

Table des matières

INTRODUCTION GENERALE	1
CHAPITRE 1 – INTRODUCTION, CONTEXTE ET ENJEUX	5
1.1 ASSAINISSEMENT-DEMANTELEMENT ET ENJEUX ASSOCIES	5
1.1.1 Contexte	5
1.1.2 Caractérisation radiologique	8
1.1.3 Plan d'assainissement nucléaire des structures du génie civil	10
1.1.4 Projet CaPSuD	13
1.2 ÉLÉMENTS DE PHYSIQUE	14
1.2.1 Rayonnement gamma	14
1.2.2 Particule β^-	17
1.3 SCINTILLATION ORGANIQUE	19
1.3.1 Système π -électronique	20
1.3.2 Processus primaires	21
1.3.3 Luminescence	22
1.3.4 Scintillateurs usuels	24
1.3.5 Modèle du rendement de scintillation, loi de Birks	27
1.4 CONCLUSIONS	32
CHAPITRE 2 – BRIQUES TECHNOLOGIQUES DETECTEUR	41
2.1 PHOSWICH	41
2.1.1 Principe de fonctionnement	41
2.1.2 Discrimination du rayonnement incident	42
2.1.3 Domaines d'applications du phoswich	46
2.1.4 Utilisation du phoswich dans le projet CaPSuD	55
2.2 SIMULATION MONTE CARLO DU PROTOTYPE CAPSUD – PHOSWICH	57
2.2.1 Simulation Monte Carlo et instrumentation nucléaire	57
2.2.2 Simulation de la matrice de phoswich	59
2.3 FIBRES SCINTILLANTES	65
2.3.1 Principe de fonctionnement	65
2.3.2 Domaines d'applications des fibres scintillantes	68
2.4 CONCLUSIONS	78
CHAPITRE 3 – SPECTROMETRIE BETA AVEC DES FIBRES SCINTILLANTES	83
3.1 PRINCIPE DE DETECTION	83
3.1.1 Efficacité de piégeage	84
3.1.2 Auto-absorption du signal lumineux	89

Table des matières

3.1.3	Interface fibre-photomultiplicateur.....	92
3.1.4	Tube photomultiplicateur	94
3.2	DISPOSITIF EXPERIMENTAL ET ACQUISITIONS	98
3.2.1	Fabrication d'un détecteur basé sur des fibres scintillantes et paramétrage	98
3.2.2	Résultats d'acquisition	101
3.3	MODELE THEORIQUE DU DETECTEUR BASE SUR DES FIBRES SCINTILLANTES.....	107
3.3.1	Simulation Monte Carlo avec MCNP6.2.....	107
3.3.2	Luminescence des fibres scintillantes.....	109
3.3.3	Application du modèle théorique	112
3.3.4	Comparaison avec les données expérimentales.....	119
3.4	CONCLUSIONS	123
 CHAPITRE 4 – DISCRIMINATION BETA/GAMMA PAR UTILISATION DE GAINES DIFFERENTES		127
4.1	DEMONSTRATION DU PRINCIPE PAR SIMULATION MONTE-CARLO	127
4.1.1	Simulation MCNP6	127
4.1.2	Présentation du code ML-EM	130
4.1.3	Application de l'algorithme ML-EM aux données issues de la simulation	135
4.2	DEMONSTRATION EXPERIMENTALE DE LA METHODE DE DECONVOLUTION	136
4.2.1	Contraste entre deux émetteurs bêta	136
4.2.2	Déconvolution de spectres bêta	143
4.2.3	Étude sur l'écart de représentativité observé	148
4.3	DISCRIMINATION BETA/GAMMA.....	150
4.3.1	Déconvolution par ML-EM	150
4.3.2	Évaluation de l'activité bêta par taux de comptage	153
4.4	CONCLUSIONS	156
 CONCLUSION GENERALE.....		159
 LISTE DES FIGURES		163
 LISTE DES TABLEAUX.....		168
 VALORISATION SCIENTIFIQUE		170

Introduction générale

Le démantèlement et le déclassement des installations nucléaires sont des thématiques majeures en lien avec l'industrie nucléaire, ayant pour objectif le retour de l'installation à une zone classée comme non nucléaire, ou présentant un niveau d'exigence radiologique inférieur à l'état initial selon la définition de l'Autorité de Sureté Nucléaire (ASN). La caractérisation radiologique est donc une tâche essentielle : celle-ci permet de connaître l'état initial de l'installation en démantèlement, de surveiller son évolution au cours du chantier, et de vérifier l'absence de toute contamination une fois les travaux finalisés. Nous définissons dans le cadre de ce travail de thèse la caractérisation radiologique comme étant la localisation, l'identification et la quantification d'une contamination radiologique sur une surface donnée. Lorsqu'il s'agit de la caractérisation radiologique de sols, murs et plafonds, la surface totale à analyser peut rapidement devenir très importante, pouvant atteindre voire dépasser le million de mètres carrés pour certaines installations, comme pour le démantèlement des Usines de Diffusion Gazeuse (UDG) de George Besse I. De plus, les surfaces étudiées peuvent être rugueuses, ce qui entraîne des contraintes sur la mesure. En fonction de la contamination présente, différents mesurandés peuvent être présents et de natures variables, comme les particules alpha, les particules β^- , les rayonnements gamma, et les neutrons. On peut citer comme possibles contaminations les exemples suivants : contamination au plutonium (signatures alpha, bêta, et neutronique), contamination uranifère (signatures alpha, bêta et gamma), et contamination au ^{60}Co (signature bêta et gamma). Ces contaminations peuvent être de faible activité, de l'ordre de quelques kBq répartis sur une surface d'un mètre carré, ce qui implique de fortes contraintes en termes de limite de détection et de temps de mesure associé.

Les solutions techniques actuellement disponibles font appel à des sondes radiologiques, ou contaminamètre, qui sont capables de détecter des signatures spécifiques, souvent sans capacité de discrimination. L'objectif de ces sondes peut être de localiser des contaminations radioactives ou de caractériser un taux de comptage alpha ou bêta. Ces sondes sont généralement couplées à des spectromètres gamma haute résolution ou à des prélèvements étudiés en laboratoire, afin d'identifier et quantifier précisément les radionucléides présents. En l'état actuel des connaissances, les solutions technologiques disponibles industriellement présentent de nombreuses limitations. Tout d'abord, la caractérisation de grandes surfaces potentiellement contaminées avec des durées de chantier acceptables est limitée, avec par exemple des opérations prévues sur une dizaine d'années pour le démantèlement de l'usine militaire de Pierrelatte. Les systèmes industriels disponibles, comme les contaminamètres de type CoMo fabriqués par NUVIA pour la détection des particules alpha et bêta, présentent une surface de détection de l'ordre de la centaine de centimètres carrés et sont perfectibles dans le cadre de mesures dynamiques. Dans le cas de zones non planes, les systèmes actuels ne sont généralement pas déformables et ne permettent donc pas de s'adapter aux surfaces étudiées. Par ailleurs, le déploiement de systèmes basés sur la technique de mesure par comptage alpha serait inadapté pour cette application, compte tenu de la rugosité des surfaces. Enfin, il existe une limitation en matière de séparation des

Introduction générale

signatures radiologiques présentes durant une même mesure. Par exemple, l'utilisation des contaminamètres est fortement influencée par la présence d'un bruit de fond radiologique gamma, supérieur à quelques $\mu\text{Sv.h}^{-1}$. Ainsi, il est difficile d'estimer correctement les activités bêta présentes lorsqu'elles sont couplées à un bruit de fond gamma. Le ^{90}Sr est un produit de fission et émetteur bêta pur. Caractériser l'activité bêta du ^{90}Sr est complexe, car il est souvent associé à d'autres produits de fission émetteurs gamma, tel que le ^{137}Cs . Des solutions utilisant des facteurs d'échelles entre le ^{90}Sr et un traceur (le ^{137}Cs par exemple) permettent d'évaluer cette activité, mais ces méthodes ne sont pas toujours fiables et dépendent de la mesure du traceur. Le développement d'un détecteur bêta peu sensible aux rayonnements gamma ou doté de capacités de discrimination entre ces deux types de rayonnements est ainsi nécessaire. Cependant, les particules bêta émises lors des désintégrations sont caractérisées par un spectre d'émission continu ne présentant pas de formes caractéristiques uniques à chaque radionucléide. Dès lors, un flux bêta total est mesurable mais la détermination d'une activité bêta correspond à un radionucléide spécifique au sein d'une contamination est complexe. Par exemple, le ^{90}Sr est un émetteur bêta pur qui se désintègre vers le ^{90}Y lui aussi émetteur bêta pur. Le ^{137}Cs souvent présent avec le ^{90}Sr est également un émetteur bêta/gamma. Un détecteur capable de mesurer spécifiquement l'activité d'un radionucléide bêta devrait permettre de s'affranchir du signal gamma, et de déconvoluer tout autre signal bêta présent avec la signature recherchée.

Afin de répondre aux problématiques avancées, le projet CARNOT CAPSUD (CApteur Pixellisé SUrfacique et Déformable) a été monté et piloté par le CEA LIST en 2018. Ce projet, d'une durée de trois ans, rassemble plusieurs laboratoires du CEA LIST, notamment le Laboratoire Capteurs et Architectures Électroniques (LCAE), le Laboratoire de Modélisation, Simulation et Systèmes (LM2S), le Laboratoire Capteur Diamant (LCD), le Laboratoire National Henri Becquerel (LNHB) et les laboratoires du Service Intelligence des Données (SID). Le projet CAPSUD a pour objectifs : le développement d'un détecteur pixellisé et déformable, sa caractérisation sur un démonstrateur métrologique à multiples signatures radiologiques ; et a pour perspectives l'intégration du détecteur sur un système robotisé couplé à un dispositif de localisation. La conception du détecteur et l'élaboration du modèle numérique associé est porté par le LCAE, notamment au travers de ces travaux de thèse. Deux solutions techniques seront considérées et investiguées pour constituer le détecteur : les fibres scintillantes et les *phosphor sandwichs* (*phoswich*, littéralement « sandwich de scintillateurs »). Dans le premier cas, le détecteur pourrait être composé d'un tissage de fibres horizontales et verticales, capable de localiser par croisement des informations. La déformabilité intrinsèque des fibres assurerait alors l'adaptabilité avec la surface mesurée. Dans le second cas, les *phoswich* pourront être divisés en unités de détection montés sur supports déformables. Chaque unité pourrait ainsi être une subdivision de la surface mesurée, correspondant donc à la résolution de la localisation. Par ailleurs, les *phoswich* représentent une technologie déjà éprouvée dans le contexte du démantèlement et déclassement. En revanche, les fibres scintillantes, étant

Introduction générale

caractérisées par une déformabilité intrinsèque leur permettant de s'adapter à la surface mesurée et la possibilité d'être manufacturées sur plusieurs kilomètres de longueur, montrent un fort potentiel d'innovation et constitueront donc la brique technologique la plus prometteuse pour ces travaux.

Rapport-Gratuit.com

Chapitre 1 – Introduction, contexte et enjeux

Dans ce chapitre, nous allons introduire les problématiques associées au démantèlement et déclassement des installations nucléaires de base, au travers de l'étude de l'état actuel du démantèlement dans le monde, puis en Europe et enfin en France. À la suite de cette étude sont présentés les principaux principes physiques et chimiques qui seront utiles à la bonne compréhension de ce mémoire de thèse.

1.1 Assainissement-démantèlement et enjeux associés

1.1.1 Contexte

L'assainissement-démantèlement (A&D) désigne l'ensemble des opérations permettant de réduire la radioactivité résiduelle, après l'arrêt des activités d'une installation nucléaire, par la décontamination ou l'évacuation des matières radioactives [1], qui se traduit par une extraction contrôlée des contaminations radioactives. Trois catégories d'installations sont concernées par l'A&D : les installations du cycle du combustible, les réacteurs nucléaires, et les installations accidentées. Chaque catégorie présente des caractéristiques propres, notamment en termes de radionucléides présents et d'activités associées, ce qui nécessite d'avoir recours à des protocoles d'intervention spécifiques. L'industrie nucléaire profite d'un retour d'expérience, fruit de divers chantiers finalisés dans le monde, sur lequel elle se base afin d'optimiser le déroulement des opérations de démantèlement. Aux États-Unis, le *Nuclear Energy Institute* (NEI), consortium d'industriels du nucléaire américain, a identifié en août 2016 [2] dix réacteurs nucléaires commerciaux dont le démantèlement et le déclassement (D&D) sont terminés, et dont les installations sont soit considérées comme déclassées ou comme lieux de stockage de combustible. Dix-neuf autres réacteurs producteurs d'électricité sont en cours de démantèlement. En Allemagne, au mois de mars 2011, on note huit réacteurs expérimentaux officiellement démantelés [3]. Depuis le 30 mai 2011, tous les réacteurs allemands producteurs d'électricité encore en activité sont voués à stopper leurs activités à l'horizon 2022. En effet, l'accident de Fukushima-Daiichi le 11 mars 2011 au Japon, dont la gravité est illustrée sur la figure 1-1, est l'évènement qui a conduit l'Allemagne, mais aussi la Belgique et la Suisse, à arrêter leur production électrique d'origine nucléaire, et a poussé le Japon à réduire drastiquement l'activité de son parc électronucléaire. Il existe aussi un retour d'expérience en France, car trente-six installations nucléaires de base sont en cours de démantèlement ou dans un état final, au mois de janvier 2019 [4], et dix-neuf ont été démantelées [5]. On peut citer comme installations totalement démantelées le réacteur de recherche EL2 du CEA Paris-Saclay, l'usine FBFC (filiale de Framatome) de Pierrelatte ou

encore l'usine prototype AT1 d'Orano Cycle du site de la Hague. Dès lors, le démantèlement d'installations nucléaires concerne une multitude d'acteurs situés dans différents pays. Les principaux acteurs français concernés par ces activités sont notamment le Commissariat à l'Énergie Atomique et aux Énergies alternatives (CEA), Électricité de France (EDF) et Orano.



Fig. 1-1. Réacteur numéro 3 de la centrale de Fukushima-Daiichi après le tsunami de mars 2011. Source : REUTERS, 24 septembre 2011.

La durée totale des travaux de démantèlement dépend de l'installation considérée. Elle est généralement comprise de plusieurs années à quelques dizaines d'années pour des réacteurs producteurs d'électricité ou de recherche. On note par exemple une fin de traitement des déchets du réacteur G1 du CEA Marcoule par le projet CIGEO estimé en 2140 [6]. Pour des installations liées à des accélérateurs de particules, ces chantiers peuvent en revanche durer quelques mois. Ainsi, le démantèlement d'un ancien accélérateur linéaire de type Sagittaire de la plateforme SAPHIR du CEA Paris-Saclay a duré un mois seulement. On remarque donc la grande variabilité des durées des chantiers de démantèlement : il est donc difficile d'estimer la durée totale du chantier, qui varie en fonction du type d'installation, de son historique et de la complexité des opérations à réaliser. Dans tous les cas de figure, les chantiers de démantèlement présentent de fortes spécificités en raison de la nécessaire maîtrise du risque radiologique et de la sûreté nucléaire, ces risques s'ajoutant à ceux déjà présents dans tout chantier de grande envergure. L'autre conséquence directe d'un chantier de longue durée aux exigences de sécurité contraignantes est son coût total. Par exemple, le démantèlement de l'usine de traitement des combustibles usés (UP1) de Marcoule, voir figure 1-2, a débuté en 1997, année de l'arrêt définitif de cette installation. Il s'agit de la première usine de retraitement à être démantelée au monde [7]. Les opérations de démantèlement des

procédés de dégainage au raffinage sont achevées, tandis que celles des procédés de dissolution et de traitement des raffinats de haute activité devraient prendre fin entre 2032 et 2037. La fin du traitement de silos contenant plusieurs milliers de mètres cube de déchets doit survenir dans le meilleur des cas en 2035 [8]. Le coût global du démantèlement de cette installation a été initialement estimé à 5,6 milliards d'euros [9].



Fig. 1-2. Opération de démantèlement dans l'usine UP1 de Marcoule. Source : FranceTNP.

Autre exemple au sein du secteur du démantèlement en France, le réacteur Chooz-A possédait en 2018 un devis à terminaison de 491 millions d'euros, estimation augmentée par rapport à 2012 de 39%. Notons que les anciens réacteurs nucléaires à l'uranium naturel graphite gaz (UNGG), ainsi que les anciens réacteurs à neutrons rapides à caloporteur sodium (RNR-Na), PHENIX et SUPERPHENIX, possèdent des coûts de démantèlement plus élevés que des réacteurs à eau pressurisée (REP), à cause de leurs spécificités techniques. Dans le premier cas, le graphite est activé et friable et présente un risque de dispersion important, et dans le second cas, la présence de sodium hautement inflammable à l'air libre complique les opérations. Ainsi, les devis à terminaison pour les trois réacteurs UNGG de Chinon s'élevaient en 2018 à plus de 2,5 milliards d'euros et à plus d'1,5 milliards d'euros pour le réacteur à neutrons rapides Superphénix, pour des travaux dont la fin est prévue à l'horizon 2030 [10].

La combinaison des facteurs de temps, de contrainte sécuritaire et de coût, impose une optimisation et une innovation technique, afin d'augmenter la cadence des opérations de démantèlement. Il est donc nécessaire que les acteurs concernés par l'A&D s'appuient sur des projets de recherche et développement de détecteurs ou de techniques de mesure, visant à réduire les coûts globaux ainsi que la durée totale du démantèlement. L'objectif est donc de rendre viable le cycle électronucléaire français, en maîtrisant complètement le cycle de vie de ces installations : c'est-à-dire la capacité à construire, exploiter et finalement démanteler en

toute sécurité. Pour cela, il est nécessaire de caractériser radiologiquement l'installation, ce qui comprend les équipements mais aussi les structures du génie civil.

1.1.2 Caractérisation radiologique

La caractérisation radiologique désigne de manière générale la localisation, l'identification et la quantification des contaminations radioactives présentes. En fonction de la phase du cycle de vie de l'installation, la caractérisation radiologique a plusieurs objectifs [11] :

- Pendant la phase d'implémentation : des mesures de bruits de fond sont effectuées afin d'avoir un niveau radiologique naturel.
- Pendant la phase de construction : les compositions des matériaux de construction sont archivées afin d'évaluer les taux de réaction d'activation et les contributions au bruit de fond de l'uranium, du thorium et du potassium entre autres.
- Pendant l'exploitation : des mesures sont régulièrement conduites pour établir des débits de dose et des niveaux de contamination. Des mesures supplémentaires sont conduites lors de contaminations provenant d'accidents d'exploitation.
- Pendant la phase de transition, entre la fin de l'exploitation et le début du démantèlement : des campagnes de mesures sont effectuées afin d'appuyer le développement d'un plan de démantèlement.
- Pendant le démantèlement : la caractérisation radiologique permet d'évaluer les doses reçues par le personnel, de caractériser les déchets produits, de valider le déclassement de déchets radioactifs en déchets conventionnels, entre autres.
- Pendant la phase de déclassement : une dernière évaluation radiologique du site et des structures du génie civil est nécessaire pour valider le processus de déclassement de l'INB.

Les phases intervenant après la fin des activités d'une INB sont le démantèlement et le déclassement, dont les problématiques de coût et de durée ont été présentées précédemment. La phase de démantèlement commence par un état des lieux radiologique incluant notamment la recherche de points chauds, afin d'éviter une irradiation trop importante des travailleurs. Cette recherche de points chauds permet de localiser les zones fortement radioactives à démanteler en priorité. Si l'irradiation est due à des sources gamma, on peut utiliser une caméra gamma. Son cadre d'application couvre une gamme de débit de dose allant de quelques nSv.h^{-1} à plusieurs dizaines de Sv.h^{-1} [12]–[14]. Elle permet notamment la superposition d'une image visible et d'une image gamma, afin de localiser les

zones irradiantes présentes dans le champ de vue du système. Si la signature gamma est complexe et provient de plusieurs contributeurs, une utilisation conjointe avec un spectromètre gamma est possible. En fonction des besoins, des détecteurs de plus en plus résolus seront utilisés, du scintillateur inorganique ($\text{NaI}(\text{TI})$, CeBr_3) [15], au semi-conducteur (CdZnTe) jusqu'au germanium hyper pur (HPGe) [16]. Ces sources irradiantes peuvent donc être localisées, identifiées et quantifiées, puis retirées.

La suite des travaux de démantèlement est caractérisée par un suivi radiologique continu, qui permet de mettre à jour les cartographies construites lors de l'état initial. Par exemple, la comparaison des cartographies avant et après opérations de démantèlement permet de constater le retrait de toute source radioactive. On estime ainsi, à partir de la présence ou non de points chauds, la possibilité pour des travailleurs de réaliser des mesures au contact, ce qui permet une caractérisation alpha et/ou bêta. Ici, la contrainte réside dans la présence de contaminations de faibles activités, pouvant être disséminées par les travailleurs et menant à une ingestion d'éléments radioactifs, outre la présence non détectée de points chauds. Lors de ces opérations, différentes méthodes peuvent être employées comme le prélèvement d'échantillons sur site analysés en laboratoire. Cette méthode est utilisée sur des contaminations de faibles activités ou mettant en jeu des radionucléides généralement non compatibles avec une caractérisation sur site, comme les émetteurs alpha [11]. Ce processus permet l'utilisation de méthodes de caractérisation plus précises pour identifier, quantifier de très faibles activités pour tout radionucléide, ou encore caractériser dans des environnements à fort débit de dose gamma. Cependant, ce processus est plus lent, nécessite le transport de sources radioactives, génère des déchets supplémentaires et se révèle être au final plus coûteux. Un exemple d'application de cette méthodologie est la réalisation de frottis par des équipes de mesures à Fukushima pour une caractérisation alpha. Les zones de frottis ont un débit de dose gamma qui dépasse 10 mSv/h [17]. L'autre exemple classique est la caractérisation du tritium, émetteur bêta de faible énergie (énergie maximale de 18,6 keV, énergie moyenne de 5,7 keV), difficile à caractériser *in-situ* et qui se fait par prise d'échantillon et analyse par scintillation liquide [18]. Dans le même contexte, la caractérisation d'émetteurs bêta spécifiques, souvent convolus avec un signal gamma ou bêta parasite, peut se faire par des corrélations entre activités gamma et bêta. Celles-ci sont développées à partir de caractérisations déjà effectuées ou à partir de l'historique du site [19]. Par exemple, le ^{90}Sr est un produit de fission émetteur bêta pur, trouvé conjointement avec du ^{137}Cs , émetteur bêta et gamma. En caractérisant la contamination associée au ^{137}Cs par spectrométrie gamma, il est possible d'utiliser des facteurs d'échelle pour évaluer théoriquement la contamination induite par le ^{90}Sr [20]. Le ^{137}Cs est donc utilisé comme traceur de la présence de ^{90}Sr . C'est le principe des spectres types, largement déployé dans l'industrie. Cette méthodologie possède néanmoins de fortes limitations, notamment sur la fiabilité de l'historique du site considéré,

et la validité des hypothèses de facteurs d'échelle entre radionucléides. Pour la caractérisation alpha et bêta, des contaminamètres ou systèmes d'autoradiographie [21] sont utilisés. Le contaminamètre CoMo, classiquement utilisé, possède une surface de mesure de l'ordre de quelques dizaines de centimètres carrés, ce qui le rend inadapté aux caractérisations de grandes surfaces. Sa surface de mesure plane ne lui permet pas de s'adapter aux surfaces caractérisées. Pour le mesurande alpha, notons l'existence de la caméra alpha [22], qui mesure la luminescence du diazote de l'air au passage des particules alpha. Cette dernière mesure est difficile à réaliser en lumière ambiante qui vient perturber la détection de la luminescence. Quel que soit le détecteur utilisé, la mesure bêta est affectée par la présence d'un signal gamma qui, lorsque aucune correction n'est apportée, va entraîner une surestimation de la quantification de l'activité bêta présente. L'utilisation de méthodes de discrimination bêta/gamma est alors recommandée.

Lorsque l'évacuation de l'ensemble des structures à l'intérieur des installations est terminée, il ne reste plus qu'à caractériser les structures elles-mêmes, comportant les murs, sols et plafonds. Ces caractérisations présentent des problématiques spécifiques, notamment la faible activité attendue de contamination résiduelle, et la grande surface totale à caractériser. Pour cela, nous allons définir dans le paragraphe suivant l'assainissement des structures du génie civil *post* démantèlement, au travers du plan d'assainissement, puis nous introduirons les problématiques associées qui forment le cadre applicatif de ce mémoire de thèse.

1.1.3 Plan d'assainissement nucléaire des structures du génie civil

Le plan d'assainissement nucléaire des structures du génie civil est un plan général présentant les diverses étapes concernant l'assainissement des infrastructures, après le retrait des équipements assurant le fonctionnement d'une installation nucléaire de base [23]. Ce plan présente les lignes directrices guidant les actions de terrain et peut être adapté en fonction des contraintes rencontrées. Avant le lancement des activités de démantèlement d'une installation nucléaire de base, l'exploitant est tenu d'évaluer la quantité de déchets radioactifs qui seront générés, tant les déchets provenant de contaminations que ceux provenant de l'activation. Pour cela, un zonage des déchets nucléaires et conventionnels est réalisé et entretenu tout au long de la vie de l'installation. Ce zonage se construit tout d'abord autour de l'étude *a priori* à partir des modes de fonctionnement de l'installation, puis est réévalué lorsque l'installation est opérationnelle. La séparation entre zonage de déchets nucléaires et conventionnel est construite autour de plusieurs lignes de défense, indépendantes et successives, assurant la non dispersion des contaminations radioactives :

- Première ligne de défense

La première ligne de défense concerne une étude physique sur les différentes structures concernées par les zones à déchets nucléaires. Cette étude a pour but d'évaluer les propriétés physico-chimiques associées à la rétention de radionucléides ou leur susceptibilité à l'activation, afin de quantifier l'activité présente à l'intérieur de la structure et d'évaluer la profondeur de cette contamination radioactive. On parle alors de profil de répartition. Les problématiques d'absorption de radionucléides par les infrastructures (mur, sols, plafonds) sont prises en compte à ce stade, par la définition d'une épaisseur des structures présentes en zone déchets nucléaires. Les incertitudes sur la détermination de cette épaisseur sont compensées au travers de l'ajout d'une épaisseur supplémentaire dite forfaitaire [24], on parle ainsi de caractère conservatif de l'épaisseur à retirer. L'épaisseur totale à retirer en zone déchets est donc la somme de l'épaisseur calculée et de l'épaisseur forfaitaire, présentée sur la figure 1-3.

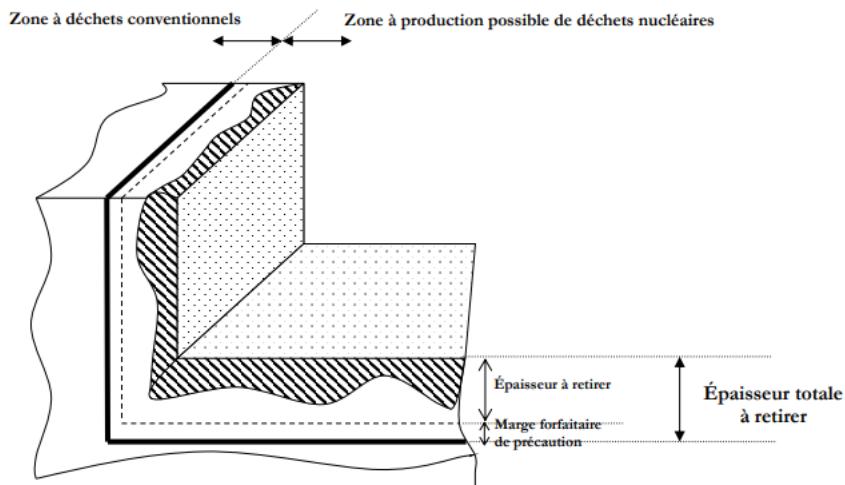


Fig. 1-3. Vérification du caractère conservatif de l'épaisseur à retirer. Source [24].

Dans un cas général, cette étude est construite à l'aide de simulations ou de méthodes statistiques. Cependant, des cas spécifiques peuvent empêcher la construction de cette étude, par exemple, dans le cas des installations anciennes où ces informations ne sont pas ou plus disponibles. D'autres méthodologies peuvent alors être employées, sous réserve que l'analyse soit globale et non ponctuelle vis-à-vis des dimensions des surfaces à traiter. Ainsi, le zonage déchets ne peut pas être construit sur une campagne de mesures radiologiques, mais peut être confirmé par des mesures ponctuelles.

- Deuxième ligne de défense

La deuxième ligne de défense consiste en un contrôle radiologique afin de vérifier si les objectifs d'assainissement sont atteints, après retrait de l'épaisseur estimée à la première ligne de défense. Il s'agit donc de s'assurer que les structures peuvent repasser en zone de déchets conventionnels. La caractérisation radiologique associée est basée sur les méthodes utilisées dans le contexte de contaminations résiduelles présentées précédemment, soit les mesures surfaciques et la prise d'échantillons. Cependant, dans le contexte des radionucléides absorbés par les structures, des mesures dites massiques sont aussi mises en place et permettent d'évaluer la profondeur d'intégration de la contamination. De plus, les méthodes de mesures déployées ici devront être différentes de celles employées lors de la première ligne de défense, afin d'éviter tout biais de vérification. La prise en compte de la limite de détection des appareils est ici critique, car elle permet de définir la plage de décision de déclassement située au-dessus de la limite de détection et en-dessous de l'objectif d'assainissement.

Bien qu'on note qu'une dispersion statistique des points de contrôle est envisageable, selon la norme ISO TR 8550 par exemple, une surface minimum est à caractériser afin d'atteindre une précision statistique suffisante. Cela correspond donc à une surface non négligeable, pouvant atteindre le million de mètres carrés comme c'est le cas actuellement dans l'installation nucléaire de base secrète (INBS) des usines de diffusion gazeuse de Pierrelatte. À l'heure actuelle, aucune méthodologie n'est considérée comme idéale : les méthodes de mesures reposent soit sur l'utilisation de contaminamètres à faible surface de mesure, soit sur des spectromètres gamma très résolu couplé à des tests d'hypothèses [25]. Si le contaminamètre apporte une localisation à l'ordre du centimètre carré par une mesure au contact, le temps de caractérisation total avec cette faible surface de mesure est décuplé, et ce dernier est sensible à un bruit de fond gamma qui entraîne une surestimation du comptage bêta. Par ailleurs, sa surface plane le rend inadapté pour le contrôle des surfaces non planes comme des piliers par exemple. De l'autre, le spectromètre gamma peut caractériser plusieurs mètres carrés à la fois, de différentes géométries, mais la localisation précise au centimètre carré n'est pas directement accessible.

- Troisième ligne de défense

La dernière ligne de défense repose sur un contrôle radiologique des déchets conventionnels sortant de l'INB afin de s'assurer de la non dispersion de contaminations radioactives. Ce contrôle s'effectue jusqu'au déclassement total de l'INB.

Comme nous l'avons vu sur la deuxième ligne de défense, il existe des problématiques concernant la caractérisation radiologique de grandes surfaces sur des contaminations de faibles activités. Ces surfaces ne sont pas forcément planes et peuvent prendre la forme de piliers, d'escaliers ou encore de surfaces présentant des défauts. Il existe donc un intérêt important pour la recherche d'un système de mesure déformable, adapté à la caractérisation radiologique des grandes surfaces, pour des activités pouvant atteindre 4 kBq/m^2 et 1 kBq/0,1 m^2 . C'est dans l'optique de lever ce verrou technologique majeur que le projet Carnot CaPSuD a été monté. Ces travaux de thèse s'inscrivent dans le cadre de ce projet.

1.1.4 Projet CaPSuD

Le projet CaPSuD est un projet Carnot, c'est-à-dire un partenariat entre le ministère de l'Enseignement Supérieur et les acteurs de la recherche, au travers d'un financement de projet ayant pour trait des partenariats de recherche public-privé. CaPSuD est l'acronyme de « Capteur Pixellisé Surfacique et Déformable ». Ce projet, d'une durée de 36 mois, a pour objectif de développer une technologie de capteur souple et/ou déformable, de grande surface, permettant de se conformer à la surface d'un mur, d'un sol, d'un équipement, pour en cartographier le niveau de radioactivité. La surface totale visée devant être caractérisée est de l'ordre de quelques millions de mètres carrés. Il n'existe pas, à l'heure actuelle sur le marché de l'instrumentation nucléaire, de solution technique répondant à ce cahier des charges. Le domaine d'application prédominant est donc l'A&D, plus précisément la caractérisation de zones présentant une contamination émettant plusieurs signatures (alpha, bêta et gamma), ayant une activité faible d'environ 4 kBq/m^2 , et l'identification de points chauds d'activité 1 kBq sur 100 cm^2 . Les particules alpha et bêta émises lors de la désintégration des éléments des chaînes de l'uranium 235 et 238 ont un parcours dans l'air très court, en raison de la physique sous-jacente à l'interaction rayonnement-matière. Le détecteur doit donc être au quasi-contact de la surface à contrôler. Par ailleurs, ce type de détecteur déformable pourrait s'appliquer au domaine médical pour le suivi de la dose déposée, afin de fournir une cartographie en temps réel au plus près du patient, ou pour la dosimétrie *in-vivo* [26]. Enfin, une application potentielle est le contrôle des surfaces affectées par la détonation d'une bombe sale (ou dispersion d'éléments radioactifs par un engin explosif) [27].

Les solutions techniques envisagées sont tout d'abord une matrice de *phoswichs* (pour *phosphor sandwich*) montés sur support déformable (ressort) couplée avec des SiPM, et l'autre solution repose sur des fibres scintillantes, assemblées sous la forme d'un tapis. Ce mémoire de thèse présente donc les résultats de l'étude de ces solutions techniques pour le développement d'un prototype répondant aux exigences portées par les problématiques

énoncées précédemment. Les *phoswichs*, dans la configuration envisagée, et les fibres scintillantes appartiennent à la famille des scintillateurs organiques. Dès lors, une présentation de la génération du signal lumineux, résultant de l'interaction rayonnement-matière dans un scintillateur organique, sera présentée dans la partie suivante.

1.2 Éléments de physique

Les particules d'intérêt étudiées dans ce mémoire sont les rayonnements gamma et les particules bêta. Dans les paragraphes qui suivent, nous effectuerons quelques rappels sur leur nature et les processus d'interaction rayonnement/matière les concernant. Cette étude permet ainsi de déterminer les effets prédominants par rapport aux gammes d'énergies attendues, ainsi que les probabilités d'interaction en fonction de la composition des détecteurs employés. Les ouvrages de références principalement utilisés pour la partie physique de l'interaction sont « *Radiation Detection and Measurement* » de Glenn Knoll [28], « *Practical Gamma-ray Spectrometry* » de Gordon Gilmore [29] et « *The Atomic Nucleus* » de Robley Evans [30]. Pour la partie scintillation organique, les ouvrages de référence utilisés sont « *Molecular Fluorescence – Principle and Applications* » de Bernard Valeur [31] et « *The Theory and Practice of Scintillation Counting* » de John Birks [32].

1.2.1 Rayonnement gamma

Le rayonnement gamma est un rayonnement électromagnétique provenant de la désexcitation d'un noyau : le noyau retourne dans son état fondamental en émettant un ou plusieurs rayonnements gamma. Les états d'excitation des noyaux étant discrets, le spectre d'émission gamma est un spectre de raies dont la détection permet l'identification du radionucléide émetteur. Le rayonnement gamma ne possède pas de masse ni de charge électrique, il est donc indirectement ionisant. Dans le cadre du démantèlement, les rayonnements gamma d'intérêt couvrent une gamme en énergie allant de quelques dizaines de keV à 1,3 MeV. A titre d'exemple, on peut notamment citer le rayonnement gamma émis par l'actinide ^{241}Am à 59,5 keV, celui émis par le produit de fission ^{137}Cs à 661,7 keV, ou encore ceux émis par le produit d'activation ^{60}Co à 1173,23 et 1332,49 keV.

De manière macroscopique, on peut considérer l'atténuation d'un flux de photons comme une atténuation linéaire :

$$I(x) = I_0 \cdot e^{-\mu \cdot x} \quad (1)$$

où $I(x)$ est la fluence du faisceau des photons en sortie de la matière traversée en cm^{-2} , I_0 est la fluence du faisceau de photons incidents en cm^{-2} , μ est le coefficient d'atténuation linéique du matériau en cm^{-1} et x est l'épaisseur de matériau traversé en cm. Par définition, le coefficient d'atténuation linéique est égal à la densité atomique multipliée par la probabilité d'interaction conduisant à la perte du photon incident, ou section efficace. On remarque donc une dépendance avec la densité du matériau, et l'on préférera donc utiliser le coefficient d'atténuation massique $\frac{\mu}{\rho}$, ce qui donne l'équation suivante :

$$I(x) = I_0 \cdot e^{-\frac{\mu}{\rho} \cdot \rho \cdot x} \quad (2)$$

où $\frac{\mu}{\rho}$ est le coefficient d'atténuation massique en $\text{cm}^2 \cdot \text{g}^{-1}$ et ρ est la masse volumique du matériau considéré en $\text{g} \cdot \text{cm}^{-3}$. Le coefficient d'atténuation massique est composé de l'ensemble des interactions microscopiques entraînant la génération d'un signal électronique secondaire, différent d'un coefficient d'interaction massique prenant en compte les diffusions élastiques comme la diffusion Rayleigh. Les interactions microscopiques ainsi considérées, dans la gamme d'énergie comprise entre 0 et 2,6 MeV, sont : l'effet photoélectrique, la diffusion Compton et la création de paires.

- Effet photoélectrique

L'effet photoélectrique désigne l'interaction d'un rayonnement électromagnétique avec un électron atomique du milieu, conduisant à une transmission totale de l'énergie du photon à l'électron. Cet électron est alors éjecté du cortège de son noyau avec une énergie égale à la différence entre l'énergie du photon incident et l'énergie de liaison. L'énergie de liaison n'est pas pour autant perdue, car des réarrangements électroniques peuvent conduire à l'émission d'un rayon X d'énergie égale à celle de liaison.

$$E_{e-} = E_\gamma - E_{liaison} \quad (3)$$

où E_{e-} est l'énergie de l'électron après interaction en keV, E_γ est l'énergie du photon incident en keV et $E_{liaison}$ est l'énergie de liaison de l'électron à son cortège électronique en keV. On note que la section efficace de l'effet photoélectrique est proportionnelle à l'équation suivante, déterminée empiriquement :

$$\sigma \propto \frac{Z^\alpha}{E_\gamma^\beta} \quad (4)$$

où Z est le numéro atomique du milieu, α et β sont des facteurs empiriques. Les valeurs annoncées dans la littérature varient entre 3 et 5 pour les deux facteurs [29]. On note donc que la section efficace de l'effet photoélectrique est fortement dépendante du numéro atomique du milieu et de l'énergie du photon incident. Par ailleurs, pour un milieu donné, la section efficace diminue lorsque l'énergie du photon augmente.

- Diffusion Compton

La diffusion Compton décrit la diffusion inélastique entre un photon et un électron du milieu, conduisant à l'ionisation de l'atome cible. Lors de cette interaction, le photon incident transmet une partie de son énergie à un électron, ce qui lui permet d'être arraché à son cortège électronique. Le photon est diffusé dans une direction différente de sa direction d'origine, avec une énergie moindre. Le bilan énergétique est alors décrit selon l'équation suivante :

$$E_{e-} = E_\gamma - E_{\gamma'} - E_{liaison} \quad (5)$$

où E_{e-} est l'énergie de l'électron après interaction en keV, E_γ est l'énergie du photon incident en keV, $E_{\gamma'}$ est l'énergie du photon diffusé et $E_{liaison}$ est l'énergie de liaison de l'électron à son cortège électronique en keV. On note que la section efficace de la diffusion Compton est proportionnelle à la densité du matériau, dépend peu du numéro atomique du milieu, et évolue en fonction de l'énergie du rayonnement incident selon la relation suivante [29] :

$$\sigma \propto \frac{1}{E_\gamma} \quad (6)$$

- Création de paires

Contrairement aux deux effets précédents, la création de paires (ou matérialisation) est un processus d'interaction entre un photon incident et le champ coulombien d'un atome. Lors de l'interaction, le rayonnement gamma s'annihile, et se matérialise alors un électron, noté e^- , et son antiparticule noté e^+ , un positron. Dès lors, il existe comme condition à cette réaction que l'énergie du photon incident doit être au moins supérieure à la somme des masses au repos des deux particules générées. Étant particule et antiparticule, les masses sont égales, et le seuil de réaction pour la création de paires est donc de 1022 keV.

$$\gamma \rightarrow e^- + e^+ \quad (7)$$

Toute énergie restante après le retrait des 1022 keV est distribuée sous forme d'énergie cinétique aux deux particules. On note que le positron va s'annihiler avec un électron du milieu, après avoir suffisamment été ralenti dans la matière. Cette annihilation conduit à la formation de deux rayonnements gamma de 511 keV, émis dans des directions opposées.

La section efficace de cet effet est notamment proportionnelle au carré du numéro atomique des atomes du milieu et n'est prédominant qu'à partir de valeurs en énergie dépassant les 5 MeV.

1.2.2 Particule β^-

Un noyau radioactif possédant trop de neutrons ou de protons peut se désintégrer par voie bêta. Ainsi, un neutron va être converti en proton et émettre un électron dans la désintégration appelée β^- , et un proton va être converti en neutron et émettre un positron dans la désintégration β^+ . L'électron et le positron émis sont appelés particules bêta. Découverts théoriquement par la conservation de masse de la réaction, en fonction de la particule bêta émise, un neutrino ou antineutrino est émis conjointement. L'énergie libérée est alors répartie sur trois corps : le noyau, la particule bêta, et le neutrino. Ainsi, l'énergie de la particule bêta n'est pas la même d'une désintégration à une autre, il y a donc un spectre d'émission bêta continu. Au vu de sa faible masse et de son énergie, la particule bêta est le plus généralement considérée comme une particule relativiste [33]. La particule β^- est un électron, donc une particule chargée légère, et son interaction macroscopique avec la matière est caractérisée par le pouvoir d'arrêt. Ce dernier est noté S et décrit la perte d'énergie par unité de distance parcourue. Le pouvoir d'arrêt est fonction de l'énergie de l'électron, il n'est donc pas constant sur son parcours. On note alors :

$$S(E(x)) = -\frac{dE}{dx}(E(x)) \quad (8)$$

où $S(E(x))$ est le pouvoir d'arrêt de l'électron d'énergie $E(x)$ à la position x , $\frac{dE}{dx}(E(x))$ est le dépôt d'énergie dE sur la distance infinitésimale dx lorsque l'électron possède une énergie $E(x)$ à la position x . L'énergie après dx étant inférieure à l'énergie avant, $\frac{dE}{dx}$ devient une valeur négative. Le signe moins permet d'obtenir une valeur positive au final.

En considérant le cas où l'électron dépose toute son énergie dans la matière, et que cette perte en énergie est continue sur son parcours, en anglais *Continuous Slowing Down Approximation* (CSDA), on peut définir son parcours moyen R_{CSDA} à partir de la somme des parcours infinitésimaux, de l'énergie initiale E_i de l'électron jusqu'à 0, soit :

$$R_{CSDA} = \int_{E_i}^0 dx = \int_{E_i}^0 -\frac{dE}{S(E(x))} = \int_0^{E_i} \frac{dE}{S(E(x))} \quad (9)$$

Le pouvoir d'arrêt comprend toutes les interactions microscopiques entre l'électron incident et la matière, qui sont regroupées en deux catégories que sont les collisions et les rayonnements de freinage. Le pouvoir d'arrêt est défini comme la somme des deux contributions [34] :

$$\left(-\frac{dE}{dx}\right)_{total} = \left(-\frac{dE}{dx}\right)_c + \left(-\frac{dE}{dx}\right)_r \quad (10)$$

où $\left(\frac{dE}{dx}\right)_c$ est la contribution des collisions au pouvoir d'arrêt, $\left(\frac{dE}{dx}\right)_r$ est la contribution du rayonnement de freinage et $\left(\frac{dE}{dx}\right)_{total}$ est le pouvoir d'arrêt total. À partir des équations dérivées par Bethe [35], [36], il est possible d'évaluer le rapport entre les deux types de contributions par l'équation suivante [28] :

$$\frac{\left(-\frac{dE}{dx}\right)_r}{\left(-\frac{dE}{dx}\right)_c} = \frac{E \cdot Z}{700} \quad (10)$$

où E est l'énergie de l'électron en MeV et Z est le numéro atomique du milieu. Ainsi, pour des électrons de 2 MeV, et un milieu composé de carbone ($Z = 6$), le rapport est égal à 1,7%. De manière générale, le rayonnement de freinage est prédominant aux hautes énergies, au-delà de 10 MeV, et dans des milieux à numéro atomique élevé. C'est ce principe qui est mis en avant dans les accélérateurs de particules, où des électrons sont accélérés vers une cible à numéro atomique élevé, comme du tungstène ou du tantale, qui émettra des photons en ralentissant les électrons incidents. Nous allons maintenant décrire les processus mis en jeu lors d'interactions par collision ou d'interactions correspondant au rayonnement de freinage.

- Interaction par collision

Lors d'une interaction par collision, le champ coulombien d'un électron incident interagit principalement avec celui des électrons du milieu. Il existe deux catégories d'interactions lors d'une collision : l'excitation et l'ionisation. Dans les deux cas, un transfert d'énergie s'opère entre l'électron incident et l'électron cible, rattaché à son cortège. Si le transfert d'énergie est inférieur à l'énergie de liaison de l'électron cible, ce dernier reste lié à son cortège mais est promu à un niveau d'énergie supérieur. À l'inverse, si le transfert d'énergie est supérieur à l'énergie de liaison, l'électron cible est expulsé avec une énergie égale à $E_{transfert} - E_{liaison}$. Les électrons libérés lors d'ionisations, appelés électrons delta, vont à leur tour pouvoir interagir avec d'autres électrons de la matière.

Chaque collision entraîne le plus souvent un changement de direction. De plus, ayant une masse légère, les diffusions entraînent des variations importantes de trajectoire. Cela permet notamment d'expliquer l'absence de pic de Bragg lors de la mesure d'électrons, à l'inverse des interactions des particules chargées lourdes, comme les protons et les particules alpha.

- Interaction par rayonnement de freinage

Lorsqu'un électron interagit avec le champ électrique d'un noyau, sa cinétique est modifiée de manière plus importante qu'avec le champ électrique d'un électron lié. En effet, l'accélération produite sur l'électron incident est directement proportionnelle au nombre de charges de la cible considérée [33]. Cela explique la plus forte dépendance au numéro atomique de la contribution radiative, à l'équation 10. La perte en énergie de l'électron incident, liée à l'accélération, est alors convertie en rayonnement dit de freinage.

1.3 Scintillation organique

Les solutions techniques envisagées pour répondre aux problématiques énoncées de caractérisation radiologique de grandes surfaces, et présentées dans ce mémoire, sont basées sur la scintillation organique. Il est donc nécessaire de présenter les processus conduisant à la génération d'un signal et intervenant après les interactions particules-matière, présentées précédemment. Par définition, un scintillateur organique est un détecteur physique dont la composition est basée sur des chaînes carbonées, et pour lequel les porteurs d'information sont des photons, appelés photons de scintillation. Les rayonnements incidents transfèrent partiellement ou totalement leur énergie à la suite d'interactions avec le détecteur, et promeuvent des molécules à des états énergétiques supérieurs dit excités, ou peuvent ioniser la matière. Lors d'une excitation, les molécules retrouvent leur état fondamental en émettant le différentiel d'énergie sous forme de photons ou d'énergie vibrationnelle. Lors d'une ionisation, une recombinaison électronique aura lieu et entraînera des électrons dans des

états excités. Afin de comprendre la génération du signal après interaction rayonnement-matière, nous allons décrire le principe de la scintillation organique.

1.3.1 Système π -électronique

Le carbone est un élément possédant 6 protons. Dans son état neutre, il possède donc 6 électrons. Sa configuration électronique est résumée dans le tableau 1-1 suivant :

Nombre quantique n	Nombre quantique azimuthal ℓ	Dégénérescence orbitale atomique			Notation de la sous-couche
		p_x	p_y	p_z	
$n = 1$	$\ell = 0$ (s)		$\uparrow\downarrow$		$1s^2$
$n = 2$	$\ell = 0$ (s)		$\uparrow\downarrow$		$2s^2$
	$\ell = 1$ (p)	\uparrow	\uparrow		$2p^2$

Tableau 1-1. Configuration électronique du carbone.

On note donc que le carbone possède quatre électrons de valence, portés par les orbitales atomiques 2s et 2p. Sa configuration électronique se note alors $1s^2 2s^2 2p_x 2p_y$. Il y aurait alors deux électrons, ceux portés par la couche $2p^2$, qui semblent pouvoir créer des liaisons covalentes. Or, le carbone est capable d'avoir jusqu'à 4 liaisons covalentes. Afin de remédier au problème, Linus Pauling [37] propose une construction mathématique basée sur la promotion d'un électron 2s vers un niveau d'énergie supérieur mais intermédiaire avec le niveau 2p, et la rétrogradation d'un ou plusieurs électrons 2p vers ce nouveau niveau d'énergie. Étant peuplé par des électrons des deux sous-couches s et p, ce niveau d'énergie forme une nouvelle sous-couche appelée orbitale sp^2 par un processus appelé hybridation. Ces orbitales sont présentées sur la figure 1-4.

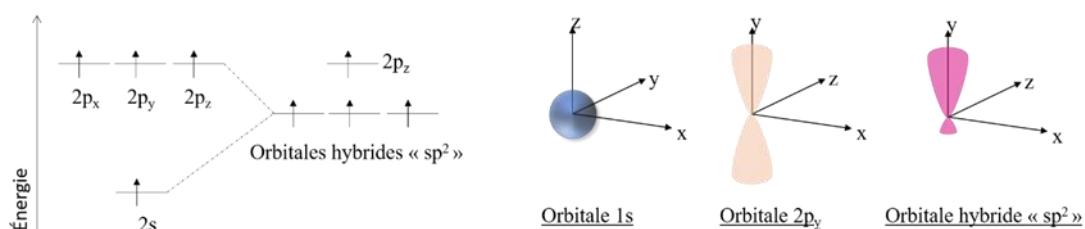


Fig. 1-4. Représentation des orbitales électroniques

Dans notre contexte, nous nous intéresserons uniquement à l'hybridation sp^2 , dont la configuration est $1s^2 sp^2 sp^2 sp^2 2p_z$. Dans cette configuration, il y a bien quatre électrons de valence non liés, trois électrons sp^2 et un électron $2p_z$, pouvant entraîner des liaisons covalentes. Un exemple d'hybridation sp^2 est l'éthylène, présenté sur la figure 1-5.

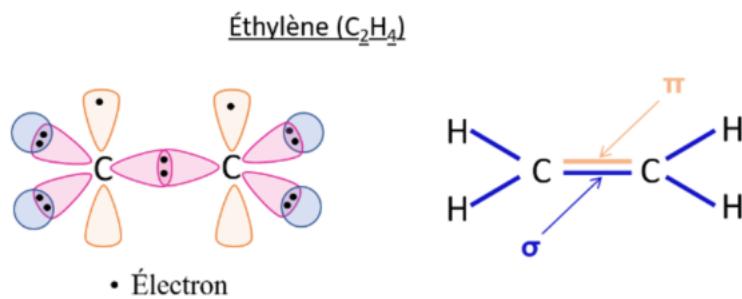


Fig. 1-5. Molécule d'éthylène et liaisons formées

Notons que les trois électrons sp^2 se situent sur un même plan, écartés d'un angle de 120° . On qualifie cette configuration de trigonale. Cela entraîne le recouvrement d'orbitales à l'origine des liaisons entre les atomes. Suivant la nature des orbitales mises en jeu, il y aura soit une liaison σ (recouvrement de deux électrons sp^2), soit une liaison π (recouvrement orbital 2p_z).

Dans des chaînes carbonées, plusieurs liaisons carbone-carbone présentant cette hybridation sp^2 peuvent se succéder et former des cycles aromatiques. Dans ces cycles, les électrons π interagissent entre eux et forment un plan nodal commun, ou système π -électronique. Lorsque ce système est excité par un rayonnement incident, il peut retourner à son état fondamental stable par l'émission soit de photons, soit de chaleur, soit sous forme de vibration. D'après Birks [32], la luminescence a pour principale origine les électrons pi, et les désexcitations associées aux électrons sigma seraient majoritairement vibrationnelles.

1.3.2 Processus primaires

Comme vu dans la partie interaction rayonnement-matière, les particules indirectement ionisantes, comme les rayonnements gamma, vont transférer leur énergie à des électrons du milieu après interaction. Ces transferts d'énergie, partiels ou totaux, seront suffisants pour que l'électron s'arrache à son cortège, on parle alors d'électron secondaire. Ces derniers vont pouvoir ioniser et exciter la matière autour d'eux, permettant ainsi de distribuer indirectement l'énergie du rayonnement gamma incident au milieu. Lorsque les particules incidentes sont des particules chargées, comme des particules alpha ou bêta, le transfert d'énergie au milieu est direct, car ils peuvent transférer leur énergie tout au long de leur parcours, à l'inverse des particules indirectement ionisantes.

On désigne par processus primaires les processus correspondants aux transferts d'énergie entre la particule ionisante et les molécules du milieu. Ces processus regroupent les excitations des électrons à des niveaux d'énergie supérieurs, et les ionisations de la matière conduisant à des électrons libres. Par analogie, les processus secondaires sont ceux

intervenant après le transfert, et qui rentrent en compétition pour l'énergie transférée par les processus primaires. On y retrouve notamment les transitions radiatives et non-radiatives et les transferts de l'énergie d'excitation entre molécules. Les processus primaires ont un temps caractéristique de l'ordre de 10^{-15} s, plus courts que les processus de vibrations moléculaires, de 10^{-10} à 10^{-12} s [31]. Ainsi, les excitations/ionisations se font à configuration nucléaire fixe et génèrent des transitions énergétiques verticales. On appelle cela le principe de Franck-Condon.

Dans leur état fondamental, les électrons sont appariés avec des spins opposés. Si leurs spins sont opposés, alors on parle d'état électronique singulet S, et si les spins sont parallèles alors on parle d'état électronique triplet T. La notation des états électroniques s'écrit en fonction de la parité de spin S ou T, du niveau d'énergie et du niveau vibrationnel. La population des états triplets est normalement interdite par les règles de sélection classique, ainsi, toute excitation conduira à la population d'états excités singulets. Nous verrons plus tard que de ces états excités singulets, des transitions vers des états triplés existent.

Dans le cas d'une ionisation, un électron est éjecté et pourra à son tour exciter et ioniser la matière sur son passage. L'ion formé va subir une réorganisation de son cortège électronique, ce qui entraîne l'excitation d'électrons vers des états singulets ou triplets. D'après Buck [38], le rapport entre les états triplets et les états singulets formés par la recombinaison est de 3 pour 1.

1.3.3 Luminescence

La représentation de la luminescence associée au système π -électronique peut se faire au travers de schémas des niveaux d'énergie, construits à partir de modèles théoriques. Dans le cadre des systèmes π -électronique, le modèle de l'électron libre orbitant autour du noyau dans une boucle unidimensionnelle est classiquement utilisé [39]. Le schéma utilisé ici est le diagramme de Perrin-Jablonski. Il représente les niveaux d'énergies atteignables par le système π -électronique, de son état fondamental à l'énergie d'ionisation de l'électron π , en fonction des états électroniques triés par multiplicité de spin. Les états électroniques représentent la parité des spins des électrons composant la liaison π . La figure 1-6 présente un diagramme de Perrin-Jablonski pour les niveaux d'énergie d'un système π -électronique quelconque, dans lequel les lignes horizontales continues sont des niveaux fondamentaux d'un état électronique, et les lignes horizontales pointillées sont des niveaux vibrationnels. Les transitions non radiatives sont représentées par des flèches ondulées, et les absorptions et les transitions radiatives sont représentées par des flèches verticales continues. Enfin, les flèches verticales pointillées représentent des absorptions conduisant à un niveau vibrationnel. L'état triplet possède une multiplicité de spin supérieure à l'état singulet, il est donc représenté à sa

droite. Soit i le niveau d'énergie atteint et soit j le niveau d'énergie vibrationnel atteint au niveau d'énergie i , on écrit alors les états électroniques comme S_{ij} pour un état singulet, et T_{ij} pour un état triplet.

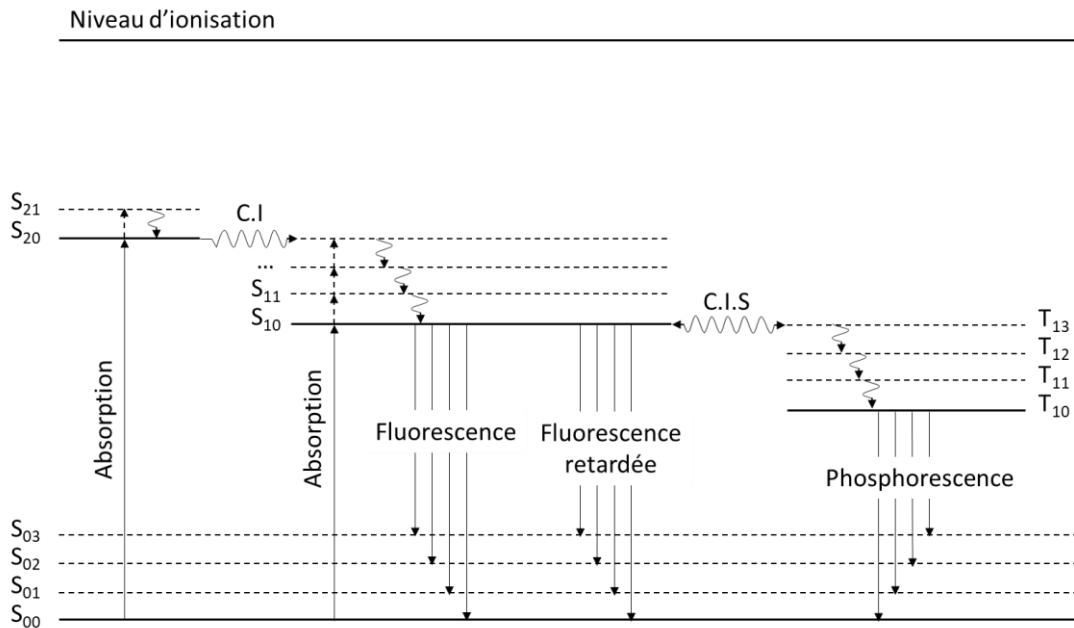


Fig. 1-6. Diagramme de Perrin-Jablonski pour une configuration π -électronique quelconque

Après la promotion d'un électron vers un niveau d'énergie supérieur, ce dernier peut se retrouver sur un niveau vibrationnel quelconque. La durée de vie de ces niveaux vibrationnels est suffisamment courte, de 10^{-12} à 10^{-10} secondes, pour que tout électron excité se retrouve à son état vibrationnel fondamental avant tout processus de conversion interne ou de luminescence. La conversion interne, notée C.I sur la figure 1-6, désigne la transition d'un électron dans un état électronique $i+1$ vers un état vibrationnel de l'état électronique i .

Les transitions radiatives de S_{10} vers S_{00} sont désignées par la fluorescence et ont une durée de vie de 10^{-10} à 10^{-7} secondes [31]. Ce phénomène est en concurrence avec des relaxations non radiatives de S_{10} vers S_{0j} où j est un état vibrationnel de S_0 .

L'état triplet T est normalement interdit par rapport aux règles de sélection classiques. Néanmoins, le couplage spin-orbite permet la population d'un tel état [40], lorsque celui-ci se trouve dans un état singulet non fondamental. Il existe des transitions S_{1j} vers T_{1j} ou inversement, appelées conversions inter-systèmes ou C.I.S sur la figure 1-6, la transition de S_{10} vers T_{10} est donc possible. Comme vu précédemment, cet état peut aussi être peuplé après une recombinaison des suites d'une ionisation. L'état triplet T_{10} pourra retourner vers l'état fondamental S_{00} par transition radiative, temporellement plus lente que la fluorescence. Elle est appelée phosphorescence ou voie bêta, et possède une constante de temps comprise entre 10^{-6} secondes et plusieurs secondes.

Un électron T_{1j} peut, par agitation thermique, changer sa multiplicité et migrer vers l'état S_{1k} . L'électron peut alors retourner vers le niveau fondamental S_{00} par transition radiative, mais cette dernière sera retardée par rapport aux transitions radiatives ne provenant pas de conversion inter-systèmes. Cette luminescence est appelée fluorescence retardée ou voie alpha, et possède une constante de temps de l'ordre de 10^{-6} secondes.

Enfin, dans le cas de densité d'ionisations importantes, comme par exemple l'interaction avec des particules alpha ou des protons de recul, des interactions entre molécules rapprochées du scintillateur, ou dimères, sont possibles et conduisent à une luminescence supplémentaire, décalée dans le temps, par annihilation triplet-triplet. Cette luminescence particulière est à la base de la discrimination par la forme de l'impulsion, ou *pulse shape discrimination* (PSD) en anglais [41].

1.3.4 Scintillateurs usuels

L'application du processus de luminescence à partir d'un système π -électronique est à l'origine de la famille des détecteurs à scintillation organique. Ils se déclinent sous plusieurs formes d'états différents notamment les scintillateurs cristallins, plastiques et liquides. Le temps de décroissance lumineuse est compris entre quelques nanosecondes et plusieurs centaines de nanosecondes [42], [43], tandis que le temps de montée est court, de l'ordre d'une nanoseconde.

En partant des processus de luminescence décrits précédemment, on peut définir un modèle simple de la décroissance lumineuse. Tout d'abord, en supposant que la majorité du signal lumineux provient de la fluorescence, de constante de temps τ , et sous l'hypothèse que les états électroniques conduisant à la luminescence sont atteints instantanément, car les durées de vie des états vibrationnels sont faibles par rapport à la durée de vie de l'état S_{10} , on peut écrire l'équation suivante :

$$I(t) = I_0 \cdot e^{-\frac{t}{\tau}} \quad (11)$$

où $I(t)$ désigne le flux lumineux à l'instant t , I_0 le flux lumineux initial, et τ le temps de demi-vie de l'état S_{10} . Des modèles plus complexes peuvent alors être dérivés, prenant en compte le temps de peuplement des états luminescents et/ou la luminescence associée à la phosphorescence et la fluorescence retardée [28]. Une équation générale peut alors être formalisée :

$$I(t) = \sum_{i=1}^N \frac{I_0(i)}{\tau_i} \cdot e^{-\frac{t}{\tau_i}} \quad (12)$$

où $I_0(i)$ désigne la proportion lumineuse du phénomène i , τ_i la constante de temps associée, et N le nombre total de phénomènes considérés. Différents modèles existent [44], [45], prenant en compte les phénomènes d'extinction lumineuse appelés *quenching* dépendant de l'énergie déposée et du transfert d'énergie linéique de la particule considérée. La terminologie anglaise, francisée, est usitée par l'homme de métier. Une étude exhaustive des différents modèles de la scintillation a été conduite par Péron [46].

Afin d'éviter une auto-absorption trop importante, on peut rajouter des fluorophores. Il existe alors des transferts d'énergie non radiatifs entre solvant et fluorophores, par effet Förster, majoritaires dans le cas de densités d'ionisations faibles, et par effet Dexter, favorisés dans le cas de densités d'ionisations importantes. La fluorescence peut alors se faire à partir du fluorophore, et avec une longueur d'onde plus élevée. Puisque le solvant, ou matrice, compose le scintillateur à plus de 90%, et que la longueur d'onde d'émission est décalée par les fluorophores, l'auto-absorption est atténuée. De plus, en choisissant des fluorophores adaptés, il est possible de maximiser l'efficacité de détection du photomultiplicateur choisi.

- Cristal organique

Les monocristaux organiques sont des molécules contenant plusieurs cycles aromatiques et dont la structure est cristalline, c'est-à-dire que les molécules sont organisées selon une maille répétée. Puisqu'une seule molécule est mise en jeu, on parle de système unitaire. Lorsqu'un fluorophore est adjoint, on parle de système binaire, notation déclinable en fonction du nombre de fluorophores ajoutés. Deux monocristaux organiques classiquement utilisés sont l'anthracène ou le *trans*-stilbene par exemple. L'anthracène [32] est un hydrocarbure aromatique polycyclique composé de trois cycles consécutifs. Il est décrit comme étant le scintillateur organique le plus performant en rendement de scintillation, atteignant 15000 photons par MeV d'énergie déposée. Il est donc commun d'évaluer le rendement de scintillation d'un scintillateur organique comme la fraction du rendement de scintillation de l'anthracène. Bien qu'il possède la meilleure luminescence des scintillateurs organiques, il est aussi sensible à l'oxydation en cas d'exposition à l'air libre. Par ailleurs, sa cristallisation peut présenter des défauts, et il possède une auto-absorption des photons de scintillation non négligeable. Il existe cependant des cristaux ne possédant pas ces défauts, mais qui ont un rendement de scintillation plus faible comme le *p*-terphényle, avec un rendement de scintillation équivalent à 60% de celui de l'anthracène. Quel que soit le monocristal considéré, il ne peut y avoir d'ajout de fluorophore supplémentaire pour créer un

décalage de Stokes et ainsi limiter l'effet d'auto-absorption. C'est pour cette raison que des solutions fondées sur des cocktails scintillants ou des polymérisations ont été développées.

- Scintillateur liquide

Les scintillateurs liquides sont composés de solvants aromatiques purs ou de solvants mélangés à des solutés. Ils sont principalement utilisés pour l'étude d'échantillons radioactifs alpha/bêta sous forme aqueuse, notamment pour la caractérisation de rejets tritiés. Ici, l'échantillon est mélangé au scintillateur liquide. Dans ce cas d'étude, il est possible d'atteindre une efficacité de conversion désintégration/coup proche de 100% pour certains émetteurs haute énergie comme le ^{32}P (énergie moyenne de 695,0 keV et énergie maximale de 1710,7 keV), et de 60% pour le tritium (énergie moyenne de 5,7 keV et énergie maximale de 18,6 keV) [47]. En effet, comme les radionucléides sont mélangés avec le scintillateur, tout rayonnement ionisant émis interagit avec le milieu scintillant et génère des photons de scintillation, émis de manière isotrope. Sachant que plusieurs photomultiplicateurs sont placés autour de l'échantillon, plus la particule bêta émise est énergétique, plus la probabilité qu'un coup soit enregistré augmente. Les solvants généralement utilisés sont le di-isopropyl naphtalène (DIN), le phénylxylyléthane (PXE) ou encore le dodecylbenzène. Pour les fluorophores primaires, on peut noter l'utilisation du PPO (2,5-diphényloxazole) ou du PBBO (2-[1,1'-biphényl]-4-yl-6-phényl-benzoxazole). Enfin, comme fluorophores secondaires, le POPOP (1,4-bis-(5-phényloxazol-2-yl)benzène) ou le DMPOPOP (1,4-di-(2-(4-méthyl-5-phényloxazolyl))benzène) sont utilisés [48]. Il existe aussi des scintillateurs liquides encapsulés, adaptés à la discrimination neutrons/gamma [49] de sources externes au scintillateur. Dans les deux applications, l'absence d'une structure solide ou cristalline permet au scintillateur liquide d'être plus résilient face à des débits de dose importants, si on les compare aux cristaux organiques ou aux scintillateurs plastiques [50]. Cependant, les scintillateurs liquides présentent des risques toxiques et inflammables non négligeables. Enfin, dans le cadre de mélanges d'échantillons et de liquide scintillant, la gestion de déchets radioactifs liquides et chimiques est contraignante.

- Scintillateur plastique

Les scintillateurs plastiques sont la dernière famille des scintillateurs organiques. Plutôt que d'adopter une structure cristalline, les scintillateurs plastiques proviennent de la polymérisation du solvant et éventuellement des fluorophores. Ainsi, les scintillateurs plastiques sont solides. Le solvant qui constitue la matrice doit donc être un élément plastique aromatique, comme par exemple du polystyrène ou du poly(vinyltoluène) (PVT). Les fluorophores, quant à eux, peuvent être intégrés à la matrice par simple adjonction, ou bien

être liés par une liaison covalente. Les fluorophores primaires classiquement utilisés sont le *p*-terphényle ou le PPO (2,5-diphényloxazole), et on peut citer le POPOP (1,4-bis(5-phényloxazol-2-yl)benzène) comme fluorophore secondaire courant (ces trois molécules ne sont pas polymérisables). Bien qu'ils possèdent une scintillation inférieure à celle des cristaux mono-organiques, les avantages associés au scintillateur plastique expliquent sa prévalence dans certains domaines de l'instrumentation nucléaire. Ainsi, les scintillateurs plastiques possèdent un coût deux à trois fois plus faible à même volume que les scintillateurs inorganiques, peuvent être produits dans des dimensions et formes variées, et sont moins enclins à des risques chimiques ou d'inflammabilité. Les volumes atteignables par ces scintillateurs plastiques peuvent atteindre plusieurs dizaines de litres [51]. Ainsi, les scintillateurs plastiques peuvent être envisagés pour répondre à la problématique de caractérisation des grandes surfaces. Il est aussi possible de fabriquer les scintillateurs plastiques sous forme de fibre scintillantes.

1.3.5 Modèle du rendement de scintillation, loi de Birks

- Rendement de scintillation

Le nombre de photons de scintillation L émis, ou illumination, est proportionnel en première approche à l'énergie déposée E_d et à la réponse lumineuse du scintillateur S , exprimée en photons par unité d'énergie déposée. On peut donc poser l'équation suivante :

$$L = S \cdot E_d \quad (13)$$

En exprimant la forme différentielle de cette équation par unité de longueur parcourue r , on obtient l'équation suivante :

$$\frac{dL}{dr}(E_x) = -S \cdot \frac{dE}{dr}(E_x) \quad (14)$$

où l'on retrouve $-\frac{dE}{dr}(E_x)$ le pouvoir d'arrêt de la particule à l'énergie E et à la position x et $\frac{dL}{dr}$ la fluorescence spécifique. Des études de la réponse lumineuse de l'anthracène à différentes particules incidentes montrent que l'équation 13 n'est pas respectée selon la particule considérée ou son énergie. Ainsi, on constate que la réponse de l'anthracène est linéaire pour des électrons d'énergie supérieure à 125 keV, mais qu'elle décroît moins rapidement qu'anticipée lorsque l'énergie des électrons diminue. La figure 1-7 présente de tels résultats obtenus par J. I. Hopkins en 1950 [52], sur un cristal d'anthracène :

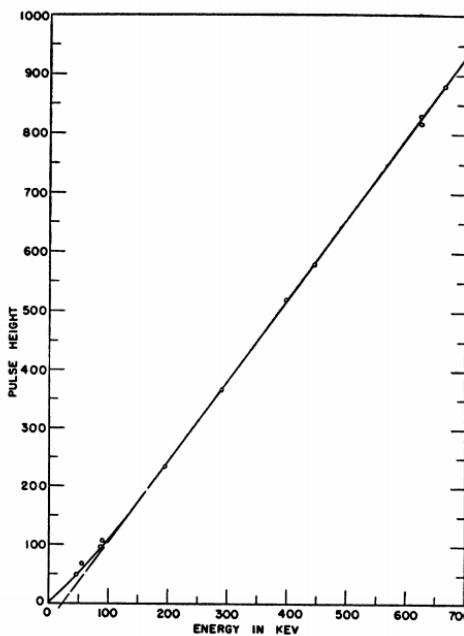


Fig. 1-7. Évolution de l'amplitude des impulsions d'un cristal d'anthracène exposé à des électrons, en fonction de l'énergie de ces derniers [42]

Ces résultats ont été revérifiés par E. Brannen et G. L. Olde en 1962 [53] sur des scintillateurs plastiques de configuration plan, dont les résultats sont présentés sur la figure 1-8 :

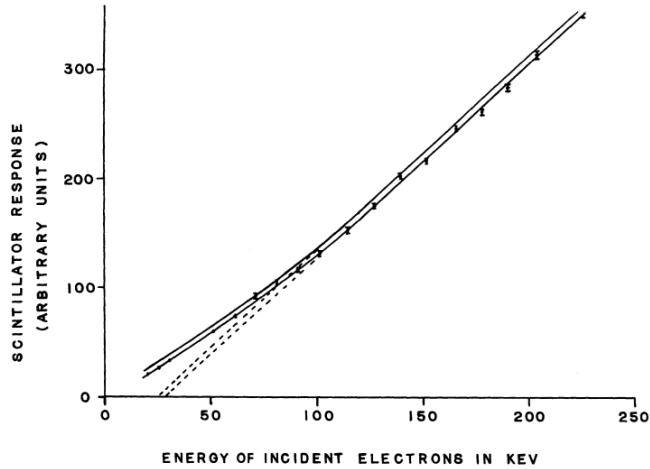


Fig. 1-8. Évolution de la réponse lumineuse d'un scintillateur plastique NE-101 exposé à des électrons, en fonction de l'énergie de ces derniers [43].

Notons que cet effet est plus marqué pour des particules ionisantes lourdes, telles que les particules alpha. Ainsi, F. D. Brooks étudie l'évolution de la réponse lumineuse d'un cristal d'anthracène à différentes particules incidentes [54], dont les résultats sont présentés sur la figure 1-9. On constate que l'écart avec les valeurs théoriques attendues est plus important pour les particules les plus chargées, notamment les particules alpha, et apparaît à des

énergies faibles, inférieure à 1 MeV pour les protons et les particules alpha, et 125 keV pour les électrons.

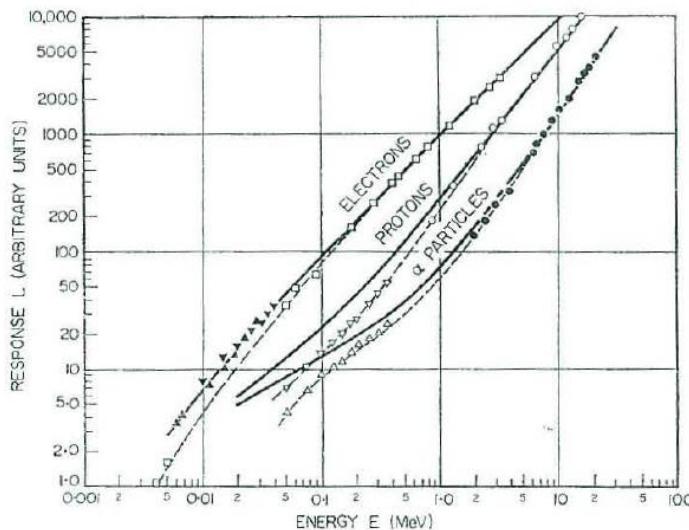


Fig. 1-9. Évolution de la réponse lumineuse d'un cristal d'anthracène exposé à des électrons, des protons et des particules alpha, en fonction de leurs énergies [44]. Les traits pleins correspondent à des résultats expérimentaux et les tirets à des courbes théoriques.

Depuis la publication de Brannen et jusque dans les années 1990, la littérature n'est pas abondante à ce sujet. On peut citer, entre autres, les études de Cassette en 1994 [55] puis Williamson en 1999 [56]. Depuis les années 2000, la recherche de facteurs correctifs pour la simulation des doses déposées, dans le cadre de radiothérapies, a contribué à l'émergence de nouvelles études, en évaluant la réponse lumineuse de scintillateurs plastiques à différentes sources [57]–[59]. Ainsi, Santurio en 2019 [60] présente les résultats d'une correction d'une dose évaluée par code Monte Carlo, à partir d'une loi de scintillation prenant en compte les effets de non linéarité, sur des scintillateurs plastiques exposés à des photons d'un irradiateur médical. Ces résultats sont présentés sur la figure 1-10.

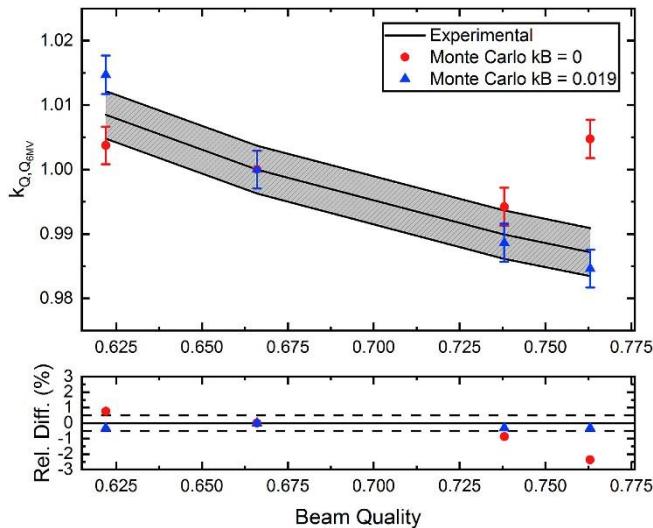


Fig. 1-10. Qualité de faisceau évaluée expérimentalement (en noir), et simulation associée (en rouge) puis corrigée (en bleu). La qualité de faisceau désigne le rapport entre la dose déposée par l'accélérateur et celle d'un référentiel métrologique.

- Affaiblissement de la luminescence

Il existe des phénomènes associés à une perte du rendement lumineux des scintillateurs, regroupés sous l'appellation d'extinction ou d'affaiblissement lumineux. Ces phénomènes d'extinction ont plusieurs origines mais on les regroupe généralement en trois catégories [18] : le *quenching* chimique, le *quenching* par centre coloré et le *quenching* d'ionisation. Le *quenching* chimique désigne l'absorption de l'énergie d'excitation par des impuretés avant qu'elle ne puisse être transférée vers les fluorophores luminescents. Le *quenching* couleur décrit les phénomènes d'atténuation ou d'absorption des photons de scintillation par des espèces colorées présentes dans le détecteur, provenant d'impuretés ou de la dégradation du scintillateur lui-même. Enfin, le *quenching* d'ionisation permet d'expliquer les décalages en énergie lors de la détection de particules avec un fort transfert d'énergie linéique (TEL), notamment les particules alpha et les protons. En effet, lorsque ces particules interagissent avec le scintillateur, elles induisent une densité d'états excités importante, augmentant la probabilité d'extinction non radiative de ces états excités. Dès lors, le rendement lumineux est proportionnel au type de particule détectée, et des corrections doivent être apportées pour corriger ce phénomène, avec notamment l'utilisation de l'unité énergie par électron équivalent (eVee).

- Luminescence spécifique et loi de Birks

Comme cela a été mentionné précédemment, des phénomènes d'extinction de luminescence, ou *quenching*, viennent atténuer le flux de photons de scintillation émis. Dès lors, le seul rendement de scintillation par énergie déposée ne suffit pas à décrire pleinement la luminescence observée par le photodétecteur. Birks suggère en 1951 [61] que les particules

incidentes génèrent sur leur parcours des centres *quencheurs*, c'est-à-dire des molécules ayant une susceptibilité à absorber l'état excité puis se désexciter sans luminescence. Pour Birks, ces molécules peuvent être soit des molécules ionisées, soit des molécules endommagées par le passage de la particule. D'autre part, des études plus récentes menées notamment par Naumann en 2004 [62] tendent à montrer que la création d'excimères, molécules composées de deux monomères n'existant que dans un état excité, possède un effet *quenchant* sur la luminescence. Quel que soit le phénomène chimique mis en jeu, les équations générales suivantes permettent de résumer la situation :



où S, S^* désignent le solvant dans son état fondamental et excité, F, F^* désignent le fluorophore dans son état fondamental et excité et Q désigne le centre *quenchant*. Il existe alors des désexcitations non radiatives liées à la présence de centres *quenchants* affaiblissant la luminescence.

Sachant que toutes les causes décrites plus haut sont proportionnelles au pouvoir d'arrêt de la particule, la variation de l'illumination est donc ajustée par l'ajout d'un terme décroissant, noté $B \cdot \frac{dE}{dr}$. Le facteur B représente alors le nombre d'agents quencheurs formés au passage de la particule. Enfin, si l'on représente la probabilité qu'un état excité soit transmis à un centre quencheur par la variable k , on obtient alors le facteur $k \cdot B \cdot \frac{dE}{dr}$, $k \cdot B$ étant le facteur de Birks, dont ses composantes sont dites indissociables. Birks décrit alors la variation de l'illumination sur le parcours de la particule, dépendant de l'énergie à la position r , notée E_r , selon l'équation 16 suivante :

$$\frac{dL}{dr}(E_r) = \frac{S \cdot \left| \frac{dE}{dr}(E_r) \right|}{1 + k \cdot B \cdot \left| \frac{dE}{dr}(E_r) \right|} \tag{16}$$

Le nombre de photons de scintillation générés est donc l'intégrale de la formule 16 sur le parcours total de la particule dans le détecteur, noté R . On peut relever deux cas spécifiques de simplification de l'équation 16. Tout d'abord, si le pouvoir d'arrêt de la particule est suffisamment faible pour que le dénominateur soit sensiblement égal à 1, cas applicable aux électrons d'énergie supérieure à 125 keV, l'équation 16 devient :

$$\frac{dL}{dr}(E_r) = S \cdot \left| \frac{dE}{dr}(E_r) \right|$$

$$L = S \cdot \int_0^R \left| \frac{dE}{dr}(E_r) \right| dr = S \cdot E_d$$
(17)

où E_d désigne l'énergie totale déposée sur le parcours R . On retrouve ainsi l'équation 13 de linéarité entre le nombre de photons générés et l'énergie déposée. À l'inverse, si l'on prend le cas d'une particule dont le pouvoir d'arrêt est très supérieur à 1, la simplification suivante est possible :

$$\frac{dL}{dr}(E_r) = \frac{S}{k \cdot B}$$

$$L = S \cdot \int_0^R \frac{S}{k \cdot B} dr = \frac{S \cdot R(E)}{k \cdot B}$$
(18)

Pour tout cas plus général, il devient nécessaire d'intégrer l'équation 16 sur le parcours de la particule, en fonction de l'énergie incidente et de l'énergie de sortie, pour déterminer la luminescence produite par la particule. Des méthodes numériques d'intégration sont alors applicables, mais des bases de données des pouvoirs d'arrêts sont alors nécessaires. Grâce à la formule de Bethe [35], il est possible de calculer le pouvoir d'arrêt des particules ionisantes. La base de données ESTAR [63] développée par le *National Institute of Standards and Technology* a été construite sur le calcul de valeurs numériques à partir de la formule de Bethe corrigée. Cette formule est applicable aux électrons par l'ajout de corrections, ces derniers atteignant souvent des vitesses relativistes.

1.4 Conclusions

Dans cette partie, nous avons abordé le contexte de l'assainissement-démantèlement (A&D) et exposé les problématiques de coûts des travaux et de durées des chantiers. Ainsi, les acteurs majeurs de l'industrie nucléaire se doivent d'investir dans la recherche et le développement de nouvelles solutions techniques afin de rendre plus viable la dernière étape de l'exploitation d'une installation nucléaire de base. L'une des étapes importantes de l'A&D est la caractérisation radiologique, qui permet de s'assurer du retrait de toute contamination radiologique. Différentes problématiques de mesure sont spécifiques à cet objectif. En effet, les surfaces à caractériser peuvent parfois atteindre le million de mètres carrés. Ainsi, toute

optimisation du temps de mesure par unité de surface caractérisée induira une baisse du temps total des travaux, couplée à une réduction des coûts. Ces surfaces ne sont pas toutes lisses, et peuvent être de formes différentes. La présence d'aspérités peut notamment atténuer le flux de particules ionisantes et donc la caractérisation radiologique associée. Enfin, toute opération de démantèlement induit la génération de déchets identifiés comme radioactifs et qui doivent donc être traités selon des procédures adaptées. Le développement d'un détecteur pixellisé, localisant de manière plus précise les contaminations radiologiques, permettrait alors d'éviter une production trop importante de déchets et donc la réduction des frais associés à leur traitement.

Dans ce mémoire de thèse, nous nous intéresserons à la caractérisation de contaminations radiologiques émettant des particules bêta accompagnées ou non de rayonnements gamma parasites. Les paragraphes portant sur les principales notions de physique relatives aux interactions rayonnement-matière ont notamment permis de rappeler la différence entre les contraintes rencontrées lors de la mesure de particules ionisantes et la mesure de rayonnements électromagnétiques. La solution technique envisagée dans la suite de ces travaux reposera sur l'utilisation de scintillateurs organiques, sous la forme plastique, comme indiqué dans la présentation du projet CaPSuD. Ces derniers sont capables d'être produits dans des volumes importants, de plusieurs litres, d'où leur adéquation au déploiement de mesures nucléaires sur de grandes surfaces, afin de les caractériser. Nous nous intéresserons aux fibres scintillantes, ces dernières offrant une certaine flexibilité, ainsi qu'au *phoswich*, permettant de discriminer les rayonnements incidents.

- [1] *L'assainissement-démantèlement des installations nucléaires*. CEA Paris-Saclay ; Groupe Moniteur, 2017.
- [2] Nuclear Energy Institute, “Decommissioning Nuclear Power Plants.” [Online]. Available: <https://www.nei.org/resources/fact-sheets/decommissioning-nuclear-power-plants>. [Accessed: 02-Feb-2021].
- [3] World Nuclear Association, “Nuclear Power in Germany,” 2019. [Online]. Available: <https://www.world-nuclear.org/information-library/country-profiles/countries-g-n/germany.aspx>. [Accessed: 02-Feb-2021].
- [4] Autorité de Sécurité Nucléaire, “Le démantèlement des installations nucléaires.” [Online]. Available: <https://www.asn.fr/Informer/Dossiers-pedagogiques/Le-demanlement-des-installations-nucleaires/Les-installations-en-cours-de-demanlement>. [Accessed: 02-Feb-2021].
- [5] Société Française d’Énergie Nucléaire, “Le démantèlement.” [Online]. Available: <https://www.sfen.org/energie-nucleaire/ca-marche/demanlement>. [Accessed: 02-Feb-2021].
- [6] Institut de radioprotection et de sûreté nucléaire, “Projet CIGEO - Examen des études remises depuis 2009,” 2013.
- [7] CEA Marcoule, “Assainissement – Démantèlement.” [Online]. Available: <https://marcoule.cea.fr/Marcoule/Pages/Assainissement-Demanlement.aspx>. [Accessed: 02-Feb-2021].
- [8] Institut de radioprotection et de sûreté nucléaire, “Les démantèlements d’installations nucléaires en France.” [Online]. Available: https://www.irsn.fr/FR/connaissances/Installations_nucleaires/demanlement/demanlement-France-centrales-installations-nucleaires-EDF-recherche-militaire. [Accessed: 02-Feb-2021].
- [9] JO Sénat du 08/05/2003, “Démantèlement de l’usine de production d’uranium de Pierrelatte,” p. 1545, 2003.
- [10] Cour des comptes et communication à la commission des finances du Sénat, “L’arrêt et le démantèlement des installations nucléaires,” p. 73, 2020.
- [11] C. Andrieu *et al.*, “Radiological Characterisation for Decommissioning of Nuclear Installations-Final Report of the Task Group on Radiological Characterisation and Decommissioning (RCD) of the Working Party on Decommissioning and Dismantling (WPDD)-Final Report, September 201,” 2013.
- [12] M. Gmar, M. Agelou, F. Carrel, and V. Schoepff, “GAMPIX: A new generation of gamma camera,” *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. A Accel. Spectrometers, Detect. Assoc. Equip.*, vol. 652, no. 1, pp. 638–640, Oct. 2011.

- [13] C. Le Goaller *et al.*, “Gamma imaging: Recent achievements and on-going developments,” in *ENC 2005: European nuclear conference Nuclear power for the 21 century: from basic research to high-tech industry*, 2006.
- [14] G. Amoyal *et al.*, “Evaluation of Timepix3 Si and CdTe Hybrid-Pixel Detectors’ Spectrometric Performances on X- and Gamma-Rays,” *IEEE Trans. Nucl. Sci.*, vol. 68, no. 2, pp. 229–235, Feb. 2021.
- [15] M. Kaburagi *et al.*, “Gamma-ray spectroscopy with a CeBr₃ scintillator under intense γ -ray fields for nuclear decommissioning,” *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. A Accel. Spectrometers, Detect. Assoc. Equip.*, vol. 988, 2021.
- [16] N. Dufour *et al.*, “Measurement of low-activity uranium contamination by gamma-ray spectrometry for nuclear decommissioning,” *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. A Accel. Spectrometers, Detect. Assoc. Equip.*, vol. 951, p. 162976, Jan. 2019.
- [17] Y. Morishita, T. Torii, H. Usami, H. Kikuchi, W. Utsugi, and S. Takahira, “Detection of alpha particle emitters originating from nuclear fuel inside reactor building of Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant,” *Sci. Rep.*, vol. 9, no. 1, p. 581, Dec. 2019.
- [18] Y. Lecompte, “Intérêt de la scintillation liquide à triples coïncidences dans la surveillance de l’exposition interne des travailleurs exposés au tritium,” CNAM Paris, 2018.
- [19] *Record Keeping for the Decommissioning of Nuclear Facilities*, no. 411. Vienna: International Atomic Energy Agency, 2003.
- [20] A. R. Lang *et al.*, “Cesium and Strontium Contamination of Nuclear Plant Stainless Steel: Implications for Decommissioning and Waste Minimization,” *ACS Omega*, vol. 4, no. 11, pp. 14420–14429, Sep. 2019.
- [21] S. Billon, P. Sardini, S. Leblond, P. Fichet, H. Word, and R. Laumonier, *MAUD PROJECT-Photons Collection Efficiency of Solid Scintillators excited by alpha/beta emitters difficult to measure for dismantling*. 2018.
- [22] F. Lamadie, J. R. Costes, F. Delmas, C. Mahe, P. Girones, and C. Le Goaller, “Alpha imaging: first results and prospects,” in *IEEE Symposium Conference Record Nuclear Science 2004.*, vol. 3, pp. 1594–1598.
- [23] Y. Desnoyers, “Approche méthodologique pour la caractérisation géostatistique des contaminations radiologiques dans les installations nucléaires,” École Nationale Supérieure des Mines de Paris, 2010.
- [24] Autorité de Sécurité Nucléaire, “Guide relatif à l’assainissement des structures dans les installations nucléaires de base - Guide N°14,” 2016.
- [25] N. Dufour *et al.*, “Measurement of low-activity uranium contamination by gamma-ray spectrometry for nuclear decommissioning,” *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. A Accel. Spectrometers, Detect. Assoc. Equip.*, vol. 951, p. 162976, Jan. 2020.

- [26] C. Le Deroiff, "Étude de la dosimétrie par scintillateur plastique pour l'irradiation préclinique du petit animal à moyenne énergie," p. 175, 2017.
- [27] Organisation du Traité de l'Atlantique Nord, "NATO review - The dirty bomb: low cost, high risk," *Revue de l'OTAN*, 2010. [Online]. Available: <https://www.nato.int/docu/review/fr/articles/2010/06/18/la-bombe-sale-cout-faible-risque-eleve/index.html>.
- [28] G. F. Knoll, *Radiation detection and measurement*, 4th ed. 2010.
- [29] G. R. Gilmore, *Practical Gamma-Ray Spectrometry*. Chichester, UK: John Wiley & Sons, Ltd, 2008.
- [30] R. D. Evans, "The Atomic Nucleus," *Nature*, vol. 179, no. 4569, pp. 1040–1041, 1957.
- [31] B. Valeur and M. N. Berberan-Santos, *Molecular Fluorescence*. Weinheim, Germany: Wiley-VCH Verlag GmbH & Co. KGaA, 2012.
- [32] J. B. Birks, *The Theory and Practice of Scintillation Counting*. Elsevier, 1964.
- [33] R. D. Evans, *The Atomic Nucleus*, vol. 573–579. McGraw-Hill New York, 1955.
- [34] K. S. Krane, D. Halliday, and others, *Introductory nuclear physics*, 2nd ed. 1988.
- [35] H. Bethe, "Zur Theorie des Durchgangs schneller Korpuskularstrahlen durch Materie," *Ann. Phys.*, vol. 397, no. 3, pp. 325–400, 1930.
- [36] E. Segrè, H. Staub, H. A. Bethe, and J. Ashkin, *Experimental nuclear physics, volume I*. New York; London: John Wiley & sons ; Chapman & Hall, 1953.
- [37] L. Pauling, "The nature of the chemical bond. Application of results obtained from the quantum mechanics and from a theory of paramagnetic susceptibility to the structure of molecules," *J. Am. Chem. Soc.*, vol. 53, no. 4, pp. 1367–1400, Apr. 1931.
- [38] W. L. Buck, "The Origin of Scintillations in Organic Materials," *IRE Trans. Nucl. Sci.*, vol. 7, no. 2/3, pp. 11–16, Jun. 1960.
- [39] S. Basu, "Free electron model and photoionization of π -electrons from aromatic hydrocarbons," *Theor. Chim. Acta*, vol. 3, no. 3, pp. 238–240, 1965.
- [40] G. N. Lewis and M. Kasha, "Phosphorescence and the Triplet State," *J. Am. Chem. Soc.*, vol. 66, no. 12, pp. 2100–2116, Dec. 1944.
- [41] G. H. V Bertrand, M. Hamel, S. Normand, and F. Sguerra, "Pulse shape discrimination between (fast or thermal) neutrons and gamma rays with plastic scintillators: State of the art," *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. A Accel. Spectrometers, Detect. Assoc. Equip.*, vol. 776, pp. 114–128, 2015.
- [42] R. K. Swank, "Characteristics of Scintillators," *Annu. Rev. Nucl. Sci.*, vol. 4, no. 1, pp. 111–140, Dec. 1954.
- [43] "Long decay time EJ-240," *Saint-Gobain*. [Online]. Available: <https://eljentechnology.com/products/plastic-scintillators/ej-240>. [Accessed: 03-Feb-2024]

- 2021].
- [44] S. Nutter *et al.*, “Time profile of fluorescence in organic scintillator out to 10 microseconds,” *UMBC Fac. Collect.*, 2019.
- [45] T. Marrodán Undagoitia *et al.*, “Fluorescence decay-time constants in organic liquid scintillators,” *Rev. Sci. Instrum.*, vol. 80, no. 4, p. 043301, Apr. 2009.
- [46] M.-N. Péron, “Étude de la réponse lumineuse des scintillateurs liquides à des électrons monoénergétiques de basse énergie,” Université Paris 11, Orsay, France, 1995.
- [47] S. Carlsson, “Liquid Scintillation Counting,” 1993.
- [48] P. Cassette, “Mesures de radioactivité par scintillation liquide,” *Tech. l'ingénieur Méthodes nucléaires d'analyse*, 2020.
- [49] “BC-501, BC-501A, BC-519 Liquid Scintillators,” *Saint-Gobain*, 2018. [Online]. Available: <https://www.crystals.saint-gobain.com/sites/imdf.crystals.com/files/documents/bc501-501a-519-data-sheet.pdf>. [Accessed: 03-Feb-2021].
- [50] C. Zorn *et al.*, “Development of Improved, Radiation-Resistant Plastic and Liquid Scintillators for the SSC,” in *Supercollider 1*, Boston, MA: Springer US, 1989, pp. 537–550.
- [51] F. D'Amico *et al.*, “Development of large volume organic scintillators for use in the MASCO telescope,” *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. A Accel. Spectrometers, Detect. Assoc. Equip.*, vol. 422, no. 1–3, pp. 139–143, Feb. 1999.
- [52] J. I. Hopkins, “The Response of the Anthracene Scintillation Counter to Monoenergetic Electrons,” *Phys. Rev.*, vol. 77, no. 3, pp. 406–407, Feb. 1950.
- [53] E. Brannen and G. L. Olde, “The Response of Organic Scintillators to Electron Energy Deposited in Them,” *Radiat. Res.*, vol. 16, no. 1, p. 1, Jan. 1962.
- [54] F. D. Brooks, “Development of organic scintillators,” *Nucl. Instruments Methods*, vol. 162, no. 1, pp. 477–505, 1979.
- [55] M. N. Péron and P. Cassette, “COCO, a Compton coincidence experiment to study liquid scintillator response in the 1–20 keV energy range,” *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. A Accel. Spectrometers, Detect. Assoc. Equip.*, vol. 353, no. 1–3, pp. 41–45, Dec. 1994.
- [56] J. F. Williamson, J. F. Dempsey, A. S. Kirov, J. I. Monroe, W. R. Binns, and H. Hedtjärn, “Plastic scintillator response to low-energy photons,” *Phys. Med. Biol.*, vol. 44, no. 4, pp. 857–871, Apr. 1999.
- [57] G. Ros, G. Sáez-Cano, G. A. Medina-Tanco, and A. D. Supanitsky, “On the design of experiments based on plastic scintillators using GEANT4 simulations,” *Radiat. Phys. Chem.*, vol. 153, pp. 140–151, Dec. 2018.
- [58] M. Ebennau *et al.*, “Energy dependent response of plastic scintillation detectors to

- photon radiation of low to medium energy," *Med. Phys.*, vol. 43, no. 8Part1, pp. 4598–4606, Jul. 2016.
- [59] P. Limkitjaroenporrn, J. Kaewkhao, P. Limsuwan, and W. Chewpraditkul, "Nonproportionality of electron response using CCT: Plastic scintillator," *Appl. Radiat. Isot.*, vol. 68, no. 9, pp. 1780–1784, Sep. 2010.
- [60] G. V. Santurio and C. E. Andersen, "Quantifying the ionization quenching effect in organic plastic scintillators used in MV photon dosimetry," *Radiat. Meas.*, vol. 129, p. 106200, Oct. 2019.
- [61] J. B. Birks, "Scintillations from Organic Crystals: Specific Fluorescence and Relative Response to Different Radiations," *Proc. Phys. Soc. Sect. A*, vol. 64, no. 10, pp. 874–877, Oct. 1951.
- [62] W. Naumann, "Fluorescence quenching by reversible excimer formation: Kinetics and yield predictions for a classical potential association–dissociation model," *J. Chem. Phys.*, vol. 120, no. 20, pp. 9618–9623, May 2004.
- [63] M. J. Berger, J. . Coursey, M. . Zucker, and J. Chang, "Stopping-Power & Range Tables for Electrons, Protons, and Helium Ions," *National Institute of Standards and Technology, Gaithersburg, MD*, 2005. [Online]. Available: <http://physics.nist.gov/Star>. [Accessed: 03-Feb-2021].

Chapitre 2 – Briques technologiques détecteur

Dans ce chapitre, nous présenterons le principe de fonctionnement du détecteur *phoswich*, ainsi que celui des fibres scintillantes. Un état de l'art concernant leurs utilisations respectives sera exposé avant d'introduire leurs applications spécifiques dans le domaine de la caractérisation radiologique de grandes surfaces. Il est à souligner que les travaux concernant le détecteur de type *phoswich* ont notamment été effectués au travers de l'encadrement du stage d'un étudiant de Master 2 en 2020, Mohamed BENYAKHLEF, pour une durée de 5 mois.

2.1 Phoswich

Le *phoswich* est le premier détecteur envisagé pour la conception d'un prototype répondant aux exigences de caractérisation radiologique des grandes surfaces au moyen d'un détecteur déformable. Ce choix s'explique par la capacité à produire de grands volumes de scintillateur plastique et à le pixelliser. La déformabilité sera réalisée quant à elle grâce à des supports mécaniques sur ressorts, permettant d'assurer que chaque pixel soit au plus proche de la surface caractérisée.

2.1.1 Principe de fonctionnement

Le détecteur *phoswich* – de la contraction de *phosphor* et *sandwich* – est un type de détecteur composé de deux scintillateurs ou plus, couplés optiquement. La lumière émise par les scintillateurs est alors vue par un même photodétecteur [1], mais l'utilisation de scintillateurs ayant des réponses temporelles différentes permet de séparer les contributions pour chaque scintillateur. La première mention d'un système *phoswich* dans la littérature a été faite par D. H. Wilkinson en 1952 dans un article intitulé « *The Phoswich—A Multiple Phosphor* » [2]. Dans cet article est présenté une combinaison d'un scintillateur organique stilbène et d'un cristal de NaI(Tl). Au vu des temps mis en jeu lors de leurs décroissances lumineuses respectives, le scintillateur organique est appelé scintillateur rapide, et le NaI(Tl) scintillateur lent. En effet, comme vu précédemment, un scintillateur organique possède une réponse temporelle de l'ordre de la dizaine de nanosecondes, tandis que le scintillateur inorganique NaI(Tl) possède une réponse de l'ordre de quelques centaines de nanosecondes. La réponse totale du détecteur est une convolution des deux réponses et possède donc une composante rapide et lente. La figure 2-1 présente le schéma des impulsions lues par Wilkinson sur son dispositif expérimental, pour un *phoswich* stilbène/NaI(Tl).

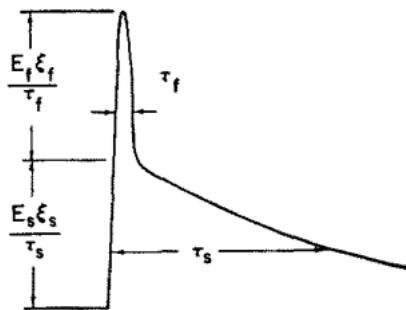


Fig. 2-1. Schéma des amplitudes générées par un *phoswich* stilbène/Nal(Tl) [2]. Axe des abscisses en unité arbitraire de temps et axe des ordonnées en unité arbitraire d'amplitude de l'impulsion. La contribution à l'amplitude du scintillateur rapide est désigné par l'indice *f* (fast), et *s* (slow) pour le scintillateur lent.

Si le signal ne possède qu'une composante rapide, le rayonnement incident n'interagit qu'avec le scintillateur rapide, et inversement si l'impulsion ne possède qu'une composante lente (interaction avec le scintillateur lent). Enfin, si les deux composantes sont présentes, le rayonnement incident interagit dans les deux scintillateurs. Ainsi, les applications de mesures en coïncidence et anti-coïncidence sont classiques pour un détecteur *phoswich* et déjà anticipées par Wilkinson. Il présente ainsi un exemple de détecteur composé d'un scintillateur lent entouré d'un scintillateur rapide. Toute impulsion provenant du scintillateur rapide entraîne un rejet du signal du scintillateur lent corrélé temporellement. Seules les impulsions provenant d'interactions uniquement avec le scintillateur lent sont ainsi conservées.

2.1.2 Discrimination du rayonnement incident

En prenant en compte les spécificités d'interactions des particules étudiées, et en jouant sur la géométrie des scintillateurs, il est possible de séparer les composantes d'une même source radioactive. Ainsi, S. Usuda présente en 1992 un *phoswich* composé de trois scintillateurs différents [3], capables de détecter les particules alpha, bêta, les rayonnements gamma et les neutrons. Le premier scintillateur est une couche fine de ZnS(Ag) visant à détecter les particules alpha. Le deuxième scintillateur est un monocristal organique d'anthracène détectant les particules bêta, les photons et les neutrons rapides. Enfin, le dernier scintillateur est un verre scintillant (silicate) dopé au ^{6}Li destiné à la détection des neutrons thermiques. La figure 2-2 présente le schéma de la configuration.

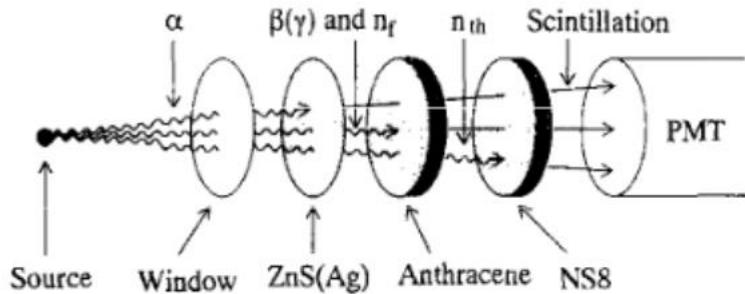


Fig. 2-2. Schéma du montage proposé par S. Usuda [3], composé : d'un film de ZnS(Ag), d'un cristal d'anthracène, et d'un verre scintillant (silicate) dopé au ^6Li de nom commercial NS8.

De manière générale, on peut ainsi définir quatre catégories de particules qu'il faut pouvoir détecter lors de l'étape de caractérisation radiologique, et étudier leurs comportements attendus sur un *phoswich*.

- Particules chargées lourdes

Les particules chargées lourdes, comme les particules alpha et les protons, ont un pouvoir d'arrêt important. Elles déposent toute leur énergie sur une courte distance et ne sont ainsi pas considérées comme pénétrantes. Leur parcours dans l'air est de l'ordre de quelques centimètres (ordre de grandeur de 5 cm pour des particules alpha de 5 MeV). Ainsi, une fine couche scintillante sera suffisante pour détecter les particules alpha. On utilise classiquement du sulfure de zinc dopé à l'argent, abrégé ZnS(Ag), dont l'épaisseur est de l'ordre de quelques μm à quelques dizaines de μm [3]. Le dépôt d'énergie sera important dans le scintillateur et conduira à un spectre de détection de quelques centaines de keV. De plus, puisqu'aucune particule alpha n'est supposée traverser ce scintillateur, il n'y aura donc pas de détection parasite dans le scintillateur suivant. Notons qu'à cause des phénomènes d'affaiblissement lumineux présentés dans le chapitre précédent, notamment ceux décrits par la loi de Birks, l'énergie mesurée à partir du spectre est inférieure à l'énergie déposée. Par exemple, dans un scintillateur organique, une particule alpha de 5 MeV totalement arrêtée produira une impulsion correspondant à une énergie de 500 keV, correspondant ainsi à une diminution d'un facteur 10 avec l'énergie déposée [4]. On parle alors d'une énergie de 500 keVee, pour keV électron équivalent. Au vu de la faible épaisseur de ZnS(Ag), seule une particule chargée lourde peut induire un dépôt de quelques centaines de keV. Ainsi, il est aisément de séparer les impulsions provenant de particules alpha de celles induites par d'autres types de particules, via l'application d'un seuillage minimal en énergie.

- Particules chargées légères

Les particules chargées légères, comme les électrons et les positrons, ont une portée plus faible que les photons mais plus importante que les particules chargées lourdes. En fonction de leur énergie, leur parcours dans l'air peut être compris entre quelques centimètres et quelques mètres. Une couche scintillante en polystyrène d'un centimètre d'épaisseur pourra arrêter un électron de 2 MeV [5]. En raison de leur mécanisme d'interaction, les particules chargées interagiront de manière continue avec la matière traversée, ce qui signifie que les électrons créeront un signal dans chaque scintillateur traversé. Pour les scintillateurs fins comme le ZnS(Ag) cité précédemment, le dépôt d'énergie des particules bêta est trop faible pour être significatif, de l'ordre du keV à quelques keV déposés [3]. Dans le cas d'une discrimination bêta/gamma, il est possible que les rayonnements bêta interagissent avec le scintillateur dédié aux rayonnements gamma, si le scintillateur dédié aux particules bêta est trop fin. Il existe donc deux types de signatures propres aux particules bêta : soit le premier scintillateur est suffisamment épais pour arrêter toutes les particules bêta, soit l'on considère comme bêta toute interaction dans les deux scintillateurs. Le choix de la discrimination dépendra de la configuration du *phoswich*, et de l'impact des photons dans le scintillateur dédié aux particules bêta, et inversement pour l'impact des particules bêta dans le scintillateur dédié aux rayonnements gamma.

- Rayonnements électromagnétiques

L'interaction des rayonnements électromagnétiques avec la matière est dite stochastique, ce qui signifie qu'il est impossible de prévoir pour un unique photon le nombre d'interactions qu'il subira. Leur passage dans la matière suit une trajectoire rectiligne ponctuée d'interactions, et pour chaque interaction, la direction de la trajectoire est le plus souvent changée. Comme vu dans les principes physiques du chapitre 1, d'un point de vue macroscopique, l'atténuation d'un flux de photons est modélisable et suit une loi exponentielle, qui dépend de la densité et de l'épaisseur du matériau traversé. En reprenant l'exemple du scintillateur en polystyrène d'un centimètre d'épaisseur, on peut calculer la fraction du flux photonique déposant de l'énergie dans le scintillateur. Considérons des rayonnements gamma provenant du ^{137}Cs et d'énergie 662 keV. En utilisant l'équation 2 présentée dans le chapitre précédent, ainsi que la base de données du NIST, XCOM [6], on calcule que seulement 3% des photons interagiront dans le scintillateur plastique d'un centimètre d'épaisseur.

- Neutrons

La présence d'un signal neutronique est notable dans des applications liées à la gestion de colis de déchets et également pour certains cas de contamination (présence de plutonium). En effet, des actinides peuvent émettre directement des neutrons par fission spontanée, ou bien indirectement lorsque leur émission alpha conduit à des réactions (α, n) sur des éléments légers, tels que le ^7Li ou le ^9Be par exemple. L'énergie des neutrons dicte les interactions possibles avec la matière : des neutrons rapides, d'une énergie supérieure au MeV, vont interagir avec les noyaux d'hydrogène du milieu, leur transmettant tout ou partie de leur énergie, dans un processus appelé thermalisation. Le proton qui compose entièrement le noyau d'hydrogène est alors expulsé et interagit avec la matière sur son parcours. C'est cette interaction induite par le proton, appelé proton de recul, qui sera à l'origine de la luminescence. Les protons sont des particules chargées lourdes, et possèdent donc un pouvoir ionisant plus important que les électrons, générés lors d'interactions photon-matière. Ainsi, pour un même scintillateur, il est possible de séparer les composantes dues aux neutrons rapides et aux photons par la discrimination de la forme de l'impulsion (*Pulse Shape Discrimination* ou PSD [7]), dont la méthode est illustrée sur la figure 2-3 tirée de Zhang, 2017 [8]. Ainsi, au sein du montage expérimental de S. Usuda montré sur la figure 2-2, l'anthracène permet également de détecter les neutrons rapides, et de séparer les composantes gamma et neutron.

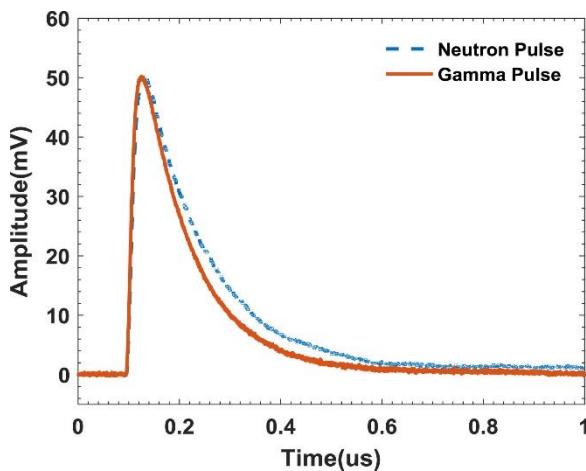


Fig. 2-3. Impulsion associée à la détection d'un rayon gamma (orange) et d'un neutron (bleu) dans un cristal organique composé de stilbène [8].

Pour des neutrons thermiques, définis comme ayant une énergie proche de 25 meV, des réactions de captures neutroniques sont possibles. Certains éléments comme le ^{10}B ou le $^6\text{Li}^1$ ¹ peuvent subir une désintégration alpha suite à une capture neutronique : c'est la réaction (n, α) [9]. Il y a donc émission d'une particule alpha, à l'origine d'une luminescence dans le

¹ Pour le cas particulier du ^6Li la réaction est notée (n, T) car le tritium (T) correspond à l'éjectile et la particule alpha correspond au noyau produit.

scintillateur. Là-aussi, il est possible de séparer les impulsions dues aux neutrons thermiques de celles dues aux photons et aux neutrons rapides grâce à la discrimination par la forme de l'impulsion.

Au-delà de la composante temporelle des scintillateurs, on constate donc que l'épaisseur de chaque scintillateur joue un rôle important dans la PSD employée pour la discrimination des différentes signatures incidentes [10]. Les notations de scintillateur fin et épais sont donc souvent rencontrées, en plus des notations de scintillateur lent et rapide [11], pour désigner les scintillateurs composant le *phoswich*.

2.1.3 Domaines d'applications du *phoswich*

- Cycle du combustible nucléaire et démantèlement

Les domaines d'applications des détecteurs *phoswich* sont variés et basés sur leur capacité à discriminer différents rayonnements émis par une même source radioactive. L'exemple précédent tiré de S. Usuda [3] a pour application finale le contrôle radiologique dans des installations du cycle du combustible nucléaire. Les radionucléides mesurés sont donc généralement des actinides ou des produits de fission, caractérisés par une chaîne de désintégration émettant à la fois des particules alpha, bêta, des neutrons et des rayons gamma. Ces travaux ont ensuite été repris par K. Yasuda [12] en 2001, qui a introduit une double discrimination basée à la fois sur le temps de montée des impulsions, mais aussi sur l'amplitude des impulsions mesurées, liée au rendement de scintillation. En utilisant un *phoswich* composé d'un scintillateur ZnS(Ag) et d'un verre scintillant dopé au ^{6}Li (de nom commercial GS2), K. Yasuda obtient de meilleures performances en termes de discrimination entre particules alpha, signal bêta/gamma et neutrons thermiques en employant la double discrimination par rapport à une simple discrimination temporelle. Les sources utilisées sont du ^{244}Cm (émetteur alpha), du ^{252}Cf (émetteur alpha/neutrons) et du ^{137}Cs (émetteur bêta/gamma). Les résultats sont présentés sur la figure 2-4.

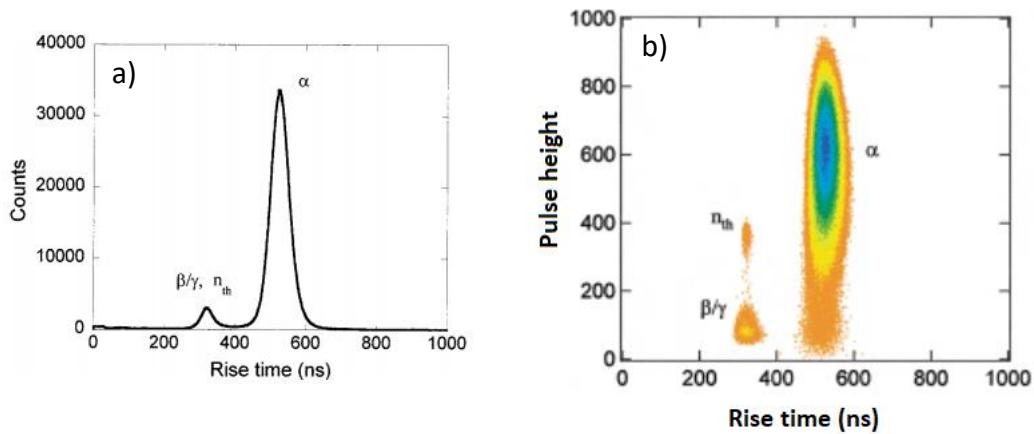


Fig. 2-4. Résultats de discrimination d'un phoswich ZnS(Ag)/GS2 exposé simultanément à des sources de ^{244}Cm , de ^{252}Cf et de ^{137}Cs [12]. a) : discrimination sur temps de montée des impulsions, b) : double discrimination sur le temps de montée et l'amplitude des impulsions.

On constate que la figure 2-4 a) ne montre aucune discrimination entre le signal bêta/gamma et neutron thermique. À l'inverse, la figure 2-4 b) montre une discrimination nette entre le lobe dû aux bêta/gamma et celui des neutrons thermiques. Enfin, quelle que soit la méthode, la discrimination des particules alpha avec les autres signatures est confirmée. Ainsi, la couche de ZnS(Ag) est suffisante et efficace pour une séparation du signal alpha avec les autres mesurandés présents. On conclut de cette étude que la méthode de discrimination est essentielle car elle permet pour une même configuration *phoswich* une amélioration des capacités de discrimination.

B. K. Seo présente en 2008 un double détecteur basé sur un *phoswich*, composé d'une couche en ZnS(Ag), d'un scintillateur plastique, et d'un détecteur semi-conducteur CdTe [13]. L'application visée est la caractérisation radiologique de tuyauterie contaminée. Le détecteur *phoswich* détecte et sépare les composantes alpha et bêta, et le détecteur CdTe est utilisé pour la mesure des rayonnements gamma. L'innovation se situe dans l'intégration du système, car ce dernier est adapté au déploiement au sein de tuyaux de cinq centimètres de diamètre. Il permet donc la caractérisation radiologique à l'intérieur de tuyauteries utilisées dans des installations nucléaires de base. Il est ainsi possible de déterminer *in situ* si le tronçon de tuyau caractérisé doit être considéré comme déchet radioactif ou comme déchet conventionnel. Cela permet donc une réduction des déchets qualifiés de radioactifs sur un chantier de démantèlement. La figure 2-5 présente un schéma du détecteur, et la figure 2-6 présente une photographie du système complet.

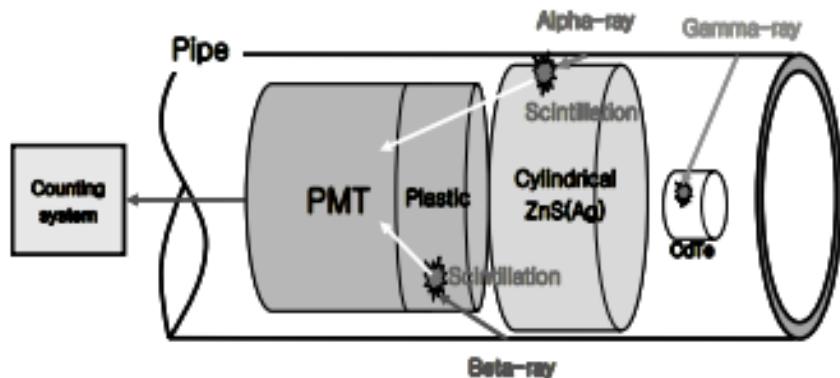


Fig. 2-5. Schéma du détecteur utilisé pour la caractérisation radiologique de tuyaux. Le phoswich est composé d'un cylindre en ZnS(Ag) et d'un scintillateur plastique placé derrière [12].

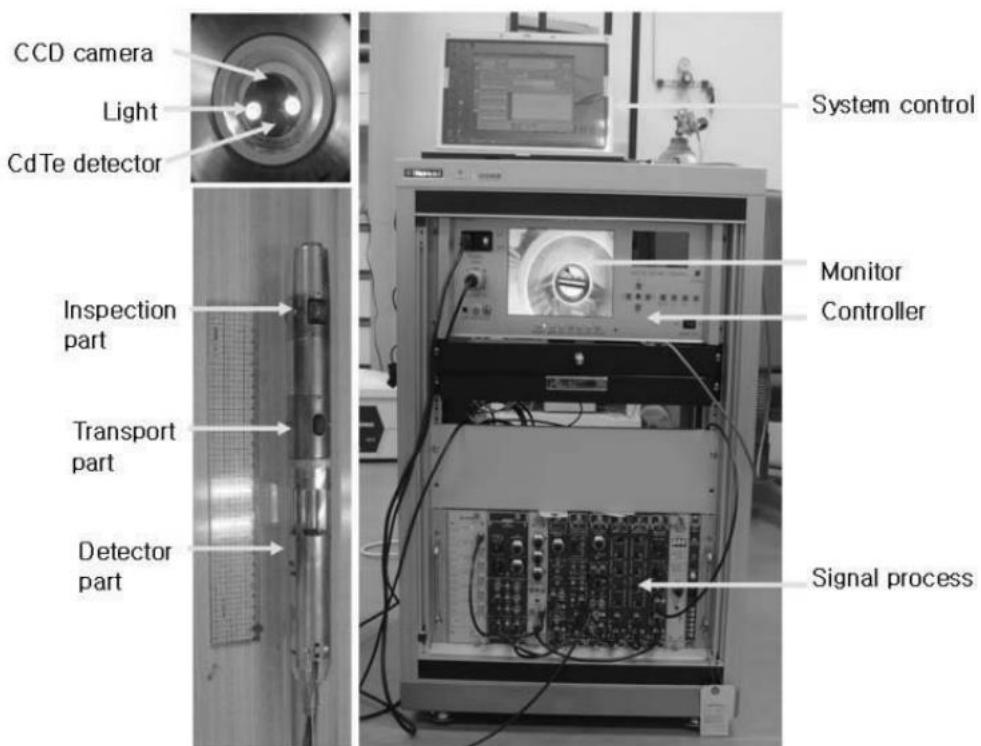


Fig. 2-6. Photographie du système de mesure et de l'électronique associée [13].

Le système de détection est capable de séparer les composantes alpha, bêta, et gamma, à l'intérieur d'un tuyau de diamètre supérieur ou égal à 5 cm.

Un rapport publié en 2015 présente les travaux concernant la caractérisation radiologique des structures du génie civil d'un ancien laboratoire de radiochimie du JRC (*Joint Research Center*, ou Centre Commun de Recherche) à Ispra en Italie [14]. Les techniques de mesures non-destructives employées sont des contaminamètres portables pour la mesure alpha/bêta, ainsi que des spectromètres gamma de type HPGe pour la mesure gamma. Notons que le spectromètre est monté sur un système ISOCS (*In Situ Object Counting System*) [15], qui

permet un étalonnage en fonction du champ de vision du spectromètre. Les figures 2-7 et figure 2-8 présentent les systèmes de détection employés.



Fig. 2-7. Contaminamètre employé de type Berthold LB124 SCINT (à gauche), et exemple d'utilisation sur site (à droite) [14].



Fig. 2-8. Spectromètre gamma HPGe avec système ISOCS (à gauche), et exemple d'utilisation sur site (à droite) [14].

La surface totale de caractérisation était de 7363 m² divisée en surfaces d'un mètre carré chacune pour la caractérisation radiologique. Le protocole de caractérisation sur site était le suivant :

- 1) Mesure du bruit de fond dans la pièce contenant l'unité de surface à caractériser.
- 2) Caractérisation radiologique de l'unité de surface avec le contaminamètre, mesure moyenne de 6 min par mètre carré. Nouvelle mesure pour le point d'activité le plus important.

- 3) Identification des unités de surfaces ayant une activité supérieure au seuil de déclassement.
- 4) Mesure par spectromètre gamma de l'ambiance de chaque salle pour la vérification de radioactivité résiduelle.
- 5) Mesure par spectromètre gamma pour tout point chaud détecté.

Ainsi, l'étape 2) par contaminamètre a duré environ 31 jours d'après le temps moyen indiqué par mètre carré. Si l'on appliquait cette méthodologie aux problématiques du projet CaPSuD, le temps de caractérisation radiologique pour le déclassement serait de l'ordre de la dizaine d'années, pour une surface fixée à un million de mètres carrés et de 6 minutes de caractérisation par mètre carré. La face d'entrée du détecteur est de l'ordre de la centaine de centimètres carrés, pour l'évaluation d'une surface d'un mètre carré. Un détecteur possédant une surface de mesure plus importante permettrait alors de réduire le temps passé par mètre carré. La localisation précise des points chauds se fait lors de l'étape de la mesure par spectrométrie gamma, ce qui augmente le temps total du déclassement. Pour remédier à cette problématique, cette mesure passive a été conduite de nuit. On conclut de cette étude qu'une méthodologie envisageable pour la caractérisation radiologique des structures du génie civil requiert la combinaison de contaminamètres et de spectromètres gamma haute résolution. Cette méthodologie présente des axes d'amélioration clairs en termes d'adaptation du détecteur pour des problématiques de grandes surfaces à caractériser.

Plus récemment, en 2019, H. Y. Joo [16] présente un système *phoswich* pour le contrôle radiologique des structures d'une INB après démantèlement, adapté à la discrimination bêta/gamma, et baptisé *PHORS* pour *phoswich radiation sensor*. Ce système est composé d'un détecteur de difluorure de calcium dopé à l'europium, noté $\text{CaF}_2(\text{Eu})$, visant à détecter les particules bêta, et d'un détecteur $\text{NaI}(\text{TI})$ dédié à la détection des rayonnements gamma. L'ensemble est couplé à un tube photomultiplicateur (PMT). Afin de répondre aux problématiques de la caractérisation radiologique des grandes surfaces, le système est intégré à un drone terrestre qui communique sa position avec un ordinateur, ce qui permet de coupler les résultats de mesure à une position. La figure 2-9 présente le schéma du détecteur utilisé et le système intégré au drone terrestre.

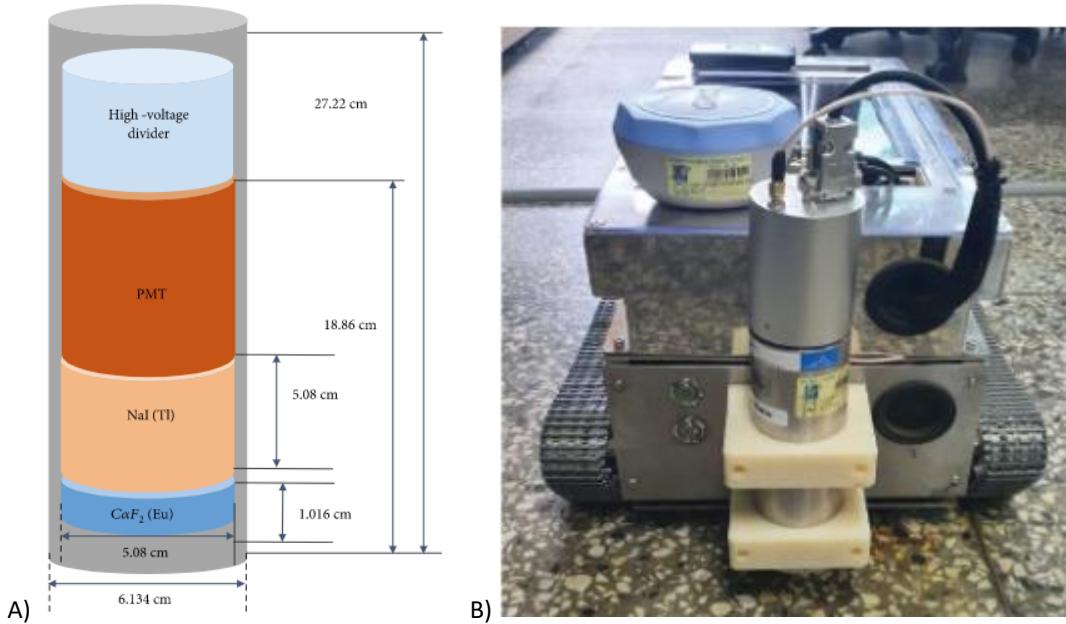


Fig. 2-9. A) Schéma du détecteur employé dans le système PHORS, composé d'un scintillateur $\text{CaF}_2(\text{Eu})$ et d'un scintillateur $\text{NaI}(\text{TI})$ [16]. B) Photographie du système embarqué sur drone, dont l'ensemble détecteur-PMT est visible au premier plan [16].

Le montage sur drone permet alors une automatisation de la mesure et donc un gain de temps général sur l'ensemble de la caractérisation radiologique du site. Cette méthode semble adaptée à la caractérisation des sols, mais impose que ces derniers soient plats sous peine d'offrir des performances de mesures dégradées.

- Astrophysique et mesure spatiale embarquée

À partir de l'envoi du premier satellite artificiel dans l'espace en 1957, il n'a fallu que trois ans pour qu'apparaisse dans la littérature la première mention de l'utilisation d'un *phoswich* lors d'une campagne de mesure au sein d'un vol spatial. En effet, il existe un rapport, écrit par J. D. Knecht en 1960 [17], listant l'ensemble de l'instrumentation nucléaire embarquée ou prévue sur des vols datant de 1958 à 1961. Dans ce document, les *phoswichs* sont désignés selon la particule mesurée, gamma ou proton. Le *phoswich* gamma consistait en un détecteur $\text{CsI}(\text{TI})$ entouré d'une fine couche de scintillateur organique. La détection se faisait alors en anti-coïncidence car les rayonnements gamma ont peu de chances d'interagir dans le scintillateur plastique. Le deuxième type de *phoswich*, dit proton, est composé d'un cristal de $\text{CsI}(\text{TI})$ et d'une couche d'un scintillateur plastique placé derrière le cristal. La détection fonctionnait en anti-coïncidence, car les protons ont une probabilité plus grande de s'arrêter totalement dans le cristal et de ne pas interagir avec le scintillateur plastique.

En 1963, un rapport technique écrit par J. B. Reagan [18] décrit notamment les détecteurs mais aussi l'électronique associée qui fut embarquée dans des vols spatiaux. Les *phoswichs* utilisés étaient composés de couches superposées de verre scintillant dopé au ${}^6\text{Li}$ pour la

détection neutronique. En 1979, J. A. M. Bleeker et J. M. Overtoom [19] étudient la possibilité d'utiliser des *phoswichs* en tant que télescopes X, grâce à leur capacité de rejet de bruit de fond, en les embarquant à bord de ballons-sondes. M. Takada présente en 2007 [20] une application plus récente des *phoswichs* dans la mesure spatiale embarquée, qui permet une triple discrimination neutrons/gamma/protons basée uniquement sur des scintillateurs organiques. Ici, un scintillateur liquide lent est encapsulé dans un scintillateur plastique rapide, le tout couplé optiquement à un PMT. Un schéma du montage est présenté sur la figure 2-10.

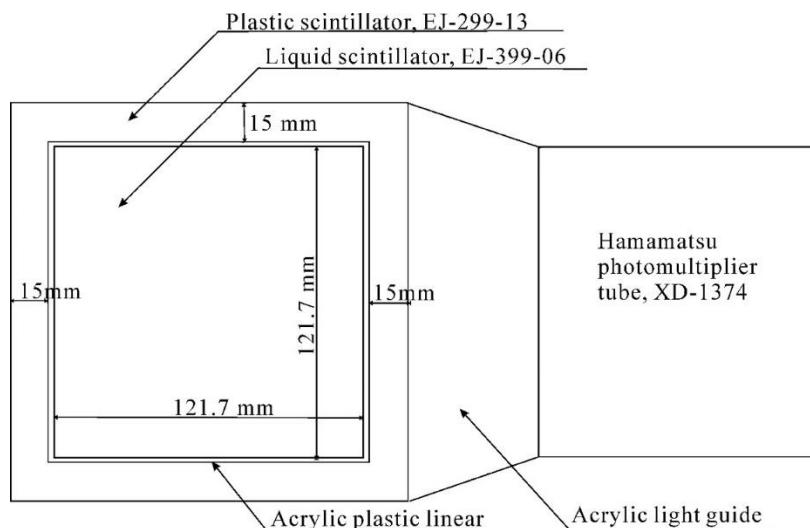


Fig. 2-10. Schéma du montage du phoswich scintillateur liquide / scintillateur plastique [20].

La méthode de discrimination est ainsi basée uniquement sur la temporalité des impulsions générées, avec une discrimination neutrons/protons basée sur le principe qu'un proton incident interagira forcément avec le scintillateur plastique enveloppant le scintillateur liquide. La figure 2-11 suivante présente ce concept.

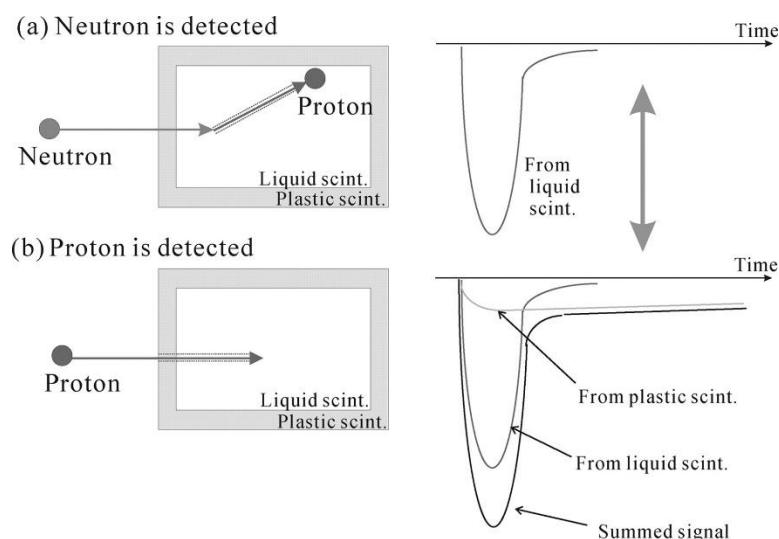


Fig. 2-11. Schéma de la discrimination neutron/proton par forme de l'impulsion [20].

Cette méthode, pour une application au domaine spatial, ne présente pas de risques de destruction du scintillateur liquide, car ce dernier est fixé au sein d'une structure embarquée et n'est pas voué à être manipulé. Pour les problématiques associées à la caractérisation radiologique bêta des grandes surfaces, le détecteur doit se trouver au plus proche de la surface mesurée. Si erreur de manipulation, une dégradation, voire une destruction du scintillateur liquide est possible car la fragilité de ce dernier dépend de la qualité de son encapsulage, qui se doit d'être le plus fin possible pour éviter toute atténuation. Les produits chimiques composant les scintillateurs liquides pourraient ainsi être libérés et poser un risque chimique vis-à-vis de la sécurité de l'opérateur. La composition du *phoswich* organique pour une application au sein du projet CaPSuD se devra donc d'être uniquement en plastique.

- Imagerie médicale

La première utilisation documentée d'un *phoswich* pour une application d'imagerie médicale remonte à 1997 dans un article de M. Dahlbom [21]. Cette étude porte sur la recherche d'un bloc détecteur unique pour la tomographie par émission de positrons (TEP) et la tomographie par émission monophotonique (TEMP). La TEP se base sur l'emploi de radionucléides émetteurs β^+ qui s'annihilent en formant deux rayonnements gamma de 511 keV, émis en direction opposée. En TEMP, on utilise le plus souvent le ^{99m}Tc qui émet un rayonnement gamma de 140 keV. Le scintillateur $\text{Bi}_4(\text{GeO}_4)_3$, abrégé BGO, est déjà utilisé en raison de son adéquation pour la détection de photons de 511 keV, couplé à une résolution spatiale de l'ordre de 4 mm à cette énergie. Cependant, son rendement lumineux de 7000 photons par MeV est trop faible pour pouvoir être utilisé en TEMP, car l'énergie des rayons gamma émis est généralement de 140 keV. Afin d'illustrer la problématique, la figure 2-12 montre la résolution spatiale du détecteur exposé à une source de 140 keV ou 511 keV.

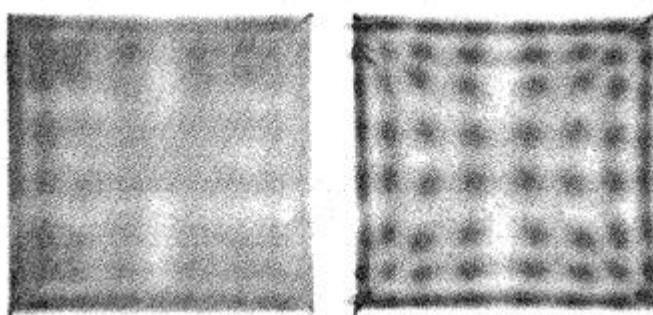


Fig. 2-12. Résolution spatiale d'un détecteur BGO exposé à une source gamma de 140 keV (à gauche) et 511 keV (à droite) [21].

Il existe un scintillateur possédant un rendement lumineux environ 4 fois supérieur au BGO (26000 photons par MeV), le $\text{Lu}_2(\text{SiO}_4)\text{O:Ce}$ ou LSO. Son rendement est donc adapté à la détection des rayonnements gamma de 140 keV et de 511 keV. Cependant, il ne peut être

utilisé en TEMP car il présente une radioactivité naturelle liée à la présence de ^{176}Lu , dégradant le rapport signal sur bruit de manière trop significative, mais peut être utilisé en TEP. Les auteurs proposent alors le Y_2SiO_5 , ou YSO, un scintillateur possédant un rendement de scintillation 1,5 fois supérieur au LSO (39000 photons par MeV), ne présentant pas de radioactivité naturelle, mais ayant un numéro atomique moyen et une densité plus faible. Ce dernier est donc adapté à la détection de rayonnements gamma de 140 keV mais pas à celle de 511 keV. Un *phoswich* composé alors de YSO et de LSO permet donc la double détection des photons de 140 keV et de 511 keV. Dans la configuration envisagée, le premier scintillateur est le YSO et le deuxième est le LSO, tous deux d'épaisseurs similaires de l'ordre de 2 cm. Le premier détecteur est donc adapté à la mesure des photons de 140 keV (TEMP), et le deuxième détecteur permet la mesure de ceux de 511 keV (TEP). Les signaux sont ensuite séparés par la méthode PSD lors du traitement électronique. Des résultats de mesures effectuées à l'aide d'une source de 511 keV sont présentés sur la figure 2-13.

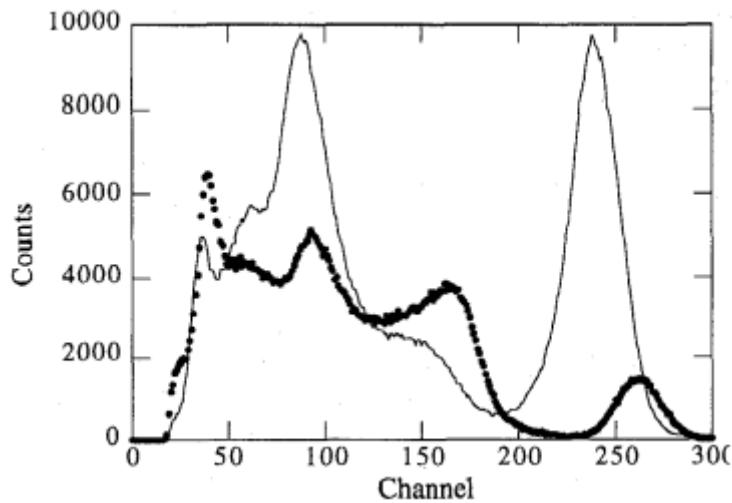


Fig. 2-13. Spectres de mesure avec scintillateur YSO (marqueurs ronds) et LSO (trait plein), exposés à une source gamma de 511 keV [21].

Le spectre du LSO présente une meilleure détection des rayonnements gamma de 511 keV par la prédominance du pic d'absorption total situé vers le canal 240. Le scintillateur YSO présente un front Compton important vers le canal 170 pour un pic d'absorption total faible en comparaison. Aucun résultat n'a cependant été présenté avec une source de 140 keV.

Deux ans plus tard, en 1999, J. Seidel présente un *phoswich* composé de trois types de scintillateurs [22]. Le premier scintillateur est un LSO, le deuxième un $\text{Gd}_2(\text{SiO}_4)\text{O:Ce}$ ou GSO, et le troisième un BGO. Chaque couche est une matrice de 9×9 scintillateurs de dimensions $2 \times 2 \times 4$ mm. L'ensemble est monté sur un tube photomultiplicateur multianode sensible à la position, ou *position sensitive multianode photomultiplier tube* (PSPMT), qui permet de localiser l'interaction. Ce *phoswich* permet alors de détecter les photons de la TEP, de mesurer

leur profondeur d'interaction, ou *depth of interaction* (DOI) [23], mais aussi de déterminer le scintillateur à l'origine de la luminescence grâce au PSPMT. La profondeur d'interaction permet d'évaluer une correction sur l'origine de l'émission photonique, lorsque celle-ci induit une émission qui sera détectée par le côté des détecteurs, et non leur face avant. La figure 2-14 présente le problème en deux dimensions.

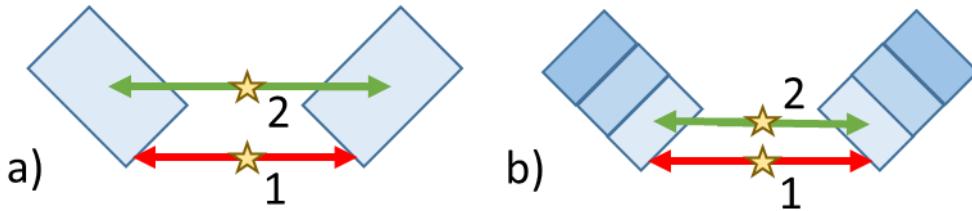


Fig. 2-14. Visualisation du problème de la profondeur d'interaction en deux dimensions pour : a) un mono détecteur, b) un détecteur phoswich. En rouge est représenté la trajectoire réelle des photons émis la source 1, et en vert est symbolisé la reconstruction associée avec la position reconstruite 2.

Le trait rouge indique la position réelle de l'interaction des rayonnements provenant de la position d'émission 1. Le trait vert symbolise la reconstruction suite à la mesure en coïncidence de l'émission. La position ainsi reconstruite est désignée par la position 2. Dans le cas de mono détecteurs, on considère le centre du détecteur comme position d'interaction pour tout rayonnement incident. Ainsi, il existe un écart important entre la position réelle d'émission et la position d'émission reconstruite, illustré sur la figure 2-14 a). L'emploi de *phoswichs* permet de réduire cet écart, comme montré sur la figure 2-14 b). Le centre du détecteur est toujours utilisé comme point de reconstruction, mais la pixellisation du détecteur permet de limiter l'écart obtenu.

L'étude de l'application du *phoswich* comme évaluateur de la profondeur d'interaction a été poursuivie par L. Eriksson en 2009 [24], V. V. Nagarka en 2010 [25] ou encore D. Prout en 2020 [26].

2.1.4 Utilisation du *phoswich* dans le projet CaPSuD

Comme discuté au sein de la section dédiée aux applications dans le cadre du démantèlement, l'utilisation de contaminamètres pour la caractérisation radiologique des structures du génie civil est courante pour l'homme du métier. Cependant, cette utilisation présente des limitations lorsque l'ensemble des surfaces à démanteler est de l'ordre de plusieurs centaines de milliers de mètres carrés. Cette surface est ensuite découpée en unités de surface à caractériser, de l'ordre du mètre carré. La faible surface de détection des contaminamètres impose de réaliser de multiples mesures par unité de surface à caractériser, si cette dernière lui est supérieure. La durée totale nécessaire à l'étape de caractérisation est

ainsi multipliée par le nombre d'acquisitions nécessaire pour couvrir la surface unitaire. De plus, les contaminamètres ne présentent pas de caractère déformable et ne peuvent donc servir qu'à la caractérisation des surfaces planes. Pour cette raison, les activités alpha/bêta localisée sur des surfaces incurvées ou planes mais en présence d'aspérités peuvent être sous-évaluées, par ralentissement dans l'air. L'étape d'identification des radionucléides est alors complexe en raison de la perte en énergie associée. Pour remédier à cette problématique, un prototype de détecteur basé sur les *phoswichs* a été développé par les équipes du projet CaPSuD. Il consiste en une matrice de *phoswichs* couplés à des photodétecteurs SiPM (*Silicon PhotoMultiplier*), montés sur des supports à ressort permettant un déplacement vertical et individuel des unités de la matrice. L'unité de détection s'adapte donc à la surface. Une chape déformable permet de limiter l'impact de la lumière visible sur le SiPM. La figure 2-15 présente le schéma d'une unité du système développé.

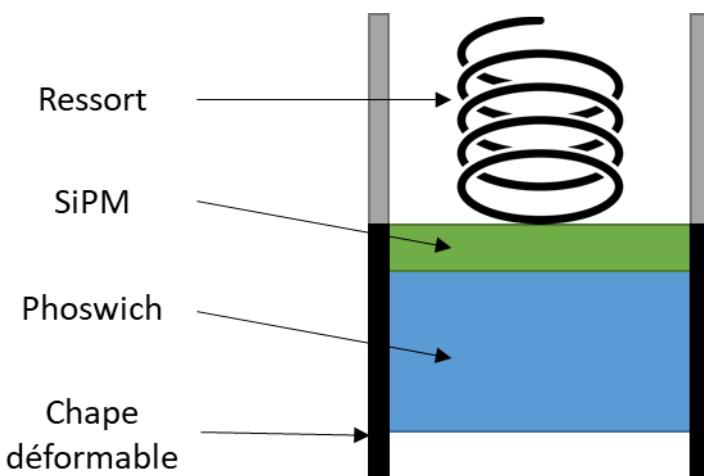


Fig. 2-15. Unité de la matrice de détection développée pour le projet CaPSuD.

Dans une première approche de prototypage, il est prévu d'utiliser une matrice de 5×5 unités de détection. Chaque unité possède une surface de mesure de forme carrée et de 25 cm^2 , avec un interstice de 5 mm entre unités. La surface totale est donc de 729 cm^2 avec une surface de mesure de 625 cm^2 . Par comparaison avec le contaminamètre LB124 décrit précédemment, et dont le modèle supposé utilisé est celui présentant la plus grande surface de mesure [27], celle du prototype CaPSuD est 1,8 fois plus grande. Les scintillateurs employés seront des scintillateurs organiques plastiques développés au sein du laboratoire qui permettront, grâce à leurs compositions, une discrimination entre les particules alpha, bêta/gamma et neutrons. La discrimination bêta/gamma reposera quant à elle sur une PSD, basée sur des épaisseurs adaptées des scintillateurs employés.

Concernant l'interstice de 5 mm présent entre chaque unité, une étude par simulation Monte Carlo a été nécessaire afin d'évaluer l'impact de l'ajout d'un matériau au sein de cet

interstice et ce dans l'optique d'améliorer la localisation d'une source radioactive par la réduction des interactions illuminant plusieurs pixels provenant d'une même particule.

2.2 Simulation Monte Carlo du prototype CaPSuD – *Phoswich*

2.2.1 Simulation Monte Carlo et instrumentation nucléaire

Les simulations par méthode Monte Carlo permettent d'obtenir des résultats numériques à des problématiques ne pouvant être résolues de manière analytique. Le résultat numérique est alors approché à l'aide d'une méthode dite stochastique, basée sur la répétition d'une expérience simulée. Lorsque le nombre de répétitions est suffisamment grand, la valeur numérique moyenne obtenue peut être considérée comme suffisamment proche de la valeur réelle. En physique nucléaire, il est impossible de décrire de manière absolue l'ensemble des phénomènes mis en jeu dans le transport de particules, et donc de résoudre analytiquement le transport dans la matière. De plus, il existe un caractère aléatoire inhérent à la physique des particules, par exemple sur le type d'interaction qui aura lieu entre une particule et la matière, le partage de l'énergie résultant de cette interaction et les directions des particules diffusées. On utilise alors des modèles de prédiction associés à des densités de probabilités, déterminées expérimentalement ou analytiquement, formant ainsi le modèle physique. Les densités de probabilités sont généralement constituées de sections efficaces d'interactions, mesurées par des laboratoires de métrologie, ou provenant de modèles analytiques. L'usage de densités de probabilités, ainsi que le caractère aléatoire précédemment décrit, impose l'utilisation d'un nombre de tirages important, afin que le phénomène soit pleinement décrit : on obtient alors une évaluation moyenne numérique de la valeur recherchée. Chaque tirage correspond à une histoire décrivant la génération d'une particule, ses interactions avec la matière et sa disparition.

Le modèle physique est couplé à un modèle géométrique, qui représente le contexte matériel dans lequel s'inscrit le transport des particules. Ce couplage permet d'évaluer une valeur numérique associée au transport de particules dans un objet matériel, sans avoir à réaliser la mesure expérimentale correspondante. Par exemple, on peut évaluer l'énergie déposée dans un détecteur, ou encore la dose reçue par un être vivant exposé à une source radioactive. En recherche et développement, la liberté de conception de la simulation permet d'évaluer l'impact de paramètres géométriques sur la valeur numérique recherchée. On peut ainsi faire varier une fenêtre d'entrée d'un détecteur, une épaisseur de blindage ou encore son matériau, avant de développer le prototype réel. Ce modèle peut être construit par le code de calcul utilisé, ou bien par des logiciels spécifiques d'ingénierie numérique 3D et qui sera importé dans le code. L'utilisation de la simulation permet aussi d'aider à la

compréhension et à l'interprétation de données expérimentales, grâce à une évaluation numérique à différentes étapes du modèle développé. La simulation est aussi utilisée dans le domaine de la radioprotection pour une évaluation *a posteriori* des doses attendues. Ainsi, une épaisseur de béton optimale peut être évaluée avant sa construction. Afin que les résultats de la simulation soient corrects, et ce pour n'importe quel contexte de simulation, le modèle doit être évalué et validé, au travers d'une comparaison expérience/simulation ou par un autre code déjà validé.

Les modèles physiques et géométriques sont donc conjointement utilisés par le code de calcul, qui permet d'associer les modèles prédictifs correspondant au matériau rencontré par la particule. Il existe plusieurs codes de calcul Monte Carlo qui peuvent être utilisés dans le domaine de la mesure et de l'instrumentation nucléaire, comme Geant4 [28] ou TRIPOLI-4 [29]. Cependant, le code de calcul utilisé ici est *Monte Carlo N-Particles* ou MCNP, dans sa version 6.2 [30]. Il a été choisi d'une part car le laboratoire d'accueil de la thèse est spécialisé dans l'utilisation de ce code de calcul [31], et d'autre part car ce code est le plus usité par la communauté scientifique de l'instrumentation nucléaire. MCNP6.2 permet la simulation de l'émission de particules par une source radioactive, leur transport dans la matière, et le calcul de données numériques comme le flux ou l'énergie déposée. Dans le cas de la simulation de la réponse d'un détecteur, MCNP6.2 ne permet pas de simuler la luminescence après interaction au sein d'un scintillateur, ou le courant généré après interaction dans un semi-conducteur. On ne peut donc simuler directement la réponse d'un photodétecteur ou de la chaîne de mesure dans son intégralité.

Puisque nous nous intéresserons particulièrement à la mesure bêta en environnement gamma, seul le transport de ces deux types de particules sera pris en compte. MCNP6.2 permet de simuler leur transport, au travers de différents algorithmes utilisés selon la gamme en énergie considérée. Pour les photons, MCNP6.2 calcule, à l'aide des bases de données constituées de sections efficaces d'interactions et de tirages aléatoires, l'énergie déposée et les angles de diffusions. Pour les particules chargées, leur mécanisme d'interaction continue rend impossible la simulation exacte de l'ensemble des interactions avec la matière. Par défaut, et pour une énergie supérieure à 1 keV, MCNP6.2 utilise un algorithme appelé histoire condensée, ou *condensed-history* en anglais [32]. Cet algorithme est basé sur la séparation du parcours de l'électron en pas d'intégrations suffisamment grands pour que la théorie des diffusions multiples [33] soit valide, mais suffisamment faibles pour que l'énergie moyenne perdue soit minimisée. À chaque pas, la direction de l'électron et l'énergie perdue sont tirées aléatoirement selon des distributions de probabilité. Dès lors, chaque tirage constitue la condensation de multiples interactions prises en compte en une seule fois, donnant ainsi le nom à cette méthode [34].

2.2.2 Simulation de la matrice de *phoswich*

Les travaux présentés dans cette section ont été en partie obtenus lors de l'encadrement du stage de Mohamed BENYAKHLEF en 2020, alors étudiant au sein du Master Instrumentation de l'université de Bordeaux. Le travail de simulation, à l'aide du code MCNP6.2, porte sur : la réponse, aux particules considérées, du *phoswich* prévu pour le prototype ; une première approche sur la discrimination envisageable entre photons et particules bêta ; ainsi que l'étude du rajout d'un blindage interstitiel entre les pixels du détecteur. Ces travaux de simulation permettent d'orienter et d'optimiser l'étape de conception du système de mesure. Le prototypage en lui-même du détecteur pixellisé *phoswich* a été réalisé par d'autres membres de l'équipe projet et ne sera donc pas présenté dans ce mémoire.

- **Phoswich unique**

La géométrie simulée est composée d'un *phoswich* en polystyrène, de fenêtre d'entrée $5 \times 5 \text{ cm}^2$, dont les épaisseurs sont de $150 \mu\text{m}$ et 5 mm pour le scintillateur fin et épais respectivement. Ces dimensions sont définies par le processus de synthèse chimique nécessaire à la fabrication des scintillateurs. Un collimateur en polystyrène, d'épaisseur 5 mm , est placé entre la source et le *phoswich*, et possède une ouverture de 5 mm de diamètre. Enfin, le cylindre source, en acier inoxydable, encapsulant le film sur lequel est déposé la source radioactive est simulé. La figure 2-16 présente la géométrie.

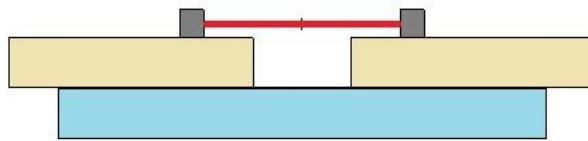


Fig. 2-16. Géométrie du modèle de simulation MCNP6 : phoswich en bleu, collimateur en beige, cylindre source en gris et film encapsulateur en rouge.

Deux sources ont été simulées pour étudier le dépôt en énergie dans chaque scintillateur : une source gamma de ^{137}Cs d'énergie $661,7 \text{ keV}$, et une source bêta de ^{36}Cl dont l'énergie moyenne est de $251,3 \text{ keV}$ et l'énergie maximale de $709,5 \text{ keV}$. Les sources sont surfaciques, de 15 mm de diamètre, et émettent leurs rayonnements de manière isotrope. La figure 2-17 présente les résultats obtenus pour le cas de la source de ^{137}Cs . Afin d'évaluer les contributions des électrons secondaires, les simulations ont été conduites en simulant leur transport ou en le désactivant. Par analogie avec la notation au sein du code MCNP6.2, les simulations avec transport des électrons secondaires seront désignées « PE », et les simulations sans prise en

compte de ce phénomène de transport seront notées « P ». Dans les résultats suivants, aucun élargissement gaussien n'est appliqué.

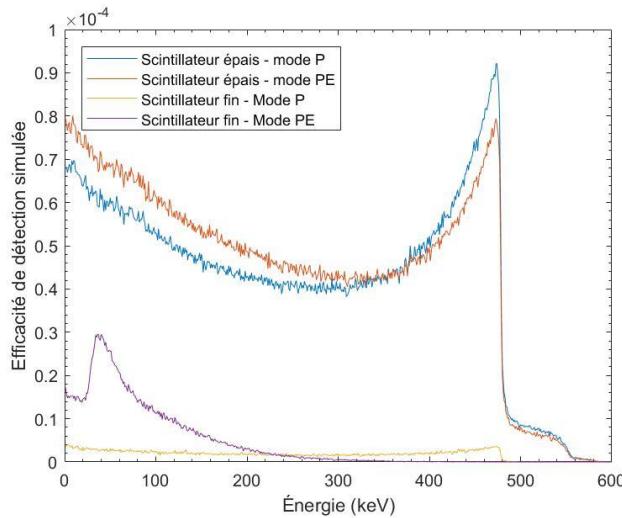


Fig. 2-17. Efficacités de détection simulées du phoswich exposé à une source gamma de 661,7 keV. Simulations sans électrons secondaires désignées par le mode « P », et simulations avec par le mode « PE ».

On retrouve le front Compton attendu à 477 keV dans le scintillateur épais quel que soit le mode de calcul considéré, et dans le scintillateur fin pour le mode P. Pour le scintillateur fin en mode PE en revanche, le front Compton n'est pas présent, et on constate l'apparition d'un pic à 40 keV. On explique ce comportement par l'absence de transport des électrons dans le mode P ; leur énergie est déposée à l'endroit de l'interaction Compton d'où un dépôt total dans le scintillateur fin. Dans le mode PE, les électrons sont transportés, et si ces derniers possèdent une énergie suffisante, ils peuvent s'échapper du scintillateur fin. Le pic à 40 keV qui apparaît dans ce cas correspond à un dépôt partiel de ces électrons dans le scintillateur fin. Afin d'illustrer ce propos, une simulation complémentaire a été réalisée et ne comprend que le scintillateur fin. On compare ensuite le résultat de cette simulation au précédent calcul pour le scintillateur fin. La figure 2-18 présente cette comparaison.

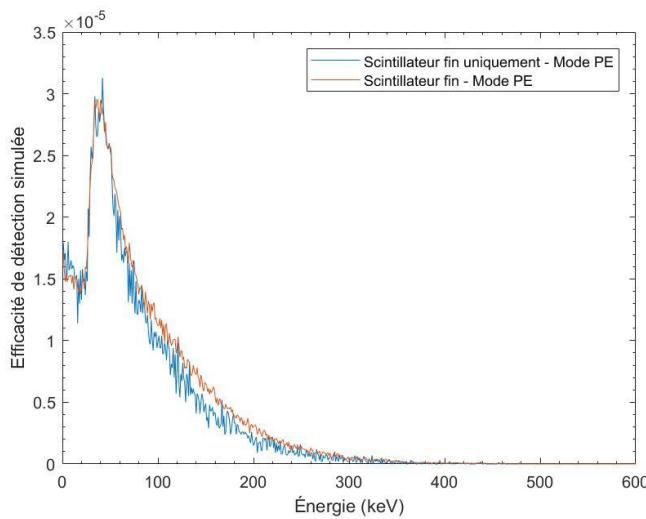


Fig. 2-18. Efficacité de détection simulée pour le scintillateur fin exposé à une source gamma de 661,7 keV, en mode PE. Scintillateur fin uniquement en bleu, et présence du scintillateur épais en orange.

Les deux courbes de la figure 2-18 se superposant, on en conclut que des rayons gamma de 661,7 keV seront détectés par le scintillateur fin et formeront un pic à 40 keV, dû à un dépôt partiel des électrons secondaires. Étudions maintenant la réponse simulée à une source bêta de ^{36}Cl , qui est présentée sur la figure 2-19. La simulation est obligatoirement conduite en mode PE, puisque les particules incidentes sont des électrons.

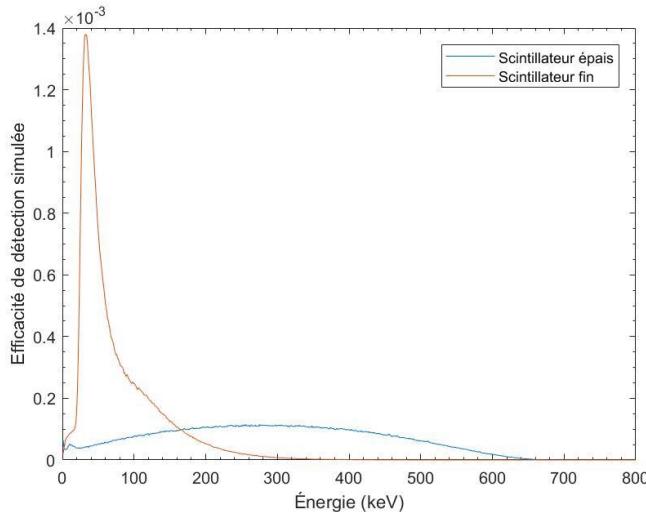


Fig. 2-19. Efficacité de simulation simulée du phoswich exposé à une source bêta de ^{36}Cl .

En comparant les figures 2-18 et 2-19, on remarque l'apparition du même pic à 40 keV pour la source bêta, dans le scintillateur fin. Ainsi, les électrons incidents ayant une énergie suffisante pour traverser le scintillateur fin y déposeront une énergie moyenne de 40 keV. La décroissance du pic jusqu'à 300 keV est expliquée par les diffusions des électrons à l'intérieur du scintillateur fin, augmentant leur parcours et donc l'énergie déposée.

Une potentielle méthode de discrimination bêta/gamma se dégage en considérant l’interaction continue des électrons avec la matière. En effet, si le scintillateur est suffisamment fin, une majorité des électrons incidents interagiront à la fois dans le scintillateur fin, puis dans le scintillateur épais, ou uniquement dans le scintillateur fin. Ce comportement n’est pas majoritairement attendu avec les rayonnements gamma, de par la nature probabiliste de leur interaction avec la matière, et proportionnel au numéro atomique du milieu, ici faible. Les rayonnements gamma interagiront majoritairement dans le scintillateur épais uniquement. En première approche, il est possible d’évaluer cette méthode grâce aux sommes des efficacités de détection. En effet, il est attendu un résultat similaire si les doubles interactions sont importantes, et un résultat différent si l’interaction dans l’un des scintillateurs est privilégiée. Les efficacités de détection sommées pour la source bêta donnent respectivement $4,89 \cdot 10^{-2} \pm 6 \cdot 10^{-4}$ et $6,74 \cdot 10^{-2} \pm 8 \cdot 10^{-4}$ pour le scintillateur fin et épais. À l’inverse, pour la source gamma en mode PE, les efficacités de détection sommées donnent $2,7 \cdot 10^{-3} \pm 1 \cdot 10^{-4}$ et $2,65 \cdot 10^{-2} \pm 4 \cdot 10^{-4}$ pour le scintillateur fin et épais. En calculant les rapports entre les sommes, on obtient que 73% des électrons incidents interagissent dans les deux scintillateurs, pour seulement 10% des rayonnements gamma.

Pour approfondir ce résultat, nous avons enregistré le parcours détaillé des particules simulées afin d’évaluer, particule par particule, s’il y a une double interaction ou non. Si une particule dépose de l’énergie dans les deux détecteurs, que ce soit par la particule incidente ou une particule secondaire générée, alors on compte un évènement de double détection. Le même calcul est réalisé sur les particules n’interagissant que dans un seul scintillateur. Pour cela, on utilise la carte PTRAC (*Particule Tracking*) du code MCNP6.2 et on traite les données résultantes dans un algorithme, codé en MatLab. Les résultats sont donnés dans le tableau 2-1 suivant. Les valeurs ont été calculées à partir du nombre total de particules ayant interagi avec le détecteur, sans prise en compte d’un seuil minimum en énergie déposée.

	Scintillateur fin uniquement	Scintillateur épais uniquement	Interaction dans les deux scintillateurs
^{36}Cl	27,8%	0,6%	71,6%
^{137}Cs	3,6%	89,4%	7,0%

Tableau 2-1. Rapports des interactions dans les scintillateurs composant le phoswich.

Ces résultats sont cohérents avec la première approche par les efficacités de détection simulées, et montrent que la discrimination par PSD peut se faire car les particules bêta vont soit interagir dans le scintillateur fin uniquement, soit dans les deux. Ce comportement n’est pas attendu pour les rayonnements gamma qui vont majoritairement interagir uniquement dans le scintillateur épais. Cependant, des interactions parasites dans le scintillateur fin par

des rayonnements gamma est possible d'après le tableau 2-1, ce qui peut conduire à une mauvaise discrimination d'un certain nombre d'évènements. La valeur attendue de mauvaise discrimination est de 10,6% des rayonnements gamma incidents du ^{137}Cs , correspondant à l'addition des pourcentages d'interactions dans le scintillateur fin uniquement et dans les deux scintillateurs.

- **Matrice de *phoswich***

Une première géométrie étudiée en vue d'un prototype est composée d'une matrice de 5 \times 5 unités de détection. Pour rappel, une unité de détection est présentée sur la figure 2-16. Chaque unité est séparée des autres par un interstice de 5 mm, dont le matériau sera changé pour étudier l'impact sur la réponse. Ainsi, nous étudierons un interstice d'air, d'acier, de plastique et d'aluminium. La surface totale est donc de 729 cm^2 , et la surface de mesure est de 625 cm^2 . Les deux sources simulées sont celles présentées pour les simulations d'un *phoswich* unique, c'est-à-dire une source gamma de ^{137}Cs et une source bêta de ^{36}Cl . La source est placée au centre du pixel central, ce qui rend le problème de l'étude de la réponse de chaque détecteur symétrique. Ainsi, seules six réponses sont nécessaires pour caractériser l'ensemble des 25 pixels. Afin d'étudier l'impact du matériau remplissant l'espace interstitiel, la réponse d'un pixel excentré a été simulée. La figure 2-20 présente les pixels concernés dans la matrice par la simulation, la figure 2-21 présente les efficacités de détection simulées pour le scintillateur épais et la figure 2-22 présente celles du scintillateur fin.

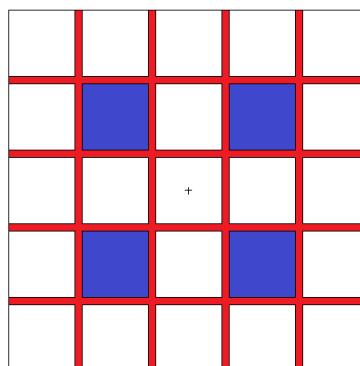


Fig. 2-20. Matrice simulée de 5 \times 5 phoswichs. L'espace interstitiel est en rouge, chaque carré de même couleur représente les phoswichs dont la réponse est similaire et a été simulée. La source est au centre du pixel central, représentée par une croix noire.

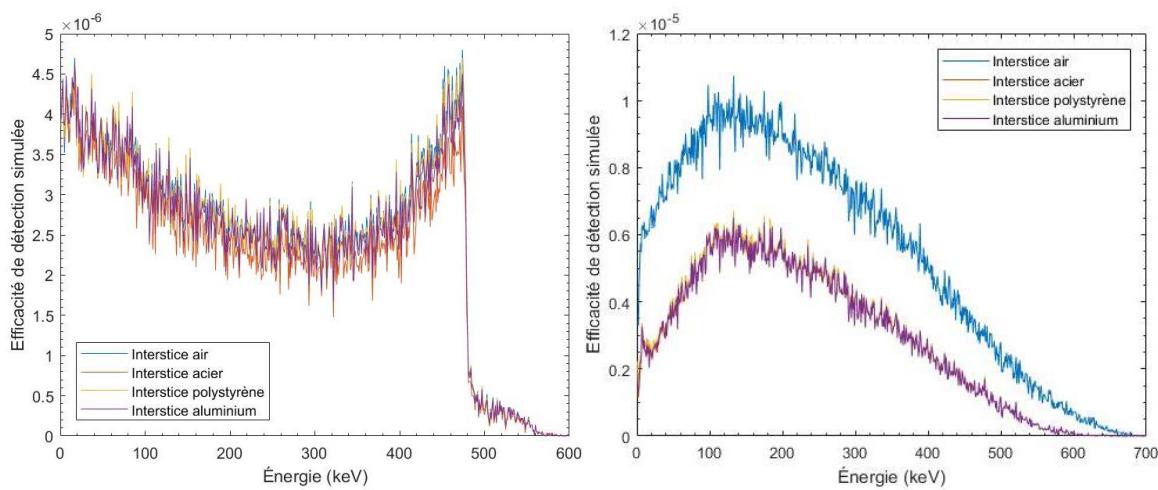


Fig. 2-21. Simulation de l'efficacité de détection du scintillateur épais d'un pixel excentré à une source de ^{137}Cs à gauche, et à une source de ^{36}Cl à droite, avec variation du matériau composant l'interstice.

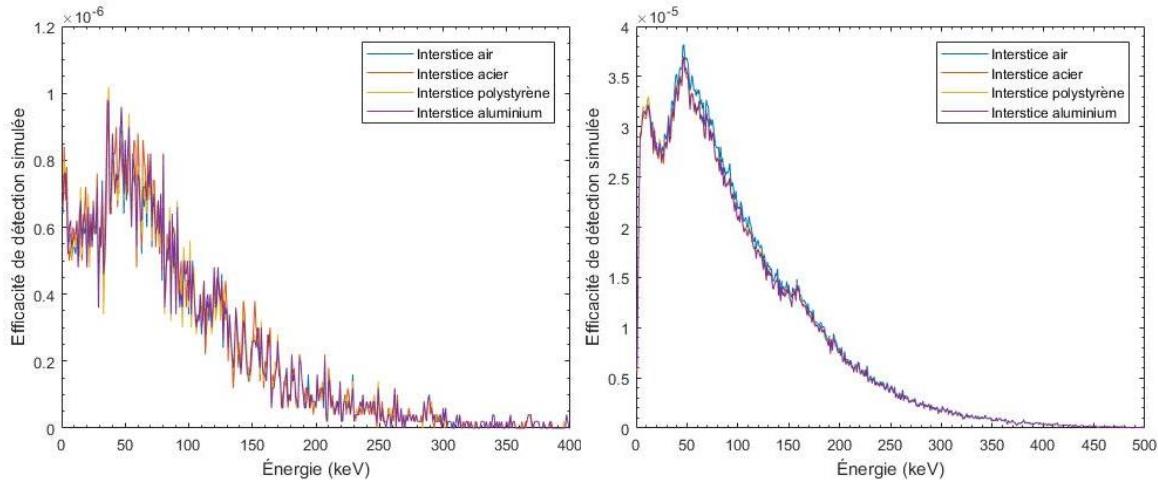


Fig. 2-22. Simulation de l'efficacité de détection du scintillateur fin d'un pixel excentré à une source de ^{137}Cs à gauche, et à une source de ^{36}Cl à droite, avec variation du matériau composant l'interstice.

D'après les résultats de simulation, on constate qu'une différence entre les réponses apparaît pour la source bêta dans le scintillateur épais, sur la figure 2-21. En effet, lorsque l'interstice est constituée d'air, la réponse simulée est doublée en moyenne par rapport à celles pour lesquelles l'interstice est composé d'un solide, ici de l'acier, de l'aluminium ou du polystyrène. Par contre, on constate que le matériau utilisé, outre l'air, ne change pas la réponse simulée. Ainsi, lorsque l'interstice n'est pas comblé par un matériau quelconque, un nombre plus important de particules bêta provenant d'une source décentrée avec le pixel concerné sera détecté. Une hypothèse a été émise pour expliquer cet écart et repose sur la diffusion entre pixels des particules bêta arrêtées par un interstice solide. Cet effet n'est pas mis en évidence dans le scintillateur fin, car ce dernier possède un volume plus faible, et donc une probabilité moins importante de détecter une particule diffusée. Pour le scintillateur fin, aucun impact de l'interstice n'a été identifié.

L'impact associé à la diffusion entre pixels si l'interstice est de l'air pourra être atténué, car la PSD définit la discrimination bêta comme étant soit une interaction dans le scintillateur fin, ou une interaction dans les deux scintillateurs. En effet, les diffusions visibles lorsque l'interstice est de l'air ne concernent que le scintillateur épais. Dès lors, ces phénomènes de diffusion ne pourront pas surestimer la dose bêta mesurée. À l'inverse, pour la source gamma, les réponses simulées pour le scintillateur fin comme épais sont similaires, avec ou sans présence d'interstice. Ce dernier n'a donc pas d'impact sur la détection des rayonnements gamma.

En conclusion, la simulation MCNP6.2 de la matrice et l'étude de sa réponse permettent d'affirmer qu'il n'est pas nécessaire de remplir l'espace interstitiel dans une tentative d'amélioration de la localisation, et/ou de la réduction de détections parasites provenant de sources non centrées avec le pixel.

2.3 Fibres scintillantes

Le travail de recherche de la thèse a principalement été basé sur le développement d'un système de détection à base de fibres scintillantes. En effet, comme vu au travers de l'état de l'art de la partie précédente, des systèmes de mesure dédiés à des applications de caractérisation radiologique et employant des *phoswichs* existent déjà à l'état industriel. À l'inverse, l'évaluation des performances de fibres scintillantes pour des applications de caractérisation radiologique dans le cadre du démantèlement comporte un caractère innovant et constitue un enjeu important en termes de recherche et développement.

2.3.1 Principe de fonctionnement

La fibre scintillante est un scintillateur organique plastique, qui se distingue des autres scintillateurs organiques en raison de la nature de transmission de la lumière. En effet, la fibre scintillante est constituée d'un scintillateur, appelé *cœur*, entouré d'un polymère avec un indice de réfraction plus faible, appelé *gaine*. Ainsi, lorsque la luminescence générée par le cœur de la fibre atteint l'interface optique avec la gaine, elle peut être réfléchie si son angle d'incidence est inférieur à l'angle limite. Cet angle limite peut être déterminé par la loi de Snell-Descartes, dont l'énoncé est présenté dans l'équation 1 :

$$n_1 \sin(i_1) = n_2 \sin(i_2) \quad (1)$$

où n_1 et n_2 sont les indices de réfraction optique du matériau 1 et 2 respectivement, i_1 est l'angle avec la normale du dioptre du rayon incident, et i_2 est l'angle avec la normale du

dioptre du rayon réfracté. Dans le cas où l'indice n_1 est supérieur à l'indice n_2 , il existe un angle à partir duquel l'angle réfracté est impossible et où le rayonnement incident est totalement réfléchi. Mathématiquement, cela se traduit par une valeur de $\sin(i_2)$ en dehors du domaine de validité de la fonction $\sin(x)$, qui est $[-1; 1]$. L'angle limite d'incidence, à partir duquel la réflexion totale opère, s'écrit donc en fonction d'une valeur de l'angle diffusé i_2 égale à 90° , ou $\sin(i_2) = 1$. À partir de l'équation 1, on écrit alors :

$$i_{1\text{réflexion totale}} \geq \arcsin\left(\frac{n_2}{n_1}\right) \quad (2)$$

où $i_{1\text{réflexion totale}}$ est l'angle minimum pour qu'il y ait réflexion totale. Si tel est le cas, la luminescence est transmise aux extrémités de la fibre par réflexions successives, et la photodétection peut donc être déportée. La figure 2-23 présente le schéma d'une fibre scintillante, où l'angle θ correspond à une valeur de $90^\circ - \arcsin\left(\frac{n_2}{n_1}\right)$, car l'angle $\arcsin\left(\frac{n_2}{n_1}\right)$ est formé avec la normale du dioptre.

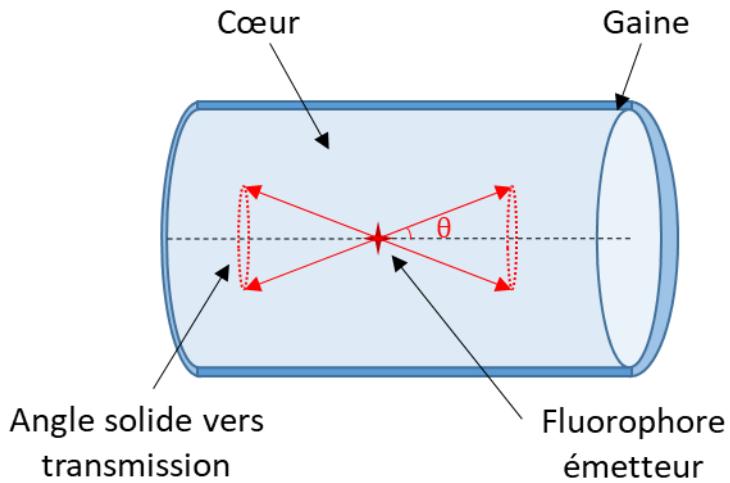


Fig. 2-23. Schéma d'une fibre scintillante et angle solide conduisant à une transmission par réflexion optique.

Le principe de guidage de la lumière a été expérimenté scientifiquement et publié pour la première fois par le physicien suisse Jean-Daniel Colladon en 1842. On trouve ainsi dans les Comptes Rendus Hebdomadaires des Séances de l'Académie des Sciences [35] une lettre de J. D. Colladon intitulée « Sur les réflexions d'un rayon de lumière à l'intérieur d'une veine liquide parabolique ». Cette lettre présente l'expérience fortuite de l'illumination d'un jet d'eau par une source de lumière et du guidage résultant de la lumière à l'intérieur. Cette expérience a été baptisée « fontaine Colladon » et est considérée comme la base de la

technologie des fibres optiques. La figure 2-24 présente la version originale de la fontaine Colladon et une version moderne avec l'utilisation d'un laser.

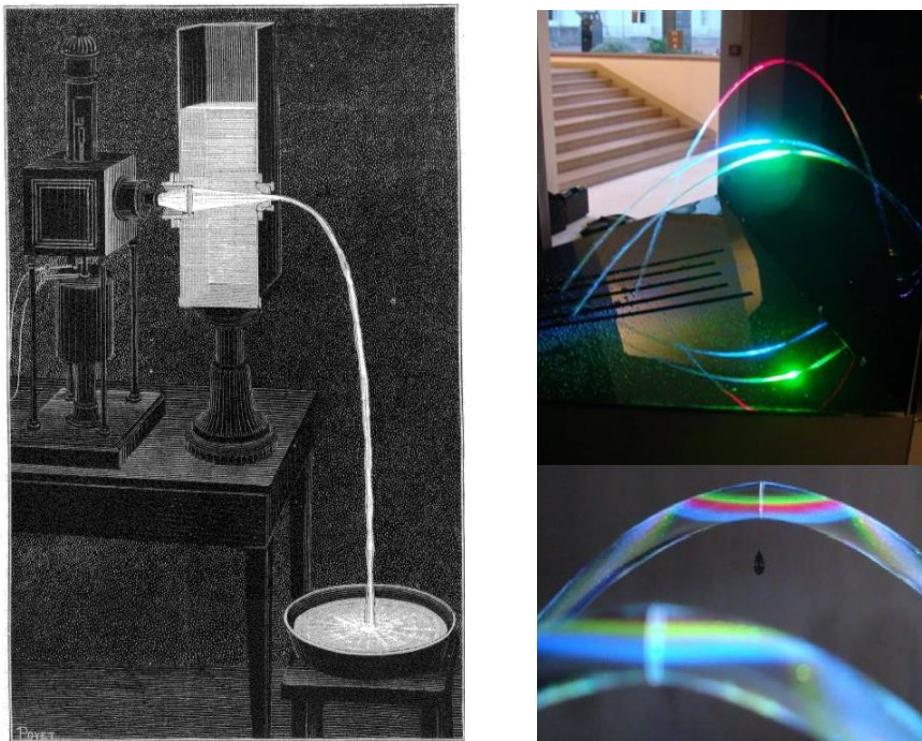


Fig. 2-24. Fontaine Colladon originale à gauche [36], et fontaine Colladon moderne à droite par Sébastien Forget du Laboratoire de Physique des Lasers [37].

Les premières applications dans le domaine des fibres scintillantes remontent à 1957 avec une publication de G. T. Reynolds et P. E. Condon sur des compteurs à filaments scintillants [38], concomitant avec le développement de la technologie des fibres optiques par N. S. Kapany [39]. L'objectif est ainsi de combiner la fonction de détection d'un scintillateur organique avec le guidage de lumière d'une fibre optique. Ainsi, des filaments de plusieurs dizaines de centimètres ont pu être fabriquées, avec des applications dans le domaine du suivi de trajectoire de particules², où une image stéréoscopique est ainsi envisagée à l'aide de fibres placées perpendiculairement. Une autre application considérée est la détection de taux de comptages importants, car la détection est basée sur la scintillation organique et possède des temps de luminescence de l'ordre de la nanoseconde. Notons que les filaments ne sont pas recouverts d'une gaine et laissés à l'air libre : la transmission est tout de même possible car l'indice de réfraction de l'air est inférieur à celui des polymères. En 1981, S.R Borenstein [40] présente des fibres optiques tirées depuis des préformes de scintillateurs organiques en polyvinyltoluène (PVT), et gainées avec une fine couche de silicium. Il s'agit de la première

² Les détecteurs ayant pour objectif de détecter le passage de particules chargées et de déterminer leurs trajectoires sont aussi appelés hodoscopes ou trajectographes.

description d'une fibre scintillante moderne, dont la fibre possède une gaine individuelle et fixée lors du tirage du cœur de la fibre. Le système étudié consiste en une double couche de fibres scintillantes fixées dans une matrice afin de solidifier la structure. La figure 2-25 présente ce détecteur.

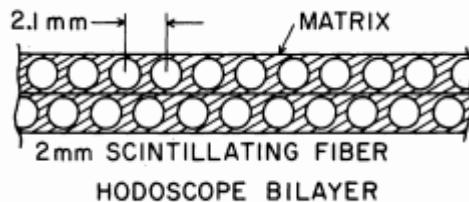


Fig. 2-25. Hodoscope envisagé par Borenstein [40].

L'application envisagée était la détection de hauts taux de comptage d'événements provenant de collisions de l'accélérateur américain ISABELLE, dont le projet de construction a été annulé. Des acquisitions d'électrons émis par une source de ^{102}Ru et un générateur de pions négatifs ont permis de caractériser deux types de fibres scintillantes différentes.

2.3.2 Domaines d'applications des fibres scintillantes

- Suivi de particules

La visualisation de la trajectoire de particules, dans des expériences associées à des collisions en accélérateur, fut la première application envisagée et concrétisée des fibres scintillantes. Comme rappelé précédemment, G. T. Reynolds envisageait déjà en 1957 leur utilisation dans ce domaine, idée reprise notamment par L. Reiffel et N. S. Kapany en 1960 [41], avec les premières conceptions de détecteurs. La figure 2-26 présente le détecteur envisagé par Reiffel et Kapany.

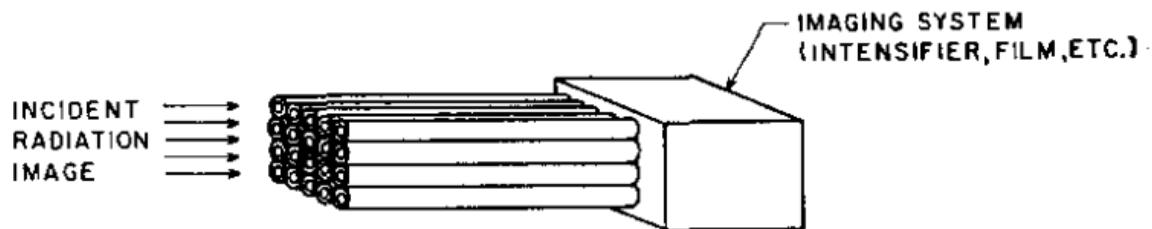


Fig. 2-26. Représentation schématique du détecteur envisagé par Reiffel et Kapany [41].

Le détecteur envisagé consiste en une matrice de fibres scintillantes placées dans l'axe d'incidence des particules détectées. La résolution spatiale est ainsi de l'ordre du diamètre des fibres.

Ce principe de détection a été repris par des équipes du Commissariat à l’Énergie Atomique de Saclay en 1984 [42] avec la fabrication de nouvelles fibres scintillantes avec un cœur en polystyrène, permettant de rendre ce dernier plus transparent qu’avec les fibres scintillantes précédentes en PVT. Ces nouvelles fibres ont été intégrées dans un détecteur semblable à celui présenté sur la figure 2-26, avec des fibres placées en parallèle de l’axe d’incidence des rayonnements gamma. Les fibres sont ensuite figées dans un alliage principalement de bismuth et de plomb. Cela permet de fixer la phase d’entrée afin qu’elle soit constante d’une expérience à l’autre, mais aussi de pouvoir polir la face d’entrée, avant de la recouvrir par une fine couche en aluminium jouant le rôle de réflecteur. La figure 2-27 présente le prototype développé.

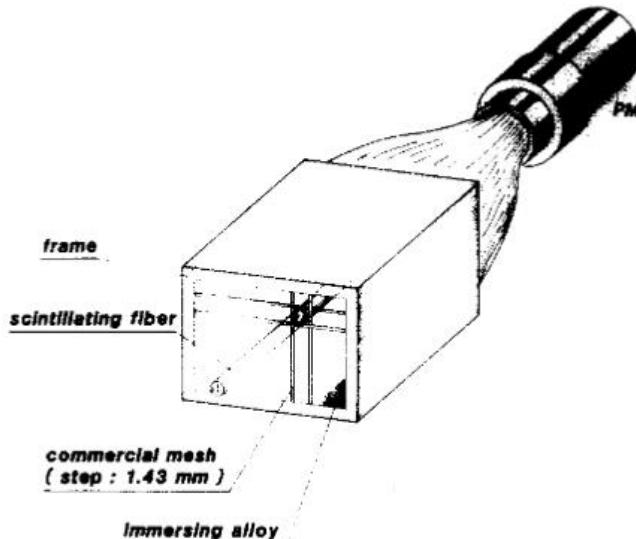


Fig. 2-27. Schéma du prototype de détecteur basé sur des fibres scintillantes [42].

En 1998, un consortium de quatre laboratoires³ américains présente un détecteur capable de réaliser une mesure de temps de vol et de suivre la trajectoire des particules le traversant [43]. Pour cela, deux étages de détection ont été développés, chacun composé de deux plans de fibres scintillantes placés perpendiculairement. Pour chaque plan, des paquets de fibres sont reliés de chaque côté par des tubes photomultiplicateurs. Les paquets comportent 4 ou 6 fibres carrées d’1,5 mm de côté, ce qui constitue une résolution spatiale de 6×6 et 9×9 mm² respectivement. La surface totale couverte par ce détecteur est de l’ordre de plus d’un mètre carré. La figure 2-28 présente le schéma du détecteur.

³ Université de Washington, institut Goddard d’études spatiales de la NASA, université d’état de Pennsylvanie et université du Minnesota

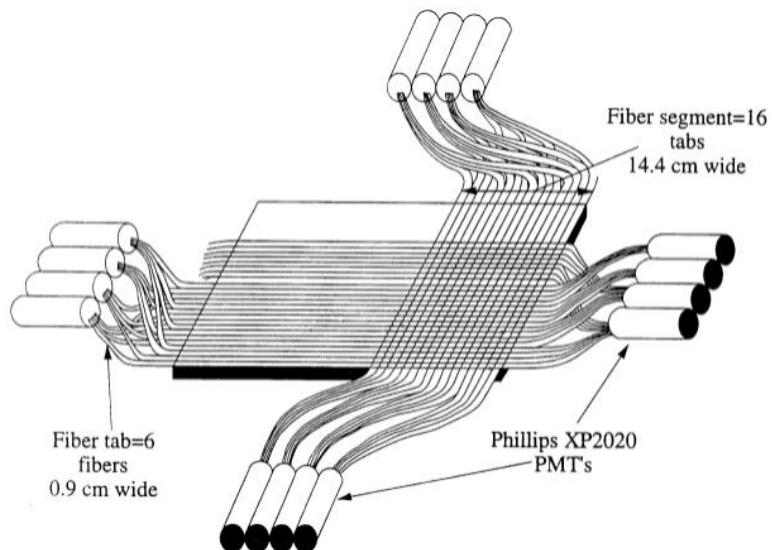


Fig. 2-28. Schéma d'un des deux plans de l'hodoscope constitué de fibres scintillantes placées perpendiculairement [43]. Une partie des assemblages fibres/PMT n'est pas représenté dans un souci de lisibilité.

Le détecteur a été embarqué dans un ballon sonde afin d'étudier les rayonnements cosmiques lourds, c'est-à-dire les ions possédant un numéro atomique supérieur à 26. La figure 2-29 présente une photographie de l'hodoscope ainsi que du ballon au sein duquel il a été embarqué [44].

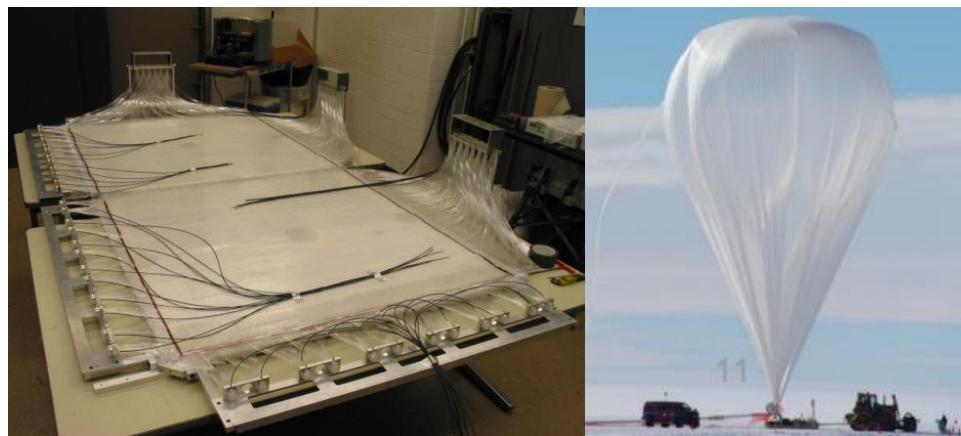


Fig. 2-29. Photographie de l'hodoscope à gauche, photographie du ballon sonde dans lequel est embarqué l'hodoscope à droite [44].

- Dosimétrie médicale par fibre scintillante

L'utilisation de fibres scintillantes pour la dosimétrie médicale s'explique par leurs caractéristiques intrinsèques. Tout d'abord, elles possèdent un faible volume général, ce qui permet leur utilisation comme dosimètre porté par du personnel interagissant en milieu radioactif, ou *in-vivo* lors d'une irradiation médicale par exemple. Leur composition en

polymère, polystyrène ou polyvinyltoluène, se traduit par un numéro atomique et une densité proche de l'eau, et donc un coefficient d'atténuation proche de celui d'un patient. De plus, la composition voisine avec celle de l'eau rend comparable les portées des particules chargées dans le dosimètre et au sein du patient. Ces paramètres sont importants car ils permettent de calculer la dose reçue. La mesure de la dose délivrée aux fibres est donc proche de celle délivrée au patient.

La première mention de l'utilisation de fibres scintillantes en dosimétrie médicale remonte à 1995 par une équipe du *Pacific Northwest Laboratory* (PNL) [45]. L'application concerne le suivi de dose par une thérapie de capture neutronique par du bore, aussi appelée BNCT pour *Boron Neutron Capture Therapy*. Cette thérapie consiste en l'injection d'un réactif composé de ^{10}B , capté par des tumeurs cérébrales qui seront bombardées par des neutrons thermiques. La réaction (n,α) sur le ^{10}B permet d'irradier les tumeurs grâce aux particules α émises. La problématique de mesure précise de la dose délivrée vient de la source de neutrons thermiques, qui émet des rayonnements gamma et des neutrons rapides. Il s'agit donc de pouvoir suivre la dose liée aux neutrons thermiques uniquement, sous environnement de neutrons rapides et de rayonnements gamma. Le détecteur développé pour répondre à cette problématique est composé de fibres scintillantes en verre, dopées avec du ^{6}Li . La réaction associée à une détection d'un neutron thermique est donc $^{6}\text{Li}(n,\alpha)^{3}\text{H}$. La particule α est ensuite détectée par interaction avec la fibre. On note donc que la fibre n'est pas composée d'une matrice en polymère, cependant elle n'en reste pas moins de faible volume et déformable. Ainsi, ce détecteur va pouvoir être inséré proche de la zone d'irradiation. La discrimination entre signaux provenant d'un neutron thermique ou d'un rayonnement gamma provient de la plus faible scintillation attendue par un événement de type rayonnement gamma. Ainsi, ces événements auront une amplitude moins importante que celle associée aux événements dus aux neutrons thermiques. La figure 2-30 présente le schéma du dosimètre étudié.

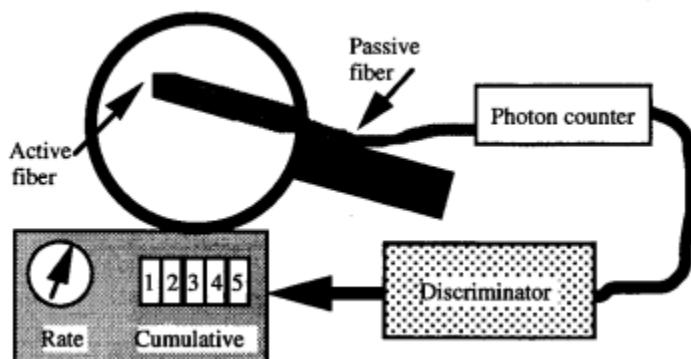


Fig. 2-30. Schéma du dosimètre *in-vivo* pour neutrons thermiques lors de thérapies par capture neutronique du bore [45].

En 1999, une équipe du département de physique de l'université de Bologne a développé un dosimètre temps réel pour le suivi de dose délivrée par un accélérateur [46]. Pour cela, le détecteur développé consiste en un tapis de fibres croisées perpendiculairement, et dont chaque plan comporte 128 fibres. Un côté de chaque fibre est relié à une photodiode et l'autre est fermé. Il n'est pas précisé s'il s'agit d'un réflecteur ou d'un absorbeur. La figure 2-31 présente le schéma du détecteur.

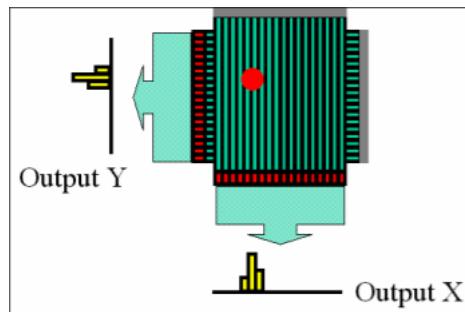


Fig. 2-31. Schéma du tapis de fibres employé pour le suivi en temps réel d'une dose délivrée par un accélérateur médical [46].

L'article présente différentes méthodes mathématiques de reconstruction de la forme du faisceau. Une étude sur l'impact d'une intermodulation entre fibres scintillantes montre que ce dernier est négligeable. La figure 2-32 présente le résultat de l'étude de l'intermodulation.

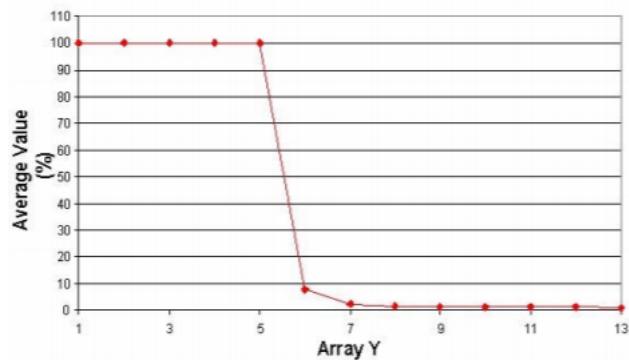


Fig. 2-32. Étude de l'intermodulation entre fibres scintillantes dans le tapis de fibres scintillantes. Source [46].

On remarque que l'impact sur la fibre numéro 6 est inférieur à 10% et donc que la résolution spatiale est proche de la fibre « illuminée ». Le rendement en profondeur de la dose déposée dans le détecteur a été étudié et est en accord avec les mesures établies avec un détecteur étalon. Ainsi, un dosimètre utilisable en temps réel et basé sur des fibres scintillantes a été développé, et a montré sa capacité à répondre à la problématique de suivi de la dose dans l'espace d'un accélérateur médical.

Des développements récents concernent une dosimétrie millimétrique pour le suivi de dose délivrées à des animaux de petites tailles, utilisés dans le cadre d'essais cliniques sur

l'optimisation des traitements de radiothérapie. Cette problématique a fait l'objet d'un développement d'un dosimètre basé sur une seule fibre scintillante [47], [48] en 2017 au Grand Accélérateur National d'Ions Lourds (GANIL).

- Évaluation sur site de contaminations radioactives

Lors de la dispersion d'éléments radioactifs dans la nature, des campagnes de mesures sont menées afin d'évaluer les contaminations radioactives et les risques posés à l'homme et à l'environnement. Le contexte de mesure est varié à cause de la diversité des lieux à caractériser : terrains alentours, routes, forêts, rivières et lacs, etc... Les surfaces à caractériser peuvent atteindre plusieurs centaines de kilomètres carrés, comme par exemple la région environnante à la centrale de Fukushima-Daiichi, suite à l'accident survenu le 11 mars 2011 [49]. L'utilisation des fibres scintillantes est donc adaptée afin de couvrir de larges zones, par le développement de détecteurs utilisant des fibres scintillantes de plusieurs dizaines de mètres de long, basé sur une dizaine de fibre ayant chacune un diamètre d'un millimètre. Le diamètre total du paquet de fibres est donc du centimètre tout en conservant une déformabilité lui permettant une adaptation au terrain. Le volume total se rapproche d'un scintillateur solide et permet de détecter les rayonnements gamma. Ainsi, des équipes du *Japan Atomic Energy Agency* (JAEA) ont développé plusieurs détecteurs pour des applications terrestres (sols urbains, forêts) ou aquatiques (lacs ou rivières). La figure 2-33 présente des photographies de ces détecteurs prises sur le terrain, afin de caractériser l'activité environnementale de ^{137}Cs , grâce à sa signature gamma. Ces photographies sont présentes dans un rapport de l'agence américaine de protection de l'environnement (*Environment Protection Agency*) de 2017 [50], fournies directement par les équipes japonaises de JAEA.



Fig. 2-33. Photographies de détecteurs basés sur des fibres scintillantes utilisés pour la caractérisation radiologique de forêts (en haut) et sols urbains (en bas) [50].

La capacité à produire des fibres de plusieurs dizaines de mètres permet ainsi le développement de détecteurs adaptés aux contours de délimitations de zones contaminées et non contaminées. Ainsi, grâce à leur déformabilité intrinsèque, le détecteur peut être placé le long de courbes et ainsi s'ajuster au mieux aux délimitations de terrain. Des équipes de JAEA [51] ont ainsi réalisé un détecteur composé de 19 fibres de 12 m de long, puis caractérisé un champ dont une partie a été décontaminée, à partir du signal gamma détecté. La mesure a permis de valider la délimitation par l'activité mesurée, déjà établie à l'aide de compteurs proportionnels non spécifiés. La longueur des fibres permet de créer une différence temporelle mesurable entre les détections par photodétecteur, ainsi, une méthode de calcul du temps de vol dans la fibre permet de reconstruire la position de l'interaction. La figure 2-34 présente les résultats au travers d'une photographie aérienne du champ caractérisé, et un graphe comportant des résultats de mesure.

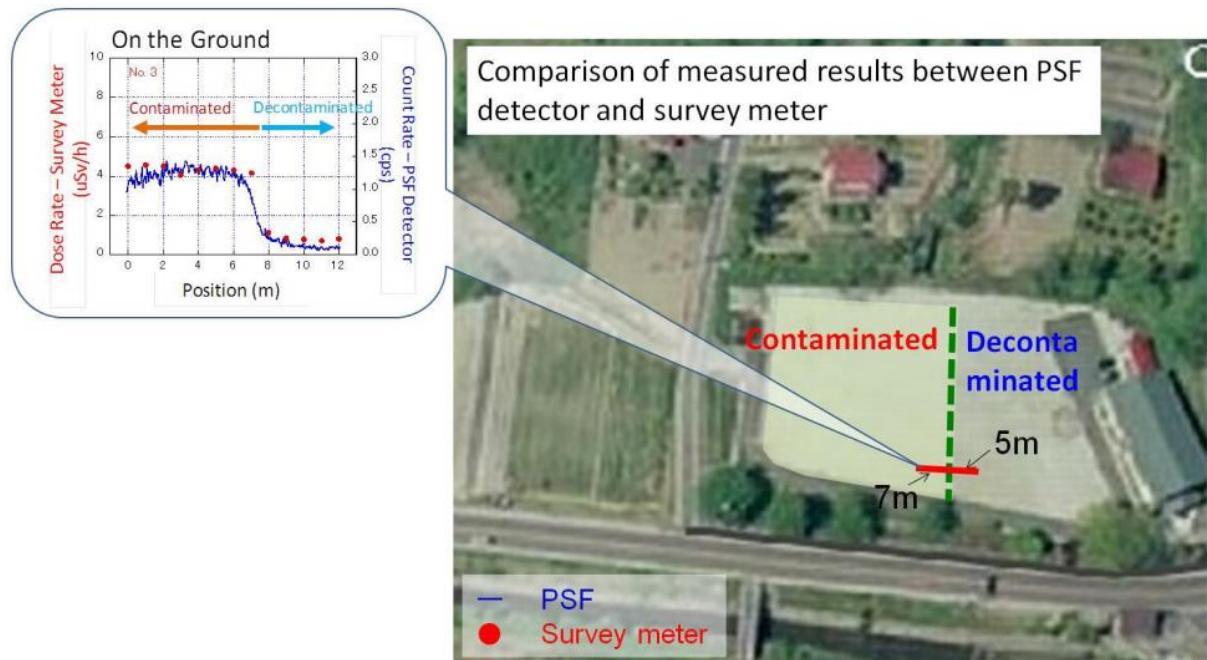


Fig. 2-34. Photographie aérienne d'un champ caractérisé radiologiquement par un détecteur basé sur des fibres scintillantes, et résultats de mesures à gauche. Source [51].

De manière similaire, un détecteur composé de 10 fibres de 20 m de long a permis de caractériser l'activité en ^{137}Cs des surfaces urbaines, ici des sols d'une cour d'école, à une vitesse de $0,1 \text{ m.s}^{-1}$. En calculant par rapport aux longueurs des fibres employées, une surface de 2 m^2 par seconde est caractérisée, pour des activités lues allant de 0 à 40 Bq/cm^2 . Le même détecteur a été monté sur un véhicule de chantier afin de caractériser 2000 m^2 en une heure [50], [52].

Les fibres scintillantes peuvent aussi être utilisées dans le cadre d'applications en milieu aquatique comme pour la détection de contaminations radioactives dans l'eau potable. Ainsi, d'octobre 2013 à décembre 2016, un projet européen nommé SAFEWATER avait pour objectif de développer un système de détection de contaminations radioactives dans l'eau potable, et a conduit au développement d'un détecteur basé sur des fibres scintillantes plongées dans l'eau [53]. La figure 2-35 présente le détecteur mis au point dans le cadre de ces travaux.



Fig. 2-35. Détecteur du dispositif SAFEWATER à gauche, et système intégré à droite [53].

2.4 Conclusions

De cette étude, on peut conclure que les fibres scintillantes sont utilisées avec succès pour caractériser les contaminations radioactives gamma, telles que celles induites par le ^{137}Cs après l'incident de Fukushima. Des détecteurs de l'ordre de la dizaine de mètres ont ainsi pu être développés et testés avec succès, et montrent l'adéquation des fibres scintillantes avec des problématiques de caractérisations de grandes surfaces. Cependant, les activités détectées sont de l'ordre de la dizaine de Bq par centimètre carré, ce qui correspond, pour une surface d'un mètre carré, à une activité de l'ordre de la centaine de kBq par m^2 . L'objectif des activités de déclassement fixé au cahier des charges du projet CaPSuD est inférieur aux ordres de grandeurs associés aux détecteurs employés dans la décontamination post-accidentelle de Fukushima, d'un ordre de grandeur de trois décades. De plus, la signature bêta n'est pas recherchée par ces détecteurs alors qu'elle peut être un critère à déterminer en vue de déclasser une INB. En utilisant des moteurs de recherche bibliographique comme *Scopus* et *Web of Science*, on constate que la combinaison de mots clés du champ lexical de « fibres scintillantes » et « démantèlement » ne donne aucun résultat. Cependant, les projets de démantèlement et de caractérisation radiologique ne conduisent pas systématiquement à la publication d'articles scientifiques. Dès lors, il existe un fort potentiel d'innovation en matière de caractérisation des signatures bêta à l'aide de fibres scintillantes pour des applications

dédiées à la caractérisation radiologique des grandes surfaces à démanteler et déclasser. Les travaux de thèse présentés ici ont pour objectif de caractériser les fibres scintillantes pour la détection de signatures bêta, avec comme finalité le développement d'un prototype répondant aux problématiques du projet CaPSuD. Pour cela, des paquets de fibres scintillantes ont été approvisionnés et caractérisés, puis un modèle de simulation Monte Carlo a été développé et évalué. Ces développements ont conduit à un nouveau principe de mesure bêta permettant leur discrimination.

- [1] M. F. L'Annunziata, "Solid scintillation analysis," in *Handbook of Radioactivity Analysis*, 4th ed., M. F. B. T.-H. of R. A. L'Annunziata, Ed. Elsevier, 2020, pp. 899–1045.
- [2] D. H. Wilkinson, "The phoswich - a multiple phosphor," *Rev. Sci. Instrum.*, vol. 23, no. 8, pp. 414–417, 1952, doi: 10.1063/1.1746324.
- [3] S. Usuda, "Development of ZnS(Ag)/NE102A and ZnS(Ag)/Stilbene Phoswich Detectors for Simultaneous α and $\beta(\gamma)$ Counting," *J. Nucl. Sci. Technol.*, vol. 29, no. 9, pp. 927–929, Sep. 1992, doi: 10.1080/18811248.1992.9731613.
- [4] D. L. Horrocks, *Applications of Liquid Scintillation Counting*. Elsevier, 1974.
- [5] M. J. Berger, J. . Coursey, M. . Zucker, and J. Chang, "Stopping-Power & Range Tables for Electrons, Protons, and Helium Ions," *National Institute of Standards and Technology, Gaithersburg, MD*, 2005. <http://physics.nist.gov/Star> (accessed Feb. 03, 2021).
- [6] M. J. Berger *et al.*, "NIST Standard Reference Database 8 (XGAM)," *NIST, PML, Radiation Physics Division*, 1998. <https://www.nist.gov/pml/xcom-photon-cross-sections-database>.
- [7] G. H. V Bertrand, M. Hamel, S. Normand, and F. Sguerra, "Pulse shape discrimination between (fast or thermal) neutrons and gamma rays with plastic scintillators: State of the art," *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. A Accel. Spectrometers, Detect. Assoc. Equip.*, vol. 776, pp. 114–128, 2015, doi: <https://doi.org/10.1016/j.nima.2014.12.024>.
- [8] J. Zhang, M. E. Moore, Z. Wang, Z. Rong, C. Yang, and J. P. Hayward, "Study of sampling rate influence on neutron–gamma discrimination with stilbene coupled to a silicon photomultiplier," *Appl. Radiat. Isot.*, vol. 128, pp. 120–124, Oct. 2017, doi: 10.1016/j.apradiso.2017.06.036.
- [9] C. Frangville, M. Hamel, G. H. V. Bertrand, E. Montbarbon, A. Grabowski, and C. Lynde, "Large solubility of lithium carboxylates reaching high rates of ${}^6\text{Li}$ incorporation in polystyrene-based plastic scintillators for fast/thermal neutron and gamma ray detection," *Mater. Chem. Front.*, vol. 3, no. 8, pp. 1626–1631, 2019, doi: 10.1039/C9QM00153K.
- [10] T. L. White and W. H. Miller, "A triple-crystal phoswich detector with digital pulse shape discrimination for alpha/beta/gamma spectroscopy," *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. A Accel. Spectrometers, Detect. Assoc. Equip.*, vol. 422, no. 1–3, pp. 144–147, Feb. 1999, doi: 10.1016/S0168-9002(98)01090-0.
- [11] N. L. Childress and W. H. Miller, "MCNP analysis and optimization of a triple crystal phoswich detector," *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. A Accel. Spectrometers, Detect. Assoc. Equip.*, vol. 490, no. 1–2, pp. 263–270, Sep. 2002, doi: 10.1016/S0168-9002(02)01010-0.
- [12] K. Yasuda, S. Usuda, and H. Gunji, "Simultaneous alpha, beta/gamma, and neutron counting with phoswich detectors by using a dual-parameter technique," *IEEE Trans. Nucl. Sci.*, vol. 48, no. 4, pp. 1162–1164, 2001, doi: 10.1109/23.958743.
- [13] B.-K. Seo, C.-H. Park, K.-W. Lee, D.-G. Lee, and C.-H. Jung, "Development of the In-situ Monitoring System for Pipe Internal Contamination Measurement in the Decommissioning Site," *J. Nucl. Sci. Technol.*, vol. 45, no. sup5, pp. 500–502, Jun. 2008, doi: 10.1080/00223131.2008.10875900.
- [14] C. Requejo Coronado, D. Giuffrida, and C. Osimani, "Final radiological release of the

- Radiochemistry Hot Laboratory at the Joint Research Centre in Ispra,” 2015. [Online]. Available: <https://www.irpa.net/members/TS6b.5.pdf>.
- [15] Canberra, “Systèmes de mesure d’objets in situ (ISOCS),” 2016, Accessed: Jan. 04, 2021. [Online]. Available: https://www.canberra.com/fr/produits/insitu_systems/isocs.html.
- [16] H. Y. Joo, J. W. Kim, and J. H. Moon, “Development and Characterization of a Phoswich Radiation Sensor to Simultaneously Measure the Count Rates and Energies of Beta and Gamma Radiation,” *J. Korean Phys. Soc.*, vol. 75, no. 10, pp. 768–774, Nov. 2019, doi: 10.3938/jkps.75.768.
- [17] J. D. Knecht, “An Outline of the Experimental Program in Space Physics of the AFSWC Physics Division,” 1960.
- [18] J. B. Reagan and R. V. Smith, “Instrumentation for Space Radiation Measurements Part I,” *IEEE Trans. Nucl. Sci.*, vol. 10, no. 1, pp. 172–177, 1963, doi: 10.1109/TNS.1963.4323258.
- [19] J. A. M. Bleeker and J. M. Overtoom, “Investigation of pulse shape analyzers for phoswich detectors in space-borne hard x-ray experiments,” *Nucl. Instruments Methods*, vol. 167, no. 3, pp. 505–513, Dec. 1979, doi: 10.1016/0029-554X(79)90234-9.
- [20] M. Takada and T. Nakamura, “A phoswich detector for high-energy neutrons,” *Radiat. Prot. Dosimetry*, vol. 126, no. 1–4, pp. 178–184, May 2007, doi: 10.1093/rpd/ncm038.
- [21] M. Dahlbom *et al.*, “Performance of a YSO/LSO phoswich detector for use in a PET/SPECT system,” *IEEE Trans. Nucl. Sci.*, vol. 44, no. 3, pp. 1114–1119, Jun. 1997, doi: 10.1109/23.596974.
- [22] J. Seidel, J. J. Vaquero, S. Siegel, W. R. Gandler, and M. V. Green, “Depth identification accuracy of a three layer phoswich PET detector module,” *IEEE Trans. Nucl. Sci.*, vol. 46, no. 3, pp. 485–490, Jun. 1999, doi: 10.1109/23.775567.
- [23] M. Moreau, “Introduction à l’imagerie par Tomographie d’Émission de Positons : définitions, approches de reconstruction et initiation aux isotopes complexes,” 2019. <https://hal.archives-ouvertes.fr/hal-01660503v2/document>.
- [24] L. Eriksson, C. L. Melcher, M. Eriksson, H. Rothfuss, R. Grazioso, and M. Aykac, “Design Considerations of Phoswich Detectors for High Resolution Positron Emission Tomography,” *IEEE Trans. Nucl. Sci.*, vol. 56, no. 1, pp. 182–188, Feb. 2009, doi: 10.1109/TNS.2008.2010255.
- [25] V. V Nagarkar *et al.*, “Continuous Phoswich™ detector for molecular imaging,” in *IEEE Nuclear Science Symposium & Medical Imaging Conference*, Oct. 2010, pp. 4–9, doi: 10.1109/NSSMIC.2010.5873707.
- [26] D. L. Prout, Z. Gu, M. Shustef, and A. F. Chatzioannou, “A digital phoswich detector using time-over-threshold for depth of interaction in PET,” *Phys. Med. Biol.*, vol. 65, no. 24, p. 245017, Dec. 2020, doi: 10.1088/1361-6560/abcb21.
- [27] Berthold, “LB 124 SCINT Series - Contamination Monitors,” 2018, [Online]. Available: https://www.berthold.com/fileadmin/DownloadsUnprotected/brochures/Radiation_Protection/Flyer_LB_124_SCINT-Serie_DC00514PR2_Rev00_300418_SN.pdf.
- [28] S. Agostinelli *et al.*, “Geant4—a simulation toolkit,” *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. A Accel. Spectrometers, Detect. Assoc. Equip.*, vol. 506, no. 3, pp. 250–303, Jul. 2003, doi:

- 10.1016/S0168-9002(03)01368-8.
- [29] E. Brun *et al.*, “TRIPOLI-4®, CEA, EDF and AREVA reference Monte Carlo code,” *Ann. Nucl. Energy*, vol. 82, pp. 151–160, Aug. 2015, doi: 10.1016/j.anucene.2014.07.053.
- [30] C. J. Werner *et al.*, “MCNP Version 6.2 Release Notes,” Los Alamos, NM (United States), Feb. 2018. doi: 10.2172/1419730.
- [31] A. Sari *et al.*, “Investigation of fission chamber response in the frame of fuel debris localization measurements at Fukushima Daiichi,” *Radiat. Meas.*, vol. 130, p. 106223, Jan. 2020, doi: 10.1016/j.radmeas.2019.106223.
- [32] R. Antoni and L. Bourgois, “Evaluation of the new electron-transport algorithm in MCNP6.1 for the simulation of dose point kernel in water,” *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. with Mater. Atoms*, vol. 412, pp. 102–108, Dec. 2017, doi: 10.1016/j.nimb.2017.09.026.
- [33] A. Ernst, “Multiple-scattering theory. New developments and applications.” Dec. 04, 2007, Accessed: Apr. 14, 2021. [Online]. Available: https://inis.iaea.org/search/search.aspx?orig_q=RN:40073562.
- [34] X-5 Monte Carlo Team, “MCNP - Version 5, Vol. I: Overview and Theory,” *LA-UR-03-1987*, 2003.
- [35] Académie des Sciences, *Comptes rendus hebdomadaires des séances de l'Académie des sciences, volume 15*. Paris: Bachelier, imprimeur-libraire, 1842.
- [36] G. Tissandier, *La Nature. Revue des sciences et de leurs applications aux arts et à l'industrie. Volume n°595*. 1884.
- [37] S. Forget, “Site Web de Sébastien Forget.” http://www-lpl.univ-paris13.fr/pon/lumen/page_perso_SF_vulgarisation.html.
- [38] G. T. Reynolds and P. E. Condon, “Filament Scintillation Counter,” *Rev. Sci. Instrum.*, vol. 28, no. October 1957, pp. 1098–1099, 1957, doi: 10.1063/1.1715822.
- [39] N. S. Kapany, “Fiber Optics Part I Optical Properties of Certain Dielectric Cylinders*,” *J. Opt. Soc. Am.*, vol. 47, no. 5, p. 413, May 1957, doi: 10.1364/JOSA.47.000413.
- [40] S. R. Borenstein, R. B. Palmer, and R. C. Strand, “A Fine Grained Scintillating Optical Fiber Hodoscope for Use at ISABELLE,” *IEEE Trans. Nucl. Sci.*, vol. 28, no. 1, pp. 458–460, 1981, doi: 10.1109/TNS.1981.4331218.
- [41] L. Reiffel and N. S. Kapany, “Some Considerations on Luminescent Fiber Chambers and Intensifier Screens,” *Rev. Sci. Instrum.*, vol. 31, no. 10, pp. 1136–1142, Oct. 1960, doi: 10.1063/1.1716826.
- [42] H. Blumenfeld, M. Bourdinaud, H. Burmeister, R. Cester, P. Checchia, and G. Zumerle, “An electromagnetic calorimeter prototype module using scintillating fibers immersed in a Bi-Pb alloy,” *Nucl. Instruments Methods Phys. Res.*, vol. 225, no. 3, pp. 518–521, Sep. 1984, doi: 10.1016/0167-5087(84)90097-8.
- [43] D. . Lawrence *et al.*, “Large-area scintillating-fiber time-of-flight/hodoscope detectors for particle astrophysics experiments,” *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. A Accel. Spectrometers, Detect. Assoc. Equip.*, vol. 420, no. 3, pp. 402–415, Jan. 1999, doi: 10.1016/S0168-9002(98)01164-4.

-
- [44] W. . Binns, “The SuperTIGER Instrument.” https://www.bo.infn.it/sminiato/iprd16/04_Giovedi/Sera/02_Binns.pdf.
 - [45] M. Bliss, R. A. Craig, P. L. Reeder, and D. S. Sunberg, “Real-time dosimetry for boron neutron-capture therapy,” *IEEE Trans. Nucl. Sci.*, vol. 42, no. 4, pp. 639–643, 1995, doi: 10.1109/23.467899.
 - [46] R. Brancaccio, M. Bettuzzi, F. Casali, S. Cornacchia, M. Morigi, and A. Pasini, “Real-time system for dosimetry in IORT (intra operative radiation therapy),” in *14th IEEE-NPSS Real Time Conference, 2005.*, 2005, p. 5 pp., doi: 10.1109/RTC.2005.1547423.
 - [47] C. Le Deroff, “Étude de la dosimétrie par scintillateur plastique pour l’irradiation préclinique du petit animal à moyenne énergie,” p. 175, 2017.
 - [48] C. Le Deroff, A.-M. Frelin-Labalme, and X. Ledoux, “Characterization of a scintillating fibre detector for small animal imaging and irradiation dosimetry,” *Br. J. Radiol.*, vol. 90, no. 1069, p. 20160454, Jan. 2017, doi: 10.1259/bjr.20160454.
 - [49] Institut de radioprotection et de sûreté nucléaire, “Conséquences sanitaires de l’accident de Fukushima Daiichi 2011-2018 : évolution du périmètre des zones évacuées Point de la situation en mars 2018,” 2018. https://www.irsn.fr/FR/connaissances/Installations_nucleaires/Les-accidents-nucleaires/accident-fukushima-2011/fukushima-2017-2020/Documents/IRSN_Fukushima-2018_Evolution-perimetre-evacuation_201803.pdf.
 - [50] S. D. Lee, “Plastic Scintillation Fibers for Radiological Contamination Surveys,” Washington, DC, 2018. [Online]. Available: https://cfpub.epa.gov/si/si_public_file_download.cfm?p_download_id=535296&Lab=NHSRC.
 - [51] M. Moritani *et al.*, “Proceedings (slides) of the International Symposium on Decontamination: Towards the Recovery of the Environment,” Nuclear Energy Agency of the OECD (NEA). [Online]. Available: http://inis.iaea.org/search/search.aspx?orig_q=RN:46040899.
 - [52] T. Torii and Y. Sanada, “Measurement Technology of Pollution Distribution Taken in a Plane,” *Isot. News*, vol. 714, 2013, [Online]. Available: https://www.jrias.or.jp/books/pdf/201310_TRACER_TORII_SANADA.pdf.
 - [53] T. Bernard *et al.*, “SAFEWATER – Innovative Tools for the Detection and Mitigation of CBRN Related Contamination Events of Drinking Water,” *Procedia Eng.*, vol. 119, pp. 352–359, 2015, doi: 10.1016/j.proeng.2015.08.895.

Chapitre 3 – Spectrométrie bêta avec des fibres scintillantes

Dans le chapitre précédent, nous avons conclu sur la possibilité d'utiliser des fibres scintillantes, pour répondre aux problématiques du projet CaPSuD dans le contexte de la caractérisation radiologique. Pour cela, nous allons tout d'abord présenter le principe de détection à l'aide de fibres scintillantes, puis caractériser la mesure bêta et gamma en construisant un modèle théorique du détecteur. Enfin nous présenterons des acquisitions réalisées avec un détecteur composé de 100 fibres scintillantes.

3.1 Principe de détection

À la suite d'une interaction avec le cœur de fibre, des photons de scintillation sont générés selon les principes décrits dans le chapitre 1. La propagation des photons de scintillation vers le photomultiplicateur est associée à des pertes lumineuses tout le long du parcours. En suivant la chronologie de la détection, de la scintillation à la photodétection, il est possible de dresser la liste des variables mises en jeu, afin de décrire de manière réaliste la génération d'un signal. Nous nous intéresserons ici aux processus débutant après un dépôt d'énergie dans la fibre jusqu'au photomultiplicateur, ici un tube photomultiplicateur (PMT). La figure 3-1 présente la chronologie de la détection après une interaction dans le cœur de fibre.

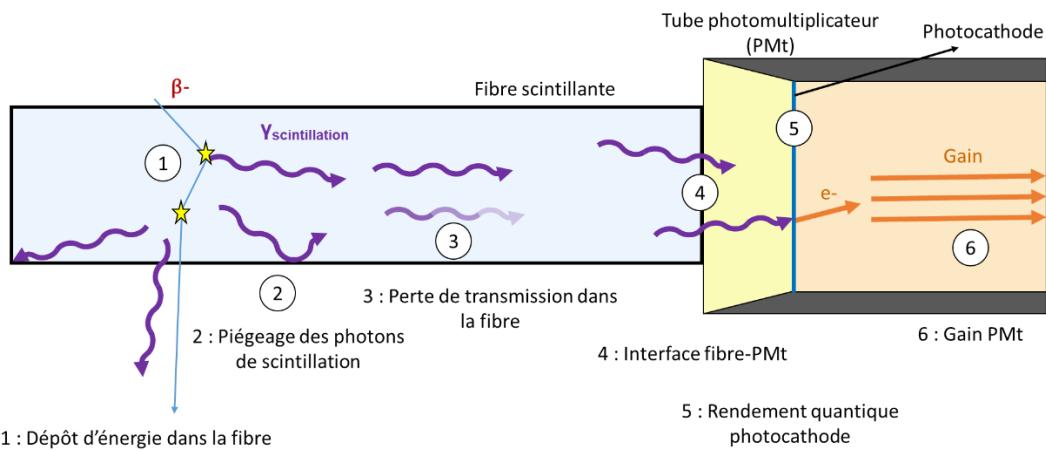


Fig. 3-1. Schéma de la chronologie de la détection d'un rayonnement ionisant, de l'interaction rayonnement matière jusqu'à l'interaction avec l'anode du photodétecteur.

L'étape initiale du processus correspond à un dépôt d'énergie dans la fibre, consistant en l'énergie transférée à la suite d'interactions entre la particule incidente et la fibre (numéro 0 sur le schéma). Cette énergie d'excitation est convertie en photons de scintillation. La maîtrise du processus de scintillation a été abordée dans le chapitre 1, en s'appuyant notamment sur la loi de Birks. Puis, les photons générés peuvent être réfléchis par la gaine ou bien s'échapper de la fibre, si leur angle d'incidence avec l'interface cœur/gaine est trop important (numéro 1

sur le schéma). En supposant une émission isotrope des photons de scintillation, il est possible de calculer le rapport entre le nombre de photons émis et le nombre de photons piégés dans la fibre. Les photons réfléchis peuvent ensuite être réabsorbés par la fibre elle-même (numéro 2 sur le schéma). En effet, les spectres d'absorption et d'émission de la matrice et des fluorophores ne sont pas entièrement séparés. De manière macroscopique, on peut considérer une perte du flux lumineux selon une loi de Beer-Lambert, soit une absorbance exponentielle. Les photons transmis et non absorbés arrivant sur l'interface fibre-photomultiplicateur peuvent être réfléchis ou diffusés, et donc ne jamais atteindre la photocathode (numéro 3 sur le schéma). Une évaluation de ce facteur permet d'estimer le rapport entre le nombre de photons arrivant sur l'interface et ceux pénétrant dans le photomultiplicateur. Les photons atteignant la photocathode quant à eux ne seront pas forcément convertis en photoélectrons (numéro 4 sur le schéma). En effet, l'émission d'électrons par la photocathode suit une loi de Poisson dont le paramètre dépend de l'efficacité quantique de la photocathode. Finalement, les photoélectrons émis par la photocathode seront amplifiés, ce qui générera un signal électrique suffisamment important pour être compatible avec l'électronique de numérisation (numéro 5 sur le schéma). Décrivons de manière détaillée ces processus, sachant que la scintillation a déjà été abordée dans le chapitre 1.

3.1.1 Efficacité de piégeage⁴

Les photons de scintillation sont émis de manière isotrope lors de leur génération dans la fibre. Or, selon l'angle d'incidence avec l'interface cœur-gaine, il est possible que des photons s'échappent du cœur et ne soient pas détectés. Il existe donc des angles d'émission permettant la transmission du photon dans la fibre et d'autres conduisant à la perte de ce dernier. Le rapport entre les angles d'émission conduisant à une transmission dans la fibre sur l'ensemble de la distribution angulaire donne l'efficacité de piégeage de la fibre. Dans un premier temps, intéressons-nous aux émetteurs de photons de scintillation présents sur l'axe de la fibre. La figure 3-2 présente le schéma associé. On suppose qu'un traitement d'optique linéaire suffit à décrire pleinement les phénomènes conduisant à l'efficacité de piégeage de la fibre. On suppose aussi que les fluorophores sont répartis de manière homogène.

⁴ La terminologie anglaise est *Trapping efficiency*.

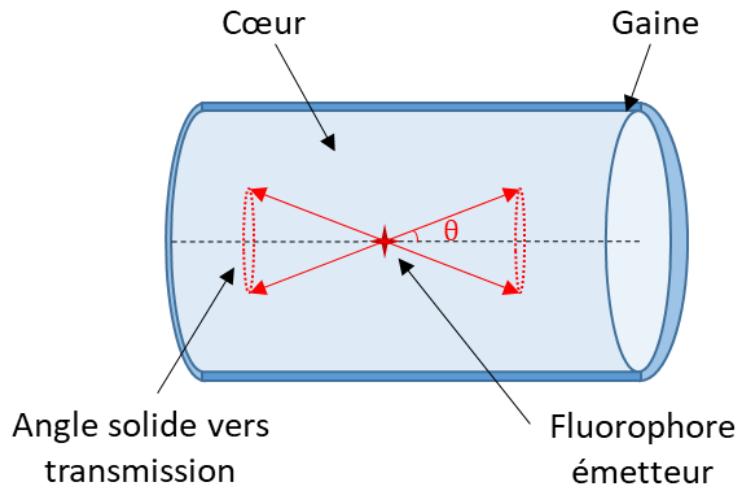


Fig. 3-2. Schéma d'une émission lumineuse depuis l'axe de la fibre conduisant à une transmission.

Le calcul de l'angle maximal conduisant à une transmission des photons générés dans la fibre est donné par les lois de Snell-Descartes, pour un angle d'émission critique θ_c avec l'axe de la fibre :

$$\theta_c = \cos^{-1}\left(\frac{n_2}{n_1}\right) \quad (1)$$

avec n_1 l'indice de réfraction du cœur et n_2 l'indice de réfraction de la gaine. Pour la fibre utilisée lors de ces travaux, BCF-10 fabriquée par Saint-Gobain, cette valeur est calculée à $21,37^\circ$ pour des valeurs $n_1 = 1,6$ et $n_2 = 1,49$. On se retrouve alors avec deux angles solides associés à des cônes de révolution, un pour une transmission vers la gauche et un vers la droite, conduisant à une transmission dans la fibre. Dès lors, on peut calculer l'angle solide total de transmission comme étant le rapport entre l'angle solide de deux cônes de révolution sur l'angle solide d'une sphère. L'équation 2 décrit le calcul de l'angle solide de transmission, pour une émission sur l'axe de la fibre :

$$\Omega_{\text{transmission}} = 2 \frac{2\pi(1 - \cos(\theta_c))}{4\pi} \quad (2)$$

$$\Omega_{\text{transmission}} = 1 - \cos(\theta_c)$$

L'application numérique donne une valeur $\Omega_{\text{transmission}} = 6,6\%$. Cette valeur ne concernant que les émetteurs présents sur l'axe de la fibre, ce modèle est incomplet. En effet, les rayonnements émis depuis l'axe de la fibre sont des rayonnements qui, dans leur transmission, couperont toujours l'axe de la fibre entre chaque réflexion, appelés rayons

méridionaux. Il existe des rayonnements qui sont transmis sans jamais croiser l'axe de la fibre, avec une trajectoire hélicoïdale. Ces rayonnements sont générés lorsque l'émetteur ne se présente pas sur l'axe de la fibre : ils sont appelés rayons obliques et sont schématisés sur la figure 3-3.

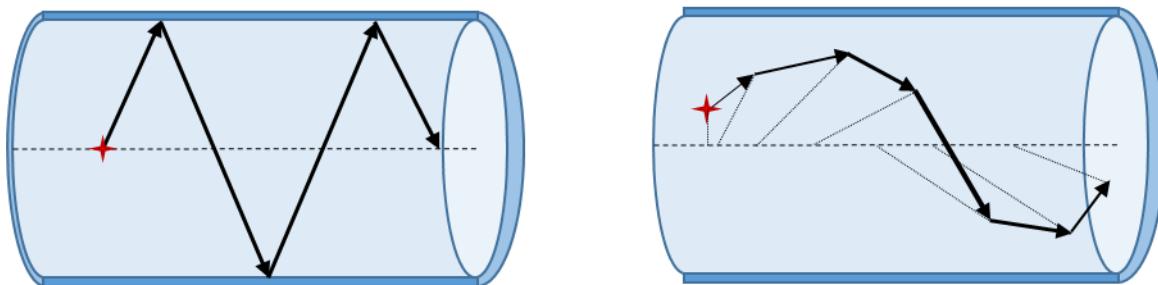


Fig. 3-3. Schéma d'une émission lumineuse depuis l'axe de la fibre à gauche, et un point hors axe de la fibre à droite. Tous deux conduisent à une transmission. Angles d'incidences surestimés à des fins d'illustration.

La prise en compte de ces rayonnements obliques n'est pas triviale, car leur angle d'incidence sur l'interface cœur-fibre dépend à la fois de leur angle azimutal et de leur élévation. La figure 3-4 présente notamment ces deux caractéristiques.

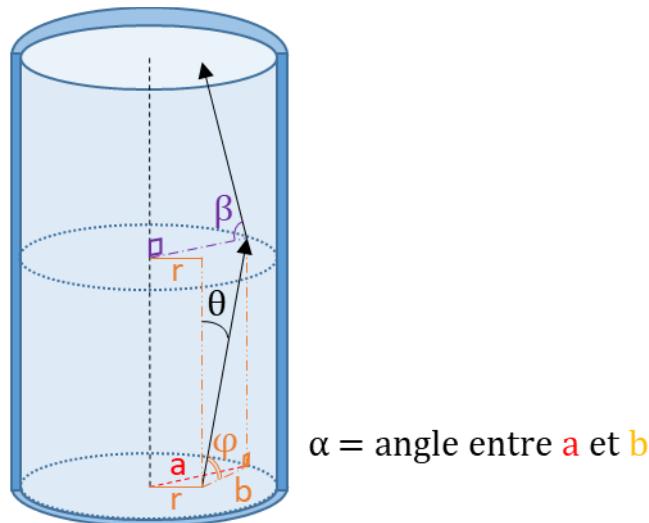


Fig. 3-4. Schéma d'une transmission lumineuse d'un rayonnement oblique.

On note a le rayon du cœur de la fibre, b la projection du rayonnement incident sur le plan horizontal, r la distance avec le centre de la fibre, φ l'angle azimutal, θ l'angle associé à l'élévation, α l'angle entre la projection du rayonnement sur le plan horizontal b et le rayon du cœur a , et β l'angle d'incidence. D'après [1], on peut montrer par projection du rayonnement oblique sur le plan horizontal et sur l'axe de la fibre que :

$$\cos(\beta) = \sin(\theta) \cos(\alpha) \quad (3)$$

Le calcul de $\cos(\alpha)$ donne le résultat suivant :

$$\cos(\alpha) = \sqrt{1 - \sin(\alpha)^2}$$

$$\cos(\alpha) = \sqrt{1 - \left(r \frac{\sin(\phi)}{a}\right)^2} \quad (4)$$

Dès lors, on obtient une valeur de $\cos(\beta)$ donnée par l'équation 5 :

$$\cos(\beta) = \sin(\theta) \times \sqrt{1 - \left(r \frac{\sin(\phi)}{a}\right)^2} \quad (5)$$

D'après l'équation 5, on remarque que plusieurs variables sont présentes, à l'inverse de l'équation 1, qui ne dépend que de l'angle critique θ_c . On montre qu'il existe des combinaisons où θ peut être supérieur à θ_c et que le rayonnement oblique soit transmis dans la fibre. En effet, la condition de transmission est alors donnée par l'angle incident limite β_c comme :

$$\beta_c = 90^\circ - \theta_c \quad (6)$$

Il en ressort que pour qu'une réflexion totale dans la fibre ait lieu pour un rayonnement oblique, l'angle β doit être supérieur ou égal à β_c . Sachant que $\frac{r}{a}$ peut varier entre 0 et 1, c'est-à-dire que le centre émetteur est situé sur l'axe de la fibre et à l'interface cœur-gaine respectivement, et que ϕ peut prendre des valeurs entre 0 et 90° , il est possible de construire des courbes de β en fonction de ϕ et $\frac{r}{a}$, pour des valeurs de θ donnés. Par exemple, pour un angle θ de 32° , supérieur à l'angle θ_c , on construit les courbes suivantes :

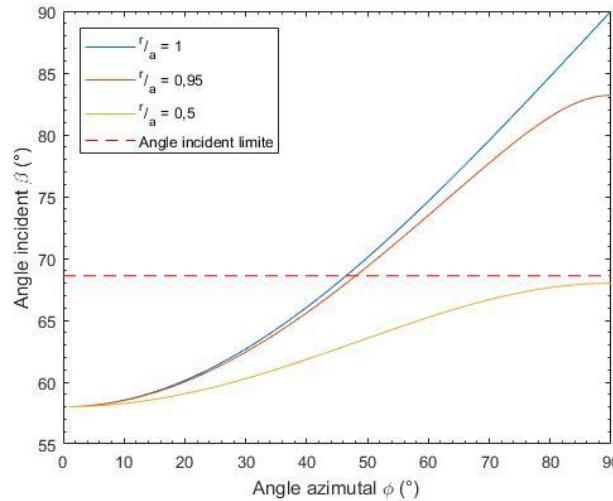


Fig. 3-5. Schéma d'une transmission lumineuse d'un rayonnement oblique pour $\vartheta=32^\circ$.

On remarque qu'il existe effectivement des couples $\frac{r}{a}$ et ϕ donnant des valeurs de β supérieures à la limite de réflexion totale permettant la transmission, pour une valeur de θ supérieure à θ_c . Dès lors, il existe deux contributions à la puissance totale transmise générée dans la fibre :

- L'angle θ est inférieur à θ_c et donc pour toute valeur de r et ϕ , il y a transmission. On appellera cette contribution à la puissance transmise P_N (*Narrow* pour faible angle). Cette contribution comprend aussi celle décrite plus haut dans le modèle simplifié d'une génération sur l'axe de la fibre qui correspond au cas où r est égal à 0.
- L'angle θ est supérieur à θ_c et il existe des combinaisons de r et ϕ pour lesquelles il y a transmission. On appellera cette contribution à la puissance transmise P_W (*Wide* pour *large angle*)

Dès lors, on définit l'efficacité de piégeage de la fibre comme étant le rapport de la puissance transmise, égale à la somme de P_N et P_W , sur la puissance totale générée P_T . Définissons maintenant le calcul de P_N et P_W sachant que P_N correspond à puissance transmise lorsque l'angle θ est inférieur à θ_c . L'angle solide de transmission est alors celui décrit par l'équation 2 et on obtient ainsi l'équation suivante :

$$P_N = P_T \left(1 - \cos(\theta_c)\right) = P_T \left(1 - \frac{n_2}{n_1}\right) \quad (7)$$

Le calcul de P_W n'est quant à lui pas trivial. Étant donné la combinaison possible des variables conduisant à une transmission dans la fibre, le calcul de P_W va donc être constitué de plusieurs intégrations différentes pour chaque variable. Le développement de ce calcul a été réalisé dans la littérature [1], [2] et conduit à la forme simplifiée suivante :

$$P_W = P_T \cos(\theta_c) (1 - \cos(\theta_c))$$

$$P_W = P_T \frac{n_2}{n_1} \left(1 - \frac{n_2}{n_1}\right) \quad (8)$$

On en déduit alors l'efficacité de piégeage, EP , en combinant les équations 7 et 8 avec la définition formelle de ladite efficacité. L'équation 9 présente l'équation finale :

$$EP = \frac{P_N + P_W}{P_T} = 1 - \left(\frac{n_2}{n_1}\right)^2 \quad (9)$$

L'application numérique donne une valeur de 13%, ce qui constitue le double de la première approche. La première approche sous-évalue ainsi la réelle efficacité de piégeage de la fibre. Ces valeurs sont supérieures à celles annoncées par le constructeur Saint-Gobain, avec une efficacité de piégeage de la fibre de 3,4% pour des événements sur l'axe de la fibre, et de 7% environ pour des événements proches de l'interface cœur-gaine. Il est à noter que Saint-Gobain ne mentionne pas si ces efficacités sont pour des rayonnements méridionaux ou obliques. De plus, leurs schémas ne montrent que des rayonnements méridionaux, ce qui laisse penser que les rayons obliques ne sont pas pris en compte : ainsi, l'efficacité de piégeage réelle de la fibre serait sous-évaluée par les données constructeur.

3.1.2 Auto-absorption du signal lumineux

Après avoir calculé la fraction du signal lumineux généré qui est réellement réfléchi dans la fibre, il faut calculer la fraction perdue par auto-absorption dans la fibre. En effet, il existe un recouvrement entre le spectre d'émission des fluorophores et leur spectre d'absorption. Le spectre d'émission est indiqué par Saint-Gobain dans la fiche technique des fibres scintillantes BCF-10 [3] et est rappelé sur la figure 3-6 suivante :

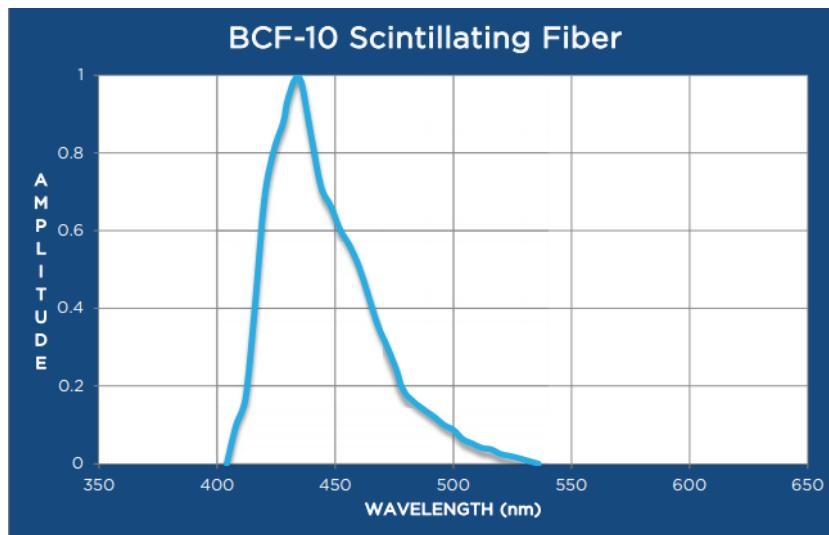


Fig. 3-6. Spectre d'émission de la fibre scintillante BCF-10 [3].

Le spectre d'absorption n'est pas donné, mais des études ont été conduites afin d'évaluer ce spectre. Nous citerons notamment des résultats obtenus par une étude montrant l'absorption d'un signal lumineux de longueur d'onde variable, dans différentes fibres scintillantes [4]. La figure 3-7 présente les résultats de cette étude pour la fibre scintillante BCF-10 :

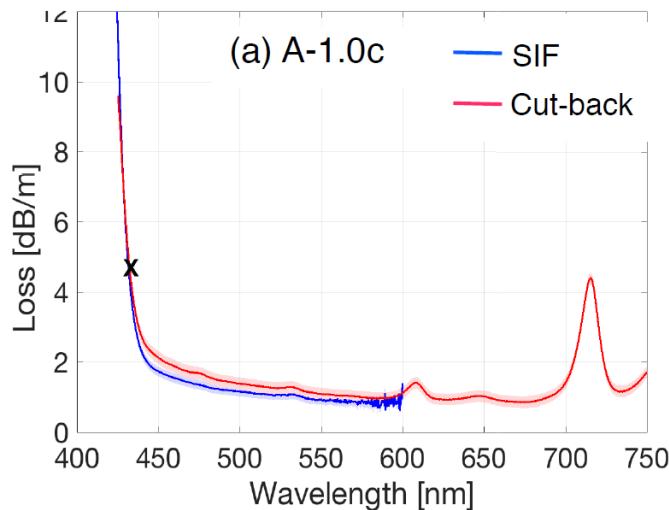


Fig. 3-7. Spectre d'absorption de la fibre scintillante BCF-10 [4]. SIF et Cut-back sont des références à la méthode d'illumination employée. La croix noire présente le pic de longueur d'onde d'émission de la fibre étudiée.

La croix indiquant la perte linéaire associée au pic d'émission de la fibre, on prend une valeur de 5,44 dB/m. La perte lumineuse étant donnée sous forme d'une perte linéaire en décibels on définit alors que la perte suit une loi d'absorption de Beer-Lambert-Bouguer. En supposant une répartition de fluorophores homogène, on pose :

$$-L (dB/x) = 10 \log_{10} \left(\frac{W_t(x)}{W_I} \right) \quad (10)$$

$$W_t(x) = W_I 10^{-\frac{L}{10}}$$

avec L la perte suite à la transmission d'une unité de longueur, $W_t(x)$ la puissance transmise après une longueur donnée x , et W_I la puissance initiale. On prend la perte L avec une valeur négative car elle correspond à la perte de signal. Il faut donc établir la longueur de fibre traversée. Étant donné que le signal est perçu des deux côtés de la fibre, la puissance totale transmise mesurée est égale à la somme des puissances transmises dans les deux directions de la fibre. On suppose que la puissance initiale se divise en deux puissances initiales se propageant dans les deux directions de la fibre. On pose alors les équations suivantes :

$$W_{I1} = W_{I2} = \frac{W_{I\text{ totale}}}{2} \quad (11)$$

$$W_{I\text{ totale}} = W_{t1} + W_{t2}$$

En posant x_i la distance parcourue entre l'origine de la scintillation et le photomultiplicateur i , et en combinant l'équation 10 et 11, on obtient :

$$W_{I\text{ totale}} = \frac{W_{I\text{ totale}}}{2} \left(10^{-\frac{Lx_1}{10}} + 10^{-\frac{Lx_2}{10}} \right) \quad (12)$$

On constate que l'atténuation totale subie par le signal n'est pas constante en fonction de l'origine de la scintillation. En sachant que la fibre est d'une longueur totale de 40 cm, on peut poser que $x_2 = 0,40 - x_1$ pour des valeurs de x_i en m. On construit alors la figure 3-8 suivante, représentant la puissance totale émise ramenée à 1, c'est-à-dire $W_{I\text{ totale}} = 1$, en fonction de la distance entre l'origine de la scintillation et le photomultiplicateur 1.

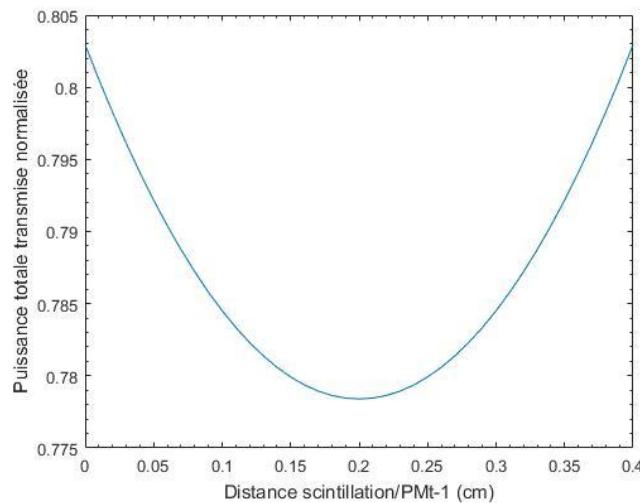


Fig. 3-8. Puissance totale émise ramenée à 1 en fonction de la distance entre l'origine de la scintillation et le photomultiplicateur 1, dans une fibre scintillante BCF-10 de 40 cm.

La puissance totale transmise en fonction de la distance entre l'origine et le photomultiplicateur 1 arbore une parabole avec comme plus faible transmission le centre de la fibre. En effet, lorsque l'évènement est proche d'un photomultiplicateur, la transmission après piégeage est maximisée et compense la perte par la transmission dans la fibre, vers l'autre photomultiplicateur. Au sein du dispositif expérimental utilisé dans le cadre de cette étude, la source est placée au milieu du paquet de fibres. Les évènements les plus probables par angle solide d'émission sont donc les évènements ayant lieu au plus proche du centre de la fibre. On prend donc une valeur de puissance transmise totale de 0,78. La puissance étant reliée au signal lumineux de scintillation, le facteur ainsi calculé sera utilisé pour caractériser le nombre de photons absorbés. Ainsi, le nombre de photons atteignant l'interface fibre-photomultiplicateur sera multiplié par 0,78.

3.1.3 Interface fibre-photomultiplicateur

Les photons arrivant sur l'interface fibre-photomultiplicateur peuvent être réfléchis et renvoyés vers la fibre, ou diffuser vers le milieu suivant, c'est-à-dire la graisse optique et le verre du photomultiplicateur. Pour cette raison, une fraction de photons ne traverse pas l'interface et n'atteint donc pas la photocathode. Le calcul de la fraction transmise peut se faire grâce aux équations de Fresnel, en posant des hypothèses sur la lumière de scintillation et sur les milieux traversés. Ainsi, on pose que la lumière de scintillation n'est pas polarisée et que les milieux traversés ont une perméabilité magnétique proche de celle du vide. On peut alors calculer les coefficients de transmission et de réflexion à l'interface plane de deux milieux, pour des ondes polarisées perpendiculairement et parallèlement au plan d'incidence. On émet enfin l'hypothèse que, pour une lumière non polarisée, les coefficients de

transmission et réflexion associés sont la moyenne des valeurs obtenues pour les deux polarisations présentées précédemment. On peut alors écrire le couple d'équations suivant, d'après [5] :

$$Ts = \frac{2n_1 \cos(\theta_i)}{n_1 \cos(\theta_i) + n_2 \cos(\theta_t)} \quad (13)$$

$$Tp = \frac{2n_1 \cos(\theta_i)}{n_1 \cos(\theta_t) + n_2 \cos(\theta_i)}$$

Avec Ts le coefficient de transmission associé à la polarisation perpendiculaire, Tp le coefficient de transmission associé à la polarisation parallèle, n_i l'indice du milieu i , θ_i l'angle d'incidence et θ_t l'angle de transmission. On note ensuite le coefficient de transmission moyen comme étant $T_{eff} = \frac{Ts+Tp}{2}$. En prenant une valeur d'indice pour la graisse optique de 1,47 [6], et pour des angles incidents de 0° à 90° , on obtient le coefficient de transmission suivant entre la fibre et la graisse optique :

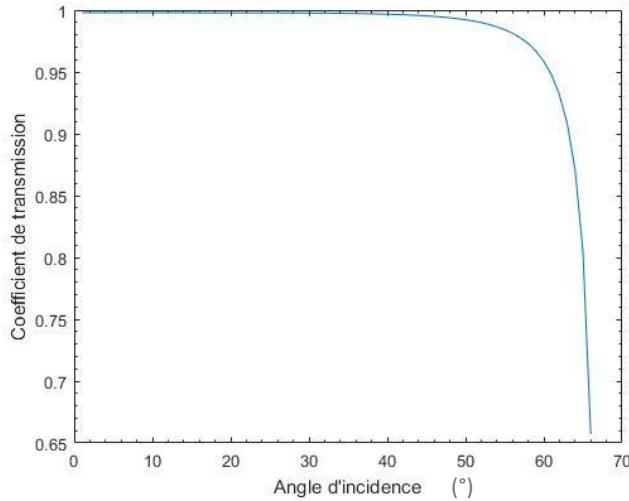


Fig. 3-9. Coefficient de transmission fibre/graisse optique en fonction de l'angle d'incidence en degrés.

On constate que, jusqu'à un angle incident de 60° , le coefficient de transmission est proche de l'unité. L'étude de la sortie angulaire permet alors d'étudier avec précision la fraction non transmise qui est réfléchie dans la fibre. Malgré tout, les angles d'incidences des rayons méridionaux constituent environ 50% de la puissance initiale d'après les équations 7 et 8. Sur les 50% restants constitués des rayonnements obliques, il existe une distribution d'angles incidents allant de 0° à l'angle critique β_c conduisant à une majorité totale des rayonnements incidents, après transmission dans la fibre, avec un angle incident inférieur ou égal à $21,4^\circ$. Au vu de la figure 3-9, on peut considérer, en première approche, que l'ensemble de la puissance

incidente sur l'interface fibre/graisse optique est transmise. La perte est donc supposée négligeable. La différence d'indice entre la graisse et le verre du photomultiplicateur est faible, en effet, le verre du photomultiplicateur a un indice donné de 1,49. La figure 3-10 présente les résultats du calcul du coefficient de transmission :

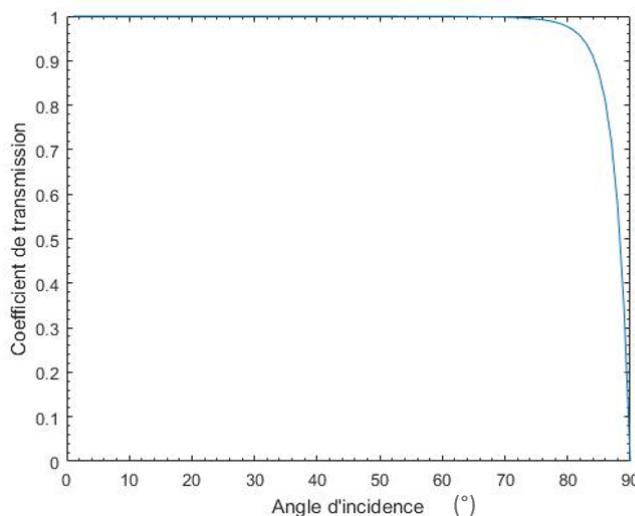


Fig. 3-10. Coefficient de transmission graisse optique/verre en fonction de l'angle d'incidence en degrés.

L'interface graisse optique/verre n'entraîne pas de perte lumineuse, pour des angles inférieurs à 80°. Pour cette raison, on considère que l'interface globale fibre/photomultiplicateur n'entraîne pas de perte de signal lumineux, et que l'adaptation d'indice avec la graisse optique est satisfaisante.

3.1.4 Tube photomultiplicateur

Le tube photomultiplicateur est un dispositif permettant de recueillir un signal lumineux et de le convertir en un signal électrique amplifié, grâce à l'action d'un champ électrique. Un tube photomultiplicateur est composé d'une photocathode, d'un pont de dynodes, et d'une anode, l'ensemble étant placé sous vide. Un champ électrique est généré entre la photocathode et l'anode et permet l'amplification des électrons émis par la photocathode, à chaque dynode.

La photocathode permet de générer des électrons, appelés photoélectrons, à partir d'interactions photoélectriques avec des photons incidents. Les matériaux semi-conducteurs couramment utilisés dans la fabrication des photocathodes sont le *bialkali* (Sb-Rb-Cs), le *multialkali* (Na-K-Sb-Cs), et l'arséniure de gallium (Ga-As), entre autres [7]. Ils sont choisis pour leur section efficace d'interaction en fonction de la longueur d'onde des photons incidents, ainsi que pour leur affinité électronique négative. Cette dernière caractéristique facilite l'échappement des électrons générés par l'abaissement, en dessous de la bande de

conduction, de la barrière de potentiel entre la photocathode et le vide [8]. Sans cette caractéristique, un électron retournant au niveau fondamental de la bande de conduction, par désexcitation dans la photocathode même, ne peut s'échapper et finit par retourner dans la bande de valence après recombinaison. Grâce à ces matériaux, un électron au niveau fondamental de la bande de conduction peut encore s'échapper du semi-conducteur, et possède une durée de diffusion plus importante avant de retourner sur la bande de valence. L'épaisseur de la photocathode est limitée par le travail de sortie du matériau, qui correspond à l'énergie minimale nécessaire pour qu'un électron soit dissocié de la photocathode. L'épaisseur est alors de l'ordre de quelques dizaines de nanomètres. Une telle épaisseur a pour conséquence de rendre la photocathode semi-transparente aux photons incidents, ce qui réduit son efficacité. Ainsi, des valeurs communes d'efficacité quantique sont de l'ordre de 20 à 30% [9].

Les électrons ayant pu s'échapper de la photocathode sont accélérés et migrent ensuite, sous l'effet du champ électrique, vers la première dynode. Le flux est focalisé afin de limiter les pertes par l'intermédiaire d'électrodes de focalisation. Grâce à l'énergie accumulée par l'accélération, les électrons interagissant avec la première dynode vont l'ioniser. Plusieurs électrons sont alors réémis par électron incident. On peut définir un facteur de multiplicité δ comme étant le rapport entre le nombre d'électrons secondaires et le nombre d'électrons incidents primaires. Ainsi, pour un tube comportant un nombre N de dynodes, et en notant α la fraction des photoélectrons collectés par la première dynode, on obtient la valeur du gain total G tel que :

$$G = \alpha \delta^N \quad (14)$$

Le facteur de multiplicité n'est pas constant mais est une variable aléatoire suivant, en première approximation, une loi de Poisson. Cette distribution résulte des variations de la haute tension appliquée au photomultiplicateur.

- Probabilité d'émission de la photocathode

Lorsque la photocathode est soumise à un flux lumineux, la probabilité qu'un photon incident conduise à l'émission d'un photoélectron dépend de l'efficacité quantique de la photocathode. La loi de probabilité sous-jacente peut être décrite par une loi de Poisson [10]–[12], de paramètre égal à l'efficacité quantique multipliée par le nombre de photons incidents. On pose alors l'équation suivante :

$$\mathcal{P}(n) = \frac{\mu^n e^{-\mu}}{n!} \quad (15)$$

avec μ le paramètre de la loi de Poisson et n le nombre de photoélectrons émis. Le spectre d'émission de la photocathode peut se retrouver déformé par rapport à la distribution théorique attendue, lié à l'angle d'incidence des photons sur la photocathode, sans modifier la valeur moyenne attendue [13].

L'efficacité quantique de la photocathode est fonction de la longueur d'onde des photons incidents. Les photocathodes sont fabriquées de façon à maximiser l'efficacité quantique pour une longueur d'onde donnée. La figure 3-11 présente l'efficacité quantique de la photocathode des PMT utilisés dans le cadre de ces travaux de thèse (modèle 9205B, ET Enterprises).

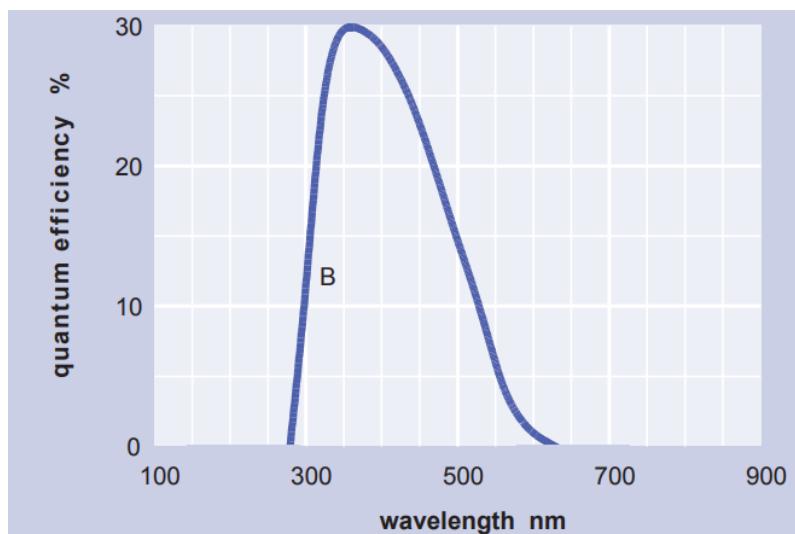


Fig. 3-11. Efficacité quantique de la photocathode du PMT 9205B fabriqué par ET Enterprises en fonction de la longueur d'onde des photons incidents [14].

D'après la figure 3-6, la longueur d'onde d'émission n'est pas unique mais correspond à un spectre d'émission. Dès lors, le paramètre de la loi de Poisson est lui aussi une distribution formée par la convolution du spectre d'émission et de l'efficacité quantique. Afin de simplifier les calculs, nous prendrons la valeur maximale du spectre d'émission comme longueur d'onde et ainsi, déterminerons la valeur de l'efficacité quantique associée. La valeur ainsi trouvée de l'efficacité quantique est de 25%.

- Amplification du signal électrique

La réponse de l'amplification d'un tube photomultiplicateur peut être approximée par une distribution Gaussienne [10], dépendant du nombre d'électrons amplifiés. L'équation suivante

présente la distribution de la charge résultant de l'amplification d'un nombre n de photoélectrons.

$$C_{n \text{ photoélectrons}}(x) = A \times e^{-\frac{(x-nQ_1)^2}{2n\sigma_1^2}} \quad (16)$$

où $C_{n \text{ photoélectrons}}$ est la charge associée à n photoélectrons, A est l'amplitude de la distribution, n est le nombre de photoélectrons émis par la photocathode, Q_1 est la charge moyenne associée à un photoélectron et σ_1 est l'écart-type associé à un photoélectron. Ainsi, si le nombre de photoélectrons émis par la photocathode est connu, il ne faut connaître que la charge associée à l'amplification d'un photoélectron, et l'écart-type associé. Pour cela, en utilisant l'équation 14 définissant le gain G , on note :

$$Q_1 = G e = \delta^N e \quad (17)$$

où e est la charge élémentaire d'un électron et le facteur de collecte de la première dynode est ici pris égal à l'unité. En pratique, on utilise des courbes d'étalonnage gain-tension appliquée afin d'obtenir directement le gain G . La figure 3-12 présente la courbe tension d'alimentation-gain du PMT utilisé.

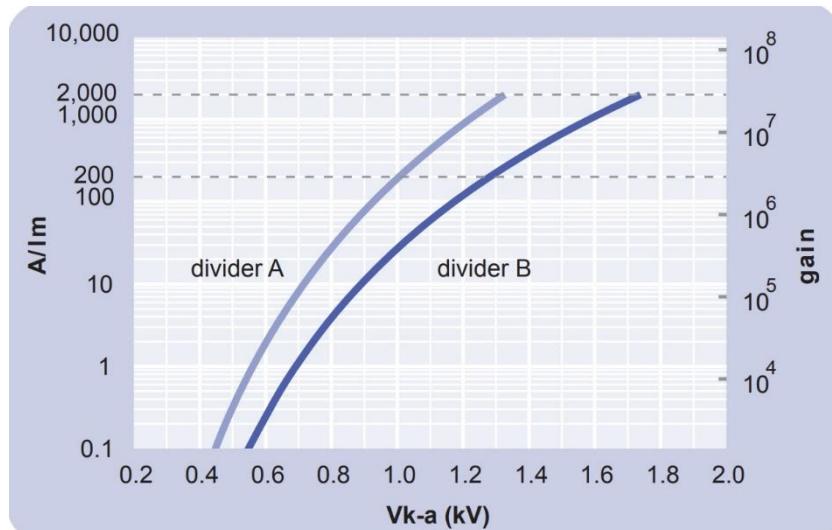


Fig. 3-12. Gain du PMT (axe vertical à droite) en fonction de la tension d'alimentation appliquée en kilovolt [14]. L'axe vertical à gauche représente la sensibilité lumineuse exprimée en ampère par lumen.

La détermination du paramètre σ_1 est classiquement réalisée à l'aide de diodes laser, capables d'émettre des impulsions. La numérisation des impulsions est ainsi asservie à l'émission laser, permettant de corrélérer temporellement les évènements. On s'assure ainsi que l'impulsion numérisée provient bien du laser [15].

Le modèle théorique ainsi construit de manière chronologique permet d'étudier le comportement de la détection. Cependant, le modèle ne prend pas en compte les paramètres de la numérisation, tel que le seuil de détection. La description complète du dispositif expérimental permettra d'expliciter ces paramètres, mais aussi de présenter des résultats d'acquisition qui seront comparés aux simulations.

3.2 Dispositif expérimental et acquisitions

Le déploiement du dispositif expérimental a débuté par la fabrication d'un détecteur basé sur des fibres scintillantes, comprenant aussi le montage du détecteur vers une électronique de numérisation. La deuxième étape consiste en des acquisitions avec des sources bêta, gamma, et les deux types de sources en même temps.

3.2.1 Fabrication d'un détecteur basé sur des fibres scintillantes et paramétrage

Un détecteur basé sur les fibres scintillantes a été développé au laboratoire, conjointement avec l'entreprise SEDI-ATI. Le détecteur est composé de 100 fibres scintillantes BCF-10, fabriquées par Saint-Gobain [3], dont les extrémités sont montées sur des supports. Les fibres BCF-10 sont des fibres scintillantes rondes possédant une gaine unique permettant la transmission optique de la lumière. Le cœur de fibre est en polystyrène ($\rho = 1,05$) d'un diamètre de 250 μm . La gaine est quant à elle en polyméthacrylate de méthyle (PMMA, $\rho = 1,2$) et possède une épaisseur de 7,5 μm . Les propriétés des dopants fluorophores, ainsi que leur quantité, ne sont pas connues. Le spectre d'émission de ces fibres a été présenté dans la section précédente.

Des supports permettent d'adapter le détecteur à la fenêtre d'entrée des PMT employés. Ils se présentent en deux pièces distinctes, l'une en aluminium qui recevra le paquet de fibres scintillantes, et l'autre en plastique qui se place à l'arrière du photomultiplicateur. Les deux parties possèdent des éperons permettant d'attacher des élastiques afin d'assurer une pression mécanique, pour fixer l'extrémité du paquet de fibres sur la fenêtre d'entrée du PMT. La figure 3-13 présente un schéma de conception du détecteur, où des photographies des adaptateurs sont exposées, tandis que la figure 3-14 expose une photographie du système monté sur un PMT.

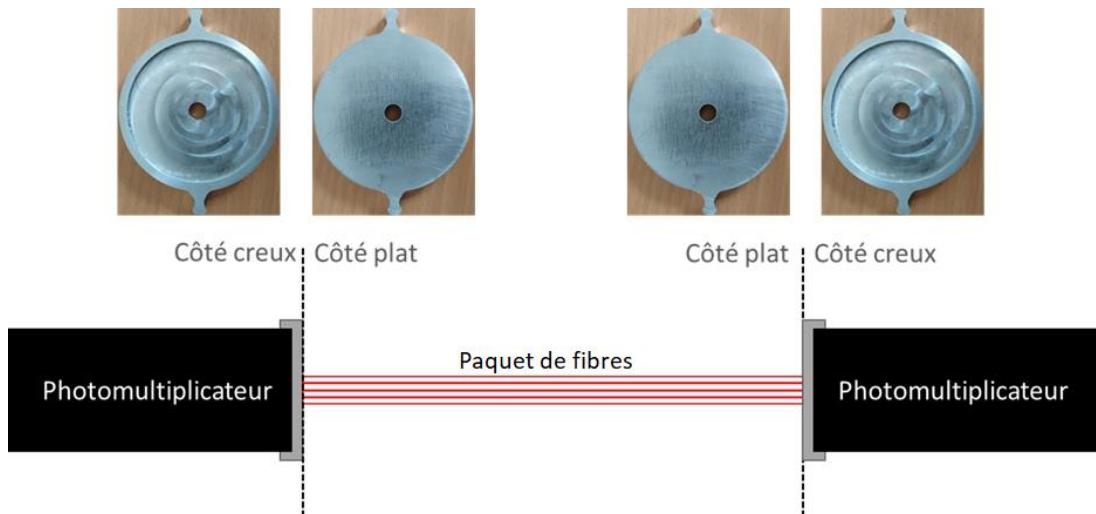


Fig. 3-13. Schéma de conception du détecteur développé, avec photographies des supports pour PMT avant fixation du paquet de fibres.



Fig. 3-14. Montage du support pour paquet de fibres sur un PMT, sans embase. La pièce en aluminium est visible au premier plan et la pièce en plastique est à l'arrière du PMT, de couleur noire. Des élastiques sont tendus entre les deux pièces à l'aide des éperons.

Les PMT utilisés sont fabriqués par ET Enterprises, modèle 9205B [14]. Ils ont été choisis en raison de leur disponibilité au laboratoire. La fenêtre d'entrée est de 5 cm de diamètre, et la photocathode est en *bialkali* (Sb-Rb-Cs), ce qui confère à cette famille de PMT une sensibilité accrue aux longueurs d'ondes associées au bleu et vert. L'efficacité quantique de la photocathode a été présentée au sein de la section précédente. La tension d'alimentation classique est de l'ordre du kilovolt. L'ensemble composé du paquet de fibres et des deux photomultiplicateurs forment le détecteur, qui est placé dans une boîte métallique afin d'être protégé de la lumière ambiante. La figure 3-15 présente une photographie du détecteur utilisé.



Fig. 3-15. Détecteur composé d'un paquet de 100 fibres scintillantes placé entre deux PMT.

La détection et la numérisation sont gérées par le numériseur CAEN DT5743 [16], choisi pour sa capacité à détecter des signaux en coïncidence, pour sa fréquence d'échantillonnage pouvant atteindre 3,2 GHz et sa précision de mesure de l'amplitude des impulsions pouvant atteindre le microvolt. Cela lui permet de traiter des signaux de faibles intensités, de surcroît en coïncidence, ce qui est adapté à notre configuration actuelle où un faible signal lumineux est attendu. En effet, la perte lumineuse dans la fibre est estimée en première approximation par le constructeur à 96,6% [3], que nous avons estimé par calcul à 87% au sein de la section 3.1.1. de ce chapitre.

Afin d'évaluer le seuil de détection, le signal thermoïonique intrinsèque aux PMT a été utilisé. Le bruit thermoïonique est défini comme le signal détecté lorsqu'un ou plusieurs électrons de la photocathode sont émis par agitation thermique, puis sont amplifiés par le pont de dynodes, formant ainsi un signal mesurable. Ce signal correspond au plus faible signal mesurable, car il provient de l'amplification d'un ou plusieurs photoélectrons. Une mesure du mouvement propre a donc été réalisée pour chaque PMT, en couvrant leur fenêtre d'entrée sans le paquet de fibres. Les impulsions résultantes ont permis d'évaluer les paramètres de seuil de détection. La figure 3-16 présente la méthode de sélection du seuil de détection.

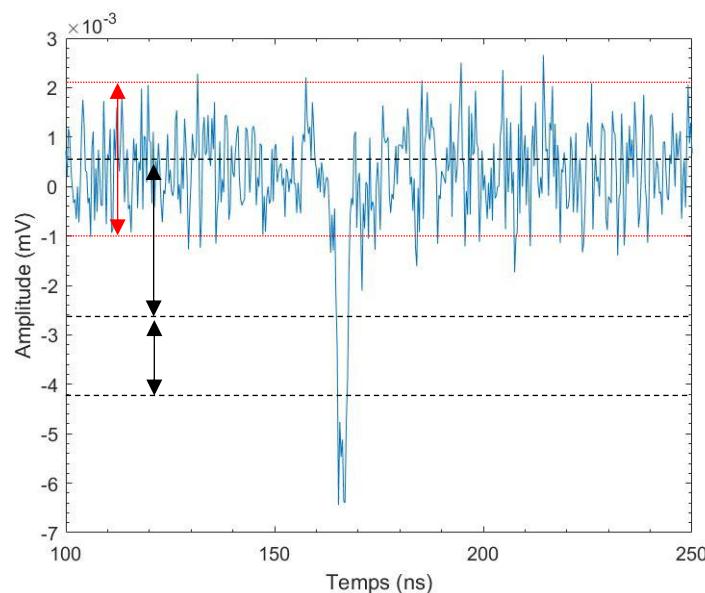


Fig. 3-16. Impulsion du signal thermoionique. Par des flèches rouges est représenté l'amplitude du bruit Johnson-Nyquist, et par des flèches noires est représenté l'amplitude du bruit à partir de la valeur moyenne, puis la moitié de cette valeur. La tension d'alimentation du PMT est de 850 V.

Afin de s'assurer que les impulsions les plus faibles soient numérisées, mais que le bruit soit rejeté, le seuil de détection est déterminé à partir de l'amplitude du bruit. Pour cela, ce dernier est déterminé à partir des *extrema* de sa distribution. Puis, le seuil de détection est calculé comme étant la soustraction⁵ d'une fois et demi l'amplitude du bruit à partir de sa valeur moyenne. L'application numérique de cette méthode donne la même valeur de seuil de détection pour les deux PMT. Cette dernière est égale à -4 mV, valeur arrondie car le logiciel d'acquisition possède une précision au millivolt.

3.2.2 Résultats d'acquisition

Comme précisé dans la méthode d'acquisition, les mesures sont réalisées en coïncidence sur les deux photomultiplicateurs. Cette méthode présente deux intérêts majeurs : le bruit de fond est réduit, et les signaux numérisés sur chaque PMT proviennent du même évènement de scintillation. Des acquisitions ont été réalisées à partir du montage expérimental présenté dans la partie précédente. Les sources sont placées à un centimètre du détecteur, centré en son milieu. Les données sont exprimées en efficacités de détection. En effet, cela permet de s'affranchir du temps de mesure t , de l'activité de la source A et de l'intensité d'émission I . Pour rappel, la définition de l'efficacité de détection ϵ est donnée comme étant le rapport du nombre de particules détectées N_{det} sur celui des particules émises $N_{émission}$, explicitée par l'équation 18.

$$\epsilon = \frac{N_{det}}{N_{émission}} = \frac{N_{det}}{A I t} \quad (18)$$

Différentes sources ont été utilisées, pouvant être qualifiées de bêta pures ou de bêta/gamma. Nous présenterons dans un premier temps les acquisitions avec les sources bêta pures, puis dans un deuxième temps celles avec les sources bêta/gamma.

- Source bêta pures

Les sources dites bêta pures sont des sources de ^{36}Cl et ^{90}Sr - ^{90}Y , bien que le ^{36}Cl possède une voie de capture électronique/ β^+ concurrente à la désintégration β^- . Cette dernière est considérée comme suffisamment faible pour ne pas être prise en compte, avec une

⁵ La polarisation du PMT est négative, ainsi, les impulsions seront négatives en valeur d'amplitude.

⁶ L'ensemble des données d'émission et d'énergie concernant les sources radioactives proviennent de la base de données Nucléide LARA [21] ou de la table des radionucléides de l'AIEA, *Live Chart of Nuclides* [22]. Les pourcentages expriment un nombre de particules émises pour 100 désintégrations.

probabilité de 1,9 %. Le spectre d'émission bêta du ^{36}Cl (98,1 %) est caractérisé par une énergie moyenne de 251,3 keV et une énergie maximale de 709,6 keV. L'activité de la source utilisée est de 6470 Bq au jour de la mesure. Le ^{90}Sr - ^{90}Y est composé de deux radionucléides émetteurs β^- purs, dont les énergies moyennes sont de 195,7 et 932,4 keV, et les énergies maximales sont de 545,9 et 2278,5 keV respectivement. La source est à l'équilibre séculaire, et son activité est donnée comme totale avec une valeur à 5168 Bq au jour de la mesure. Les deux sources sont fabriquées selon un procédé d'électrodéposition, où les radionucléides sont fixés sur une feuille de plastique *mylar* dorée. Ainsi, aucune couche plastique n'est superposée sur la source qui pourrait atténuer les rayonnements émis.

Deux tensions d'alimentation différentes ont été testées afin d'étudier l'évolution du signal. La première est de 850 V et correspond à la tension d'apparition des impulsions, la deuxième est de 1200 V et constitue la limite maximale recommandée par le constructeur. La figure 3-17 présente les efficacités de détection des sources bêta pures pour une tension de 850 V et la figure 3-18 pour une tension de 1200 V.

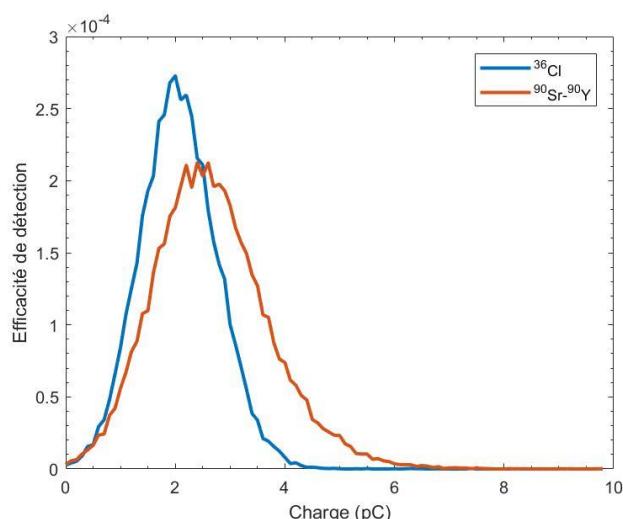


Fig. 3-17. Efficacité de détection des sources de ^{36}Cl et ^{90}Sr - ^{90}Y , en fonction de la charge de l'impulsion numérisée. Tension d'alimentation des PMT : 850 V.

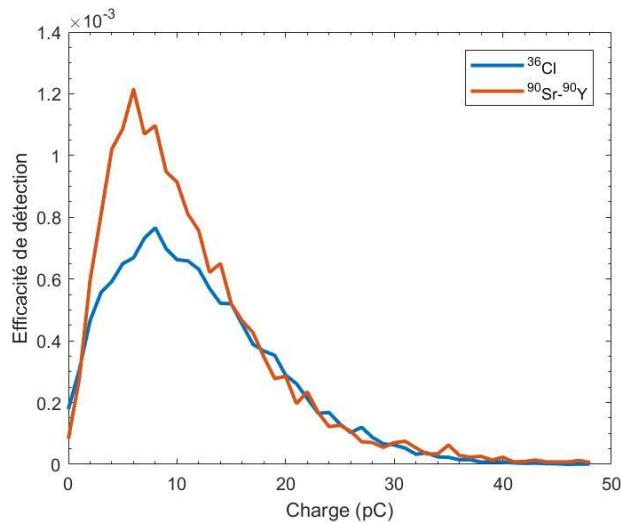


Fig. 3-18. Efficacité de détection des sources de ^{36}Cl et $^{90}\text{Sr-90Y}$, en fonction de la charge de l'impulsion numérisée. Tension d'alimentation des PMT : 1200 V.

Comme attendu, l'augmentation de la charge maximale dans les deux distributions est associée à l'augmentation de la tension d'alimentation. Le comportement entre les deux tensions d'alimentations n'est pas le même. En effet, pour une tension d'alimentation de 850 V, le signal du $^{90}\text{Sr-90Y}$ possède une charge maximale plus importante que celle du ^{36}Cl . On explique ce phénomène par l'énergie moyenne et maximale des particules β^- émises plus importantes que celles du ^{36}Cl . Pour une tension d'alimentation de 1200 V, les charges maximales sont identiques pour les deux sources, ce qui peut être expliqué par la variation associée à l'amplification du signal. Cette dernière serait ainsi suffisamment importante pour que la différence de l'énergie maximale soit négligeable devant l'amplification. Étudions maintenant l'évolution du bruit de fond en fonction de la tension d'alimentation. Le bruit de fond est mesuré avec le détecteur, en mode coïncidence, sans qu'aucune source ne soit présente. Il est ici exprimé en taux de comptage. La figure 3-19 présente le taux de comptage du bruit de fond pour une tension de 850 V, et la figure 3-20 pour une tension de 1200 V.

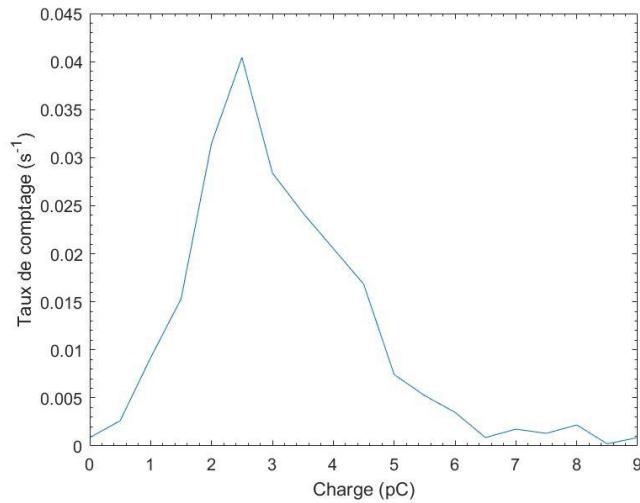


Fig. 3-19. Bruit de fond mesuré pour une tension d'alimentation de 850 V. Taux de comptage total : 0,2 coups/s et temps d'acquisition d'une heure et 16 minutes.

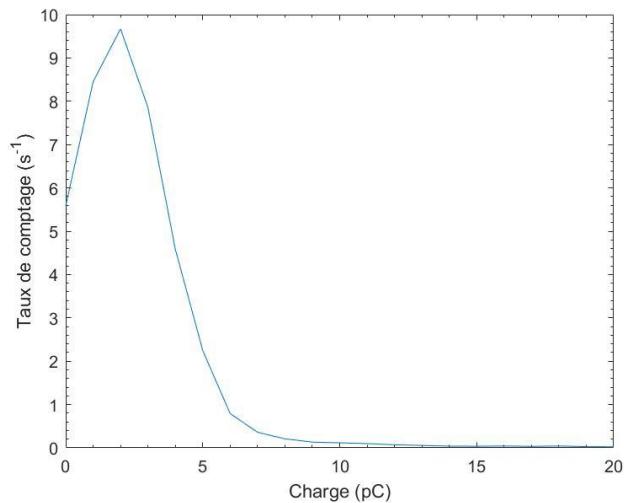


Fig. 3-20. Bruit de fond mesuré pour une tension d'alimentation de 1200 V. Taux de comptage total : 40,7 coups/s et temps d'acquisition de 5 minutes et 25 secondes.

Le bruit de fond est plus important pour la tension d'alimentation de 1200 V. Afin d'évaluer son impact, le rapport entre le taux de comptage avec la source de ^{90}Sr - ^{90}Y et le bruit de fond a été calculé pour chaque tension. On trouve ainsi un rapport de 150 pour 850 V, et de 2,0 pour 1200 V. On estime ainsi qu'un coup sur 150 provient du bruit de fond pour une tension de 850 V, et qu'un coup sur deux provient du bruit de fond pour une tension de 1200 V, pour une source de ^{90}Sr - ^{90}Y . Ainsi, notre choix d'alimentation portera sur une tension de 850 V, au vu du rapport signal sur bruit calculé.

- Source bêta/gamma

Les sources bêta/gamma utilisées sont des sources scellées de ^{137}Cs et de ^{60}Co , c'est-à-dire que les radionucléides sont fixés entre deux feuilles de plastique *mylar* de 150 μm d'épaisseur.

Le ^{137}Cs émet un rayonnement gamma de 661,7 keV (85 %) et des rayons X de 33 keV (6,6 %) en moyenne. Ses émissions β^- consistent en une majorité (94,36 %) de particules bêta ayant une énergie moyenne de 174,3 keV et une énergie maximale de 514,0 keV. L'autre émission β^- la plus probable (5,64 %) possède une énergie moyenne de 416,3 keV et une énergie maximale de 1175,6 keV. On note que le ^{137}Cs émet également des électrons de conversion interne en quantité non négligeables. Ainsi, le ^{137}Cs émettra, en plus de la particule β^- , des électrons de conversion interne⁷ ayant une énergie comprise entre 624 et 661 keV (18,7 %).

Le ^{60}Co émet deux rayonnements gamma principaux à 1332,5 keV (99,98 %) et 1173,2 keV (99,85 %), et son émission β^- principale (99,88 %) a pour énergie moyenne 95,8 keV et pour énergie maximale 317,3 keV. Il ne possède pas d'émission d'électron de conversion interne importante, l'intensité d'émission cumulée étant inférieure à 0,3 %.

Outre la contribution gamma, l'épaisseur de *mylar* de 150 μm n'arrête pas les électrons/ β^- les plus énergétiques. Pour étudier ce phénomène, le flux surfacique traversant la fenêtre de sortie de la feuille de *mylar* a été simulé à l'aide de MCNP6.2, en utilisant le *tally* F1. Les résultats sont présentés sur la figure 3-21 ci-dessous. Le signal bêta, bien qu'atténué, n'est pas arrêté par les feuilles de *mylar* scellant la source. Par simulation, la fraction des particules transmises a été estimée à 18%. Le signal bêta est ainsi détectable par le paquet de fibres, au même titre que les sources scellées.

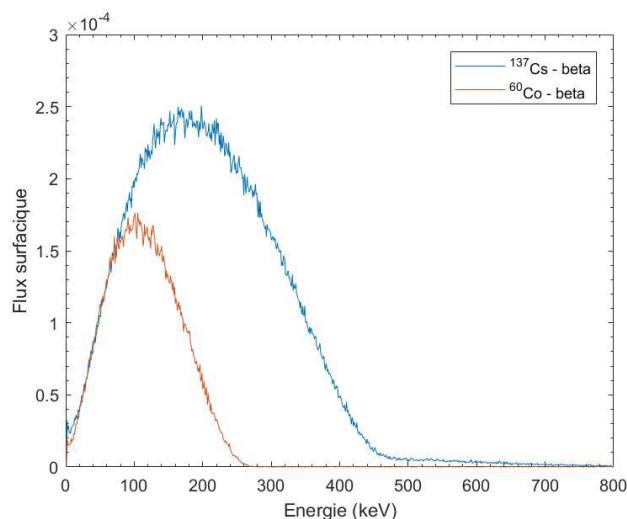


Fig. 3-21. Flux surfacique simulé des particules β^- traversant 150 μm de mylar pour une source de ^{137}Cs et de ^{60}Co .

⁷ Processus de désexcitation du noyau, au cours duquel l'énergie d'excitation après désintégration est transférée à un électron des couches les plus liées. Ce transfert est possible par recouvrement des fonctions d'onde du noyau et de l'électron. Par conséquent, aucun intermédiaire n'est nécessaire au transfert. C'est une erreur courante en physique nucléaire de supposer qu'un rayonnement gamma est émis puis absorbé par l'électron.

La figure 3-22 présente les résultats d'acquisitions, pour les sources de ^{60}Co et de ^{137}Cs , représentés sous la forme de taux de comptage normalisés à l'activité. En effet, les contributions possibles sont nombreuses et empêchent le calcul de l'efficacité de détection à cause des multiples intensités d'émission : les contributions bêta et gamma sont imbriquées.

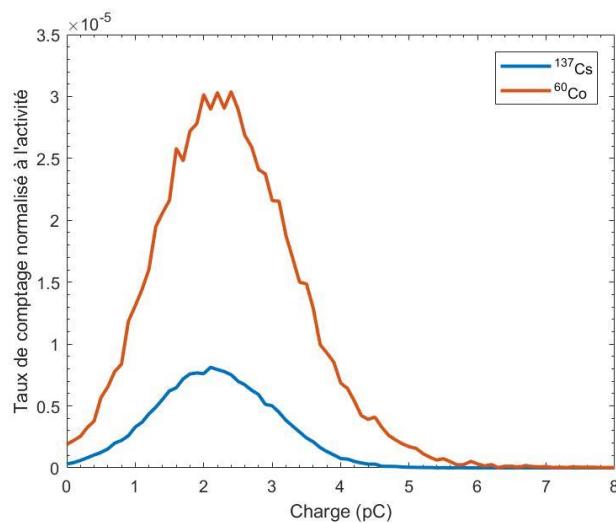


Fig. 3-22. Taux de comptage normalisé à l'activité de la source pour le ^{60}Co et le ^{137}Cs , en fonction de la charge de l'impulsion numérisée. Tension d'alimentation des PMT : 850 V.

On constate que les spectres correspondant à des acquisitions sur sources bêta/gamma présentent des résultats similaires en forme par rapport aux acquisitions avec sources bêta pures. Le spectre d'acquisition du ^{60}Co est cependant supérieur en intensité, d'un facteur 3, et en charge maximale comparé à celui du ^{137}Cs . Le spectre bêta du ^{60}Co est portant inférieur à celui du ^{137}Cs . On suppose alors que la contribution gamma, de plus haute énergie que celle du ^{137}Cs , est à l'origine de la charge maximale plus importante. Afin de tester cette hypothèse, un blindage supplémentaire a été rajouté sur la source et consiste en plusieurs feuilles d'aluminium, d'un millimètre d'épaisseur totale. On estime que seuls 13 % et 19 % des rayonnements gamma du ^{60}Co et ^{137}Cs respectivement seront atténués par l'aluminium. Cependant, on note que cette valeur atteint 27% pour des photons d'énergie 30 keV, soit les émissions X non négligeables du ^{137}Cs . En effet, bien qu'ayant une intensité d'émission moins importante que les rayonnements gamma, leur interaction avec la matière est plus probable de par leur plus faible énergie. Le calcul a été réalisé à l'aide de la base de données XCOM du *National Institute of Standards and Technology* (NIST) [17], en prenant une valeur de 2,7 comme densité de l'aluminium et une épaisseur traversée d'un millimètre. En complément, une simulation a été réalisée à l'aide de MCNP6.2 afin d'évaluer l'impact du blindage sur les particules bêta, et a montré que toutes les particules bêta sont arrêtées. Les résultats d'acquisition avec cette nouvelle configuration sont présentés sur la figure 3-23.

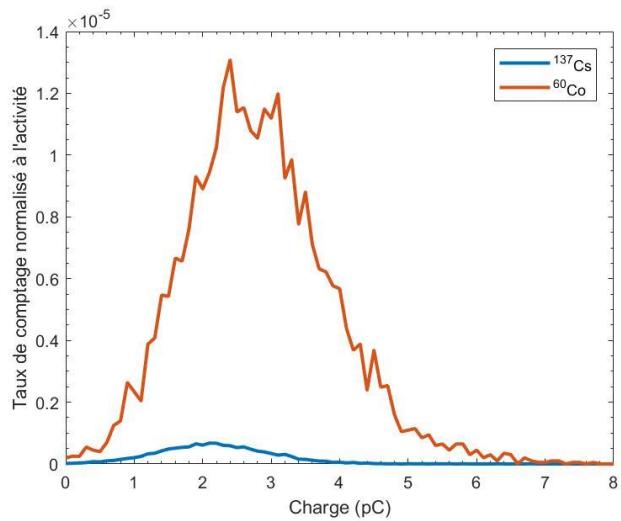


Fig. 3-23. Taux de comptage normalisé à l'activité de la source pour le ^{60}Co et le ^{137}Cs , en fonction de la charge de l'impulsion numérisée. Blindage en aluminium d'un millimètre d'épaisseur placé sur la source. Tension d'alimentation des PMT : 850 V.

On constate ainsi que la détection d'événements est toujours possible malgré le blindage rajouté, et donc que l'origine des spectres est la détection de rayonnements gamma. Cependant, les spectres sont atténués d'un facteur 2,5 et 9 pour le ^{60}Co et le ^{137}Cs respectivement. On estime que cette atténuation est due à la fois à l'absorption des particules bêta dans l'aluminium mais aussi par l'atténuation des photons. Le signal gamma est donc significatif et devra être atténué ou supprimé afin d'évaluer correctement les activités bêta mesurées. En effet, dans le contexte de mesure bêta dans des environnements à ambiance gamma non négligeable, le signal gamma peut interférer avec la mesure. On explique la sensibilité aux rayonnements gamma par l'utilisation de 100 fibres scintillantes regroupées, dont le volume total de détection se rapproche d'un scintillateur plastique.

3.3 Modèle théorique du détecteur basé sur des fibres scintillantes

Le modèle théorique construit se divise en deux parties distinctes. La première partie décrit la scintillation dans les cœurs de fibres, et la deuxième partie désigne la propagation de la scintillation dans la fibre jusqu'au signal électrique du photomultiplicateur. Ainsi, on utilise des simulations Monte Carlo couplées aux équations de Birks pour la première partie, et on étudiera le comportement de la lumière dans la fibre ainsi que l'amplification par le photomultiplicateur dans la deuxième partie.

3.3.1 Simulation Monte Carlo avec MCNP6.2

À l'aide du code de simulation MCNP6.2, une modélisation du détecteur constitué de 100 fibres scintillantes BCF-10 a été construite. Les fibres sont composées d'un cœur de fibre de 250 µm de diamètre en polystyrène, avec une gaine en polyméthacrylate de méthyle (PMMA) de 7,5 µm d'épaisseur. Le détecteur simulé est ainsi composé de 100 fibres disposées dans une matrice carrée, de 40 cm de longueur. La figure 3-24 présente une coupe frontale de la géométrie simulée.

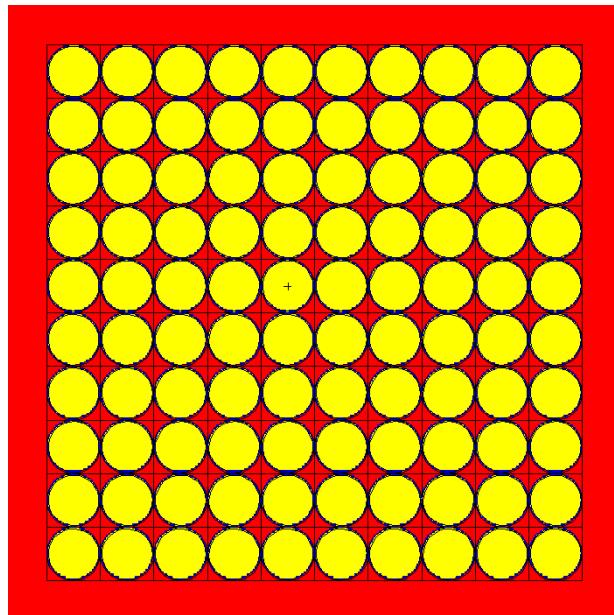


Fig. 3-24. Géométrie du détecteur simulée. En jaune sont représentés les cœurs de fibres, en bleu la gaine et en rouge l'air ambiant.

Les sources associées aux simulations sont basées sur celles utilisées lors des acquisitions. Elles sont simulées avec une surface active d'1,5 cm, émettant de manière isotrope. Les radionucléides simulés sont le ^{36}Cl et le ^{90}Sr - ^{90}Y en sources bêta pures, et le ^{137}Cs et ^{60}Co en source bêta/gamma.

La prise en compte des particules secondaires dans les simulations permet de traduire deux effets attendus qui caractérisent une perte et un gain en scintillation. Tout d'abord, les particules secondaires générées peuvent s'échapper du cœur et ainsi ne pas générer de photons de scintillation. D'autre part, si une particule incidente avec un parcours minimal génère une particule secondaire, dont l'angle d'émission est favorable à un dépôt d'énergie total, alors le nombre de photons de scintillation sera bien plus important que si seulement la particule incidente avait été prise en compte. L'énergie des électrons secondaires est tirée d'une distribution théorique, et n'est pas retirée à l'énergie de l'électron incident, car la perte associée à la génération de particules secondaires est déjà prise en compte dans le calcul de l'énergie déposée par MCNP6.2 [18], [19]. En règle générale, l'écart entre l'énergie perdue par particule secondaire générée pour la particule incidente et la valeur de la perte tirée de la

distribution théorique n'est pas important mais peut se montrer significatif sur quelques histoires spécifiques. Ainsi, ponctuellement, une particule secondaire peut avoir une énergie supérieure à ce qui a été déposé par la particule incidente sur l'intervalle de calcul de la théorie des diffusions multiples. Il suffit alors de ne pas prendre en compte ces histoires, car ces dernières sont ponctuelles et ne correspondent pas à un phénomène physique. Cet écart se compense statistiquement pour un grand nombre d'histoires. L'impact de la fuite d'électrons secondaires est donc pris en compte, et leur impact sur la génération de photons de scintillation est ainsi estimé correctement.

Connaissant l'énergie d'entrée et de sortie des particules incidentes, on peut calculer l'énergie déposée et le nombre de photons de scintillation générés. À l'aide d'un suivi particule par particule, il est possible de connaître le nombre de photons de scintillation par particule incidente, via l'utilisation de la carte PTRAC du code de calcul MCNP6.2. Pour cela, un paquet de 100 fibres scintillantes, correspondant à ce qui est utilisé dans le protocole expérimental, est simulé. Des sources isotropes de ^{36}Cl et de $^{90}\text{Sr}-^{90}\text{Y}$ sont simulées à un centimètre de distance du détecteur correspondant aux sources utilisées pour les acquisitions. Enfin, pour limiter la taille et réduire le temps de traitement total, seuls les histoires conduisant à une interaction avec le paquet de fibres sont récupérées grâce à un filtre. Ce filtre est un argument à rajouter dans la carte PTRAC utilisé. L'algorithme de traitement a été développé avec MatLab dans sa version R2017a, et permet d'enregistrer les énergies d'entrée et de sortie des particules incidentes, permettant ainsi de connaître les pouvoirs d'arrêts à utiliser afin de calculer le nombre de photons de scintillation générés. Il n'est pas nécessaire de connaître le parcours exact dans la fibre, seulement l'énergie d'entrée, l'énergie de sortie et une base de données de pouvoirs d'arrêt.

3.3.2 Luminescence des fibres scintillantes

La scintillation organique a été présentée dans le chapitre 1, et a permis de mettre en avant l'existence de phénomènes d'extinction lumineuse, ou *quenching*. Ces phénomènes ont été formalisé par Birks, dont l'équation est présentée dans le chapitre 1, équation 16. Pour rappel, cette dernière décrit l'évolution de la luminescence linéaire en fonction du pouvoir d'arrêt de la particule ionisante et de facteurs empiriques. Afin de pouvoir obtenir le nombre de photons de scintillation générés par une particule ionisante, il faut intégrer l'équation sur le parcours de la particule dans le cœur de fibre, que l'on notera R . Cependant, la résolution analytique nécessite le développement du terme $\left| \frac{dE}{dr} (E_r) \right|$, donné par la loi de Bethe, dont la fonction est difficilement intégrable. Or, il existe des bases de données numériques des valeurs de $\left| \frac{dE}{dr} (E_r) \right|$, ce qui permet une résolution numérique de l'intégrale.

La méthode d'intégration a été construite autour du calcul de l'intervalle dr qui est limité par la base de données choisies du pouvoir d'arrêt. En effet, cette dernière est tirée de la base de données ESTAR du NIST [20], et possède un pas en énergie minimal d'un keV. Ainsi, lors d'une étape quelconque de l'intégration, si l'intervalle dr est pris de telle sorte que la différence en énergie de l'électron, avant et après dr , soit inférieure à un keV, l'électron ne perdrait plus d'énergie. L'algorithme serait coincé dans une boucle, avec une énergie de l'électron constante bien que son parcours se poursuive. Pour cela, l'intervalle dr est recalculé pour chaque étape de l'intégration numérique, et assure qu'après chaque étape, l'électron a perdu un keV (ou 0,001 MeV). Cette condition est exprimée par l'équation 19.

$$dr = \frac{0,001}{\left| \frac{dE}{dr}(E_r) \right|} \quad (19)$$

où dr est l'intervalle d'intégration en cm, pour un pouvoir d'arrêt exprimé en MeV.cm⁻¹. L'intégration numérique se présente alors sous la forme d'une somme décrite par l'équation 20.

$$L = \int \frac{dL}{dr}(E_r) = \sum_{i=1}^{i_{max}} \left(\frac{S \cdot \left| \frac{dE}{dr}(E_r) \right|_i}{1 + k \cdot B \cdot \left| \frac{dE}{dr}(E_r) \right|_i} \times dr_i \right) \quad (20)$$

où $\left| \frac{dE}{dr}(E_r) \right|_i$ est le pouvoir d'arrêt électronique à l'étape d'intégration i , pour un intervalle dr_i . La méthode permet ainsi de calculer le nombre de photons de scintillation pour un parcours, lorsque le pouvoir d'arrêt de la particule incidente à chaque étape d'intégration est connu. Afin d'obtenir cette information, on utilise une des fonctionnalités du code MCNP6.2, qui permet d'extraire les différentes étapes du parcours d'une particule simulée, appelé PTRAC. Ainsi, il est possible de connaître l'énergie d'entrée et de sortie des particules, dans le cœur de fibre. Dès lors, il est possible d'utiliser l'équation 20 connaissant les bornes de l'intégrale. Si jamais la particule venait à quitter le cœur de fibre et à y retourner avec une énergie différente, ou diffuser vers une autre fibre, le code est capable d'évaluer l'énergie effectivement déposée. La figure 3-25 schématisé le traitement réalisé.

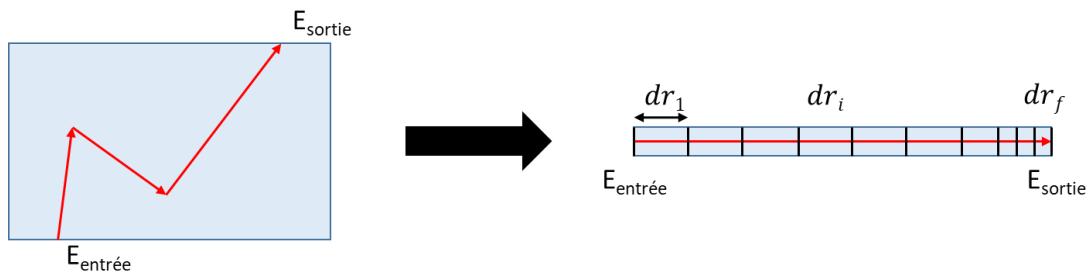


Fig. 3-25. Schéma du découpage du parcours simulé des électrons dans le cœur de fibre scintillante. À gauche est schématisé le parcours d'un électron dans un cœur de fibre, et à droite est schématisé le traitement numérique d'intégration. $E_{\text{entrée}}$ et E_{sortie} correspondent respectivement à l'énergie d'entrée et de sortie de l'électron dans le cœur de fibre, et dr correspond à l'intervalle d'intégration.

L'application de cette méthode permet ainsi de déterminer le nombre attendu de photons de scintillation générés dans les cœurs de fibres. La figure 3-26 présente les résultats de l'application de cette méthode à la simulation d'une source de ^{36}Cl placée à 1 cm du détecteur, et la figure 3-27 présente les résultats de simulation avec une source de ^{90}Sr - ^{90}Y .

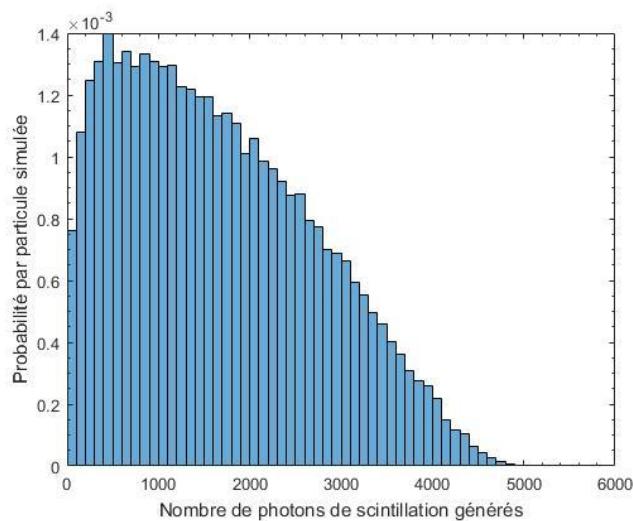


Fig. 3-26. Simulation du nombre de photons de scintillation générés dans le paquet de fibre par particule beta de ^{36}Cl .

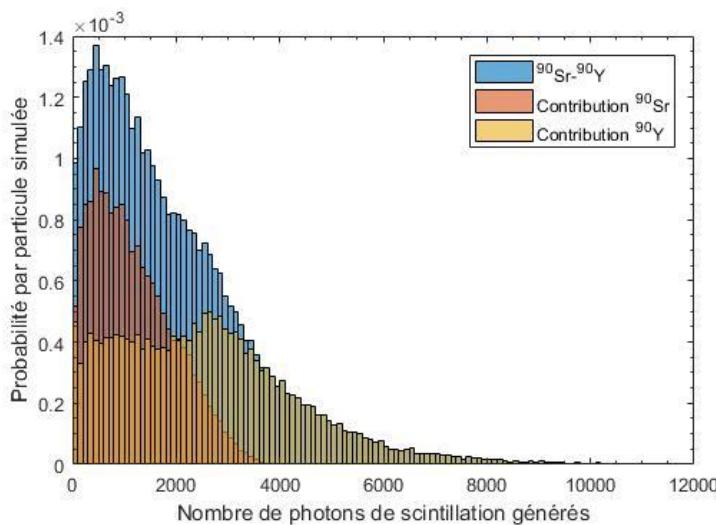


Fig. 3-27. Simulation du nombre de photons de scintillation générés dans le paquet de fibre par particule bêta de ^{90}Sr - ^{90}Y .

3.3.3 Application du modèle théorique

Nous venons de simuler la luminescence dans les cœurs de fibres, à l'aide de la loi de Birks et de simulations MCNP6.2. Ainsi, pour chaque particule simulée, un évènement de scintillation a été généré associé à un nombre de photons de scintillation. Dans la section 3.1. Principe de détection, l'ensemble des paramètres physiques amenant à la génération d'un signal, depuis un évènement de scintillation, ont été décrits. Nous allons maintenant appliquer le modèle théorique aux données simulées.

- Efficacité de piégeage et auto-absorption

L'efficacité de piégeage s'applique comme un facteur multiplicatif désignant le rapport des photons effectivement transmis dans la fibre, sur le nombre total de photons générés. La valeur numérique est estimée à 13%. Tout comme l'efficacité de piégeage, l'auto-absorption a été prise comme un facteur multiplicatif sur le nombre de photons de scintillation transmis. Sa valeur a été calculée et vaut 0,78. Les figures 3-28 et 3-29 présentent les résultats de l'application du facteur de l'efficacité de piégeage et de l'auto-absorption sur les histogrammes du nombre de photons de scintillation générés.

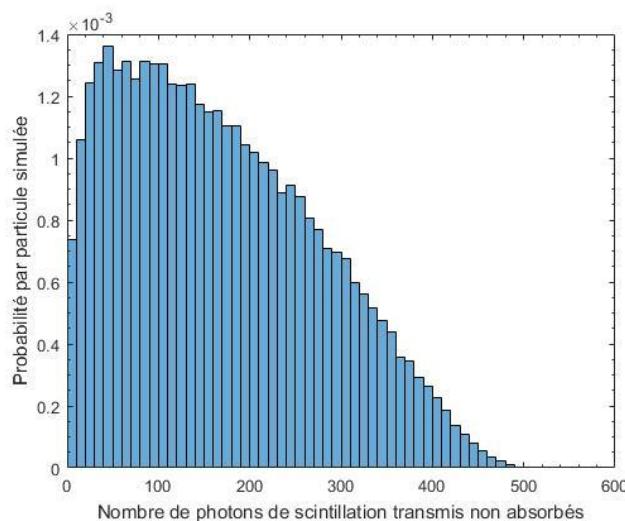


Fig. 3-28. Simulation du nombre de photons de scintillation générés, transmis et auto-absorbés dans le paquet de fibres par particule beta de ^{36}Cl .

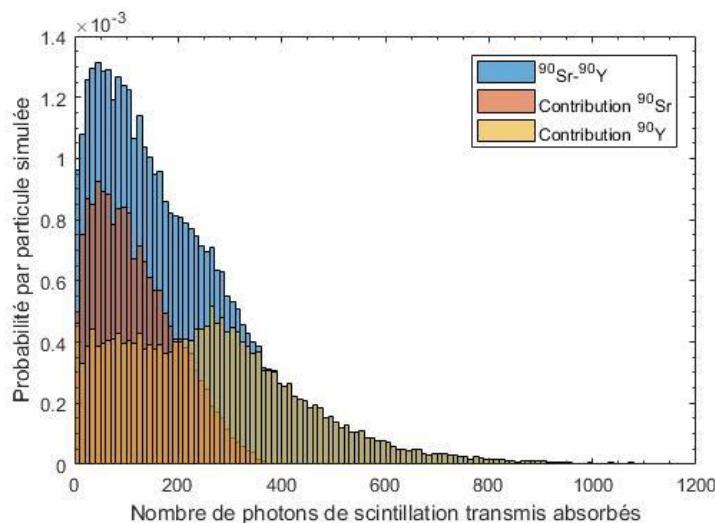


Fig. 3-29. Simulation du nombre de photons de scintillation générés, transmis et auto-absorbés dans le paquet de fibres par particule beta de $^{90}\text{Sr-90Y}$.

L'impact de l'interface fibre-PMT a été considéré comme négligeable dans la section 3.1.3 de ce chapitre.

- Photocathode

La photocathode possède une efficacité quantique maximale estimée à 30% des photons incidents, quand ceux-ci se trouvent à la longueur d'onde correspondante. La valeur moyenne du nombre de photoélectrons émis a été calculée à partir du nombre de photons de scintillation atteignant la photocathode. Une loi de Poisson a été appliquée à ces valeurs, correspondant à la distribution associée à l'émission de photoélectrons. Les figures 3-30 et 3-31 présentent les résultats.

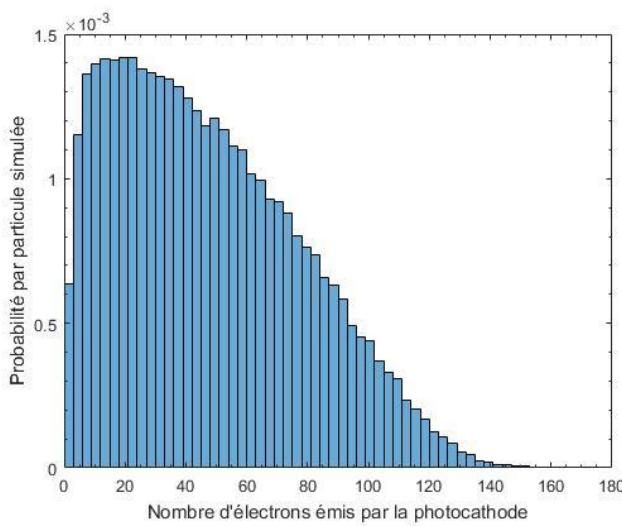


Fig. 3-30. Simulation du nombre de photoélectrons émis par la photocathode par particule bêta de ^{36}Cl .

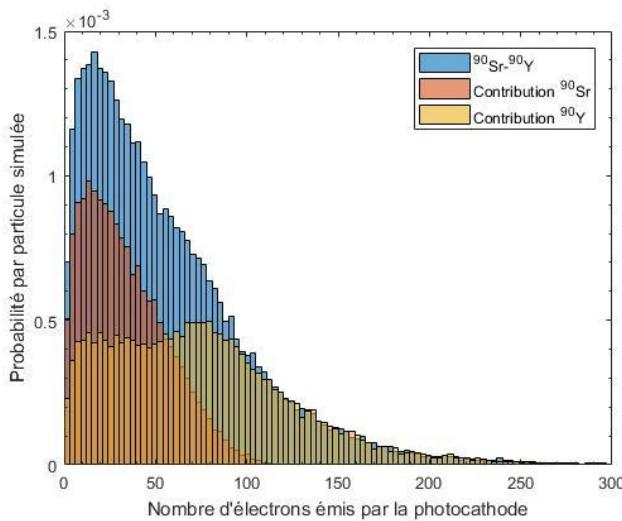


Fig. 3-31. Simulation du nombre de photoélectrons émis par la photocathode par particule bêta de $^{90}\text{Sr}-^{90}\text{Y}$.

- Amplification par le photomultiplicateur

L'amplification a été prise en compte au travers d'une loi Normale de paramètres μ et σ déterminés à l'aide de la tension appliquée aux PMT et des données d'acquisition expérimentales. Le paramètre μ est défini comme étant le facteur de conversion moyen du nombre de photoélectrons émis par la photocathode en la charge résultante de l'impulsion. Le paramètre σ correspond à l'écart-type de la distribution associée, c'est-à-dire la prise en compte de variations dans l'amplification. La tension appliquée au PMT permet de déterminer le gain, et ce dernier est lié à la valeur moyenne de la distribution gaussienne μ selon l'équation 17. La valeur du gain lue sur la figure 3-12 est de 5.10^5 pour une tension d'alimentation de 850 V. L'application numérique de Q_1 donne une valeur de 0,08 pC par photoélectron amplifié. La valeur de σ est déterminée à l'aide des données d'acquisition du

paquet de fibres d'une source de ^{36}Cl . En effet, un ajustement gaussien des données coïncide avec un facteur R^2 de 0,998. Les valeurs numériques utilisées pour l'ajustement sont $\sigma = 0,8$ pC et $\mu = 2,2$ pC. La figure 3-32 présente l'ajustement réalisé.

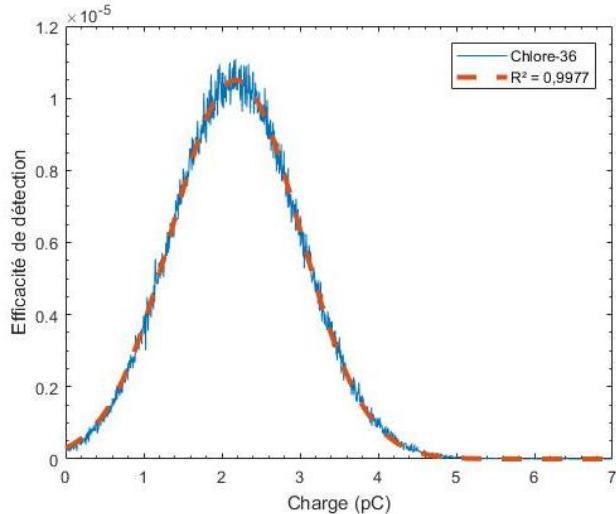


Fig. 3-32. Ajustement gaussien aux données d'acquisition du ^{36}Cl .

L'hypothèse ainsi réalisée dans le modèle numérique est que les variations de μ et σ selon le nombre de photoélectrons amplifiés sont négligeables, et peuvent être modélisées avec une unique loi Normale de paramètres fixes. Ces paramètres seraient ainsi applicables à toute source radioactive testée.

L'application de ces paramètres au modèle numérique donne les figures 3-33 et 3-34 suivantes.

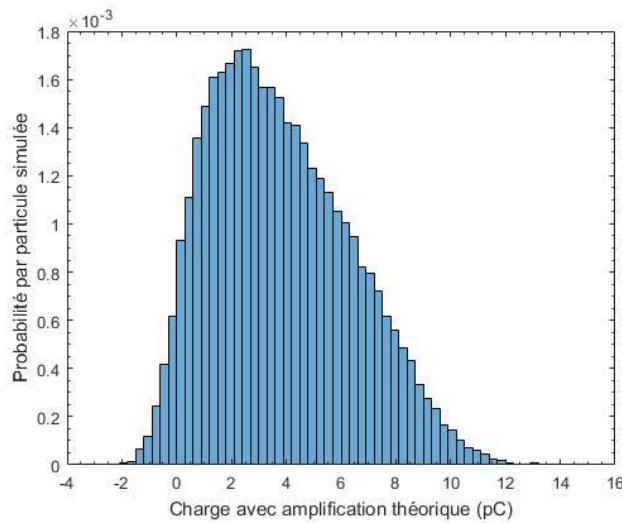


Fig. 3-33. Spectre en charge des impulsions simulées par particule de ^{36}Cl , amplification théorique.

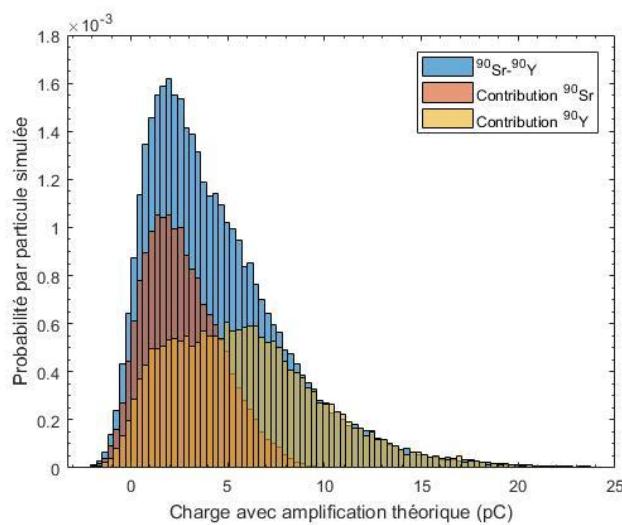


Fig. 3-34. Spectre en charge des impulsions simulées par particule de ^{90}Sr - ^{90}Y , amplification théorique.

On remarque tout d'abord que des valeurs négatives apparaissent sur les spectres. Cela est dû à la loi de distribution Normale utilisée, qui permet d'obtenir des valeurs négatives. Ces valeurs n'ont pas de signification physique et devront être corrigées. Pour cela, nous prendrons en compte un effet de seuil de détection, seuil en dessous duquel les impulsions ne seront pas prises en compte. Les figures possèdent aussi une charge maximale dépassant celles des acquisitions expérimentales. Notre modèle numérique surestimerait ainsi la charge totale générée. Cette surestimation pourrait provenir d'une surestimation de l'efficacité quantique, car nous avons pris une unique longueur d'onde correspondant au maximum d'efficacité quantique. De plus, la valeur du gain lue peut présenter des imprécisions, en raison de la précision de la courbe d'étalonnage tension/gain du PMt, le gain réel pouvant de plus différer des courbes d'étalonnage fournies par le constructeur. Ainsi, on corrigera manuellement la valeur du gain pour recaler la charge maximale. Des facteurs de correction similaires, pour le ^{36}Cl et le ^{90}Sr - ^{90}Y , permettront de valider le raisonnement et donc la méthode. Le facteur de correction sur le gain a été calculé comme étant le rapport entre la charge simulée et la charge attendue expérimentalement. Les valeurs obtenues sont de 0,35 (rapport entre 7 pC expérimental et 20 pC théorique) pour le ^{90}Sr - ^{90}Y et de 0,33 pour le ^{36}Cl (rapport entre 4 pC expérimental et 12 pC théorique). En prenant une valeur moyenne de 0,34, la valeur de Q_1 corrigée est de 0,027 pC. En appliquant cette valeur à l'équation 17, on trouve une valeur du gain corrigée de $1,70 \cdot 10^5$. Les spectres simulés avec charge corrigée sont présentés sur les figures 3-35 et 3-36.

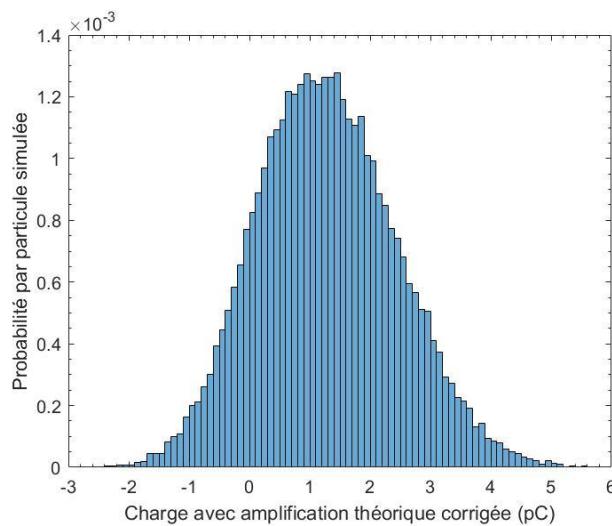


Fig. 3-35. Simulation du spectre en charge des impulsions avec correction du gain par particule de ^{36}Cl simulée.

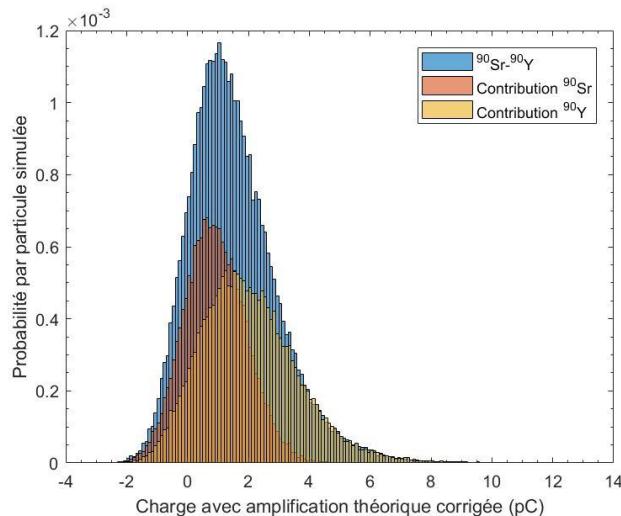


Fig. 3-36. Simulation du spectre en charge des impulsions avec correction du gain par particule de ^{90}Sr - ^{90}Y simulée.

- Seuil de détection

Afin de corriger le problème des valeurs négatives, un seuil de détection va être simulé. Une des pistes privilégiées pour modéliser ce phénomène repose sur une fonction de réponse en fonction d'une valeur de seuil, définie comme la charge correspondant à l'amplitude maximale atteinte, soit 2,2 pC pour le ^{36}Cl et 2,4 pC pour le ^{90}Sr - ^{90}Y . La fonction de réponse est calculée avec un algorithme codé sous MatLab® en utilisant une méthode Monte Carlo. Celle-ci est basée sur une condition de détection si la charge testée est supérieure au seuil après tirage dans une loi Normale. Les paramètres de la loi Normale sont ceux déterminés précédemment. La fonction de réponse est présentée sur la figure 3-37.

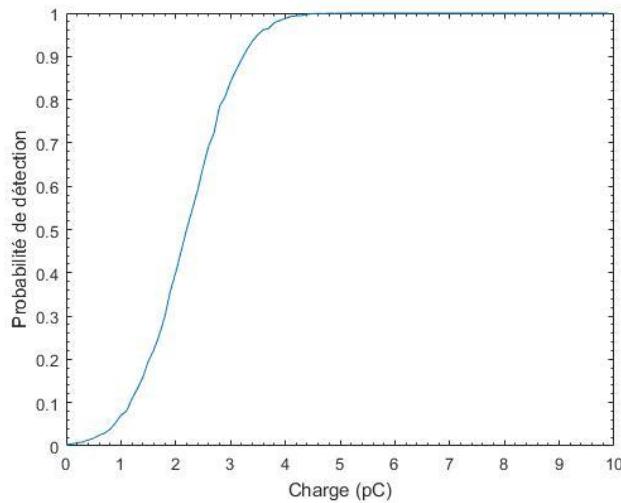


Fig. 3-37. Fonction de réponse associée au seuil de détection à 2,2 pC sous une distribution Normale.

L'application de la fonction de réponse aux données des figures 3-35 et 3-36 a pour résultat les figures suivantes.

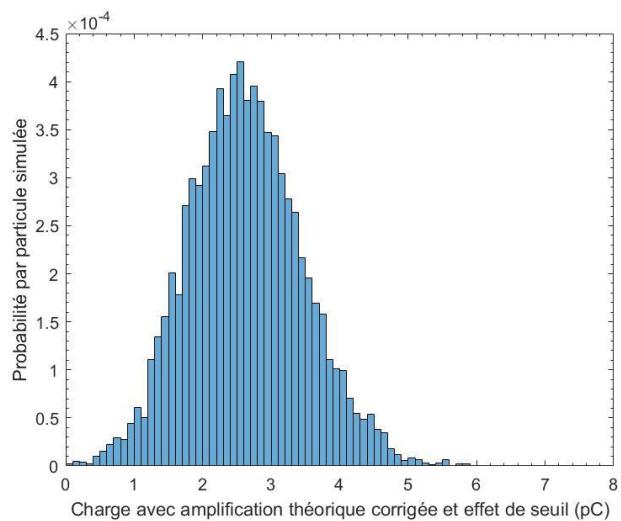


Fig. 3-38. Simulation du spectre en charge des impulsions, avec correction du gain et prise en compte de l'effet de seuil, par particule de ^{36}Cl simulée.

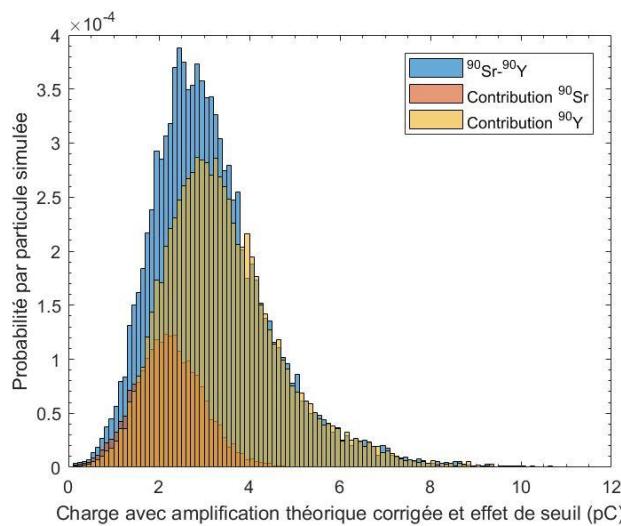


Fig. 3-39. Simulation du spectre en charge des impulsions, avec correction du gain et prise en compte de l'effet de seuil, par particule de ^{90}Sr - ^{90}Y simulée.

Les résultats possèdent ainsi la forme attendue en comparaison avec les données expérimentales, c'est-à-dire une distribution gaussienne pour les données du ^{36}Cl , et une distribution gaussienne avec une traîne sur la partie droite de la distribution pour les données du ^{90}Sr - ^{90}Y . Une comparaison plus poussée avec les données expérimentales est maintenant présentée.

3.3.4 Comparaison avec les données expérimentales

Pour pouvoir comparer les données simulées avec les données expérimentales, il faut s'assurer que l'échantillonnage des deux distributions est le même. Cela permettra de comparer à la fois la forme de la distribution et les intensités. Les données simulées sont ré-échantillonnées de manière mathématique, par regroupement des classes proches pour former des classes correspondant aux données expérimentales. Les données simulées correspondent à des probabilités de détection par particule émise, soit des efficacités de détection. En effet, l'efficacité de détection est définie comme le rapport du nombre de particules détectées par le nombre de particules émises. Les figures 3-40 et 3-41 présentent les résultats de comparaison.

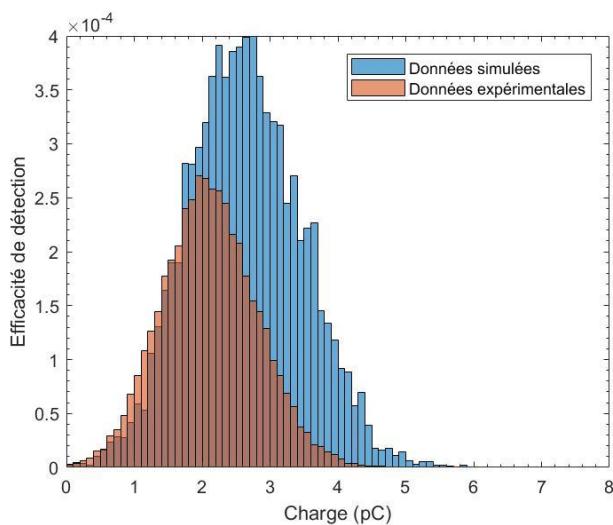


Fig. 3-40. Comparaison des données expérimentales (orange) et simulées (bleu) pour une source de ^{36}Cl .

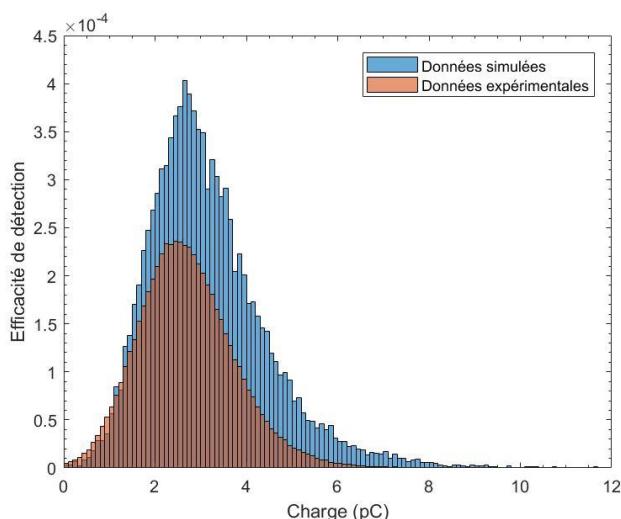


Fig. 3-41. Comparaison des données expérimentales (orange) et simulées (bleu) pour une source de ^{90}Sr - ^{90}Y .

On constate ainsi le désaccord entre les données expérimentales et simulées. La forme globale est respectée mais la charge maximale est plus importante pour les données simulées. L'intensité des données simulées est aussi plus importante. L'hypothèse avancée est que le gain est supérieur à ce qu'il doit être. Afin de l'évaluer plus précisément, le gain sera calculé à partir d'une comparaison entre expérience et simulation, et en s'appuyant sur un calcul de statistique évaluant l'accord entre les données. Pour cela, une statistique représentant la plus grande différence entre les données expérimentales cumulées et les données simulées cumulées sera calculée. Les fonctions cumulatives F_c des deux distributions sont construites selon l'équation 21 suivante :

$$F_{c \text{ simulation}}(i) = \sum_{j=1}^i m_{\text{simulation}}(j) \quad (21)$$

$$F_{c \text{ expérimental}}(i) = \sum_{j=1}^i m_{\text{expérimental}}(j)$$

La statistique, notée p , est calculée selon l'équation 22.

$$p = \max(F_{c \text{ simulation}}(i) - F_{c \text{ expérimental}}(i)) \quad (22)$$

La statistique sera employée dans une comparaison relative. En effet, un ensemble de valeurs de gain seront utilisées pour déterminer des spectres de simulation, qui serviront à calculer les statistiques associées. Par définition, la plus petite indiquera le plus faible écart entre les deux distributions. L'implémentation algorithmique consiste en une boucle, qui permet à chaque itération le calcul des données simulées et de la statistique associée. Au final, le gain ayant entraîné la statistique la plus faible est retenu. Les résultats de cette méthode permettent de construire les figures 3-42 et 3-43 suivantes.

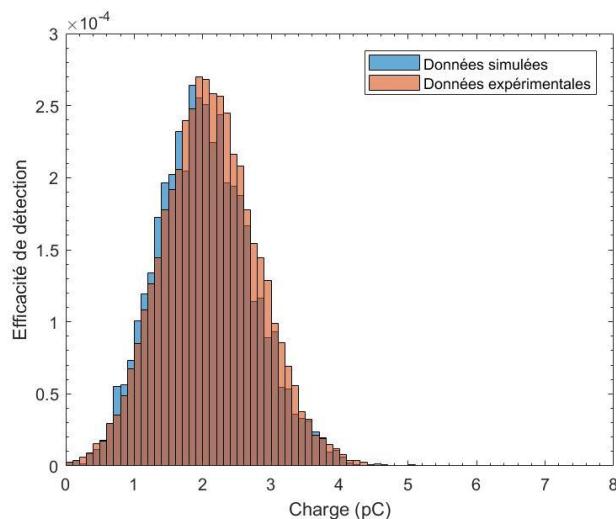


Fig. 3-42. Comparaison des données expérimentales (orange) et simulées (bleu) pour une source de ^{36}Cl , pour une amplification simulée optimisée. Gain calculé à $1,19 \cdot 10^5$.

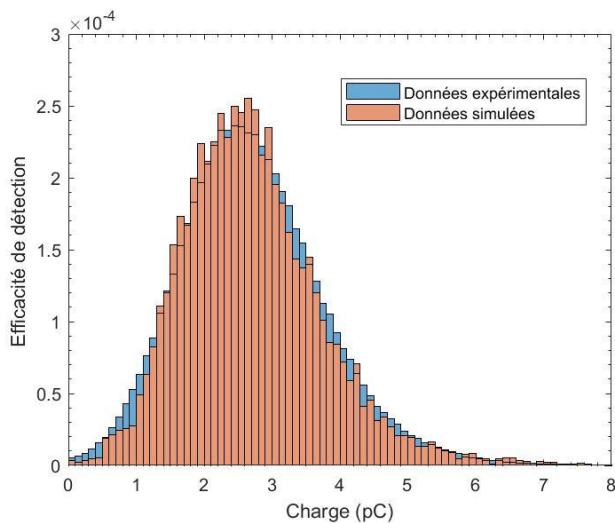


Fig. 3-43. Comparaison des données expérimentales (orange) et simulées (bleu) pour une source de ^{90}Sr - ^{90}Y , pour une amplification simulée optimisée. Gain calculé à $1,19 \cdot 10^5$.

À l'aide de la méthode présentée, nous avons obtenu un spectre simulé étant en accord, à la fois sur la forme et l'intensité, avec les données expérimentales. Ces résultats ont été obtenus pour les deux sources bêta. Le gain trouvé pour chaque source bêta est le même, bien qu'ils aient été calculés individuellement. Ainsi, cela nous conforte sur la validité de la méthode employée. Le protocole a ainsi été employé pour les sources de ^{60}Co et de ^{137}Cs , avec une valeur de seuil à 2,0 et 2,2 pC respectivement lu sur la figure 3-22. Les figures 3-44 et 3-45 présentent le résultat du modèle numérique comparé aux données expérimentales, où seul le signal gamma a été simulé.

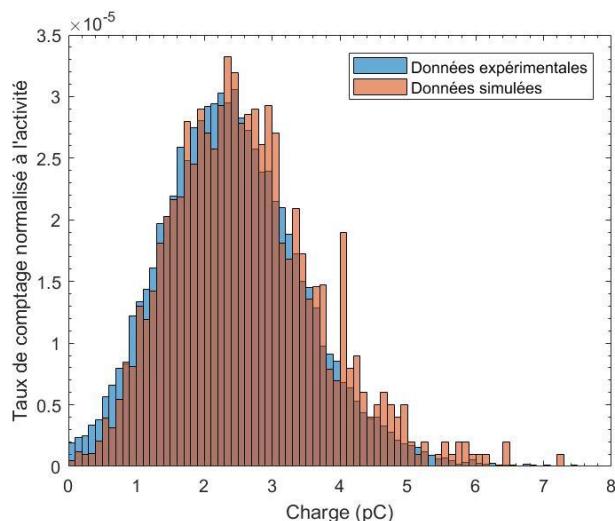


Fig. 3-44. Comparaison des données expérimentales (orange) et simulées (bleu) pour une source de ^{60}Co , pour une amplification simulée optimisée. Gain calculé à $1,50 \cdot 10^5$.

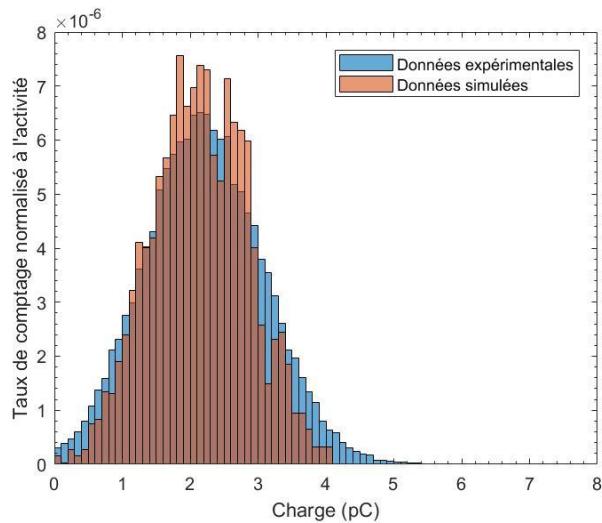


Fig. 3-45. Comparaison des données expérimentales (orange) et simulées (bleu) pour une source de ^{137}Cs , pour une amplification simulée optimisée. Gain calculé à $1,50 \cdot 10^5$.

On constate de nouveau un accord en intensité et forme avec les données expérimentales respectives. Cependant, on note que les variations statistiques associées au modèle numérique sont plus importantes : cela est dû au plus faible taux de comptage et au même nombre de particules simulées qu'avec les sources bêta. On constate aussi que le gain calculé est supérieur à celui des sources bêta.

3.4 Conclusions

En conclusion, le modèle numérique est capable de reproduire les spectres de détection bêta et gamma du détecteur basé sur les fibres scintillantes. Les données simulées coïncident aux données expérimentales, à la fois en intensité et en forme. Des axes d'améliorations du modèle se dégagent. En effet, certains facteurs utilisés dans le modèle proviennent des données expérimentales que l'on cherche à simuler : à titre d'exemple, la valeur de l'écart-type de la distribution ou la valeur de seuil. Afin d'améliorer la robustesse du modèle, la détermination de ces paramètres par des mesures dédiées, comme par exemple l'utilisation de lasers pulsés, permettrait de fixer ces paramètres pour chaque acquisition. On note que les rayonnements gamma sont détectés et génèrent des spectres de détection similaires aux spectres de détection bêta. Afin de pouvoir discriminer ces deux signatures, nous introduirons dans le chapitre 4 une méthode de discrimination bêta/bêta et bêta/gamma, à l'aide de plusieurs paquets de fibres possédant chacun une épaisseur de gaine différente

- [1] J. D. Weiss, "Trapping efficiency of fluorescent optical fibers," *Opt. Eng.*, vol. 54, no. 2, p. 027101, Feb. 2015, doi: 10.1117/1.OE.54.2.027101.
- [2] R. Gälätuş, P. Faragó, P. Miluski, and J.-A. Valles, "Distributed fluorescent optical fiber proximity sensor: Towards a proof of concept," *Spectrochim. Acta Part A Mol. Biomol. Spectrosc.*, vol. 198, pp. 7–18, Jun. 2018, doi: 10.1016/j.saa.2018.02.044.
- [3] Saint-Gobain, "Scintillating Optical Fibres," *Product Datasheet*. <https://www.crystals.saint-gobain.com/sites/imdf.crystals.com/files/documents/fibre-product-sheet.pdf>.
- [4] C. Whittaker, C. A. G. Kalnins, D. Ottaway, N. A. Spooner, and H. Ebendorff-Heidepriem, "Transmission loss measurements of plastic scintillating optical fibres," *Opt. Mater. Express*, vol. 9, no. 1, p. 1, 2019, doi: 10.1364/ome.9.000001.
- [5] RP Photonics, "Fresnel Equations," *Encyclopedia*. https://www.rp-photonics.com/fresnel_equations.html.
- [6] Eljen Technologies, "Silicon Grease EJ-550, EJ-552," *Accessories*. <https://eljentechnology.com/24-products/accessories>.
- [7] Hamamatsu, "Photomultiplier tubes – Photomultiplier tubes and related products," *Technical Note*, 2016. <https://www.hamamatsu.com/resources/pdf/etd/PMT TPMZ0002E.pdf> (accessed Feb. 11, 2020).
- [8] G. F. Knoll, *Radiation detection and measurement*, 4th ed. 2010.
- [9] G. R. Gilmore, *Practical Gamma-Ray Spectrometry*. Chichester, UK: John Wiley & Sons, Ltd, 2008.
- [10] E. H. Bellamy *et al.*, "Absolute calibration and monitoring of a spectrometric channel using a photomultiplier," *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. A Accel. Spectrometers, Detect. Assoc. Equip.*, vol. 339, no. 3, pp. 468–476, Feb. 1994, doi: 10.1016/0168-9002(94)90183-X.
- [11] R. Coulon, M. Becht, J. Dumazert, Q. Lecomte, and S. Garti, "Simulation of Scintillation Signal as a Help in Phoswich Systems Conception," in *2017 IEEE Nuclear Science Symposium and Medical Imaging Conference (NSS/MIC)*, Oct. 2017, pp. 1–3, doi: 10.1109/NSSMIC.2017.8533083.
- [12] I. Fedorko, S. Tokar, and I. Chirikov-Zorin, "Simulation of the photomultiplier response," *ATLAS Note, ATL-TILECAL-99-012, Cern*, 1999.
- [13] C. F. G. Delaney and P. W. Walton, "Single electron spectra in photomultipliers," *Nucl. Instruments Methods*, vol. 25, pp. 353–356, Dec. 1963, doi: 10.1016/0029-554X(63)90209-X.
- [14] ET Enterprises, "9205B series data sheet," *Product Datasheet*. http://et-enterprises.com/images/data_sheets/9205B.pdf.

- [15] R. Saldanha, L. Grandi, Y. Guardincerri, and T. Wester, “Model independent approach to the single photoelectron calibration of photomultiplier tubes,” *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. A Accel. Spectrometers, Detect. Assoc. Equip.*, vol. 863, pp. 35–46, Aug. 2017, doi: 10.1016/j.nima.2017.02.086.
- [16] CAEN, “DT5743,” *Product Datasheet*. <https://www.caen.it/products/dt5743/>.
- [17] M. J. Berger *et al.*, “NIST Standard Reference Database 8 (XGAM),” *NIST, PML, Radiation Physics Division*, 1998. <https://www.nist.gov/pml/xcom-photon-cross-sections-database>.
- [18] C. J. Werner *et al.*, “MCNP Version 6.2 Release Notes,” Los Alamos, NM (United States), Feb. 2018. doi: 10.2172/1419730.
- [19] X-5 Monte Carlo Team, “MCNP - Version 5, Vol. I: Overview and Theory,” *LA-UR-03-1987*, 2003.
- [20] M. J. Berger, J. . Coursey, M. . Zucker, and J. Chang, “ESTAR, PSTAR, and ASTAR: Computer Programs for Calculating Stopping-Power and Range Tables for Electrons, Protons, and Helium Ions (version 1.2.3),” *National Institute of Standards and Technology, Gaithersburg, MD*. <http://physics.nist.gov/Star> (accessed Jul. 04, 2021).
- [21] M. M. Bé, C. Dulieu, and V. Chisté, “NUCLÉIDE-LARA - Bibliothèque des émissions alpha, X et gamma classées par ordre d'énergie croissante,” *Rapp. CEA-R-6201. CEA - LNHB F-91191 Gifsur-Yvette Cedex*, 2008, [Online]. Available: <http://www.nucleide.org/DDEP> WG/Nucleide-LARA 2008.pdf.
- [22] International Atomic Energy Agency, “International Atomic Energy Agency LiveChart.” <https://www-nds.iaea.org/relnsd/vcharthtml/VChartHTML.html>.

Chapitre 4 – Discrimination bêta/gamma par utilisation de gaines différentes

Dans le chapitre précédent, nous avons présenté un dispositif expérimental permettant de caractériser la mesure de sources bêta et gamma à l'aide de fibres scintillantes. Un modèle numérique a été développé en parallèle. Nous avons remarqué que les mesures gamma et bêta présentaient des similarités dans la forme des spectres mesurés. Ainsi, il est impossible de différencier les deux contributions et donc de les caractériser individuellement. Afin de pallier à ce problème, nous nous sommes proposés de développer une méthode de mesure basée sur des fibres scintillantes ayant des diamètres de cœurs et des épaisseurs de gaines différentes. Ces différentes propriétés des fibres permettraient ainsi de créer un contraste entre les particules bêta en fonction de leur énergie, ainsi que de séparer les signatures bêta et gamma. Seuls les résultats obtenus avec différentes épaisseurs de gaines seront présentés dans ce manuscrit. Ce chapitre est dédié à la présentation de ce principe de mesure, à sa démonstration de faisabilité, et à la mise en œuvre d'une première application de discrimination bêta/gamma.

4.1 Démonstration du principe par simulation Monte-Carlo

4.1.1 Simulation MCNP6

En utilisant le code de calcul MCNP6.2, nous avons simulé une fibre scintillante en considérant deux épaisseurs de gaine différentes. Le modèle de simulation est basé sur la fibre BCF-10 présentée au cours du chapitre précédent. Cette dernière possède notamment un diamètre de cœur de 250 µm en polystyrène ($\rho = 1,05$) et une épaisseur de gaine de 7,5 µm en PMMA ($\rho = 1,2 \text{ g.cm}^{-3}$). La deuxième épaisseur de gaine considérée est de 500 µm, également en PMMA. La figure 4-1 présente un schéma des deux fibres simulées.

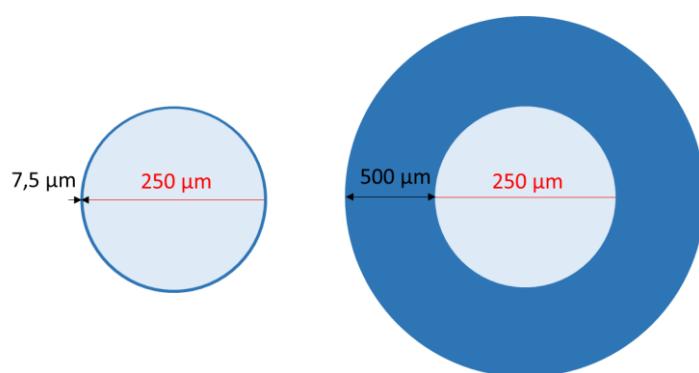


Fig. 4-1. Schéma des deux fibres scintillantes simulées.

Nous avons simulé une source de ^{90}Sr et une source de ^{90}Y , toutes deux sources émettrices bêta pures. Ces sources ont été choisies pour leurs différences significatives au niveau de leurs spectres d'émission respectifs. En effet, l'énergie moyenne des particules bêta émises par le ^{90}Sr est de 196 keV contre 926 keV pour l' ^{90}Y . L'énergie maximale émise par le ^{90}Sr est quant à elle de 546 keV contre 2,28 MeV pour l' ^{90}Y . La simulation visait à déterminer le spectre de l'énergie déposée dans le cœur de fibre par particule source à l'aide d'une *tally* F8 dans MCNP6. La figure 4-2 présente les résultats de ces simulations.

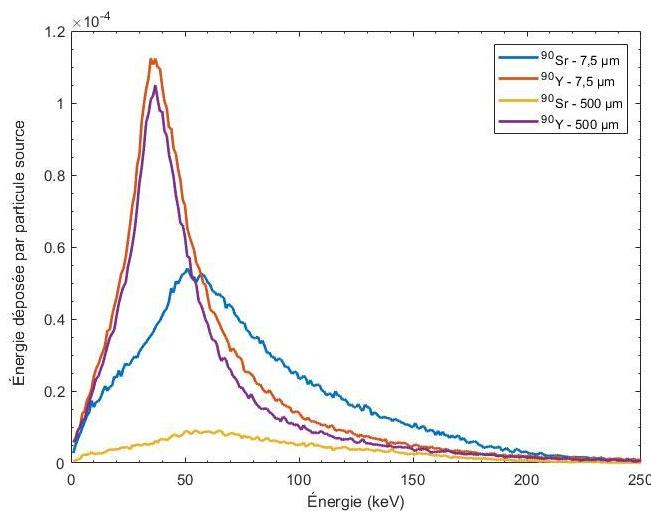


Fig. 4-2. Énergie déposée par particule source dans le cœur de fibre, pour des sources simulées de ^{90}Sr et ^{90}Y et pour deux épaisseurs de gaine différentes.

Ces résultats illustrent l'influence de l'épaisseur de la gaine sur la détection des particules bêta. Le spectre de l' ^{90}Y est atténué de 15% sur l'intégrale du spectre, et de 9% sur la valeur maximale du pic, lorsque l'épaisseur passe de 7,5 à 500 μm . Comparativement, le spectre du ^{90}Sr est atténué de 81% sur la somme du spectre, et de 82% sur la valeur maximale du pic. Les données simulées avec une source d' ^{90}Y montrent que le pic situé à 40 keV est conservé malgré l'épaisseur plus importante de la gaine. On explique la présence de ce pic par un dépôt partiel de l'énergie des particules bêta de haute énergie. En effet, le pouvoir d'arrêt des électrons entre 500 keV et 2 MeV est constant et égal à 2 MeV.cm^{-1} . La figure 4-3 présente le pouvoir d'arrêt des électrons dans le polystyrène, tiré de la base de données ESTAR [1].

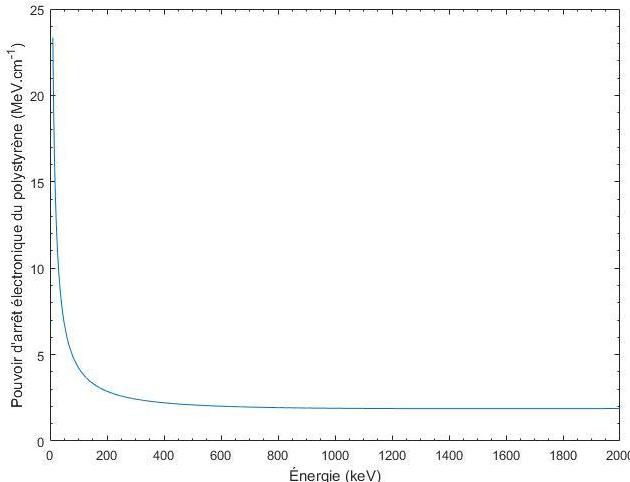


Fig. 4-3. Pouvoir d'arrêt électronique du polystyrène ($\rho = 1,05$) en fonction de l'énergie des électrons [1].

Le calcul de l'énergie déposée dans 250 μm de polystyrène donne une valeur de 50 keV lorsque l'énergie des électrons est comprise entre 500 keV et 2 MeV. Cette valeur est cohérente avec les résultats des simulations effectuées et prouve que le pic est bien dû à des dépôts d'énergie partiels des particules bêta de hautes énergies, supérieures à 500 keV. Les dépôts d'énergie supérieurs à 40 keV sont expliqués par des trajectoires dans le cœur de fibre supérieures à 250 μm , ce qui est attendu pour des parcours non perpendiculaires avec le diamètre de la fibre, mais aussi pour des diffusions à l'intérieur du cœur de la fibre. De la même manière, nous pouvons expliquer la faible influence de l'épaisseur de la gaine par un faible dépôt en énergie dans cette dernière. Le calcul du dépôt d'énergie dans la gaine par des électrons, dont l'énergie est comprise entre 500 keV et 2 MeV, est de 1 keV dans 7,5 μm de PMMA et de 75 keV dans 500 μm de PMMA. Ainsi, même si une particule bêta de 2 MeV perd 75 keV dans la gaine, son pouvoir d'arrêt reste inchangé et elle déposera donc la même énergie dans le cœur de fibre, par rapport à une gaine plus fine. Dès lors, les spectres mesurés résultant de l'émission bêta de l' ^{90}Y seront similaires, que la gaine présente une épaisseur de 7,5 μm ou de 500 μm .

À l'inverse, le signal du ^{90}Sr décroît d'un facteur cinq environ. Cette décroissance a pour origine l'épaisseur plus importante de la gaine. D'après la figure 4-3, on remarque que le pouvoir d'arrêt électronique du polystyrène s'accroît de manière exponentielle en dessous de 500 keV, énergie qui correspond approximativement à l'énergie maximale des bêta émis par le ^{90}Sr . Ce phénomène est similaire en forme et intensité pour le PMMA. Comme le spectre d'émission du ^{90}Sr s'étend de 0 à 546 keV, on s'attend à ce que la gaine affecte toutes les particules bêta émises de manière non négligeable. Par exemple, la particule bêta d'énergie moyenne émise par le ^{90}Sr , soit 196 keV, déposera 2 keV dans la gaine de 7,5 μm et ne traversera pas la gaine de 500 μm . Dès lors, le spectre d'acquisition pour une gaine de 7,5 μm sera différent du spectre d'acquisition pour une gaine de 500 μm . En effet, les particules bêta

ayant une énergie trop faible seront arrêtées, et les particules bêta possédant une énergie suffisante pour traverser la gaine induiront un dépôt en énergie différent dans le cœur de fibre.

Nous pouvons en conclure qu'un contraste a été mis en évidence, avec une influence plus importante sur l'émetteur bêta de moyenne énergie que sur celui de haute énergie. Dès lors, en utilisant des fibres scintillantes équipées de gaines d'épaisseurs différentes, nous nous attendons à être en mesure de créer un contraste entre différents spectres d'émission bêta. En utilisant un nombre important de paquets de fibres scintillantes avec des gaines différentes, nous escomptons que le contraste soit suffisamment important pour identifier et quantifier des émetteurs bêta différents. De plus, avec une gaine épaisse, toutes les particules bêta seront arrêtées mais pas les rayonnements gamma. Dès lors, une discrimination bêta/gamma serait possible. Cependant, un tel système de détection nécessite l'utilisation d'algorithmes de déconvolution, afin d'interpréter les mesures et d'exploiter les contrastes créés par l'instrumentation. Dans le cadre de ces travaux de thèse, l'algorithme choisi est le ML-EM (*Maximum Likelihood – Expectation Maximisation*) ou encore vraisemblance maximale - maximisation de l'espérance.

4.1.2 Présentation du code ML-EM

4.1.2.1 Définition du problème

La mesure de la radioactivité d'un échantillon dépend de plusieurs paramètres. Ces paramètres sont : l'intensité d'émission de la particule étudiée ; l'efficacité de détection ; et le temps d'acquisition. À l'aide de ces paramètres, on peut retrouver l'activité de la source, désignée ici par A_{source} . On établit ainsi l'équation suivante :

$$Y = A_{source} I \epsilon t \quad (1)$$

avec Y le nombre d'événements mesurés, A_{source} l'activité du radioélément émettant la particule d'intérêt, I l'intensité d'émission de la particule étudiée par désintégration, ϵ l'efficacité de détection en considérant la particule étudiée, et t le temps d'acquisition. Par cette notation, l'efficacité de détection est définie comme absolue, c'est-à-dire qu'elle combine l'efficacité de détection géométrique, ou angle solide, l'efficacité de détection intrinsèque, ou rendement interne du détecteur, et les effets d'auto-absorption dans le contenant de la source. Afin de s'affranchir du temps, nous pouvons simplifier l'équation précédente en notant $N_{source} = A_{source} I t$, le nombre total de particules émis pendant le temps d'acquisition :

$$Y = N_{source} \epsilon \quad (2)$$

Après le traitement du signal et notamment la conversion du signal analogique en signal numérique, la mesure est séparée en un nombre d'évènements par classe d'énergie, représentée dans un histogramme permettant de générer un spectre de mesure. Soit $i = 1, 2, \dots, B$, l'index de la classe en énergie ou *bin* en anglais. On a donc l'équation suivante :

$$Y_i = N_{source} \epsilon_i \quad (3)$$

L'activité de la source, l'intensité d'émission de la particule étudiée et le temps de mesure ne dépendent pas de la classe d'énergie considérée. L'efficacité de détection, quant à elle, varie selon l'énergie déposée dans le détecteur, et donc, varie selon la classe d'énergie considérée. Si l'on représente l'équation sous une forme matricielle, nous obtenons :

$$\begin{bmatrix} Y_1 \\ Y_2 \\ \dots \\ Y_B \end{bmatrix} = N_{source} \begin{bmatrix} \epsilon_1 \\ \epsilon_2 \\ \dots \\ \epsilon_B \end{bmatrix} \quad (4)$$

En considérant maintenant plusieurs particules étudiées, émises ou non par des sources différentes, notées $j = 1, 2, \dots, S$, on obtient l'équation suivante :

$$\begin{bmatrix} Y_1 \\ Y_2 \\ \dots \\ Y_B \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \epsilon_{1,1} & \epsilon_{1,2} & \dots & \epsilon_{1,S} \\ \epsilon_{2,1} & \epsilon_{2,2} & \dots & \epsilon_{2,S} \\ \dots & \dots & \dots & \dots \\ \epsilon_{B,1} & \epsilon_{B,2} & \dots & \epsilon_{B,S} \end{bmatrix} \times \begin{bmatrix} N_{source 1} \\ N_{source 2} \\ \dots \\ N_{source S} \end{bmatrix} \quad (5)$$

Afin de conserver la notation généralement adoptée pour l'utilisation de l'algorithme ML-EM, on réécrit $\lambda = N_{source}$, et on obtient l'équation suivante :

$$\begin{bmatrix} Y_1 \\ Y_2 \\ \dots \\ Y_B \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \epsilon_{1,1} & \epsilon_{1,2} & \dots & \epsilon_{1,S} \\ \epsilon_{2,1} & \epsilon_{2,2} & \dots & \epsilon_{2,S} \\ \dots & \dots & \dots & \dots \\ \epsilon_{B,1} & \epsilon_{B,2} & \dots & \epsilon_{B,S} \end{bmatrix} \times \begin{bmatrix} \lambda_1 \\ \lambda_2 \\ \dots \\ \lambda_S \end{bmatrix} \quad (6)$$

La matrice λ correspond ainsi au spectre d'émission de la source. On pourra ensuite diviser cette matrice par le temps d'acquisition puis par les intensités d'émission respectives, afin de retrouver les activités mises en jeu pour chacun des isotopes radioactifs. Cette matrice est

inconnue *a priori* dans le problème posé. La matrice Y , contenant les comptages mesurés de chaque classe d'énergie, correspond à l'étape de mesure. La matrice ε des efficacités absolues est obtenue par construction d'une base de données expérimentale ou simulée. Le problème consiste donc à retrouver la matrice λ connaissant déjà les deux autres matrices. Pour cela, on utilise l'algorithme ML-EM.

4.1.2.2 Algorithme de reconstruction matricielle

- Vraisemblance maximale ou *Maximum Likelihood*

Nous voulons déconvoluer le spectre expérimental obtenu en un spectre d'émission λ dont chaque contribution est connue. Il est impossible de retrouver cette matrice directement, car les matrices à notre disposition sont des matrices de données provenant de mesures nucléaires. Elles sont donc soumises aux variations statistiques inhérentes à la nature probabiliste de la désintégration. La matrice d'efficacité de détection construite par code Monte Carlo est intrinsèquement variable, car les codes Monte Carlo sont des codes probabilistes et non déterministes. Ces faibles variations empêchent une reconstruction directe, cette dernière pouvant aboutir à des valeurs irréalistes et/ou négatives, sans signification physique. La méthode présentée ici se base sur le calcul du maximum de la fonction de vraisemblance de la matrice λ . Ainsi, l'estimateur de la matrice λ calculé par cette méthode possède la plus haute probabilité de donner en retour la matrice des comptages expérimentaux. Cette méthode est largement utilisée en imagerie, où elle a déjà fait ses preuves [2]–[5]. Nous allons ici l'appliquer à des mesures de spectrométrie bêta et poser le formalisme mathématique permettant de retrouver les algorithmes de déconvolution. On pose μ le comptage moyen obtenu en utilisant n'importe quelle matrice λ donnée et la matrice ε des efficacités de détection. Ce comptage s'écrit :

$$\mu_i = \sum_{j=1}^S \varepsilon_{i,j} \lambda_j \quad (7)$$

avec S le nombre de sources évaluées. S'agissant de désintégrations radioactives, le comptage est supposé suivre une loi de Poisson dont les évènements sont indépendants les uns des autres. On peut donc écrire la probabilité d'observer la matrice des comptages Y , en connaissant la matrice des comptages moyens μ :

$$p(Y_i|\mu_i) = \frac{\mu_i^{N_{mesi}}}{N_{mesi}!} \cdot e^{-\mu_i} \quad (8)$$

Étant donné que seule la matrice λ est inconnue dans la matrice μ , maximiser la fonction de vraisemblance $L(N_{mes}|\mu)$ revient à maximiser $L(N_{mes}|\lambda)$. Au vu de la nature discrète des variables employées, on peut noter la fonction de vraisemblance comme suit :

$$L(Y|\lambda) = \prod_{i=1}^B p(Y_i|\mu_i) = \prod_{i=1}^B \frac{\mu_i^{Y_i}}{Y_i!} \cdot e^{-\mu_i} \quad (9)$$

Nous avons donc une fonction de vraisemblance qui, une fois maximisée, donne une matrice λ permettant de retrouver la matrice des comptages expérimentaux. On préfèrera cependant maximiser le logarithme népérien de la fonction de vraisemblance et on parlera alors de fonction log-vraisemblance. La recherche du maximum nécessite de calculer une dérivée, et la dérivée de la fonction log-vraisemblance est plus simple à calculer que la dérivée de la fonction de vraisemblance. En effet, la fonction de vraisemblance s'écrit comme une somme de produits tandis que la fonction log-vraisemblance s'écrit comme une somme. La dérivée d'une somme est plus aisée à calculer que la dérivée d'une somme de produits. Cette méthode est possible grâce au fait que le logarithme népérien est monotone croissant, dès lors le maximum de la fonction de vraisemblance sera égal au maximum de la fonction log-vraisemblance. On obtient l'expression suivante :

$$\ln L(Y|\lambda) = \sum_{i=1}^B -\mu_i + Y_i \cdot \ln(\mu_i) - \ln(Y_i!) \quad (10)$$

En remplaçant μ_i par l'expression de l'équation (7), on obtient finalement :

$$\ln L(Y|\lambda) = \sum_{i=1}^B \left(- \sum_{j=1}^S \varepsilon_{i,j} \cdot \lambda_j + Y_i \cdot \ln \left(\sum_{j=1}^S \varepsilon_{i,j} \cdot \lambda_j \right) - \ln(Y_i!) \right) \quad (11)$$

La fonction de log-vraisemblance obtenue n'est pas linéaire, il est impossible de la résoudre telle quelle. On peut alors employer une méthode itérative afin de converger vers une estimation de la matrice λ .

- Espérance-Maximisation (*Expectation Maximisation*)

L'algorithme Espérance-Maximisation est une méthode itérative de calcul de l'estimateur de la matrice λ . Tout d'abord, il faut calculer l'espérance de la fonction log-vraisemblance pour les données mesurées, puis maximiser cette espérance. Afin de pouvoir utiliser cet algorithme, il faut définir une variable complète. Les données constituant les mesures sont les variables qualifiées d'incomplètes. Dans notre cas d'étude, cela correspond à la matrice Y des comptages expérimentaux. Son caractère incomplet vient du fait que pour chaque classe d'énergie, il est impossible de différencier les contributions dues aux différentes sources. On peut donc définir une variable complète $x_{i,j}$, correspondant au comptage dans une classe d'énergie i issu de la source j . On obtient alors la relation suivante :

$$Y_i = \sum_{j=1}^S x_{i,j} \quad (12)$$

On remplace la matrice Y par la matrice x dans la fonction log-vraisemblance :

$$\ln L(x|\lambda) = \sum_{i=1}^B \sum_{j=1}^S (x_{i,j} \cdot \ln(\varepsilon_{i,j} \cdot \lambda_j) - \varepsilon_{i,j} \cdot \lambda_j - \ln(x_{i,j}!)) \quad (13)$$

On écrit ensuite l'espérance de la fonction log-vraisemblance, d'après [2], en fonction des données mesurées :

$$\begin{aligned} E(\ln L(x|\lambda), Y, \lambda^{\wedge(n)}) &= \sum_{i=1}^B \sum_{j=1}^S \left(-\varepsilon_{i,j} \cdot \lambda_j + E(x_{i,j}, Y_i, \lambda^{\wedge(n)}) \cdot \ln(\varepsilon_{i,j} \cdot \lambda_j) \right) \\ E(x_{i,j}, Y_i, \lambda^{\wedge(n)}) &= \frac{\varepsilon_{i,j} \cdot \lambda_j^{\wedge(n)}}{\sum_{k=1}^S \varepsilon_{i,k} \cdot \lambda_k^{\wedge(n)}} \cdot Y_i \end{aligned} \quad (14)$$

avec $\lambda^{\wedge(n)}$ la matrice de l'estimateur de λ à la n -ième itération. L'étape du calcul de l'espérance est terminée, on cherche ensuite à la maximiser. On dérive donc la fonction de l'espérance, que l'on note égale à zéro pour retrouver le maximum. On obtient alors :

$$\frac{\partial}{\partial \lambda_j} E(\ln L(x|\lambda), Y, \lambda^{\wedge(n)}) = - \sum_{i=1}^B \varepsilon_{i,j} + \frac{1}{\lambda_j} \sum_{i=1}^B \frac{\varepsilon_{i,j} \cdot \lambda_j^{\wedge(n)}}{\sum_{k=1}^S \varepsilon_{i,k} \cdot \lambda_k^{\wedge(n)}} \cdot Y_i = 0 \quad (15)$$

On calcule enfin l'estimée de la méthode des moments statistiques d'après [2], et on obtient finalement l'expression itérative de la formule de maximisation de l'espérance :

$$\lambda_j^{(n+1)} = \frac{\lambda_j^{(n)}}{\sum_{i=1}^B \varepsilon_{i,j}} \sum_{i=1}^B \frac{\varepsilon_{i,j} \cdot Y_i}{\sum_{k=1}^S \varepsilon_{i,k} \cdot \lambda_k^{(n)}} \quad (16)$$

Avant de pouvoir utiliser cet algorithme, il faut pouvoir définir la première valeur. Pour cela, on utilise généralement l'activité moyenne [5] comme valeur d'initialisation, dont la formule est :

$$\lambda_j^{(1)} = \frac{\sum_{i=1}^B Y_i}{\sum_{i=1}^B \sum_{j=1}^S \varepsilon_{i,j}} \quad (17)$$

4.1.3 Application de l'algorithme ML-EM aux données issues de la simulation

À partir du modèle de simulation Monte-Carlo présenté précédemment, nous avons étudié la réponse de la fibre scintillante pour des émetteurs bêta autres que le ^{90}Sr et l' ^{90}Y , et ceci pour chaque épaisseur de gaine simulée dans le modèle numérique, qui sont pour rappel de 7,5 μm et de 500 μm . Les nouveaux radionucléides simulés sont le ^{14}C , le ^{210}Bi et le ^{212}Pb . Le ^{14}C a été choisi car son spectre d'émission bêta est de faible énergie, avec un maximum atteignant 156 keV. Le ^{210}Bi possède un spectre d'émission bêta avec un maximum de 570 keV, soit similaire à celui du ^{90}Sr à 546 keV, mais dont la distribution en énergie est différente. Enfin, le ^{212}Pb a été choisi pour son énergie maximale du spectre d'émission bêta d'1,2 MeV, qui se situe entre l'énergie maximale du ^{90}Sr et celle du ^{90}Y . Ainsi, on peut évaluer le comportement du code lorsqu'un émetteur bêta de faible énergie est présent dans la base de données, mais aussi lorsqu'un émetteur bêta dont la distribution en énergie se situe entre celles des radionucléides réellement présents, et enfin lorsqu'un émetteur bêta possède une énergie maximale similaire mais dont la distribution est différente. Chaque résultat de simulation, soit les spectres d'énergie déposée par particule source, ont été concaténés en une matrice de réponses attendues, soit la matrice $\varepsilon_{i,j}$. Le spectre d'entrée, correspondant au spectre Y_i , a été construit à partir de la simulation d'une source de ^{90}Sr — ^{90}Y d'activité totale 2 kBq à l'équilibre séculaire, soit 1 kBq pour le ^{90}Sr et le ^{90}Y . Ce spectre a été construit en ajoutant les résultats de simulation du ^{90}Sr et du ^{90}Y , puis en multipliant le résultat de cette somme par 2000 Bq. Enfin, chaque classe d'énergie, ou *bin*, a été tirée selon une loi de Poisson de valeur moyenne correspondant au résultat obtenu précédemment. Cela permet de simuler une

variation statistique associée à la mesure. On s'attend dans le cas d'une identification parfaite, à une activité reconstruite de 1000 Bq pour le ^{90}Sr et le ^{90}Y , et de 0 Bq pour les autres radionucléides. Le nombre d'itérations a été pris suffisamment grand pour que les valeurs des activités reconstruites n'évoluent plus. Le tableau 4-1 suivant présente les résultats de cette application.

	^{14}C	^{90}Sr	^{90}Y	^{210}Bi	^{212}Bi	^{212}Pb
Activité d'entrée (Bq)	0	1000	1000	0	0	0
Activité reconstruite (Bq)	<1	963	990	5	<1	19

Tableau 4-1. Activités d'entrée et activités reconstruites avec l'algorithme ML-EM.

Les résultats de reconstruction pour le ^{90}Sr et l' ^{90}Y sont satisfaisants, avec une reconstruction présentant un écart relatif de -4% et d'1% respectivement par rapport aux valeurs attendues. Les autres radionucléides présents dans la base de données ont des activités reconstruites proches de 0, à l'exception du ^{212}Pb . Cependant, l'activité reconstruite pour le ^{212}Pb est de 19 Bq, soit l'ordre de grandeur de la différence entre les activités d'entrée et reconstruites du ^{90}Sr et de l' ^{90}Y . Il existe donc un seuil de validité en dessous duquel, les activités reconstruites ne sont pas significatives. Nous validons ainsi la méthode présentée ici, à partir de ces résultats. En résumé, nous avons utilisé des fibres scintillantes présentant différentes épaisseurs de gaine afin de créer un contraste entre deux spectres d'énergie déposée de deux sources radioactives bêta pures. Ensuite, un algorithme de déconvolution, ici le ML-EM, a été utilisé pour calculer la valeur des activités mises en jeu. Nous avons ainsi démontré que cette méthode permettrait d'identifier et de quantifier des émetteurs bêta dont le spectre d'acquisition total est initialement convolué. Afin de valider expérimentalement ce processus, nous allons utiliser le dispositif présenté dans le chapitre précédent.

4.2 Démonstration expérimentale de la méthode de déconvolution

4.2.1 Contraste entre deux émetteurs bêta

4.2.1.1 Dispositif expérimental modifié

Le nouveau dispositif expérimental est similaire à celui présenté dans le chapitre précédent, exception faite du paquet de fibres qui sera enroulé dans des couches successives de polytétrafluoroéthylène (PTFE, communément appelé téflon). Ainsi, des épaisseurs croissantes de gaines seront évaluées sur la mesure de spectres bêta. La figure 4-4 présente une photographie du montage avec des couches de PTFE superposées sur le paquet de fibres.



Fig. 4-4. Photographies du montage expérimental avec une couche de PTFE de 200 μm d'épaisseur enroulée autour du paquet de fibres (figure du haut), et montage expérimental avec quatre couches de PTFE équivalent à 800 μm de PTFE enroulées autour du paquet de fibres (figure du bas).

La méthode de discrimination a d'abord été testée entre plusieurs sources bêta. Pour cela, des sources de ^{36}Cl et de $^{90}\text{Sr}-^{90}\text{Y}$ précédemment utilisées pour le développement du modèle numérique seront employées ici. Pour rappel, on considère le ^{36}Cl comme un émetteur bêta moyen car son énergie bêta maximale est de 710 keV, et le $^{90}\text{Sr}-^{90}\text{Y}$ comme un émetteur bêta dur car son énergie bêta maximale est de 2279 keV. Deux configurations de mesure sont prévues pour chaque équivalence de gaine en PTFE rajoutée. Ainsi, on mesurera d'abord les sources individuellement pour chaque épaisseur, puis les deux sources en même temps. Cinq épaisseurs équivalentes de gaine de PTFE seront successivement déployées : 0, 200, 400, 600 et 800 μm .

4.2.1.2 Résultats d'acquisition – configuration mono source

Nous présentons tout d'abord les résultats des acquisitions lorsque les sources sont mesurées individuellement. Les valeurs sont exprimées en efficacité de détection en fonction de la charge de l'impulsion numérisée. Les figures 4-5 à 4-7 présentent les résultats d'acquisition pour chaque épaisseur testée, de 0 à 800 μm .

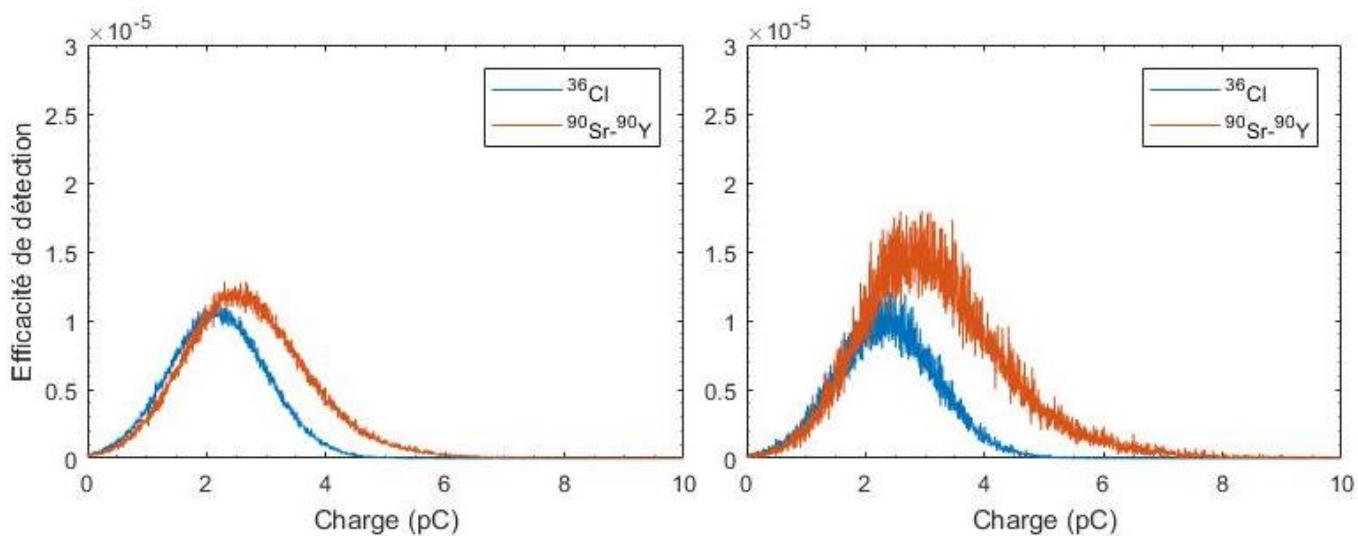


Fig. 4-5. Efficacités de détection pour une source de ^{36}Cl (en bleu) et de $^{90}\text{Sr}-^{90}\text{Y}$ (en orange), avec une épaisseur de PTFE de 0 μm (à gauche) et 200 μm (à droite).

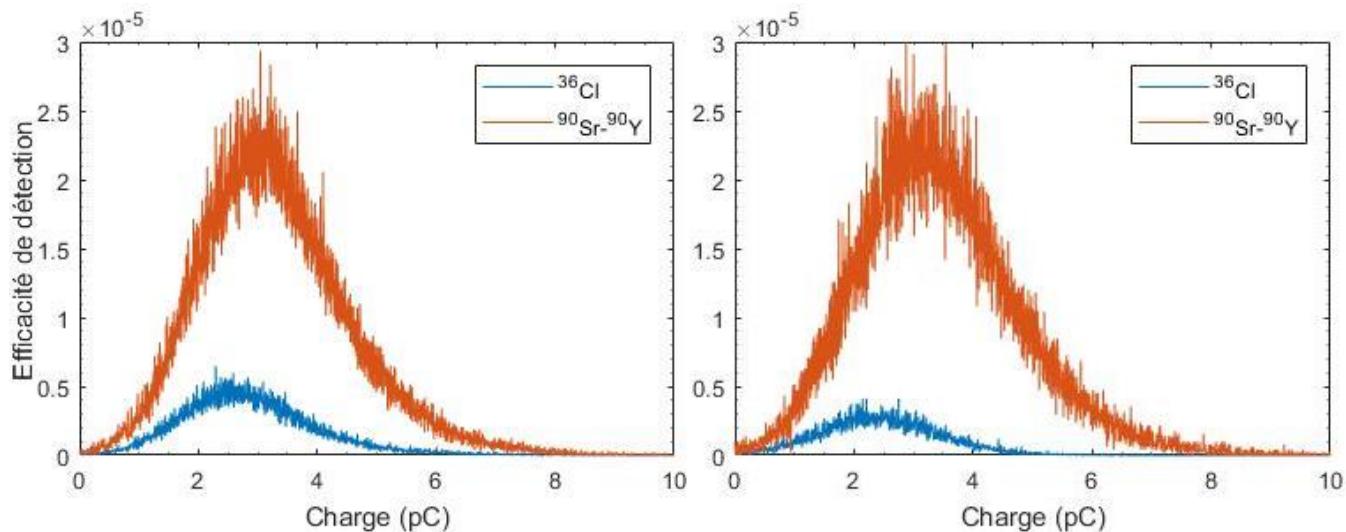


Fig. 4-6. Efficacités de détection pour une source de ^{36}Cl (en bleu) et de $^{90}\text{Sr}-^{90}\text{Y}$ (en orange), avec une épaisseur de PTFE de 400 μm (à gauche) et 600 μm (à droite)

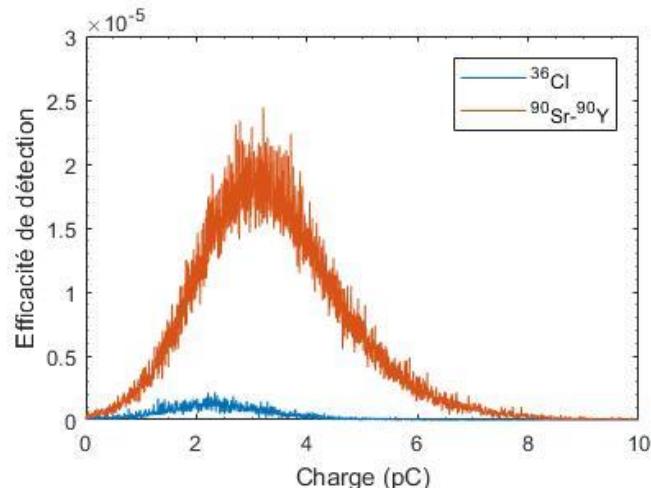


Fig. 4-7. Efficacités de détection pour une source de ^{36}Cl (en bleu) et de $^{90}\text{Sr}-^{90}\text{Y}$ (en orange), avec une épaisseur de PTFE de 800 μm .

On constate que l'efficacité de détection du ^{36}Cl diminue de manière notable lorsque l'épaisseur de PTFE augmente. En revanche, l'évolution de l'efficacité de détection du ^{90}Sr — ^{90}Y ne suit pas le même comportement. En effet, ce dernier voit son efficacité de détection augmenter jusqu'à atteindre un maximum pour une épaisseur de 600 μm , avant de décroître à son tour au-delà de 800 μm . La décroissance est expliquée par la différence de pouvoir d'arrêt en fonction de l'énergie de la particule bêta, présentée dans la partie 4.1.1. L'influence de l'épaisseur de la couche de PTFE est aussi visible sur la charge maximale générée par les signaux. En effet, la charge maximale générée par le ^{90}Sr — ^{90}Y pour une épaisseur de 0 μm est de 7 pC, tandis qu'elle est de 9 pC pour une épaisseur de 800 μm . En revanche, les plus fortes intensité et charge maximale sont expliquées par une amélioration de l'efficacité de piégeage de la fibre. En effet, le rajout de couches de PTFE améliore la probabilité de transmettre des photons de scintillation. La superposition des couches réflectrices, tout d'abord de la gaine intégrée à la fibre puis des couches supplémentaires de PTFE, n'est pas sans rappeler les interféromètres de Fabry-Perrot [6], bien que leur utilisation finale soit différente.

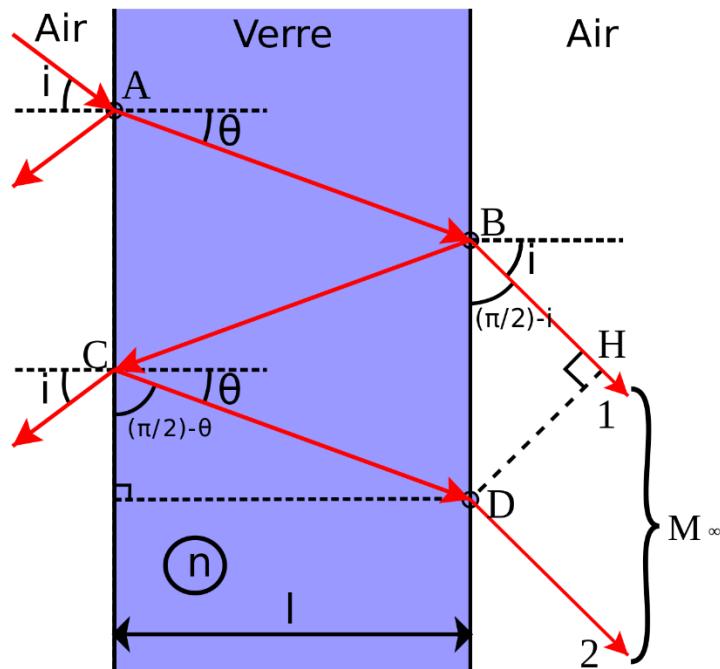


Fig. 4-8. Schéma de principe d'un interféromètre de Fabry-Perrot [6].

D'après la figure 4-8, et en supposant le milieu le plus à gauche comme étant le cœur de fibre, on remarque que des rayons diffractés dans la gaine peuvent ensuite être transmis dans le cœur de fibre. Cette amélioration compense l'absorption des particules bêta par blindage du PTFE. C'est pour cela que l'on constate une amélioration de l'efficacité de détection, et de la charge maximale, pour le ^{90}Sr — ^{90}Y qui est peu affecté par le blindage pour la partie de son spectre la plus énergétique. Cependant, à partir de 600 μm , l'impact de l'écrantage par l'épaisseur du blindage surpassé l'amélioration du signal apportée par les réflexions optiques.

supplémentaires. Afin de mieux visualiser l'évolution du signal, les efficacités de détection sommées sont présentées sur la figure 4-9.

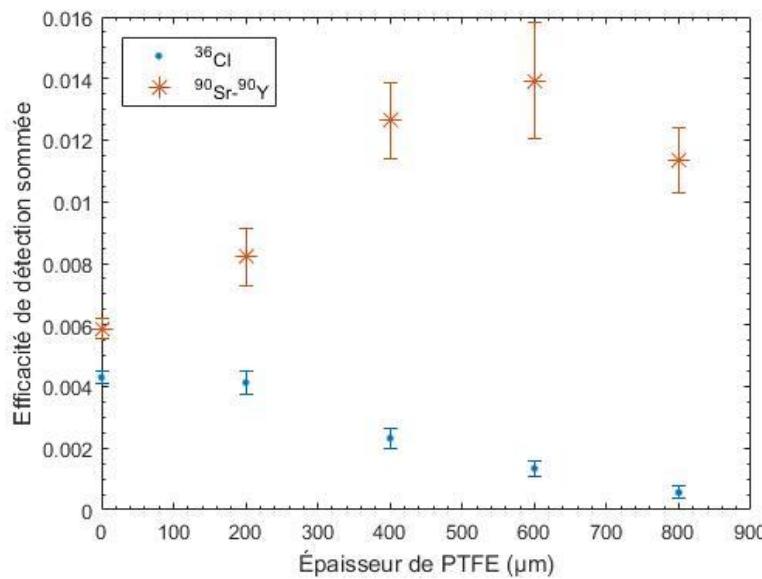


Fig. 4-9. Efficacités de détection sommées pour la source de ^{36}Cl et de $^{90}\text{Sr}-^{90}\text{Y}$ en fonction de l'épaisseur de PTFE utilisée.

On en conclut que seule la partie la plus énergétique du spectre d'émission du $^{90}\text{Sr}-^{90}\text{Y}$ est détectée pour les couches de PTFE les plus épaisses, et que la contribution du spectre d'émission du ^{90}Sr est inférieure à celle du ^{90}Y sur toutes les épaisseurs. Bien que l'ajout de PTFE améliore la détection, cela ne compense pas l'effet du blindage rajouté sur la détection du ^{36}Cl . Nous venons ainsi de démontrer expérimentalement la capacité de créer un contraste non négligeable entre émetteurs bêta de différentes énergies, permettant le développement de compteurs bêta à gammes d'énergies variées. Ce contraste sera aussi valorisé au travers des algorithmes de déconvolution, notamment le ML-EM présenté dans la partie précédente.

4.2.1.3 Résultats d'acquisitions – configuration double source

Afin d'évaluer la capacité à déconvoluer deux spectres bêta, des acquisitions supplémentaires ont été réalisées avec les deux sources présentes. Les résultats sont exprimés en taux de comptage, car les efficacités de détection ne sont pas calculables pour des spectres convolus. Les figures 4-10 à 4-12 présentent les résultats expérimentaux obtenus dans cette configuration.

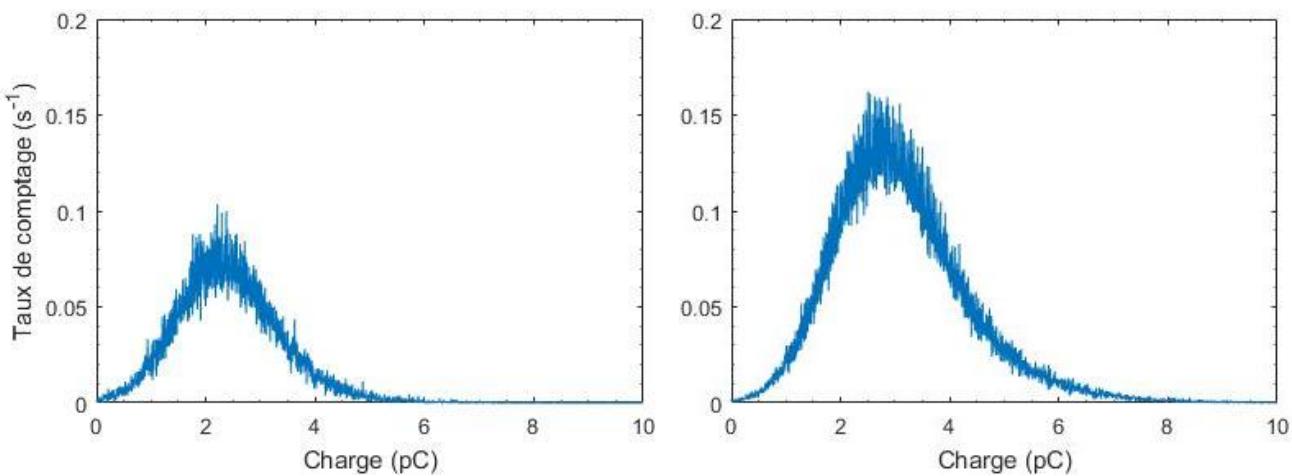


Fig. 4-10. Taux de comptage obtenus pour une acquisition avec des sources de ^{36}Cl et de $^{90}\text{Sr}-^{90}\text{Y}$ positionnées simultanément, avec une épaisseur de PTFE de 0 μm (à gauche) et 200 μm (à droite).

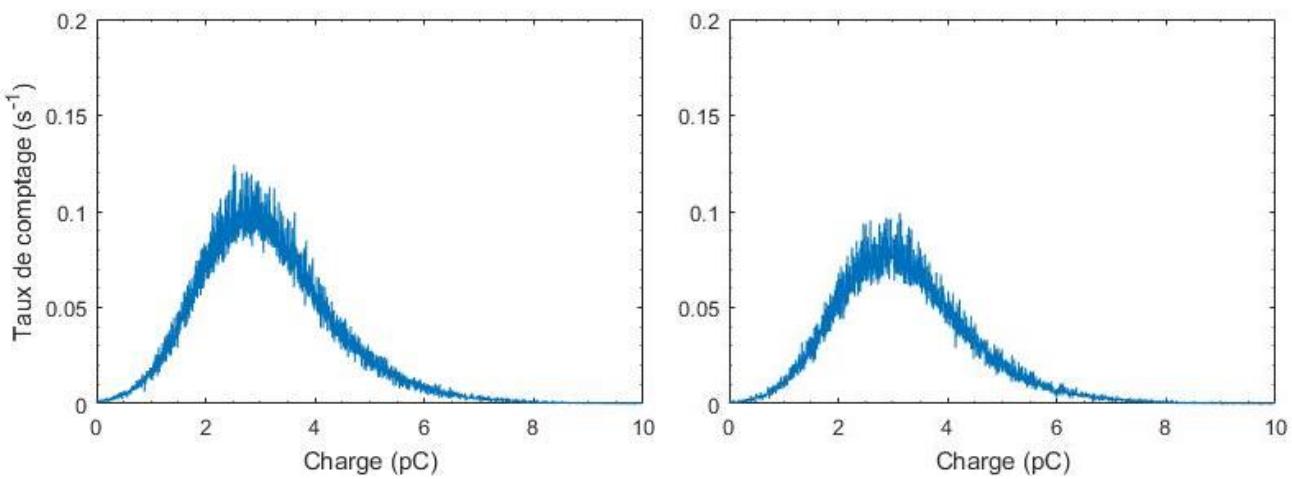


Fig. 4-11. Taux de comptage obtenus pour une acquisition avec des sources de ^{36}Cl et de $^{90}\text{Sr}-^{90}\text{Y}$ positionnées simultanément, avec une épaisseur de PTFE de 400 μm (à gauche) et 600 μm (à droite).

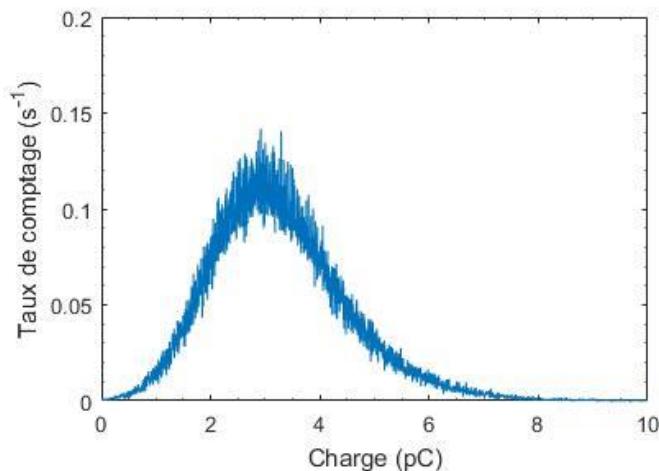


Fig. 4-12. Taux de comptage obtenus pour une acquisition avec des sources de ^{36}Cl et de $^{90}\text{Sr}-^{90}\text{Y}$ positionnées simultanément, avec une épaisseur de PTFE de 800 μm .

On retrouve les charges maximales correspondant à la contribution individuelle de la source de ^{90}Sr — ^{90}Y . Cependant, cette information seule ne permet pas l'identification d'émetteurs bêta d'énergie maximale moyenne, comme le ^{90}Sr . On peut cependant conclure que la mesure avec une épaisseur de PTFE de 800 μm permet de montrer qu'au moins un émetteur bêta de haute énergie est présent, sous l'hypothèse que le signal est dû à un émetteur bêta et non gamma.

Lorsque les deux sources sont présentes, l'évolution du signal n'est pas similaire à celle des acquisitions avec source unique. Afin d'illustrer ces propos, la figure 4-13 présente les taux de comptages sommés.

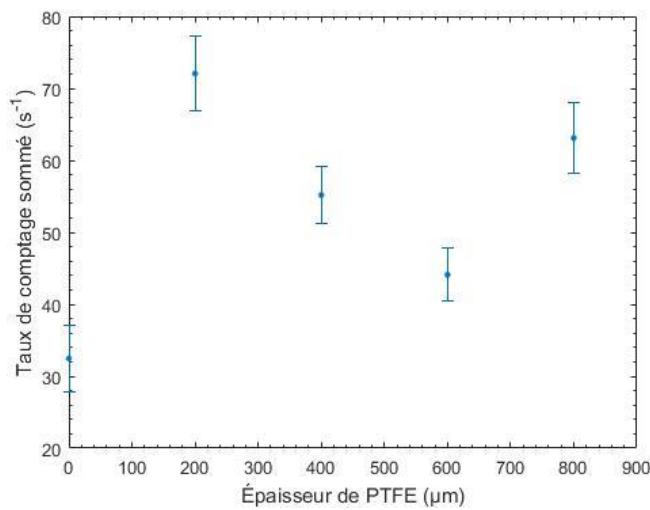


Fig. 4-13. Taux de comptage sommés lorsque les deux sources de ^{36}Cl et ^{90}Sr — ^{90}Y sont présentes, en fonction de l'épaisseur de PTFE utilisée.

En effet, si présence uniquement d'une source de ^{90}Sr — ^{90}Y , il était attendu une augmentation du signal mesuré jusqu'à 600 μm de PTFE, puis une décroissance à partir de 800 μm . Ce phénomène n'est pas observé lors de la mesure simultanée des deux sources. Cette différence pourrait être due aux efficacités géométriques mises en jeu, et à un problème d'homogénéité des couches de PTFE appliquées. Dans le premier cas, la présence des deux sources entraînerait un écart avec la position de mesure d'une source individuelle. Dans le deuxième cas, il a été remarqué que les couches de PTFE simplement enroulées pouvaient se détendre, ce qui peut se traduire par des zones moins bien recouvertes ou bien des espaces de recouvrement d'une même épaisseur.

En conclusion des acquisitions réalisées avec une ou deux sources, il est attendu que le contraste obtenu à l'aide de l'épaisseur la plus importante soit exploité par un algorithme de déconvolution, afin d'évaluer la contribution des émetteurs haute énergie, puis d'évaluer les émetteurs moyenne énergie. Cependant, nous avons vu que les spectres avec source unique peuvent ne pas représenter correctement les contributions lorsque plusieurs sources sont

présentes, comme cela a été montré sur les figures des spectres sommés. La partie suivante présente les résultats d'un traitement à l'aide de l'algorithme ML-EM, basé sur les acquisitions précédemment exposées.

4.2.2 Déconvolution de spectres bêta

4.2.2.1 Résultats de déconvolution avec des spectres expérimentaux

Les données expérimentales des acquisitions avec sources uniques ont été utilisées comme base de données pour l'algorithme ML-EM. Les spectres d'entrées sont les données d'acquisitions avec présence de deux sources. Ainsi, la matrice résultante sera le produit de l'activité par l'intensité d'émission, le temps de mesure étant déjà pris en compte car les données d'entrées sont exprimées en taux de comptage. Dans un premier temps, l'ensemble des données a été utilisé, c'est-à-dire les dix spectres d'acquisition d'une seule source pour la base de données correspondant aux deux sources évaluées, et les cinq acquisitions avec double source pour le spectre d'entrée. Les résultats de la déconvolution sont présentés sur la figure 4-14, où l'ensemble des résultats par épaisseur de PTFE testée ont été concaténé.

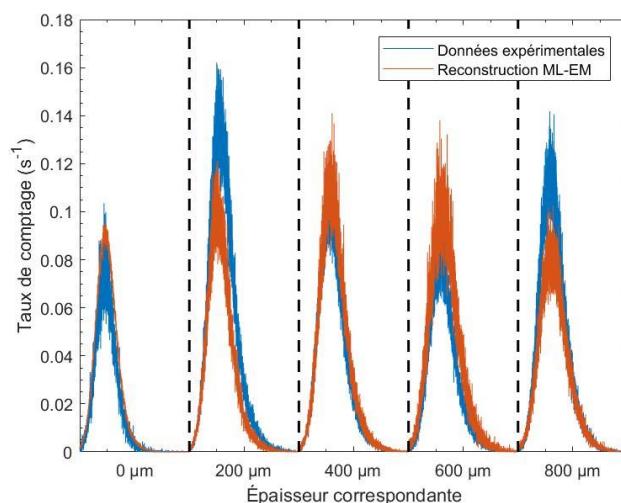


Fig. 4-14. Spectres d'acquisition (en bleu) et reconstruction ML-EM (en orange) pour les cinq épaisseurs de PTFE utilisées, de gauche à droite : 0, 200, 400, 600 et 800 μm ; pour les sources de ^{36}Cl et $^{90}\text{Sr}-^{90}\text{Y}$.

On remarque que la reconstruction présente un écart important avec les données expérimentales, visible notamment pour les épaisseurs de 200 et 800 μm . La quantification précise de cet écart est complexe au vu des variations statistiques entachant les spectres. On estime cependant que l'écart pour l'épaisseur de 200 μm , entre le spectre expérimental et reconstruit, est de l'ordre d'un facteur 1,3. De la même manière, on estime l'écart sur l'épaisseur de 800 μm entre les deux spectres à un facteur égal à 1,4. On estime que cet écart

est dû au manque de représentativité des spectres de sources uniques par rapport aux spectres double source, combiné à des problèmes liés aux épaisseurs appliquées de PTFE. Pour rappel, l'évolution du signal des acquisitions avec sources uniques ne suit pas le comportement des acquisitions avec double source, en fonction de l'épaisseur de PTFE. Pour les spectres correspondant à 0 µm de PTFE, la reconstruction est supposée correcte, car aucun écart n'est observé. Les activités reconstruites sont de 4210 Bq pour le ^{36}Cl et de 4120 Bq pour le $^{90}\text{Sr}-^{90}\text{Y}$, pour des activités réelles de 6470 et 5168 Bq respectivement. Les écarts relatifs sont donc de -34,9% et de -20,3%.

Une étude empirique a été conduite afin de déterminer si le manque de représentativité est présent sur tous les épaisseurs testées ou s'il existe des combinaisons de spectres obtenus avec des épaisseurs spécifiques permettant une reconstruction cohérente, c'est-à-dire permettant d'obtenir des activités reconstruites proches des activités réelles. En effet, l'écart le plus important atteint un facteur de 1,4 pour l'épaisseur de 800 µm, tandis que la reconstruction pour l'épaisseur nulle de PTFE ne présente pas d'écart. La combinaison des spectres obtenus avec 200 µm et 800 µm de PTFE a donné les meilleurs résultats, bien que le spectre de 200 µm présente un écart important selon la figure 4-14. Le résultat de la reconstruction ML-EM est présenté sur la figure 4-15, en considérant uniquement ces deux épaisseurs de gaines.

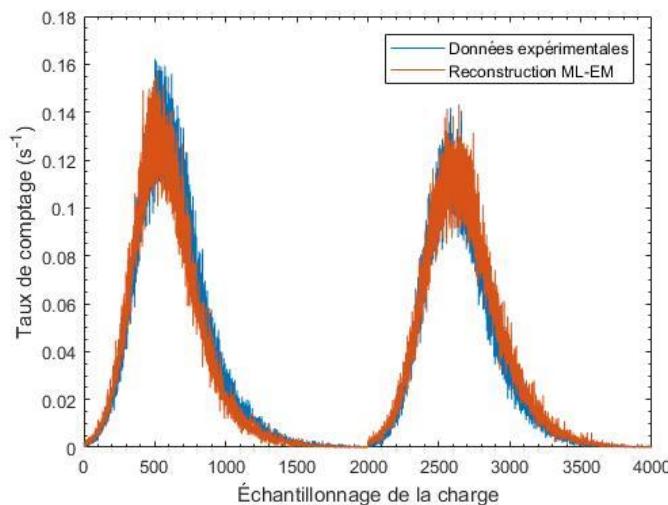


Fig. 4-15. Spectres d'acquisition et reconstruction ML-EM pour les épaisseurs de PTFE utilisées de 200 à gauche et 800 µm à droite, pour une source de ^{36}Cl et $^{90}\text{Sr}-^{90}\text{Y}$.

Les activités reconstruites sont de 4780 et de 5776 Bq pour le ^{36}Cl et le $^{90}\text{Sr}-^{90}\text{Y}$ respectivement, pour des écarts relatifs de -26,0% et 11,7%. L'écart relatif est donc plus favorable dans ce cas de figure que lorsque toutes les données sont utilisées.

Afin d'évaluer l'apport de la méthode présentée par rapport à un détecteur basé sur des fibres scintillantes présentant une gaine identique, l'algorithme ML-EM a été employé sur chaque jeu de données par épaisseur testée. Les résultats sont présentés dans le tableau 4-2.

	Activité de ^{36}Cl (Bq)	^{36}Cl – écart relatif	Activité de $^{90}\text{Sr—}^{90}\text{Y}$ (Bq)	$^{90}\text{Sr—}^{90}\text{Y}$ – écart relatif
Activité réelle source	6470	N/A	5168	N/A
ML-EM – 0 μm	4136	-36%	2552	-51%
ML-EM – 200 μm	1852	-71%	7844	+52%
ML-EM – 400 μm	9313	+44%	2678	-48%
ML-EM – 600 μm	6962	+8%	2502	-52%
ML-EM – 800 μm	9348	+44%	5103	-1%

Tableau 4-2. Activités reconstruites par l'algorithme ML-EM et écarts relatifs associés, pour chaque épaisseur de gaine prise indépendamment, pour les sources de ^{36}Cl et $^{90}\text{Sr—}^{90}\text{Y}$.

Les écarts relatifs du tableau 4-2 présentent des valeurs ponctuelles inférieures aux écarts relatifs trouvés avec la méthode, pour des valeurs atteignant l'ordre de grandeur de quelques pourcents de différence. Par exemple, les données reconstruites basées uniquement sur l'épaisseur de 800 μm aboutissent une activité du $^{90}\text{Sr—}^{90}\text{Y}$ avec un écart relatif d'un pourcent. Cependant, on constate aussi que l'activité reconstruite de ^{36}Cl possède un écart relatif avec la valeur réelle de 44%. À l'exception de deux écarts relatifs, l'ensemble des activités reconstruites présentent un écart relatif supérieur à ceux de la reconstruction basée sur l'utilisation de plusieurs gaines. On en conclut que la méthode avec des données provenant de plusieurs épaisseurs de gaines différentes permet d'obtenir le meilleur compromis de reconstruction pour les deux radionucléides testés.

4.2.2.2 Réévaluation par changement de l'échantillonnage

Bien que la méthode utilisant des épaisseurs de gaines différentes présente un meilleur compromis que celle reposant sur l'emploi de gaines simples, la différence avec les activités réelles est de l'ordre de la dizaine de pourcents. Sur la figure 4-15, on ne constate pas d'écart important avec les données expérimentales. On suppose alors que les fortes variations statistiques des données de mesure avec double source et sources uniques ne permettent pas

d'atteindre le niveau de précision d'une reconstruction dont les écarts relatifs seraient en dessous de 10%, voire 20% pour le ^{36}Cl . En utilisant la base de données construite avec les acquisitions de sources uniques, et en prédefinissant les activités comme étant égales aux activités réelles, la reconstruction présentée sur la figure 4-16 est obtenue.

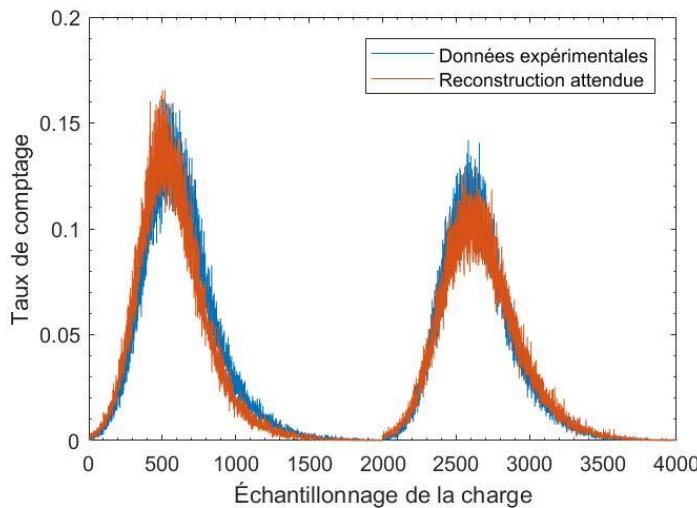


Fig. 4-16. Spectres d'acquisition et reconstruction ML-EM pour les épaisseurs de PTFE utilisées de 200 µm à gauche et 800 µm à droite, pour des sources de ^{36}Cl et ^{90}Sr - ^{90}Y .

Une comparaison directe entre les figures 4-15 et 4-16 ne permet pas de mettre en évidence de différences significatives. On peut noter l'écart des maximums du pic de droite entre les données attendues et expérimentales, d'une valeur de $0,02 \text{ s}^{-1}$ soit un facteur 1,16. Les fortes variations statistiques, notamment au niveau des pics, empêchent toute reconstruction précise, sous l'hypothèse que la représentativité de la base de données est correcte. Ainsi, il est nécessaire d'obtenir des données avec une statistique plus importante, à la fois pour la base de données mais aussi pour les données expérimentales, afin d'espérer obtenir des activités reconstruites présentant un écart de moins de 10% avec les activités réelles. Une première approche pour compenser le manque de statistique est de changer l'échantillonnage de la charge des impulsions. Il est actuellement de $5 \cdot 10^{-3} \text{ pC}$ par classe sur les figures présentées.

La méthode a ainsi été testée de nouveau pour un échantillonnage de la charge numérisée à $0,1 \text{ pC}$ par classe. Les résultats de mesure et de la reconstruction ML-EM associée, en considérant l'ensemble des épaisseurs de PTFE, sont présentés sur la figure 4-17.

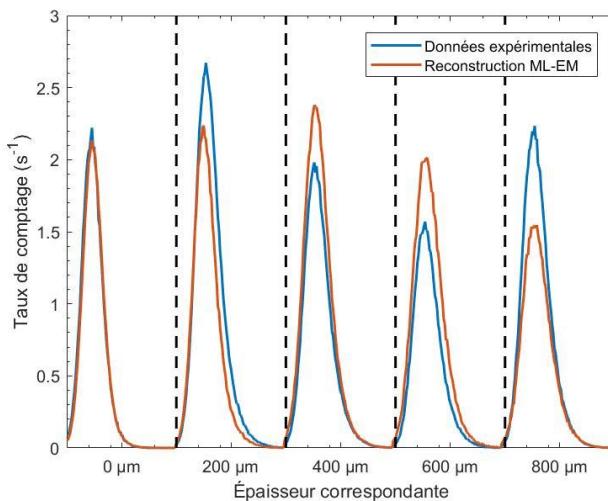


Fig. 4-17. Spectres d'acquisition et reconstruction ML-EM pour les cinq épaisseurs de PTFE utilisées, de gauche à droite 0, 200, 400, 600 et 800 µm, pour les sources de ^{36}Cl et $^{90}\text{Sr}-^{90}\text{Y}$. Nouvel échantillonnage de la charge pris égal à 0,1 pC par canal.

Les activités reconstruites sont de 5856 Bq et de 3961 Bq pour le ^{36}Cl et le $^{90}\text{Sr}-^{90}\text{Y}$, soit des écarts relatifs de 9,5% et de 23,4%. Pour rappel, avec l'ancien échantillonnage, les écarts relatifs étaient de -34,9% et -20,3%, soit une nette amélioration pour la reconstruction de l'activité du ^{36}Cl , et une légère dégradation sur celle du $^{90}\text{Sr}-^{90}\text{Y}$. On constate que les écarts entre la reconstruction à l'aide des acquisitions avec sources uniques présentent des différences de formes avec les acquisitions dites double sources, non imputables à la reconstruction ML-EM, similaires à celles trouvées sur les données correspondant au précédent échantillonnage. On en conclut que la statistique de comptage n'est pas en cause dans les écarts des reconstructions avec les données expérimentales, et que ces écarts sont principalement dus à des différences spectrales entre acquisitions avec sources uniques et avec double sources, soit une problématique de représentativité de la base de données par rapport aux données à analyser. Pour rappel, on estime que ces différences seraient liées à une inhomogénéité des couches de PTFE. En effet, ces dernières ne sont qu'enroulées autour du paquet de fibres et peuvent se détendre, créant ainsi des espaces non couverts, et/ou présentant des superpositions pour une même épaisseur.

La reconstruction la plus proche des données réelles a été trouvée pour un jeu de données composé des épaisseurs de 0 et 800 µm de PTFE. Les résultats de cette reconstruction sont présentés sur la figure 4-18.

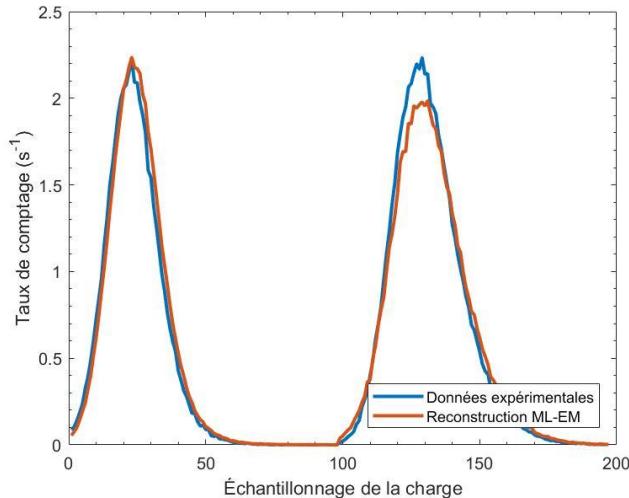


Fig. 4-18. Spectre d'acquisition double source et reconstruction attendue pour les épaisseurs de PTFE de 0 et 800 μm , gauche et droite respectivement. Nouvel échantillonnage de la charge à 0,1 pC par canal.

Les activités reconstruites sont de 5177 Bq et de 5173 Bq pour le ^{36}Cl et le $^{90}\text{Sr}-^{90}\text{Y}$, et conduisent à des écarts relatifs de 20% et de 0,1% respectivement. Bien qu'un écart soit encore visible sur le pic des données correspondant à l'épaisseur de 800 μm de PTFE, et puisse avoir un impact sur la quantification de l'activité de ^{36}Cl , les activités sont mieux reconstruites avec ce nouvel échantillonnage.

En conclusion, la méthode de déconvolution présentée montre des résultats améliorés de manière significative par rapport à ceux obtenus avec des données acquises avec une seule épaisseur de PTFE testée. Le contraste généré par les différentes épaisseurs de PTFE est exploité par l'algorithme ML-EM. Une optimisation de la méthode d'application des couches de PTFE permettrait d'envisager une meilleure reconstruction et cet aspect est discuté dans la section suivante.

4.2.3 Étude sur l'écart de représentativité observé

Les données utilisées pour construire la base de spectres de référence présentent des écarts de représentativité avec les données acquises lorsque les deux sources sont présentes simultanément. Ces écarts entraînent des différences dans les spectres et les activités reconstruites par l'algorithme ML-EM. Les données ont été générées à des dates d'acquisitions différentes, avec une reproductibilité du dispositif expérimental qui n'a pas été démontrée. Comme mentionné dans le paragraphe suivant, cette reproductibilité est en lien notamment avec les épaisseurs de PTFE superposées sur le paquet de fibres. La figure 4-19 présente un écart visible et des superpositions pour une feuille de PTFE enroulée autour du paquet de fibres.



Fig. 4-19. Photographie des écarts et superpositions observés sur le paquet de fibres.

Lorsque les couches de PTFE sont retirées ou ajoutées, les écarts ne sont pas constants d'une acquisition à l'autre. Afin d'illustrer le propos, la figure 4-20 présente des acquisitions réalisées à différentes dates pour une source de ^{36}Cl et pour des couches de PTFE de 200 μm et de 800 μm .

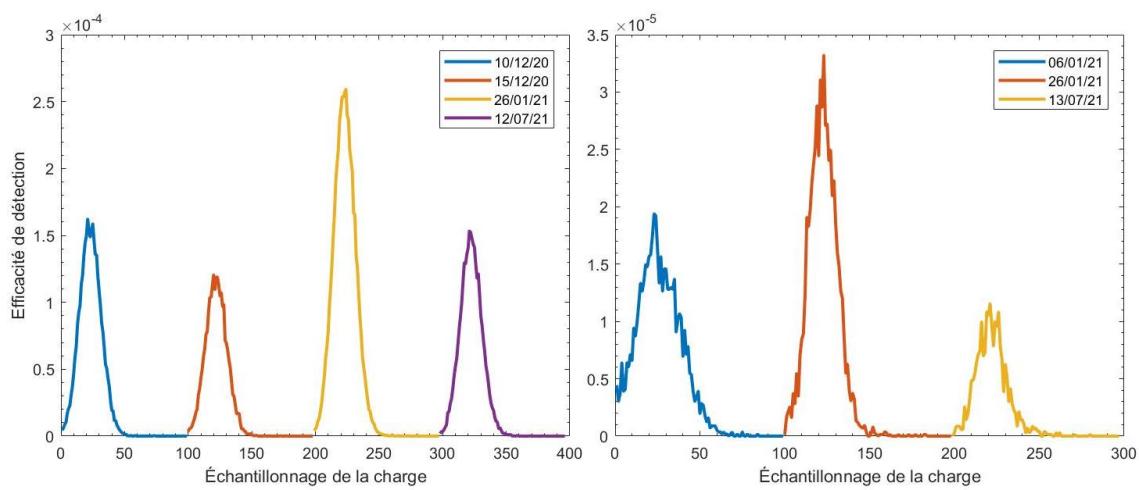


Fig. 4-20. Acquisitions réalisées à différentes dates avec une source de ^{36}Cl et une épaisseur de PTFE autour du paquet de fibres de 200 μm à gauche et de 800 μm à droite.

On constate que le dispositif expérimental ne donne pas des résultats reproductibles, avec des variations caractérisées par des écarts relatifs pouvant atteindre plus de 50%, notamment avec les acquisitions du 26/01/2021 sur les deux figures. On note que les acquisitions réalisées avec une épaisseur de 200 μm de PTFE (à gauche sur la figure 4-20), hors celle du 26/01/2021, présente un comportement relativement similaire. En effet, les pics des efficacités de détection, pour l'épaisseur de 200 μm , atteignent 1,6, 1,2 et 1,5, soit des écarts relatifs de -25% et 6% en prenant 1,6 comme valeur de référence. De la même manière, l'écart relatif avec le pic de l'acquisition du 26/01/2021 est de 63%. Afin de pallier à ce problème à court terme, les acquisitions avec sources uniques et double sources seront réalisées les unes à la suite des autres, pour chaque épaisseur. À long terme, des paquets de fibres ayant chacun une épaisseur donnée permettrait de s'affranchir aisément du problème. Ainsi, les problématiques de la reproductibilité du dispositif expérimental pourraient être résolues en développant des paquets de fibres scintillantes par un processus industriel, et dont chaque paquet aurait une épaisseur de PTFE superposée spécifique. La section suivante est consacrée à l'application de la nouvelle méthode de mesure pour de la discrimination bêta/gamma.

4.3 Discrimination bêta/gamma

4.3.1 Déconvolution par ML-EM

Le principe de la méthode de discrimination avec des épaisseurs de gaines différentes ayant été démontré pour la déconvolution de deux spectres bêta, nous allons à présent évaluer cette méthode à la discrimination d'une contribution bêta et d'une contribution gamma. Pour cela, nous utiliserons la source de ^{36}Cl utilisée précédemment, et la source de ^{60}Co , déjà employée dans les expériences décrites au chapitre 3. Pour rappel, la source de ^{36}Cl est une source bêta pure de 6470 Bq, et la source de ^{60}Co est une source bêta gamma de 3122 Bq, les deux activités étant données à la date de la mesure. Dans le chapitre précédent, une étude par simulation Monte-Carlo du spectre bêta émis par la source de ^{60}Co , et atténué par la couche d'aluminium encapsulante, a montré que l'énergie maximale des particules bêta attendue est de 300 keV. Afin de s'affranchir de la composante bêta de cette source de ^{60}Co , cette dernière est retournée : la contribution est ainsi considérée comme gamma pure.

Comme présenté lors de l'étude sur l'écart de représentativité, l'ensemble des acquisitions a été réalisé au cours de la même campagne de mesure. Le temps d'acquisition a été fixé à 30 minutes, que ce soit pour les configurations source unique ou double sources. Les résultats obtenus avec une source unique sont présentés sur les figures 4-21 à 4-23, avec un pas de 0,1 pC par canal. Ces résultats constitueront la base de données de référence employée par l'algorithme ML-EM.

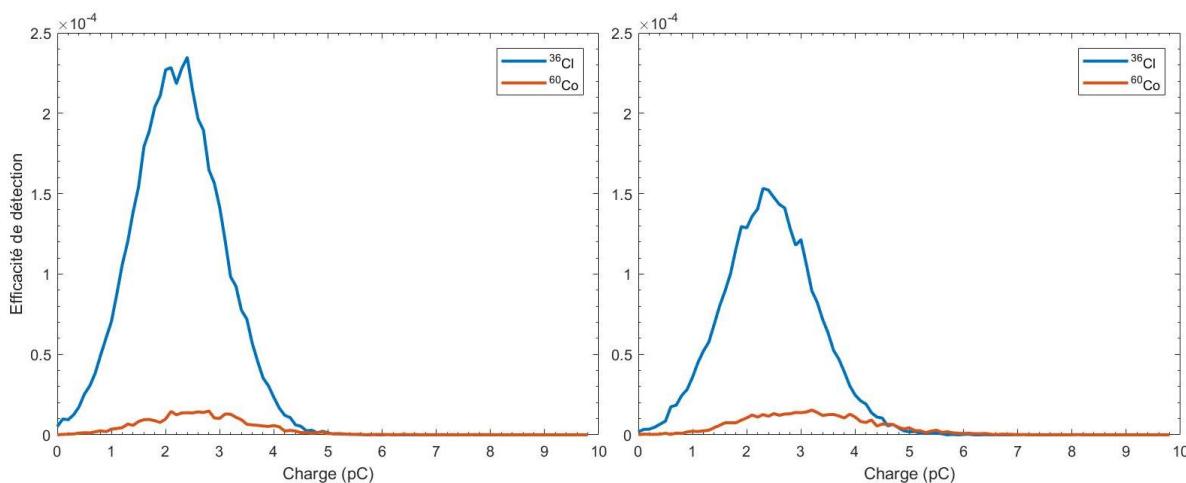


Fig. 4-21. Efficacités de détection pour une source de ^{36}Cl (en bleu) et de ^{60}Co (en orange), avec une épaisseur de PTFE de 0 μm (à gauche) et 200 μm (à droite).

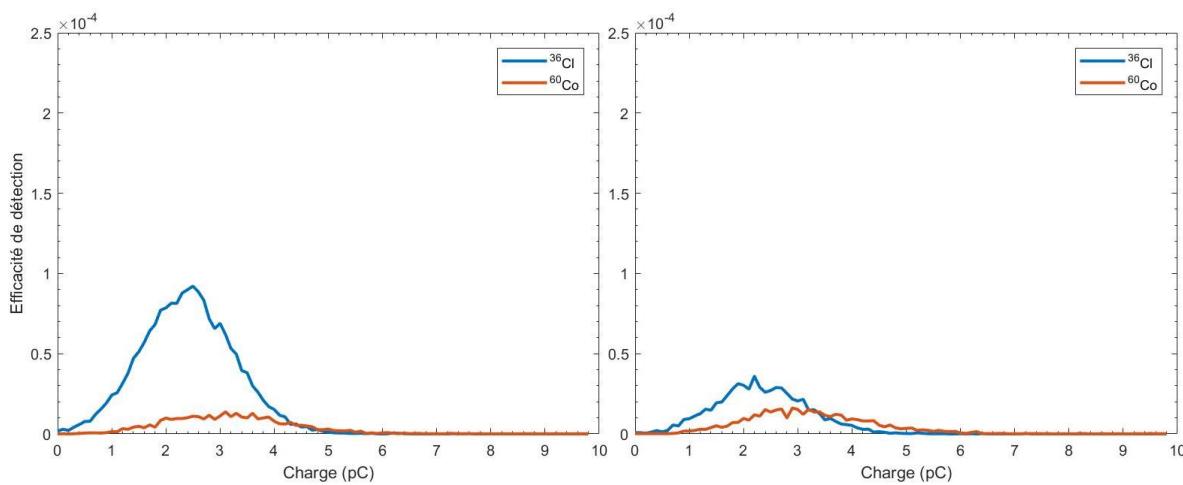


Fig. 4-22. Efficacités de détection pour une source de ^{36}Cl (en bleu) et de ^{60}Co (en orange), avec une épaisseur de PTFE de 400 μm (à gauche) et 600 μm (à droite).

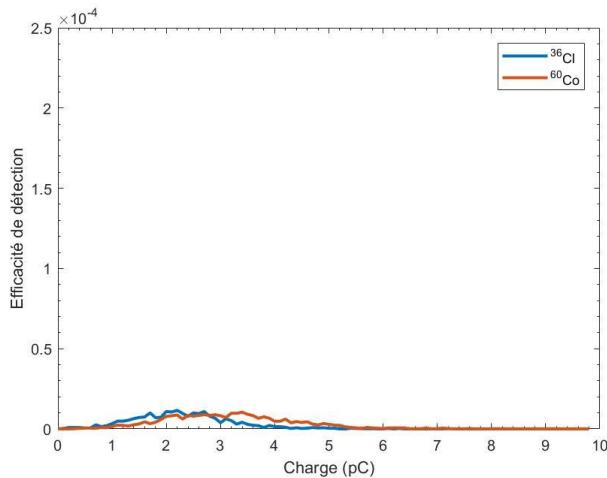


Fig. 4-23. Efficacités de détection pour une source de ^{36}Cl (en bleu) et de ^{60}Co (en orange), avec une épaisseur de PTFE de 800 μm .

On retrouve la décroissance du signal du ^{36}Cl lorsque l'épaisseur de PTFE appliquée augmente. Le signal du ^{60}Co semble quant à lui générer un signal constant au premier abord, quelle que soit l'épaisseur de gaine positionnée autour du paquet de fibres. En effet, les rayonnements gamma associés ont des énergies de 1,173 MeV et 1,332 MeV, et peuvent aisément traverser les 800 μm d'épaisseur de PTFE sans interagir. Cependant, l'ajout des couches de PTFE n'entraîne pas d'amélioration significative de l'efficacité de détection comme précédemment montré pour le ^{90}Sr — ^{90}Y , au travers de l'efficacité de piégeage. La figure 4-24 présente les taux de comptage du ^{60}Co , calculés pour chaque épaisseur de PTFE testée.

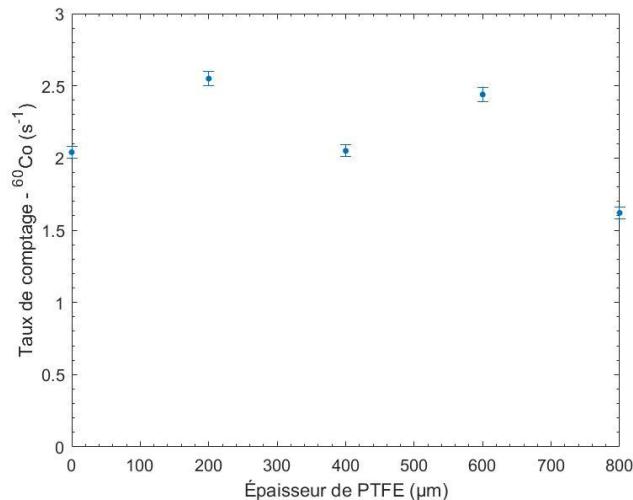


Fig. 4-24. Taux de comptage associé à la source de ^{60}Co , pour chaque épaisseur de PTFE appliquée. Incertitudes sur le calcul du taux de comptage à un écart-type représentées.

Les taux de comptage du ^{60}Co ne présentent pas d'évolution croissante puis décroissante, mais une variation autour d'une valeur de 2,1 coups par seconde, valeur correspondant à la moyenne des taux de comptage obtenus. D'après le calcul de l'incertitude liée au taux de comptage, ce comportement n'aurait pas une origine statistique car la variation est supérieure à quatre écart-types. Il s'agirait alors d'une variation associée à la répétabilité de l'expérience, non expliquée.

La figure 4-25 présente la déconvolution des spectres du ^{36}Cl et ^{60}Co , pour les acquisitions réalisées lorsque les deux sources sont présentes.

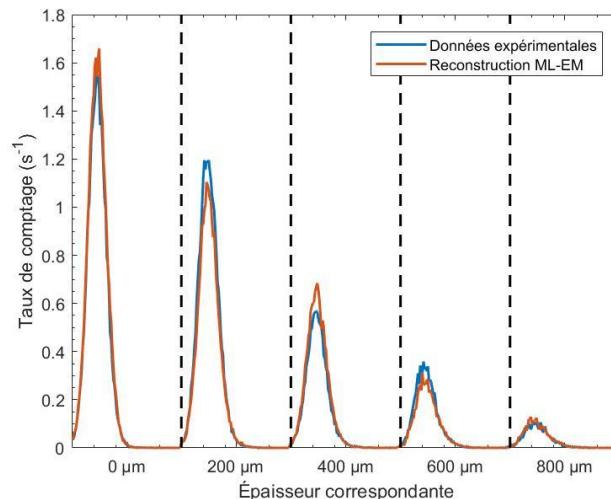


Fig. 4-25. Spectres d'acquisition et reconstruction ML-EM pour les cinq épaisseurs de PTFE utilisées, de gauche à droite : 0, 200, 400, 600 et 800 μm ; pour les sources de ^{36}Cl et ^{60}Co . Nouvel échantillonnage de la charge pris égal à 0,1 pC par canal.

La déconvolution par ML-EM donne de meilleurs résultats lorsque toutes les épaisseurs sont prises en compte, ce qui peut être expliqué par la meilleure représentativité des

acquisitions avec sources simples, en raison de l'application du nouveau protocole de mesure. Les activités reconstruites sont respectivement de 6852 et 2966 Bq pour le ^{36}Cl et le ^{60}Co , soit des écarts relatifs avec les activités réelles de 6% et -5%. Les résultats ont été comparés aux déconvolutions basées uniquement sur une seule épaisseur de PTFE, présentés dans le tableau 4-3.

	Activité de ^{36}Cl (Bq)	^{36}Cl – écart relatif	Activité de ^{60}Co (Bq)	^{60}Co – écart relatif
Activité réelle de la source	6470	N/A	3122	N/A
ML-EM – 0 μm	6603	2,1%	1771	-43,3%
ML-EM – 200 μm	8036	24,2%	2114	-32,3%
ML-EM – 400 μm	5891	-8,9%	2633	-15,7%
ML-EM – 600 μm	9462	46,2%	2483	-20,5%
ML-EM – 800 μm	5048	-22,0%	3118	-0,1%

Tableau 4-3. Activités reconstruites par l'algorithme ML-EM, et écarts relatifs associés, pour chaque épaisseur de gaine prise indépendamment, pour les sources de ^{36}Cl et ^{60}Co .

Comme pour les spectres bêta convolus, le meilleur compromis de reconstruction d'activité est obtenu avec la méthode utilisant plusieurs épaisseurs de gaines. Les activités reconstruites présentent un résultat correct, de l'ordre de quelques pourcents de différence exprimée en écart relatif, tandis que les résultats pour les épaisseurs prises individuellement ne permettent pas d'atteindre ce niveau de précision, l'une des deux activités reconstruites ayant un écart relatif dépassant 15% au minimum. L'apport de la méthode présentée est ainsi justifiée dans le cadre de la discrimination bêta/gamma.

4.3.2 Évaluation de l'activité bêta par taux de comptage

Dans la section précédente, nous avons montré que le signal engendré par une source gamma de ^{60}Co présentant une activité de 3,1 kBq oscille autour d'une valeur moyenne de 2,1 coups par seconde, quelle que soit l'épaisseur de PTFE appliquée au paquet de fibres, selon la figure 4-24. Dès lors, si le taux de comptage du ^{60}Co est constant quelle que soit l'épaisseur, il est possible de soustraire le taux de comptage gamma au taux de comptage total. Le résultat obtenu correspondrait au taux de comptage bêta uniquement. Pour tester cette hypothèse,

de nouvelles acquisitions ont été réalisées avec une épaisseur de 1200 µm. Les résultats de ces acquisitions sont présentés sur la figure 4-26.

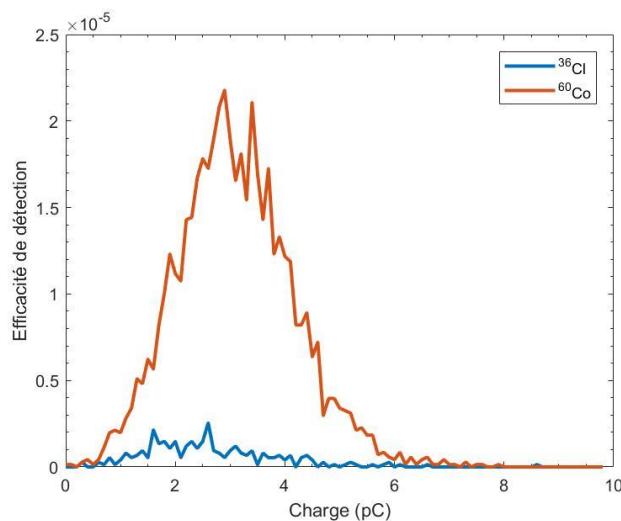


Fig. 4-26. Efficacités de détection obtenus pour une source de ^{36}Cl (en bleu) et de ^{60}Co (en orange), avec une épaisseur de PTFE de 1200 µm.

Les taux de comptage sont de $3,09 \pm 0,05 \text{ s}^{-1}$ pour le ^{60}Co et de $0,22 \pm 0,01 \text{ s}^{-1}$ pour le ^{36}Cl . La valeur obtenue pour le ^{60}Co est supérieure à la valeur moyenne calculée précédemment de $2,1 \text{ s}^{-1}$. On constate que le signal du ^{36}Cl est inférieur devant celui du ^{60}Co . Ainsi, on peut considérer que cette épaisseur permettrait, en premier approche, la détermination du taux de comptage dû aux rayonnements gamma dans le cadre de notre exemple. Cependant, on peut anticiper que cette épaisseur de gaine ne serait pas suffisante pour des émetteurs bêta de haute énergie tels que le ^{90}Sr — ^{90}Y . La figure 4-27 présente l'ensemble des taux de comptage obtenus pour le ^{60}Co , où l'on peut constater que la valeur mesurée pour une épaisseur de 1200 µm est supérieure aux autres valeurs obtenues.

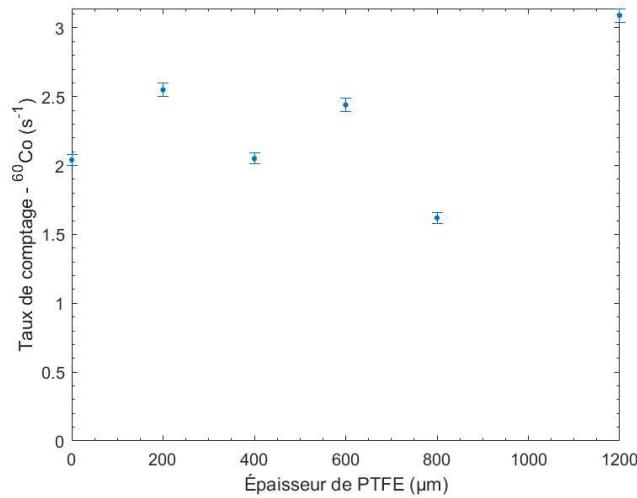


Fig. 4-27. Taux de comptage associé à la source de ${}^{60}\text{Co}$, en fonction l'épaisseur de PTFE appliquée. Les barres d'erreur sur les taux de comptage sont représentées à un écart-type.

Le tableau 4-4 présente les résultats de la soustraction de la valeur du taux de comptage obtenu pour le ${}^{60}\text{Co}$ avec une épaisseur de 1200 μm , aux valeurs des acquisitions avec double sources pour les épaisseurs de 0 à 800 μm (cf. figures 4-21 à 4-23). Cette nouvelle grandeur est appelée *taux de comptage bêta calculé*. Le résultat est comparé à la valeur réelle du taux de comptage bêta porté par le ${}^{36}\text{Cl}$ par un calcul de l'écart relatif entre les valeurs.

	Taux de comptage total (s^{-1}) (${}^{60}\text{Co} + {}^{36}\text{Cl}$)	Taux de comptage bêta calculé (s^{-1})	Taux de comptage bêta réel (s^{-1})	Écart relatif taux de comptage bêta
0 μm	$31,18 \pm 0,18$	$28,09 \pm 0,19$	$29,41 \pm 0,16$	-4,5%
200 μm	$26,27 \pm 0,15$	$23,18 \pm 0,16$	$19,75 \pm 0,13$	17,3%
400 μm	$12,48 \pm 0,10$	$9,39 \pm 0,11$	$11,8 \pm 0,10$	-20,4%
600 μm	$7,89 \pm 0,08$	$4,80 \pm 0,09$	$4,06 \pm 0,05$	18,2%
800 μm	$2,67 \pm 0,05$	$-0,42 \pm 0,07$	$1,35 \pm 0,03$	-131%

Tableau 4-4. Taux de comptage mesurés et calculés, avec les écarts relatifs associés pour les acquisitions de ${}^{36}\text{Cl}$ et ${}^{60}\text{Co}$.

Les écarts relatifs ont une valeur moyenne de 18,6% pour les épaisseurs de 200, 400 et 600 μm , et un écart de 4,5% est atteint pour une absence de couches de PTFE appliquées.

Pour une épaisseur de 800 µm, l'écart relatif dépasse 100% de la valeur réelle du taux de comptage bêta, ce qui s'explique tout d'abord par une faible valeur du taux de comptage bêta à cette épaisseur, visible sur la figure 4-9, ainsi que par une variation plus importante du taux de comptage gamma, visible sur la figure 4-24. L'une des applications envisageables consisterait alors en une mesure des taux de comptage pour différentes épaisseurs, avec une épaisseur suffisamment importante pour stopper toute particule bêta. Sous l'hypothèse que le signal gamma ne varie pas significativement entre chaque épaisseur, le taux de comptage bêta par épaisseur est alors connu. Cependant, le signal gamma varie en fonction de l'épaisseur utilisée, ce qui est montré sur la figure 4-27. Afin qu'une telle application soit possible, il serait donc nécessaire d'étudier les effets menant aux écarts observés sur la valeur du taux de comptage gamma.

4.4 Conclusions

En conclusion de ce chapitre, nous avons démontré expérimentalement la faisabilité de la méthode consistant à mesurer des particules bêta d'énergies distinctes à l'aide de paquets de fibres scintillantes présentant différentes épaisseurs de gaine. Le contraste généré par les variations d'épaisseurs de gaine est exploité par un algorithme de type ML-EM et permet de reconstruire les activités avec des différences inférieures à 10% aux activités réelles. Cependant, des limitations concernant la reproductibilité des mesures ont été rencontrées, et s'expliquent par l'inhomogénéité des couches de PTFE appliquées manuellement. L'application des couches de PTFE par un procédé industriel permettrait de s'affranchir de ces limitations. L'acquisition des données par couche de PTFE – sans modifier le protocole expérimental – permet de limiter les problèmes liés à cette inhomogénéité. La reconstruction des activités lors d'une discrimination bêta/gamma a alors atteint des écarts relatifs inférieurs à 6%. Enfin, nous avons évalué les performances d'un détecteur basé sur des fibres scintillantes caractérisées par différentes épaisseurs de gaines, dans le cadre d'une mesure en mode comptage, en séparant la contribution du signal gamma. Cette application ouvre ainsi la voie à de nouveaux développements dédiés à la spectrométrie bêta et adaptés aux contraintes expérimentales rencontrées dans le domaine du démantèlement.

- [1] M. J. Berger, J. Coursey, M. Zucker, and J. Chang, "ESTAR, PSTAR, and ASTAR: Computer Programs for Calculating Stopping-Power and Range Tables for Electrons, Protons, and Helium Ions (version 1.2.3)," *National Institute of Standards and Technology, Gaithersburg, MD*. <http://physics.nist.gov/Star> (accessed Jul. 04, 2021).
- [2] K. Lange and R. Carson, "EM reconstruction algorithms for emission and transmission tomography," *J. Comput. Assist. Tomogr.*, vol. 8, no. 2, pp. 306–316, Apr. 1984.
- [3] A. W. McCarthy and M. I. Miller, "Maximum likelihood SPECT in clinical computation times using mesh-connected parallel computers," *IEEE Trans. Med. Imaging*, vol. 10, no. 3, pp. 426–436, 1991, doi: 10.1109/42.97593.
- [4] G. Amoyal *et al.*, "Evaluation of Timepix3 Si and CdTe Hybrid-Pixel Detectors' Spectrometric Performances on X- and Gamma-Rays," *IEEE Trans. Nucl. Sci.*, vol. 68, no. 2, pp. 229–235, Feb. 2021, doi: 10.1109/TNS.2020.3041831.
- [5] H. Lemaire, "Développement d'une caméra gamma de troisième génération," Thèse de doctorat, Université de Caen Basse-Normandie, École doctorale SIMEM, 2015.
- [6] Nico.v.44, "Schéma du dispositif de Fabry Pérot utile à la détermination de la différence de marche." CC BY-SA 4.0, 2016, [Online]. Available: <https://commons.wikimedia.org/w/index.php?curid=47498020>.

Conclusion générale

Le démantèlement des installations nucléaires pose des problématiques majeures en termes de durée des chantiers, de radioprotection des travailleurs et de coût des travaux, présentées dans le premier chapitre. L'industrie nucléaire se doit de répondre de manière adéquate à ces enjeux, afin de maîtriser l'ensemble du cycle de vie d'une installation. Ce contrôle permet de maintenir la viabilité de l'industrie nucléaire dans une époque où la transition énergétique est un enjeu stratégique majeur pour notre société et son futur, et où la place du nucléaire dans cette transition est souvent questionnée.

Afin de répondre à ces problématiques majeures, le projet CARNOT CAPSUD a été initié dans l'objectif de développer, entre autres, un détecteur présentant des ruptures technologiques avec l'existant industriel. Ce détecteur devait être adapté à la caractérisation radiologique de grandes surfaces, parfois non planes et rugueuses, afin de localiser des contaminations radioactives de faibles activités. Pour cela, deux solutions techniques ont été explorées au début du projet, à savoir : les fibres scintillantes et les *phoswich*. Dans le cadre des travaux présentés au sein de ce mémoire de thèse, les fibres scintillantes ont été majoritairement étudiées. Ce choix a été effectué suite à l'étude bibliographique menée sur chacune des deux technologies et présentée dans le second chapitre. Cette étude a mis en évidence le caractère innovant lié à l'application des fibres scintillantes dans le domaine de la caractérisation radiologique de grandes surfaces. L'intérêt de la technologie *phoswich* pour cette application a cependant été étudié au travers du développement d'un modèle numérique, et a notamment fait l'objet d'une mission d'encadrement d'un stage de niveau Master 1. Le modèle développé est basé sur un prototype composé d'une matrice carrée de 25 *phoswich*, montés sur un support assurant la déformabilité recherchée. Des sources bêta et gamma ont été simulées, notamment le signal gamma du ^{137}Cs et le signal bêta du ^{36}Cl . Les réponses des détecteurs placés en face des sources, mais aussi adjacents, ont été étudiées et ont permis de conclure que des interstices entre les pixels n'étaient pas nécessaires pour améliorer la précision de la localisation. Une méthode de discrimination bêta/gamma adaptée a, de plus, été proposée pour ce détecteur, basée sur les spectres simulés des dépôts en énergie des rayonnements gamma et bêta.

Un détecteur basé sur des fibres scintillantes a ensuite été développé, celui-ci étant composé de 100 fibres scintillantes regroupées en un unique paquet et chaque fibre mesurant 40 cm de longueur. Chaque extrémité du paquet de fibres est reliée à un PMt afin de permettre la réalisation de mesures en coïncidence, ce qui a pour effet de réduire le signal dû au bruit de fond, et de s'assurer que le signal mesuré provient bien d'un évènement de scintillation dû à la source présente. Le détecteur a été caractérisé avec des sources bêta et gamma d'activités similaires, de l'ordre de quelques kBq, et ce dernier a montré une sensibilité supérieure aux sources bêta par rapport aux sources gamma. L'ordre de grandeur de cet écart

Conclusion générale

est d'un facteur dix environ. La sensibilité aux rayonnements gamma est suffisante pour affecter la mesure de la contribution bêta correspondant à une tâche de contamination, et nécessite d'employer une méthode de discrimination bêta/gamma. En résumé, ce détecteur a permis de démontrer la faisabilité d'un système de mesure bêta basé sur des fibres scintillantes pour la caractérisation radiologique de grandes surfaces.

En parallèle de ces développements, un modèle numérique du détecteur a été réalisé à l'aide du code de calcul MCNP6. Les limitations de la simulation Monte-Carlo ont motivé le développement d'un modèle mathématique qui, combiné aux résultats de simulation Monte Carlo, permet de générer des spectres de mesure attendus. Les résultats de simulation présentent un bon accord avec les données expérimentales. Néanmoins, le modèle possède des limitations. En effet, il reste encore des variables obtenues via des acquisitions expérimentales. La détermination absolue de ces variables, notamment celles liées au PMt comme par exemple l'écart-type associé à l'amplification ou la valeur même de l'amplification, permettrait d'obtenir un modèle indépendant des données expérimentales.

Grâce au modèle de simulation Monte Carlo tout d'abord, puis à l'aide du dispositif expérimental précédemment décrit, une méthode innovante de discrimination bêta/bêta et bêta/gamma a été inventée puis brevetée au cours de ces travaux. Elle repose sur l'utilisation combinée de fibres scintillantes caractérisées par différentes épaisseurs de gaines et de cœurs de fibres. En effet, en fonction de la particule considérée ou de son énergie dans le cas des particules chargées, des contrastes peuvent être mis en évidence entre les différentes signatures présentes au sein du signal mesuré. Ainsi, des émetteurs bêta de moyenne énergie, tel le ^{36}Cl , seront plus affectés que des émetteurs bêta haute énergie, tel le ^{90}Sr - ^{90}Y , par des gaines d'épaisseurs significatives. De plus, ce contraste a été exploité avec un algorithme itératif de type ML-EM. Pour cela, une base de données a été construite avec les mesures de sources prises individuellement. L'algorithme a été capable de déterminer les activités présentes avec des erreurs relatives inférieures à 20%, ce qui présente une amélioration par rapport à des reconstructions réalisées avec une unique épaisseur de gaine. Des axes d'amélioration de ces résultats sont présentés et ont montré leur pertinence à travers l'analyse de données obtenues à l'aide d'une source bêta de ^{36}Cl et d'une source gamma de ^{60}Co . En effet, les écarts relatifs obtenus pour les activités reconstruites sont de l'ordre de 5%.

Les recherches présentées dans ce mémoire ont donc permis de démontrer la possibilité d'utiliser les fibres scintillantes pour la détection et l'identification d'émetteurs bêta convolus, mais aussi de séparer une contribution gamma du signal bêta recherché, à l'aide d'un détecteur présentant une longueur globale de 40 cm. Un modèle numérique du détecteur a été développé et sa validité a été prouvée par le biais d'une comparaison avec des résultats expérimentaux. Le détecteur développé est fonctionnel et ouvre la voie à

Conclusion générale

l’élaboration d’un prototype de système de mesure compatible avec un déploiement sur le terrain. Ce jalon permet ainsi d’établir l’une des principales perspectives identifiées à l’issue de ces travaux de thèse. En effet, le prototype pourrait être constitué de plusieurs paquets de fibres – chaque paquet étant constitué par des fibres identiques et les différents paquets possédant différentes fibres en termes d’épaisseurs de gaine et de cœur de fibre. Cette approche permettrait de créer les contrastes recherchés entre des particules bêta de diverses énergies et d’entrevoir la mise en œuvre de la technique de mesure de spectrométrie bêta dans le cadre d’opérations de démantèlement. Par ailleurs, en associant plusieurs paquets de fibres et en les plaçant horizontalement et verticalement, la localisation d’un point chaud sur une surface de l’ordre de plusieurs centaines de centimètres carrés serait envisageable, atteignant ainsi une précision spatiale de l’ordre de quelques centimètres carrés. Enfin, l’évaluation des performances d’un tel système de mesure basé sur des fibres scintillantes en fonction de la contrainte de déformation induite sur les fibres – ou autrement dit en fonction de l’angle de courbure des fibres – fait notamment l’objet d’une étude en cours.

Liste des figures

FIG. 1-1. REACTEUR NUMERO 3 DE LA CENTRALE DE FUKUSHIMA-DAIICHI APRES LE TSUNAMI DE MARS 2011. SOURCE : REUTERS, 24 SEPTEMBRE 2011	6
FIG. 1-2. OPERATION DE DEMANTELEMENT DANS L'USINE UP1 DE MARCOULE. SOURCE : FRANCETNP	7
FIG. 1-3. VERIFICATION DU CARACTERE CONSERVATIF DE L'EPASSEUR A RETIRER. SOURCE [24]	11
FIG. 1-4. REPRESENTATION DES ORBITALES ELECTRONIQUES	20
FIG. 1-5. MOLECULE D'ETHYLENE ET LIAISONS FORMEES	21
FIG. 1-6. DIAGRAMME DE PERRIN-JABLONSKI POUR UNE CONFIGURATION π -ELECTRONIQUE QUELCONQUE	23
FIG. 1-7. ÉVOLUTION DE L'AMPLITUDE DES IMPULSIONS D'UN CRISTAL D'ANTHACENE EXPOSE A DES ELECTRONS, EN FONCTION DE L'ENERGIE DE CES DERNIERS [42]	28
FIG. 1-8. ÉVOLUTION DE LA REPONSE LUMINEUSE D'UN SCINTILLATEUR PLASTIQUE NE-101 EXPOSE A DES ELECTRONS, EN FONCTION DE L'ENERGIE DE CES DERNIERS [43]	28
FIG. 1-9. ÉVOLUTION DE LA REPONSE LUMINEUSE D'UN CRISTAL D'ANTHACENE EXPOSE A DES ELECTRONS, DES PROTONS ET DES PARTICULES ALPHA, EN FONCTION DE LEURS ENERGIES [44]. LES TRAITS PLEINS CORRESPONDENT A DES RESULTATS EXPERIMENTAUX ET LES TIRES A DES COURBES THEORIQUES	29
FIG. 1-10. QUALITE DE FAISCEAU EVALUEE EXPERIMENTALEMENT (EN NOIR), ET SIMULATION ASSOCIEE (EN ROUGE) PUIS CORRIGEE (EN BLEU). LA QUALITE DE FAISCEAU DESIGNE LE RAPPORT ENTRE LA DOSE DEPOSEE PAR L'ACCELERATEUR ET CELLE D'UN REFERENTIEL METROLOGIQUE	30
FIG. 2-1. SCHEMA DES AMPLITUDES GENEREES PAR UN PHOSWICH STILBENE/NAI(Tl) [2]. AXE DES ABSISSES EN UNITE ARBITRAIRE DE TEMPS ET AXE DES ORDONNEES EN UNITE ARBITRAIRE D'AMPLITUDE DE L'IMPULSION. LA CONTRIBUTION A L'AMPLITUDE DU SCINTILLATEUR RAPIDE EST DESIGNE PAR L'INDICE F (FAST), ET S (SLOW) POUR LE SCINTILLATEUR LENT	42
FIG. 2-2. SCHEMA DU MONTAGE PROPOSE PAR S. USUDA [3], COMPOSE : D'UN FILM DE ZNS(AG), D'UN CRISTAL D'ANTHACENE, ET D'UN VERRE SCINTILLANT (SILICATE) DOPE AU 6 Li DE NOM COMMERCIAL NS8	43
FIG. 2-3. IMPULSION ASSOCIEE A LA DETECTION D'UN RAYON GAMMA (ORANGE) ET D'UN NEUTRON (BLEU) DANS UN CRISTAL ORGANIQUE COMPOSE DE STILBENE [8]	45
FIG. 2-4. RESULTATS DE DISCRIMINATION D'UN PHOSWICH ZNS(AG)/GS2 EXPOSE SIMULTANEMENT A DES SOURCES DE 244 CM, DE 252 CF ET DE 137 Cs [12]. A) : DISCRIMINATION SUR TEMPS DE MONTEE DES IMPULSIONS, B) : DOUBLE DISCRIMINATION SUR LE TEMPS DE MONTEE ET L'AMPLITUDE DES IMPULSIONS	47
FIG. 2-5. SCHEMA DU DETECTEUR UTILISE POUR LA CARACTERISATION RADIOLOGIQUE DE TUYAUX. LE PHOSWICH EST COMPOSE D'UN CYLINDRE EN ZNS(AG) ET D'UN SCINTILLATEUR PLASTIQUE PLACE DERRIERE [12]	48
FIG. 2-6. PHOTOGRAPHIE DU SYSTEME DE MESURE ET DE L'ELECTRONIQUE ASSOCIEE [13]	48
FIG. 2-7. CONTAMINAMETRE EMPLOYE DE TYPE BERTHOLD LB124 SCINT (A GAUCHE), ET EXEMPLE D'UTILISATION SUR SITE (A DROITE) [14]	49
FIG. 2-8. SPECTROMETRE GAMMA HPGe AVEC SYSTEME ISOCS (A GAUCHE), ET EXEMPLE D'UTILISATION SUR SITE (A DROITE) [14]	49
FIG. 2-9. A) SCHEMA DU DETECTEUR EMPLOYE DANS LE SYSTEME PHORS, COMPOSE D'UN SCINTILLATEUR CAF2(Eu) ET D'UN SCINTILLATEUR NAI(Tl) [16]. B) PHOTOGRAPHIE DU SYSTEME EMBARQUE SUR DRONE, DONT L'ENSEMBLE DETECTEUR-PMT EST VISIBLE AU PREMIER PLAN [16]	51
FIG. 2-10. SCHEMA DU MONTAGE DU PHOSWICH SCINTILLATEUR LIQUIDE / SCINTILLATEUR PLASTIQUE [20]	52
FIG. 2-11. SCHEMA DE LA DISCRIMINATION NEUTRON/PROTON PAR FORME DE L'IMPULSION [20]	52
FIG. 2-12. RESOLUTION SPATIALE D'UN DETECTEUR BGO EXPOSE A UNE SOURCE GAMMA DE 140 KEV (A GAUCHE) ET 511 KEV (A DROITE) [21]	53
FIG. 2-13. SPECTRES DE MESURE AVEC SCINTILLATEUR YSO (MARQUEURS RONDS) ET LSO (TRAIT PLEIN), EXPOSES A UNE SOURCE GAMMA DE 511 KEV [21]	54

Liste des figures

FIG. 2-14. VISUALISATION DU PROBLEME DE LA PROFONDEUR D'INTERACTION EN DEUX DIMENSIONS POUR : A) UN MONO DETECTEUR, B) UN DETECTEUR PHOSWICH. EN ROUGE EST REPRESENTE LA TRAJECTOIRE REELLE DES PHOTONS EMIS LA SOURCE 1, ET EN VERT EST SYMBOLISE LA RECONSTRUCTION ASSOCIEE AVEC LA POSITION RECONSTRUISTE 2.	55
FIG. 2-15. UNITE DE LA MATRICE DE DETECTION DEVELOPPEE POUR LE PROJET CAPSUD.	56
FIG. 2-16. GEOMETRIE DU MODELE DE SIMULATION MCNP6 : PHOSWICH EN BLEU, COLLIMATEUR EN BEIGE, CYLINDE SOURCE EN GRIS ET FILM ENCAPSULATEUR EN ROUGE.....	59
FIG. 2-17. EFFICACITES DE DETECTION SIMULEES DU PHOSWICH EXPOSE A UNE SOURCE GAMMA DE 661,7 KEV. SIMULATIONS SANS ELECTRONS SECONDAIRES DESIGNES PAR LE MODE « P », ET SIMULATIONS AVEC PAR LE MODE « PE ».....	60
FIG. 2-18. EFFICACITE DE DETECTION SIMULEE POUR LE SCINTILLATEUR FIN EXPOSE A UNE SOURCE GAMMA DE 661,7 KEV, EN MODE PE. SCINTILLATEUR FIN UNIQUEMENT EN BLEU, ET PRESENCE DU SCINTILLATEUR EPAIS EN ORANGE.	61
FIG. 2-19. EFFICACITE DE SIMULATION SIMULEE DU PHOSWICH EXPOSE A UNE SOURCE BETA DE ^{36}Cl	61
FIG. 2-20. MATRICE SIMULEE DE 5×5 PHOSWICHES. L'ESPACE INTERSTITIEL EST EN ROUGE, CHAQUE CARRE DE MEME COULEUR REPRESENTE LES PHOSWICHES DONT LA REPONSE EST SIMILAIRE ET A ETE SIMULEE. LA SOURCE EST AU CENTRE DU PIXEL CENTRE, REPRESENTEE PAR UNE CROIX NOIRE.....	63
FIG. 2-21. SIMULATION DE L'EFFICACITE DE DETECTION DU SCINTILLATEUR EPAIS D'UN PIXEL EXCENTRE A UNE SOURCE DE ^{137}Cs A GAUCHE, ET A UNE SOURCE DE ^{36}Cl A DROITE, AVEC VARIATION DU MATERIAU COMPOSANT L'INTERSTICE.....	64
FIG. 2-22. SIMULATION DE L'EFFICACITE DE DETECTION DU SCINTILLATEUR FIN D'UN PIXEL EXCENTRE A UNE SOURCE DE ^{137}Cs A GAUCHE, ET A UNE SOURCE DE ^{36}Cl A DROITE, AVEC VARIATION DU MATERIAU COMPOSANT L'INTERSTICE.....	64
FIG. 2-23. SCHEMA D'UNE FIBRE SCINTILLANTE ET ANGLE SOLIDE CONDUISANT A UNE TRANSMISSION PAR REFLEXION OPTIQUE.....	66
FIG. 2-24. FONTAINE COLLADON ORIGINALE A GAUCHE [36], ET FONTAINE COLLADON MODERNE A DROITE PAR SEBASTIEN FORGET DU LABORATOIRE DE PHYSIQUE DES LASERS [37].	67
FIG. 2-25. HODOSCOPE ENVISAGE PAR BORENSTEIN [40].	68
FIG. 2-26. REPRESENTATION SCHEMATIQUE DU DETECTEUR ENVISAGE PAR REIFFEL ET KAPANY [41].	68
FIG. 2-27. SCHEMA DU PROTOTYPE DE DETECTEUR BASE SUR DES FIBRES SCINTILLANTES [42].	69
FIG. 2-28. SCHEMA D'UN DES DEUX PLANS DE L'HODOSCOPE CONSTITUE DE FIBRES SCINTILLANTES PLACEES PERPENDICULAIREMENT [43]. UNE PARTIE DES ASSEMBLAGES FIBRES/PMT N'EST PAS REPRESENTE DANS UN SOUCI DE LISIBILITE.	70
FIG. 2-29. PHOTOGRAPHIE DE L'HODOSCOPE A GAUCHE, PHOTOGRAPHIE DU BALLON SONDE DANS LEQUEL EST EMBARQUE L'HODOSCOPE A DROITE [44].	70
FIG. 2-30. SCHEMA DU DOSIMETRE IN-VIVO POUR NEUTRONS THERMIQUES LORS DE THERAPIES PAR CAPTURE NEUTRONIQUE DU BORE [45].	71
FIG. 2-31. SCHEMA DU TAPIS DE FIBRES EMPLOYE POUR LE SUIVI EN TEMPS REEL D'UNE DOSE DELIVREE PAR UN ACCELERATEUR MEDICAL [46].	72
FIG. 2-32. ETUDE DE L'INTERMODULATION ENTRE FIBRES SCINTILLANTES DANS LE TAPIS DE FIBRES SCINTILLANTES. SOURCE [46].	72
FIG. 2-33. PHOTOGRAPHIES DE DETECTEURS BASES SUR DES FIBRES SCINTILLANTES UTILISES POUR LA CARACTERISATION RADIOLOGIQUE DE FORETS (EN HAUT) ET SOLS URBAINS (EN BAS) [50].	74
FIG. 2-34. PHOTOGRAPHIE AERIENNE D'UN CHAMP CARACTERISE RADIOLOGIQUEMENT PAR UN DETECTEUR BASE SUR DES FIBRES SCINTILLANTES, ET RESULTATS DE MESURES A GAUCHE. SOURCE [51].....	75
FIG. 2-35. DETECTEUR DU DISPOSITIF SAFEWATER A GAUCHE, ET SYSTEME INTEGRE A DROITE [53].	76
FIG. 3-1. SCHEMA DE LA CHRONOLOGIE DE LA DETECTION D'UN RAYONNEMENT IONISANT, DE L'INTERACTION RAYONNEMENT MATIERE JUSQU'A L'INTERACTION AVEC L'ANODE DU PHOTODETECTEUR.	83
FIG. 3-2. SCHEMA D'UNE EMISSION LUMINEUSE DEPUIS L'AXE DE LA FIBRE CONDUISANT A UNE TRANSMISSION.....	85
FIG. 3-3. SCHEMA D'UNE EMISSION LUMINEUSE DEPUIS L'AXE DE LA FIBRE A GAUCHE, ET UN POINT HORS AXE DE LA FIBRE A DROITE. TOUS DEUX CONDUISENT A UNE TRANSMISSION. ANGLES D'INCIDENCES SURESTIMES A DES FINS D'ILLUSTRATION.....	86
FIG. 3-4. SCHEMA D'UNE TRANSMISSION LUMINEUSE D'UN RAYONNEMENT OBLIQUE.	86
FIG. 3-5. SCHEMA D'UNE TRANSMISSION LUMINEUSE D'UN RAYONNEMENT OBLIQUE POUR $\theta=32^\circ$	88

Liste des figures

FIG. 3-6. SPECTRE D'EMISSION DE LA FIBRE SCINTILLANTE BCF-10 [3].....	90
FIG. 3-7. SPECTRE D'ABSORPTION DE LA FIBRE SCINTILLANTE BCF-10 [4]. SIF ET CUT-BACK SONT DES REFERENCES A LA METHODE D'ILLUMINATION EMPLOIEE. LA CROIX NOIRE PRESENTE LE PIC DE LONGUEUR D'ONDE D'EMISSION DE LA FIBRE ETUDIEE.....	90
FIG. 3-8. PUissance totale emise ramenee a 1 en fonction de la distance entre l'origine de la scintillation et le photomultiplicateur 1, dans une fibre scintillante BCF-10 de 40 cm.....	92
FIG. 3-9. COEFFICIENT DE TRANSMISSION FIBRE/GRAISSE OPTIQUE EN FONCTION DE L'ANGLE D'INCIDENCE EN DEGRES.....	93
FIG. 3-10. COEFFICIENT DE TRANSMISSION GRAISSE OPTIQUE/VERRE EN FONCTION DE L'ANGLE D'INCIDENCE EN DEGRES.....	94
FIG. 3-11. EFFICACITE QUANTIQUE DE LA PHOTOCATHODE DU PMT 9205B FABRIQUE PAR ET ENTERPRISES EN FONCTION DE LA LONGUEUR D'ONDE DES PHOTONS INCIDENTS [14].....	96
FIG. 3-12. GAIN DU PMT (AXE VERTICAL A DROITE) EN FONCTION DE LA TENSION D'ALIMENTATION APPLIQUEE EN KILOVOLT [14]. L'AXE VERTICAL A GAUCHE REPRESENTE LA SENSIBILITE LUMINEUSE EXPRIMEE EN AMPERE PAR LUMEN.....	97
FIG. 3-13. SCHEMA DE CONCEPTION DU DETECTEUR DEVELOPPE, AVEC PHOTOGRAPHIES DES SUPPORTS POUR PMT AVANT FIXATION DU PAQUET DE FIBRES.....	99
FIG. 3-14. MONTAGE DU SUPPORT POUR PAQUET DE FIBRES SUR UN PMT, SANS EMBASE. LA PIECE EN ALUMINIUM EST VISIBLE AU PREMIER PLAN ET LA PIECE EN PLASTIQUE EST A L'ARRIERE DU PMT, DE COULEUR NOIRE. DES ELASTIQUES SONT TENDUS ENTRE LES DEUX PIECES A L'AIDE DES EPERONS.....	99
FIG. 3-15. DETECTEUR COMPOSE D'UN PAQUET DE 100 FIBRES SCINTILLANTES PLACE ENTRE DEUX PMT.	100
FIG. 3-16. IMPULSION DU SIGNAL THERMOIONIQUE. PAR DES FLECHES ROUGES EST REPRESENTE L'AMPLITUDE DU BRUIT JOHNSON-NYQUIST, ET PAR DES FLECHES NOIRES EST REPRESENTE L'AMPLITUDE DU BRUIT A PARTIR DE LA VALEUR MOYENNE, PUIS LA MOITIE DE CETTE VALEUR. LA TENSION D'ALIMENTATION DU PMT EST DE 850 V.....	100
FIG. 3-17. EFFICACITE DE DETECTION DES SOURCES DE ^{36}Cl ET ^{90}Sr - ^{90}Y , EN FONCTION DE LA CHARGE DE L'IMPULSION NUMERISEE. TENSION D'ALIMENTATION DES PMT : 850 V.....	102
FIG. 3-18. EFFICACITE DE DETECTION DES SOURCES DE ^{36}Cl ET ^{90}Sr - ^{90}Y , EN FONCTION DE LA CHARGE DE L'IMPULSION NUMERISEE. TENSION D'ALIMENTATION DES PMT : 1200 V.....	103
FIG. 3-19. BRUIT DE FOND MESURE POUR UNE TENSION D'ALIMENTATION DE 850 V. TAUX DE COMPTAGE TOTAL : 0,2 COUPS/S ET TEMPS D'ACQUISITION D'UNE HEURE ET 16 MINUTES.	104
FIG. 3-20. BRUIT DE FOND MESURE POUR UNE TENSION D'ALIMENTATION DE 1200 V. TAUX DE COMPTAGE TOTAL : 40,7 COUPS/S ET TEMPS D'ACQUISITION DE 5 MINUTES ET 25 SECONDES.	104
FIG. 3-21. FLUX SURFACIQUE SIMULE DES PARTICULES B ⁻ TRAVERSANT 150 μm DE MYLAR POUR UNE SOURCE DE ^{137}Cs ET DE ^{60}Co	105
FIG. 3-22. TAUX DE COMPTAGE NORMALISE A L'ACTIVITE DE LA SOURCE POUR LE ^{60}Co ET LE ^{137}Cs , EN FONCTION DE LA CHARGE DE L'IMPULSION NUMERISEE. TENSION D'ALIMENTATION DES PMT : 850 V.	106
FIG. 3-23. TAUX DE COMPTAGE NORMALISE A L'ACTIVITE DE LA SOURCE POUR LE ^{60}Co ET LE ^{137}Cs , EN FONCTION DE LA CHARGE DE L'IMPULSION NUMERISEE. BLINDAGE EN ALUMINIUM D'UN MILLIMETRE D'EPASSEUR PLACE SUR LA SOURCE. TENSION D'ALIMENTATION DES PMT : 850 V.	107
FIG. 3-24. GEOMETRIE DU DETECTEUR SIMULEE. EN JAUNE SONT REPRESENTEES LES CŒURS DE FIBRES, EN BLEU LA GAINNE ET EN ROUGE L'AIR AMBIANT.	108
FIG. 3-25. SCHEMA DU DECOUPAGE DU PARCOURS SIMULE DES ELECTRONS DANS LE CŒUR DE FIBRE SCINTILLANTE. À GAUCHE EST SCHEMATISE LE PARCOURS D'UN ELECTRON DANS UN CŒUR DE FIBRE, ET A DROITE EST SCHEMATISE LE TRAITEMENT NUMERIQUE D'INTEGRATION. E_{ENTREE} ET E_{SORTIE} CORRESPONDENT RESPECTIVEMENT A L'ENERGIE D'ENTREE ET DE SORTIE DE L'ELECTRON DANS LE CŒUR DE FIBRE, ET dr CORRESPOND A L'INTERVALLE D'INTEGRATION.....	111
FIG. 3-26. SIMULATION DU NOMBRE DE PHOTONS DE SCINTILLATION GENERES DANS LE PAQUET DE FIBRE PAR PARTICULE BETA DE ^{36}Cl	111
FIG. 3-27. SIMULATION DU NOMBRE DE PHOTONS DE SCINTILLATION GENERES DANS LE PAQUET DE FIBRE PAR PARTICULE BETA DE ^{90}Sr - ^{90}Y	112

Liste des figures

FIG. 3-28. SIMULATION DU NOMBRE DE PHOTONS DE SCINTILLATION GENERES, TRANSMIS ET AUTO-ABSORBES DANS LE PAQUET DE FIBRES PAR PARTICULE BETA DE ^{36}Cl	113
FIG. 3-29. SIMULATION DU NOMBRE DE PHOTONS DE SCINTILLATION GENERES, TRANSMIS ET AUTO-ABSORBES DANS LE PAQUET DE FIBRES PAR PARTICULE BETA DE ^{90}Sr - ^{90}Y	113
FIG. 3-30. SIMULATION DU NOMBRE DE PHOTOELECTRONS EMIS PAR LA PHOTOCATHODE PAR PARTICULE BETA DE ^{36}Cl	114
FIG. 3-31. SIMULATION DU NOMBRE DE PHOTOELECTRONS EMIS PAR LA PHOTOCATHODE PAR PARTICULE BETA DE ^{90}Sr - ^{90}Y	114
FIG. 3-32. AJUSTEMENT GAUSSIEN AUX DONNEES D'ACQUISITION DU ^{36}Cl	115
FIG. 3-33. SPECTRE EN CHARGE DES IMPULSIONS SIMULEES PAR PARTICULE DE ^{36}Cl , AMPLIFICATION THEORIQUE	115
FIG. 3-34. SPECTRE EN CHARGE DES IMPULSIONS SIMULEES PAR PARTICULE DE ^{90}Sr - ^{90}Y , AMPLIFICATION THEORIQUE	116
FIG. 3-35. SIMULATION DU SPECTRE EN CHARGE DES IMPULSIONS AVEC CORRECTION DU GAIN PAR PARTICULE DE ^{36}Cl SIMULEE	117
FIG. 3-36. SIMULATION DU SPECTRE EN CHARGE DES IMPULSIONS AVEC CORRECTION DU GAIN PAR PARTICULE DE ^{90}Sr - ^{90}Y SIMULEE	117
FIG. 3-37. FONCTION DE REPONSE ASSOCIEE AU SEUIL DE DETECTION A 2,2 PC SOUS UNE DISTRIBUTION NORMALE	118
FIG. 3-38. SIMULATION DU SPECTRE EN CHARGE DES IMPULSIONS, AVEC CORRECTION DU GAIN ET PRISE EN COMPTE DE L'EFFET DE SEUIL, PAR PARTICULE DE ^{36}Cl SIMULEE	118
FIG. 3-39. SIMULATION DU SPECTRE EN CHARGE DES IMPULSIONS, AVEC CORRECTION DU GAIN ET PRISE EN COMPTE DE L'EFFET DE SEUIL, PAR PARTICULE DE ^{90}Sr - ^{90}Y SIMULEE	119
FIG. 3-40. COMPARAISON DES DONNEES EXPERIMENTALES (ORANGE) ET SIMULEES (BLEU) POUR UNE SOURCE DE ^{36}Cl	120
FIG. 3-41. COMPARAISON DES DONNEES EXPERIMENTALES (ORANGE) ET SIMULEES (BLEU) POUR UNE SOURCE DE ^{90}Sr - ^{90}Y	120
FIG. 3-42. COMPARAISON DES DONNEES EXPERIMENTALES (ORANGE) ET SIMULEES (BLEU) POUR UNE SOURCE DE ^{36}Cl , POUR UNE AMPLIFICATION SIMULEE OPTIMISEE. GAIN CALCULE A $1,19 \cdot 10^5$	121
FIG. 3-43. COMPARAISON DES DONNEES EXPERIMENTALES (ORANGE) ET SIMULEES (BLEU) POUR UNE SOURCE DE ^{90}Sr - ^{90}Y , POUR UNE AMPLIFICATION SIMULEE OPTIMISEE. GAIN CALCULE A $1,19 \cdot 10^5$	122
FIG. 3-44. COMPARAISON DES DONNEES EXPERIMENTALES (ORANGE) ET SIMULEES (BLEU) POUR UNE SOURCE DE ^{60}Co , POUR UNE AMPLIFICATION SIMULEE OPTIMISEE. GAIN CALCULE A $1,50 \cdot 10^5$	122
FIG. 3-45. COMPARAISON DES DONNEES EXPERIMENTALES (ORANGE) ET SIMULEES (BLEU) POUR UNE SOURCE DE ^{137}Cs , POUR UNE AMPLIFICATION SIMULEE OPTIMISEE. GAIN CALCULE A $1,50 \cdot 10^5$	123
FIG. 4-1. SCHEMA DES DEUX FIBRES SCINTILLANTES SIMULEES	127
FIG. 4-2. ENERGIE DEPOSEE PAR PARTICULE SOURCE DANS LE COEUR DE FIBRE, POUR DES SOURCES SIMULEES DE ^{90}Sr ET ^{90}Y ET POUR DEUX EPAISSEURS DE GAINES DIFFERENTES	128
FIG. 4-3. POUVOIR D'ARRET ELECTRONIQUE DU POLYSTYRENE ($P = 1,05$) EN FONCTION DE L'ENERGIE DES ELECTRONS [1]	129
FIG. 4-4. PHOTOGRAPHIES DU MONTAGE EXPERIMENTAL AVEC UNE COUCHE DE PTFE DE $200 \mu\text{m}$ D'EPATISSEUR ENROULEE AUTOUR DU PAQUET DE FIBRES (FIGURE DU HAUT), ET MONTAGE EXPERIMENTAL AVEC QUATRE COUCHES DE PTFE EQUIVALENT A $800 \mu\text{m}$ DE PTFE ENROULEES AUTOUR DU PAQUET DE FIBRES (FIGURE DU BAS)	137
FIG. 4-5. EFFICACITES DE DETECTION POUR UNE SOURCE DE ^{36}Cl (EN BLEU) ET DE ^{90}Sr - ^{90}Y (EN ORANGE), AVEC UNE EPAISSEUR DE PTFE DE $0 \mu\text{m}$ (A GAUCHE) ET $200 \mu\text{m}$ (A DROITE)	138
FIG. 4-6. EFFICACITES DE DETECTION POUR UNE SOURCE DE ^{36}Cl (EN BLEU) ET DE ^{90}Sr - ^{90}Y (EN ORANGE), AVEC UNE EPAISSEUR DE PTFE DE $400 \mu\text{m}$ (A GAUCHE) ET $600 \mu\text{m}$ (A DROITE)	138
FIG. 4-7. EFFICACITES DE DETECTION POUR UNE SOURCE DE ^{36}Cl (EN BLEU) ET DE ^{90}Sr - ^{90}Y (EN ORANGE), AVEC UNE EPAISSEUR DE PTFE DE $800 \mu\text{m}$	138
FIG. 4-8. SCHEMA DE PRINCIPE D'UN INTERFEROMETRE DE FABRY-PERROT [6]	139
FIG. 4-9. EFFICACITES DE DETECTION SOMMEES POUR LA SOURCE DE ^{36}Cl ET DE ^{90}Sr - ^{90}Y EN FONCTION DE L'EPATISSEUR DE PTFE UTILISEE	140
FIG. 4-10. TAUX DE COMPTAGE OBTENUS POUR UNE ACQUISITION AVEC DES SOURCES DE ^{36}Cl ET DE ^{90}Sr - ^{90}Y POSITIONNEES SIMULTANEMENT, AVEC UNE EPAISSEUR DE PTFE DE $0 \mu\text{m}$ (A GAUCHE) ET $200 \mu\text{m}$ (A DROITE)	141

Liste des figures

FIG. 4-11. TAUX DE COMPTAGE OBTENUS POUR UNE ACQUISITION AVEC DES SOURCES DE ^{36}Cl ET DE ^{90}Sr - ^{90}Y POSITIONNEES SIMULTANEMENT, AVEC UNE EPAISSEUR DE PTFE DE 400 μm (A GAUCHE) ET 600 μm (A DROITE)	141
FIG. 4-12. TAUX DE COMPTAGE OBTENUS POUR UNE ACQUISITION AVEC DES SOURCES DE ^{36}Cl ET DE ^{90}Sr - ^{90}Y POSITIONNEES SIMULTANEMENT, AVEC UNE EPAISSEUR DE PTFE DE 800 μm	141
FIG. 4-13. TAUX DE COMPTAGE SOMMES LORSQUE LES DEUX SOURCES DE ^{36}Cl ET ^{90}Sr - ^{90}Y SONT PRESENTES, EN FONCTION DE L'EPAILLEUR DE PTFE UTILISEE.....	142
FIG. 4-14. SPECTRES D'ACQUISITION (EN BLEU) ET RECONSTRUCTION ML-EM (EN ORANGE) POUR LES CINQ EPAISSEURS DE PTFE UTILISEES, DE GAUCHE A DROITE : 0, 200, 400, 600 ET 800 μm ; POUR LES SOURCES DE ^{36}Cl ET ^{90}Sr - ^{90}Y	143
FIG. 4-15. SPECTRES D'ACQUISITION ET RECONSTRUCTION ML-EM POUR LES EPAISSEURS DE PTFE UTILISEES DE 200 A GAUCHE ET 800 μm A DROITE, POUR UNE SOURCE DE ^{36}Cl ET ^{90}Sr - ^{90}Y	144
FIG. 4-16. SPECTRES D'ACQUISITION ET RECONSTRUCTION ML-EM POUR LES EPAISSEURS DE PTFE UTILISEES DE 200 μm A GAUCHE ET 800 μm A DROITE, POUR DES SOURCES DE ^{36}Cl ET ^{90}Sr - ^{90}Y	146
FIG. 4-17. SPECTRES D'ACQUISITION ET RECONSTRUCTION ML-EM POUR LES CINQ EPAISSEURS DE PTFE UTILISEES, DE GAUCHE A DROITE 0, 200, 400, 600 ET 800 μm , POUR LES SOURCES DE ^{36}Cl ET ^{90}Sr - ^{90}Y . NOUVEL ECHANTILLONNAGE DE LA CHARGE PRIS EGAL A 0,1 PC PAR CANAL.....	147
FIG. 4-18. SPECTRE D'ACQUISITION DOUBLE SOURCE ET RECONSTRUCTION ATTENDUE POUR LES EPAISSEURS DE PTFE DE 0 ET 800 μm , GAUCHE ET DROITE RESPECTIVEMENT. NOUVEL ECHANTILLONNAGE DE LA CHARGE A 0,1 PC PAR CANAL.....	148
FIG. 4-19. PHOTOGRAPHIE DES ECARTS ET SUPERPOSITIONS OBSERVES SUR LE PAQUET DE FIBRES.....	149
FIG. 4-20. ACQUISITIONS REALISEES A DIFFERENTES DATES AVEC UNE SOURCE DE ^{36}Cl ET UNE EPAISSEUR DE PTFE AUTOUR DU PAQUET DE FIBRES DE 200 μm A GAUCHE ET DE 800 μm A DROITE.....	149
FIG. 4-21. EFFICACITES DE DETECTION POUR UNE SOURCE DE ^{36}Cl (EN BLEU) ET DE ^{60}Co (EN ORANGE), AVEC UNE EPAISSEUR DE PTFE DE 0 μm (A GAUCHE) ET 200 μm (A DROITE)	150
FIG. 4-22. EFFICACITES DE DETECTION POUR UNE SOURCE DE ^{36}Cl (EN BLEU) ET DE ^{60}Co (EN ORANGE), AVEC UNE EPAISSEUR DE PTFE DE 400 μm (A GAUCHE) ET 600 μm (A DROITE)	151
FIG. 4-23. EFFICACITES DE DETECTION POUR UNE SOURCE DE ^{36}Cl (EN BLEU) ET DE ^{60}Co (EN ORANGE), AVEC UNE EPAISSEUR DE PTFE DE 800 μm	151
FIG. 4-24. TAUX DE COMPTAGE ASSOCIE A LA SOURCE DE ^{60}Co , POUR CHAQUE EPAISSEUR DE PTFE APPLIQUEE. INCERTITUDES SUR LE CALCUL DU TAUX DE COMPTAGE A UN ECART-TYPE REPRESENTEES.....	152
FIG. 4-25. SPECTRES D'ACQUISITION ET RECONSTRUCTION ML-EM POUR LES CINQ EPAISSEURS DE PTFE UTILISEES, DE GAUCHE A DROITE : 0, 200, 400, 600 ET 800 μm ; POUR LES SOURCES DE ^{36}Cl ET ^{60}Co . NOUVEL ECHANTILLONNAGE DE LA CHARGE PRIS EGAL A 0,1 PC PAR CANAL.....	152
FIG. 4-26. EFFICACITES DE DETECTION OBTENUS POUR UNE SOURCE DE ^{36}Cl (EN BLEU) ET DE ^{60}Co (EN ORANGE), AVEC UNE EPAISSEUR DE PTFE DE 1200 μm	154
FIG. 4-27. TAUX DE COMPTAGE ASSOCIE A LA SOURCE DE ^{60}Co , POUR CHAQUE EPAISSEUR DE PTFE APPLIQUEE ET EPAISSEUR DE 1200 μm . LES BARRES D'ERREUR SUR LES TAUX DE COMPTAGE SONT REPRESENTEES A UN ECART-TYPE.....	155

Liste des tableaux

TABLEAU 1-1. CONFIGURATION ELECTRONIQUE DU CARBONE.....	20
TABLEAU 2-1. RAPPORTS DES INTERACTIONS DANS LES SCINTILLATEURS COMPOSANT LE PHOSWICH.....	62
TABLEAU 4-1. ACTIVITES D'ENTREE ET ACTIVITES RECONSTRUITES AVEC L'ALGORITHME ML-EM.....	136
TABLEAU 4-2. ACTIVITES RECONSTRUITES PAR L'ALGORITHME ML-EM ET ECARTS RELATIFS ASSOCIES, POUR CHAQUE EPAISSEUR DE GAINES PRISE INDEPENDAMMENT, POUR LES SOURCES DE ^{36}Cl ET ^{90}Sr — ^{90}Y	145
TABLEAU 4-3. ACTIVITES RECONSTRUITES PAR L'ALGORITHME ML-EM, ET ECARTS RELATIFS ASSOCIES, POUR CHAQUE EPAISSEUR DE GAINES PRISE INDEPENDAMMENT, POUR LES SOURCES DE ^{36}Cl ET ^{60}Co	153
TABLEAU 4-4. TAUX DE COMPTAGE MESURES ET CALCULES, AVEC LES ECARTS RELATIFS ASSOCIES POUR LES ACQUISITIONS DE ^{36}Cl ET ^{60}Co	155

Valorisation scientifique

Publications en premier auteur :

N. Dufour et al., “Measurement of low-activity uranium contamination by gamma-ray spectrometry for nuclear decommissioning,” Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. A Accel. Spectrometers, Detect. Assoc. Equip., vol. 951, p. 162976, Jan. 2020, doi: 10.1016/j.nima.2019.162976.

N. Dufour, A. Sari, G. H. V. Bertrand, and F. Carrel, “Scintillating fibre based beta spectrometer: Proof of concept by Monte-Carlo simulation and first experimental assessment,” Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. A Accel. Spectrometers, Detect. Assoc. Equip., vol. 1010, p. 165548, Sep. 2021, doi: 10.1016/j.nima.2021.165548.

Publications en co-auteur :

V. Villemot, **N. Dufour**, S. Mauree, B. Sabot, G. H. V. Bertrand, M. Hamel, “From sintering to particle discrimination: New opportunities in Metal-Organic Frameworks scintillators,” Advanced photonics research, p. 2100259, Oct. 2021, doi: 10.1002/adpr.202100259.

A. Sari, S. Garti, F. Lainé, H. Makil, **N. Dufour**, et al., “Detection and quantification of copper in scrap metal by linac-based neutron activation analysis,” Appl. Radiat. Isot., vol. 166, p. 109339, Dec. 2020, doi: 10.1016/j.apradiso.2020.109339.

H. Arahmane, J. Dumazert, E. Barat, T. Dautremer, **N. Dufour**, et al., “A Reliable Absolute and Relative Bayesian Method for Nuclear Decommissioning: Low-Level Radioactivity Detection With Gamma-Ray Spectrometry,” IEEE Trans. Instrum. Meas., vol. 70, pp. 1–18, 2021, doi: 10.1109/TIM.2021.3065419.

Brevets :

N. Dufour, A. Sari, “Dispositif d’analyse de rayonnement β et procédé d’analyse associé”, Commissariat à l’Énergie Atomique, déposé le 07/05/19, FR3095863, EP3736609.

N. Dufour, A. Sari, C. Frangville, “Système d’analyse de colis de déchets radioactifs et procédé d’analyse associé”, Commissariat à l’Énergie Atomique, déposé le 29/07/19, FR3099588, WO2021019165.

Valorisation scientifique

J. Dumazert, E. Barat, **N. Dufour**, T. Dautremer, “ Système de spectroscopie et procédé de spectroscopie associé ”, Commissariat à l’Énergie Atomique.

A. Sari, **N. Dufour**, F. Carrel, S. Garti, “Système d’analyse de colis, procédé d’analyse et produit programme d’ordinateur associés”, Commissariat à l’Énergie Atomique, déposé le 16/09/2020, n° dépôt FR2009365.

A. Sari, **N. Dufour**, “ Dispositif de détection comportant différentes couches de scintillation ”, Commissariat à l’Énergie Atomique, déposé le 24/12/20, n° dépôt FR2014154.

Conférences internationales en premier auteur :

N. Dufour, A. Sari, F. Carrel, J. Dumazert, G.H.V. Bertrand, “Scintillating Fiber based Beta Spectrometer: Principle and Proof of Concept”, 2019 IEEE Nuclear Science Symposium & Medical Imaging Conference, Manchester, Royaume-Uni, 26 octobre – 2 novembre 2019.

N. Dufour, A. Sari, J. Dumazert, R. Coulon, G.H.V. Bertrand, F. Carrel, “Scintillating Fiber based Beta Spectrometer: Response Function Determination”, 2020 IEEE Nuclear Science Symposium & Medical Imaging Conference, Boston, États-Unis d’Amérique, 31 octobre – 7 novembre 2020.

N. Dufour, A. Sari, J. Dumazert, G. Bertrand, F. Carrel, “Simulation of the physical processes associated to the detection of beta particles with scintillating fibres”, 7th International conference on Advancements in Nuclear Instrumentation Measurement Methods and their Applications (ANIMMA) 2021, Prague, République Tchèque, 21-25 juin 2021.

N. Dufour, A. Sari, G.H.V. Bertrand, F. Carrel, “Scintillating Fiber based Beta Spectrometer: Response Function Determination”, 2021 IEEE Nuclear Science Symposium & Medical Imaging Conference, Yokohama, Japon, 13-23 octobre 2021.

N. Dufour, A. Sari, G.H.V. Bertrand, F. Carrel, “Study of macrobending losses in plastic scintillating fibres exposed to beta sources”, 2020 IEEE Nuclear Science Symposium & Medical Imaging Conference, Yokohama, Japon, 13-23 octobre 2021.

Conférences internationales en co-auteur :

Valorisation scientifique

J. Dumazert, **N. Dufour** (speaker), "Decommissioning nuclear facilities: a case study in low-count-rate gamma-ray spectrometry", 6th International conference on Advancements in Nuclear Instrumentation Measurement Methods and their Applications (ANIMMA) 2019, Portoroz, Slovénie, 17-21 juin 2019.

A. Sari, S. Garti, F. Lainé, F. Carrel, J. Dumazert, H. Makil, **N. Dufour**, *et al.*, "The Potential of Photon Activation and Neutron Activation Techniques for Fast Soil Characterization", 6th International conference on Advancements in Nuclear Instrumentation Measurement Methods and their Applications (ANIMMA) 2019, Portoroz, Slovénie, 17-21 juin 2019.

H. Arahmane, J. Dumazert, E. Barat, T. Dautremer, **N. Dufour**, *et al.*, "A Bayesian method for nuclear decommissioning: low level radioactivity measurement with gamma-ray spectrometry", 2020 IEEE Nuclear Science Symposium & Medical Imaging Conference, Boston, États-Unis d'Amérique, 31 octobre – 7 novembre 2020.

Distinctions scientifiques :

2019 NPSS Student Paper Awards, prix du meilleur poster.

Encadrement :

Stage de Mohamed BENYAKHLEF, 04/2020 – 09/2020 « Dimensionnement par simulation Monte-Carlo d'un détecteur de type *phoswich* adapté à la caractérisation radiologique des grandes surfaces », Master 1 – Instrumentation, Université de Bordeaux.