UTILISATION DE LA RADIOTHERMOLUMINESCENCE DE L'ALUMINE POUR LA DOSIMÉTRIE DE ZONE APPLICATION EXPÉRIMENTALE AU COURS D'ESSAIS NUCLÉAIRES FRANÇAIS AU PACIFIQUE

G. PORTAL, P. MARCHAL, R. MEDIONI, H. FRANÇOIS et J. PRADEL*
A. BARTHOUX, J. CLUCHET et R. GÉRARD**
S. CARPENTIER***

(Manuscrit reçu le 28 septembre 1971)

RÉSUMÉ

Des tuiles contenant du quartz et du feldspath ont été utilisées pour la dosimétrie des rayonnements gamma émis lors des explosions d'Hiroshima et de Nagasaki. Cette méthode pourrait faire l'objet d'autres applications, notamment pour la dosimétrie des accidents de criticité. Nous avons pensé qu'il serait préférable d'inclure systématiquement, dans les constructions, des briques contenant une forte proportion d'un matériau dosimétrique radiothermoluminescent. Nos études nous ont amenés à sélectionner une qualité industrielle d'oxyde d'aluminium disponible sur le marché à un prix avantageux.

Dans ce texte, nous analysons les caractéristiques cristallographiques et chimiques de ce matériau en liaison avec ses propriétés radiothermoluminescentes. Il présente une courbe de thermoluminescence à quatre niveaux d'énergie; on n'utilise que les plus profonds.

Avec un matériel de lecture ordinaire on peut faire des mesures de 0,5 à 10^6 rads.

Ce matériau est très peu sensible aux neutrons, ce qui permet de l'utiliser dans les champs mixtes. A titre d'exemple, nous donnons les résultats de la dosimétrie réalisée à l'aide de briques d'alumine lors des essais nucléaires français du Pacifique.

ABSTRACT

Roof tiles containing quartz and feldspars were used to estimate the gamma radiation doses from the atomic bomb explosions on Hiroshima and Nagasaki. Such a method could be used in other circumstances, for instance in the case of criticality accidents. We have thought that it would be best to include bricks

* Service de Techniques de Protection et de Pollution Atmosphérique, Centre d'Etudes Nucléaires - B.P. n° 6 - 92-Fontenay-aux-Roses.

** Direction des Applications Militaires - C.E.A. - Service de Protection des Sites - B.P. n° 16 - 91-Monthéry.

*** C.E.A. (Carbonisation, Entreprise et Céramique), 8, place des Etats-Unis, 92-Montrouge.

containing a large amount of a dosimetric radiothermoluminescent material in buildings. As a result of our studies, we have chosen a quality of industrial aluminum oxide available at a low price.

In this paper, we analyse crystallographic and chemical characteristics of this material, in connection with its radiothermoluminescent properties. It presents a thermoluminescent glow curve with four energy levels; the deepest ones can only be used.

An ordinary reader can measure doses from 0,5 to 10^6 rads.

This material is nearly insensitive to neutrons and can be used in mixed fields. As an exemple, we report the result of dosimetry with thermoluminescent bricks around French nuclear experiments in Pacific area.

* *
* *

L'accroissement du nombre des installations nucléaires présentant des risques potentiels d'irradiation accidentelle met en relief le problème de la protection du personnel travaillant à proximité et celle des populations avoisinantes. On dispose pour cela d'appareillages d'alerte et de contrôle qui, en raison de leur prix et des charges d'entretien qu'ils nécessitent, ne peuvent pas être utilisés en nombre suffisant pour couvrir, comme il serait souhaitable, une zone suffisamment large autour de chaque installation. De plus, ces appareils sont susceptibles d'être détériorés au cours de l'accident.

Pour éviter ces inconvénients, on fait appel à des techniques qui mettent en œuvre des dispositifs complémentaires simples, peu onéreux et indestructibles, qui peuvent être disséminés en très grand nombre. Leurs indications peuvent être utilisées pour reconstituer la distribution des doses sur les lieux de l'accident.

Cependant, si les détecteurs basés sur l'activation de certains matériaux donnent des résultats acceptables pour la mesure de l'irradiation par les neutrons, il n'en est pas de même pour les dosimètres utilisés pour les rayonnements électromagnétiques. En effet, on a employé jusqu'alors des dosimètres qui ne sont pas totalement insensibles à l'action des neutrons, ce qui complique l'interprétation des résultats (dosimètres radiophotoluminescents par exemple); certains d'entre eux doivent même être régulièrement renouvelés (dosimètres photographiques).

C'est pourquoi nous avons pensé que, comme le firent TAKENOBU HIGASHIMURA *et alii.* [1], on pourrait utiliser les propriétés radiothermoluminescentes de certains matériaux de construction. Il est peu pratique de récupérer, dans les matériaux habituellement utilisés, ceux qui présentent les propriétés radiothermoluminescentes adéquates. Il serait préférable de prévoir, dans la construction des édifices, des éléments contenant une forte proportion d'un matériau radiothermoluminescent mieux adapté aux impératifs de la dosimétrie que ceux que l'on peut trouver dans les briques et les tuiles ordinaires.

Après avoir étudié divers composés, nous avons sélectionné un corindon industriel qui présente d'excellentes propriétés dosimétriques et est disponible à un prix raisonnable.

Nous présentons les caractéristiques radiothermoluminescentes de l'alumine que nous avons choisie, sa mise en œuvre pour la préparation d'éléments de construction et les résultats que nous avons obtenus lors des essais nucléaires français du Pacifique et au cours d'autres expériences d'irradiation.

I - LA RADIOTHERMOLUMINESCENCE — LE CORINDON

LA RADIOTHERMOLUMINESCENCE ET LA DOSIMÉTRIE

Dès 1953, F. DANIELS [2] proposa d'utiliser certains cristaux radiothermoluminescents pour la dosimétrie des rayonnements ionisants. Lorsqu'on les chauffe à une température donnée, ces matériaux ont la propriété d'émettre une luminescence sensiblement proportionnelle à l'énergie emmagasinée lors de l'exposition à un rayonnement. La mesure de la quantité de lumière émise par les cristaux est donc représentative de la dose qu'ils ont absorbée.

En 1954, F. DANIELS et W.P. RIEMAN [3] conçurent un dosimètre personnel sous la forme d'un bouton contenant soit des cristaux de fluorure de lithium, soit des cristaux d'alumine (saphir) fixés par un liant à base de chlorure d'argent.

Depuis ces travaux, la thermoluminescence a connu de larges développements, notamment à la suite des recherches de J.S. SCHULMAN [4] axées principalement sur le fluorure de calcium, et de celles de CAMERON [5] qui a continué l'œuvre de DANIELS sur le fluorure de lithium.

Les cristaux les plus couramment utilisés sont actuellement :

- le fluorure de calcium naturel [6] ou activé au magnésium [7]
- le sulfate de calcium
- le fluorure de lithium [5]
- le borate de lithium récemment introduit par J.S. SCHULMAN [8].

Il semble que, malgré de nombreuses recherches effectuées sur le saphir et le rubis, l'usage de l'alumine soit assez peu développé; tout au plus G.N. KENNEY et J.R. CAMERON [9] l'ont utilisée en combinaison avec du fluorure de lithium pour apprécier l'énergie d'un faisceau de rayons X. P.N. DEAN et J.H. LARKINS [10] l'ont abandonnée au profit du fluorure de lithium.

LA RADIOTHERMOLUMINESCENCE DES TUILES

TAKENOBU HIGASHIMURA *et alii.* [1] ont essayé d'évaluer, 17 ans après l'explosion d'Hiroshima, la distribution des doses gamma à moins de 1 500 mètres de l'épicentre. On avait pu mesurer à posteriori la part de l'irradiation due aux neutrons rapides par les méthodes d'activation, mais aucune technique n'avait permis d'apprécier jusqu'alors la part due aux rayonnements électromagnétiques.

Les auteurs ont récupéré les cristaux transparents de quartz et de feldspath contenus dans des tuiles; ceux-ci présentaient alors une thermoluminescence encore visible, la température de chauffage étant de 330 °C.

Les maximums de l'émission lumineuse, ou « pics », qui se produisent aux plus faibles températures (100 et 180 °C) pour des cristaux récemment irradiés avaient disparu. La mesure de la lumière émise sous le pic à haute température, comparée à celle d'un échantillon étalon, a permis d'évaluer les doses absorbées dans l'air à partir d'un seuil de 100 rads environ.

Cette méthode présente certains inconvénients :

- sa sensibilité est insuffisante pour l'application que nous envisageons;

— sa mise en œuvre est laborieuse (séparation des cristaux transparents et des grains opaques);

— les tuiles utilisées étant d'origines diverses, il faut procéder à un étalonnage pour chaque lot.

Ces considérations nous ont amenés à envisager l'inclusion, dans les éléments de construction, de cristaux radiothermoluminescents mieux adaptés au problème de la dosimétrie. Le matériau choisi doit présenter des caractéristiques dosimétriques suffisantes, être d'un prix raisonnable, et pouvoir être approvisionné en grande quantité. Ceci exclut pratiquement tous les cristaux artificiels préparés industriellement pour la dosimétrie; ils sont trop chers. Les produits naturels eux-mêmes ne présentent pas des caractéristiques suffisamment reproductibles pour que l'on puisse les adopter. Nous avons donc orienté notre choix vers les alumines préparées dans l'industrie des abrasifs et des réfractaires.

L'ALUMINE — DIFFÉRENTES PHASES CRISTALLINES ET VARIÉTÉS

Généralités — Le mot alumine désigne habituellement l'oxyde d'aluminium trivalent Al_2O_3 . Elle se prépare généralement par calcination d'un hydrate.

Ainsi l'hydrargillite, $Al(OH)_3$, obtenue à partir d'une bauxite, va donner par chauffage une alumine anhydre amorphe. A 925 °C, cette alumine amorphe se transforme en alumine gamma.

Si l'on continue le chauffage, l'alumine gamma se transforme elle-même en alumine alpha ou corindon. Le corindon est la forme stable en laquelle se transforment les autres états cristallins à haute température. On connaît mal les températures exactes de changement de forme de l'alumine, mais en tout cas la forme alpha est parfaitement stable à partir de 1 500 °C.

Variétés allotropiques de l'alumine — On en connaît au moins trois :

- l'alumine alpha (corindon), rhomboédrique,
- l'alumine bêta, hexagonale,
- l'alumine gamma, cubique.

Les travaux de RIDGWAY, KLEIN et O'LEARY [11] ont toutefois établi que l'alumine bêta est en fait un aluminat alcalin Al_2O_3, Na_2O .

Signalons que PASCAL [12] décrit une quatrième forme delta rhomboédrique, mais les avis sont très partagés quant à son existence.

Le corindon — Seule, cette forme de l'alumine nous intéresse dans la présente étude. Le corindon peut être trouvé dans la nature, car c'est un minéral de métamorphisme. Sous cette forme, il n'a guère d'emploi direct. Par contre, le corindon artificiel, préparé généralement à partir de bauxites peu siliceuses est produit industriellement.

Signalons que la présence d'agents « minéralisateurs » comme le fluor favorise la cristallisation sous forme alpha.

Il existe diverses variétés de corindon contenant des ions étrangers citons :

- le saphir rouge contenant du fer,
- le saphir bleu contenant du fer, du titane et du lithium,

2, PETITE PLACE - 78 VERSAILLES

Tél. 951-29-30

FICHE D'INFORMATION

TRITON 955B

APPLICATION : DETECTION ET MESURE DES GAZ RADIOACTIFS

^3H , ^{14}C , ^{41}Ar , ^{222}Rn , ^{35}S , ^{85}Kr , ^{133}Xe , ^{135}Xe

DESIGNATION**JOHNSTON LABORATOIRES Inc. - Modèle 955 B****APPLICATION**

- Contrôle du tritium à haute sensibilité
- Radioprotection des gaz émetteurs bêtas autour des accélérateurs, réacteurs et toutes installations utilisant le tritium.

FONCTIONNEMENT

- Circulation d'air dans des chambres d'ionisation différentielles et montage électrométrique.

SPECIFICATIONS

- Précision $\pm 5\%$
- Dérive de zéro 2% par 24 heures
- Constante de temps 15 et 45 secondes
- Filtre 0,5 micron et précipitateur électrostatique
- Sortie alarme et enregistreur
- Alimentation 110-220 V. 50 Hz 100 W
- Chambres d'ionisation Tritium 10 litres
 Gamma 20 litres

PERFORMANCES

- Tritium 10 100 10000 10 000 $\mu\text{Ci}/\text{m}^3$
- Carbone 14 2 20 200 2 000 $\mu\text{Ci}/\text{m}^3$
- Compensation Gamma jusqu'à 5 mrad/h
- Débit 7 litres par minute
- Elimination des interférences dues aux poussières et aux fumées

ACCESSOIRES

- CALIBREUR CL-1 délivrant des bouffées étalonnées de méthane tritié.

- le saphir doré contenant du nickel et du magnésium,
- le rubis contenant de l'aluminium et du chrome.

LA RADIOTHERMOLUMINESCENCE ET L'ALUMINE

James K. RIEKE [13] essayant d'expliquer les propriétés catalytiques de l'alumine a étudié l'influence de la structure cristalline et des impuretés sur le phénomène de thermoluminescence. Il a analysé divers échantillons calcinés à différentes températures présentant de ce fait des états cristallins variés.

Il a observé des courbes de thermoluminescence à quatre niveaux correspondant aux températures suivantes, pour une vitesse de chauffage de 25 °C par minute

$(103 \pm 5)^{\circ}\text{C}$

$(123 \pm 5)^{\circ}\text{C}$

$(164 \pm 5)^{\circ}\text{C}$

$(236 \pm 5)^{\circ}\text{C}$

L'importance relative de ces quatre niveaux varie considérablement en fonction de la structure du cristal et des impuretés contenues dans les échantillons.

Les trois premiers pics ne semblent pas liés à la présence d'impuretés mais dépendraient plutôt d'imperfections de la maille cristalline.

Le pic à 236 °C apparaît pour les températures de calcination supérieures à 1 000 °C, alors que l'alumine est complètement déshydratée. Son importance est proportionnelle à la concentration des ions sodium qui jouent le rôle d'impureté.

Ces observations ont amené l'auteur à admettre que le pic à 123 °C correspond à des centres partiellement hydratés du type $\text{Al}(\text{OH})_2^+$ alors que le pic à 164 °C, qui apparaît pour des degrés de calcination supérieure, correspond à un centre du type AlO^+ . Le pic à 236 °C serait dû à la présence d'ions sodium qui constituent les centres pièges.

Parmi les travaux récents concernant ce corps, nous citerons ceux de P.J. KELLY et M.J. LAUBITZ [14] qui ont étudié les caractéristiques des courbes de thermoluminescence d'alumines très pures ou activées au magnésium. Par ailleurs, de nombreuses études ont porté sur les aluminés activées, saphir et rubis.

LE CORINDON

En conclusion du paragraphe précédent, il apparaît que, si l'on veut disposer de cristaux présentant des pièges à très haute température, donc stables, il faut utiliser une alumine qui soit complètement déshydratée, donc calcinée à très haute température et qui contienne une proportion relativement importante de sodium.

Nous avons sélectionné un corindon qui est obtenu par électrofusion, donc à température élevée, et qui présente une proportion non négligeable de sodium; les impuretés sont en effet les suivantes :

Na : 0,700 p. cent

SiO₂ : 0,020 p. cent

Fe₂O₃ : 0,050 p. cent

Ti : 0,004 p. cent

L'électrofusion est suivie d'un refroidissement très lent, qui conduit à un produit bien cristallisé, transmettant convenablement la lumière émise par le phénomène de thermoluminescence. Il existe en effet des corindons qui se présentent sous la forme d'agglomérats opaques de petits cristaux qui ne semblent pas présenter ce phénomène, car l'émission est absorbée dans les grains.

D'après des analyses effectuées sur un échantillon, le corindon choisi est formé de 94,8 p. cent en poids de phase alpha et de 5,2 p. cent de phase bêta (composé de formule (Al₂O₃, Na₂O).

II - ANALYSE DE LA RADIOTHERMOLUMINESCENCE DU CORINDON

LE SPECTRE DE THERMOLUMINESCENCE

On utilise 30 milligrammes de corindon préalablement irradié à l'aide d'une source de ⁹⁰Sr - ⁹⁰Y.

La lecture est effectuée dans un appareil courant du commerce [15] équipé d'un photomultiplicateur et d'un amplificateur à condensateur vibrant - Inter-technique ACV 101.

La température est mesurée à l'aide d'un thermocouple chromel-alumel à temps de réponse rapide. La vitesse de chauffage choisie est de 25 °C par seconde. Un enregistreur à double entrée permet de tracer sur un même graphique l'évolution dans le temps du courant délivré par le photomultiplicateur et de la différence de potentiel entre les soudures du thermocouple (fig. 1).

La courbe de thermoluminescence obtenue est représentée (fig. 2) en trait plein. Elle comporte quatre pics que nous repérons par les chiffres I - II - III et IV. Les trois premiers sont pratiquement confondus; le quatrième est nettement séparé. Nous avons évalué les températures correspondant à ces pics; les résultats obtenus, compte tenu des divers paramètres qui peuvent entraîner des erreurs (mesure de la tension fournie par le thermocouple, retard du thermocouple, retard de transmission de la chaleur) sont en assez bon accord avec ceux de James K. RIEKE [13] (voir fig. 3). Remarquons que, la vitesse de la montée en température étant très différente de celle utilisée par cet auteur (25 °C par seconde au lieu de 250 °C par seconde), on aurait dû constater un léger déplacement du maximum des pics vers les faibles températures.

STABILITÉ DES ÉLECTRONS DANS LEURS PIÈGES

Les niveaux les plus bas correspondent à des pièges peu profonds d'où les électrons s'échappent progressivement, même à la température ambiante. Pour les applications dosimétriques, seuls les pièges relativement stables présentent un intérêt, car ils conservent intacte l'information avant la lecture.

Nous avons mesuré le temps nécessaire pour qu'à 25 °C chaque niveau énergétique laisse échapper la moitié des électrons piégés. Nous avons noté dans le tableau de la figure 4 les résultats de l'expérience et le temps pendant lequel nous avons observé la décroissance des pics de thermoluminescence. Toutes les mesures sont relatives à la hauteur des pics.

Les mesures sur les trois premiers pics ont été effectuées pendant un temps correspondant sensiblement à la demi-vie des électrons dans leurs pièges; nous considérons que la durée du temps d'observation du phénomène de décroissance est suffisante pour obtenir des résultats précis. Ils sont cependant légèrement altérés par le fait que ces pics sont très proches les uns des autres et, contrairement au cas du fluorure de lithium, il est très difficile de les séparer; ils agissent donc les uns sur les autres. C'est ainsi que, pour le pic III, on observe, pendant les 10 premiers jours, une décroissance accélérée due à la présence du pic II qui décroît très rapidement; seuls les résultats obtenus après ce laps de temps ont une valeur significative.

La décroissance du pic IV n'a pas pu être observée pendant un temps suffisant, la durée de vie des électrons dans leurs pièges est très grande; sa valeur n'est connue que très approximativement. Bien que ce pic ne soit pas perturbé d'une façon sensible par la présence du troisième, nous avons remarqué qu'il est préférable, pour des raisons que nous ignorons actuellement, d'attendre environ trois jours avant de commencer les mesures. Nous avons en effet observé un phénomène de stabilisation qui se manifeste par une diminution du signal de 10 p. cent environ. L'évolution de ce phénomène est accélérée par un préchauffage de 10 mn à 150 °C (fig. 5) qui élimine les trois premiers pics.

On en conclut que le quatrième pic est utilisable pour les mesures dosimétriques, car il est très stable et peut être aisément séparé des pics précédents. Ces derniers ne pourraient être utilisés qu'en tenant compte de leur décroissance, ce qui compliquerait les mesures.

SENSIBILITÉ AUX RAYONS GAMMA DU ^{60}Co

Nous avons représenté sur les graphiques a et b de la figure 6 la courbe de thermoluminescence d'un échantillon de fluorure de lithium type N irradié en un point où la dose absorbée dans l'air est de 2 rads et celle d'un échantillon d'alumine de même granulométrie irradié en un point où la dose absorbée dans l'air est de 6 rads.

Les rapports de la hauteur des pics III et IV de l'alumine à celle du pic principal du LiF sont :

- pour le pic III (Al_2O_3) III/LiF = 0,20
- pour le pic IV (Al_2O_3) IV/LiF = 0,12.

Remarquons que la sensibilité du pic IV semble inférieure à celle signalée par CAMERON [5].

Si la lecture des échantillons est effectuée peu après l'irradiation, on a intérêt à opérer par intégration du courant correspondant à la somme des pics II, III et IV. On obtient alors une sensibilité égale à environ 30 p. cent de celle du fluorure de lithium. Nous avons pu dans ces conditions mesurer des doses relativement faibles : 100 mrad absorbés dans l'air.

Si la lecture est effectuée quelque temps après l'irradiation, il est préférable d'analyser le pic IV seul; on évite ainsi les corrections de décroissance. La dose minimale décelable absorbée dans l'air est alors d'environ 500 mrad, à condition de faire circuler de l'azote sur l'échantillon au moment de la lecture. Dans le cas contraire, le phénomène de triboluminescence produit un signal « parasite » équivalent à 3 ou 4 rads, ce qui limiterait les mesures à un seuil de 10 rads environ.

EMISSION SPECTRALE DE L'ALUMINE

Des expériences préliminaires nous ont permis de remarquer que les trois premiers pics ont une émission lumineuse située principalement dans le bleu alors que le quatrième émet plutôt dans l'orangé et dans le rouge. Ceci confirme bien la différence d'identité des pièges mentionnée dans le rapport de James K. RIEKE [13]. Il s'ensuit également que le quatrième pic est en fait plus important qu'il ne le paraît dans le graphique de la figure 2. En effet, le photomultiplicateur du lecteur Conrad utilisé est assez peu sensible pour les longueurs d'onde supérieures à 550 nm. Si on le remplace par un photomultiplicateur mieux adapté (photomultiplicateur à cathode Bi, Ag, Cs), on peut espérer multiplier la sensibilité relative du pic IV par un facteur au moins égal à deux.

Remarquons également que, l'émission lumineuse de ce pic étant assez caractéristique (les autres pics émettent faiblement dans les grandes longueurs d'onde), on peut utiliser cette propriété pour mesurer d'une façon préférentielle l'émission du pic de dosimétrie, à l'aide d'un filtre optique convenablement choisi.

GRANULOMÉTRIE

Les études portant sur la résistance mécanique des matériaux de construction dont il sera question plus loin nous ont amenés à vérifier l'influence de la dimension des cristaux sur la réponse de l'alumine. On remarquera sur le tableau de la figure 7 que celle-ci n'évolue que lentement dans la gamme de 40 à 400 μm . Ces résultats sont assez voisins de ceux obtenus avec du borate de lithium par exemple. Pour les grains de taille inférieure, on remarque une perte notable de la sensibilité, due certainement à une mauvaise transmission de la lumière. Les grains de taille supérieure sont difficiles à chauffer.

SUPRA-LINÉARITÉ

Les courbes du graphique, figure 8, donnant l'amplitude des pics III et IV en fonction de la dose absorbée dans l'air et les résultats du tableau, figure 9,

montrent que la réponse de l'alumine n'est pas une fonction linéaire de la dose. Il est donc nécessaire d'utiliser une courbe d'étalonnage.

On remarquera notamment que la mesure des doses faibles (1 rad) est perturbée, malgré l'usage d'azote, par le phénomène de triboluminescence et de ce fait légèrement surestimée; notons qu'à 100 rads la réponse est supérieure de 8 p. cent pour le pic III et 4 p. cent pour le pic IV à celle calculée à partir de la valeur obtenue pour 10 rads en supposant la réponse proportionnelle à la dose absorbée dans l'air.

Toutes ces mesures ont été faites trois semaines après l'irradiation des échantillons pour éviter l'influence des pics I et II sur le pic III.

Les courbes du graphique (fig. 10) montrent que la gamme d'utilisation de l'alumine est limitée à environ 10^5 rads. Il est possible d'effectuer des mesures jusqu'à 10^6 rads mais avec une précision moins grande. Au-delà de cette valeur, on observe le phénomène de saturation.

RÉPONSE EN FONCTION DE L'ÉNERGIE

Nous avons irradié des échantillons d'alumine à des rayons X monochromatiques d'énergies variées obtenus en excitant les raies de fluorescence d'une cible d'un métal donné dans un faisceau primaire de rayons X. Les échantillons sont irradiés à 90° par rapport au faisceau primaire. Le montage a été spécialement conçu pour limiter l'influence du rayonnement diffusé par la cible.

Les résultats sont rassemblés dans le tableau de la figure 11 et reportés sur le graphique de la figure 12. Les courbes en traits pleins représentent les sensibilités spectrales relatives théoriques calculées par J. CLUCHET et H. JOFFRE [16] pour :

- a) le fluorure de lithium,
- b) l'alumine,
- c) le fluorure de calcium.

On remarque que l'alumine présente une nette supériorité sur le fluorure de calcium; cette propriété peut être particulièrement appréciée pour certaines applications, mais elle est altérée dans le cas d'un échantillon compact de grandes dimensions par l'auto-absorption dans le détecteur. Le résultat de la mesure dépend en effet de la profondeur à laquelle on effectue le prélèvement.

Remarquons que l'on pourrait utiliser ce phénomène pour obtenir des renseignements sur l'énergie du rayonnement incident; il suffirait de prélever des échantillons à différentes profondeurs. Cette méthode est imprécise, mais elle pourrait être utile dans bien des cas.

SENSIBILITÉ AUX NEUTRONS THERMIQUES

Les irradiations ont été réalisées auprès d'un ensemble sous-critique. Pour la mesure de la fluence des neutrons, on a utilisé des détecteurs à activation du type SNAC [17].

Deux échantillons d'alumine ont été placés respectivement :

A) dans un conteneur en lithium fritté, pour la mesure de l'effet des rayonnements gamma et des neutrons rapides;

B) dans un conteneur en graphite d'épaisseur équivalente, pour la mesure de l'effet global gamma + neutrons.

Nous avons constaté qu'avec un lot d'alumine spécialement choisi pour sa pureté la différence des réponses des systèmes A et B correspond à une dose apparente de 6,6 rem pour une irradiation effectuée dans une fluence de $10,30 \times 10^{10}$ neutrons par cm^2 soit 120 rem environ [18]. Sa sensibilité relative est donc :

$$S_{th} = \frac{A_B - A_A}{D_{th}} = \frac{6,6}{120} = 5,5 \text{ p cent}$$

avec :

A_A réponse de l'appareil de mesure pour l'échantillon A

A_B réponse de l'appareil de mesure pour l'échantillon B

D_{th} équivalent de dose de neutrons thermiques en rem.

A titre d'exemple, le fluorure de lithium enrichi à 99,998 p. cent* en isotope 7 présente, dans les mêmes conditions expérimentales, une sensibilité relative égale à

$$S_{th} (\text{FLi}) = \frac{26}{120} = 22 \text{ p. cent},$$

soit 4 fois supérieure à celle de l'alumine.

Nous voyons donc que la sensibilité aux neutrons thermiques de l'alumine est très faible. Une fluorescence équivalente à celle produite par un rontgen de gamma du ^{60}Co est engendrée par une fluence de $1,515 \times 10^{10}$ neutrons par cm^2 , soit A la réponse du détecteur :

$$A = 6,6 \times 10^{-11} \Phi_{th}.$$

Des irradiations ont été effectuées auprès du dispositif CRAC (excursions critiques d'une source « solution » [18]. L'exposition gamma mesurée était, par exemple, égale à 465 R et la fluence thermique égale à $11,9 \times 10^9$ neutrons par cm^2 . L'exposition apparente calculée est alors égale à 7,85 R. Les mesures de routine étant faites avec une précision de l'ordre de 5 p. cent, l'effet des neutrons thermiques n'est pas décelable. Pour des spectres de fission même modérés, il pourra donc être généralement négligé.

SENSIBILITÉ AUX NEUTRONS RAPIDES

Nous avons vérifié que, comme le laisse prévoir sa composition, le matériau utilisé est très peu sensible aux neutrons rapides d'énergie inférieure à 7 MeV. Un échantillon soumis à une dose de 10 rem par une source de plutonium-béryllium donne une réponse équivalente à une irradiation de 100 millirems à une source de ^{60}Co , valeur qui correspond au seuil de sensibilité de l'alumine et est certainement surestimée du fait de la présence de rayonnement gamma.

* Rapport d'analyse fourni par la Société Isotopes INC. (USA) le 25 mars 1968. Cet échantillon nous a été fourni par Mme le Docteur PARMENTIER du Département de Protection.

La sensibilité aux neutrons d'énergie supérieure à 7 MeV résulte de la perte d'énergie des particules alpha créées par la réaction :

Bien que les neutrons de cette énergie soient en faible proportion dans la plupart des spectres que l'on rencontre, même auprès des ensembles critiques, leur influence sur le résultat de la mesure peut n'être pas négligeable.

Pour la même irradiation auprès du dispositif CRAC, où la dose gamma de référence est égale à 465 R, la moyenne des mesures obtenues à partir de plusieurs lots d'alumine est égale à 494 R. Les mesures du laboratoire sont faites avec une précision de l'ordre de 1 p. cent.

L'effet de la fluence rapide sur le détecteur, en particulier pour des spectres de fission, ne pourra être négligé que si les résultats ne sont pas demandés avec une précision supérieure à 15 p. cent.

Il est à noter que le fluorure de lithium enrichi à 99,998 p. cent en isotope 7 indique au même point de mesure 510 R. De nombreuses expériences ont montré que, dans ce type de champ mixte, l'alumine thermoluminescente était au moins aussi intéressante, sinon plus, que le fluorure de lithium.

Compte tenu de la différence de prix des deux produits et à la condition que le spectre ne soit pas trop dégradé en énergie, il nous paraît donc préférable d'utiliser l'alumine thermoluminescente.

SENSIBILITÉ A LA LUMIÈRE

Nous avons constaté que la lumière agit sur l'alumine de deux façons :

- elle augmente la prédose des cristaux non irradiés (100 p. cent environ),
- elle vide les pièges de leurs électrons; il s'ensuit une décroissance progressive de tous les pics de thermoluminescence.

Nous avons brièvement étudié ce dernier phénomène et nous avons constaté que les rayons ultra-violetes parviennent à effacer presque totalement le pic de dosimétrie en 3 ou 4 jours alors que, dans le même temps, la lumière artificielle ou naturelle diminue son intensité de 20 p. cent environ. Si les échantillons sont conservés dans un local faiblement illuminé, l'effacement du pic est négligeable.

III — MISE EN ŒUVRE DE L'ALUMINE

Après avoir rapporté, dans ce qui précède, les résultats obtenus lors de notre étude sur la thermoluminescence de l'alumine, nous nous proposons maintenant de décrire la mise en œuvre de ce produit.

FABRICATION DES BRIQUES DE CORINDON [19], [20]

Description des briques — Elles sont parallélépipédiques et de dimensions réduites par rapport à une brique normale (dimensions adoptées : 55 × 55 ×

110 mm) et présentent trois précarottages cylindriques borgnes qui permettront le prélèvement rapide des échantillons sur place.

Elles peuvent être revêtues totalement ou partiellement par un enduit protecteur transparent (émail, céramique ou film de résine plastique polymérisable). Des signes d'identification ineffaçables tracés sur le matériau avant application de l'enduit permettent un repérage facile.

Fabrication des briques — Ces briques sont du type « surcomprimé » c'est-à-dire à haute teneur en agrégat comprimé à sec. Le problème est d'agglomérer le maximum de grains de dimensions bien définies avec un minimum de liant. De tels produits n'ont pratiquement pas de tensions internes, le retrait à la cuisson est quasi nul, les cotes sont précises, les briques sont saines et leur résistance mécanique à la compression étonnante (600 kg/cm²).

<i>Composition des briques</i> —	corindon broyé (0 - 0,2 mm) =	96 p. cent
	feldspath sodique =	3 p. cent
	kaolin =	1 p. cent

— *Revêtement protecteur* — Sur sa face avant, la brique est revêtue d'une couche protectrice d'émail céramique ou d'un vernis plastique transparent. Le revêtement débordé sur les quatre faces orthogonales sans toutefois les couvrir entièrement. La face arrière est laissée nue. L'enduit permet d'éviter la contamination éventuelle de la face visible, car il est facilement lavable, et protège le corindon de l'action de la lumière.

Autres présentations — Nous avons également réalisé d'autres types d'éléments de construction tels que tuiles, carreaux de revêtement ou de décoration que l'on peut inclure dans les constructions déjà existantes.

ECHANTILLONNAGE

Après avoir récupéré deux carottes de la brique ou deux coins du carreau de revêtement, il suffit de les frotter l'un contre l'autre; ce mouvement détache les grains d'alumine de leur liant sans les altérer ni les broyer. On peut ainsi récupérer les quelques dizaines de milligrammes de poudre qui sont nécessaires pour faire une ou plusieurs mesures. Il est inutile de peser la poudre : il existe de petits doseurs volumétriques qui permettent de prélever la masse de poudre désirée avec une reproductibilité suffisante.

LECTURE

On peut utiliser les appareils courants du commerce conçus pour les poudres thermoluminescentes. Il serait cependant souhaitable, pour accroître la sensibilité relative du pic émis à la température la plus élevée, de l'équiper d'un photomultiplicateur sensible aux grandes longueurs d'onde et d'un filtre optique convenablement choisi; il faut cependant veiller à ne pas collecter la lumière émise par le système de chauffage.

Pour la mesure des doses absorbées dans l'air inférieures à 10 rads, il faut faire les lectures dans un flux d'azote afin de supprimer l'émission de lumière due au phénomène de triboluminescence.

ÉTALONNAGE

On peut adopter l'une des deux méthodes suivantes :

Pré-étalonnage — Si les briques sont repérées par lot de fabrication, on peut disposer d'un élément du même lot que l'on expose à un rayonnement connu et qui permet de régler la sensibilité du lecteur. Cette méthode peut être adoptée pour la surveillance des installations nucléaires où l'on peut admettre que toutes les briques proviennent d'un même lot.

Post-étalonnage — S'il n'en est pas ainsi, on peut étalonner l'échantillon qui a servi aux mesures; il suffit d'effacer complètement la thermoluminescence rémanente par un chauffage de quelques minutes à 300 °C. Pour les fortes doses, il faut tenir compte de la création par l'irradiation de pièges supplémentaires qui modifient la sensibilité du matériau (fig. 10).

Rappelons qu'après prélèvement les échantillons ne doivent pas être exposés à une lumière trop intense; il est de plus recommandé de traiter les échantillons à 150 °C pendant 10 minutes pour vider les pièges superficiels et stabiliser les pièges les plus profonds avant d'effectuer les mesures de radiothermoluminescence, ou d'utiliser un lecteur présentant un pallier de préchauffage.

IV - RÉSULTATS OBTENUS AU COURS DES ESSAIS NUCLÉAIRES DU PACIFIQUE

A titre expérimental, des briques thermoluminescentes au corindon ont été exposées aux rayonnements directs d'explosions nucléaires de diverses énergies, jusqu'à des distances telles que tous les autres dosimètres (stylos à lecture directe, films, etc.) étaient détruits par les effets mécaniques ou thermiques de l'explosion. Dans les zones où ces derniers dosimètres permettaient d'effectuer des mesures, on leur a comparé les résultats obtenus avec les briques.

Pratiquement, on a établi une courbe de dose absorbée D_0 par unité d'énergie, en fonction de la distance au point zéro, à partir des dosimètres autres que les briques. On a extrapolé cette courbe vers les fortes températures, pour lesquelles on ne disposait pas d'autres mesures que celles de briques. Enfin, on a établi la courbe de la figure 13 qui donne, en fonction de la dose moyenne D_0 , la dose D_B lue sur les briques exposées. Les unités sont arbitraires. On n'a éliminé des résultats que deux valeurs aberrantes.

Nous avons pu effectuer les constatations suivantes :

1° Même lorsque l'onde de chaleur et l'onde de choc avaient entraîné des dommages prononcés (brûlure du vernis, bris, écaillage, etc.) tels que les montrent les photographies de la planche 14, l'information recueillie n'a pas été altérée de façon significative. Les doses relevées étaient alors de plusieurs milliers de rads.

2° Le long d'une même carotte, on a effectué plusieurs lectures situées à des profondeurs comprises entre 5 et 30 mm de la surface. On a constaté des écarts de l'ordre de 10 à 30 p. cent entre ces lectures, la valeur maximale étant atteinte

généralement entre 5 et 15 mm. On peut avancer deux hypothèses pour expliquer cette évolution : une augmentation de la dose avec la profondeur, par évolution vers l'équilibre électronique, et une atténuation du rayonnement par le corindon.

On ne peut pas tirer de conclusions définitives sur ce phénomène, car les observations sont peu nombreuses et les spectres de photons différents d'une mesure à une autre. Ceci explique, en partie, la dispersion des mesures. L'influence des neutrons ne semble pas observable.

3° L'examen de la figure 13 montre une dispersion de l'ordre de 35 à 50 p. cent autour de la moyenne des résultats obtenus avec les briques. Notons que, dans les conditions d'irradiation considérées, la dispersion obtenue avec tous les autres dosimètres est du même ordre de grandeur.

On constate également une sous-estimation de la dose, comparativement aux autres dosimètres. Cet écart, inférieur ou égal à 30 p. cent, peut résulter d'une différence notable entre les spectres d'exposition et celui de l'étalonnage (cobalt 60). Ce point mériterait une étude plus complète de la réponse du corindon en fonction de l'énergie gamma.

CONCLUSION

S'il était jusqu'alors possible, à l'occasion de tirs nucléaires expérimentaux ou des grands accidents, d'assurer « a posteriori » la dosimétrie des neutrons par les techniques d'activation, il n'existait pas de méthode équivalente pour la dosimétrie des rayonnements électromagnétiques.

La technique que nous préconisons comble cette lacune; elle fait appel à un procédé qui est maintenant couramment utilisé dans les laboratoires.

Nous avons choisi un matériau radiothermoluminescent qui, s'il ne peut pas prétendre concurrencer les produits généralement utilisés pour la dosimétrie, présente cependant des caractéristiques suffisantes pour l'usage auquel on le destine. Il donne, en effet, une information très stable et peut, de ce fait, être exploité longtemps après irradiation. Il peut être utilisé dans une large gamme de dose (0,5 à 10^6 rads). Il est pratiquement insensible aux neutrons rapides et aux neutrons thermiques, ce qui facilite son utilisation pour les mesures du rayonnement gamma dans les champs mixtes. La variation de sa sensibilité spectrale est faible pour les énergies supérieures à 70 keV; ceci présente un certain intérêt pour les mesures concernant les retombées radioactives.

D'un très bas prix de revient, le corindon, dont nous venons de décrire les propriétés dosimétriques, pourrait être utilisé efficacement non seulement pour les besoins d'une dosimétrie accidentelle d'appoint auprès des installations nucléaires, mais aussi pour ceux de la protection civile, pour la dosimétrie systématique du territoire et des locaux.

Les essais effectués avec des briques thermoluminescentes au corindon montrent que ces dosimètres sont bien adaptés à la mesure des doses lors d'accidents nucléaires importants et même en cas d'explosion nucléaire.

Ces dosimètres se sont révélés insensibles aux phénomènes violents qui accompagnent une telle explosion. Ils répondent donc aux impératifs fixés lors de leur conception.

Enfin, compte tenu de sa faible sensibilité aux neutrons, nous utilisons ce matériau pour la dosimétrie du personnel dans l'éventualité d'irradiations importantes accidentelles; un échantillon de poudre d'alumine est placé dans tous les dosimètres individuels PSIC [21].

BIBLIOGRAPHIE

- [1] HIGASHIMURA T., ICHITAWA Y., SIDEI T. *Science* 139, 1284 (1963).
- [2] DANIELS F., BOYD C.A., SAUNDERS D.F. *Science* 117, 343 (1953).
- [3] DANIELS F. and RIEMAN W.P. *Final report n° 7*, University of Wisconsin, February 16, 1954.
- [4] SCHULMAN J.H., GINTHER R.D., KIRK R.D. and GOULART H.S. Thermoluminescent dosimeter NRL 5326, April 1959.
- [5] CAMERON J.R., DANIELS F., JOHNSON N. and KENNEY G. *Science* 134, 333 (1961).
- [6] SCHAYES R., BROOKE C., KOZLOWITZ I. and LHEUREUX M. In luminescence dosimetry AEC, Symposium series 8, p. 138 (1967).
- [7] GINTHER R.J. and KIRK R.D. *J. electro chem. soc.* 104, 365-9 (1957).
- [8] SCHULMAN J.H., KIRK R.D. and WEST E.J. Luminescence Dosimetry, AEC Symposium, Séries 8, p. 113 (1967).
- [9] KENNEY G.N. and CAMERON J.R. Progress report TID 19112, Wisconsin University Madison.
- [10] DEAN P.N. and LARKINS J.H. *L.M.A.S* 3034, July, 1963.
- [11] RIDGWAY, KLEIN and O'LEARY. Transactions of Electrochemical Society, vol. 70, p. 71 (1936).
- [12] PASCAL P. Nouveau traité de chimie minérale. Masson, Tome 6, p. 574.
- [13] RIEKE J.K. and DANIELS F., *J. Phys., Chem.*, 61, 629 (1957).
- [14] KELLY P.J. and LAUBITZ M.J. *J. Am., Ceram.*, 61, 629 (1957).
- [15] CONRAD, Reader TLD 4 - Isotopes 7675.
- [16] CLUCHET J. and JOFFRE H. Luminescence Dosimetry. *AEC Symposium*, Séries 8, p. 349 (1967).
- [17] BRICKA M. and CERCY J. A.I.E.A. Vienna 381, 1965.
- [18] MARCHAL P., MEDIONI R. et coll. Communication privée, Steppa, mars 1969.
- [19] CARPENTIER S., DAJLEVIC R., DELARUE R., FRANCOIS H., PORTAL G., PRADEL J., SOUDAIN G. French patent, PV 143427, 12.3.68, PV 136564, 18.1.68.
- [10] FRANCOIS H., PRADEL J., CARPENTIER S., DAJLEVIC R. Symposium Interlaken, 27.5.68.
- [21] G. PORTAL, P. MARCHAL, H. FRANCOIS, J. PRADEL. A.I.E.A., S.M. 119/13, mai 1969.

FIG. 1. — Schéma du lecteur TLD.

FIG. 2. — Courbe de luminescence de Al_2O_3 .

	JK RIEKE	Rapport
pic 1	$103 \pm 5^{\circ}\text{C}$	$102 \pm 4^{\circ}\text{C}$
pic 2	$123 \pm 5^{\circ}\text{C}$	$113 \pm 5^{\circ}\text{C}$
pic 3	$164 \pm 5^{\circ}\text{C}$	$166 \pm 6^{\circ}\text{C}$
pic 4	$236 \pm 5^{\circ}\text{C}$	$244 \pm 10^{\circ}\text{C}$

FIG. 3. — Température d'émission des différents pics.

	durée de l'expérimentation	$1/2$ vie
pic 1	1h 30 mn	1h
pic 2	140 h	140h
pic 3	90 jours	115 jours
pic 4		très long

FIG. 4. — Stabilité des électrons dans leurs pièges.

temps (mn)		5	10	15	20	25	30	40	50
hauteur de pic (%)	135 °C	98	96	93	92		92	91	92
	150 °C	95	91		93	91	93		

FIG. 5. — Préchauffage à 135 °C et 150 °C.

FIG. 6. — Courbes de luminescence de LiF et de Al₂O₃.

dimension des grains	intensité du pic 4
0,02 mm	20 mV
0,04 mm	44 mV
0,09 mm	50 mV
0,12 mm	50 mV
0,20 mm	44 mV
0,40 mm	40 mV

FIG. 7. — Intensité relative de la luminescence en fonction de la dimension des grains.

FIG. 8. — Intensité de la luminescence en fonction de la dose absorbée dans l'air.

dose absorbée dans l'air, rads	1	10	30	100	200	400	600	800	1000
pic 3	7,7	74	218	802	1530	3420	5200	7410	9810
pic 4	6,3	52,5	156,6	549	1230	2920	4950	7350	9700

FIG. 9. — Al_2O_3 . — Intensité de la luminescence en fonction de la dose absorbée dans l'air (résultats exprimés en mV)

FIG. 10. — Linéarité de Al_2O_3 - Fortes doses.

Dose (rads)	10^2	10^3	$2 \cdot 10^3$	$5 \cdot 10^3$	10^4	$2 \cdot 10^4$	$4 \cdot 10^4$	$6 \cdot 10^4$	$8 \cdot 10^4$	10^5
HAUTEUR DU PIC DE DOSIMÉTRIE (mV)	36	560	1695	7550	25000	72000	135000	180000	204000	225000

FIG. 11. — Al_2O_3 - Sensibilité spectrale relative au tissu mou ($S(E_p)$)
Valeurs calculées et expérimentales.

Energie	$S(E_p)$
8 KeV	0,45
15 "	2,2
25 "	4
43 "	2,8
68 "	2,6
^{60}Co	0,9 (point de reference)

FIG. 12. — Al_2O_3 - Sensibilité spectrale relative au tissu mou.

FIG. 13. — Mesure des doses absorbées par briques thermoluminescentes au corindon.

FIG. 14. — Briques thermoluminescentes au corindon après expérimentation.