

Spectrométrie gamma et modélisation par méthode Monte-Carlo

2.1 Spectrométrie gamma

2.1.1 Principe physique

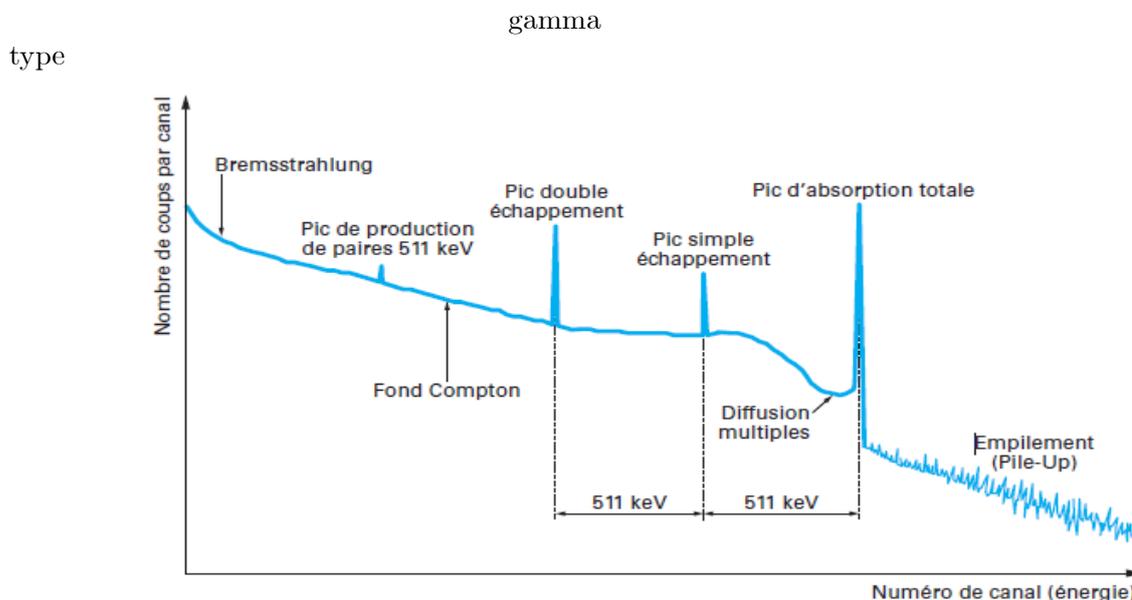
La spectrométrie gamma, tout particulièrement à l'aide de cristaux de GeHP, est l'une des techniques les plus puissantes d'analyse et de caractérisation nucléaire. Cette technique a, par ailleurs, l'avantage d'être non destructive. Il s'agit de l'analyse de l'énergie et de l'intensité des rayonnements gamma émanant spontanément de l'objet radioactif à mesurer. Ces photons accompagnent la plupart des modes de désintégrations radioactives et ont des énergies précises, caractéristiques des transitions entre états nucléaires excités. Plusieurs transitions peuvent se produire dans un même noyau avec des probabilités différentes et conduire ainsi à l'émission de photons gamma d'énergies différentes.

La mesure de ces photons au moyen d'un dispositif approprié permettant de les classer en fonction de leur énergie (raies gamma caractéristiques) et l'analyse du spectre obtenu permettent d'identifier et de quantifier les radionucléides présents dans l'objet mesuré. En effet, le nombre de photons émis à une énergie donnée est représentatif de la quantité de l'émetteur gamma.

La détection des photons gamma met en jeu différents modes d'interaction. Le spectre des photons gamma allant d'environ 20 keV à quelques MeV, les principaux processus d'interaction avec la matière sont l'effet photoélectrique, l'effet Compton et la création de paires. Le spectre gamma ainsi obtenu sera donc divisé en plusieurs

composantes (figure 2.1) :

- pics d’absorption totale;
- fond Compton;
- fond des diffusions multiples;
- pics de simple et double échappement (respectivement lorsqu’un ou les deux photons d’annihilation sortent du détecteur sans interagir);
- pic d’annihilation (électron, positron) à 511 keV;
- empilement ou Pile-Up (au-delà du pic d’absorption totale, cela provient de coïncidences fortuites de plusieurs gamma arrivés en même temps sur le détecteur);
- bremsstrahlung ou rayonnement de freinage (décélération d’un électron dans le détecteur ou son environnement).



4.pdf

FIG. 2.1 – Spectre gamma type [Lyoussi 2008]

2.1.2 Interactions photon-matière

Les rayons gamma sont des photons émis au cours de transitions entre états excités des noyaux atomiques. À la différence des particules comme les ions, les électrons ou les neutrons, les photons peuvent être absorbés par un atome et transférer leur énergie à l’un des électrons du système atomique qui sera excité ou ionisé si l’énergie est suffisante : c’est l’effet photoélectrique. Ils peuvent aussi être diffusés élastiquement par les atomes du milieu ou bien perdre de l’énergie dans une collision avec les électrons de la matière sans être absorbés comme dans l’effet Compton. Si l’énergie des photons est

suffisante, on peut observer la matérialisation de l'énergie, c'est-à-dire la transformation de l'énergie en matière qui résulte dans la création d'une paire électron-positron. L'importance des trois effets varie en fonction de l'énergie du photon incident et du numéro atomique Z de la matière. D'autres processus d'interaction moins importants peuvent se produire avec un photon, en l'occurrence la diffusion Rayleigh avec un électron lié, la diffusion Thomson avec un électron libre ou la diffusion Delbruck avec le champ coulombien du noyau.

Effet photoélectrique

C'est un mécanisme d'absorption totale où le photon incident transfère totalement et rapidement son énergie et permet l'éjection d'un électron profond (électron fortement lié). Il y a donc disparition du photon, création d'un ion et apparition d'un photoélectron, qui est arraché à son orbite suivant le mécanisme [Gruppen 2008] : $\gamma + atom \rightarrow atom^+ + e^-$ (figure 2.2). Le photoélectron est éjecté avec une énergie cinétique E_{e^-} égale à celle du photon incident E_γ diminuée de son énergie de liaison E_l à l'atome du milieu.

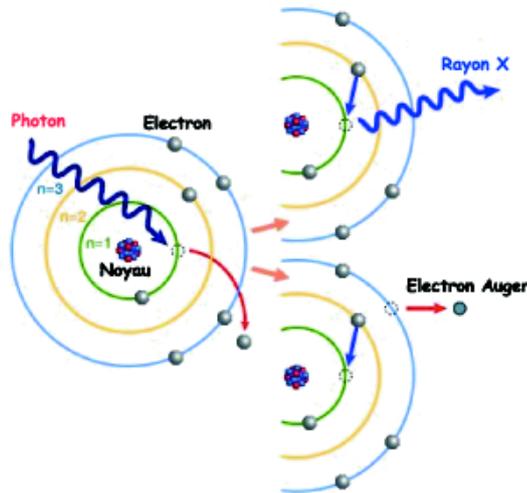


FIG. 2.2 – Effet Photoélectrique

L'atome résiduel est dans un état ionisé avec une vacance de site qui sera comblée par un électron libre d'une autre couche. Ce réarrangement électronique s'accompagne d'émission de rayons X qui peuvent à leur tour, par effet photoélectrique, faire éjecter un nouvel électron du cortège électronique. On parle d'effet Auger, l'électron ainsi

éjecté est appelé électron Auger (figure 2.2). L'émission d'électrons Auger est favorisée pour des matériaux à faible numéro atomique, où les énergies de liaison sont faibles [Knoll 1999].

La probabilité d'occurrence de l'effet photoélectrique par atome dépend fortement de l'énergie E du photon incident et du numéro atomique Z du milieu traversé. Elle varie approximativement comme Z^4/E^3 . La section efficace d'absorption photoélectrique σ_{PE} dépend du numéro atomique Z de l'atome et de l'énergie du photon incident. Elle est donnée par la relation :

$$\sigma_{PE} = \left(\frac{32}{\gamma}\right)^{\frac{1}{2}} \alpha^4 \cdot Z^4 \cdot \sigma_T \quad (2.1)$$

avec $\alpha = 1/137$ appelée constante de la structure fine et $\gamma = E/m_0c^2$ où m_0 est la masse de l'électron au repos.

Effet Compton

La diffusion Compton représente l'interaction du photon avec les électrons des couches périphériques (électron faiblement lié). Le photon incident, d'énergie E_γ cède une partie de son énergie à un électron de ces couche puis diffuse en un autre photon d'énergie inférieure, comme schématisé dans la figure 2.3.

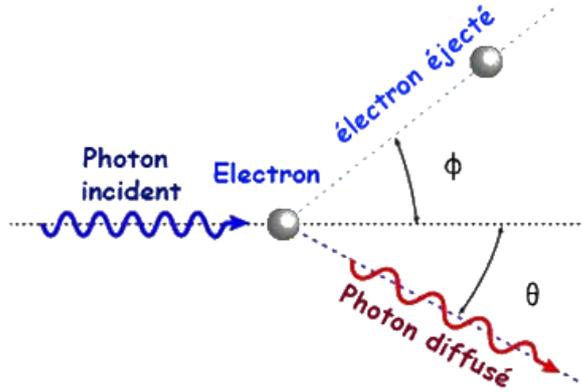


FIG. 2.3 – Effet Compton

L'énergie du photon diffusé $E_{\gamma'}$ et l'énergie cinétique de l'électron Compton E_c sont donnée par la relation :

$$E_{\gamma'} = \frac{E_\gamma}{1 - \cos \theta} \quad (2.2)$$

L'énergie du photon Compton varie sur une gamme allant de $E_\gamma / (1 + 2\varepsilon)$ pour $\theta = \pi$ (rétrodiffusion du photon) à E_γ pour $\theta = 0$. L'énergie cinétique de l'électron diffusé est donné par [Gruppen 2008] :

$$E_{e^-} = E_\gamma - E_{\gamma'} = \left[\frac{\varepsilon(1 - \cos \theta)}{1 + \varepsilon(1 - \cos \theta)} \right] E_\gamma \quad (2.3)$$

La section efficace différentielle de cet effet est donnée par la formule de Klein et Nishina [Blanc 1997] :

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \frac{r_e^2}{2} \frac{1}{[1 + \alpha(1 - \cos \varphi)]^2} \left[1 + \cos^2 \varphi + \frac{\alpha^2(1 - \cos \varphi)}{1 + \alpha(1 - \cos \varphi)} \right] \quad (2.4)$$

Vu que l'énergie du photon incident se répartit entre l'énergie cinétique de l'électron Compton et l'énergie du photon diffusé, la section efficace peut se décomposer en une composante absorbée et une composante diffusée : $\sigma_C = \sigma_{ab} + \sigma_{dif}$. La section efficace totale de l'effet Compton σ_C dépend linéairement du numéro atomique Z et diminue lorsque l'énergie du photon augmente.

Effet de création de paires

La matérialisation d'un photon correspond à la disparition d'un photon et la création d'une paire électron-positron. Chaque particule créée a une énergie reliée à sa masse m_e qui vaut $m_e c^2$ et par conséquent la création d'une paire électron-positron présente un seuil en énergie égal à $2m_e c^2$ ($2m_e c^2 = 1,02 \text{ MeV}$).

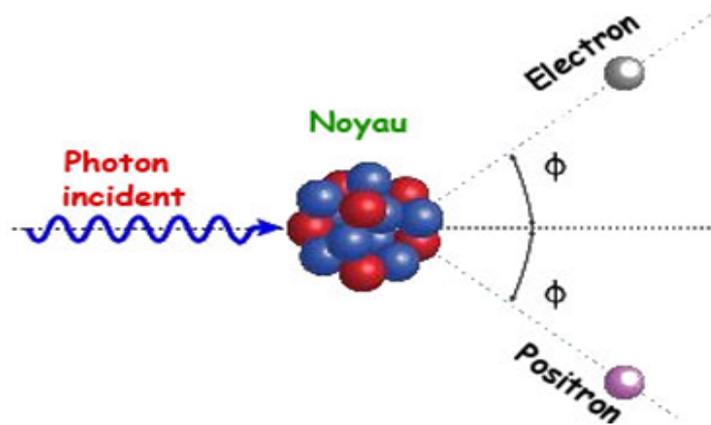


FIG. 2.4 – Création de paire

Si l'énergie initiale du photon E est suffisante ($E > m_e c^2$), on peut observer la création d'un électron et de son antiparticule le positron. Le photon doit passer nécessairement au voisinage d'un noyau atomique. En effet, la matérialisation de photons

dans le vide n'est pas possible. Le processus de création de paires varie pratiquement comme Z^2 , où Z est le numéro atomique du noyau avec lequel le photon interagit. Le positron ainsi créé dans la matière va ralentir et s'annihiler, alors qu'il est pratiquement au repos, avec un électron pour donner deux photons de 0,511 MeV chacun qui seront émis dans des directions opposées afin de conserver la valeur initialement nulle de la quantité de mouvement du système positron plus électron. Dans la pratique, le processus de création de paires ne devient important que pour des énergies supérieures à $4m_e c^2$ (figure 2.4). La section efficace de production de paires s'exprime par les formules rapprochées suivantes [Blanc 1997, Grupen 2008] :

– Pour $1 \prec \frac{E_\gamma}{m_e c^2} \prec \frac{137}{\alpha Z^{1/3}}$

$$\sigma_{paire} = 4 r_e^2 \alpha Z^2 \left[\frac{7}{9} \ln 2 \frac{E_\gamma}{m_e c^2} - \frac{109}{54} \right] \quad (2.5)$$

– Pour $\frac{E_\gamma}{m_e c^2} \succ \frac{1}{\alpha Z^{1/3}}$

$$\sigma_{paire} = 4 r_e^2 \alpha Z^2 \left[\frac{7}{9} \ln \left(\frac{183}{Z^{1/3}} \right) - \frac{1}{54} \right] \quad (2.6)$$

Domaine de prépondérance de chacun des effets

La probabilité d'occurrence de l'un des trois effets est fonction de l'énergie du rayonnement électromagnétique considéré et de la nature de la matière dans laquelle ce rayonnement se propage.

Influence de l'énergie du rayonnement électromagnétique incident : La figure 2.5 illustre les variations des probabilités d'occurrence des trois effets dans un tissu biologique en fonction de l'énergie.

La grandeur appelée μ sera définie dans la section : Atténuation des photons gamma dans la matière. Ici nous nous contenterons de dire qu'elle est représentative de la probabilité d'interaction des rayonnements électromagnétiques dans la matière. D'après la figure 2.5, il apparaît que [Tavernier 2010] :

- l'effet photoélectrique prédomine aux basses énergies [1–100 keV]. La probabilité d'occurrence est une fonction décroissante de l'énergie du rayonnement incident ;
- l'effet Compton est l'effet prédominant aux énergies intermédiaires comprises entre 0,1 MeV et quelques MeV ;
- la probabilité d'occurrence de l'effet de production de paires, au-dessus de son seuil d'apparition de 1,022 MeV, est une fonction croissante de l'énergie.

Influence de la nature du matériau absorbeur : La probabilité d'interaction par effet photoélectrique et par effet de production de paires est une fonction croissante

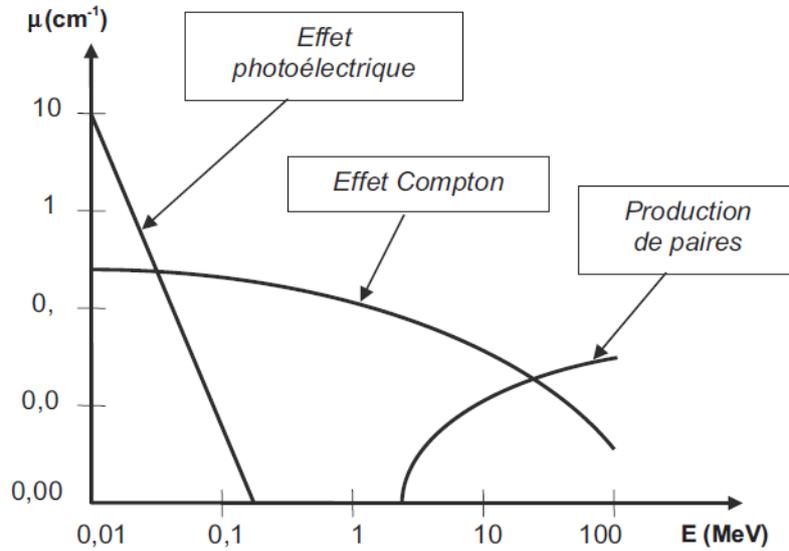


FIG. 2.5 – Probabilités de réalisation des effets photoélectrique, Compton et de production de paires dans les tissus biologiques en fonction de l'énergie.

du numéro atomique Z . Dans le cas de l'effet photoélectrique, elle est même proportionnelle à Z^4 . La probabilité d'interaction par effet Compton est également favorisée pour des numéros atomiques Z élevés mais de façon plus limitée que pour les effets photoélectrique et de production de paire. Ainsi, en raisonnant en termes relatifs, des matériaux denses (Z élevé) favoriseront les deux effets précédents au détriment de l'effet Compton qui sera favorisé pour des matériaux moins denses (Z plus faible). Pour se protéger, il conviendra donc d'utiliser des écrans de matériaux denses pour favoriser les interactions des rayonnements électromagnétiques par effet photoélectrique et défavoriser les interactions par effet Compton. De ce fait, la création de rayonnements diffusés dans l'écran sera limitée au maximum.

2.1.3 Atténuation des photons gamma dans la matière

L'atténuation d'un faisceau de photons incidents résulte de l'absorption des photons par l'effet photoélectrique, l'effet Compton et, si l'énergie des photons est suffisante, par la création de paires électrons-positrons. Si on appelle σ_{tot} la section efficace totale d'absorption des photons et si on désigne par σ_{PE} , σ_C et σ_{paire} les sections efficaces d'absorption respectivement de l'effet photoélectrique, de l'effet Compton et de la création de paires, on pose : $\sigma_{tot} = \sigma_{PE} + \sigma_C + \sigma_{paire}$.

Considérons un faisceau de section droite S traversant la matière composée de noyaux de masse atomique M et de masse volumique ρ . Un volume dV d'une tranche de

matière d'épaisseur dz a une masse $dm = \rho dV = \rho S dz$ et contient $\rho S dz / M$ moles soit $N \rho S dz / M$ atomes, $N = 6,0221367 \times 10^{23} \text{ mol}^{-1}$ désignant le nombre d'Avogadro. Si le faisceau traverse l'épaisseur de matière dz , la section efficace totale des interactions est $\sigma_{tot} N \rho S dz / M$. La probabilité d'interaction dP est le rapport de cette section efficace à la surface S soit :

$$dP = \frac{\sigma_{tot} N \rho S dz}{MS} = \frac{\sigma_{tot} N \rho dz}{M} \quad (2.7)$$

Cette probabilité est égale au rapport du nombre de particules dN absorbées au nombre de particules $N(z)$ présentes dans la tranche dz . Les particules étant absorbées, dN doit être négatif. Algébriquement on posera :

$$\frac{dN}{N(z)} = - \left(\frac{\sigma_{tot} N \rho}{M} \right) dz = -\mu dz \quad (2.8)$$

avec : $\mu = \frac{\sigma_{tot} N \rho}{M}$ (le coefficient d'absorption linéique).

Le nombre de photons transmis $N(z)$ est donné par une loi exponentielle décroissante :

$$N(z) = N_0 e^{-\mu z} \quad (2.9)$$

Les valeurs des coefficients d'atténuation linéique décroissent avec l'énergie. Le coefficient d'atténuation (absorption) massique μ_m est défini par le rapport :

$$\mu_m = \frac{\mu}{\rho} = \frac{\sigma_{tot} N}{M} \quad (2.10)$$

ρ étant la masse volumique du matériau généralement exprimée en $g.cm^{-3}$, μ_m est exprimé en $cm^2.g^{-1}$. L'intérêt de définir le coefficient μ_m réside dans la relative faible variation de ce paramètre avec l'état de la matière. L'expression donnant l'intensité transmise I_t ou le nombre de photons transmis N_t est :

$$\begin{aligned} I_t(z) &= I_0 e^{-\mu_m \rho z} \\ N_t(z) &= N_0 e^{-\mu_m \rho z} \end{aligned} \quad (2.11)$$

Le coefficient d'absorption massique $\mu_m = \mu / \rho$ de l'effet photoélectrique des électrons d'une couche électronique donnée peut être calculé par la relation suivante à partir de la section efficace de photoabsorption et de la masse volumique :

$$\mu_m \left(\frac{cm^2}{g} \right) = \frac{\mu}{\rho} = \frac{\sigma (cm^2/\text{électron}) \times N (atomes/cm^3) n_s}{\rho (g/cm^3)} \quad (2.12)$$

n_s est le nombre d'électrons dans la couche électronique considérée.

2.1.4 Types de détecteurs gamma

Les deux types de détecteur les plus utilisés en spectrométrie gamma sont : les détecteurs à scintillation (scintillateurs) et les détecteurs à semi-conducteurs.

Détecteurs à scintillations

Brièvement, le principe de fonctionnement d'un scintillateur repose sur l'émission de la lumière à la suite du dépôt d'énergie (total ou partiel) du photon gamma à détecter dans le matériau scintillant. Le scintillateur étant relativement transparent à son spectre d'émission (c'est une des propriétés fondamentales d'un élément scintillateur utilisé à des fins de détection de particules), ces photons de scintillations sont recueillis par un photomultiplicateur. Celui-ci va permettre de les transformer en un signal électrique exploitable. Pour cela, il est composé de plusieurs éléments aboutissant à cette conversion : une photocathode, une électrode focalisante, une série de dynodes et une anode [Blanc 1997]. Il existe deux grandes familles de scintillateurs, les organiques et les inorganiques (minéraux). Le type de scintillateur le plus utilisé pour la mesure non destructive par spectrométrie gamma est l'iodure de sodium (NaI).

Détecteurs à semi-conducteurs

Les semi-conducteurs offrent l'avantage de présenter une énergie nécessaire à la création d'une paire électrons-trous très faible : elle est de 3,61 eV dans le silicium, 2,94 eV dans le germanium alors que dans les gaz cela varie de 20 à 40 eV et dans les matériaux scintillateurs de 400 à 1000 eV. De plus, les matériaux utilisés comme semi-conducteurs ont des masses volumiques élevées ($5,32 \text{ g.cm}^{-3}$ pour le germanium et $2,33 \text{ g.cm}^{-3}$ pour le silicium), ce qui favorise l'interaction des photons dans le milieu [Kleinknecht 1986].

Particulièrement, ces matériaux se caractérisent par une conductivité électrique intermédiaire entre les conducteurs et les isolants. À la température du zéro absolu, les semi-conducteurs sont rigoureusement des isolants (leur bande de valence est remplie d'électrons et leur bande de conduction complètement vide). L'élévation de la température n'a pas pour effet de modifier les propriétés de conduction des isolants mais elle a pour effet de rendre conducteur un matériau semi-conducteur [Gilmore 2008]. Donc, l'agitation thermique communiquant une énergie suffisante à un certain nombre d'électrons de la bande de valence pour passer à la bande de conduction.

Le fonctionnement d'un semi-conducteur est basé sur la théorie des bandes selon laquelle les électrons prennent des valeurs d'énergies permises dans la bande de valence et la bande de conduction. La bande de valence est riche en électrons, mais ne participe pas à la conduction, contrairement à la bande de conduction qui procure une certaine

conductivité au matériau. Ces deux bandes sont séparées par la bande interdite qui s'appelle aussi le gap (figure 2.6).

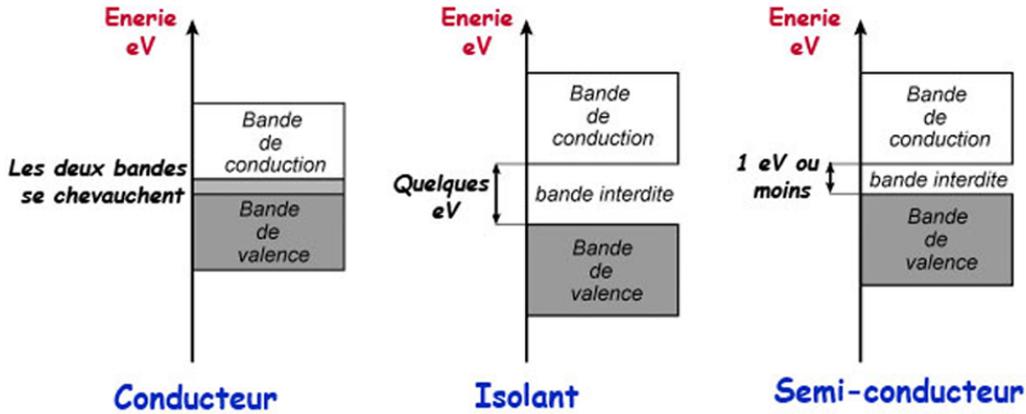


FIG. 2.6 – Schéma des bandes d'énergie pour un conducteur, un semi-conducteur et un isolant.

Le passage d'un électron de la bande de valence à la bande de conduction dépend de la température et du gap du matériau. Dans le cas du germanium, le gap est de l'ordre de 0,7 eV [Tavernier 2010]. L'énergie thermique d'un électron peut être de cet ordre, d'où la nécessité de refroidir le cristal pour réduire le bruit de fond provenant des impulsions causées par l'agitation thermique. Les électrons excités dans la bande de conduction vont laisser un nombre de trous équivalents dans la bande de valence. Sous l'action d'un champ électrique les électrons de la bande de conduction se déplacent vers le pôle positif et les trous de la bande de valence vers le pôle négatif. La conduction par les électrons est dite de type *N* alors que la conduction par les trous est dite de type *P*. D'après l'équation de Boltzmann, la probabilité de passage d'un électron de la bande de valence à la bande de conduction dépend de la température [Gilmore 2008] :

$$p(T) \propto T^{3/2} \exp(-E_g/2k_B T)$$

avec T la température absolue, k_B la constante de Boltzmann et E_g la largeur du gap.

Afin d'augmenter la densité de porteurs des charge, les semi-conducteurs sont dopés par des atomes choisis. Deux sortes de dopages sont utilisés : le dopage du type *N*, si on augmente la densité d'électrons ou du type *P*, si c'est la densité des trous qui est augmentée. Ces dopages sont dits extrinsèques. L'association des deux types de dopage avec la même proportion donne un matériau compensé, qui présente des propriétés de conduction équivalentes à un matériau dépourvu de dopage.

Si l'on accole deux semi-conducteurs extrinsèques, un étant de type P , l'autre étant de type N , on constitue une jonction $P-N$ dans laquelle apparaît, au voisinage du contact, une région désertée par les porteurs de charge [Blanc 1997]. En effet, la mise en contact de chaque semi-conducteur, initialement électriquement neutre, a provoqué la diffusion des électrons majoritaires de la région N vers la région P , et réciproquement, celle des trous majoritaires de la région P vers la région N . Le déplacement des porteurs majoritaires de charges laisse des atomes dopeurs ionisés, ces ions engendrent un champ électrique de quelques 10^5 V.m^{-1} qui s'oppose à la diffusion des porteurs majoritaires à travers la jonction, ce qui concourt à un état d'équilibre. La profondeur de la zone désertée peut être augmentée en polarisant la diode en inverse. Dans une diode à jonction $P-N$, la partie utile à la détection est cette zone désertée (zone de déplétion), il faut donc que son épaisseur soit satisfaisante pour que l'absorption du photon soit totale. Le fonctionnement du détecteur est le suivant (figure 2.7) :

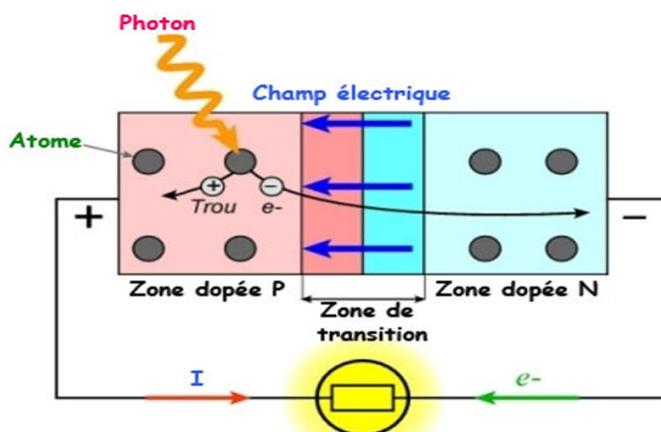


FIG. 2.7 – Fonctionnement d'un détecteur à jonction P-N

Le rayonnement traverse une zone non désertée mince (fenêtre d'entrée ou zone morte) puis perd son énergie dans la zone désertée. Le nombre moyen de paire électron-trou créés est égal à (si l'absorption est totale) : $N = E_0/\varepsilon$. E_0 énergie du photon incident, ε énergie de création de la paire électron-trou (2,98 eV pour le germanium à la température ambiante). La présence du champ électrique dans cette zone désertée permet la collecte des charges créées par les photons. La charge totale collectée sur les contacts est intégrée par un préamplificateur de charge et convertie en une impulsion de tension dont l'amplitude est proportionnelle à l'énergie déposée dans le cristal.

Paramètres fondamentaux d'un détecteur de spectrométrie gamma

Deux paramètres essentiels d'un détecteur de spectrométrie gamma sont le rendement de détection et la résolution en énergie.

Rendement de détection : En général, l'efficacité de détection est défini pour l'ensemble géométrique de mesure. L'efficacité est souvent exprimée en pourcentage du nombre de rayonnements incidents. Deux types d'efficacités sont ainsi définis [Lyoussi 2010] :

- L'efficacité absolue (ε_{abs}) dépend de la géométrie et de la probabilité d'interaction du photon dans le détecteur, elle est définie par la relation :

$$\varepsilon_{abs} = \frac{\text{nombre d'impulsions comptés}}{\text{nombre de rayonnements émis par la source}}$$

- L'efficacité intrinsèque (ε_{int}) dépend des propriétés du détecteur et elle peut être déterminée par la relation suivante :

$$\varepsilon_{int} = \frac{\text{nombre d'impulsions comptés}}{\text{nombre de rayonnements reçus par le détecteur}}$$

L'efficacité absolue est reliée à l'efficacité intrinsèque par la relation suivante [Lyoussi 2010] :

$$\varepsilon_{abs} = \frac{\Omega}{4\pi} \varepsilon_{int} \quad (2.13)$$

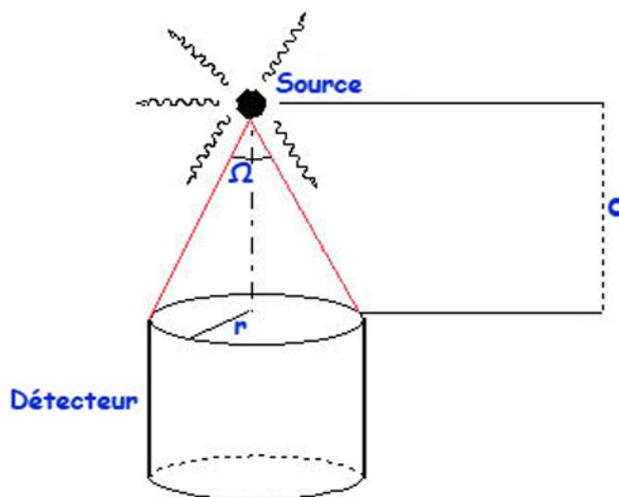


FIG. 2.8 – Notion élémentaire d'angle solide de détection

où Ω est l'angle solide de détection (figure 2.8) défini comme étant la surface du détecteur vue par la source définie comme ponctuelle, elle est donnée par l'équation

suivante :

$$\Omega = 2\pi \left(1 - \frac{d}{\sqrt{d^2 + a^2}} \right) \quad (2.14)$$

Cas particulier : si $d \gg a$, l'angle solide $\Omega \approx \frac{\pi r^2}{d^2}$.

Le rendement ou l'efficacité de détection des photons gamma pour un pic d'absorption totale dépend essentiellement :

- du volume actif du détecteur ;
- de sa forme ;
- de la géométrie source-détecteur ;
- des interactions avec le cristal et les matériaux environnants.

Résolution en énergie : La résolution en énergie mesure la capacité d'un détecteur à séparer des raies gamma dans un spectre. Dans le cas d'un pic sous forme d'une distribution gaussienne (figure 2.9), la largeur du pic mesurée à mi-hauteur encore appelée FWHM (full width at half maximum) [Tavernier 2010]. La résolution est fixée généralement par :

- les fluctuations statistiques dans le processus de production des charges ;
- les défauts de la collection des charges ;
- le bruit électronique.

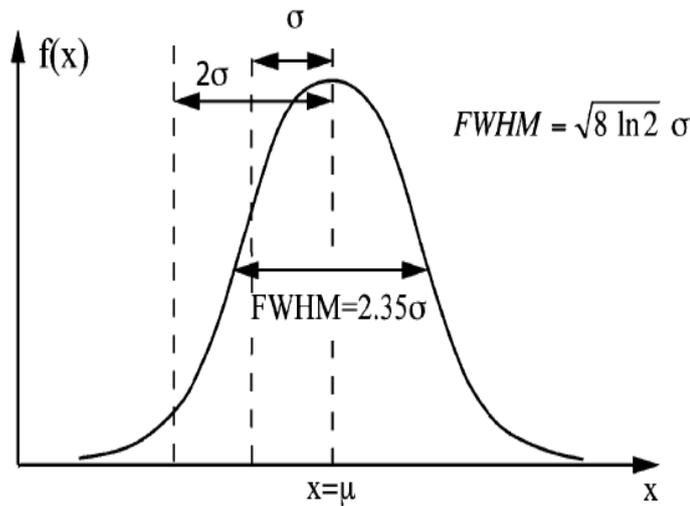


FIG. 2.9 – Distribution gaussienne du pic [Tavernier 2010]

Une bonne résolution est de l'ordre de 1% mais certains détecteurs sont loin de cette performance. Dans le cas idéal, la forme du pic est parfaitement gaussienne, et

la résolution est liée à l'écart-type σ de la distribution [Tedjani 2016] :

$$FWHM = \sigma\sqrt{8 \ln 2} = 2,355 \sigma \quad (2.15)$$

Notons qu'il est utile de définir une résolution relative R (exprimée en %) comme étant le rapport de la résolution $FWHM$ à l'énergie du pic :

$$R(E) = \frac{FWHM}{E} \quad (2.16)$$

Tout comme l'efficacité, la résolution $FWHM$ varie avec l'énergie des photons gamma. Que ce soit pour les scintillateurs ou les semi-conducteurs, la résolution est la somme de plusieurs contributions comme la fluctuation statistique, le bruit électronique, la dispersion dans la collection des charges (semi-conducteurs) ou des photons (scintillateurs), etc.

Détecteurs GeHP

On distingue deux types de détecteurs germanium : les détecteurs compensés au lithium Ge(Li) et les détecteurs au germanium hyper pur (GeHP). Les détecteurs Ge(Li) sont fabriqués de la même façon que les détecteurs Si(Li). Ce type de détecteur a été commercialisé depuis le début des années 60 jusqu'au début des années 80 [Knoll 1999]. Par la suite, ce détecteur a été remplacé par les détecteurs au germanium ultra-pur, dont les performances sont équivalentes pour un même volume actif mais qui permet notamment d'être ramené à température ambiante entre des mesures. En effet, le lithium diffusant à température ambiante, les détecteurs germanium compensés au lithium ne peuvent être utilisés à température ambiante. Il s'agit d'un cristal de germanium pur dont la concentration en impureté a été abaissée de 10^{13} à 10^{10} atomes. cm^{-3} . Les détecteurs germanium existent sous trois configurations géométriques : planaire , coaxiale et puits [Courtine 2007].

- **La géométrie planaire** (figure 2.10 (1)) permet d'avoir une réponse du détecteur à basse énergie (de 1 keV à 1 MeV). C'est avec cette configuration que la résolution est la meilleure (tableau 2.1). L'épaisseur du volume actif peut aller jusqu'à 1 ou 2 cm, ce qui donne un volume de 10 à 30 cm^3 , ce qui est relativement faible.
- **La géométrie coaxiale** (figure 2.10 (2)) permet de contourner le problème de volume. Pour cette géométrie le volume actif de détection est significativement augmenté, qui peut atteindre 750 cm^3 . Par contre, la réponse en énergie se trouve décalée vers les hautes énergies : de 10 keV à 10 MeV. En plus, la résolution est moins bonne qu'avec la géométrie planaire (tableau 2.1).

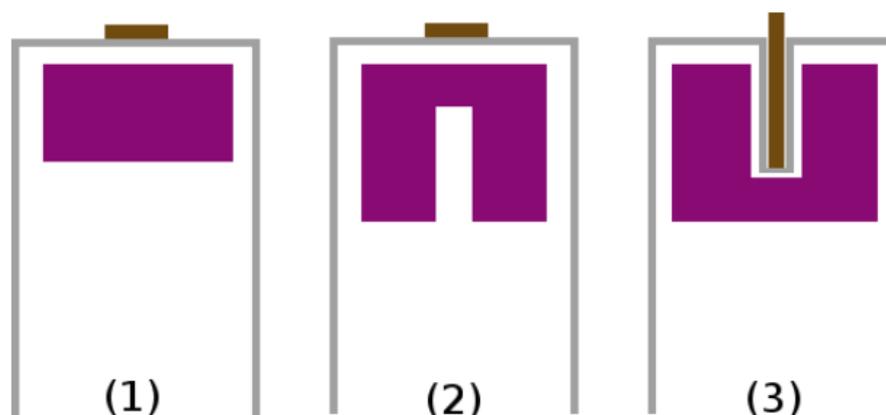


FIG. 2.10 – Forme schématique des différentes géométries des cristaux de germanium [Degrelle 2017]

Energie (keV)	Géométrie		
	Planaire (1)	Coaxial (2)	Puits (3)
122	0,65	0,80	1,20
1332	2,00	3,40	2,00

TAB. 2.1 – Résolution (en keV) d'un détecteur germanium dans les trois configurations possibles [Courtine 2007]

- **Avec la géométrie puits** (figure 2.10 (3)) la réponse du détecteur est dans le même intervalle en énergie que la géométrie coaxiale mais du fait que l'on peut introduire un échantillon à l'intérieur du détecteur, cela améliore la détection. La résolution à basse énergie est moins bonne qu'avec une géométrie coaxiale mais à haute énergie la résolution est meilleure avec la géométrie puits (tableau 2.1).

Critères de choix d'un détecteur GeHP

Le choix de la géométrie se fait en fonction de trois principaux critères : le rendement de détection (qui dépend du volume du cristal), la résolution en énergie et la gamme d'énergie. En règle générale, la résolution et la gamme d'énergie sont liées au volume. En effet, plus un détecteur sera volumineux plus sa gamme en énergie sera élevée et donc son rendement de détection aussi. En revanche, un détecteur de faible volume aura une gamme en énergie plus basse, un rendement de détection faible mais d'excellentes résolutions en énergie. Au laboratoire, les spectromètres germanium ont une efficacité relative comprise entre 40 et 65 % [Le Petit 2002]. Les détecteurs de type

puits sont employés pour les petites géométries de comptage, ce qui leur confère un important rendement de détection compte tenu de leur géométrie enveloppante.

En plus des critères de choix géométriques, l'utilisateur doit aussi baser son choix de détecteur sur les propriétés de l'échantillon à mesurer, à savoir :

- la quantité d'échantillon disponible ;
- sa nature (liquide, solide, gazeux) ;
- les niveaux d'activité rencontrés.

2.1.5 Electronique d'acquisition

Dans une chaîne de mesure le détecteur est relié à une chaîne d'acquisition électronique. C'est au niveau de cette chaîne d'acquisition que s'élabore le spectre qui sera ensuite analysé. En spectrométrie, les signaux fournis par un détecteur sont analysés par une chaîne électronique constituée généralement des éléments suivants (figure 2.11) : un préamplificateur, un amplificateur, un convertisseur analogique-numérique (ADC) et un analyseur multi-canaux (AMC).

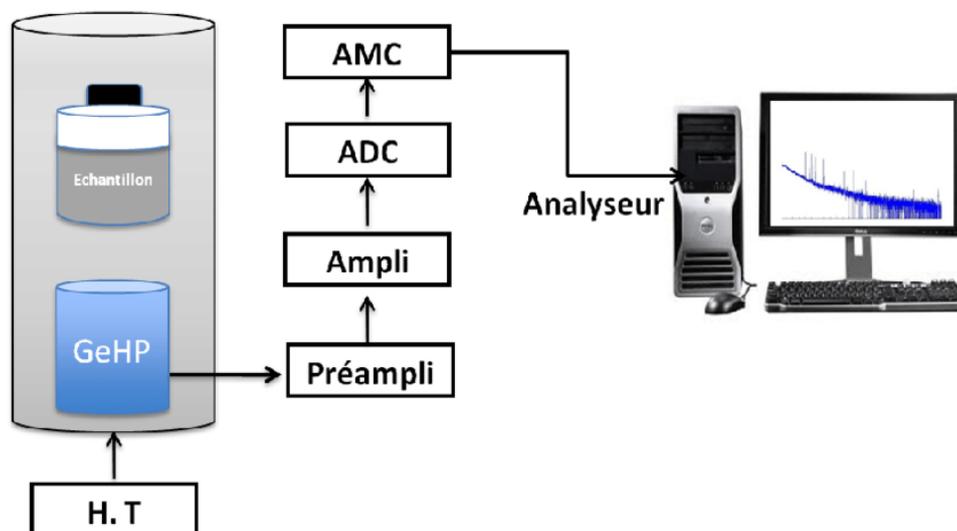


FIG. 2.11 – Electronique d'acquisition

Cette électronique peut se présenter sous de multiples formes. On voit dans les catalogues des dispositifs compacts qui intègrent toute la chaîne depuis la haute tension jusqu'à l'analyseur. D'autres intègrent tout dans un boîtier ou même sur une simple carte mais nécessitent un ordinateur pour l'analyse. Il existe également des électroniques d'acquisition en tiroir du format NIM qui transmettent ces données à un ordinateur distant.

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

L'amplificateur met en forme le signal (quasi gaussienne) qui permet au codeur de quantifier de manière précise la hauteur du signal. Ensuite, il amplifie le signal jusqu'à une tension souhaitée à l'aide d'un gain. Le gain définit l'échantillonnage en énergie du spectre de sortie : plus le gain est élevé, plus la valeur maximale du spectre en énergie est faible. Par exemple, si l'amplificateur fournit une tension maximale de 5 V repartis sur 8000 canaux, le gain définit la valeur en énergie correspondant au dernier canal. L'amplificateur filtre aussi le signal pour le séparer du bruit électronique. La hauteur de l'impulsion est convertie en valeur numérique à l'aide du convertisseur analogique-numérique.

Enfin, l'analyseur multi-canaux convertit la hauteur de l'impulsion en une valeur de canal du spectre en énergie. Quelle que soit sa forme, l'analyseur fait appel à un logiciel dont les fonctions principales sont :

- la gestion des acquisitions ;
- la mesure des paramètres de la chaîne de spectrométrie (résolution, énergie, rendement) ;
- la recherche et la localisation des pics d'absorption totale ;
- le calcul de l'abscisse et de la surface de chaque pic ;
- le calcul de l'activité des radionucléides détectés à partir d'une table contenant les données nucléaires, compte tenu des paramètres propres à l'échantillon mesuré.

2.1.6 Analyse des échantillons par spectrométrie gamma

La spectrométrie est une méthode de mesure relative, et l'étalonnage en rendement des détecteurs est habituellement réalisé au moyen de sources étalons dont l'activité est déterminée par une mesure directe. L'analyse repose sur l'étude des pics d'absorption totale observés dans le spectre enregistré. Deux étapes préalables à toutes mesures sont indispensables : l'étalonnage en énergie pour les analyses qualitatives et l'étalonnage en rendement de détection pour les analyses quantitatives.

Etalonnage en énergie

L'étalonnage en énergie d'un spectromètre γ nécessite un certain nombre de sources radioactives émettrices de rayonnement γ . Les spectres obtenus correspondent aux raies des énergies de ces sources. Les raies d'absorption totale sont classées par leurs amplitudes (sommets des pics). La position du sommet des pics étalons peut donc être déduire de l'ajustement de simples gaussiennes par la méthode des moindres carrés dépendant du nombre de raies gamma employées pour l'étalonnage. La réponse énergie-canal s'écrit alors par une relation polynomiale comme le montre l'équation 2.17 :

$$E(keV) = a_0 + a_1C + a_2C^2 + a_3C^3 + \dots \quad (2.17)$$

où a_0 , a_1 , a_2 et a_3 sont les coefficients à déterminer et C le canal (position du pic) de l'AMC. Chaque canal est associé à une énergie.

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 deux autres coefficients voire plus représentent la partie non linéaire de la courbe d'étalonnage. Le spectromètre possède un seuil nécessaire pour éliminer le bruit de fond électronique, dont la valeur correspond à l'énergie seuil analysée. En se limitant au premier ordre, à partir de la pente de la droite d'étalonnage, une source peut être identifiée par les numéros du canal de ces pics et l'énergie correspondante. Depuis la bibliothèque où sont répertoriés les radio-isotopes en fonction de leurs énergies, l'émetteur gamma peut être identifié.

Etalonnage en efficacité

L'étalonnage en efficacité d'une chaîne de spectrométrie gamma consiste à établir la réponse de ce paramètre en fonction de l'énergie. En général, pour réaliser un étalonnage en efficacité, on doit utiliser des sources étalons qui sont de natures et de formes semblables à celles de l'échantillon à analyser. Elles sont référencées par une activité massique, volumique ou un taux d'émission photonique des principales raies. Une courbe de rendement en fonction de l'énergie est obtenue pour une géométrie et une matrice donnée. À partir de cette courbe, les efficacités de détection des différents pics du spectre de l'échantillon sont exploitées pour le calcul de l'activité. Cependant, lorsque l'échantillon est différent de l'étalon, il est nécessaire de corriger l'efficacité pour les effets de matrice et de pic-somme due aux transitions en cascade et aux empilements (cas des taux de comptage élevés). Pour une énergie E donnée, l'efficacité d'absorption totale peut être déterminée suivant l'équation 2.18 :

$$\varepsilon(E) = \frac{N_{net}(E)}{A(E) \times I_\gamma(E) \times t} \quad (2.18)$$

Deux fonctions sont souvent utilisées en spectrométrie pour le calcul de l'efficacité partir de la courbe d'étalonnage en efficacité. Elles sont le logarithme de l'efficacité fonction polynôme soit du logarithmique de l'énergie, soit de l'inverse de l'énergie (équation 2.19) :

$$\begin{aligned} \text{Appolog} &\rightarrow \ln[\varepsilon(E_i)] = \sum_j a_j \cdot \ln(E_i)^j \\ \text{Apocope} &\rightarrow \ln[\varepsilon(E_i)] = \sum_j a_j \cdot (E_i)^{-j} \end{aligned} \quad (2.19)$$

Géométrie d'étalonnage

Le rendement doit être déterminé avec une géométrie d'étalonnage similaire à la géométrie de mesure. Dans le cas où l'on ne dispose pas d'étalons correspondant à la géométrie de mesure, il faut effectuer un transfert de rendement. Selon le détecteur utilisé, des géométries d'étalonnage sont choisies afin d'augmenter la sensibilité de détection. Pour la mesure de routine de faible radioactivité, la position de l'échantillon au contact du capot du détecteur est privilégiée. L'utilisation d'un grand volume pour la mesure est souhaitable. En effet, la limite de détection après la correction des effets d'auto-absorption est améliorée d'un facteur 5 pour les faibles énergies et d'un facteur 7 à 8 pour des énergies plus élevées. Une panoplie de géométries standardisées est proposée et utilisée en fonction de l'activité et la quantité de l'échantillon (figure 2.12).

ech

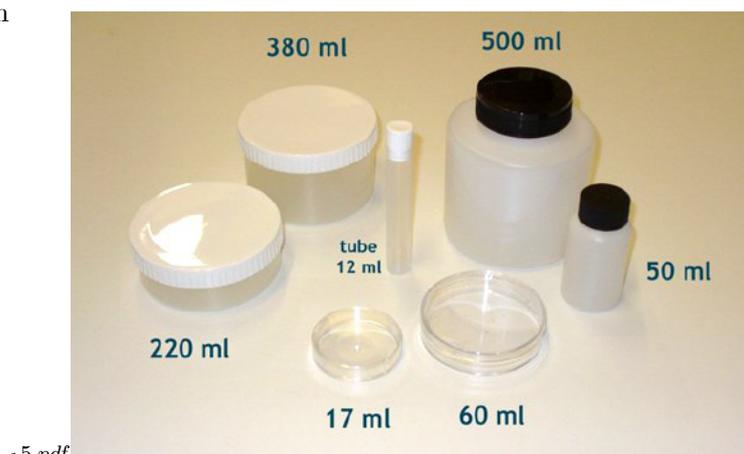


FIG. 2.12 – Différentes géométries de conditionnement utilisées en spectrométrie gamma [Dziri 2013]

2.1.7 Cas particulier : spectrométrie γ à bas bruit de fond

Pour les mesures environnementales, les niveaux d'activités étant généralement faibles. À des très basses activités, la mesure précise qui exprime effectivement les niveaux d'activités devient très difficile ou presque impossible avec une chaîne de mesure ordinaire. La technique de spectrométrie gamma à l'aide de détecteurs germanium possède de nombreuses caractéristiques avantageuses ayant permis d'effectuer cette sélection, celle-ci c'est qu'on appelle spectrométrie gamma bas bruit de fond [Mouchel 1992]. L'expression « bas bruit de fond » signifie que ces spectromètres sont capables de mesurer des niveaux d'activité très faibles, 10 000 à 100 000 fois inférieurs à ceux que l'on rencontre généralement dans la nature. A titre d'exemple, les détecteurs Ge peuvent mesurer des activités de l'ordre de quelques mBq.kg^{-1} alors que la radioactivité du corps humain est de l'ordre de 50 Bq.kg^{-1} pour l'élément ^{40}K .

Dans le cadre des mesures des basses activités, l'analyse d'un échantillon peut donner un résultat très proche de celui obtenu lors de la détermination du bruit de fond du dispositif de mesure. Le critère décisif est la limite de détection qui est lié directement avec le bruit de fond de détecteur :

$$L_D \propto \frac{\sqrt{LTMH.B}}{\varepsilon.\Delta t}$$

Pour améliorer la limite de détection, le bruit de fond doit être éliminé ou réduit au plus bas possible de façon à accroître les sensibilités de détection pour pouvoir mesurer des activités à l'ordre de la trace.

Origine du bruit de fond d'un spectromètre gamma

Le bruit de fond est le comptage ou l'enregistrement d'un spectre dans des conditions normales d'utilisation de la chaîne de mesure en l'absence de la source dont on veut mesurer le rayonnement. La connaissance de ce bruit de fond est utile pour améliorer la justesse des résultats de mesure de l'activité, notamment dans le cas des basses radioactivités. Les composantes du bruit de fond ont essentiellement pour origine la radioactivité primordiale, le rayonnement cosmique et éventuellement la radioactivité artificielle qui est présente dans les matériaux constituant le spectromètre ou dans son environnement immédiat.

La radioactivité des matériaux : Elle a trois origines essentielles :

- une radioactivité naturelle qui regroupe les chaînes de ^{238}U , ^{235}U , ^{232}Th ainsi que ^{40}K ;
- une radioactivité artificielle (^{137}Cs produit des retombées des expérimentations d'engins nucléaires atmosphériques et de l'accident de Tchernobyl, ^{60}Co produit

de l'utilisation de sources industrielles...);

- une radioactivité cosmogénique créée par le rayonnement cosmique (^{54}Mn , ^{65}Zn , ^{60}Co , ^{63}Cu ...).

Généralement, tout matériau contient des radionucléides, avec des taux extrêmement variables d'un matériau à l'autre, pour minimiser le bruit de fond du détecteur, il convient donc de sélectionner au mieux les matériaux constituant le détecteur et le blindage.

Les rayonnements cosmiques : Il est composé principalement de muons (75%), d'électrons, de protons (25%) et de neutrons (quelques %); il est à l'origine de particules secondaires créées essentiellement dans le blindage et détectées par le spectromètre.

Détecteur Ge(HP) à bas bruit de fond

Pour pouvoir mesurer des activités de l'ordre du mBq.kg^{-1} , le bruit de fond du détecteur doit être minimisé au maximum. Ceci impose pour les spectromètres Ge(HP) les trois conditions suivantes :

- les matériaux du cryostat doivent être sélectionnés pour leur pureté radioactive par rapport à la radioactivité naturelle ;
- le détecteur Ge(HP) doit être entouré d'un blindage contre la radioactivité ambiante, généralement constitué de plomb, cuivre et polyéthylène borée contre les neutrons ;
- pour minimiser l'influence du rayonnement cosmique, le détecteur Ge(HP) doit être installé dans un site souterrain.

Réduction de bruit de fond et optimisation du blindage

Le blindage a pour but essentiel d'absorber tout rayonnement provenant de la radioactivité externe au détecteur. Cette radioactivité naturelle, dite ambiante est composée principalement de rayonnements gamma. C'est pourquoi on l'entoure généralement d'un blindage composé de matériaux lourds spécifiques. Le choix du blindage dépend généralement de la nature du matériau (densité et Z) et de son épaisseur. Au regard d'un certain nombre de caractéristiques (Z important, facilité d'usinage, coût, pureté...) un matériau préférablement s'impose pour arrêter les photons gamma, il s'agit du plomb. Les réflexions préliminaires à la réalisation de la protection d'un spectromètre gamma conduisent à se poser la question de l'épaisseur du blindage qui permettra l'optimisation du bruit de fond d'une manière significative [Hurtado 2006].

L'énergie E_γ la plus élevée, d'intensité non négligeable dans la radioactivité naturelle est la raie de 2614 keV de la transition $^{208}\text{Tl} \rightarrow ^{208}\text{Pb}$ (famille du Th-232). L'épaisseur du blindage doit donc être suffisante pour absorber ces photons : en général 15 cm de plomb sont nécessaires et suffisants. Ainsi, la dégradation des photons gamma produit un flux de photons de plus faibles énergies (par effet Compton) et de rayons X de 80 keV par réarrangement des couches électroniques.

Le plomb naturel contient un isotope radioactif le ^{210}Pb qui contribue au bruit de fond à basse énergie : des photons γ de 46 keV. Pour éliminer cette composante du fond on peut utiliser un plomb archéologique "très vieux" caractérisé par une très faible radioactivité. Le coût du plomb étant lié à sa pureté radiologique, on utilise généralement quelques centimètres de plomb de très faible radioactivité (2 à 5 cm), le complément à 15 cm s'effectuant avec un plomb de qualité moindre. Une autre étape consiste à optimiser la forme, les différentes dimensions de ce dernier et voire aussi la position du détecteur dans le blindage.

2.2 Modélisation par méthode Monte-Carlo

2.2.1 Généralités

Le terme "méthode Monte-Carlo" désigne toute méthode visant à calculer une valeur numérique approchée d'une grandeur physique en utilisant des procédés aléatoires, c'est-à-dire des techniques statistiques basées sur des lois probabilistes [Sayah 2012]. La méthode Monte-Carlo a connu son essor dans les années quarante avec Nicholas Metropolis, Stanislaw Ulam et John Von Neumann, dans le cadre du projet américain Manhattan pour le développement de l'arme nucléaire [Leslie 1962]. Elle repose sur la loi des grands nombres qui consiste à répéter un grand nombre de fois une expérience de manière indépendante, qui permet de justifier la convergence de la méthode. L'approximation ainsi obtenue est proche de la vraie valeur de l'espérance du phénomène étudié. Le recours à cette méthode de calcul est envisageable, particulièrement lorsque le problème étudié est complexe et que la solution analytique est impossible. Donc, les méthodes de Monte-Carlo ne reposent pas sur la résolution d'équations explicites. Ce sont des méthodes non déterministes. De nos jours, l'utilisation de ces méthodes de calcul s'est largement étendue à de nombreux domaines aussi variés que la physique, les mathématiques, la chimie, la médecine et la biologie. En effet, ces applications sont considérablement développées avec l'envolée des outils informatiques fournissant des moyens de calcul de plus en plus puissants.

2.2.2 Principe des méthodes Monte-Carlo pour la simulation du transport des particules dans la matière

Les méthodes Monte-Carlo deviennent un outil essentiel en physique de l'interaction rayonnement-matière. L'idée d'utiliser les simulations aléatoires est directement liée à la complexité des interactions radiatives dans un milieu donné. La possibilité d'inclure une très grande partie de la physique de l'interaction élémentaire sous la forme de modèles numériques de plus en plus élaborés les rendent à la fois plus prédictifs, précis et fiables.

Le principe de ces méthodes consiste à évaluer une donnée numérique à l'aide de processus aléatoires associés à une fonction de densité de probabilité décrivant un phénomène réel. De manière plus précise, on cherche à reproduire le déroulement d'un phénomène physique en supposant qu'il est le résultat d'une succession d'événements microscopiques probabilistes. Un générateur de nombres aléatoires est utilisé pour déterminer chaque nombre aléatoire ainsi que sa probabilité conformément à la fonction de densité de probabilité. De ces valeurs, l'estimateur est calculé et sa valeur enregistrée en mémoire. En effet, la répétition des processus aléatoires un grand nombre de fois permet d'estimer la moyenne de la grandeur recherchée à une précision statistique voulue. Une particule se déplaçant dans la matière possède une certaine probabilité de rencontrer un atome avec lequel elle va interagir. Après interaction, sa trajectoire et son énergie vont être modifiées en fonction de certaines lois de probabilité. La méthode Monte-Carlo consiste alors à suivre le parcours et les interactions successives d'un grand nombre de particules, dites histoires. Il est à noter que chaque interaction soit décrite par une fonction mathématique issue d'un modèle physique. Les fonctions de probabilité sont déterminées par les sections efficaces qui permettent de calculer le parcours de la particule entre deux interactions, le type d'interaction, l'énergie transférée, l'angle de déviation, les particules secondaires créées, etc.

Notion de section efficace et de libre parcours moyen

Considérons un faisceau de N particules par seconde qui bombarde une cible contenant ρ_n noyaux par unité de volume. Nous supposons que la cible est suffisamment mince, d'épaisseur dx , pour qu'une particule incidente n'interagisse qu'une fois au plus. De ce bombardement peut résulter une variété d'événements (diffusion élastique, inélastique, etc.). Le nombre moyen de particules dN ayant été perdu du faisceau par une réaction d'un type donné, est proportionnel à ρ_n , N , et dx . On note σ_i le coefficient de proportionnalité. Nous obtenons donc la relation [Sayah 2012] :

$$dN = -N\rho_n\sigma_i dx \quad (2.20)$$

ρ_n s'écrit : $\rho_n = \rho \times \frac{N_A}{A}$, avec ρ la masse volumique, N_A le nombre d'Avogadro et A le nombre de masse de la cible.

La quantité σ_i est appelée section efficace partielle correspondante à la réaction i étudiée. Elle possède la dimension d'une surface, exprimée en barn ($1\text{barn} = 10^{-24}\text{cm}^2$). En intégrant la relation précédente sur une cible épaisse, le nombre de particules restantes suite à l'interaction du faisceau sur une épaisseur x par la réaction i , est donné par :

$$N(x) = N_0 e^{-\rho_n \sigma_i x} \tag{2.21}$$

N_0 étant le nombre initial de particules incidentes. Puisqu'une particule peut générer plusieurs types de réactions, la section efficace totale σ_{tot} est donnée par la somme de toutes les sections efficaces partielles : $\sigma_{tot} = \sum_i \sigma_i$.

Donc, le nombre de particules $N(x)$ restant dans le faisceau après avoir parcouru une distance x , et en prenant en compte toutes les réactions possibles des particules, peut être exprimé par :

$$N(x) = N_0 e^{-\rho_n \sigma_{tot} x} \tag{2.22}$$

La quantité λ , définie par :

$$\lambda = \frac{1}{\rho_n \sigma_{tot}} \tag{2.23}$$

est appelé le libre parcours moyen qui correspond à la valeur moyenne de la distance parcourue par la particule entre deux réactions. Nous obtenons alors la relation :

$$N(x) = N_0 e^{-\frac{x}{\lambda}} \tag{2.24}$$

Le libre parcours moyen est inversement proportionnel à la section efficace totale ou macroscopique d'interaction dans le milieu traversé.

Echantillonnage statistique de fonctions de probabilité

La génération de la trajectoire d'une particule par le code Monte-Carlo est réalisée par un échantillonnage statistique de fonctions de probabilité. Ceci est effectué à l'aide de générateurs de nombres pseudo-aléatoires, obtenus par des algorithmes mathématiques. L'échantillonnage d'une loi de probabilité non uniforme sur la base d'une fonction de densité $f(x)$ se fait essentiellement par deux méthodes : la méthode de transformation et la méthode de rejection de Von Neuman.

La méthode de transformation consiste à déterminer à partir de la densité de probabilité $f(x)$ une fonction de répartition $F(x)$, cumulative de $f(x)$ avec :

$$F(x) = \int_{-\infty}^x f(u) du \tag{2.25}$$

Des nombres pseudo-aléatoires η sont ensuite tirés au hasard sur le segment $[0, 1]$. Les nombres $x = F^{-1}(\eta)$ sont repartis suivant la densité de probabilité $f(x)$.

La méthode de rejection de Von Neumann consiste à échantillonner la densité de probabilité $f(x)$ ayant une valeur maximale F_{max} et une valeur de x comprise dans un intervalle $[x_{min}, x_{max}]$. Une valeur de x est tirée suivant une loi uniforme sur le segment $[x_{min}, x_{max}]$. Un nombre aléatoire η distribué uniformément sur le segment $[0, 1]$ est généré. La valeur x est acceptée si $f(x)/F_{max} > \eta$, sinon elle est rejetée. Cette méthode est évidemment plus couteuse en temps de calcul que la méthode de transformation, puisqu'une partie des tirages est simplement rejetée.

Transport des particules dans la méthode Monte-Carlo

La simulation du transport d'une particule est effectuée en suivant son évolution (énergie, trajectoire) dans le milieu. À un instant donné, la particule est caractérisée par sa position dans l'espace, sa direction et son énergie. Dans ce travail on s'est focalisé essentiellement sur les interactions photon-matière.

La simulation de la vie d'un photon, de sa naissance jusqu'à son absorption totale ou sa sortie du milieu étudié prend en compte les différents événements possibles par un tirage aléatoire suivant les probabilités liées à chaque type d'interaction possible en fonction des matériaux définis (ou milieu atténuateur). Chacune des interactions est caractérisée par une section efficace σ_i :

- effet photoélectrique (σ_{PE});
- diffusion Compton (σ_C);
- création de paire (σ_{paire});
- diffusion Rayleigh (σ_R).

Considérons par exemple un photon juste après une collision. La première étape consiste à sélectionner la distance qu'il va parcourir avant la prochaine collision. Ceci est réalisé à partir du libre parcours moyen λ associé à la section efficace totale σ_{tot} du photon. Une distance x est alors tirée suivant la loi de probabilité exponentielle $e^{-x/\lambda}$. Ensuite, le processus d'interaction est choisi à partir des sections efficaces partielles σ_i . Un nombre aléatoire X est alors tiré entre 0 et 1 :

- si $0 \leq X < \left[\frac{\sigma_{PE}}{\sigma_{tot}} \right] \Rightarrow$ effet photoélectrique;
- si $\left[\frac{\sigma_{PE}}{\sigma_{tot}} \right] \leq X < \left[\frac{\sigma_{PE} + \sigma_C}{\sigma_{tot}} \right] \Rightarrow$ diffusion Compton;
- si $\left[\frac{\sigma_{PE} + \sigma_C}{\sigma_{tot}} \right] \leq X < \left[\frac{\sigma_{PE} + \sigma_C + \sigma_R}{\sigma_{tot}} \right] \Rightarrow$ diffusion Rayleigh;
- si $\left[\frac{\sigma_{PE} + \sigma_C + \sigma_R}{\sigma_{tot}} \right] \leq X < \left[\frac{\sigma_{PE} + \sigma_C + \sigma_R + \sigma_{paire}}{\sigma_{tot}} \right] \Rightarrow$ création de paires, si l'énergie du photon $\geq 1,022$ MeV.

Estimateur R (%)	Qualité du résultat
50 à 100	Non significatif
20 à 50	Fiable
10 à 20	Discutable
$5 \leq R < 10$	Généralement fiable
$R < 5$	Fiable

TAB. 2.2 – Critères de fiabilité d’une simulation

2.2.3 Incertitudes statistiques

Toute valeur mesurée ou calculée, à l’exception du décompte d’éléments, possède une certaine incertitude. La prise en compte de cette incertitude est essentielle pour une interprétation correcte des résultats et les conclusions qui en découlent. Dans le cas d’un calcul de grandeur physique par la méthode Monte-Carlo deux sources d’incertitudes sont à considérer :

- **Catégorie A** : ce sont les incertitudes dites statistiques, elles proviennent des déviations aléatoires et sont différentes à chaque nouveau calcul.
- **Catégorie B** : ce sont les incertitudes dites systématiques, elles sont liées aux paramètres de la simulation (choix de section efficace, nombres pseudo-aléatoires générés, ...).

En pratique, les incertitudes statistiques sont généralement données par le code Monte-Carlo. En revanche, les incertitudes systématiques nécessitent en général un gros travail d’analyse des différents éléments du calcul [Dziri 2013].

2.2.4 Fiabilité d’une simulation

Pour un calcul de simulation, plusieurs grandeurs statistiques sont estimées, testées et affichées dans le fichier de sortie (résultats). Ces grandeurs renseignent sur la précision du résultats du calcul Monte-Carlo. A chaque estimation, nommée tally, de la quantité demandée par l’utilisateur, une incertitude statistique relative R est associée. L’incertitude R est proportionnelle avec $1/\sqrt{N}$, avec N est le nombre d’histoires [MCNP 2003]. Le tableau 2.2 donne la fiabilité d’un calcul Monte-Carlo en fonction de l’erreur relative R [Pelowitz 2007] :

2.2.5 Le code MCNP6

Le code MCNP (Monte Carlo N-Particle) a été développé par le Laboratoire de Los Alamos dans le cadre du projet Manhattan. Il est utilisé essentiellement dans

l'étude du transport des photons, des neutrons et des électrons seuls ou combinés dans des configurations géométries tridimensionnelles complexes constituées de dans les réacteurs nucléaires, etc. Au cours des années 90, MCNP a été étendu à certaines particules lourdes chargées dans sa version MCNPX (Monte Carlo N-Particles eXtended), ce qui a rendu possible la simulation des protons et des ions lourds [Dziri 2013]. Le code MCNPX possède le même principe de fonctionnement que MCNP, mais il permet le transport de 34 types de particules sur une gamme d'énergie allant de 1 keV à 100 GeV. MCNPX a encore l'avantage de modéliser au mieux les interactions rayonnement-matière, à chaque interaction une particule est transportée en fonction des processus physiques simulés. Le code suit d'une part l'histoire de chaque particule depuis sa création à sa disparition par fuite ou par absorption au cours d'une réaction et d'autre part, toutes les particules secondaires créées.

La version utilisée est la version MCNP6 qui est apparue suite au regroupement des versions MCNP5 et MCNPX. La fusion des deux différentes équipes travaillant sur ces deux versions a permis l'obtention d'un code plus évolué [Degrelle 2017]. Les paramètres requis pour la simulation sont résumés dans un fichier d'entrée crée par l'utilisateur et relu par MCNP6 au départ de la simulation. Les résultats sont affichés dans le fichier de sortie avec les différentes observables en fonction des tallies demandés.

2.2.6 Structure du fichier d'entrée

Le code MCNP6 s'exécute à partir d'un fichier d'entrée qui se décompose en trois grandes parties, séparées par une ligne vide (figure 2.13) : les cartes des cellules, les cartes des surfaces et les cartes des données. Les deux premières permettent de construire l'ensemble géométrique voulu par la définition des cellules et des surfaces. La troisième partie permet de définir tous les processus physiques.

Généralement, le fichier d'entrée définit :

- la géométrie du problème à simuler ;
- la description des matériaux utilisés et la sélection des sections efficaces correspondantes à chacun de ces matériaux ;
- la définition de la source de particules incluant la nature des particules que l'on souhaite suivre, leur énergie, la position de la source et la direction initiale des particules émises par la source ;
- les techniques de réduction de variance pour diminuer les incertitudes statistiques et améliorer des résultats.

```

1ere Partie
  Définitions des cellules
    ----- Blanc -----
2eme Partie
  Définitions des surfaces
    ----- Blanc -----
3eme Partie
  Définitions:
    - Source
    - Intervalle d'énergie
    - Types de résultats voulus ( Tally)
    - Nombres d'histoires

```

FIG. 2.13 – Structure du fichier d'entrée MCNP.

Définition des cellules

Les cellules sont des boîtes constituant la configuration géométrique à simuler, de forme simple et homogène. Elles sont formées par la combinaison de plusieurs surfaces à l'aide des opérateurs booléens : d'intersection, d'union ou d'exclusion. Généralement, une cellule est décrite par un ensemble de paramètres définissant : les numéros de cellules et de matériaux attribués par l'utilisateur, la densité de matériau, les numéros des surfaces désignant la cellule avec les signes adéquats et les importances pour chaque type de particule. Un numéro de surface muni d'un signe (-) indique l'intérieur de la cellule, sinon son inverse. La formulation pour définir une cellule est la suivante [Nachab 2003] :

$$j \ m \ d \ geom \ params$$

avec

j : numéro de la cellule donnée par l'utilisateur,

m : numéro de la cellule si elle n'est pas vide,

d : densité du matériau en g.cm^{-3} (précédé par le signe -) ou en atomes.cm^{-3} (précédé par le signe +)

$geom$: signe de la cellule et les différents opérateurs booléens (espace, : et #),

$params$: spécification optionnelle utilisant des mots clés comme IMP, Vol,...

Définition des surfaces

C'est dans ce bloc que sont définies la géométrie et les dimensions des différents matériaux à simuler. La création des surfaces peut se faire de plusieurs manières : par des équations, des points ou des macrobodies. Dans ce travail, on a utilisé la troisième méthode des macrobodies. Les surfaces macrobodies sont des formes géométriques déjà prêtes à l'utilisation. Les formes prédéfinies sont : RCC (cylindre), REC (cylindre elliptique), RPP (parallélépipède), SPH (sphère), WED (cale, coin), BOX (boite), TRC (cône), HEX (hexagone), T (tore circulaire), P (plan). MCNPX retranscrit ces géométries sous forme d'équations de surface. Les facettes sont assignées des numéros individuels sélectionnés par l'utilisateur en vue de leur exploitation dans les différents estimateurs.

Données physiques

Ce bloc permet de fournir toutes les caractéristiques des problèmes physiques autres que la géométrie, tels le type de particules transportées, les propriétés physiques des matériaux, la source de rayonnement, les estimateurs, les bibliothèques de sections efficaces à utiliser, la quantité et le type des données fournies dans le fichier de sortie, etc.

La source des rayonnements émis dans un problème est définie dans la carte SDEF du fichier d'entrée. Cette commande offre la possibilité de définir une très grande variété de sources. Les principaux paramètres à définir sont :

PAR : le type de particule que la source émet (p pour photon, n pour neutron, e pour électron et h pour proton).

POS : la position de la source

ERG : définit l'énergie en MeV de la source.

CEL : la cellule contenant la source

RAD : le rayon de la source si celle-ci est étendue

AXS : la direction d'émission de la source

EXT : la hauteur de la source

WGT : l'activité relative au temps d'acquisition de la source telle que : $WGT = \sum(A \times I) \times t$, où A est l'activité, I le rapport d'embranchement et t le temps d'acquisition.

Il existe d'autres paramètres supplémentaires permettant à une variable de prendre plusieurs valeurs. Pour les introduire, il faut inscrire la distribution Dn (n étant le numéro de la distribution) à la place d'une valeur numérique fixe. Chaque distribution utilisée est ensuite paramétrée par une ou plusieurs cartes : *SIn* (Source Information Card), *SPn* (Source Probability Card) et *SBn* (Source Bias Card). Le nombre total d'histoires à transporter dans le calcul est indiqué par la carte *NPS*. Le type de

Estimateur	Spécification	Type de particule
F1	Courant surfacique	n, p, e ,pe
F2	Flux surfacique moyen	n, p, e, pe
F4	Flux moyen sur une cellule	n, p, e, pe
F5	Flux en un point	n, p
F6	Énergie moyenne déposée dans une cellule	n, p, e
F7	Énergie moyenne de fission dans une cellule	n
F8	Pulse height tally	n, p, e, pe

TAB. 2.3 – Différents types d'estimateurs utilisés par MCNP

particules est précisé dans la carte *MODE*.

Estimateurs

Les estimateurs (tallies) sont des observables permettant de spécifier la grandeur physique que l'on veut obtenir à la fin du calcul MCNPX. Huit types d'estimateurs peuvent être utilisés simultanément dans MCNPX. Chacun d'entre eux fournit le résultat sous forme normalisée par histoire. Pour chaque estimateur, il faut préciser le type de particule ainsi que la surface à travers laquelle ou la cellule dans laquelle le résultat sera estimé. Les estimateurs se présentent de la manière suivante : $Fkn : X C1 C2...Ci$

Avec k : un nombre entre 0 et 99 pour différencier les tallies de même type.

n : un chiffre entre 1 et 8 pour indiquer le type d'estimateur calculé.

X : le type de la particule.

Ci : une cellule sur laquelle on veut calculer l'estimateur.

Le tableau 2.3 représente les différents types d'estimateurs disponible dans MCNPX. Notons que les estimateurs peuvent être associés à d'autres cartes afin d'avoir un résultat autre que celui spécifié par la carte Fn .

Matériaux

Comme indiqué précédemment les cellules sont constituées de matériaux qui sont définis par la carte Mn . Les éléments qui composent les matériaux sont définis selon la notation [Nachab 2003] :

$$Mn \text{ Z AID1 } fraction1 \text{ Z AID2 } fraction2, \dots$$

où Z AID indique l'élément i utilisé et il est décomposé en ZZZAAA.abx, où Z est le numéro atomique de l'élément considéré, AAA son nombre de masse, ab la librairie

des sections efficaces à utiliser et x la classe de la donnée. La fraction présente la composition élémentaire du constituant dans le matériau. Elle peut être définie en terme de fraction atomique ou en terme de pourcentage massique précédé par un signe moins. Dans le cas des photons et les éléments naturels, la valeur de AAA se ramène à 000 et ZAID s'écrit ZZZ000.

Réduction de la variance

L'efficacité d'un calcul de simulation dépend de deux paramètres principaux : la variance et le temps de calcul. Pour réduire les erreurs liées à la statistique, on peut augmenter le nombre de particules générées qui va réduire l'écart-type des histoires, mais par conséquent le temps de calcul augmente. Pour cette raison, la méthode de réduction de variance a été développée pour réduire l'incertitude sur la mesure sans pour autant trop augmenter le temps de calcul. Plusieurs méthodes de réduction de variance existent [Booth 1985] :

- Méthode de troncature : consiste à tronquer les espaces qui ne contribuent pas d'une manière significative aux comptages. Pour cela, on élimine les espaces sans importance dans le modèle final ou réduire la taille qui va permettre de minimiser le temps de calcul.
- Méthode du contrôle de la population : elle utilise la division des particules et la roulette russe afin de contrôler le nombre d'échantillons dans chaque région de l'espace. Dans les régions prépondérantes, on suit un nombre important de particules avec un poids faible. Le nombre faible de particules est suivi avec un poids fort.
- Méthode de médication de l'échantillonnage : l'échantillonnage s'applique pour les distributions qui envoient des particules dans une direction donnée ou qui se trouvent dans un intervalle d'énergie ou qui changent la nature de l'interaction dans le milieu. C'est une méthode qui modifie l'échantillonnage statistique afin d'augmenter le nombre de comptage par particule.
- Méthode partiellement déterministe : elle utilise des techniques déterministes telle que des estimateurs de l'événement ou le contrôle de la séquence des nombres aléatoires.