

R&D métrologie des rayonnements ionisants à l'IPHC : de l'application des détecteurs visuels aux mesures environnementales

A. NOURREDDINE¹, J.C. ADLOFF¹, M. DEBEAUVAIS¹, C. HEILMANN¹,
S. HIGUERET¹, A. HAESSLER¹, D. HUSSON¹, D. MOUHSSINE¹, A. NACHAB¹,
A. PAPE¹, G. PORTAL², J. TRIPIER¹, M. TROCME¹

(Manuscrit reçu le 6 novembre 2006, accepté le 28 février 2007)

RÉSUMÉ Dans ce travail sont présentées quelques activités des groupes SADVI (Service d'Application des Détecteurs Visuels), LAM (Laboratoire d'Analyses et de Mesures) et RaMsEs (Radioprotection et Mesures environnementales) qui se sont succédés à l'IPHC de Strasbourg ces dernières années. Les résultats concernent : la R&D en métrologie des rayonnements ionisants, les applications des détecteurs solides de traces, les émulsions nucléaires en biologie spatiale, la thermoluminescence pour la datation archéologique, la dosimétrie neutron et les mesures de la radioactivité dans l'environnement par spectrométrie α , β et γ .

ABSTRACT Metrology R&D of ionizing radiations at IPHC: from applications of visual detector to environmental measurements.

In this work we present some activities of the SADVI (Service d'Application des Détecteurs Visuels), LAM (Laboratoire d'Analyses et de Mesures) and RaMsEs (Radioprotection et Mesures Environnementales) groupe that followed each other at the IPHC of Strasbourg, concerning mainly R&D on ionizing radiation metrology, applications of visual track detectors, photographic emulsions for spatial biology, archaeological dating by thermoluminescence, neutron dosimetry and analysis of environmental radioactivity by α , β and γ spectrometry.

Keywords: track detector / active-passive dosimetry / Monte-Carlo simulation / environmental monitoring

1. Introduction

Plusieurs équipes de Strasbourg travaillant dans le domaine de la métrologie des rayonnements ionisants et de la dosimétrie ont participé par des contributions aux journées des LARD (Laboratoires Associés de Radiophysique et de Dosimétrie). Dans cet article nous allons présenter quelques travaux effectués dans le cadre des

¹ Institut Pluridisciplinaire Hubert-Curien, UMR 7178 ULP/CNRS-in2p3, BP 28, 23 rue de Lœss, 67037 Strasbourg Cedex 2, France.

² Institut de radioprotection et sûreté nucléaire, Service de dosimétrie externe, BP 63, 92265 Fontenay-aux-Roses, France.

activités des différentes équipes qui se sont succédées ces deux dernières décennies à l'IPHC, à savoir :

- le SADVI (Service d'Application des Détecteurs Visuels) du CRN (Centre de Recherches Nucléaires) dirigé par M. Debeauvais de 1980 à 1995 ;
- le LAM (Laboratoire d'Analyse et de Mesures) de l'IReS (Institut de Recherches Subatomiques) dirigé par J.C Adloff de 1996 à 2000 ;
- le RaMsEs (Radioprotection et Mesures Environnementales) de l'IPHC (Institut Pluridisciplinaire Hubert-Curien) dirigé par A. Nourreddine depuis 2000.

2. Service d'Application des Détecteurs Visuels

Les thématiques développées au SADVI ont porté principalement sur trois orientations :

- études et utilisations des détecteurs visuels organiques : dosimétrie de neutrons, spectrométrie des ions lourds, recherche d'émetteurs alpha et de clisters dans la nature ;
- dosimétrie passive par émulsions nucléaires et applications à la biologie spatiale ;
- datation archéologique par thermoluminescence (TL).

2.1. Détecteurs visuels organiques

Le principe d'utilisation des Détecteurs Visuels de Traces Nucléaires (DVTN) est basé sur l'interaction des particules chargées avec la matière qui se traduit par la formation de zones endommagées, dites traces latentes, révélées après un traitement chimique ou électrochimique adéquat. La visualisation d'une trace latente ne se réalise qu'à travers des conditions sur plusieurs paramètres physico-chimiques. Chaque type de détecteur est caractérisé par une perte d'énergie critique à la surface du détecteur en dessous de laquelle la révélation des traces n'est pas observable (seuil de détection). Il y a de grandes différences entre les traces latentes présentes dans les minéraux (verre, mica, apatite, quartz, feldspath, etc.) et dans les matériaux organiques polymériques tels que les dérivés cellulosiques (nitrate de cellulose, di-acétate et tri-acétate de cellulose) et les polycarbonates (CR39, Lexan). Dans ce contexte, le laboratoire a mis au point plusieurs systèmes de développement chimique et/ou électrochimique adaptés à chaque sorte de détecteur. Plusieurs travaux ont été réalisés pour l'étude de mécanismes de réactions nucléaires et tout particulièrement pour les mesures de sections efficaces de multi fragmentation *via* la détection de particules chargées dans les DVTN. Les expériences ont été réalisées dans le cadre de collaborations internationales auprès des accélérateurs de GSI (Darmstadt), CERN (Genève) et JINR (Dubna). À titre d'exemples, nous citons les travaux suivants :

- étude des réactions de l'U de 10 à 16,7 MeV/u sur cibles de C, Cu, Ag, Pb, Bi, et U (Debeauvais, 1983) ;

- événements à plusieurs branches provenant de réactions de ^{132}Xe à 14 MeV/u sur des cibles U et Ag ;
- réaction du ^{40}Kr à 17,7 MeV/u sur l'Ag ;
- section efficace d'émission d'événements à plusieurs fragments de masse intermédiaire dans les réactions Kr + Au à 18, 27 et 35 MeV/u ;
- sections efficaces de réaction du ^{12}C à 3,7 GeV/u sur Cu, Pb, et du ^{40}Ar à 1,8 GeV/u sur Cu ;
- observation d'une possible fragmentation symétrique d'un isomère primaire du soufre en deux ions oxygène.

2.2. Application des émulsions nucléaires

Historiquement, les applications des émulsions nucléaires ont été pratiquées dans le laboratoire depuis les années 60 pour des besoins en physique des particules. Dans cette partie nous présentons les résultats de quelques travaux réalisés dans le cadre des projets du Centre national d'études spatiales (Advanced Biostack Experiment) pour la biologie spatiale ainsi que des études concernant la dosimétrie neutron et gamma effectuées dans le cadre d'une collaboration CEA/IRSN :

- dosimétrie par activation neutronique de l'Ag résiduel dans des détecteurs inorganiques, et mesures spectrométriques par émulsions nucléaires exposées aux rayonnements cosmiques ;
- hypersensibilisation de films photographiques par « forming gas » : application à la dosimétrie de faibles doses (< 0,01 mGy) de rayonnement électromagnétique gamma ou X en radiographie éclair et en radioprotection ;
- renforcement du signal photographique par autoradiographie.

2.2.1. Dosimétrie spatiale : Advanced Biostack Experiment

Le laboratoire européen Space Lab mis en orbite en 1983 par la navette spatiale Columbia a emporté un grand nombre d'expériences scientifiques. L'une de ces expériences du groupe Science de la Vie est l'expérience « Advanced Biostack » à laquelle le SADVI a participé. Le but de cette expérience était de déterminer l'importance radiobiologique des ions cosmiques de haute charge et de haute énergie. Les « Biostacks » ont été formés de diverses couches successives de matériau biologique et de détecteurs de différents types (émulsions inorganiques et matières plastiques). Le SADVI avait pris en charge toute la partie inorganique de cette expérience : préparation des émulsions, développement des émulsions, dosimétrie des ions lourds, corrélation entre ions lourds et objets touchés. Le tableau I (Pfohl *et al.*, 1984) résume les résultats obtenus à partir de l'étude d'une dizaine d'émulsions représentant une surface totale de l'ordre 100 cm².

La dose moyenne globale est de 33 µGy. Elle est du même ordre de grandeur que celle mesurée lors du vol de 12 jours d'Apollo 17. Une étude des « étoiles

TABLEAU I
Valeurs des transferts linéiques en énergie et des flux obtenus à partir des analyses des émulsions nucléaires dans l'expérience « Advanced Biostack » IESO27 (ESA) sur Space Lab 1.
Values of the linear energy transfer and the flux obtained from analyses of nuclear track emulsions in the experiment « Advanced Biostack » IESO27 (ESA) on Space Lab 1.

Groupe d'ions	TEL (keV/ μm)	Flux(/ cm^2)
Lourds	1000	7
Moyens	500	45
Légers	250	120

nucléaires » produites dans l'émulsion par les particules alpha et protons du rayonnement cosmique a conduit à un nombre moyen de 10 500 étoiles/ cm^3 , ce qui correspond à une dose moyenne de 5,8 μGy . Pour la calibration, des ions de Fe et d'Ar de 200 MeV/u ont été enregistrés dans des empilements de nitrate de cellulose et de Makrofol. Ces ions ont été produits par l'accélérateur BEVALAC de Berkeley.

2.2.2. Dose totale et spectrométrie par activation neutronique de l'argent résiduel

Cette méthode, fondée sur la réponse des détecteurs photographiques à dose absorbée égale en fonction de leur sensibilité, permet la mesure de la dose globale d'un flux de particules ionisantes. Elle permet, en plus, de différencier cette dose en fonction de la composition en énergie du flux. Le signal est obtenu par dosage, *via* l'activation neutronique, de l'argent résiduel dans les émulsions développées. En effet, l'enregistrement des particules chargées et des photons dépend de leur Transfert d'Énergie Linéique (TEL). Ce dernier varie suivant la nature du rayonnement. La réponse d'une émulsion est fonction de sa sensibilité. Une émulsion sensible au minimum d'ionisation enregistre tous les rayonnements quelles que soient leurs caractéristiques, alors qu'une émulsion très fortement désensibilisée n'enregistre que des ions lourds dont le TEL est 2000 fois plus élevé. L'énergie déposée par le rayonnement incident dans les cristaux de AgBr d'une émulsion y produit des germes d'image latente qui servent de catalyseur à la réduction de tout le monocristal. Une émulsion développée et fixée n'est constituée que d'une matrice de gélatine et d'une certaine quantité d'argent métallique résiduel. Cette quantité d'argent (qui est dosée par activation neutronique) est fonction de la sensibilité du détecteur et de la dose de rayonnement absorbée par ce même détecteur. La méthode a été appliquée lors des vols spatiaux suivants : Bion 10, MIR, IML1, D2, IML2 pour la détermination de la dose totale et partielle. Le tableau II présente ces résultats pour les émulsions K0, K1, K2 et K5 avec divers absorbants pour différentes missions.

Les résultats sont comparés à ceux obtenus par les dosimètres thermoluminescents (TLD). Ils sont en bon accord sauf pour l'expérience Bion 10.

TABLEAU II
Résultats obtenus par activation neutronique comparés à ceux obtenus par TLD.
Results obtained by neutron activation compared with those obtained by TLD.

Mission	Absorbant (g/cm ²)	K5	K2	K1	K0	K2/K5 (%)	K1/K5 (%)	K0/K5 (%)	TLD
Bion 10	2	10	13	0,52	0,06	13,6	5,2	0,6	39,7
62,5° ; 303 km ; 276 h	20	2	0,43		0,1	21,5		0,5	3,84
MIR 92	14	1,5	0,26	0,2	0,06	17,2	7,3	0,4	1,51
51,5° ; 400 km ; 190 h									
IML 1	14	1,05	0,24	0,1	0,04	23	10	0,4	1,02
57° ; 348 km ; 194 h									
D2	14	0,55	0,15	0,04	0,01	27	7	0,2	0,56
28,5° ; 296 km ; 353 h									
IML2	10	1,2	0,3		0,02	12,5		0,2	1,23
28,5° ; 296 km ; 353 h									

Cette différence est à attribuer aux températures excessives atteintes par le satellite lors de sa rentrée dans l'atmosphère.

2.2.3. Contribution des interactions nucléaires à la dose totale

Les dosimètres à émulsion nucléaire sont également utilisés pour la détermination de la dose due aux interactions nucléaires dans les tissus. Cette technique permet de calculer la contribution des interactions nucléaires ou « étoiles » à la dose totale auxquelles les spatonautes sont soumis. Une émulsion est composée à 50 % de gélatine (H, C, N et O). On la considère, par conséquent, comme un équivalent tissu. Une fraction des interactions nucléaires ont leur origine dans la gélatine, mais il est impossible de discriminer les « étoiles » produites par collision avec des éléments légers de celles produites avec les noyaux de Br et d'Ag. La méthode utilisée pour séparer les deux composantes est la suivante : on représente graphiquement le nombre d'étoiles en fonction du nombre de « branches » comptées par microscopie optique. On observe un changement dans la pente de la courbe due à l'augmentation du nombre d'étoiles ayant moins de 7 ou 8 branches. La gélatine étant uniquement composée d'éléments légers, aucune interaction nucléaire de plus de 8 branches ne peut y être produite. La dose due aux étoiles dans les tissus est calculée à partir de ces données en appliquant un certain facteur de qualité ($Q = 7,7$) et une énergie moyenne de 14 MeV par branche. Cette dosimétrie a été réalisée pour les vols spatiaux suivants : SL1, D1, IML1, MIR 92, D2, IML2. Le tableau III présente les résultats obtenus pour ces différents vols (Heilmann *et al.*, 1995).

TABLEAU III
Résultats de dosimétrie obtenus par émulsions nucléaires pour différents vols spatiaux.
Dosimetry results obtained by nuclear emulsions for various space flights.

Mission	Débit de dose absorbée ($\mu\text{Gy}\cdot\text{j}^{-1}$)	Étoiles ($\text{cm}^{-3}\cdot\text{j}^{-1}$)
SL1 (57° ; 250 km)	100 ± 10	730 ± 14
D1 (57° ; 324 km)	202 ± 8	503 ± 21
IML1 (57° ; 384 km)	115 ± 1	743 ± 28
MIR 92 (51,5° ; 400 km)	294 ± 13	612 ± 21
D2 (28,5° ; 296 km)	114 ± 11	651 ± 28

2.3. Fragmentation symétrique d'un isomère primaire du soufre en deux ions oxygène

Certaines traces courtes observées dans des émulsions, ainsi que les plus petits halos nains trouvés dans les micas, n'ont pu être expliqués jusqu'à présent. Les halos uniques ainsi que leur rayons pourraient être la manifestation d'une fragmentation symétrique d'un isomère primaire du soufre ($Z = 16$) en deux ions d'oxygène ($Z = 8$) ayant chacun l'énergie théorique voisine de 1,6 MeV. Des mesures ont été réalisées pour mettre en évidence cette émission en utilisant un détecteur solide de traces : le Lexan. L'expérience consiste à emprisonner une mince couche de sulfure de cadmium entre deux détecteurs repérés mécaniquement l'un par rapport à l'autre. Le sandwich ainsi réalisé est conservé pendant plusieurs semaines. Ensuite, on démonte le sandwich afin de développer chaque détecteur séparément. Pour visualiser les trajectoires d'environ 2 μm en corrélation, deux traitements ont été mis en œuvre : un développement électrochimique (ECE) qui produit une arborescence d'environ 100 μm de diamètre autour de la trajectoire de la particule et un etching chimique (CE) qui permet de visualiser une trace dont les mesures de longueur et de diamètre donnent approximativement l'énergie et le Z de l'ion. Ces deux développements sont réalisés dans des conditions ne permettant pas de visualiser des particules alpha. Les détecteurs sont ensuite remontés ensemble afin de mettre en évidence les traces corrélées d'ions. Sur la figure 1a, la technique utilisée est illustrée avec les deux fragments de fission de l'uranium. Après dépouillement d'une centaine de sandwichs de sulfure de cadmium nous avons observé cinq coïncidences spatiales pouvant correspondre à des ions d'oxygène de 1,6 MeV ayant des angles d'incidence relatifs au plan du détecteur de $\approx 25^\circ$, 30° , 40° et 45° . Le taux de radioactivité en soufre naturel serait :

$$(5,9_{-2,3}^{+3,1}) \times 10^{-4} \frac{\text{événements}}{\mu\text{g}\cdot\text{semaine}} = (9,7_{-3,8}^{+5,1}) \times 10^{-4} \text{ Bq/g}$$

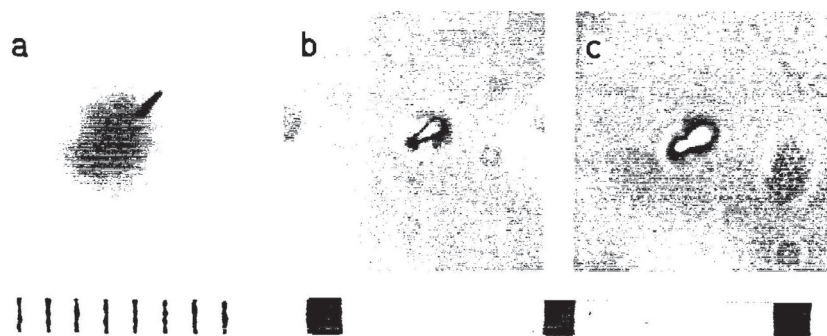


Figure 1 – (a) Trajectoires des deux fragments de fission de ^{235}U visualisées par ECE et par CE. Une division d'échelle égale $10\ \mu\text{m}$. (b) Photo au microscope d'une trace CE trouvée en face d'un arbre ECE obtenue à partir du soufre naturel. L'angle incidence est d'environ 45° et son énergie initiale est d'environ $1.6\ \text{MeV}$. (c) Trace CE de ^{16}O accéléré à $2\ \text{MeV}$ et incident à 45° sur le détecteur.

(a) Trajectories of the two fission fragments of ^{235}U visualized by ECE and CE. One scale division equals $10\ \mu\text{m}$. (b) Photograph under the microscope of a CE trace found opposite an ECE tree obtained from natural sulphur. The incidence angle is about 45° and its initial energy is about $1.6\ \text{MeV}$. (c) CE trace of ^{16}O accelerated to $2\ \text{MeV}$ and incident at 45° on the detector.

La similitude de ces cinq événements est encourageante. Néanmoins il reste à faire une étude du flux de neutrons cosmiques pour savoir s'il pourrait en être responsable. La trace CE à 45° d'une de ces désintégrations est montrée sur la figure 1b. Une trace CE due à un ion d'oxygène accéléré à $2\ \text{MeV}$ au CRN Strasbourg est montrée sur la figure 1c.

2.4. Applications des techniques de thermoluminescence

Depuis les années 80, le laboratoire a procédé à des mesures de TL naturelle ou provoquée, sur des cristaux appropriés pour différentes applications dans des secteurs très variés (Tripier, 1999). Du point de vue du principe physique, certains minéraux, ionisés sous l'effet de radiations, ont la faculté de retenir une partie des électrons ainsi arrachés dans des défauts cristallins, appelés « pièges ». Le niveau de ces pièges est caractérisé par la quantité d'énergie nécessaire à un électron pour lui permettre de se libérer et de pouvoir ainsi se recombiner à un trou du milieu cristallin. Cette recombinaison s'accompagne d'une émission lumineuse. Si l'apport d'énergie est obtenu par chauffage du minéral, le phénomène de TL apparaît alors. La réorganisation du cristal s'effectue avec des émissions de lumière à diverses températures, bien définies, correspondant aux différents niveaux d'énergie des pièges. Or l'intensité lumineuse est proportionnelle au

nombre d'électrons « dépiégés », qui lui-même dépend de la quantité de rayonnements, ou dose, reçue par le cristal. La mesure de la quantité de lumière émise est donc un moyen d'évaluer la dose reçue.

Pour les datations archéologiques, les radiations mises en jeu sont les rayonnements α , β et γ émis par les éléments radioactifs naturels (U, Th et ^{40}K) ainsi que le rayonnement cosmique. Les minéraux thermoluminescents naturels sont essentiellement les cristaux siliceux et principalement le quartz, car c'est l'un des minéraux les plus abondants. Sa radioactivité propre est négligeable et il ne présente pas de fading. La datation ne s'applique qu'à des objets archéologiques contenant des minéraux dont les pièges ont été vidés lors de leur fabrication. Pour les céramiques, c'est le moment de la cuisson de la poterie et la dose de radiations accumulée depuis cet instant est représentative de l'historique de l'objet : on l'appelle « dose archéologique ».

En collaboration avec l'équipe du professeur J.C. Margueron de l'Université Paris-Sorbonne, des datations par la méthode de l'inclusion de quartz de trois séries de poteries en provenance de Mari et de Ramadi (rives de l'Euphrate, Syrie) ont été effectuées. Selon les estimations, ces poteries auraient été conçues au 2^e ou 3^e millénaire avant notre ère. Les résultats obtenus donnent des âges de 4100 et 4700 ans ($\pm 5\%$) indiquant l'existence de deux groupes de céramiques. Par ailleurs deux séries de tessons et de fragments de tuyères de haut fourneau provenant de Tado (Togo) et de sites associés ont été datés. Pour le site de Tado, réputé pour être le berceau du peuplement Aja dans le golfe du Bénin, une période de production située entre 1550 et 1620 de notre ère a été déterminée. On note également que dans le cadre du Groupement de Recherche « Méthodes Nucléaires en Archéologie » (GDR 1033 MNA associant CNRS, CEA et Muséum d'Histoire Naturelle), une étude sur l'intercomparaison des résultats obtenus par diverses méthodes de datation (^{14}C , TL, dendrochronologie, U/Th, ...) a été initiée en 1990. L'objectif final était l'obtention de résultats fiables concernant des objets néolithiques permettant de confirmer des hypothèses relatives à l'émergence de cette époque et son développement en Europe méridionale. Les études ont porté sur une trentaine de sites sélectionnés par les néolithiciens. La compilation des différents résultats a permis d'une part d'estimer la précision atteinte en analyse des radioéléments et en dosimétrie TL, d'autre part de donner pour les milieux étudiés des doses d'irradiation annuelles avec une précision variant de 1,5 à 3 % suivant les milieux. L'ensemble des forages est devenu ainsi un outil appréciable pour calibrer et tester des méthodes dosimétriques dans le cadre de la datation par luminescence et par résonance paramagnétique électronique (RPE).

Une autre application de la technique de TL concerne l'agroalimentaire pour la détection des aliments ionisés. Le traitement industriel par ionisation est un

procédé pratiqué depuis plusieurs années pour assainir des denrées alimentaires et augmenter leur durée de conservation. C'est le cas des épices et des aromates, de certains fruits, de légumes déshydratés, de crustacés, ... Si cette technique est parfaitement légale, les réglementations commerciales, européennes entre autres, obligent généralement le conditionneur à mentionner un tel traitement sur l'étiquetage. Des tests de détection d'ionisation sont parfois nécessaires. Dans ce contexte, une étude de validation d'une méthode de détection d'un traitement ionisant sur un aliment par TL a été réalisée dans le cadre d'une collaboration entre le CRN et le CRITT-AERIAL (Centre Régional d'Innovation et de Transfert de Technologie – Analyse, Etude et Recherches pour l'Industrie Alimentaire de Strasbourg). Le test de détection par TL consiste alors à extraire les minéraux des aliments et à les chauffer, le dépiégeage suivi de la recombinaison des électrons se traduit par une émission lumineuse d'autant plus intense que l'irradiation l'a été.

3. Laboratoire des Analyses et Mesures

Le LAM a été créé en 1996 au sein du CRN devenu IReS (Institut de Recherches Subatomiques) en associant le Service de Radioprotection de la délégation CNRS (Alsace) et le SADVI. Les missions de cette nouvelle équipe concernaient la surveillance, sur le plan de la radioprotection, des accélérateurs, des laboratoires de l'Institut qui mettaient en œuvre des produits radioactifs et de la Pile Universitaire (installation nucléaire de base) dont le contrôle, très contraignant, était strictement régi par la réglementation. Depuis cette date, l'IReS est agréé pour procéder aux contrôles pour la protection des travailleurs contre les dangers des rayonnements ionisants (suivi de 15 000 agents/an du CNRS, universités et organismes privés). Il fait également partie des laboratoires agréés par le ministère chargé de l'environnement et par le ministère chargé de la santé pour les mesures de la radioactivité dans l'environnement. À la demande d'organismes régionaux (Malteries de Strasbourg, ASPA, AERIAL, VIVIRAD, services vétérinaires, ...) ou nationaux (ANDRA, COGEMA, AREMA, Lafarge, ...), il effectue des mesures fines de radioactivité par spectrométrie gamma et par scintillation liquide dans différentes matrices solides et liquides (nappes phréatiques, rivières, déchets liquides) mais aussi dans les rejets organiques ou encore par compteur proportionnel à bas bruit de fond (contaminations atmosphériques α et β , denrées alimentaires, poudres diverses, effluents liquides). Nous avons également mis au point une méthodologie simple et pratique de dosimétrie α basée sur l'exploitation quantitative des DSTN. Cette technique repose sur la connaissance du pouvoir d'arrêt des particules α dans les échantillons étudiés et de la sensibilité d'enregistrement du détecteur. Pour remonter aux teneurs de ^{238}U et de ^{232}Th supposés en équilibre avec leurs descendants dans certains sédiments (phosphates et phosphogypses), nous avons développé deux méthodes. La première est basée sur la simulation des probabilités de détection de traces par simulation

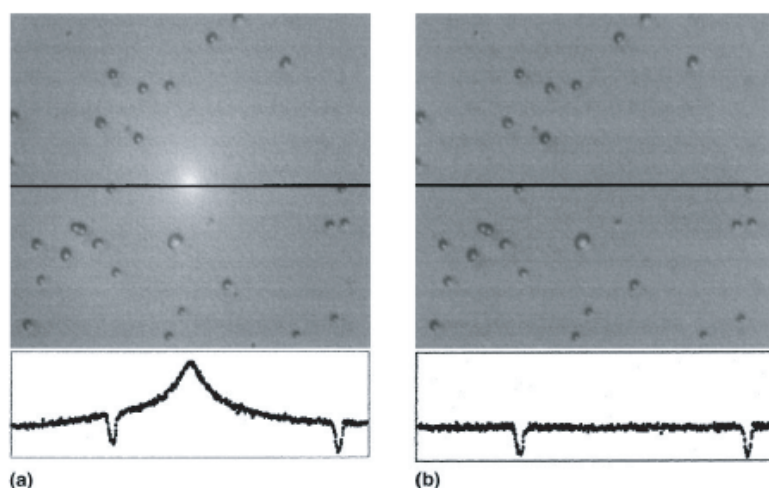


Figure 2 – Relevé de traces de particules d'alpha dans CR39 obtenues par caméra CCD avant (a) et après (b) l'application de la correction par une image de référence. Au-dessous de l'image est donné le profil de l'intensité le long du trait horizontal passant par le centre à l'image (Boukhair *et al.*, 2000).

*Alpha particle tracks in CR39 obtained by CCD camera before (a) and after (b) application of the brightness correction by a reference image. Below the brightness profile along the horizontal line through the center at the image (Boukhair *et al.*, 2000).*

Monte-Carlo. La deuxième fait appel à des procédures de calculs numériques et tient compte des angles critiques d'enregistrement du détecteur, lesquels sont déterminés expérimentalement. Pour vérifier la fiabilité de cette méthode, les mêmes échantillons ont été également analysés par spectrométrie γ en tenant compte de l'auto-absorption. Il ressort de cette étude que les activités spécifiques obtenues par spectrométrie γ et par la méthode de contact autoradiographique au moyen des DSTN sont en très bonne concordance (Nourreddine *et al.*, 1999). Le LAM a également étendu son activité aux mesures du radon par des techniques passives et actives avec la possibilité de coupler ces dernières à des balises d'environnement γ . L'effort a porté sur la mise au point d'une méthode de normalisation permettant de passer d'une activité par unité de surface, mesurée par DSTN LR115 et CR39 à une activité par unité de volume mesurée par chambres à ionisation (Pape *et al.*, 1998). Ces mesures ont nécessité la mise au point d'un nouveau système automatique de traitement d'images associé à un code permettant l'exploitation analytique des traces par recherche de formes et par l'étude détaillée de leur densité lumineuse (*cf.* Fig. 2). Dans ce cadre, le laboratoire a procédé à des

mesures de suivi de l'émanation du radon dans l'environnement (habitations, établissements publics, sites d'anciennes mines d'uranium, ...), et à des analyses des concentrations du radon dissous et émanant des eaux d'un site des Vosges.

Au niveau des mesures par TL, l'activité du groupe a porté principalement sur la datation archéologique de terres cuites par la méthode d'inclusion de quartz et la dosimétrie environnementale des sites de fouilles. Dans ce cadre, une série d'échantillons provenant de divers sites de Strasbourg ont été datés à la demande d'archéologues de la DRAC-Alsace et de l'AFAN. Des expertises pour l'authentification d'objets d'art (poterie mexicaine du début de notre ère, céramique italienne du 16^e siècle) ont été réalisées. Cette méthode a été étendue à la dosimétrie α et radon mais aussi à la détection d'ionisation de denrées alimentaires. En 1999, le LAM s'est équipé d'un système de dosimétrie par TL basé sur l'utilisation de détecteurs LiF dopé en Mg. Ces détecteurs sont caractérisés par un bas niveau de bruit de fond et une grande sensibilité autorisant des doses de 20 μ Gy à 10 Gy. Cette technique est complémentaire de la dosimétrie passive par films argentiques pour certaines applications spécifiques : dosimétrie des extrémités (LiF placé dans une bague), dosimétrie environnementale (utilisation lors de campagnes de mesures environnementales).

Dans le domaine de la réalisation et de l'exploitation des détecteurs visuels, le laboratoire dispose de la dernière installation de fabrication et de traitement d'émulsions épaisses et, encore, de la compétence nécessaire pour l'exploitation de cette technique. À ce titre le laboratoire a participé à une campagne de mesures et de dosimétrie de rayonnements dans les aéronefs et les capsules spatiales.

4. Laboratoire RaMsEs

4.1. Activités RaMsEs

En 2000, le groupe RaMsEs (Radioprotection et Mesures Environnementales) a succédé au LAM au sein de l'IREs actuellement IPHC. La vocation de cette équipe est l'ouverture vers la société et le développement des techniques de métrologie nucléaires et leurs applications dans le domaine de l'environnement. Ses activités actuelles sont organisées autour des thématiques suivantes :

- radioprotection et dosimétrie individuelle réglementaire, le contrôle et la gestion des sources et des déchets radioactifs, et la formation continue et initiale en radioprotection (formation PCR, personne compétente en radioprotection) ;
- analyses et expertises : mesures et analyses de la radioactivité naturelle et artificielle, expertises radiologiques sur site, développement de diverses techniques d'analyses multi-élémentaires (PIXE, XRF, ICP-MS) et applications de la TL pour la datation archéologique et la dosimétrie environnementale ;

- R & D : caractérisation et mise en application de détecteurs visuels (DSTN et films photostimulables) et développement de la dosimétrie active par capteurs CMOS.

4.2. Analyses et mesures environnementales

Dans le domaine des analyses et mesures de la radioactivité, le savoir-faire du RaMSeS s'est affirmé, notamment dans l'analyse d'échantillons environnementaux, et c'est tout naturellement qu'il s'est engagé dans une démarche qualité selon la norme NF EN ISO/CEI 17025 qui s'est concrétisée en 2004 par l'obtention de sa première accréditation COFRAC dans le programme 135 : « Analyses en laboratoire des radionucléides présents dans tous types d'échantillons de l'environnement ». Outre la reconnaissance de la rigueur du schéma organisationnel, l'accréditation par le COFRAC atteste de la compétence et de l'impartialité des analyses et permet, au niveau européen et international, la reconnaissance des prestations effectuées par le laboratoire. Actuellement cette accréditation a été étendue à d'autres essais et englobe la spectrométrie gamma, l'analyse alpha-bêta globale, la mesure par scintillation liquide dans les domaines des analyses de la radioactivité et de la dosimétrie passive par films photographiques pour la surveillance des agents susceptibles d'être exposés aux rayonnements ionisants.

Le laboratoire a récemment fait l'acquisition d'équipements performants de spectrométrie α , β et γ adaptés à l'analyse des faibles radioactivités. Deux stations de mesure par scintillation liquide à bas bruit de fond permettent la séparation des émetteurs α (U, Ra, ...) et β (^3H , ^{14}C , ^{90}Sr) dans des solutions aqueuses (effluents, nappes phréatiques, ...). En particulier deux nouveaux systèmes mobiles Ge(HP) à électronique numérique et dotés d'un code de modélisation des géométries par Monte-Carlo (ISOCS : *In Situ* Object Counting System) permettent de réaliser des analyses quantitatives de spectrométrie γ sur site et au laboratoire.

La spectrométrie γ offre un outil d'analyse performant pour effectuer des mesures environnementales. Cette méthode non destructive permet de doser en une seule mesure l'ensemble des radioéléments émetteurs γ d'énergies comprises entre 20 et 2000 keV présents dans un échantillon. En pratique, la calibration de la chaîne de mesure nécessite un standard le plus similaire possible à l'échantillon (géométrie, matrice, ...). Dans ce processus d'analyse, l'étalonnage en rendement de détection de la chaîne est une étape essentielle. L'atténuation des photons dans l'échantillon est un des facteurs prépondérants dans l'analyse quantitative des échantillons volumineux.

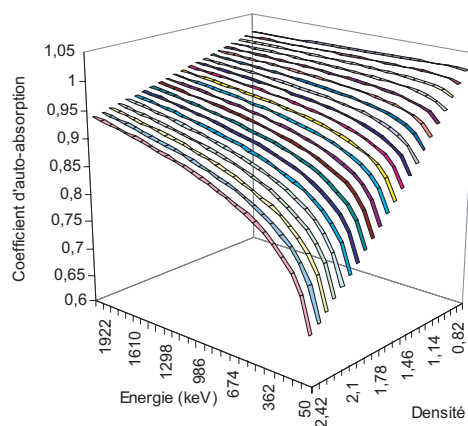


Figure 3 – Coefficients d'auto-absorption en fonction de l'énergie γ et de la densité de l'échantillon.
Self-absorption coefficient according to γ energy and sample density.

Des études expérimentales et des simulations Monte-Carlo (MCNP) ont été réalisées au laboratoire (*cf.* Fig. 3) afin de déterminer la fonction de réponse des chaînes de spectrométrie γ et l'évaluation du facteur d'auto-absorption dans les échantillons volumineux, pour différentes géométries (Nachab *et al.*, 2004a). Le protocole expérimental de mesure du coefficient d'auto-absorption consiste à dissoudre des quantités connues d'émetteurs γ (^{152}Eu et ^{137}Cs) dans des solutions d'acides (sulfurique et nitrique) et d'alcool afin d'obtenir des densités variables dans la gamme 0,8 à 3. Les fonctions de réponse en énergie et en efficacité des détecteurs Ge(HP) ont été déterminées à l'aide d'un standard multi-gamma utilisé dans les mêmes conditions que les échantillons étudiés. À titre d'exemple, cette étude a permis de compléter les analyses quantitatives par spectrométrie gamma des échantillons de phosphates sédimentaires et de leurs déchets pour le dosage de l'uranium. Le laboratoire a également fait l'acquisition d'un nouveau système de spectrométrie α intégrant six chambres indépendantes PIPS, destiné à l'analyse en routine d'éléments radioactifs à l'état de traces.

Les méthodes d'analyse basées sur l'utilisation de la technique de spectrométrie de masse trouvent actuellement plusieurs applications dans des secteurs très variés : biologie, chimie, géosciences, industrie des semi-conducteurs, etc. L'introduction de cette technique dans le domaine de la métrologie nucléaire s'est avérée avantageuse pour les analyses de traces de radionucléides à vie longue dans l'environnement. Le caractère multi-élémentaire de cette technique et la grande dynamique de concentration accessible, jusqu'à 10^{-15} g/g en font un outil attractif

pour les métrologistes. Dans ce contexte, le laboratoire s'est équipé d'un spectromètre de masse quadripolaire à source plasma ou « ICP-MS » (Inductively Coupled Plasma-Mass Spectrometer).

Un programme de recherche visant le développement des méthodes analytiques de séparation pour le dosage des éléments de faible radioactivité dans l'environnement est en cours de réalisation en étroite collaboration avec l'équipe de Chimie Nucléaire de l'IPHC (Galindo *et al.*, 2007). Son principal objectif est la mise au point de techniques de dosage des actinides et des produits de fission de faible activité, reposant notamment sur des mesures par scintillation liquide, par spectrométries α et γ et par spectrométrie de masse couplée à un chromatographe ionique.

Pour valider ses compétences dans ce domaine, le laboratoire participe fréquemment aux campagnes de mesures d'intercomparaison organisées par l'AIEA et l'IRSN pour le dosage à l'état de traces des radionucléides dans l'environnement et pour la dosimétrie.

Le strontium ^{90}Sr est un radioisotope émetteur bêta d'origine artificielle (produit de fission de l'uranium). Sa présence dans l'environnement est principalement due aux essais nucléaires atmosphériques et aux accidents nucléaires tels que Tchernobyl. La contamination humaine se fait essentiellement par ingestion de lait de mammifères contaminés. Son comportement dans le corps est semblable à celui du calcium dont les propriétés chimiques sont proches. Il se concentre en majeure partie dans les os et constitue donc un risque sanitaire non négligeable. De nombreux travaux ont montré que la scintillation liquide est un outil analytique particulièrement adapté à la détermination du ^{90}Sr . Une première approche consiste à mesurer l'échantillon directement après calcination et dissolution par scintillation liquide. Une déconvolution des spectres a permis de séparer les différentes contributions des autres émetteurs β interférents (^{137}Cs et ^{40}K). Une seconde méthode, récemment mise en place et testée au laboratoire, consiste à isoler le strontium par traitements chimiques (coprécipitation en milieu phosphate, extraction sur résine Sr-Spec) avant la mesure. Ces deux méthodes, testées sur des échantillons de référence, ont été comparées en termes de rapidité d'exécution, de coût et de limite de détection. Les deux méthodes conduisent aux mêmes seuils de détection ($30 \pm 3 \text{ Bq.kg}^{-1}$).

4.3. R&D dosimétrie : détecteurs photostimulables et capteurs CMOS

La mise en œuvre de nouveaux textes réglementaires relatifs à la protection des travailleurs contre les rayonnements ionisants nécessite des appareillages spécifiques de dosimétrie externe de plus en plus performants. Les dosimètres en

usage actuellement se répartissent en deux grandes catégories : ceux qui produisent une mesure de dose intégrée (émulsions photographiques, détecteurs solides de traces nucléaires, détecteurs thermoluminescents, ...) et ceux à mesure impulsométrique (chambres à ionisation, diodes silicium, ...).

Les détecteurs photostimulables (films RadioLuminescents à Mémoire) sont actuellement utilisés avec succès dans la radiographie 2D en contrôle industriel, l'imagerie médicale et en autoradiographie. Leur introduction dans le domaine de la dosimétrie passive représente une alternative intéressante aux détecteurs usuels (film effaçable par simple exposition à un flux lumineux, exploitation aisée sans traitement chimique).

Du point de vue du principe physique, lorsqu'un film photostimulable est exposé aux rayonnements ionisants, il retient l'énergie absorbée pour former une image latente, au lieu de la libérer immédiatement comme les écrans renforçateurs classiques. L'énergie emmagasinée peut ensuite être libérée en différé sous l'effet d'une stimulation optique sélective. Cette stimulation provoque une luminescence proportionnelle à la dose reçue et à la longueur d'onde d'excitation du laser. Le signal correspondant à l'énergie libérée est recueilli par une chaîne d'amplification optique. Une première application de cette technologie a été initiée dans un contrat avec le CEA/DAM pour la mise au point et la caractérisation d'un système à base de films BaFBr:Eu²⁺. Ce contrat s'est inscrit dans le cadre d'un projet de simulation autour du générateur AIRIX, visant les mesures avec précision de l'atténuation d'objet aux rayons X de haute énergie (Boukhaïr *et al.*, 2001). Dans la continuité, des mesures expérimentales de la fonction de réponse, en dose et en énergie, des neutrons et des rayonnements γ , ont été réalisées et complétées par des calculs de modélisation Monte-Carlo afin de caractériser un nouveau dosimètre basé sur ces détecteurs. Il ressort de cette étude que ce système peut être adapté à la dosimétrie passive des faibles et des fortes doses. Les résultats montrent un seuil de détection en équivalent de dose de 23 μ Sv pour les neutrons rapides et de 1,5 μ Gy pour les rayonnements γ d'énergie 1,2 MeV. Destinés à la dosimétrie passive personnelle, les dosimètres mis au point ont été irradiés en conditions réelles d'utilisation, sous faisceaux de neutrons rapides et thermiques, à différents angles sur un fantôme selon les normes ISO. Ces études ont également montré la possibilité d'utiliser pour la première fois ces films pour d'autres applications en dosimétrie, notamment pour la détection du signal radon dans l'environnement. Malgré leurs avantages (réutilisation, rapidité de lecture, numérisation de l'image, remise à zéro, absence de traitement chimique) par rapport aux détecteurs solides de traces nucléaires, les photostimulables présentent un inconvénient lié au fading. Nous avons élaboré une procédure (Mouhssine *et al.*, 2005) pour la correction de ce fading pendant et après irradiation (Fig. 4). Les fonctions de réponse expérimentales ont été comparées à celles obtenues par des DSTN de type PN3 et

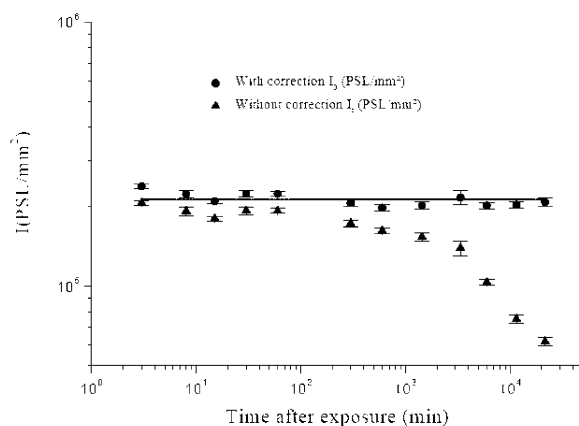


Figure 4 – Réponse du dosimètre photostimulable BaFBr:Eu²⁺ avec et sans correction de fading.
BaFBr:Eu²⁺ imaging plate dosimeter response without and with fading correction.

par des TLD dans le cadre d'une collaboration avec le Laboratoire de Physique des Radiations de l'université autonome de Barcelone (Belafrites *et al.*, 2004).

Dans le domaine de la R&D en dosimétrie électronique, le laboratoire développe un nouveau système de dosimétrie électronique basé sur l'utilisation de capteurs à pixels actifs. Ce projet consiste à concevoir des capteurs CMOS pour la détection des neutrons et des particules alpha, pour en faire des dosimètres portatifs, notamment pour les mesures en continu de l'activité volumique du radon dans l'environnement atmosphérique. Des capteurs CMOS ont déjà été soumis à des tests de détection de particules α du radon et descendants (Nachab *et al.*, 2004b ; Nourreddine *et al.*, 2005 ; Husson *et al.*, 2006) à l'aide d'une chaîne d'acquisition conçue pour cette application. Un nouveau dispositif pour la dosimétrie neutron multiplage est en cours de réalisation. La problématique de la dosimétrie des neutrons est en pleine évolution, sous la pression de nouvelles normes européennes et dans le contexte très sensible des programmes de démantèlement massifs dans l'industrie du nucléaire civil. Pour cette problématique, des tests préliminaires complétés par des simulations Monte-Carlo (GEANT4 et MCNPX) sont en cours de réalisation pour l'étude de la fonction de réponse et de l'efficacité de détection neutron (Trocmé *et al.*, 2007). Nous projetons d'étudier la sensibilité du système à deux gammes d'énergie, les neutrons rapides pouvant être convertis en protons *via* un convertisseur hydrogéné, les neutrons thermiques convertis en particules alpha. Des programmes d'acquisition et d'analyse des données sont déjà opérationnels. Une série de tests

est envisagée auprès de différentes installations locales : en source à l'IPHC et à l'accélérateur 4 MV de l'InESS, ainsi qu'auprès d'autres installations : l'accélérateur AMANDE de l'Institut de radioprotection et de sûreté nucléaire à Cadarache, le générateur de neutrons monocinétiques du Physikalisch Technische Bundesanstalt (PTB) en Allemagne et le cyclotron de l'université catholique de Louvain en Belgique.

RÉFÉRENCES

- Belafrites A., Nourreddine A., Mouhssine D., Nachab A., Pape A., Boucenna A., Fernández F. (2004) Comparison of imaging plates with track detectors for fast neutron dosimetry, *Radiat. Prot. Dosim.* **110**, 333-336.
- Boukhair A., Haessler A., Adloff J.C., Nourreddine A. (2000) New code for digital imaging system for track measurements, *Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. B* **160**, 550-555.
- Boukhair A., Heilmann C., Nourreddine A., Pape A., Portal G. (2001) Fast neutron and γ -ray dosimetry with imaging plates, *Rad. Meas.* **34**, 513-516.
- Debeauvais M., Ralarosy J., Tripier J., Jokic S. (1983) Study of U + U, Pb and Au at 16,7 MeV/u. In: *12th Int. Conf on SSNTD, 4-10 Septembre, Acapulco Mexico*.
- Galindo C., Mougin L., Nourreddine A. (2006) An improved radiochemical separation of uranium and thorium in environmental samples involving peroxide fusion, *Appl. Rad. Isotopes* **65**, 9-16.
- Heilmann C., Burger T., Oberlé L., Oappel R., Portal G., Baican., Schopper E., Reitz G. (1995) Dosimétrie spatiale par détecteur à émulsion nucléaire, *Rapport d'activité Centre de Recherches Nucléaires*, 251.
- Husson D., Bozier A., Higuieret S., Lé T.D., Nourreddine A. (2006) AlphaRad, a new integrated CMOS System-on-Chip for high efficiency alpha particles counting, *Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. A* **569**, 845.
- Mouhssine D., Nourreddine A., Nachab A., Pape A., Fernandez F. (2005) A new environmental dosimeter with imaging plates for fast neutron monitoring, *Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. B* **227**, 609-619.
- Nachab A., Nourreddine A., Benjelloun M., Kihel S., Oster D., Pape A. (2004a) Uranium analysis of sediments by γ -ray spectrometry with corrections for self-absorption, *Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. B* **215**, 228-234.
- Nachab A., Husson D., Nourreddine A., Higuieret S. (2004b) First measurement of ^{222}Rn activity with a CMOS Active Pixel Sensor, *Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. B* **225**, 418-422.
- Nourreddine A., Azkour K., Benjelloun M., Boukheir A., Fahad M., Pape A. (1999) Monte-Carlo detection probabilities for SSNTD : Application to uranium and thorium analysis in Moroccan phosphate, *J. Environm. Radioact.* **42**, 101-107.
- Nourreddine A., Nachab A., Husson D., Higuieret S. (2005) MCNPX simulation for α -particle detection by CMOS active pixel sensor, *Rad. Meas.* **40**, 275-278.
- Pape A., Adloff J.C., Barillon R., Haessler A., Hoernel A., Nourreddine A., Oster D., Weidmann D. (1998) Quantitative α -particle detection in a homogeneous medium with LR115, *Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. B* **143**, 557-560.
- Pfohl P., Brucker H., François H. (1984) Radiobiological Advanced Biostack Experiment, *Sciences* **225**, 13.
- Tripier J. (1999) Applications des techniques de thermoluminescence à l'archéologie, *Rencontre Franco-Marocaine, 19-13 mars El Jadida (Maroc)*.
- Trocme M., Higuieret S., Husson D., Nourreddine A., Lé T.D. (2007) Development of a new electronic personal neutron dosimeter using a CMOS active pixel sensor, *Radiat. Prot. Dosim.*, doi: 10.1093/rpd/ncm108.