coast", *Journal of Environmental Radioactivity*, 73 : 151-168, 2004.
- [3] M.A. Benamar, A. Zerrouki, Z. Idiri and S. Tobbeche, "Natural and Artificial Radioactivity Levels in Sediments in Algiers Bay", *Applied Radiation and Isotopes*, 48 : 1161-1164, 1997.
- [4] M.R. Abdi, M. Kamali and S. Vaezifar, "Distribution of Radioactive Pollution of ^{238}U , ^{232}Th , ^{40}K and ^{137}Cs in Northwestern Coasts of Persian Gulf, Iran", *Marine Pollution Bulletin*, 56 : 751-757, 2008.
- [5] J.C. Lozano, P. Blanco Rodriguez and F. Vera Tomé, "Distribution of Long-Lived Radionuclides of the ^{238}U Series in the Sediments of a Small River in a Uranium Mineralized Region of Spain", *Journal of Environmental Radioactivity*, 63 : 153-171, 2002.
- [6] A. Kurnaz, B. Küçükömeroglu, R . Keser, N.-T. Okumusoglu, F. Korkmaz, G. Karahan and U. Çevik, "Determination of Radioactivity Levels and Hazards of Soil and Sediment Samples in Firtina Valley (Rize, Turkey)", *Applied Radiation and Isotopes*, 65 : 1281-1289, 2007.
- [7] V.-P. Solodukhin, V.-L. Poznyak, I.-V. Kazachevsky, B.-B. Knyazef, N. Lukashenko, S. Khazhekber, "Some Peculiarities of the Contamination with Radionuclides and Toxic Elements of the Syrdarya River Basin, Kazakhstan", *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 65 : 245-250, 2004.

- [8] M. Bolca, M.M. Saç, B. Çokuysal, T. Karali, E. Ekdal, "Radioactivity in Soils and Various Foodstuffs from the Gediz River Basin of Turkey". *Radiation Measurements*, 42 : 263-270, 2007.
- [9] V.-M. Choubey, P.-K. Mukherjee, B.-S. Bajwa, "Geological and Tectonic in Fluenceon Water-Soil-Radon Relationship in Mandi-Manali Area, Himachal Himalaya". *Environmental Geology*, 52 : 1163-1171, 2007.
- [10] V.-S. Iakovleva and N.-K. Ryzhakova, "Spatial and Temporal Variations of Radon Concentration in Soil and Air". *Radiation Measurements*, 36 : 385-388, 2003.
- [11] J. Chen, R. Falcomer, L. Bergman, J. Wierdsma, J. Ly, "Correlation of Soil Radon and Permeability with Indoor Radon Potential in Ottawa". *Radiation Protection Dosimetry*, 136 : 56-60, 2009.
- [12] S.R.M . Harb, K .Sahel Din, A.-E. Abbady, M.A.-E. Ali, R. Michel, "Measurement of Natural Radionuclides in Soil Samples From Upper Egypt", *Nuclear Science And Techniques*, 19 : 302-307, 2008.
- [13] M.-M. Mutie, N.-O. Hashim and I.-V.-S. Rathor" Measurement of Radioactivity in Soil Samples in Selected Areas of Kibwezi District, Kenya", *Nuclear And Radiation Physics*, 76 : 28275-28280, 2014.
- [14] M.-N. Maurice, M.-N. Eric Jilbert, S. Augustin, N. Raymond Limen, and C.-J Gembou -Shouop, "Gamma Emitting Radionuclides in Soils From Selected Areas in Douala-Bassa Zone, Littoral Region Of Cameroon", *Hindawi*, 245125, 2014.
- [15] M. Ali-Abdallah, Mansour N.-A, M.-A. Ali, M .Fayez-Hassan, "Neutron Activation Analysis of Cement Bulk Samples", *Pelagia Research Library*, 4 : 613-620, 2011.
- [16] A.-K. Ademola, O.-P. Aboudunrin, M.-A. Fatai and J.-O. Omoboyed, "Assessment of Natural Radioactivity level in Cement Samples Commonly Used for Construction in Lagos and Ogun State, Nigeria", *Nuclear And Radiation Physics*, 102 : 44416-44420, 2017.
- [17] O.-O. Oladapo and E.-A. Oni, "Activity Concentration Of Gamma Emitting Natural Radionuclides In Building Material", *Nuclear And Radiation Physics*, 86 : 35224-35226, 2015.
- [18] A. Amrani and M. Tahtat ; "Natural radioactivity in Algerian building materials", 54 : 687-689, 2001.
- [19] S. Belazreg, *Biophysique, cours, Exercice, annales Qcm Corrigés* (Dunod, Paris, 2006).

- [20] I. Vincent, *Elément de mathématique appliquée*. Science.ch 2005.
- [21] F. Jallu, *Double interrogation simultanée neutron et proton utilisant un accélérateur d'électrons pour la caractérisation séparée des actinides dans les déchets radioactifs enrobés*. CEA 1999.
- [22] D. Blanc, *Physique nucléaire* (Masson paris, New York, Barcelon, Milan, 1980).
- [23] *Elément de radioprotection*, CRAM Centre, Mars 2001.
- [24] D. Blanc, *Précis de physique nucléaire* (Dunod, Paris, 1999).
- [25] F.M Khan, *The physics of radiation therapie*, Third Edition (Williams & Wilkin, New York, 2003).
- [26] C. Granja, C. Leroy, I. Stekl, *Nuclear physics methods and accelerators in biology and medicine* (American institu of physics, New York, 2007).
- [27] V.D Vorts, *Introduction à la physique* (Deboek, Wesmael, Bruxelles, 1997).
- [28] J. Foos, *Manuelle de radioactivité* (Herman, Paris, 2009).
- [29] [http // : La radioactivité.com](http://La-radioactivite.com).
- [30] G.Knoll, *Measurement and detection of radiation*, Third Edition (Wiley Inc, New York, 2000).
- [31] D. Paul, *Institue nationale des sciences et techniques nucléaire, De la dose à la dosimétrie*, CEA.
- [32] J. Bernard, *Génie énergétique : de la théorie aux applications du nucléaire* (Ellipses, Paris, 2008).
- [33] N. Tsoufanidis, *Measurement and detection of radiation*, Second Edition (Taylor & Francis, Washington DC, 1995).
- [34] K. Debertin et R.G. Helmer, *Gamma-and X-ray spectrometry with semiconductor detectors* (Elsevier science publishing company, 1988).
- [35] H. Métivier, *Radioprotection et ingénieur nucléaire*, (EDP Science, paris, 2006).
- [36] *Scintillation Detectors*, chapitre 2, Jones and Bartlett, L.L.C.
- [37] R.M.W Overwater, *The physics of big samples instrumental neutron activation analysis* (TUDelft, 1994).



BIBLIOGRAPHIE

- [38] D. Pittauerová¹, S. Mülitz, B. Hettwig, W. Chehade, G. Mollenhauer, J.-B. Stuut, H. W. Fischer, "Application of self-absorption correction method in gamma spectroscopy for ^{210}Pb and ^{137}Cs sediment chronology on the continental slope off NW Africa".
- [39] G.-A. Battiston, S. Degetto, R. Gerbasi, G. Sbrignadello and L. Tosiitti, "Self-absorption correction for low gamma to ^{210}Pb determination in marine sediments", Nuclear Instrument and methods in physics research, B28, 438-442, 1987.
- [40] N.-H. Cutshall, I.L. Larsen et C.-R. Olsen. Direct analysis of ^{210}Pb in sediment samples," self-absorption corrections", Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, 206 : 309-312, 1983.
- [41] UNSCEAR (2000) United Nation Scientific Committee on The Effect Of Atomic Radiation. Expose from natural sources of radiation, United Nations, New York.
- [42] M.-K. Akinloye and A.-C. Okeya, "Contribution of Fiber Cement Building Material to Environmental Radioactivity", Nigerian Journal of Physics, 21 : 135-143, 2009.
- [43] N. Metropolis and S. Ulam, The Monte Carlo, j. of the Am. Stat. Asso, 44 : 335, 1949.
- [44] A. Sarazin, J.-J. Samuelli, C. Meynadier, "Etude expérimentale de la résolution en temps des détecteurs à scintillation", le Journal de physique et de le radium, 23 :119, 1965.
- [45] H.M Hakimabad, A. Panjeh, V.-N. Noghreiyani, "Evaluation the nonlinear response of a $3\times 3\text{in}$ NaI scintillation detector for PGNAAs application", Applied Radiation and Isotop, 65 : 918-926, (2007).
- [46] G. Cinelli, L. Tositti, D. Mostassi, J. Baré, "calibration with MCNP of NaI detector for the determination of natural radioactivity levels in the field", Journal of Environmental radioactivity, 155-156 : 31-37, 2016.
- [47] A.-M. Nourreddine, Spectrométrie Gamma Au Laboratoire Etude De Cas, Institut Pluri-disciplinaire Hubert-Curien, Université De Strasbourg, B.P 28 - 67037.
- [48] F. Courtine, Etalonnage d'un spectromètre gamma en vue de la mesure de la radioactivité naturelle. Mesures expérimentales et modélisation par techniques de Monte-Carlo, U.F.R. de Recherche Scientifique et Technique, Université Blaise Pascal.
- [49] European Commission Radiation protection, "Radiological Protection Principles concerning the Natural Radioactivity of Building Materials". Directorate General : Environment, Nuclear Safety and civil Protection, 112 : 56, 1999.

- [50] H. Norman, Cucsthall, L. Ingrav, Larsen and C.-R, Olsen, "Direct Analysis of ^{210}Pb in Sediment Samples : Self-Absorption Correction", Nuclear Instruments and Methods, 206 : 309-312, 1983.

