PHÉNOMÈNES ÉLÉMENTAIRES DANS UN SYSTÈME IRRADIÉ APPLICATION A LA DOSIMÉTRIE

E. ABILLON, P. DELATTRE, G. NAUDET, R. SENAUX (*)
(Manuscrit reçu le 23 mars 1970)

RÉSUMÉ

L'étude de l'effet des rayonnements sur un système irradié est faite au niveau des interactions élémentaires. Il est montré que les paramètres qu'il est indispensable de connaître pour rendre compte de l'évolution du système sont : d'une part, les sections efficaces d'interaction et, d'autre part, les spectres des particules libres existant dans le milieu. Les paramètres utilisés en dosimétrie tels que : dose, E.B.R., T.L.E., sont explicités dans le cadre du formalisme présenté.

INTRODUCTION

La dosimétrie, au même titre que la thermodynamique classique, part d'un point de vue macroscopique. Elle est en outre fondée sur un postulat qui reste souvent implicite, à savoir que c'est l'énergie totale apportée au système par le rayonnement qui est responsable des effets observés. Dans cette optique, on admet donc que la connaissance de cette énergie totale absorbée dans le système fournit un paramètre de référence convenable pour repérer les effets divers constatés. Ceci revient à négliger à la fois la spécificité des différents phénomènes qui ont lieu au niveau moléculaire, et l'ordre, c'est-à-dire la succession ou l'enchaînement, qui peut exister entre eux. Ces phénomènes peuvent dépendre directement ou indirectement du rayonnement, et entraîner un apport ou un retrait d'énergie du système sous des formes très diverses correspondant aux modifications que subissent les espèces en présence.

Les tentatives faites depuis quelques années pour élaborer une microdosimétrie ne diffèrent pas essentiellement, dans leur esprit, de la dosimétrie classique. La microdosimétrie reste, dans son esprit et dans ses méthodes une approche macroscopique. La prise en considération d'éléments de volume de plus en plus petit ne conduit pas à l'élaboration d'une théorie microscopique si l'on n'explique pas le contenu spécifique de ces éléments de volume et les interactions élémentaires qui s'y produisent. Cette critique est applicable à la microdosimétrie dans laquelle, en particulier, le concept global d'énergie conserve la même place prééminente que dans la dosimétrie classique.

(*) G.E.E.R.S.M. - Centre d'Etudes Nucléaires de Saclay. B.P. n° 2, 91 - Gif-sur-Yvette.

Si l'on veut rendre compte de l'évolution qualitative et quantitative des systèmes irradiés, la nécessité de prendre en considération la spécificité des différentes transformations qui se produisent au niveau moléculaire, ainsi que leurs enchaînements, apparaît clairement dans le cadre d'une théorie au niveau des phénomènes élémentaires. Mais la simple observation pratique de quelques cas extrêmes conduit à la même conclusion. Citons les réactions suivantes à titre d'exemple :

Il suffit d'apporter une très petite quantité d'énergie pour transformer tout le système.

Même si l'on apporte une grande quantité d'énergie, les transformations qualitatives du système restent pratiquement négligeables.

— Dans une première partie, nous ferons une description qualitative et quantitative du système irradié, au niveau des interactions élémentaires. Nous dégagerons la notion d'événement, conséquence des interactions entre éléments constituant le système, et nous définirons les « doses d'événements ».

— Dans une deuxième partie, nous expliciterons le rôle joué par ces « doses d'événements » dans l'évolution du système. Un exemple de système très simple nous permettra de comparer le point de vue ici présenté avec celui de la dosimétrie.

— Dans une troisième partie, nous exprimerons les paramètres de la dosimétrie classique en fonction des grandeurs qu'il est nécessaire d'introduire dans le cadre d'une approche explicative de l'évolution des systèmes irradiés.

I - DESCRIPTION DU SYSTÈME AU NIVEAU DES INTERACTIONS ÉLÉMENTAIRES

Tout système, chimique ou biologique, soumis à une irradiation comporte, à un instant donné, un certain nombre d'éléments de natures différentes : atomes, ions, molécules, électrons, photons..., etc. Tous ces éléments interagissent. Nous allons effectuer une partition du système en classes d'équivalence telles que l'interaction d'un élément (a) de la classe A avec un élément (b) de la classe B conduise à un événement donné avec une probabilité constante, indépendante des éléments $a \in A$ et $b \in B$. Nous aurons alors affaire à un système statistique, et le nombre d'événements ayant lieu par unité de volume au point $\vec{r}$ et par unité de temps au temps t , consécutivement à l'interaction des éléments de la classe A avec les éléments de la classe B, sera proportionnel au nombre d'éléments $a \in A$ et $b \in B$ présents au temps t , dans l'unité de volume entourant le point $\vec{r}$.

De telles classes d'équivalence sont définies à l'intérieur de deux sous-systèmes disjoints :

- le sous-système des particules libres, comprenant les électrons libres et les photons existant dans le milieu (dans le cas d'irradiation par des photons ou par des électrons).
- le sous-système des espèces comprenant tous les autres éléments : atomes, molécules, ions, radicaux libres...

1.1. - SOUS-SYSTÈME DES ESPÈCES

Les classes du sous-système des espèces sont définies de la façon suivante :

A l'intérieur d'une classe, tous les éléments sont identiques, l'identité étant définie par le fait que ces éléments doivent tous comporter les mêmes noyaux d'atomes et le même nombre d'électrons situés aux mêmes niveaux énergétiques. Deux éléments, qui diffèrent par la situation énergétique d'au moins un électron, sont considérés comme appartenant à deux classes différentes.

La population de chaque classe « i » est définie en chaque point du système et à chaque instant par le nombre de ses éléments $N_i(\vec{r}, t)$ par unité de volume.

1.2. - SOUS-SYSTÈME DES PARTICULES LIBRES

La partition en classes est ici effectuée en fonction de la nature de la particule (photon, électron, neutron, etc.) et de son énergie cinétique. Ainsi, les photons d'énergie comprise entre E et $E + dE$ constituent une classe. De même, les électrons d'énergie comprise entre E et $E + dE$.

La grandeur qui caractérise la population de chaque classe est, en tout point $\vec{r}$ et à chaque instant t , le spectre énergétique de particules $\varphi(\vec{r}, E, t)$ défini de la façon suivante : (cf. fig. 1).

FIG 1

Le nombre de particules d'énergie comprise entre E et $E + dE$ traversant par unité de temps, au point $\vec{r}$ et au temps t , une sphère de section unité est : $\varphi(\vec{r}, E, t) dE$.

1.3. - INTERACTIONS ÉLÉMENTAIRES - TRANSFORMATION DES ESPÈCES

Les interactions qui se produisent dans le système ont pour conséquence la transformation des éléments et le ralentissement des particules libres. On appelle événement, un phénomène élémentaire, c'est-à-dire un phénomène faisant passer un élément d'une classe dans une autre.

Etant donné les définitions des classes que nous avons choisies pour chacun des deux sous-systèmes, un phénomène est élémentaire :

- vis-à-vis des espèces, quand il correspond au déplacement d'un électron lié d'une énergie de liaison à une autre (exemple : ionisation, excitation).
- vis-à-vis des particules libres, lorsqu'après l'interaction, l'énergie cinétique de la particule est différente de celle qu'elle était avant (exemple : diffusion).

En fait, lorsqu'il s'agira de décrire l'évolution d'un système donné, on ne saura pas toujours décomposer toutes les transformations au niveau du déplacement des électrons liés. On sera alors amené à regrouper certaines interactions élémentaires, ce qui revient à supprimer un certain nombre de classes intermédiaires.

Cette suppression de classes intermédiaires peut présenter des inconvénients plus ou moins sérieux lorsque l'on cherche à vérifier si les résultats théoriques obtenus à partir du modèle choisi pour le système étudié sont conformes aux observations expérimentales faites sur ce système. Il faut évidemment une certaine concordance entre le système réel et le modèle qui est censé le représenter. Mais il n'est pas indispensable que l'identité entre les deux soit absolue, ce qui d'ailleurs dans la majorité des cas serait invérifiable. En fait, le degré de concordance nécessaire est directement lié, d'une part à la nature et à la précision des mesures que l'on est capable d'effectuer, et d'autre part au nombre maximum d'éléments que peuvent contenir les classes intermédiaires à un instant quelconque de mesure. Supprimer des classes intermédiaires entre un état A et un état B ne présente pas d'inconvénient si ces classes intermédiaires ne peuvent contenir, à un instant quelconque, qu'un nombre suffisamment petit d'éléments pour ne pas perturber sensiblement le contenu des classes A et B, compte tenu de la précision des mesures que l'on est capable de faire sur le nombre d'éléments de ces classes. Ce qui compte alors, c'est seulement que la probabilité globale de transformation des éléments de A en B soit évaluée correctement, en valeur moyenne.

Si la condition précédente n'est pas satisfaite, c'est-à-dire si les classes intermédiaires sont susceptibles de comporter un nombre d'éléments relativement important, il est alors nécessaire que le modèle théorique en tienne compte, *et cela même si l'on est incapable de mesurer expérimentalement le contenu de ces classes intermédiaires ou si, plus simplement, on ne cherche pas à faire cette mesure*. Le modèle théorique rendra compte alors du contenu observé des classes A et B, et de

l'écart qu'il peut présenter par rapport à ce qu'il serait en l'absence de classes intermédiaires, ou si ces classes tout en existant ne pouvaient contenir qu'un nombre négligeable d'éléments. On conçoit facilement que tout ce problème est étroitement lié aux vitesses relatives de transformation entre les différentes classes.

Autrement dit, le modèle théorique doit toujours comporter un nombre de classes au moins égal au nombre d'états de la matière qu'il est effectivement possible de mettre en évidence expérimentalement. Il peut être nécessaire d'introduire dans le modèle théorique un nombre de classes supérieur, compte tenu des considérations qui viennent d'être rappelées, mais il n'est pas toujours utile, et il peut même être parfois illusoire, d'aller jusqu'à certains degrés de « finesse ». Nous retrouvons ici le problème bien connu de l'adaptation minimale des modèles théoriques, selon la nature et la précision des mesures possibles en pratique.

Il est à noter que le regroupement des événements élémentaires que nous venons d'évoquer est tout à fait différent de celui qui est fait en microdosimétrie où l'on rassemble tous les événements ayant lieu dans un élément de volume, sans tenir compte des relations de dépendance ou d'enchaînement des phénomènes, relativement à l'évolution des espèces moléculaires du système.

1.4. - REPRÉSENTATION QUANTITATIVE DES ÉVÉNEMENTS ÉLÉMENTAIRES - DOSE D'ÉVÉNEMENTS

Deux niveaux d'interaction sont considérés :

1.4.1. *Interactions entre éléments du sous-système des espèces*

Les événements qui en découlent ne dépendent pas directement du rayonnement. Nous admettrons que la variation au point $\vec{r}$ et au temps t , par unité de temps et de volume, du nombre d'éléments $N_i(\vec{r}, t)$ de la classe « i » touchés par ces événements, s'exprime à l'aide de la loi d'action des concentrations :

$$\frac{dN_i(\vec{r}, t)}{dt} = -k \prod_{j=1}^n N_j^{\alpha_j}$$

(k est la constante de vitesse, n le nombre de classes différentes entrant dans la réaction, et α_j les coefficients stoechiométriques).

On placera dans cette catégorie les transformations spontanées qui ne sont pas la conséquence directe d'une interaction (désexcitation et dissociation spontanées). La variation du nombre d'éléments subissant ces transformations s'exprime d'une façon analogue :

$$\frac{dN_i(\vec{r}, t)}{dt} = -\lambda N_i(\vec{r}, t)$$

1.4.2. *Interactions entre éléments du sous-système des espèces et du sous-système des particules libres*

Ces interactions font intervenir une particule libre et un électron lié appartenant à un élément d'une classe du sous-système des espèces. La probabilité ou

encore la section efficace d'un événement donné, consécutif à une telle interaction dépend :

- de la nature de la particule incidente et de son énergie cinétique E ;
- de la perte d'énergie ΔE subie par cette particule au cours de l'interaction;
- des énergies de liaison de l'électron lié mis en cause avant et après l'interaction : E_{l1} et E_{l2} ;
- de la classe « i » de l'élément auquel appartient cet électron lié.

D'une manière générale, nous appelons « dose d'événements » un nombre d'interactions élémentaires ayant lieu dans le système étudié : Cette dose d'événements peut être relative :

- à un élément, une classe ou plusieurs classes du sous-système des espèces.
- à un ou plusieurs événements déterminés;
- à un élément de volume, ou à la totalité du système irradié;
- à un intervalle de temps autour d'un instant « t » donné ou à toute la durée de l'irradiation.

1.5 - EXPRESSION DES DOSES D'ÉVÉNEMENTS

Chacune des doses d'événements qu'il est possible de définir, s'obtient à partir du produit d'une section efficace et d'un flux. Nous allons expliciter ceci sur un événement particulier qui est l'éjection d'un électron lié avec l'énergie E_l appartenant à un élément de la classe « i ». Cette ionisation est due soit aux photons, soit aux électrons libres du milieu. Regardons le cas des photons (cf. fig. 2) :

FIG 2

Si E est l'énergie du photon incident,
 E_l l'énergie de liaison de l'électron éjecté,

la section efficace microscopique d'ionisation est une fonction de E , de E_i et de la classe « i », que nous noterons $\sigma_{ph.}^{ion.}(E, E_i)$.

Soit N_i^l le nombre d'électrons liés avec l'énergie E_i dans un élément de la classe « i » et soit $N_i(\vec{r}, t)$ le nombre d'éléments de la classe « i » présents au temps t par unité de volume au point $\vec{r}$.

Le nombre d'électrons liés avec l'énergie E_i et appartenant aux éléments de la classe « i » par unité de volume est alors, au temps t et au point $\vec{r}$:

$$N_i^l N_i(\vec{r}, t)$$

Si $\varphi_{ph}(E, \vec{r}, t)$ est le spectre énergétique de photons au point $\vec{r}$ et au temps t , le nombre d'ionisations du type considéré, dues aux photons dont l'énergie est comprise entre E et $E + dE$ est alors par unité de volume et par unité de temps :

$$\sigma_{ph.}^{ion.}(E, E_i) \times N_i^l N_i(\vec{r}, t) \times \varphi_{ph}(E, \vec{r}, t) dE$$

et le nombre de ces ionisations dues à l'ensemble des photons est :

$$N_i(\vec{r}, t) \int_0^{E_{max}} N_i^l \sigma_{ph.}^{ion.}(E, E_i) \times \varphi_{ph}(E, \vec{r}, t) dE$$

que l'on notera $N_i(\vec{r}, t) \overline{\sigma \varphi_{ph.}}(\vec{r}, t)$

Il en est de même pour les ionisations dues aux électrons dont le nombre s'obtient par une expression analogue :

$$N_i(\vec{r}, t) \int_0^{E'_{max}} N_i^l \sigma_{el.}^{ion.}(E, E_i) \times \varphi_{el.}(E, \vec{r}, t) dE$$

que l'on notera également :

$$N_i(\vec{r}, t) \overline{s \varphi_{el.}}(\vec{r}, t)$$

La dose des ionisations considérées, au point $\vec{r}$ et au temps t , est le nombre de ces événements ayant lieu par unité de temps et par unité de volume. Son expression est donc :

$$d_i^{ion.}(\vec{r}, t) = N_i(\vec{r}, t) [\overline{\sigma \varphi_{ph.}}(\vec{r}, t) + \overline{s \varphi_{el.}}(\vec{r}, t)] \quad (1)$$

La quantité entre crochets est la dose de ces événements ramenée à un élément de la classe « i » :

$$f_i^{ion.}(\vec{r}, t) = [\overline{\sigma \varphi_{ph.}}(\vec{r}, t) + \overline{s \varphi_{el.}}(\vec{r}, t)] \quad (2)$$

— Chaque événement qui entraîne le passage d'un élément d'une classe dans une autre donne lieu à la définition d'une dose. Nous aurons ainsi, pour chaque classe d'éléments, des doses d'ionisation, d'excitation, de désexcitation et de recombinaison électronique, chacune de ces doses se calculant, comme nous venons de le voir pour l'ionisation, à partir du produit d'une section efficace par un flux.

— Différentes sommations (sur les énergies de liaison des électrons liés, sur les classes « i », sur les événements) et différentes intégrales (sur le volume ou sur le temps), effectuées sur l'expression générale (1) précédente, permettent d'obtenir, si cela est utile, des doses d'événements situées à des niveaux plus globaux.

— Dans une première étape, nous faisons l'hypothèse que les modifications subies par le sous-système des espèces au cours de l'irradiation, sont suffisamment faibles pour ne pas modifier les spectres des particules $\varphi_{ph.}$ et $\varphi_{el.}$.

Dans ces conditions, les doses d'événements ramenées à un élément (f_i), sont indépendantes du temps.

La variation, au temps t et au point $\vec{r}$, du nombre d'éléments de la classe « i », due à un événement donné, s'écrit donc :

$$\frac{dN_i(\vec{r}, t)}{dt} = - N_i(\vec{r}, t) [\overline{\sigma \varphi_{ph.}}(\vec{r}) + \overline{s \varphi_{el.}}(\vec{r})] = - f_i(\vec{r}) N_i(\vec{r}, t)$$

2 - STRUCTURE GÉNÉRALE DU GRAPHE DU SOUS-SYSTÈME DES ESPÈCES ROLE DES DOSES D'ÉVÉNEMENTS DANS CE GRAPHE

Afin d'établir un certain ordre dans l'évolution d'un système, une étude détaillée des différents graphes d'interaction possibles a été faite [1]. Il est montré que, dans certaines conditions, le graphe total du système est décomposable en graphes partiels de telle manière que l'étude de l'évolution du système peut être faite par étapes successives.

Nous rappelons ici quelques définitions et conclusions du rapport [1] ci-dessus cité, puis sur un exemple très simple, nous mettons en évidence le rôle joué par les doses d'événements définies au chapitre précédent.

2.1. - DÉCOMPOSITION EN GRAPHES VRAIS - SENS DE L'ÉVOLUTION DU SYSTÈME

Un graphe vrai est un graphe fortement connexe à partir duquel il est impossible de former un nouveau graphe fortement connexe, en lui adjoignant un ou plusieurs graphes adjacents directs ou successifs.

(Un graphe est dit fortement connexe quand, entre deux quelconques de ses sommets A et B, il est toujours possible de trouver un chemin allant de A vers B et un chemin allant de B vers A.)

La décomposition en graphes vrais du graphe total du sous-système des espèces, possible si le graphe total n'est pas fortement connexe, permet de mettre en évidence une *filiation* entre graphes exotropes vrais, graphes mixtes vrais et graphes endotropes vrais.

On appelle :

- Graphe exotrope vrai (GExV) : un graphe vrai dont la frontière n'est traversée que par des arcs divergents.
- Graphe mixte vrai (GMV) : un graphe vrai dont la frontière est traversée à la fois par des arcs divergents et par des arcs convergents.
- Graphe endotrope vrai (GENV) : un graphe vrai dont la frontière n'est traversée que par des arcs convergents.
- Graphe fermé vrai (GFV) : un graphe vrai dont la frontière n'est traversée par aucun arc.

Les filiations mises en évidence partent de graphes exotropes vrais pour aboutir à des graphes endotropes vrais en passant éventuellement par des graphes mixtes vrais :

$$\text{GExV} \longrightarrow \text{GMV} \longrightarrow \text{GENV}$$

La partition et la filiation ainsi réalisées permettent de décomposer l'étude de l'évolution du système en trois étapes successives :

- Les GExV et les GFV peuvent être d'abord étudiés seuls puisque leur évolution ne dépend pas de ce qui se passe à l'extérieur.
- Les GMV doivent ensuite être étudiés conjointement avec leurs ascendants, qui sont des GExV et éventuellement des GMV déjà traités antérieurement.
- Enfin les GENV sont étudiés conjointement avec leurs ascendants qui sont des GExV et éventuellement des GMV traités antérieurement.

L'évolution du système se traduit par l'accumulation de matière dans les GENV et par un épuisement progressif des GExV et des GMV qui ne se videront complètement que dans le cas linéaire.

Le système tend vers un des trois types suivants d'équilibre, correspondant à la notion classique d'adaptation :

- l'équilibre statique, défini par la constance des cardinaux des classes et l'absence d'interactions transformatrices entre les éléments du système (le cardinal d'une classe est le nombre d'éléments appartenant à cette classe).
- l'équilibre dynamique, défini par la constance des cardinaux des classes, bien qu'il subsiste des interactions transformatrices entre les éléments du système.
- l'équilibre périodique, défini par les mêmes conditions que l'équilibre dynamique, à l'exception du fait que les équations d'évolution du système ont alors des solutions périodiques non amorties.

2.2. - FORME GÉNÉRALE DE LA FONCTION D'ÉVOLUTION D'UNE ESPÈCE DANS LE CAS LINÉAIRE

La fonction d'évolution d'une espèce « *j* » donnée est solution d'un système différentiel formé de toutes les équations exprimant l'évolution des espèces contenues dans le graphe vrai de l'espèce « *j* » considérée et dans ses graphes ascendants.

Dans le cas général, non linéaire, il est impossible de trouver une expression analytique générale donnant l'évolution d'une espèce donnée. Chaque système doit être traité selon une méthode adaptée à sa structure propre.

Dans le cas linéaire, en revanche, l'équation d'évolution de l'espèce « j » peut toujours s'écrire sous la forme :

$$\frac{dN_j}{dt} = a_{1j}N_1 + a_{2j}N_2 + \dots + a_{jj}N_j + \dots + a_{nj}N_n$$

où N_i = cardinal de la classe « i »

n = nombre de classes présentes dans le système différentiel étudié.

Le système est représenté par l'équation matricielle :

$\left\{ \frac{dN}{dt} \right\} = [a] \{ N \}$, $[a]$ étant la matrice carrée des fonctions d'interaction entre les classes.

Il est montré que l'évolution du cardinal d'une classe « j » *dépend des valeurs propres du graphe vrai auquel elle appartient et des graphes vrais qui lui sont ascendants*, ainsi que des cardinaux initiaux des classes contenues dans tous ces graphes. La fonction d'évolution est de la forme :

$$N_j(t) = A_1 e^{\lambda_1 t} + A_2 e^{\lambda_2 t} + \dots + A_n e^{\lambda_n t}$$

dans laquelle :

λ_i = valeurs propres de la matrice $[a]$

A_i = constantes dépendant des valeurs initiales $N_{01} \dots N_{0n}$.

(Quelques propriétés importantes du graphe du sous-système des espèces, non indispensables pour la compréhension de ce qui suit, sont données en Annexe).

2.3. - ETUDE D'UN SYSTÈME SIMPLE

Afin de voir plus clairement comment s'exprime l'évolution des éléments d'une classe du sous-système des espèces en fonction des différentes doses d'événements, construisons un système dans lequel chaque classe E_i constitue à elle seule un graphe vrai, et dans lequel il n'existe pas d'interaction entre deux éléments appartenant au sous-système des espèces (cas linéaire). Un tel système est représenté sur la figure 3 ci-dessous, ainsi que la nature de l'événement faisant passer un élément d'une classe dans une autre, affecté de la dose d'événements ramenée à un élément (f_i) qui lui correspond.

Intéressons-nous à l'évolution de la classe E_3 . Nous savons (cf. 2.2) que l'évolution du cardinal N_3 de cette classe ne fait intervenir que les fonctions divergentes relatives à E_3 et aux espèces ascendantes, ici E_1 . Les seuls événements

intervenant donc dans cette évolution sont ceux qui sont entourés dans la figure 3 ci-dessus et dont les nombres par unité de temps sont : $f_1 N_1$, $f_2 N_2$, $f_3 N_3$ et $f_4 N_4$.

FIG 3

Ces événements représentent une partie seulement des événements ayant lieu dans l'ensemble du système.

Une des raisons de l'insuffisance de la dose en tant que paramètre voulant rendre compte de l'effet des rayonnements est donc visible immédiatement : elle prend en considération tous les événements qui se passent dans le système et ne fait donc pas la part de ce qui est cause de l'effet observé.

Quand on représente un phénomène en fonction d'un paramètre, c'est que l'on espère établir un lien entre ce paramètre et l'effet observé. Avec la dose, on ne peut pas le faire, car on ne tient pas compte de la filiation qui existe dans le système.

Explicitons l'évolution du cardinal de la classe E_3 . Résolvons pour cela le système différentiel relatif aux deux classes E_1 et E_3 :

$$\frac{d N_1}{d t} = - (f_1 + f_2) N_1$$

$$\frac{d N_3}{d t} = f_2 N_1 - (f_3 + f_4) N_3$$

$$\begin{aligned}
\text{avec } f_1 &= \overline{\sigma_1^{exc.} \varphi_{ph.}} + \overline{s_1^{exc.} \varphi_{el.}} \\
f_2 &= \overline{\sigma_1^{ion.} \varphi_{ph.}} + \overline{s_1^{ion.} \varphi_{el.}} \\
f_3 &= \overline{\sigma_3^{exc.} \varphi_{ph.}} + \overline{s_3^{exc.} \varphi_{el.}} \\
f_4 &= \overline{\sigma_3^{ion.} \varphi_{ph.}} + \overline{s_3^{ion.} \varphi_{el.}}
\end{aligned}$$

La solution de ce système est la suivante.

$$N_1(t) = N_{01} e^{-(f_1 + f_2)t}$$

et

$$\begin{aligned}
N_3(t) &= \frac{f_2}{f_3 + f_4 - f_1 - f_2} N_{01} e^{-(f_1 + f_2)t} \\
&\quad + \left[N_{03} - \frac{f_2}{f_3 + f_4 - f_1 - f_2} N_{01} \right] e^{-(f_3 + f_4)t} \quad (3)
\end{aligned}$$

N_{01} et N_{03} étant les valeurs initiales de N_1 et N_3 .

Nous voyons sur ces expressions que, non seulement ce n'est pas la dose totale qui intervient dans l'évolution d'une classe, mais encore que chacune des fonctions correspondant à un événement déterminé (f_1, f_2, f_3, f_4) intervient indépendamment des autres. Une fraction de dose telle que ($f_1 + f_2 + f_3 + f_4$) regroupant les événements « causes » de l'évolution de E_3 ne suffit pas davantage.

Du point de vue de ces phénomènes élémentaires, que représente la Dose, dans le formalisme actuel de la Dosimétrie, pour ce même système ? Nous allons regarder quels sont les événements impliqués d'une part dans la Dose obtenue à partir d'une mesure et d'autre part dans la définition théorique de la Dose.

Dose en tant que paramètre mesuré

Rappelons que l'on mesure un nombre d'ionisations, donc la quantité :

$$\mathcal{N}_{ion.} = \int_0^t [f_2 N_1(t) + f_4 N_3(t) + f_6 N_2(t)] dt, t \text{ étant la durée de l'irradiation.}$$

Ensuite, on multiplie cette quantité par « W_G », énergie cédée au système sous forme d'ionisations et d'excitations, chaque fois qu'une ionisation a lieu.

De cette manière, les événements dont on tient compte sont les ionisations et les excitations dont le nombre est :

$$\mathcal{N}' = \int_0^t [(f_1 + f_2) N_1(t) + (f_6 + f_7) N_2(t) + f_4 N_3(t)] dt$$

De cette façon, on regroupe des événements qui n'interviennent pas tous dans l'évolution de la classe E_3 (les événements 6 et 7 n'entrent pas dans l'expres-

sion de $N_3(t)$) tandis qu'on ne tient pas compte de la recombinaison n° 3 qui, elle, intervient.

Dose telle qu'elle est définie théoriquement

Etant donné un élément de volume, la Dose relative à cet élément est la différence des énergies des particules entrantes, et des particules sortantes ramenées à l'unité de masse du milieu.

Cette définition inclut tous les phénomènes élémentaires de notre système, à l'exclusion du n° 9 qui est une désexcitation non radiative qui ne sera donc pas mise en évidence par un bilan des énergies des particules entrantes et des particules sortantes.

Appelons ΔE_i l'énergie cédée au sous-système des espèces lors de l'événement « i »; la dose s'exprime alors par la relation :

$$D = \int_0^t [(f_1 \Delta E_1 + f_2 \Delta E_2) N_1(t) + (f_6 \Delta E_6 + f_7 \Delta E_7 - f_5 \Delta E_5) N_2(t) + (f_4 \Delta E_4 - f_3 \Delta E_3) N_3(t) - (f_8 \Delta E_8) N_7(t)] dt$$

On voit tout de suite qu'il est impossible d'exprimer l'équation (3) d'évolution de la classe E_3 en fonction de cette dose globale. Exprimer cette évolution en fonction d'un paramètre tel que D ou $\mathcal{U}'$ (comme on l'a toujours fait jusqu'ici dans les études expérimentales), c'est masquer complètement les phénomènes microscopiques et leurs enchaînements qui sont véritablement les causes des effets observés.

Si l'on cherche à décrire l'évolution d'un système irradié, le nombre d'événements d'une nature donnée, sur un élément d'une classe donnée, ayant lieu en un point donné du milieu et à un instant donné, nous apporte l'information nécessaire.

Nous préférons donc caractériser l'effet d'un rayonnement, non pas par une dose énergétique, mais par une dose d'événements. *Les paramètres qui permettent d'atteindre des doses d'événements* sont, une fois connues les sections efficaces correspondantes, *les spectres de particules présents dans le milieu irradié*.

N.B. L'expression de l'évolution d'une classe en fonction de la dose totale d'événements est justifiée dans un cas très particulier : celui où la classe de départ est prépondérante et où l'irradiation est de durée Δt suffisamment courte pour que :

— Les espèces formées soient en quantité négligeable vis-à-vis de la classe initiale. La dose d'événements se réduit donc à la dose relative à la classe de départ E_1 .

— Les coefficients A_i des exponentielles, qui sont proportionnels aux concentrations initiales, soient négligeables devant A_1 , coefficient de la première exponentielle.

$$\text{On a alors : } N_j \approx A_1 e^{-\frac{D_1}{N_{01}}}$$

3 - EXPRESSION AU NIVEAU DES PHÉNOMÈNES ÉLÉMENTAIRES DES PARAMÈTRES UTILISÉS EN DOSIMÉTRIE

Le formalisme présenté ici, se situant au niveau des phénomènes élémentaires, tous les paramètres utilisés actuellement en Dosimétrie, tels que : Dose, T.L.E., E.B.R...., qui se trouvent à un niveau plus macroscopique, sont exprimables à partir des paramètres de ce formalisme, qui sont les spectres de particules.

Nous ne donnerons ici que l'essentiel des développements des différentes expressions qui sont données en détail dans [2].

3.1. - DOSE D'ÉNERGIE ABSORBÉE

Nous avons explicité ce paramètre dans le chapitre précédent, sur un système très particulier et nous avons montré qu'il était impossible de représenter l'évolution d'une espèce quelconque en fonction de la dose totale d'événements ayant lieu dans le système, les doses par classe intervenant indépendamment les unes des autres.

Dans un cas linéaire général, l'expression de la dose totale d'événements dus directement au rayonnement est la suivante :

$$\mathcal{N} = \sum_j \int_0^t dt N_j(t) \sum_p \sum_q \overline{\sigma_{j p q} \varphi_q}$$

$\sum_j$ = somme étendue à toutes les classes présentes dans le sous-système des espèces.

$\sum_p$ = somme étendue à tous les événements possibles.

$\sum_q$ = somme étendue à tous les rayonnements présents.

La Dose énergétique globale relative à ces événements est :

$$D = \sum_j \int_0^t dt N_j(t) \sum_p \sum_q \Delta E_{j p} \overline{\sigma_{j p q} \varphi_q}$$

$\Delta E_{j p}$ étant l'énergie cédée au système lors de l'événement p .

Nous avons donc accès à l'énergie moyenne $\bar{E}$ cédée par événement :

$$\bar{E} = \frac{D}{\mathcal{N}}$$

ainsi qu'à l'énergie moyenne cédée par ionisation dans le système :

$$W_G = \frac{D}{\mathcal{N}_{ion}} = \frac{\sum_j \int_0^t dt N_j(t) \sum_p \sum_q \Delta E_{j p} \overline{\sigma_{j p q} \varphi_q}}{\sum_j \int_0^t dt N_j(t) \sum_q \overline{\sigma_{j q}^{ion} \varphi_q}}$$

3.2. - KERMA

Par définition, le kerma est l'énergie transférée des photons aux électrons par unité de masse du milieu irradié.

Ce transfert d'énergie a lieu lorsqu'un choc Compton ou un choc photoélectrique éjecte un électron d'un atome ou d'une molécule.

Dans un choc Compton, où le photon incident a l'énergie E , le photon diffusé l'énergie E' , et où l'électron éjecté était lié avec l'énergie E_i , l'énergie cinétique transférée à l'électron éjecté est $(E - E' - E_i)$.

Dans un choc photoélectrique, l'énergie transférée est $(E - E_i)$ (cf. fig. 4).

Effet Compton

Effet photoelectrique

FIG 4

Le kerma au point $\vec{r}$ et au temps t , $K(\vec{r}, t)$, est la somme des énergies transmises au cours de chaque choc Compton et photoélectrique, ayant lieu

au point $\vec{r}$ et au temps t , par unité de volume et par unité de temps.

— Kerma dû aux chocs Compton :

$$K_c(\vec{r}, t) = \sum_i N_i(\vec{r}, t) \sum_l N_l^i \int_{E_l}^{E_{max}} dE \varphi_{ph}(\vec{r}, E, t) \\ \times \int_{E'_{min}}^{E-E_l} dE' (E - E' - E_l^i) \sigma_{ph}^c(E, E', E_l^i)$$

— Kerma dû aux chocs photoélectriques :

$$K_p(\vec{r}, t) = \sum_i N_i(\vec{r}, t) \sum_l N_l^i \int_{E_l}^{E_{max}} dE \sigma_{ph}(E, E_l^i) \varphi_{ph}(\vec{r}, E, t) (E - E_l^i)$$

($N_i(\vec{r}, t)$ représente ici le nombre d'éléments de la classe « i » présents au temps t et au point $\vec{r}$, par unité de masse).

— Kerma au point $\vec{r}$ pour une irradiation s'étendant entre les instants t_1 et t_2 :

$$K(\vec{r}) = \int_{t_1}^{t_2} dt [K_c(\vec{r}, t) + K_p(\vec{r}, t)]$$

Expression du coefficient de transfert d'énergie massique.

Ce coefficient de transfert est défini par la relation :

$$K(\vec{r}) = \frac{\mu_T}{\rho} F(\vec{r}) \quad \text{où } F(\vec{r}) \text{ est la fluence énergétique au point } \vec{r}.$$

$$F(\vec{r}) = \int_{t_1}^{t_2} dt \int_{E_{min}}^{E_{max}} E \varphi_{ph}(\vec{r}, E, t) dE$$

D'où :

$$\frac{\mu_T}{\rho} = \frac{\int_{t_1}^{t_2} dt \sum_i N_i(\vec{r}, t) \sum_l N_l^i \int_{E_l}^{E_{max}} dE \varphi_{ph}(\vec{r}, E, t) \left[(E - E_l^i) \sigma_{ph}(E, E_l^i) \right. \\ \left. + \int_{E'_{min}}^{E-E_l^i} dE' (E - E' - E_l^i) \sigma_{ph}(E, E', E_l^i) \right]}{\int_{t_1}^{t_2} dt \int_{E_{min}}^{E_{max}} E \varphi_{ph}(\vec{r}, E, t) dE}$$

3.3. - T.L.E. ET POUVOIR D'ARRÊT

Lors de leur parcours, les électrons perdent des quantités d'énergie qui sont :

- soit très faibles. C'est le cas le plus fréquent. L'électron éjecté par ionisation aura une énergie cinétique très petite et dépensera son énergie pratiquement sur place;
- soit élevées. L'électron éjecté ira perdre son énergie dans un élément de volume éloigné. Il constitue ce qu'on appelle un électron δ en dosimétrie.

Ces deux cas correspondent à des cas extrêmes; il existe bien entendu toute une gamme de pertes d'énergie intermédiaires.

Par définition, le pouvoir d'arrêt $S(E)$ pour un électron d'énergie cinétique E , est la perte d'énergie de l'électron par unité de longueur de parcours dans le milieu. Il s'exprime donc, au niveau des phénomènes élémentaires par : (cf. fig. 5).

FIG 5

$$S(E) = \sum_j N_j \sum_l N_l \int_{E'=0}^E (E - E') \sigma_{el.}(E, E', E_l) dE'$$

La somme est effectuée sur toutes les pertes d'énergie possibles de l'électron incident.

Le T.L.E. ou transfert linéique d'énergie, pour un électron d'énergie cinétique E , est la perte d'énergie de l'électron par unité de longueur de parcours dans le milieu, l'électron ne pouvant perdre une énergie supérieure à une certaine énergie de coupure ϵ .

Le T.L.E. s'exprime donc de la façon suivante :

$$TLE_c = \sum_j N_j \sum_l N_l \int_{E'=E-E_c}^E (E - E') \sigma_{el.}(E, E', E_l) dE'$$

En dosimétrie, on utilise le pouvoir d'arrêt dans l'écriture de la relation :

$$D(\vec{r}, E, t) = S(E) \varphi_{el.}(\vec{r}, E, t)$$

où $D(\vec{r}, E, t)$ est la dose absorbée au point $\vec{r}$ et au temps t , par unité de temps et par unité de volume, relative aux électrons d'énergie E .

Ceci revient à écrire :

$$D(\vec{r}, E, t) = \varphi_{el.}(\vec{r}, E, t) \sum_j N_j(\vec{r}, t) \sum_l N_l^i \int_{E'=0}^E (E - E') \sigma_{el.}(E, E', E_l^i) dE' \quad (4)$$

Dans le cas d'ionisation par électron la dose s'exprime en fait par :

$$D(\vec{r}, E, t) = \varphi_{el.}(\vec{r}, E, t) \sum_j N_j(\vec{r}, t) \sum_l N_l^i E_l^i \int_{E'=0}^E \sigma_{el.}(E, E', E_l^i) dE' \quad (5)$$

La formule (5) n'est équivalente à la formule (4) que dans le cas où

$$(E - E') = E_l^i.$$

L'électron incident perd donc l'énergie juste suffisante pour éjecter l'électron lié. C'est le cas du ralentissement continu.

L'introduction d'une perte d'énergie de coupure « ϵ » correspond au souci de séparer les pertes d'énergie compatibles avec l'hypothèse du ralentissement continu, des autres. Des spectres de ralentissement d'électrons ont été calculés par Spencer et Fano, en séparant ces deux catégories de perte d'énergie. Ils ont malheureusement été utilisés pour évaluer des pertes d'énergie et non des doses d'événements.

3.4. - E.B.R.

La dose absorbée n'étant pas suffisante pour rendre compte des phénomènes observés, l'E.B.R. essaie de traduire la « qualité du rayonnement ». Or, il a été mis expérimentalement en évidence [3], que ce paramètre variait avec la dose reçue par le système. Ceci s'explique dans le cadre de la théorie ici présentée. En effet, rappelons la définition de l'E.B.R. :

L'E.B.R. d'un rayonnement (2) par rapport à un rayonnement de référence (1) est le rapport des doses $\frac{D_2}{D_1}$ nécessaires pour obtenir le même résultat avec les 2 rayonnements.

Nous allons raisonner avec des doses d'événements, les résultats ainsi obtenus étant à fortiori valables avec des doses énergétiques. Nous conservons à titre d'exemple, le système simple utilisé précédemment.

Si l'on étudie l'évolution de la classe E_i :

Au bout d'un temps t_1 d'irradiation avec le rayonnement (1) le cardinal de la classe E_i est :

$$N_i(t_1) = \sum_j A_j e^{-\lambda_j t_1}$$

et au bout d'un temps t_2 d'irradiation avec le rayonnement (2)

$$N'_i(t_2) = \sum_j A'_j e^{-\lambda'_j t_2}$$

Le même effet est obtenu lorsque $N_i(t_1) \equiv N_i(t_2)$.

$$\text{Soit :} \quad \sum_j A_j e^{-\lambda_j t_1} = \sum_j A'_j e^{-\lambda'_j t_2} \quad (6)$$

La dose totale d'événements dans le système est de la forme :

$$D = \sum_i \int_0^t \lambda_i N_i(t) dt$$

λ_i étant la somme des fonctions divergentes relatives à l'espèce E_i .

L'E.B.R. du rayonnement (2) par rapport au rayonnement (1) est alors :

$$\text{E.B.R.} = \frac{D_2(t_2)}{D_1(t_1)} = \frac{\sum_i \int_0^{t_2} \lambda_i N_i(t) dt}{\sum_i \int_0^{t_1} \lambda'_i N'_i(t) dt} \quad (7)$$

les valeurs de t_1 et t_2 étant fixées par la relation (6).

L'existence de la relation (6) n'implique pas que le rapport $\frac{D_2(t_2)}{D_1(t_1)}$ reste le même lorsque l'effet observé est différent.

L'E.B.R. dépendra donc en général de la dose.

CONCLUSION

La critique des paramètres utilisés en dosimétrie porte surtout sur le fait que ces derniers sont des paramètres globaux qui ne tiennent compte :

— ni de l'inversibilité possible des phénomènes (directe ou par l'intermédiaire de cycles).

— ni de l'ordre dans lequel apparaissent les phénomènes à l'intérieur du graphe des réactions élémentaires.

Or, ces deux aspects sont primordiaux pour rendre compte de l'évolution des espèces réellement observée. Autrement dit, les paramètres utilisés par la dosimétrie en tant que référence des phénomènes observés, ne peuvent en aucun cas permettre d'expliquer ce qui se passe dans le système; au contraire, même ces paramètres masquent les phénomènes élémentaires et principalement leurs enchaînements qui seuls peuvent permettre de comprendre pourquoi le système évolue dans tel sens et non dans tel autre.

La méthode qui semble s'imposer est de recourir à la théorie au niveau des phénomènes élémentaires qui comble les lacunes précédentes. On rapporte alors les observations expérimentales, non pas à un effet particulier tel que la dose totale d'un type donné d'événements ou l'énergie absorbée, mais à la cause même des phénomènes qui conditionnent l'évolution du système : Les paramètres de base retenus sont d'une part les spectres et flux particuliers qui prennent naissance dans le milieu irradié, d'autre part les sections efficaces d'interaction entre particules et éléments du sous-système des espèces.

La connaissance des sections efficaces nécessaires est, à l'heure actuelle, largement insuffisante. La situation dans ce domaine est analogue à celle qui existait il y a une quinzaine d'années en neutronique.

Quant aux spectres de particules, il est nécessaire de savoir les mesurer et les calculer. En ce qui concerne les calculs, deux méthodes différentes peuvent être mises en œuvre : La méthode de transport (cf. [4] et la méthode de Monte-Carlo (cf. [5]). En ce qui concerne les mesures, l'étude des techniques possibles est actuellement en cours et des mesures de spectres γ sont entreprises (cf. [6]).

ANNEXE

QUELQUES PROPRIÉTÉS DU GRAPHE DU SOUS-SYSTÈME DES ESPÈCES

Régime permanent d'évolution.

On dit que l'évolution d'une espèce a lieu en régime permanent, lorsqu'elle se traduit par une fonction rectiligne en coordonnées semi-logarithmiques. L'équation d'évolution de cette espèce se réduit alors à :

$$\frac{dN_j}{dt} = -X N_j \quad \text{où } X \text{ est une constante.}$$

On montre qu'il est nécessaire et suffisant, pour que ce régime soit atteint :

- que le graphe vrai auquel appartient l'espèce E_j , ainsi que ses graphes vrais ascendants soient linéaires.
- que la partie des fonctions d'interaction qui ne dépend pas des cardinaux des espèces soit constante.
- que la plus petite en valeur absolue des valeurs propres de la matrice correspondante soit une racine simple de l'équation caractéristique et soit suffisamment différente des autres valeurs propres de cette matrice.

Lorsqu'une espèce E_j appartenant à un GExV ou à un GMV tend vers un régime permanent d'évolution, la pente correspondant à ce régime sur la courbe d'évolution tracée en coordonnées semi-logarithmiques est la même pour toutes les espèces appartenant au même graphe vrai. Elle est égale à la valeur propre de plus petite valeur absolue parmi toutes les valeurs propres du graphe vrai considéré et de ses graphes vrais ascendants.

Si l'espèce E_j appartient à un GENV, N_j tend vers une valeur d'équilibre (cf. fig. 6).

Grappe sous rayonnement et graphe en l'absence de rayonnement. Régimes transitoires.

Le régime permanent d'évolution d'une espèce E_j appartenant à un graphe mixte vrai ou à un graphe exotrope vrai n'est, en général, atteint qu'au bout d'un certain temps θ_a d'irradiation.

On appelle régime transitoire de début d'irradiation le régime d'évolution de l'espèce E_j correspondant à la partie de la courbe comprise entre le temps zéro et le temps θ_a au-delà duquel la courbe est rectiligne en coordonnées semi-logarithmiques.

Il se peut que le régime transitoire de début d'irradiation n'existe pas, la courbe d'évolution étant rectiligne dès l'origine. Dans ce cas, si la pente de la droite est égale à la sensibilité théorique l'espèce constitue à elle seule un graphe extrope vrai.

FIG 6

Lorsqu'on arrête l'irradiation, les fonctions du graphe du système qui dépendent des flux particuliers disparaissent. Le système évolue alors librement suivant un nouveau graphe : c'est le régime transitoire de fin d'irradiation.

Une espèce appartenant à un GMV ou à un GExV dans le système en absence de rayonnement, est appelée à disparaître complètement si le régime transitoire de fin d'irradiation dure suffisamment longtemps.

Au contraire, une espèce qui appartient en absence de rayonnement à un GENV ou à un GFV, tendra dans le transitoire de fin d'irradiation vers un état d'équilibre à cardinal non nul (cf, exemples d'évolution, fig. 7).

FIG 7

En ce qui concerne les régimes transitoires, les théorèmes suivants ont été établis :

— Si la courbe d'évolution sous rayonnement d'une espèce E_j présente, en coordonnées semi-logarithmiques, une partie rectiligne de pente λ_m , la courbe d'évolution représentant les états mesurés après une durée τ fixe de régime transitoire de fin d'irradiation présente égale-

ment une partie rectiligne de pente λ_m . Pour les valeurs de τ supérieures à la durée totale du transitoire de fin d'irradiation, la valeur choisie pour τ est indifférente et peut donc être variable d'une mesure à l'autre; la courbe d'évolution tracée à partir des états stables présente encore une partie rectiligne de pente λ_m .

— La durée θ_d du régime transitoire de début d'irradiation est en général différente pour chacune des espèces d'un même graphe vrai.

La durée θ_f du régime transitoire de fin d'irradiation est en général différente pour chacune des espèces d'un même graphe vrai. Elle dépend non seulement de l'espèce considérée, mais aussi de la durée d'irradiation subie.

Pour une espèce quelconque E_j , la durée θ_f du transitoire de fin d'irradiation devient constante, c'est-à-dire ne dépend plus de la durée d'irradiation subie, dès que toutes les espèces intervenant dans l'équation d'évolution de E_j ont atteint sous rayonnement leur régime permanent d'évolution.

— L'absence de transitoire de début d'irradiation entraîne l'absence de transitoire de fin d'irradiation.

L'existence d'un transitoire de début d'irradiation entraîne en général l'existence d'un transitoire de fin d'irradiation. Le cas particulier où une espèce E_j présente un transitoire de début d'irradiation, mais pas de transitoire de fin d'irradiation, signifie que le graphe d'évolution introduit sur E_j des fonctions divergentes et des fonctions convergentes dépendant toutes directement du rayonnement.

RÉFÉRENCES

- [1] P. DELATTRE. Eléments pour une théorie de l'évolution des systèmes moléculaires soumis à un rayonnement. (Commissariat à l'Energie Atomique, avril 1969).
- [2] E. ABILLON, P. DELATTRE, G. NAUDET, R. SENAUX. Etude des paramètres de la dosimétrie et de leur expression au niveau des interactions élémentaires. (Rapport C.E.A. - R-3964.
- [3] Y. ARNAUD et C. BOCQUET. Evaluation de la dose délivrée et actions comparées des neutrons rapides et d'autres radiations sur la survie de *E. COLI* et *S. CEREVISIAE*. *Biological effects of neutron and proton irradiations*. Vol. II, International Atomic Energy Agency, Vienne, 1964.
- [4] E. ABILLON. Sur le calcul des spectres de particules dans un système moléculaire irradié par des photons. (C.R. Acad. Sc. **269**, B, n° 22, p. 1189, décembre 1969).
- [5] J.P. PATAU, D. BLANC, J. MATTHIEU et G. MASSON. Transport simulé d'électrons de 2 MeV dans divers matériaux. Congrès de Microdosimétrie, Ispra (1969).
- [6] C. HYVER et R. SENAUX. Propositions pour l'étude expérimentale des spectres dans les systèmes irradiés. (Rapport interne, septembre 1969).