

CEA-R 3098

TROUBLÉ (Michel).-

Etude d'une méthode de détection du plutonium par spectrographie X. Application à la mesure des contaminations sur l'homme.-

Saclay (Essonne), Centre d'études nucléaires, Service de documentation du Commissariat à l'énergie atomique, 1967.- 27 cm, 58 p., fig., tabl.

(Thèse. Doct.-ing. Paris. 1963.)

CEA-R 3098 - TROUBLÉ Michel

Etude d'une méthode de détection du plutonium par spectrographie X. Application à la mesure des contaminations sur l'homme.

Sommaire

Le plutonium est un élément chimique qui se trouve dans la nature à l'état de traces. Il est produit artificiellement dans les réacteurs nucléaires. Sa détection est essentielle pour la surveillance de l'environnement et de la santé humaine. Cette étude propose une méthode de détection basée sur la spectrographie X. Elle est appliquée à la mesure des contaminations sur l'homme.

Les résultats obtenus sont présentés dans les chapitres suivants.

Annexe

**ETUDE D'UNE METHODE DE DETECTION DU  
PLUTONIUM PAR SPECTOGRAPHIE X  
APPLICATION A LA MESURE DES  
CONTAMINATIONS SUR L'HOMME**

par

**Michel TROUBLÉ**

**Rapport CEA - R 3098**

**1967**

Eq

**CENTRE D'ÉTUDES  
NUCLÉAIRES DE SACLAY**

# THÈSES

PRÉSENTÉES

## A LA FACULTÉ DES SCIENCES DE L'UNIVERSITÉ DE PARIS

POUR OBTENIR

LE TITRE DE DOCTEUR - INGÉNIEUR

PAR

**Michel TROUBLÉ**

---

PREMIÈRE THÈSE

Etude d'une méthode de détection du plutonium par spectrographie X  
Application à la mesure des contaminations sur l'homme

DEUXIÈME THÈSE

Propositions données par la Faculté

Soutenues le 6 février 1963 devant la Commission d'Examen

M. TEILLAC	Président
MM. BOUSSIÈRES LABEYRIE BLANC	} Examinateur

*Les rapports du COMMISSARIAT A L'ENERGIE ATOMIQUE sont, à partir du n° 2200 en vente à la Documentation Française, Secrétariat Général du Gouvernement, Direction de la Documentation, 31, quai Voltaire, PARIS VII<sup>e</sup>.*

*The C.E.A. reports starting with n° 2200 are available at the Documentation Française, Secrétariat Général du Gouvernement, Direction de la Documentation, 31, quai Voltaire, PARIS VII<sup>e</sup>.*

*A Monsieur l'Inspecteur Général Albert OBRÉ  
en témoignage de ma reconnaissance.*

Je prie M. le professeur Teillac qui a bien voulu patronner mon travail, de recevoir l'expression de ma respectueuse gratitude.

Que M. Maurice Surdin trouve ici l'expression de ma reconnaissance pour l'intérêt qu'il a toujours témoigné pour ces recherches.

Ce m'est un devoir agréable de remercier M. Jacques Labeyrie et M. André Blanc, chefs de Service et de Section au Centre d'Etudes Nucléaires de Saclay, qui m'ont permis grâce à leurs conseils éclairés, de réaliser ce travail.

J'exprime particulièrement ma reconnaissance à M. Alain Lansart qui a suivi de très près l'évolution de mon travail.

Je remercie également Mme Alibert, M. Jacques Lafuma et M. Pierre Martinelli grâce au concours desquels certaines des mesures ont pu être effectuées.

Que MM. B. Jouve, J. Leloup et B. Mougin trouvent ici l'expression de ma reconnaissance pour l'aide qu'ils m'ont prodiguée pour la construction, la mise au point et l'étalonnage des dispositifs réalisés.

## TABLE DES MATIERES

	Pages
INTRODUCTION .. .. .	9
<b>CHAPITRE I</b>	
RADIOTOXICOLOGIE DU $^{239}_{94}\text{Pu}$ , DETECTION PAR SON RAYONNEMENT $\alpha$ .. .. .	11
1 - Radiotoxicologie .. .. .	11
1.1 - Dépôt externe .. .. .	11
1.2 - Dépôt interne .. .. .	11
2 - Détection du $^{239}_{94}\text{Pu}$ par son rayonnement $\alpha$ .. .. .	11
2.1 - Appareil de détection .. .. .	11
2.2 - Rendement du comptage $\alpha$ , source épaisse .. .. .	12
2.3 - Aperçus sur les méthodes indirectes : concentration du Pu présent dans les urines et fèces .. .. .	14
<b>CHAPITRE II</b>	
SPECTRE D'EMISSION X DU $^{239}_{94}\text{Pu}$ .. .. .	15
2.1 - Généralités .. .. .	15
2.2 - Calcul de l'équivalence poids de Pu — intensité du rayonnement .. .. .	16
2.3 - Spectre d'émission X .. .. .	16
2.3.1 - Détecteur utilisé .. .. .	16
2.3.2 - Préamplificateur - Amplificateur .. .. .	18
2.3.3 - Analyseur d'impulsions .. .. .	18
2.3.4 - Spectre d'émission X .. .. .	20
<b>CHAPITRE III</b>	
UTILISATION D'UN CRISTAL SCINTILLATEUR MINCE A LA DETECTION DU RAYONNEMENT X MOU DU Pu.. .. .	27
3.1 - Généralités sur les cristaux scintillateurs .. .. .	28
3.2 - Appareillage associé au cristal scintillateur .. .. .	29
3.2.1 - Photomultiplicateur .. .. .	29
3.2.2 - Préamplificateur .. .. .	30
3.2.3 - Amplificateur .. .. .	33

3.3 - Choix du cristal scintillateur .. .. .	34
3.3.1 - CaI(Tl) .. .. .	34
3.3.2 - CaI (fusion - dissolution) .. .. .	36
3.3.3 - NaI(Tl) .. .. .	38
3.3.4 - NaI .. .. .	41
3.3.5 - Conclusion .. .. .	41
3.4 - Etude d'un détecteur utilisant un cristal mince de NaI(Tl) .. .. .	41
3.4.1 - Pouvoir résolvant. Rendement de scintillation .. .. .	42
3.4.2 - Détermination du rapport $\frac{N_1 \text{ (photons X)}}{N_2 \text{ (}\alpha\text{)}}$ .. .. .	43
3.4.3 - Influence de l'épaisseur du cristal sur la sensibilité utilisable .. .. .	46
3.4.4 - Influence du blindage .. .. .	48
3.4.5 - Réduction du bruit de fond propre au photomultiplicateur .. .. .	48

#### CHAPITRE IV

APPLICATIONS .. .. .	51
4.1 - Mesures sur 20 $\overline{\text{cm}}^3$ de sang .. .. .	51
4.2 - Mesures faites sur des rats contaminés. .. .. .	54
4.3 - Détection du Pu en présence de produits de fission .. .. .	55
CONCLUSION .. .. .	55

#### INTRODUCTION

On connaît une quinzaine d'isotopes du plutonium. L'un d'eux, le plutonium 239 est devenu un produit industriel. Actuellement, le  $^{239}_{94}\text{Pu}$  est essentiellement formé dans les réacteurs nucléaires par la décroissance  $\beta$  du  $^{239}_{93}\text{Np}$ , lui-même provenant de  $^{239}_{92}\text{U}$  par une réaction analogue.  $^{239}_{92}\text{U}$  est formé lorsque  $^{238}_{92}\text{U}$  absorbe un neutron.

Dans les réacteurs actuels pour une fission d'un atome d'uranium 235, environ 1 atome de  $^{239}_{94}\text{Pu}$  est formé. De petites quantités de  $^{240}_{94}\text{Pu}$ , se forment également et l'accompagnent.

La période de  $^{239}_{94}\text{Pu}$  est 24 300 ans environ, celle de  $^{240}_{94}\text{Pu}$  est 6 580 ans. Ils sont l'un et l'autre émetteurs de rayons  $\alpha$  et de rayons X.

On limite les quantités de plutonium 240 accompagnant le plutonium 239 à des valeurs très faibles (de l'ordre de 1 pour cent) car il absorbe les neutrons sans donner lieu à des fissions en proportion importante. Dans ce qui suit nous ne nous occuperons donc que du plutonium 239, de nombreux ouvriers étant employés dans l'industrie d'extraction du plutonium et dans la métallurgie de cet élément.

Les médecins chargés de veiller à la santé des travailleurs des centres atomiques et en particulier des centres de production du plutonium attachent une particulière importance à sa détection. Celle-ci peut être faite en des circonstances diverses : blessures, inhalation de poussières, le plutonium pouvant diffuser rapidement ou non dans le sang. Aussi, à côté des méthodes déjà utilisées en France, de détection  $\alpha$  sur les urines et les fèces, y avait-il intérêt à faire le point des différentes méthodes utilisées de par le monde [1] et à essayer de pousser au maximum les performances d'un appareil nouveau pour la détection immédiate en cas d'accident, cet appareil devant nécessiter le minimum de préparation.

$^{239}_{94}\text{Pu}$  ainsi que des mesures classiques faisant intervalles nous avons donné un aperçu de la radiotoxicologie du plutonium. Dans la première partie de cette étude, nous nous occupons du rayonnement  $\alpha$  du plutonium pour la détection d'une contamination.

Dans la deuxième partie, nous décrivons les mesures faites avec un compteur proportionnel. Cet appareil n'a pas été retenu comme solution définitive en raison de son mouvement propre élevé, mais il nous a permis de contrôler le spectre d'émission de nos sources, de mieux expliquer les résultats obtenus avec un cristal scintillateur mince et surtout d'en définir les caractéristiques les plus souhaitables. Les raies spectrales trouvées sont en accord avec celles indiquées par d'Harvey, Israel [24].

Ceci nous amène à la troisième partie dans laquelle nous avons étudié systématiquement tous les paramètres susceptibles de rendre la détection aussi sensible que possible ; dans ce but, nous avons tout d'abord examiné l'appareillage associé au cristal scintillateur en vue de réduire au maximum le mouvement propre, nous poursuivons par une étude du rendement optimum de scintillation : nous examinons les différentes sortes de cristaux utilisables, l'influence du polissage et de l'épaisseur du cristal, le mode de fabrication qui nous amène à faire croître un monocristal dans une solution saline de CaI. Nous nous sommes attachés plus spécialement à l'étude d'un cristal mince de NaI (Tl) comme étant le matériau donnant le plus facilement des résultats reproductibles et permettant le plus commodément son utilisation à des fins pratiques.

En expérimentant sur des rats contaminés (paragraphe 4.2) nous avons montré qu'on pouvait détecter en toute sûreté une activité de  $9.10^{-5}$   $\mu\text{C}$  de  $^{239}_{94}\text{Pu}$  sous 2 mm de peau, ce qui représente 2 pour mille de la dose permise pour tout le corps (cette dose maximale est de 0,04  $\mu\text{C}$  de  $^{239}_{94}\text{Pu}$  pour un poids moyen de 70 kg); nous avons pu mettre au point un détecteur ayant une sensibilité utilisable environ 10 fois plus élevée que pour les appareils déjà existants, le mouvement propre étant 100 fois plus petit.

Dans la quatrième et dernière partie, nous avons expérimenté sur des rats contaminés, nous permettant ainsi de faire apparaître l'intérêt de cette détection par rayonnement X dans le cas de blessures profondes.

## CHAPITRE I

### RADIOTOXICOLOGIE DU $^{239}_{94}\text{Pu}$ DETECTION PAR SON RAYONNEMENT $\alpha$

#### 1 - RADIOTOXICOLOGIE.

Le plutonium est très voisin chimiquement de l'uranium; la toxicité de ce dernier corps impose un maximum de 40 mg au niveau des reins [2].

L'activité du plutonium étant à masse égale environ  $2.10^5$  fois plus forte que celle de l'uranium, seule la radiotoxicité du plutonium sera envisagée.

Ainsi qu'il est indiqué sur la figure 7 bis le  $^{239}_{94}\text{Pu}$  décroît par émission de particules  $\alpha$  dont l'énergie maximale est 5,15 MeV; cette émission est accompagnée d'un rayonnement X de faible intensité dans la bande d'énergie de 10 à 60 keV.

##### 1.1 - Dépôt externe.

Pour une contamination extérieure peu importante, le danger n'est pas très grand car l'irradiation est superficielle les  $\alpha$  émis ayant un parcours très faible dans les tissus (environ 50  $\mu$ ); cependant, si du plutonium s'est trouvé introduit dans une coupure, il peut y rester très longtemps et pour moins de 1  $\gamma$  de  $^{239}_{94}\text{Pu}$  (0,064  $\mu\text{C}$ ). Il peut y avoir formation d'une tumeur fibreuse.

##### 1.2 - Dépôt interne.

L'inhalation est de loin la forme la plus dangereuse pour l'absorption, en effet, le plutonium passe alors très rapidement dans le sang, puis dans le squelette; la période biologique est de 200 ans.

En 1955 « la Commission internationale de protection contre les radiations » (journal de radiologie et d'électrologie, octobre 1955, 36, n° 10 bis) a établi que la dose maximum admissible fixée définitivement dans l'organisme (en particulier dans le squelette) devait rester largement inférieure à 0,04  $\mu\text{C}$  pour un homme de 70 kg (0,04  $\mu\text{C}$  de  $^{239}_{94}\text{Pu}$  sont équivalents à 0,1  $\mu\text{C}$  de  $^{226}_{88}\text{Ra}$ ).

#### 2 - DETECTION DU $^{239}_{94}\text{Pu}$ PAR SON RAYONNEMENT $\alpha$ .

##### 2.1 - Appareil de détection.

On utilise un scintillateur au sulfure de zinc activé à l'argent (0,01 pour cent); pour une particule incidente perdant en moyenne de 30 à 50 eV, il y a émission d'un photon de la bande  $4100 \pm 400 \text{ \AA}$ .

Caractéristiques du scintillateur  $\alpha$  :

- S.A.M. 125 (Radiotechnique) -  $\varnothing$  125 mm :

- épaisseur du support : 3 mm.

Le scintillateur est une fine couche polycristalline recouverte par une métallisation (aluminium  $0,3 \text{ mg/cm}^2$ ).

On associe à ce scintillateur un tube photomultiplicateur Dario 54 AVP dont la photocathode a un diamètre de 111 mm.

2.2 - Rendement du comptage  $\alpha$  pour une source dite « épaisse ».

Soit une surface de  $1 \text{ cm}^2$  de la source émettant  $n_{(\alpha)}/\text{cm}^2/\text{s}$ .  $\Omega$  est l'angle solide correspondant à l'angle  $\theta$  (voir figure 1).

Dans  $\Omega$  on a  $dN = ndx \cdot \frac{\Omega}{4\pi}$  particules avec  $\Omega = 2\pi(1 - \cos\theta)$

posons  $OA = b$  d'où :  $\cos\theta = \frac{x+a}{b}$

soit « r » le parcours maximum d'un  $\alpha$  dans l'air

Equivalent dans l'air du parcours « b » :  $r = \frac{\mu x}{\cos\theta} + \frac{a}{\cos\theta}$

avec  $\mu = \frac{\text{parcours dans l'air}}{\text{parcours dans la source}} > 1$

d'où  $\cos\theta = \frac{1}{r}(\mu x + a)$  et  $N = \int_0^{r-a} \frac{n}{2} dz \left(1 - \frac{\mu x + a}{r}\right)$

(pour la limite supérieure de l'intégrale :  $\frac{r \cos\theta - a}{\mu} \approx \frac{r-a}{\mu}$ )

en définitive  $N = \frac{n r}{4 \mu} \left(1 - \frac{a}{r}\right)^2$

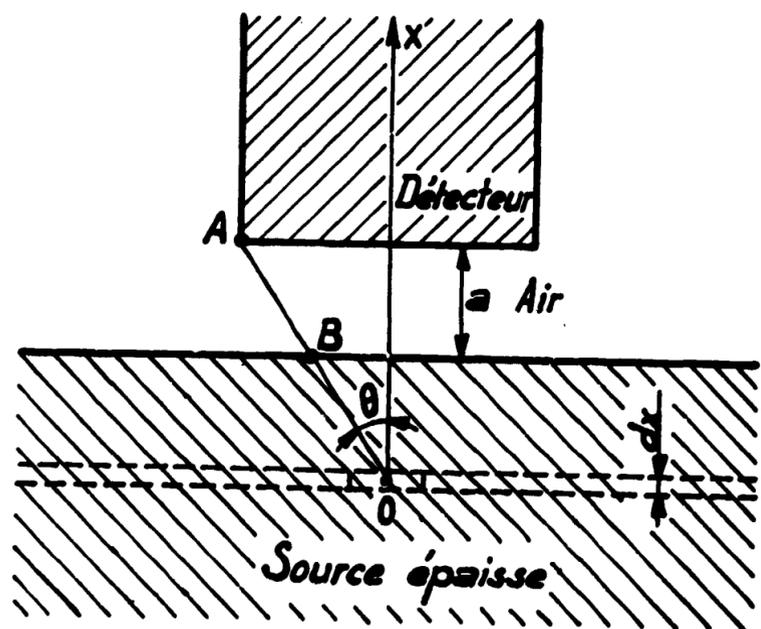


Figure 1

Au maximum de rendement  $a = 0$

soit  $N_{\max} = \frac{n r}{4 \mu}$  avec  $b = \frac{r}{\mu}$

Pour une source donnant  $n_{(\alpha)}/\text{cm}^2/\text{s}$ , on ne récupère donc seulement que  $\frac{n}{4} (\alpha'/\text{cm}^2/\text{s})$  d'où

$$\rho = \frac{1}{4}$$

Application :

La détection  $\alpha$  est courante dans les laboratoires de radiotoxicologie. La source est alors soit une surface métallique de l'ordre de  $1 \text{ cm}^2$ , soit un dépôt sur un verre de montre ; elle peut être considérée comme mince. Nous envisageons ici, en vue d'une comparaison ultérieure avec la détection X, d'indiquer les performances de la détection  $\alpha$  sur du sang frais hémolysé et citraté.

En cas d'accident plus ou moins grave où plusieurs personnes sont suspectées avoir inhalé le produit toxique, la manipulation sur le sang ne doit pas être délicate mais cependant il faut être sûr que l'activité est bien uniforme dans le résidu servant au comptage.

Il est admis que  $20 \text{ cm}^3$  de sang peuvent être prélevés sur une personne sans présenter le moindre risque.

Nous supposons donc par la suite que nous avons à notre disposition  $20 \text{ cm}^3$  de sang. Le parcours des particules  $\alpha$  dans le sang est environ de  $50 \mu$ , la surface émissive pourra être aussi grande qu'on le veut.

On utilise le scintillateur  $\alpha$  SAM 125 ( $\varnothing = 125 \text{ mm}$ ) associé au photomultiplicateur 54 AVP (Radiotechnique) ; avec cet appareillage, on peut escompter un mouvement propre de 8 coups pour 10 minutes en réglant convenablement le seuil du discriminateur.

Pour le  $^{239}\text{Pu}$  ( $\alpha$  de 5,15 MeV) le parcours moyen des  $\alpha$  dans l'air est de 3,7 cm ( $R = 0,318 E^{3/2}$ ) soit une épaisseur de  $4,8 \text{ mg/cm}^2$ .

Appliquons la formule de Bragg [3] :

$$\bar{R}_{\text{eau}} = \bar{R}_{\text{air}} \cdot \frac{\rho_{\text{air}}}{\rho_{\text{eau}}} \sqrt{\frac{A_{(\text{eau})}}{A_{(\text{air})}}}$$

avec  $A_{(\text{air})} = (0,8 \sqrt{14} + 0,2 \sqrt{16})^2 = 14,4$

et  $A_{(\text{eau})} = \left(\frac{2}{18} \sqrt{1} + \frac{16}{18} \sqrt{16}\right)^2 = 13,4$

d'où :  $R_{(\text{eau})} = 4,8 \cdot 10^{-3} \text{ cm} = 48 \mu$

Pour l'aluminium, on trouve :  $R_{(\text{alu})} = 3,7 \times \frac{0,0013}{2,7} \sqrt{\frac{27}{14,4}} = 23 \mu$

Supposons la source à 5 mm de la surface du scintillateur  $\alpha$ , la feuille d'aluminium qui le recouvre a une épaisseur de  $1,1 \mu$  ( $0,3 \text{ mg/cm}^2$ ), d'où le parcours utile des  $\alpha$  dans la source :

$$\frac{5 \cdot 10^{-3} \cdot 48}{3,7 \cdot 10^{-3}} \mu + \frac{1,1 \cdot 48}{23} \mu + e \mu = 48 \mu$$

d'où  $e = 48 - 8,8 = 39,2 \mu$

On ne pourra donc escompter que l'activité d'une fraction du volume de la source, soit un cylindre dont la base est le scintillateur et la hauteur « e » :

$$V = 3,92 \cdot 10^{-3} \times \pi \times \frac{12,5^2}{4} = 0,48 \text{ cm}^3$$

Soit  $N_b$  le nombre d'impulsions dues au mouvement propre et  $N_t$  le nombre d'impulsions pour le mouvement propre et la source ;  $t$  est le temps de mesure

$$N_s = N_t - N_b \text{ d'où } \sigma_{N_s} = \sqrt{N_t + N_b}$$

(ceci en supposant qu'on a une distribution normale symétrique).

Prenons pour nombre de coups minimum détectable  $N_s = 2,576 \sigma_{Na}$ , nous aurons ainsi une probabilité de 99 pour cent de compter ce nombre de coups.

$$\text{Soit : } N_t - N_b = 2,6 \sqrt{N_t + N_b}$$

Pour un temps de mesure de 30 minutes,  $N_b = 8.3 = 24$  coups

$$\text{d'où } N_t = 45 \text{ c et } N_s = 45 - 24 = 21 \text{ c}$$

$$\text{soit encore } n_s = \frac{21}{30 \times 60} \text{ c/s}$$

Compte tenu du rendement maximum en "couche épaisse" de la source et du volume V réellement utilisé :

$$n = \frac{21}{30 \times 60} \cdot 4 \cdot \frac{20}{0,48} = 1,95 \text{ c/s}$$

on en déduit l'intensité minimale que doit avoir une source ramenée à un volume de  $20 \text{ cm}^3$  pour que l'on puisse y détecter le plutonium 239 par son rayonnement  $\alpha$  :

$$I = \frac{1 \mu\text{C} \cdot 1,95}{3,7 \cdot 10^4} = 5,3 \cdot 10^{-5} \mu\text{C}$$

On pourra comparer les résultats de cette mesure avec ceux qui seront donnés plus loin lorsqu'on étudiera la détection de  $^{239}\text{Pu}$  par son rayonnement X.

En fait, il est sans signification de faire une mesure sur du sang frais surtout si on cherche à atteindre des taux de comptages faibles : le temps de comptage est beaucoup trop important devant le temps de sédimentation du sang et obtient alors très vite une nette séparation entre les globules rouges et le plasma.

Pour rendre homogène la solution sanguine, on pratique l'hémolyse, méthode qui consiste à faire éclater les globules rouges pour que l'hémoglobine se répande dans la solution ; pour cela, on ajoute au sang un égal volume d'eau distillée (la pression osmotique fait éclater les globules rouges), quelques cristaux de citrate de soude servent d'anticoagulant.

En définitive, cet apport obligatoire d'eau distillée ramène à  $11 \cdot 10^{-5} \mu\text{C}$  de  $^{239}\text{Pu}$  l'activité minimale détectable dans  $20 \text{ cm}^3$  de sang.

### 2.3 - Aperçus sur les méthodes indirectes : concentration du $^{239}\text{Pu}$ présent dans les urines et fécès.

#### 2.3.1 - Détermination du plutonium urinaire à l'aide de résines échangeuses d'ions [4].

Cette détermination est très difficile parce qu'il y a très peu de plutonium excrété journalièrement : soit  $6 \cdot 10^{-7} \mu\text{C}/\text{jour}$  pour la quantité maximum admissible dans l'organisme.

Utilisation des résines anioniques :

Le plutonium est concentré par coprécipitation en milieu alcalin sur des phosphates alcalino-terreux. Après destruction de la matière organique, le  $\text{Pu}^{4+}$  est complexé en milieu nitrique et fixé sur résine Dowex 1, 50-100 Mesh ; ensuite, on purifie par un double lavage nitrique puis chlorhydrique ; l'élution est effectuée par une solution réductrice de faible acidité, la solution obtenue est évaporée sur un verre de montre ; on mesure l'activité avec un scintillateur  $\alpha$ , le rendement global moyen atteint 88 pour cent.

Cette méthode est très longue car il faut réunir les urines de 24 heures ; la concentration demande plusieurs heures.

#### 2.3.2 - [5].

Méthode utilisant deux coprécipitations par le phosphate de bismuth et deux coprécipitations par le fluorure de lanthane suivies d'une extraction par le T.T.A. (thénoyltrifluoroacétone) et d'une électrolyse, le rendement moyen est de 77 pour cent ; détermination de l'activité par méthode autoradiographique.

#### 2.3.3 - Méthode d'analyse du $^{239}\text{Pu}$ présent dans les fécès.

On utilise la minéralisation des échantillons, puis l'action du T.T.A. ou du phosphate de bismuth [5].

## CHAPITRE II

### SPECTRE D'EMISSION X DU $^{239}\text{Pu}$

#### 2-1 - Généralités.

Le  $^{239}\text{Pu}$  décroît par émission  $\alpha$  de particules  $\alpha$  dont l'énergie est d'environ 5,15 MeV (5,147 MeV : 72,5 pour cent - 5,134 MeV : 16,8 pour cent - 5,096 MeV : 10,7 pour cent - 5,064 MeV : 0,04 pour cent).

Le rayonnement  $\alpha$  est accompagné en faible proportion de photons X dans la bande d'énergie de 10 à 22 keV ; on peut également citer des photons X et  $\gamma$  de 38 à 380 keV [6], mais ce rayonnement a une très faible intensité (environ 1/1 000 du nombre des photons X de la bande 10 à 22 keV).

Si nous faisons le rapport entre le nombre de photons X et le nombre de particules  $\alpha$  émis, on trouve environ 4 pour cent (pour la mesure, voir paragraphe 3.4.2).

La composition isotopique du plutonium dépend de la durée d'irradiation et suivant que ce corps est produit dans une pile marchant à haute ou basse puissance (voir figure 2). Le plutonium peut ainsi émettre des neutrons rapides d'une énergie voisine de 1 MeV par fission spontanée du  $^{240}\text{Pu}$ , mais la période en est très longue ( $1,2 \cdot 10^{11}$  ans) ce qui représente moins d'un neutron par seconde et par kg de  $^{240}\text{Pu}$ , et un rayonnement  $\gamma$  de 60 KeV dû à  $^{240}\text{Am}$  [2].

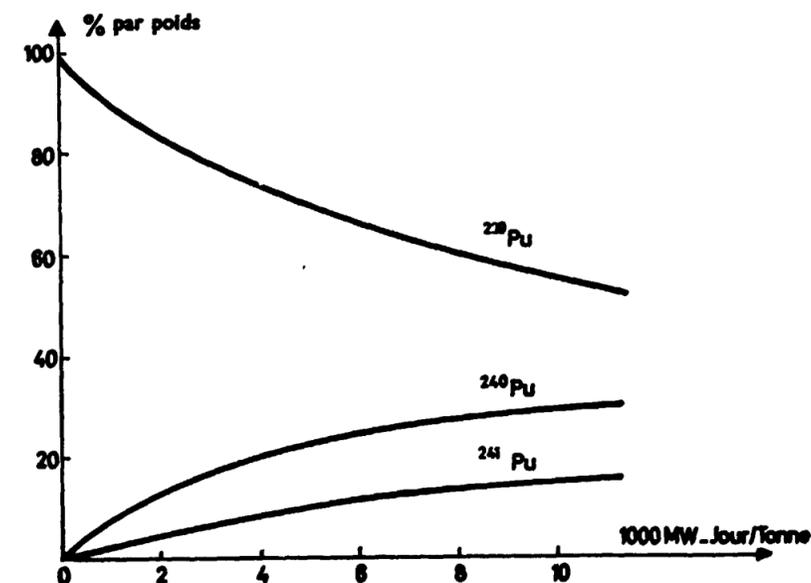


Figure 2

2.2 - Calcul de l'équivalence poids de  $^{239}\text{Pu}$  - intensité de rayonnement.

on a  $\lambda_1 N_1 = \lambda_2 N_2$  avec  $\lambda = \frac{0,693}{T}$

période du  $^{239}\text{Pu}$  :  $T_1 = 2,44 \cdot 10^4$  ans

période du  $^{226}\text{Ra}$  :  $T_2 = 1590$  ans

Faisons le calcul pour 1  $\gamma$  (1  $\mu\text{g}$  de  $^{239}\text{Pu}$ ):

$$\frac{0,693}{2,44 \cdot 10^4} \times \frac{1 \cdot 10^{-6} \cdot 6,02 \cdot 10^{23}}{239} = \frac{0,693}{1590} \times \frac{M_2 \times 6,02 \cdot 10^{23}}{226}$$

$$M_2 = \frac{10^{-6} \times 226 \times 1590}{239 \times 24400} = 0,0615 \cdot 10^{-6} \text{ g de } ^{226}\text{Ra}$$

soit  $I = 0,0615 \mu\text{Ci}$

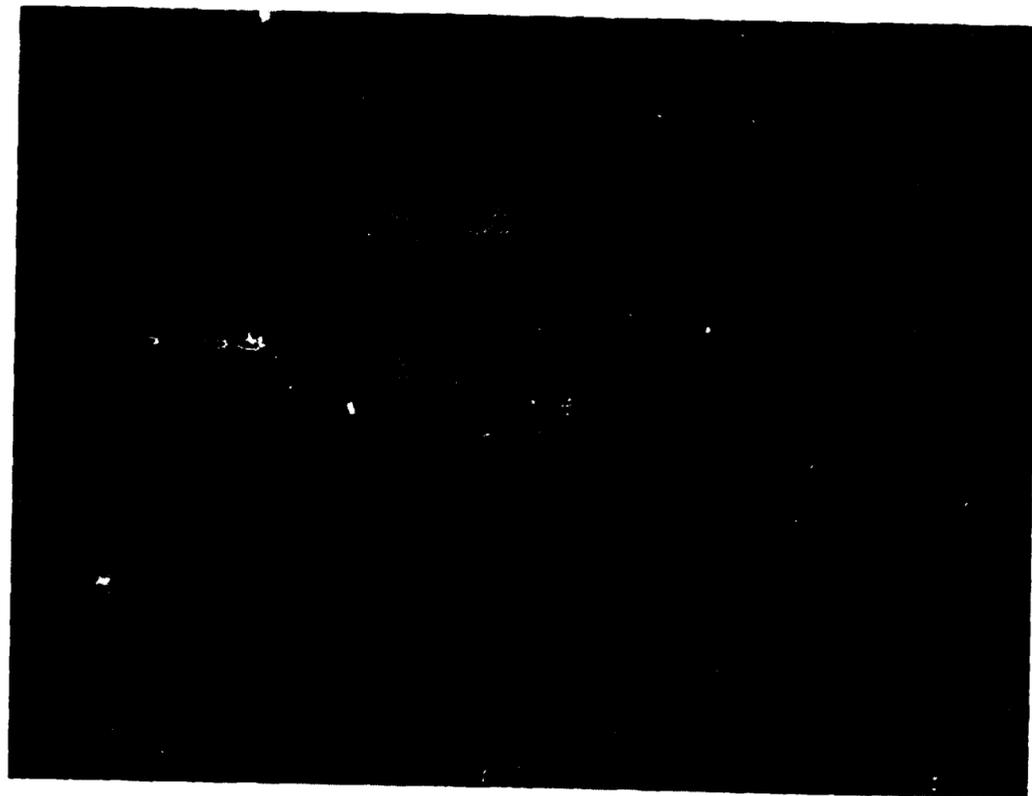
d'où : 1  $\mu\text{C}$  de  $^{239}\text{Pu} \approx 16 \gamma$

2.3 - Spectre d'émission X.

2.3.1 - Détecteur utilisé.

Nous avons étudié le spectre du rayonnement X du plutonium à l'aide d'un compteur proportionnel rempli avec un mélange argon-méthane (90 pour cent et 10 pour cent) sous une pression de 1800  $\text{g}/\text{cm}^2$ ; la fenêtre de ce compteur est constituée par un disque de béryllium de 1/10 mm d'épaisseur (cette forte épaisseur est rendue nécessaire par le fait que ce compteur doit travailler avec une pression de gaz pouvant atteindre 10  $\text{kg}/\text{cm}^2$ ).

La purification du mélange gazeux est obtenue en le faisant circuler, grâce à un thermosiphon, sur des copeaux de calcium portés à 300 °C; on contrôle la température à l'aide d'un thermocouple (le compteur a été fabriqué par la société S.A.I.P.).



COMPTEUR PROPORTIONNEL

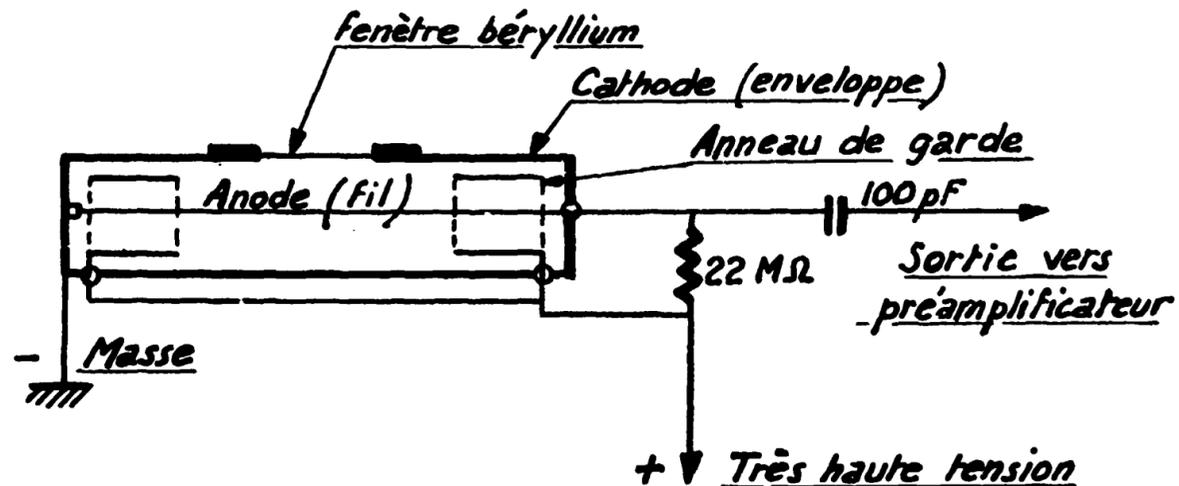


Figure 3

Principe de fonctionnement (voir fig. 3).

Des photons X traversant le compteur produisent une ionisation du gaz; le fil central ( $\varnothing = 0,05 \text{ mm}$ ) étant porté à un potentiel positif élevé, les électrons de l'ionisation initiale sont accélérés et produisent une ionisation secondaire par chocs.

L'ionisation supplémentaire n'a lieu que très près du fil central, là où le champ électrique est important, de sorte que le facteur de multiplication est constant et ne dépend pas de l'endroit où a été créé l'ion initial.

Le gain dû au gaz, ou facteur de multiplication, varie entre 10 et  $10^7$  suivant la tension appliquée et les dimensions géométriques du compteur; cependant, si le gain devient supérieur à 1000, la charge d'espace produite par les ions positifs peut provoquer une dispersion de l'amplitude des impulsions qui sortent du compteur et par là même, une perte de résolution.

Le compteur utilisé fonctionne en "régime proportionnel" pour une tension de l'ordre de 2000 V; comme une variation de 0,1 pour cent sur la tension appliquée conduit à une variation de 1,5 pour cent environ sur la hauteur de l'impulsion recueillie, cela nécessite une stabilisation de la source de tension à  $10^{-5}$  près, si l'on veut faire des mesures d'amplitude précises à 1 pour cent près.

Si nous examinons la courbe de la figure 4, nous voyons que la partie à très forte pente de l'impulsion dure environ 1  $\mu\text{s}$  et se termine aux environs de la moitié de l'amplitude totale, l'impulsion a une durée de plusieurs millisecondes [7].

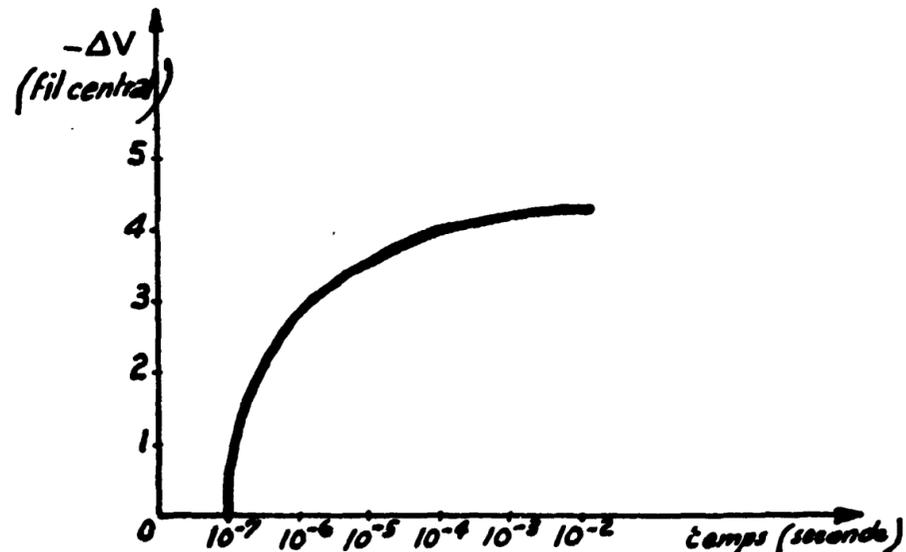


Figure 4

La partie à forte pente de l'impulsion correspond au déplacement des ions positifs dans la zone à champ intense.

Le calcul montre que l'amplitude correspondant à cette première partie de l'impulsion est proportionnelle à la quantité d'ions créés initialement ; en différenciant le signal de sortie grâce à une cellule résistance—capacité dont la constante de temps est de l'ordre de la microseconde, on obtient une impulsion dont l'amplitude est proportionnelle à l'énergie des photons X traversant le compteur.

2.3.2 - Préamplificateur - amplificateur.

Le signal qui sort du compteur a une très faible amplitude, de l'ordre du millivolt, il apparaît aux bornes d'une très forte impédance, aussi est-il nécessaire de mettre un préamplificateur le plus près possible de ce compteur proportionnel.

Le préamplificateur (voir fig. 5) a une bande passante très large (2 MHz), une contre-réaction très énergique le rend parfaitement linéaire ; la sortie se fait sous très faible impédance ( $Z_c = 150 \Omega$ ) ; le gain est égal à 20.

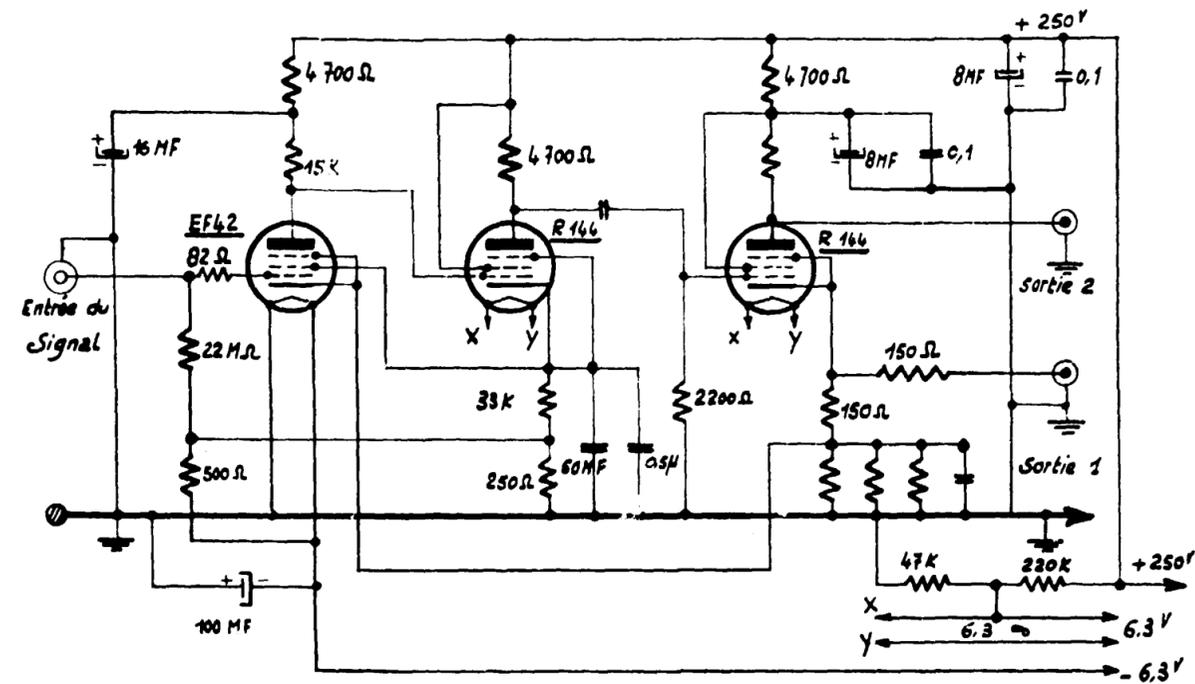
L'amplificateur (APT 2 - CEA) a un gain maximum de 6000 environ. Entre la sortie du préamplificateur et l'entrée de l'amplificateur on interpose une cellule intégratrice et une cellule différenciatrice.

La haute tension appliquée au compteur proportionnel est filtrée par une cellule passe-bas (0,1  $\mu F$  - 470 000  $\Omega$ ).

2.3.3 - Analyseur d'impulsions.

L'appareil utilisé est un sélecteur d'amplitude à 200 canaux (S.A.I. 32 - Intertechnique) [8]. Ci-dessous, quelques indications sur le principe de cet appareil :

Le but de ce sélecteur est d'enregistrer dans P canaux le nombre  $N_m$  d'impulsions électriques venant du compteur et dont l'amplitude est comprise entre 2 valeurs  $E_M$  et  $E_{M+e}$ , M pouvant prendre P valeurs de



PREAMPLIFICATEUR D'IMPULSIONS PA/I/130  
BANDE PASSANTE : 2 MC/S - Gain : 20

Figure 5



ENSEMBLE ANALYSEUR D'IMPULSIONS

0 à P-1 ; la largeur du canal ou de bande "e" est identique pour les P canaux ; les P canaux couvrent une plage d'analyse P sans discontinuité ni recouvrement.

Sélecteur : convertisseur analogique digital + machine à calculer simple + mémoire magnétique à ferrites.

Le convertisseur produit un nombre A d'impulsions périodiques proportionnelles à l'amplitude de l'impulsion incidente.

Le nombre A est transmis à une échelle décimale (échelle adresse) qui sélectionne dans la mémoire magnétique le canal convenable grâce à un trochotron ; l'information est emmagasinée dans la mémoire sous forme binaire, la capacité de chaque canal est  $2^{16} - 1 = 65\,535$  coups.

Une imprimante associée à une échelle décimale permet d'obtenir directement sur une bande de papier la représentation numérique discrète du spectre des impulsions incidentes ; un potentiomètre enregistreur donne directement le tracé analogique du spectre.

Principe de fonctionnement.

Le nombre A est un train d'impulsions de période 0,5  $\mu s$  fourni par le convertisseur ; on compare l'amplitude de l'impulsion venant du compteur à l'amplitude d'une dent de scie linéaire ; au début de cette dent de scie, un oscillateur à 2 Mc/s est mis en route et se trouve stoppé quand les deux tensions sont égales.

Un signal "début de stockage" qui a lieu juste après la fin du train d'impulsions permet d'emmagasiner les informations dans la mémoire magnétique.

Le nombre A est ensuite présenté à l'ensemble adresse-contrôle; l'échelle d'adresse constituée par deux trochotrons sert à compter A pour déterminer le canal convenable.

Le cycle de mémoire dure  $32 \mu s$  et puisque la génération du train A d'impulsions demande  $A \cdot 0,5 \mu s$ , le temps total d'analyse et de stockage sera :  $32 \mu s + A \cdot 0,5 \mu s$ .

**Caractéristiques :**

- temps mort :  $32 \mu s + 0,5 \mu s$  par canal ;
- taux maximum de comptage : 50 000 c/s ;
- linéarité meilleure que 0,5 pour cent ;
- largeur du canal :
  - 0,8 V/Canal : 80 V pour 100 C ou 160 V pour 200 C ;
  - 0,4 V/Canal : 40 V pour 100 C ou 80 V pour 200 C ;
  - 0,2 V/Canal : 20 V pour 100 C ou 40 V pour 200 C ;
  - 0,1 V/Canal : 10 V pour 100 C impossible.

Un oscillateur donnant 2 tensions G et 1/2 G permet de faire le tarage du convertisseur et surtout de bien faire partir la dent de scie par le canal zéro.

**2.3.4 - Spectre d'émission X du  $^{239}_{94}\text{Pu}$ .**

On utilise l'ensemble compteur proportionnel - sélecteur d'amplitude qui vient d'être décrit.

**Conditions de fonctionnement du compteur :**

- THT : 2 820 V ;
- I :  $3 \cdot 10^{-7}$  s (intégration) ;
- $C_x$  :  $10^{-6}$  s (différentiation).

**Étalonnage [9] :**

L'étalonnage du sélecteur d'amplitude a été effectué au moyen de diverses sources de rayons X, voir le tableau ci-dessous :

TABLEAU I

Source	Raie
Tritium sur titane	4,5 KeV
$^{55}_{26}\text{Fe}$	5,9 KeV
$^{65}_{30}\text{Zn}$	8,05 KeV
$^{75}_{34}\text{Se}$	10,54 KeV
$^{109}_{48}\text{Cd}$	22,16 KeV
$^{113}_{50}\text{Sn}$	24,1 KeV
$^{137}_{56}\text{Ba}$	32 KeV

Nous nous sommes également servi d'une source de 16,1 KeV obtenue en bombardant une cible de zirconium avec un faisceau très intense de  $\beta^-$  (20 à 30 mc. de  $^{90}_{38}\text{Sr} + ^{90}_{38}\text{Y}$ ).

Le montage employé est celui qui est utilisé dans l'étude des raies de fluorescence des métaux (voir fig. 6).

**Spectrogramme du rayonnement X de la source de plutonium (voir fig. 7).**

Durée de l'expérience : 15 mm.

L'étude du spectre est faite avec une source mince de  $^{239}_{94}\text{Pu}$  déposée par voie électrolytique sur un disque métallique (acier inoxydable).

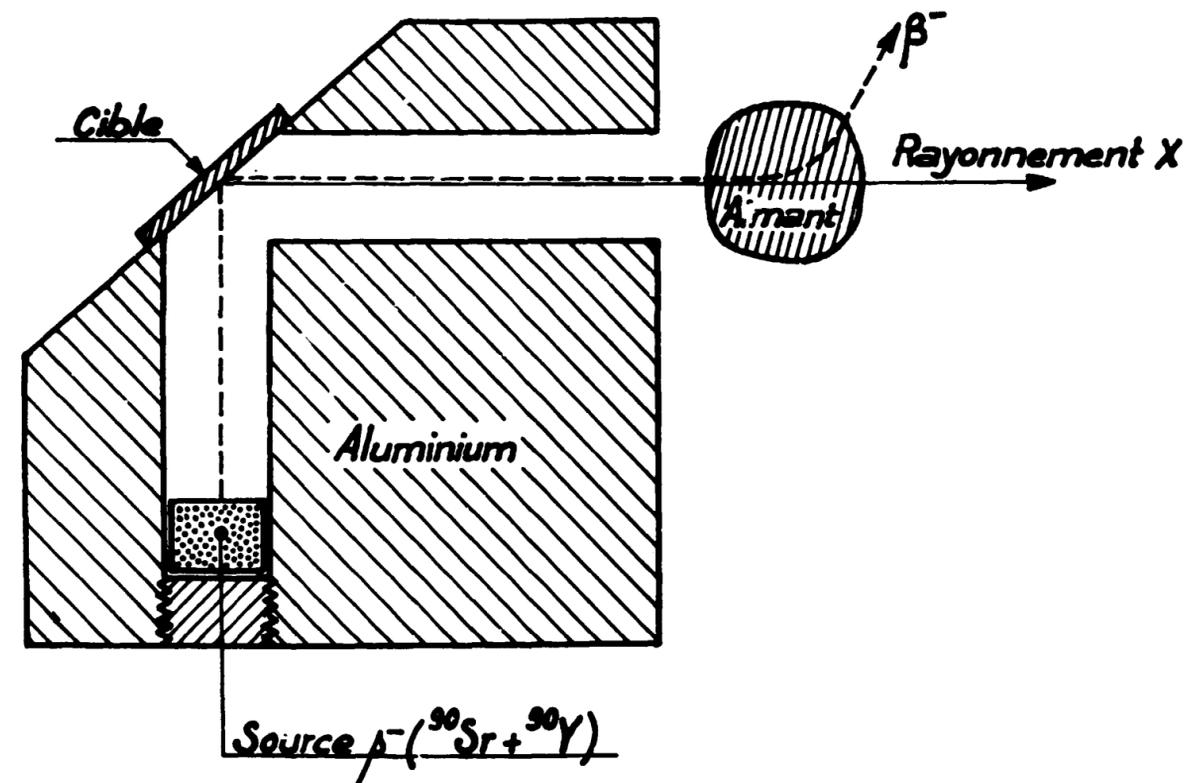


Figure 6

**Source :**

Activité : environ  $0,42 \mu C$  ( $6,8 \mu g$  de  $^{239}_{94}\text{Pu}$ ).

Analyse au spectrographe de masse :  $1,8\%$   $^{240}_{94}\text{Pu}$  ;  $5 \cdot 10^{-4}$   $^{241}_{94}\text{Pu}$ .

En examinant la courbe  $N = f(n^\circ \text{ canal})$  (intensité - énergie) et la courbe d'étalonnage  $E = f(n^\circ \text{ canal})$  on trouve 2 pics principaux, l'un à 17 KeV, l'autre à 13,6 KeV et d'amplitudes respectives 1 et 1,6.

Les 2 autres pics, l'un à 6,8 KeV, l'autre à 8,5 KeV, correspondent vraisemblablement au rayonnement X caractéristique du fer et du cuivre bombardé par les photons X du  $^{239}_{94}\text{Pu}$  ; le cuivre constituant la cathode interne du compteur et le fer, la couronne maintenant la fenêtre de béryllium, en effet :

[10]— moyenne des coefficients  $K_{\alpha_1}$   $K_{\alpha_2}$   $K_{\beta_1}$   $K_{\beta_2}$  pour  $^{63,6}_{29}\text{Cu}$  : 8,6 KeV ;

— moyenne des coefficients  $K_{\alpha_1}$   $K_{\alpha_2}$   $K_{\beta_1}$   $K_{\beta_2}$  pour  $^{56}_{26}\text{Fe}$  : 6,7 KeV.

En examinant de près la courbe de la figure 7 on trouve une anomalie autour du 46<sup>e</sup> canal. Partons de l'hypothèse d'une distribution normale symétrique pour la représentation de la raie de 17 KeV, soit :

$$Y = \frac{1}{\sigma \sqrt{2\pi}} e^{-\frac{(X-m)^2}{2\sigma^2}}$$

avec  $Y_m = \frac{1}{\sigma \sqrt{2\pi}}$

(déduit de la raie de 17 KeV :  $\sigma = 2$  canaux).

x - m	Y
$\sigma$	0,606 $Y_m$
1,177 $\sigma$	0,5 $Y_m$
1,5 $\sigma$	0,324 $Y_m$
2 $\sigma$	0,131 $Y_m$

TABLEAU II

Numéro du canal	Nombre de coups relevés	Nombre de coups calculés en supposant une distribution normale symétrique	Différence
42	1 431	1 431	0
43	893	700	193
44	523	280	243
45	372	80	292
46	362	20	342
47	325	—	325
48	257	—	257
49	201	—	201

Le mouvement propre du compteur étant en moyenne de 18 coups par canal dans la zone intéressant l'anomalie, la dernière colonne du tableau II met en évidence la présence d'un pic supplémentaire dont l'énergie est voisine de 20 KeV (20 KeV correspond au 46<sup>e</sup> canal).

En définitive, l'analyse du rayonnement X du  $^{239}\text{Pu}$  fait apparaître 3 pics principaux : 13,6 KeV - 17 KeV - 20 KeV.

**Résultats théoriques.**

Comparons les valeurs obtenues expérimentalement avec celles qu'on peut tirer des raies d'émission  $L_x$  critiques de  $^{235}\text{U}$  et  $^{239}\text{Pu}$ .

TABLEAU III [10]

	$L_{\gamma_1}$ (keV)	$L_{\beta_1}$ (keV)	$L_{\beta_2}$ (keV)	$L_{\alpha_1}$ (keV)	$L_{\alpha_2}$ (keV)
$^{235}\text{U}$	20,165	17,218	16,425	13,613	13,438
$^{239}\text{Pu}$	21,401	18,278	17,254	14,279	14,082

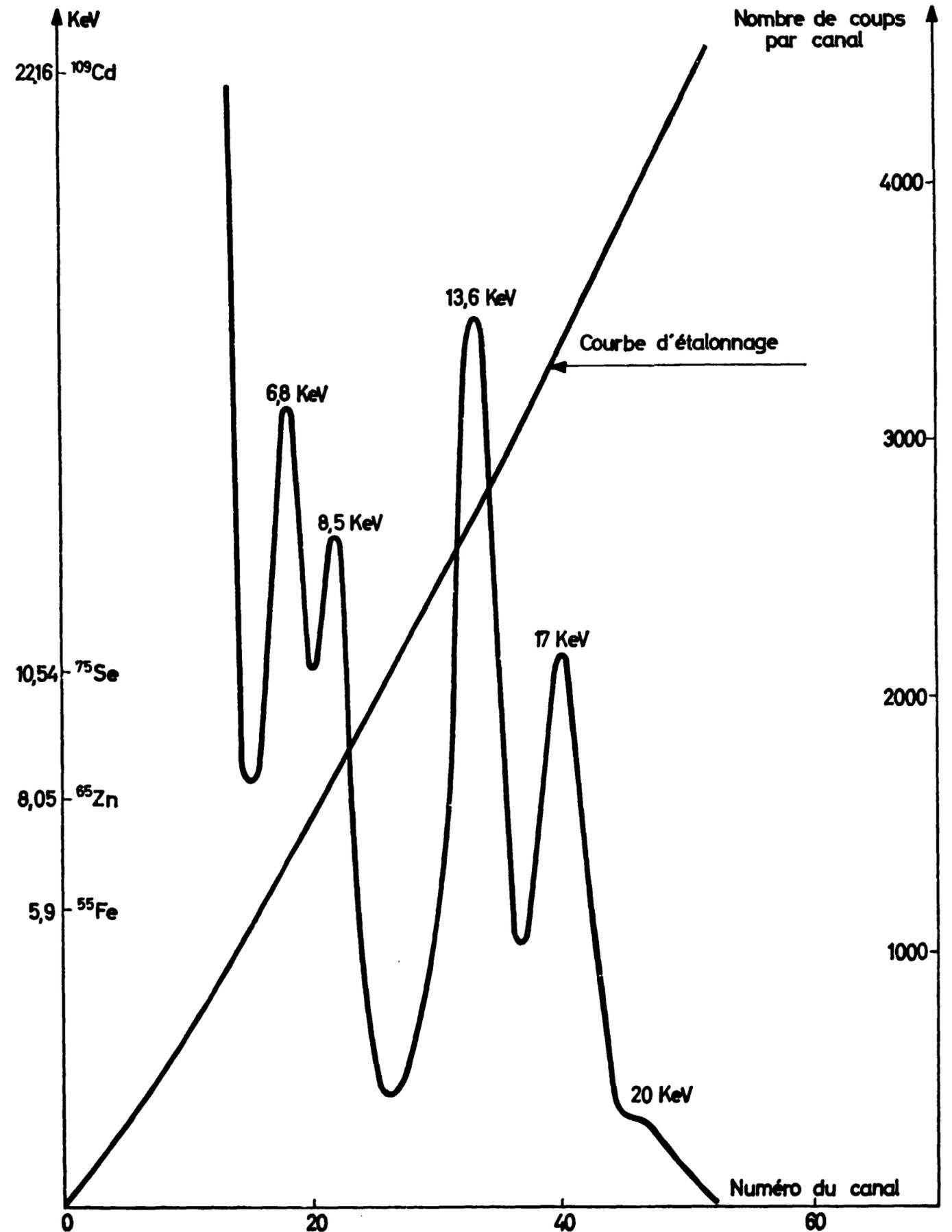


Figure 7

Si on admet que les probabilités d'émission sont sensiblement identiques, pour  $L\beta_1$  et  $L\beta_2$  d'une part et  $L\alpha_1$  et  $L\alpha_2$  d'autre part, on obtient le tableau suivant :

TABLEAU IV

	$E_1$ (keV)	$E_2$ (keV)	$E_3$ (keV)
$^{235}_{92}\text{U}$	13,52	16,87	20,165
$^{239}_{94}\text{Pu}$	14,18	17,76	21,401

En tenant compte de la largeur d'un canal du sélecteur d'amplitude, de la linéarité de la réponse du détecteur et de la variation de tension alimentant le compteur, on peut définir à  $\pm 0,2$  KeV près l'énergie correspondant aux raies trouvées expérimentalement :

$$E'_1 = 13,6 \pm 0,2 \text{ KeV};$$

$$E'_2 = 17 \pm 0,2 \text{ KeV};$$

$$E'_3 = 20 \pm 0,2 \text{ KeV}.$$

La comparaison des valeurs expérimentales  $E'_1$ ,  $E'_2$  et  $E'_3$  avec les valeurs théoriques  $E_1$ ,  $E_2$  et  $E_3$  du tableau IV nous amène à conclure que le spectre d'émission X du plutonium 239 correspond aux raies d'émission  $L_X$  critiques de  $^{235}_{92}\text{U}$ ; ces résultats sont à rapprocher de ceux d'Harvey I. Israel (24<sub>2</sub>), de West D. Dawson et Mandelbey (11 et 24<sub>1</sub>).

La présence des raies X de l'uranium est due au phénomène de conversion interne : l'énergie d'excitation d'un atome d'uranium obtenu par désintégration  $\alpha$  d'un atome de plutonium est cédée à un électron du cortège, la raie L provient d'un réarrangement électronique (voir le schéma de désintégration fig. 7 bis).

Seuls les  $\alpha$  de 5,096 MeV peuvent donner les raies L perçues. Etant donné que le nombre Z de l'élément est très élevé et que l'énergie disponible est faible, le phénomène de conversion interne est prédominant; il y a environ  $10^{-4}$   $\gamma$  de 38 et 51 KeV par désintégration  $\alpha$ . Les 11 pour cent d'alpha de 5,096 MeV ne donneront pas un nombre correspondant de raies  $X_L$  car la conversion interne peut se faire sur des électrons de la couche M et des électrons d'Augers peuvent être émis concurremment.

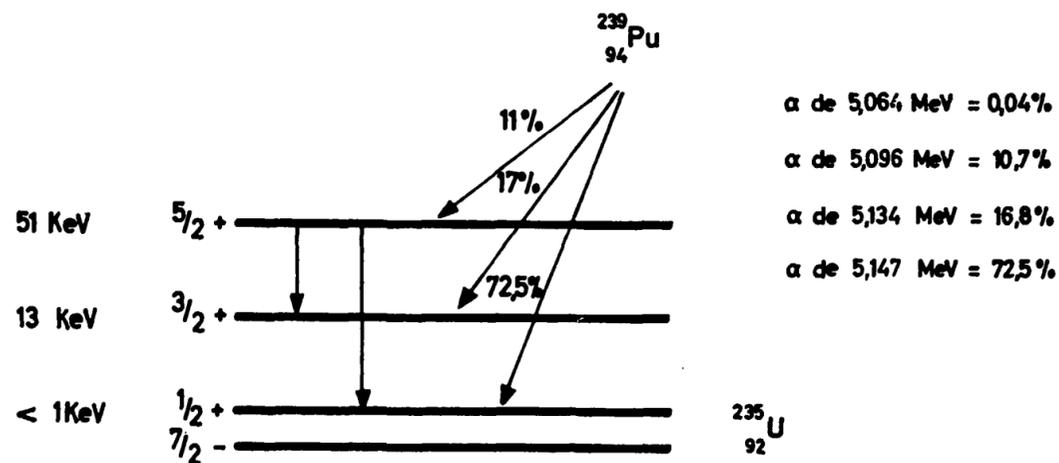


Figure 7 bis

**Calcul du rendement de détection du compteur proportionnel.**

La partie utile du compteur est constituée par un cylindre de gaz dont la base est le disque de béryllium constituant la fenêtre de ce compteur et dont la hauteur est sensiblement égale au diamètre de celui-ci, soit 8 cm.

Masse spécifique de l'argon :  $\omega = \frac{40}{22.400} = 1,79 \text{ mg/cm}^3$

Poids du cylindre de gaz ( $S = 1 \text{ cm}^2$ ) :  $P = 1 \times 8 \times 1,79 \cdot 10^{-3} = 14,3 \cdot 10^{-3} \text{ g}$ .

Le volume gazeux est composé de 90 pour cent d'argon, la pression totale est de 1 800 g/cm<sup>2</sup>, d'où :

Poids réel du cylindre d'Argon :  $P' = \frac{1800}{1010} \times \frac{90}{100} \times 14,3 = 23 \text{ mg}$

Soit  $I_0$  l'intensité du rayonnement incident et  $I$  la fraction qui est absorbée par le gaz :

$$I = I_0 [1 - \exp(-\mu X)] \text{ et posons } \sigma_1 = \frac{I}{I_0}.$$

X s'exprime en mg/cm<sup>2</sup> soit  $X = 23 \text{ mg/cm}^2$  pour le gaz qui est employé.

TABLEAU V

E (keV)	$\mu$ (cm <sup>2</sup> /g) [12]	$\mu X$	$\rho_1 = 1 - e^{-\mu X}$
13,6	27,50	0,63	0,47
17,0	13,00	0,30	0,26
20,0	8,37	0,19	0,17

Calculons l'absorption due à la fenêtre de béryllium (densité :  $d = 9,02$ ) :

$$I_{\text{transmis}} = I_0 \exp(-\mu X) \text{ et posons } \sigma_2 = \frac{I}{I_0}$$

$\mu = 0,284 \text{ cm}^2/\text{g}$  pour  $E = 15 \text{ keV}$ , d'où  $X = 9,02 \cdot 10^{-2} \text{ g/cm}^2$  (épaisseur de la fenêtre :  $e = 0,1 \text{ mm}$ ).

En dehors des raies d'absorption et pour les faibles énergies, le coefficient  $\mu$  varie comme  $E^{-2}$ .

TABLEAU VI

E (keV)	$\mu$ (cm <sup>2</sup> /g)	$\mu X$	$\rho_2 = e^{-\mu X}$
13,6	0,38	0,034	0,965
17,0	0,195	0,018	0,98
20,0	0,12	0,011	0,99

d'où le rendement global :  $\rho = \rho_1 \cdot \rho_2$ .

TABLEAU VII

E (keV)	$\rho = \rho_1 \rho_2$	$\rho$ relatif
13,6	0,45	1
17	0,255	0,57
20	0,17	0,38

Pour la raie de 20 KeV, le rendement global de détection n'est que de 17 pour cent, ce qui explique la faible visibilité sur le spectre enregistré.

Avec un remplissage au xénon ( $\mu_{\text{xénon}} = 25 \text{ cm}^2/\text{g}$  à 20 KeV,  $d = 131,3$ ) nous aurions pu atteindre un rendement de 85 pour cent au lieu de 17 pour cent avec l'argon.

**Intensités relatives des raies X du  $^{239}_{94}\text{Pu}$ .**

Compte tenu d'une part, des hauteurs relatives des pics à 13,6 KeV et 17 KeV et de la hauteur calculée du pic à 20 KeV et d'autre part, de l'efficacité du gaz de remplissage, les intensités relatives des 3 raies X prennent les valeurs suivantes :

$$13,6 \text{ KeV} \rightarrow I_r = 1;$$

$$17 \text{ KeV} \rightarrow I_r = 1,1;$$

$$20 \text{ KeV} \rightarrow I_r = 0,26.$$

Ces valeurs sont en bon accord avec celles trouvées dans la littérature (24<sub>2</sub>).

CHAPITRE III

UTILISATION D'UN CRISTAL SCINTILLATEUR MINCE  
A LA DETECTION DU RAYONNEMENT X MOU DU  $^{239}_{94}\text{Pu}$

Au chapitre II, nous avons montré comment on pouvait analyser le rayonnement X du plutonium avec un compteur proportionnel, la source utilisée pour la mesure ayant une activité de  $0,42 \mu\text{C}$ , le mouvement propre du compteur étant alors négligeable ( $S/B = 10$  dans le cas le plus défavorable, c'est-à-dire pour le pic de 20 KeV); maintenant, nous désirons faire des mesures pour lesquelles une activité de  $0,04 \mu\text{C}$  sera un maximum (voir chapitre I, Radiotoxicologie), le mouvement propre devient alors prépondérant et le compteur proportionnel n'est plus utilisable, même protégé par un blindage de 10 cm de plomb.

La raison de ce mouvement propre intense peut trouver une explication dans la mauvaise utilisation du volume total du gaz : le volume de détection (celui qui intéresse la source du plutonium) n'est que le 1/20 du volume total.

Pour diminuer le mouvement propre du compteur, on peut penser diminuer le rapport  $\frac{\text{volume utile de détection}}{\text{volume total du gaz}}$ , cependant, si ce dernier rapport diminue trop, le champ électrique devient moins uniforme dans la région où s'opère la détection des photons X, le compteur perd sa propriété d'être proportionnel et le pouvoir résolvant devient moins élevé; de plus, pour avoir une bonne uniformité du champ électrique dans la zone où s'opère la détection, la fenêtre du compteur doit avoir une petite surface d'où une très mauvaise "géométrie" dans le cas d'une source étendue.

En définitive, dans sa conception actuelle, le compteur proportionnel n'est pas utilisable comme détecteur X d'une source de très faible activité, ce qui est dommage, car il a un très bon pouvoir résolvant, bien meilleur que celui que peut avoir un cristal scintillateur :

$$\mathcal{R} = \frac{\Delta E}{E} \text{ (largeur à mi-hauteur)}$$

(pouvoir résolvant)

TABLEAU VIII

E (keV)	$\mathcal{R}$ (compteur proportionnel)	$\mathcal{R}$ (cristal scintillateur par. 4.4.1)
13,6	13,8 p. 100	31,2 p. 100
17,0	12,5 p. 100	29,5 p. 100
20,0	12,3 p. 100	28,7 p. 100

### 3.1 - Généralités sur les cristaux scintillateurs.

Le rôle du cristal scintillateur est d'assurer la conversion en quanta de lumière de l'énergie des particules incidentes.

La plupart des cristaux scintillateurs minéraux sont activés par des traces d'autres corps, tel que du thallium; pour les cristaux purs (non activés), il semble que le phénomène de luminescence soit dû à des défauts du réseau cristallin, le thallium n'agissant que pour renforcer le rendement. [14]

La luminescence comprend à la fois des processus de fluorescence et des processus de phosphorescence.

La particule incidente, dans notre cas un photon X, cède son énergie à un ou plusieurs électrons du cristal qui passent ainsi dans la bande de conduction; le "trou positif" créé par le départ d'un électron se déplace alors vers un centre d'impureté (ou défaut) qu'il ionise. Si le cristal est parfait, les électrons de la bande de conduction rejoignent les centres d'impureté et les neutralisent, ce qui forment des états excités qui peuvent devenir des états stables par transition; cette transition permise se fait avec rayonnement, la vie de l'état excité est courte, cela correspond au phénomène de fluorescence ( $\tau_0 \approx 10^{-7}$  s).

Pour certains scintillateurs, en particulier pour les halogénures alcalins activés au thallium, un électron de conduction peut amener un centre d'impureté dans un état métastable, la transition vers l'état stable étant interdite; si l'électron ainsi piégé reçoit une énergie E d'origine thermique, il pourra passer dans un état excité et s'échapper de l'état métastable, il émettra un rayonnement dit de phosphorescence [27]

(soit  $p = S \cdot e^{-\frac{E}{kT}}$  la probabilité d'excitation thermique à la température T).

La phosphorescence a un temps d'extinction beaucoup plus long que la fluorescence, aussi cherche-t-on à minimiser cet effet parasite; pour les halogénures alcalins activés au thallium, les états métastables sont liés au nombre d'atomes de thallium, ainsi, pour une concentration molaire de 0,0015 pour cent de thallium, la phosphorescence a disparu, mais le rendement de fluorescence tombe alors à une valeur très basse.

Pour avoir un rendement de fluorescence suffisamment élevé, on est amené à porter à 0,5 pour cent la concentration molaire de thallium, bien que cela conduise à une augmentation importante de la constante de temps de décroissance exponentielle des impulsions lumineuses de scintillations.

#### 3.1.1 - Rendement de scintillations.

Dans le domaine d'énergie qui nous intéresse ( $E < 25$  KeV) l'absorption des photons X par le cristal scintillateur se fait presque uniquement par effet photoélectrique (80 pour cent sur la couche K, 20 pour cent sur la couche L).

On peut définir un rendement de scintillations:

$$\sigma = \frac{N_0 \cdot E_{ph}}{E_1} \quad (E_1 \leq E_{photons \text{ X incidents}})$$

En général, les  $N_0$  photons émis par le scintillateur ont une énergie comprise entre  $E'_{ph} = 2,7$  eV et  $E''_{ph} = 3,5$  eV

$$\left[ E_{ev} = \frac{12390}{\lambda \text{ \AA}} \text{ avec } 3500 \text{ \AA} < \lambda_{ph} < 4500 \text{ \AA} \right]$$

#### 3.1.2 - Pic d'échappement.

Quand un électron de la couche K est chassé par un photon X (effet photoélectrique), un électron d'une couche supérieure,  $L_{II}$  par exemple, effectue la transition  $L_{II} \rightarrow K$  et émet simultanément un photon  $X_K$ ; pour un cristal scintillateur épais, ce photon  $X_K$  est à intégrer avec les photons X incidents. Au contraire, si le cristal scintillateur est mince, ce photon  $X_K$  peut s'échapper du cristal et dans le bilan des énergies, il manquera  $\Delta E_{X_K}$ ; il va donc apparaître un autre pic, appelé "pic d'échappement", correspondant à l'énergie  $E - \Delta E_{X_K}$ .

#### 3.1.3 - Forme de l'impulsion lumineuse.

La montée de l'impulsion lumineuse se fait en un temps très court ( $10^{-10}$  s), par contre, la "descente" dure plusieurs microsecondes et correspond à la désexcitation erratique des molécules des centres luminescents et le scintillateur émet alors  $N_0$  photons suivant une loi exponentielle:

$$dN = \frac{N_0}{\tau_0} e^{-\frac{t}{\tau_0}} \cdot dt$$

( $\tau_0$  est pratiquement la constante de temps de phosphorescence.)

### 3.2 - Appareillage associé au cristal scintillateur.

#### 3.2.1 - Photomultiplicateur.

Le cristal scintillateur monté ou non sur un support est appliqué sur la surface plane de la photocathode, le joint optique est assuré par un film de quelques centièmes de millimètre d'huile silicone ( $10^5$  à  $10^6$  centi-stokes).

Les impulsions lumineuses produites par le scintillateur sont transformées par le photomultiplicateur en impulsions électriques d'amplitude utilisable par un amplificateur électronique; entre la photocathode et l'anode du photomultiplicateur le gain électronique est d'environ  $10^6$ .

Pour toute la suite des expériences, nous avons choisi le photomultiplicateur EMI. 6 097 B n° 5 727 en raison de la bonne homogénéité de sa photocathode et de son faible mouvement propre, à gain égal avec d'autres tubes.

#### ■ Caractéristiques du photomultiplicateur E.M.I. 6 097 B:

- diamètre de la photocathode: 44 mm;
- sensibilité de la photocathode:  $60 \mu\text{A/lumen}$  (Sb CsO);
- courant d'obscurité: 0,03 nA;
- 11 étages-dynodes en "persiennes" (Sb CsO);
- sensibilité globale:  $200 \text{ A/lumen}$  à 1380 V ( $G_{moyen}: 3 \cdot 10^7$ );
- facteur de résolution avec un cristal scintillateur de NaI(Tl) de  $1'' \times 1'' 1/2$ :  $\mathcal{R} = 8\%$  (à titre de comparaison, le photomultiplicateur DARIO 53 AVP de la Radiotechnique a dans les mêmes conditions un facteur de résolution égal à 11,5 pour cent).

Si "d" est le coefficient d'émission secondaire des dynodes, et "n" le nombre d'étages, le gain du tube est  $G = d^n$ .

Dans le domaine normal d'utilisation, "d" est proportionnel à la tension interdynodes  $V_0$ , d'où  $G = K (V_0)^n$  et  $\frac{\Delta G}{G} = \frac{n \Delta V}{V_0}$ ; ( $n = 11$  pour le photomultiplicateur E.M.I. 6097 B).

Cette dernière relation montre quelle est l'importance qu'on doit attacher à la stabilisation de la tension qui est appliquée au photomultiplicateur ( $\frac{\Delta V}{V} = 10^{-3}$  pour avoir une mesure d'amplitude stable à 1 pour cent près).

#### ■ Origine du mouvement propre.

a) Courant d'obscurité:

— Emission thermique:

L'agitation thermique des électrons donne naissance à différents courants:

$I_{oK}$  photocathode

$I_{oD1}$  1<sup>re</sup> dynode, etc...

soit:  $I_{anode} = I_{oK} \cdot d^n + I_{oD1} \cdot d^{n-1} + \dots$

L'agitation thermique des électrons de la photocathode est donc le facteur principal du courant d'obscurité; en refroidissant la photocathode, on peut diminuer considérablement le terme  $I_{oK}$  (chapitre 3.4.5).

— Emission froide:

Par construction, on minimise ce phénomène en empêchant l'apparition de potentiels élevés entre des points rapprochés. On ne peut pratiquement pas agir sur ce mouvement propre, si ce n'est que de choisir un tube convenable et de travailler avec une tension assez faible.

— Ionisation des gaz résiduels :

Les gaz résiduels se trouvent ionisés par le bombardement des électrons ; pour diminuer l'importance de ce dernier phénomène, nous avons cherché à faire travailler le tube photomultiplicateur avec une tension aussi réduite que possible mais qui reste cependant compatible avec un fonctionnement correct de ce tube (en particulier, pour avoir un gain suffisant).

b) Parasites d'origine électrique :

A l'extérieur du tube, de mauvais contacts peuvent provoquer l'apparition d'impulsions électriques parasites : les résistances et les capacités associées au photomultiplicateur seront donc directement soudées sur les broches de ce tube.

■ Montage électrique du photomultiplicateur (voir fig. 8).

Les condensateurs ont pour but de maintenir constant le potentiel interdynodes.

3.2.2 - Préamplificateur.

En général, le système de détection constitué par le scintillateur et le photomultiplicateur est assez loin du sélecteur d'amplitude, aussi, pour ne pas avoir trop de pertes dans la transmission des informations, sera-t-on amené à disposer un préamplificateur directement branché à la sortie du photomultiplicateur, le but de ce préamplificateur étant d'adapter l'impédance de sortie du photomultiplicateur à l'impédance caractéristique du câble coaxial.

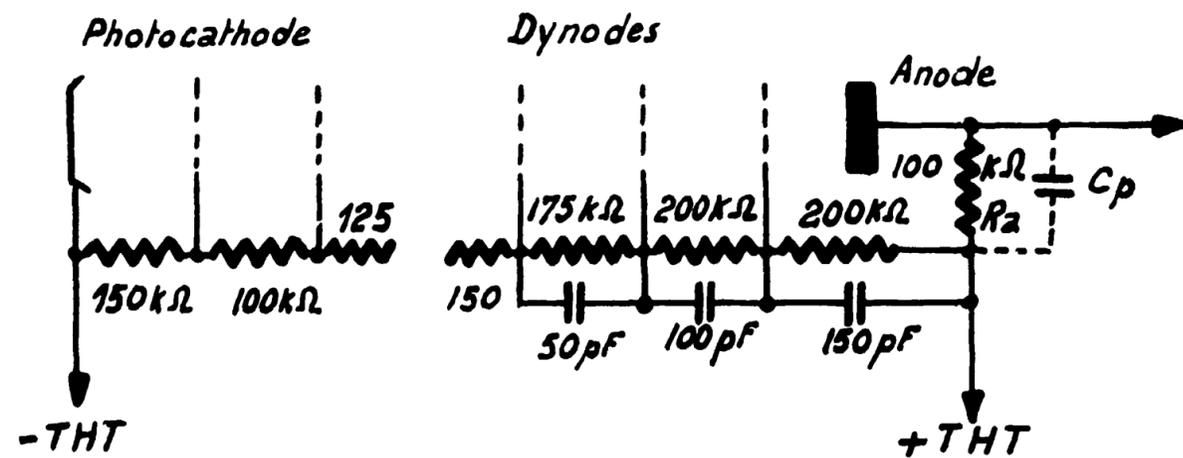


Figure 8

■ Schéma de montage du préamplificateur (voir fig. 9).

C'est un montage dit "Anode à la masse" dont le gain en tension est voisin de 1 ; l'impédance de sortie de l'ordre de 1.5 KΩ est suffisamment basse pour qu'avec 3 ou 4 m de câble coaxial, l'affaiblissement du signal électrique soit négligeable ( $C = 4 \times 70 \text{ pF} = 280 \text{ pF}$  d'où  $\tau = 1,5 \cdot 10^3 \times 2,8 \cdot 10^{-10} = 0,4 \text{ } \mu\text{s}$ ).

La résistance d'anode  $R_a$  du photomultiplicateur, la capacité parasite  $C_p$ , la capacité de liaison  $C_e$  et l'ensemble  $R \sim C$  associé au préamplificateur, constituent le circuit de charge du photomultiplicateur qu'il est possible d'amener à une valeur telle que le rapport "signal sur bruit" des impulsions électriques fournies par ce photomultiplicateur soit maximum (voir fig. 10).

Le schéma précédent (figure 10) peut être simplifié en tenant compte des éléments suivants :  $R \approx 10\,000 \text{ } \Omega$  et  $C < 100 \text{ pF}$  (voir figure 11).

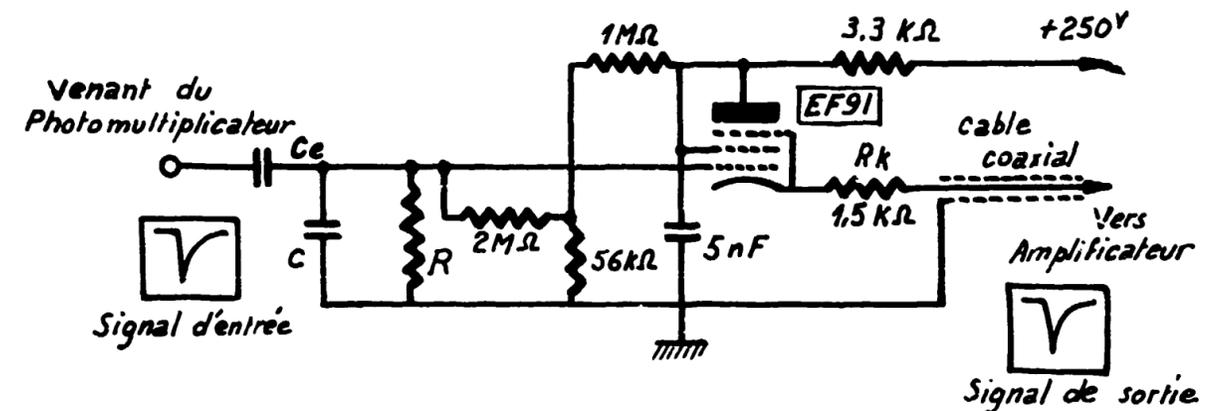


Figure 9

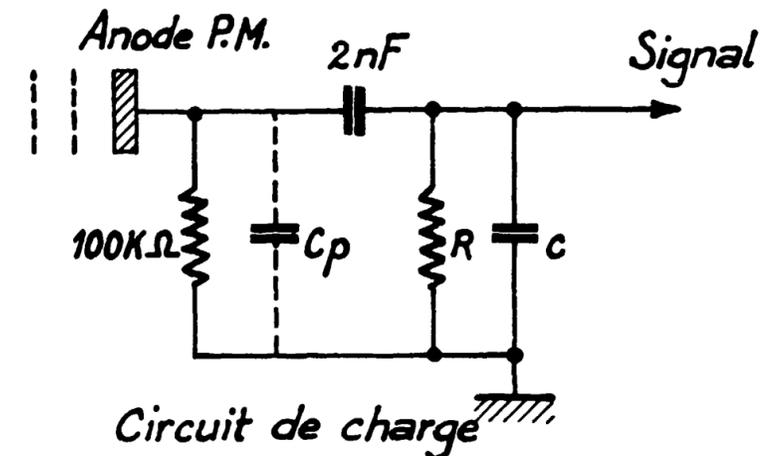


Figure 10

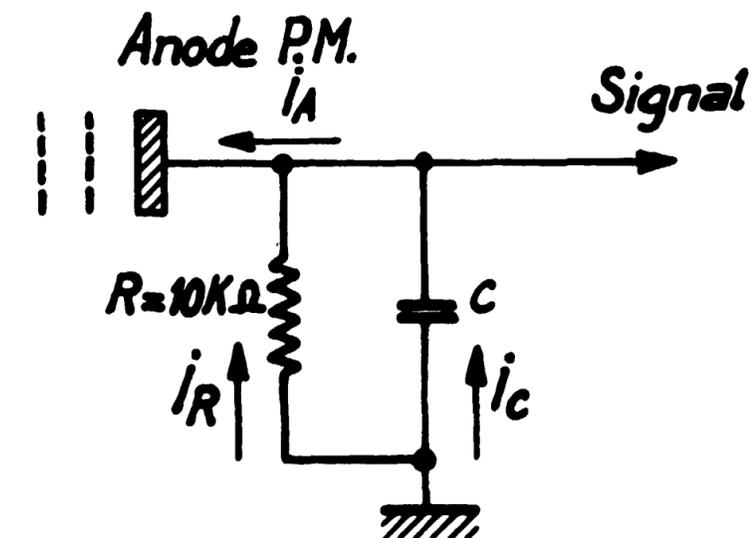


Figure 11

Au paragraphe 3.1., nous avons vu que le scintillateur émettait  $N_0$  photons suivant la loi :

$$dN = \frac{N_0}{\tau_0} e^{-\frac{t}{\tau_0}} dt$$

Nous pouvons négliger la dispersion qui est due au temps de transit des électrons entre la cathode et l'anode du photomultiplicateur soit :

$$dq = \frac{Q_0}{\tau_0} e^{-\frac{t}{\tau_0}} dt \text{ (Anode)} \quad I_A = \frac{dq}{dt} \text{ avec } I_A = I_r + I_e$$

Si  $V(t)$  représente la tension aux bornes du circuit de charge, nous avons :

$$\frac{V}{R} + C \frac{dV}{dt} = I_A = \frac{Q_0}{\tau_0} e^{-\frac{t}{\tau_0}}$$

d'où 
$$V = \frac{Q_0}{C} \cdot \frac{\tau_1}{\tau_0 - \tau_1} \cdot \left[ e^{-\frac{t}{\tau_0}} - e^{-\frac{t}{\tau_1}} \right] \text{ avec } \tau_1 = R \cdot C$$

Valeur quadratique moyenne des fluctuations de  $V(t)$ . [13]

$$\sigma_{(t)}^2 = \left( \frac{Q_0}{C} \right)^2 \cdot \frac{\bar{d}}{\bar{d}-1} \cdot \frac{1}{N_0 \cdot p} \cdot \frac{\tau_1}{2\tau_0 - \tau_1} \cdot \left( e^{-\frac{t}{\tau_0}} - e^{-\frac{2t}{\tau_1}} \right)$$

Avec  $\bar{Q}_0 = e \cdot N_0 \cdot p \cdot \bar{d}^n$

$\bar{p}$ : probabilité pour qu'un photon qui tombe sur la photocathode produise un électron qui soit recueilli par la première dynode.

$\bar{d}$ : facteur de multiplication moyen par étage.

$N_0$ : nombre moyen de photons qui arrivent sur la photocathode.

$n$ : nombre d'étages.

On peut considérer, que vis-à-vis de la durée des impulsions produites par le scintillateur, les impulsions parasites venant du photomultiplicateur ont une durée très courte.

■ Conditions à remplir pour rendre maximum le rapport  $\frac{\text{signal}}{\text{bruit}}$

1° Il faut chercher à obtenir une dispersion minimum sur la tension délivrée par le circuit de charge ; d'une manière plus précise, il faut que le facteur de résolution soit aussi petit que possible :

$$\mathcal{R} = A \cdot \frac{\sigma}{V_{\max}} \text{ minimum}$$

Simultanément, on cherchera à avoir  $V_{\max}$  le plus grand possible :

$$\text{soit } \frac{V_{\max}}{\mathcal{R}} \text{ maximum}$$

2° La réponse du circuit de charge à une impulsion parasite est de la même forme que celle qui a été donnée pour une impulsion venant du scintillateur mais cette fois-ci avec  $\tau'_0 \ll \tau_0$ , c'est pour simplifier les calculs, nous supposons qu'à l'impulsion parasite correspond  $N'_0$  photons, soit une charge  $Q'_0$  sur l'anode.

Soit :  $V_{\max}$  - l'amplitude maximum correspondant à l'émission lumineuse du scintillateur ;

$V'_{\max}$  - l'amplitude maximum correspondant à l'impulsion parasite.

Ce qui conduit à :

$$\frac{V_{\max}}{V'_{\max}} \text{ maximum}$$

En définitive, la meilleure valeur à donner au produit R.C. (circuit de charge) sera réalisée quand :

$$\frac{V_{\max}}{\mathcal{R}} \cdot \frac{V_{\max}}{V'_{\max}} \text{ maximum soit encore } \frac{(V_{\max})^3}{\sigma \cdot V'_{\max}} \text{ maximum}$$

posons  $k = \frac{\tau_1}{\tau_0}$  d'où :

$$t_{(\max)} = \frac{\tau_0 \cdot \tau_1}{\tau_0 - \tau_1} \text{Log } \frac{\tau_0}{\tau_1}$$

$$V_{(\max)} = \frac{Q_0 \cdot R}{\tau_0} \cdot e^{\frac{k}{1-k}} \cdot \text{Log } k = \frac{Q_0}{C} \cdot k \cdot e^{\frac{k}{1-k}} \cdot \text{Log } k$$

$$\sigma_{(\max)}^2 = \beta^2 \cdot \left( \frac{Q_0}{C} \right)^2 \cdot \frac{K}{2-K} \cdot \left[ e^{\frac{k}{1-k}} \cdot \text{Log } k - e^{\frac{2k}{1-k}} \cdot \text{Log } k \right]$$

$$k' \text{ (impulsions parasites)} = \frac{\tau_1}{\tau'_0} = \frac{\tau_1}{\tau_0} \cdot \frac{\tau_0}{\tau'_0} = k \cdot \alpha$$

$V_{\max}$  correspond au coefficient  $k$

$V'_{\max}$  correspond au coefficient  $k' = k \alpha$

Nous prendrons  $\alpha = 10$  ce qui correspond à une bonne valeur pratique de l'inégalité  $\tau'_0 \ll \tau_0$ .

Le calcul de l'expression  $\frac{(V_{\max})^3}{\sigma \cdot V'_{\max}}$  nous conduit au tableau ci-dessous, où  $B(c)$  est une constante proportionnelle à la capacité "c" (voir par. 3.2.2).

TABLEAU IX

k	$\frac{(V_{\max})^3}{\sigma \cdot V'_{\max}} \cdot B(c)$
0,1	0,63
0,2	0,89
0,5	1,24
1	1,32
2	1,24
5	0,88
10	0,65

Le tableau IX nous montre que le rapport "signal/bruit" est maximum pour le  $k = 1$  : la constante de temps électrique du circuit de charge RC est égale à la constante de temps  $\tau_0$  de décroissance de l'impulsion lumineuse donnée par le scintillateur.

Pratiquement, pour les cristaux scintillateurs qui seront étudiés par la suite,  $\tau_0$  est de l'ordre de  $0,5 \mu s$  ; comme  $R = 10 K\Omega$ ,  $C$  sera donc de l'ordre de  $50 pF$ .

### 3.2.3 - Amplificateur.

L'amplificateur précédé d'un atténuateur est directement associé au sélecteur d'amplitude ; le gain maximum est de 1 300 (voir fig. 12).

L'impulsion électrique est mise en forme à la sortie de l'amplificateur de telle sorte que le temps de "montée" soit de  $1 \mu s$  au maximum et de 2 à  $3 \mu s$  pour le temps de "descente".

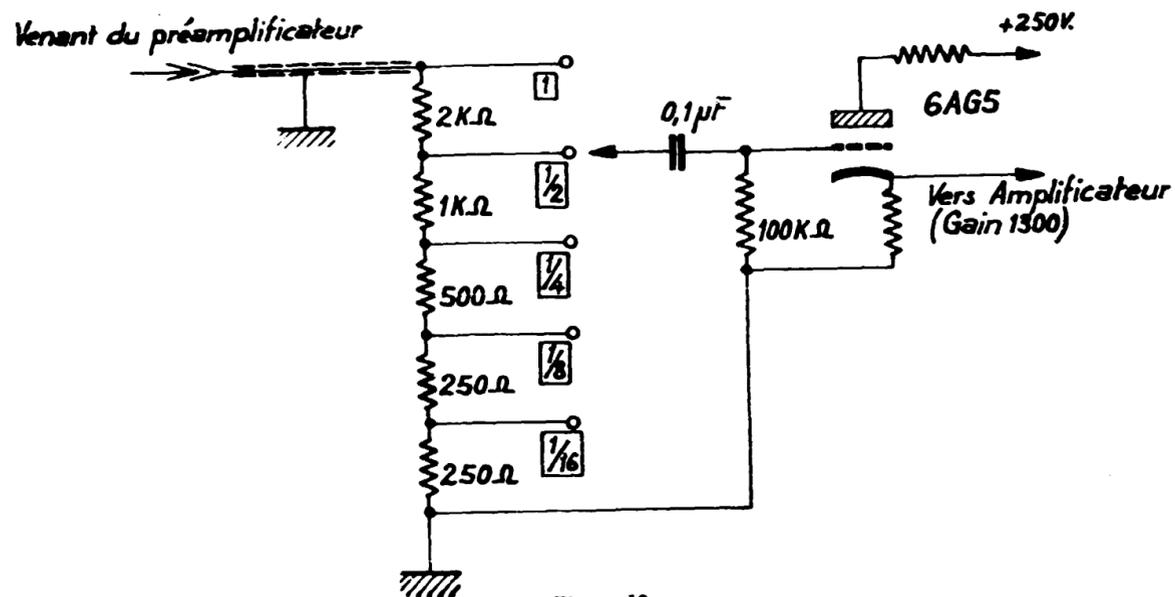


Figure 12

### 3.3 - Choix du cristal scintillateur.

Pour que la sensibilité utilisable soit aussi grande que possible, c'est-à-dire que le rapport signal/mouvement propre soit maximum, cela nécessite un bon pouvoir résolvant. (Pour reprendre une analogie électrique, une bande passante étroite améliore le rapport signal/bruit.)

Le cristal scintillateur sera donc choisi dans la mesure où son pouvoir résolvant sera grand, ce critère étant complété par la recherche d'un coefficient d'absorption aussi élevé que possible pour éviter de se servir d'un cristal qui soit trop épais (nous verrons au paragraphe 3.4.3 que le mouvement propre croît avec le volume du cristal).

On distingue deux sortes de cristaux scintillateurs :

- les cristaux activés, ce sont des cristaux tels que CsI(Tl), NaI(Tl) (iodure de césium activé au thallium, iodure de sodium activé au thallium) ;
- les cristaux purs : CsI, NaI (iodure de césium, iodure de sodium).

Dans les chapitres suivants nous allons étudier successivement les cristaux de CsI(Tl) et CsI d'une part et de NaI(Tl) et NaI d'autre part.

Comme nous le montrerons au paragraphe 3.4.3, il est inutile d'utiliser un cristal scintillateur dont l'épaisseur soit supérieure à 1 mm en effet, pour le rayonnement X que nous voulons détecter ( $E_{max} = 16 \text{ KeV}$ ), l'absorption par le cristal est quasi totale pour une épaisseur de 1 mm.

#### 3.3.1 - Iodure de césium activé au Thallium - CsI(Tl).

Pour ces cristaux activés, le thallium ne semble jouer qu'un rôle de renforçateur de rendement, la luminescence étant due aux imperfections cristallines toujours présentes [14].

Contrairement aux cristaux de NaI(Tl), le CsI(Tl) n'est pratiquement pas hygroscopique.

Le temps de déclin des scintillations est environ 2 fois plus élevé que pour le NaI(Tl), soit  $\tau_0 = 0,5 \mu s$ .

#### Polissage - Montage.

Le cristal employé se présente sous la forme d'un rectangle de  $17 \times 20 \text{ mm}$  -  $e = 1,2 \text{ mm}$ .

Pour avoir une surface parfaitement polie, on frotte le cristal sur un mélange abrasif composé d'oxyde de cérium et d'alcool méthylique déposé sur une feuille de papier à grains très fins ; pour finir le polissage on continue de frotter sur une surface imbibée d'alcool méthylique pur, puis enfin sur du papier sec [16].

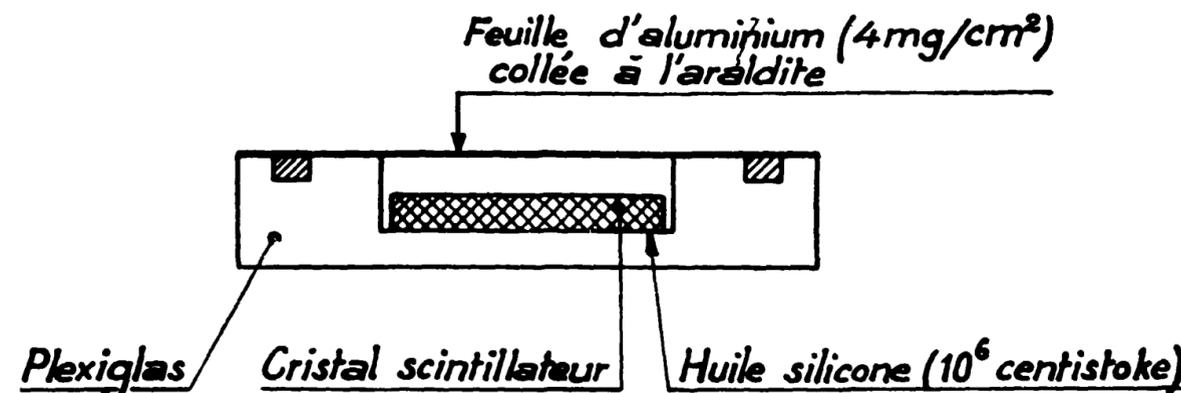


Figure 13

Montage mécanique (voir fig. 13).

Le cristal est monté dans une cavité creusée dans un disque de plexiglas, ce dernier étant appliqué contre la face plane de la photocathode du photomultiplicateur par l'intermédiaire d'un film très mince d'huile silicone de 30 000 cts.

#### Mouvement propre - Facteur de résolution.

Le sélecteur d'amplitude est étalonné par la raie de 32 KeV du baryum (décroissance du  $^{137}_{55}\text{Cs}$ ).

Dans une bande d'énergie qui s'étend de 10 à 20 KeV, nous avons obtenu 2 200 coups correspondant au mouvement propre (temps de mesure : 10 secondes), le cristal venant juste d'être monté dans son support.

Comparé à d'autres cristaux tels que CsI et NaI(Tl), ce mouvement propre est très important :

- CsI(Tl) : 220 c/s ;
- CsI : 5 c/mm ;
- NaI(Tl) : 2,2 c/mm.

On peut chercher l'origine de ce mouvement propre dans un effet d'excitation photoélectrique par la lumière ambiante, en effet, si on laisse le cristal dans l'obscurité ce mouvement propre diminue.

En examinant la courbe de décroissance de cet effet photoélectrique, on peut noter la présence de 2 constantes de temps très différentes :

$$\tau_1 = 2 \text{ h} \quad \tau_2 = 20 \text{ h} \quad (\text{voir fig. 14}).$$

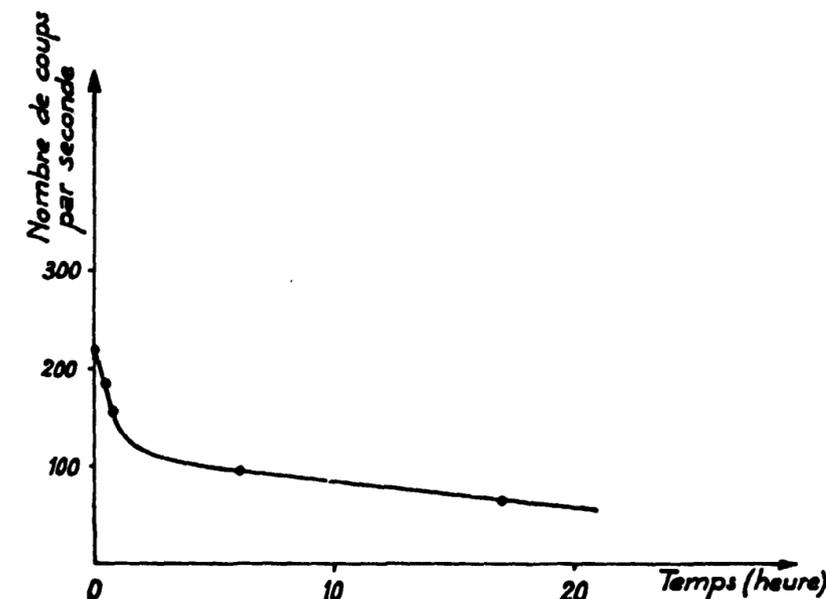


Figure 14

En définitive, même en laissant ce cristal scintillateur de CsI(Tl) dans la plus parfaite obscurité, il s'avère qu'il n'est pratiquement pas utilisable tant son mouvement propre est important, il ne sera donc pas retenu comme détecteur possible.

### 3.3.2 - Iodure de césium (CsI).

Ce cristal scintillateur n'étant pas activé par du thallium (Tl), l'expérience montre qu'il est alors nécessaire de le refroidir énergiquement pour obtenir un rendement de scintillations suffisant; il semble que le phénomène de luminescence de ce cristal pur soit dû à des défauts du réseau cristallin et non à des impuretés, des courbes telles que celles qui relient l'intensité lumineuse à la température étant parfaitement reproductibles ( $I = f(T)$  - [14]).

Tout comme le CsI(Tl), ce cristal n'est pas hygroscopique.

#### Obtention du cristal.

Pour obtenir un monocristal, il y a 2 sortes de procédés possibles: fusion et dissolution.

Le premier procédé consiste à partir du corps pur fondu pour ensuite le refroidir lentement en présence d'un "germe" (petit monocristal).

Le second procédé, beaucoup moins usité, permet d'obtenir un monocristal en partant d'une solution aqueuse de CsI soumise à un lent refroidissement.

Nous avons expérimenté spécialement ce deuxième procédé, car il permet d'obtenir des monocristaux plus homogènes, ceux-ci ayant sans doute moins de contraintes internes (les contraintes thermiques sont inévitables quand on utilise le premier procédé).

#### 3.3.2.1 - CRISTAL OBTENU PAR FUSION.

##### Polissage.

Contrairement au CsI(Tl) qui ne peut être poli que mécaniquement, le CsI pur peut être poli chimiquement; ce dernier procédé est bien préférable car il permet d'obtenir une surface beaucoup plus homogène exempte de tous corps étrangers (des grains d'abrasif pourraient se loger dans les défauts du cristal si le polissage mécanique n'était pas suffisant).

Un polissage mécanique permet tout d'abord de dégrossir le cristal et de l'amener à une épaisseur convenable, on le plonge ensuite dans un mélange d'alcool méthylique et d'eau distillée (80 et 20 pour cent en volume) jusqu'à ce que la plaquette devienne transparente [15]. Il s'agit maintenant d'éliminer l'eau qui reste à la surface du cristal, pour cela, on utilise de l'alcool absolu, mais pour être sûr que cet alcool soit vraiment exempt de toute trace d'eau on y met quelques grammes de sulfate de cuivre préalablement broyé et déshydraté dans une coupelle de porcelaine chauffée au rouge; on laisse la solution se décanter quelques instants, puis on la filtre.

Une fois cette dernière solution préparée, on y plonge le cristal qui est maintenant bien transparent et après l'y avoir laissé quelques instants, on l'essuie avec du papier filtre; la solubilité de l'alcool éthylique est assez faible et la pellicule restante n'est pas gênante.

##### Montage.

L'iodure de césium n'étant pas hygroscopique, on peut le manipuler sans précaution, il n'est donc pas utile de le monter dans une capsule étanche.

Il est nécessaire de refroidir le cristal pour obtenir un rendement de scintillation satisfaisant, il faut abaisser sa température au moins jusqu'à  $-173^{\circ}\text{C}$ , mais sous peine de voir fortement diminuer la sensibilité du photomultiplicateur qui lui est associé, certaines précautions doivent être prises dans le choix ou le montage de ce photomultiplicateur; pour résoudre ce problème on dispose de deux solutions:

- utiliser un photomultiplicateur type R.C.A. 5819 dont la photocathode peut être refroidie jusqu'à  $-200^{\circ}\text{C}$ ;
- interposer entre le cristal qui est refroidi et la photocathode, un cylindre de quartz ou de plexiglas qui jouera le rôle d'isolant thermique; on conservera alors le tube E.M.I. 6097 B. (La température de sa photocathode ne doit pas descendre en-dessous de  $-100^{\circ}\text{C}$ .)

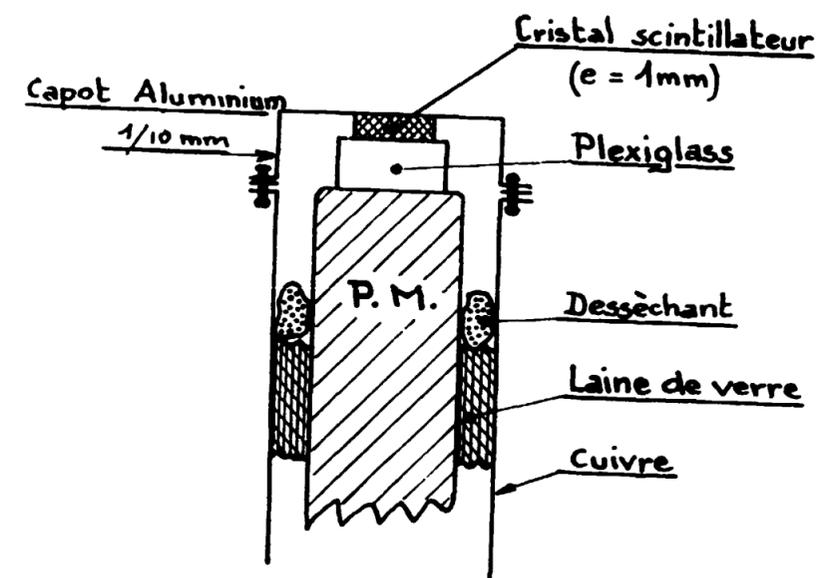


Figure 15

C'est cette dernière solution qui a été adoptée car elle permet de conserver le même photomultiplicateur quel que soit le cristal scintillateur utilisé, ce qui facilite grandement les comparaisons ultérieures entre les différents types de cristaux. Sur la figure 15, nous pouvons voir le montage qui a été retenu pour satisfaire aux exigences thermiques précédemment énoncées.

Le desséchant (chlorate de magnésium) est nécessaire pour éviter toute condensation d'eau sur le cristal et le P.M.

##### Résultats des mesures.

D'après une étude faite par B. Hahn et J. Rossel sur la scintillation de l'iodure de césium en application de la spectrométrie  $\gamma$  [16], il apparaît que l'amplitude des impulsions lumineuses ne croît pratiquement plus lorsque la température devient inférieure à  $100^{\circ}\text{K}$  (voir fig. 17).

Les mesures sont faites en plongeant la partie inférieure du capot recouvrant le cristal scintillant dans un vase Dewar contenant de l'azote liquide; la température d'ébullition de l'azote liquide étant de  $77^{\circ}\text{K}$  ( $-196^{\circ}\text{C}$ ), on sera donc assuré de porter le cristal scintillateur à une température inférieure ou égale à  $100^{\circ}\text{K}$  (voir fig. 16).

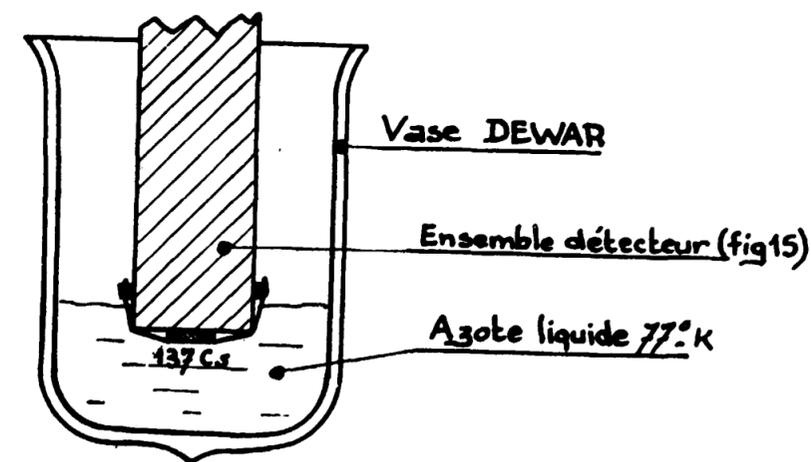


Figure 16

On utilise une source de  $5 \mu\text{C}$  de  $^{137}_{55}\text{Cs}$  qui donne la raie de 32 KeV du  $^{137}_{56}\text{Ba}$ ; la tension appliquée sur le photomultiplicateur est de 1 350 V; l'épaisseur du cristal est 1 mm.

Dans ces conditions, nous avons obtenu un facteur de résolution R de 31 pour cent sur la raie de 32 KeV du  $^{137}_{55}\text{Cs}$ .

### 3.3.2.2 - CRISTAL OBTENU PAR DISSOLUTION.

#### Obtention du cristal.

Il faut tout d'abord préparer une solution aqueuse d'iodure de césium; pour ce faire, on utilise du CsI cristallisé venant des établissements Merck, c'est un produit extrêmement pur, rigoureusement exempt de rubidium.

Pour éliminer les dernières traces de métaux lourds pouvant se trouver dans la solution (eau tri-distillée), on emploie la méthode de Hilsch [17]: dans une solution aqueuse de CsI on ajoute quelques gouttes de sulfure d'ammonium, on chauffe pendant 1 heure à 50 °C environ (au-delà de cette température, le CsI risque de se décomposer partiellement et de l'iode libre peut apparaître donnant une coloration jaunâtre à la solution), puis on filtre avec une membrane dont le diamètre des pores est de l'ordre de 200  $\mu\text{m}$  (ultrafiltre de Zsigmondy); les métaux lourds précipités sous forme de sulfure sont retenus par le filtre.

Un cristal de grosseur suffisante est obtenu en faisant croître un germe au sein d'une solution saturée d'iodure de césium; ce germe est un petit monocristal, il suffit de refroidir très rapidement une solution saturée pour en avoir une multitude. Pour que ce cristal croisse régulièrement, il faut que le refroidissement de la solution soit très lent et qu'une agitation constante maintienne le milieu liquide aussi homogène que possible [18]; ces deux conditions ont été respectées grâce à l'utilisation d'un thermostat (type Warburg) dans lequel la régulation thermique est appliquée à l'eau d'une cuve ( $\theta$  à  $\pm 1/100$  °C).

La solution de CsI est mise dans une fiole en pyrex, au fond de laquelle est soudé un petit cylindre de verre; un système mécanique associé à la cuve du thermostat communique à la fiole un mouvement en arc de cercle, ce qui permet une bonne homogénéisation de la solution grâce au régime tourbillonnaire qui y prend naissance (voir fig. 18).

Après quelques essais, il semble qu'il soit préférable de faire croître le cristal à partir d'une solution saturée à 30 °C plutôt que d'une solution saturée à une température plus basse, une faible viscosité étant favorable à la formation du cristal; nous allons examiner de quelles façons nous avons préparé une solution aqueuse de CsI exactement saturée pour une température de 30 °C:

A 30 °C il se dissout environ 95 g de CsI pour 100 g d'eau, à 50 °C nous pouvons donc préparer une solution contenant 100 g de CsI pour 100 g d'eau, c'est un filtrat liquide qui a été purifié par la méthode de Hilsch; nous mettons cette solution dans la partie A d'une fiole double qui est plongée dans l'eau de la cuve du thermostat, ce dernier étant réglé pour une température de 30 °C. Après avoir attendu environ 1 heure, du CsI cristallisé s'est déposé dans le fond de la fiole, partie A; on bascule cette fiole de telle sorte que le liquide passe dans la partie B dans laquelle nous avons alors une solution aqueuse de CsI exactement saturée pour une température de 30 °C (la fiole double est constamment plongée dans l'eau de la cuve pendant qu'on effectue cette opération) (voir fig. 19).

A partir de la solution saturée d'iodure de césium et pour un refroidissement de 0,6 °C pendant 48 heures, nous avons obtenu un monocristal parfaitement homogène de dimensions  $6 \times 3 \times 1$  mm.

#### Montage.

Ce monocristal est monté directement sur le cylindre de quartz comme cela a été indiqué au paragraphe 3.3.2.1 (voir aussi la figure 15), aucune préparation n'étant nécessaire, les faces du cristal étant parfaitement polies.

#### Résultats des mesures.

En adoptant le même montage et les mêmes conditions d'expérience qu'au paragraphe 3.3.2.1, nous avons obtenu un facteur de résolution R de 28 pour cent sur la raie de 32 KeV du  $^{137}_{55}\text{Cs}$ .

### 3.3.3 - Iodure de sodium activé au thallium - NaI(Tl).

On utilise un cristal qui provient de la société "Quartz et Silice"; ce monocristal se présente sous la forme d'un cylindre de 25 mm de diamètre et de 5 mm d'épaisseur n'ayant subi aucun polissage de surface.

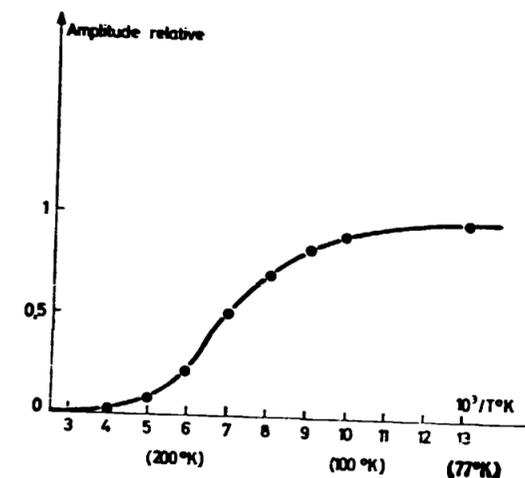


Figure 17

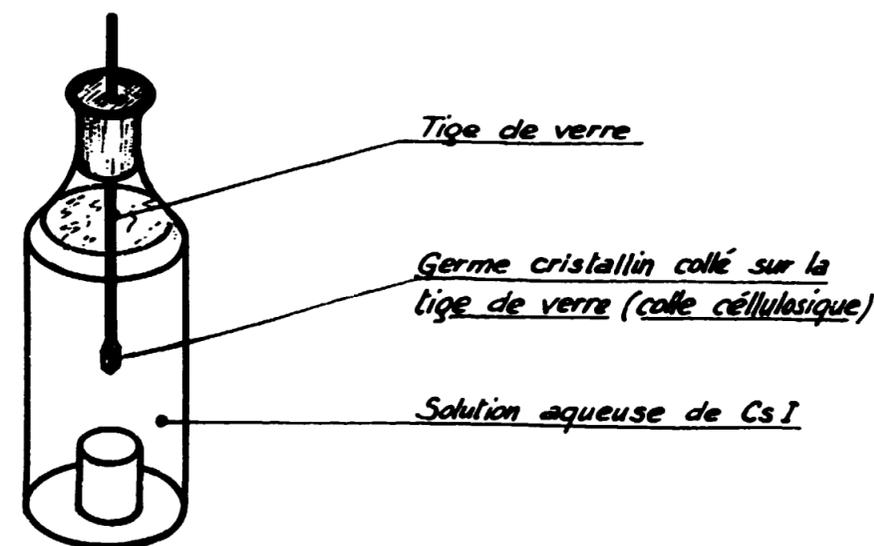


Figure 18

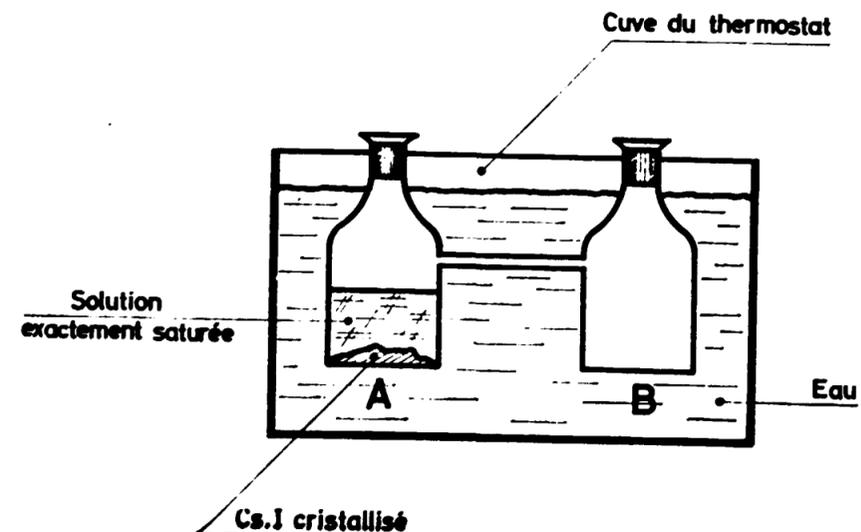


Figure 19

Le NaI(Tl) est un corps très hygroscopique, la moindre trace d'humidité produit à sa surface un voile blanc jaunâtre, c'est la raison pour laquelle la manipulation d'un tel cristal ne peut se faire que dans une "boîte à gants", le degré hygrométrique de cette enceinte étant maintenu à une valeur très basse (4 à 5 pour cent) grâce à la circulation d'un courant d'azote préalablement desséché par passage sur de l'anhydride phosphorique.

Le cristal étant livré brut de fabrication, on peut soit le cliver soit le polir chimiquement.

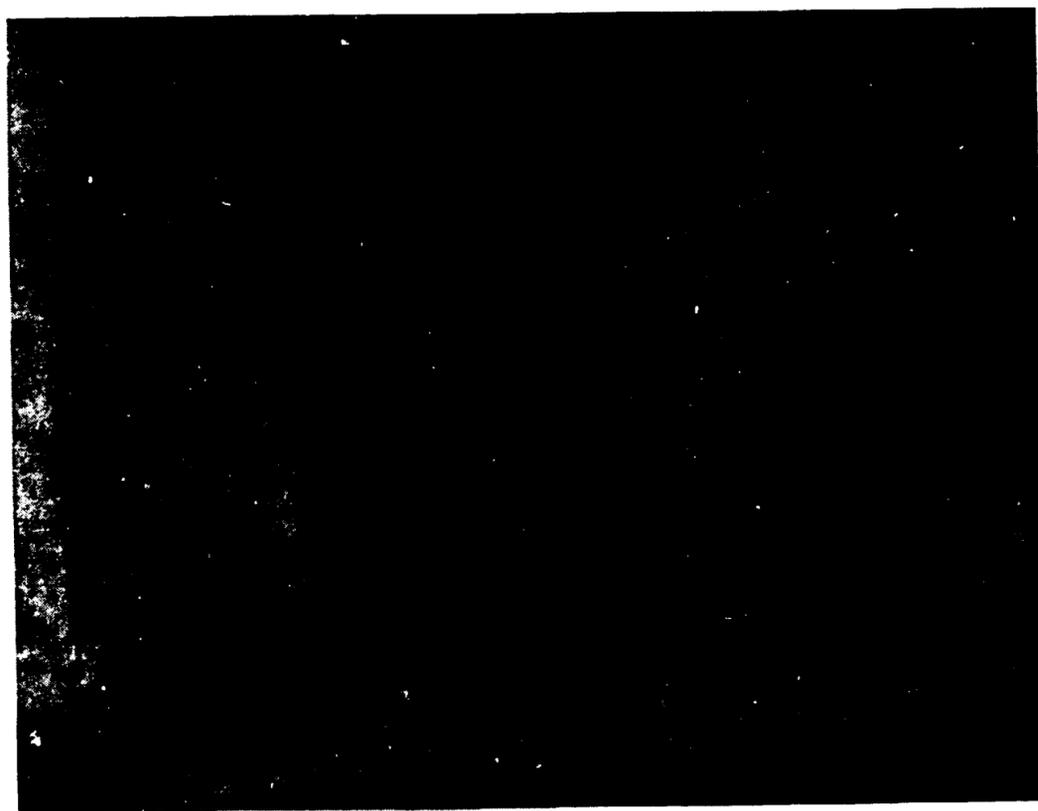
#### Clivage.

Le clivage d'un cristal est une méthode qui permet d'avoir des surfaces très propres ; en se servant d'une lame tranchante très mince, il est possible d'obtenir des cristaux ayant une épaisseur de 1 mm, mais pour des épaisseurs plus faibles un porte-outil devient nécessaire et, de toute façon, c'est une opération difficile qui amène à faire de très gros déchets.

#### Polissage chimique.

Afin de rendre le polissage chimique aussi régulier que possible, on effectue un premier polissage en frottant le cristal sur du papier abrasif (n° 280 → n° 320 → n° 400), puis sur une feuille de caoutchouc mousse à grain fin sur laquelle on a déposé une poudre à polir (Cérox) ; pour faciliter cette dernière opération et pour que soit aussi uniforme que possible l'effort vertical exercé sur le cristal, celui-ci est collé avec de la paraffine sur un disque d'aluminium très épais recouvert d'une feuille de papier mince.

Le polissage chimique est obtenu en plongeant le cristal dans une solution faite d'un mélange de 25 pour cent de chloroforme et de 75 pour cent d'acétone ; lorsque le cristal est devenu parfaitement transparent, on le sort rapidement de cette solution pour le plonger dans du tétrachlorure de carbone, ce dernier corps jouant le rôle d'inhibiteur vis-à-vis de l'acétone, le chloroforme n'étant qu'un modérateur permettant de contrôler la vitesse avec laquelle s'effectue l'attaque chimique du cristal ; pour finir, on essuie le cristal sur un tissu très fin [19].



BOITE A GANTS AVEC CIRCULATION D'AZOTE  
POUR LA MANIPULATION DES CRISTAUX SCINTILLATEURS

#### Montage.

Le montage du cristal scintillateur sur le tube photomultiplicateur est le même que celui qui est utilisé au paragraphe 3.3.2.1. A la différence du CsI(Tl), le NaI(Tl) n'a pas besoin d'être refroidi, les mesures se feront donc à la température ambiante ; capot ouvert, le détecteur (fig. 15) est laissé plusieurs heures dans la "boîte à gants" pour éliminer toutes traces d'humidité.

#### Résultats des mesures.

On utilise toujours la même source de 5  $\mu$ c de  $^{137}\text{Cs}$ . Avec un cristal de 1 mm d'épaisseur, le facteur de résolution R est de 30 pour cent.

La moindre trace d'humidité produit un voile jaunâtre à la surface du cristal ; néanmoins, nous avons constaté que dans la mesure où ce voile était très léger et surtout très uniforme, le facteur de résolution R restait inchangé ; ce dernier phénomène est en accord avec ce résultat très général qui veut que ce soient principalement des inégalités de surface qui risquent de dégrader le facteur de résolution d'un cristal scintillateur.

#### 3.3.4 - Iodure de sodium - NaI.

Ce cristal scintillateur ne présente aucun intérêt dans le cas présent, son rendement de scintillation est beaucoup trop faible quelles que soient les conditions de température auxquelles on puisse le soumettre, on obtient pratiquement pas de pic photoélectrique avec la source de  $^{137}\text{Cs}$  (R est supérieur à 50 pour cent).

#### 3.3.5 - Conclusion.

Si nous comparons le facteur de résolution des différents cristaux scintillateurs précédemment étudiés, exception faite du CsI(Tl) dont le mouvement propre est trop important, c'est manifestement le cristal d'iodure de césium (CsI) obtenu par "voie liquide" qui donne le meilleur résultat dans la mesure où nous avons choisi le facteur de résolution comme critère de qualité intrinsèque donnant la meilleure sensibilité utilisable.

Nature du cristal	Facteur de résolution $\mathcal{R}$
CsI(Tl)	—
CsI "fusion"	31 pour cent
CsI "dissolution"	28 pour cent
NaI(Tl)	30 pour cent
NaI	> 50 pour cent

Cependant, entre le CsI "dissolution" et le NaI(Tl), la différence de qualité est assez faible et compte tenu de l'inconvénient qu'apporte la nécessité de refroidir le cristal de CsI jusqu'à 100 °K, ce cristal n'est pas très avantageux ; en effet, le but de cette étude étant d'avoir un détecteur aussi sensible que possible, la fenêtre qui se trouve devant le cristal scintillateur doit être très mince, ce qui nécessite que le capot soit en deux parties (contrairement au montage de la figure 15), la difficulté étant alors de trouver un collage étanche entre la fenêtre mince et le capot et qui puisse tenir à une température très basse ; en outre, le refroidissement très intense du cristal de CsI et des pièces métalliques qui l'entoure est très gênant pour la recherche d'une éventuelle contamination par blessure.

En conclusion de cette étude préliminaire, le cristal de NaI(Tl) sera seul retenu comme étant d'un emploi plus commode que les autres cristaux examinés tout en ayant des propriétés physiques très satisfaisantes.

#### 3.4 - Etude d'un détecteur utilisant un cristal mince de NaI(Tl).

Nous allons examiner les propriétés physiques de ce détecteur et définir quelles sont les caractéristiques souhaitables pour que la sensibilité utilisable soit la plus grande possible.

3.4.1 - Facteur de résolution-rendement de scintillation.

Au paragraphe 3.3.5, nous avons vu que le facteur de résolution du cristal de NaI(Tl) était de 30 pour cent. Pour pouvoir comparer les différents cristaux entre eux, nous avons dû conserver dans tous les cas le cylindre de plexiglas servant d'isolant thermique pour le cristal de CsI mais totalement inutile par exemple pour le cristal NaI(Tl) travaillant à la température ambiante; si maintenant on colle directement le cristal de NaI(Tl) sur la photocathode du P.M. avec de l'huile silicone, le facteur de résolution passe alors de 30 à 27 pour cent (E = 32 KeV); cette amélioration est due à un meilleur rendement dans la transmission des photons, du scintillateur à la photocathode du P.M.

Calcul du rendement de scintillation (voir paragraphe 3.1).

Facteur de résolution :

$$R = \frac{2,34 \sigma}{N} \quad [20]$$

avec :  $\sigma = \sqrt{N}$

Pour un photomultiplicateur, on montre que le processus de multiplication des électrons par émission secondaire apporte un élargissement additionnel du pic photoélectrique provenant du cristal scintillateur [13,1]

soit  $R_{\text{global}} = R_{\text{cristal scintillateur}} \times \left(\frac{d}{d-1}\right)^{1/2}$  (paragraphe 3.2.1 et 3.2.2)

Pour le tube photomultiplicateur EMI 6 097.B, "d" reste compris entre 3 et 4, d'où  $\left(\frac{d}{d-1}\right)^{1/2} \approx 1,2$

a) E = 32 KeV ( $^{137}_{55}\text{Cs}$ ) R = 27 pour cent.

d'où  $0,27 = \frac{2,34}{\sqrt{N}} \times 1,2$  soit N = 108 photoélectrons

En moyenne, il faut environ 10 photons tombant sur la photocathode du P.M. pour avoir 1 photoélectron. Si on admet que la collection des photoélectrons sur la première dynode se fait avec une efficacité voisine de 100 pour cent,  $n_1 = 108 \times 10 = 1\,080$  photons seront reçus par la photocathode.

La fenêtre du détecteur étant constituée par une feuille mince d'aluminium poli dont le pouvoir réflecteur n'est pas négligeable et le cristal n'étant seulement qu'à 2 mm de la fenêtre, le coefficient de collection optique est de l'ordre de 70 pour cent; soit  $n_2$  le nombre de photons émis par le cristal scintillateur sous un angle solide de  $4\pi$

$$n_2 = \frac{1\,080 \times 100}{70} = 1\,550$$

d'où le rendement de scintillation  $\rho = \frac{n_2 \cdot E_{ph}}{E}$  avec  $E_{ph} \approx 3 \text{ ev.}$  et E = 32 kev.

soit  $\rho = \frac{1\,550 \times 3}{32\,000} = 0,145$   $\rho = 14,5$  pour cent

b) E = 22,16 KeV ( $^{109}_{48}\text{Cd}$ ) R = 28,1 pour cent.

Avec les mêmes hypothèses que celles qui ont été faites ci-dessus  $\rho = 19,5$  pour cent.

c) E = 10,54 KeV ( $^{75}_{34}\text{Se}$ ) R = 40 pour cent,

et  $\rho = 28,5$  pour cent.

En résumé, dans le domaine d'énergie où se manifeste le rayonnement X du  $^{239}_{94}\text{Pu}$  (10 à 22 KeV), le rendement lumineux varie très rapidement, de sorte qu'il n'est plus question d'appliquer la loi en  $\frac{1}{\sqrt{E}}$  pour déterminer le facteur de résolution en partant des données correspondant à une énergie déterminée.

D'après la courbe  $\rho = f(E)$  (fig. 20), on en déduit pour les 3 raies d'émission du plutonium 239 le facteur de résolution correspondant (tableau X).

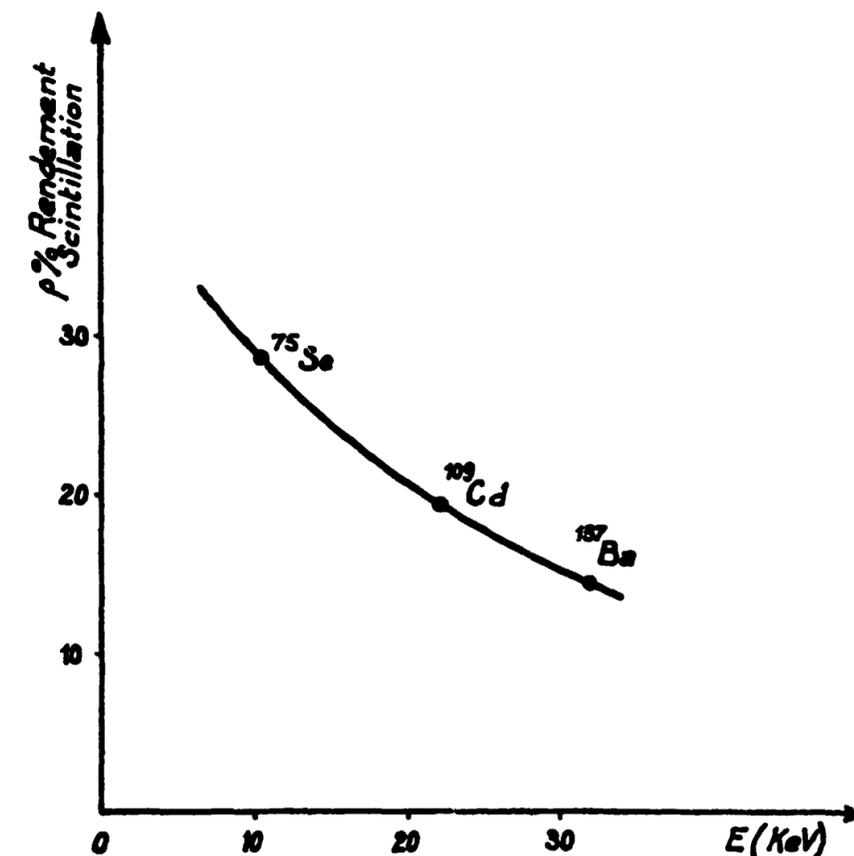


Figure 20

TABLEAU X

$E_{\text{KeV}}$	$\rho$ p. 100	$\mathcal{R}$ p. 100	$\mathcal{R}_1$ p. 100
13,6	25,5	31,2	41,4
17	23	29,5	37
20	20,5	28,7	34,2

$\mathcal{R}_1$  est le facteur de résolution qu'on pourrait calculer en appliquant la loi en  $\frac{1}{\sqrt{E}}$  à partir des données initiales suivantes : R = 27 pour cent pour E = 32 KeV.

3.4.2 - Détermination du rapport  $\frac{N_1(\text{photons X})}{N_2(\alpha)}$  (voir paragr. 2.1, chapitre II).

Le cristal scintillateur utilisé est un disque plat de 19 mm de diamètre et de 1 mm d'épaisseur, il est collé directement sur la photocathode du P.M.; la fenêtre de ce détecteur est faite d'une feuille d'aluminium de 5,22 mg/cm<sup>2</sup> (environ 2/100 mm d'épaisseur).

L'étalonnage en énergie est obtenu en se servant des sources auxiliaires suivantes :

- $^{75}_{34}\text{Se}$  E = 10,54 KeV
  - $^{109}_{48}\text{Cd}$  E = 22,16 KeV
  - $^{137}_{55}\text{Cs}$  E = 32 KeV
- (fig. 21)

---

Sonovision - Imprimerie  
104, rue Castagnary - Paris-XV<sup>e</sup>  
Dépot légal n° 166 - 1967

---

Édité par :  
le Service de Documentation C.E.A.  
Centre d'Études Nucléaires de Saclay  
Boîte Postale n° 2 - 91 - GIF-sur-Yvette  
France

Pour une énergie moyenne de 16 KeV,  $\mu = 32 \text{ cm}^2/\text{g}$   
 densité du NaI (Tl):  $d = 3,67$   
 d'où  $\mu x = 0,1 \times 3,67 \times 32 = 11,7$   
 $e^{-\mu x} < 10^{-5}$  et  $\rho d \approx 1$

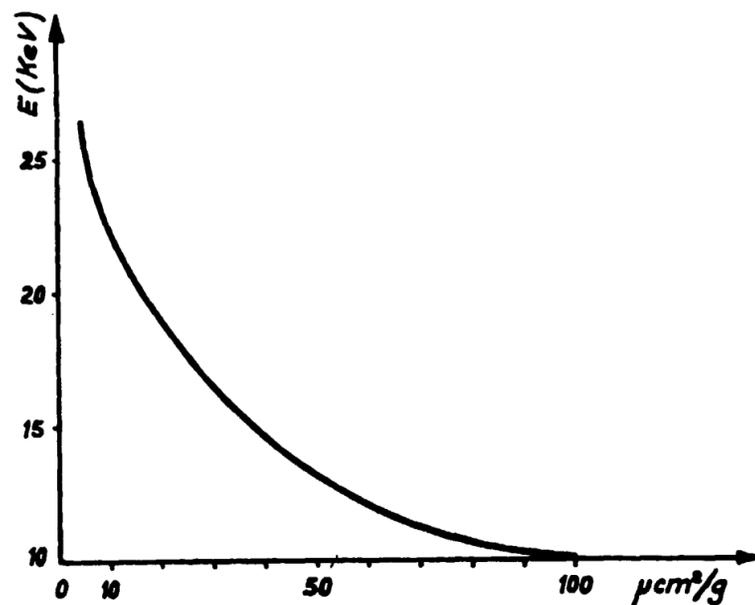


Figure 22

En définitive, compte tenu de la géométrie de l'ensemble source-détecteur, de l'absorption due à la fenêtre d'aluminium, du rendement  $\rho_d$  du cristal scintillateur et de l'erreur introduite sur le nombre total des coups correspondant à la raie de 16 KeV précédemment définie, on obtient :

$$N_1 = \frac{5188}{5} \cdot \frac{1}{0,956} \cdot \frac{1}{0,9} \cdot \frac{4\pi}{0,21} = 65\,700 \text{ photons X/minute}/4\pi$$

$$\text{d'où } \frac{N_1 - (\text{photons X})}{N_2(\alpha)} = \frac{6,57 \cdot 10^4}{16,08 \cdot 10^5} = 4,1 \cdot 10^{-2}$$

soit  $\rho_{X/\alpha} \approx 4,1$  pour cent [24]

### 3.4.3 - Influence de l'épaisseur du cristal sur la sensibilité utilisable.

Les impulsions parasites provenant essentiellement de 2 sources distinctes qui sont d'une part l'ensemble des matériaux qui entourent le cristal et d'autre part le cristal lui-même à cause de sa radioactivité intrinsèque, leur nombre croît proportionnellement au volume du cristal ; le rendement de détection n'augmentant plus au-delà d'une certaine épaisseur du cristal, au paragraphe 3.4.2 nous avons vu qu'un cristal scintillateur d'épaisseur 1 mm absorbe pratiquement la totalité du rayonnement incident, la sensibilité utilisable diminue lorsque cette épaisseur augmente.

Pour étudier l'influence de l'épaisseur du cristal sur la sensibilité utilisable, nous avons utilisé un support en plexiglass dont une coupe est donnée à la figure 23. Le cristal étant disposé dans la cavité A, il suffit de frotter la face B de la plaquette sur un papier abrasif, pour obtenir un cristal dont l'épaisseur soit donnée par la profondeur de la cavité A.

On fait une mesure de mouvement propre successivement à l'extérieur et à l'intérieur d'un château de plomb de 10 cm d'épaisseur ; un blindage supplémentaire constitué par une feuille d'acier inoxydable d'épaisseur 0,8 mm entoure le détecteur.

TABEAU XI

$e_{\text{mm}}$ (épaisseur du cristal)	$\rho_d$ (rendement de détection)	Mouvement propre "extérieur" (10 $\infty$ 22 KeV) $t = 10 \text{ mm}$	Mouvement propre "intérieur" (10 $\infty$ 22 KeV) $t = 10 \text{ mm}$	$\delta$	$\rho$ (efficacité du blindage)
0,25	0,947	10 coups	7 coups	3	1,4
0,5	0,997	15 —	7 —	8	2,1
1	1	22 —	7 —	15	3,1
2	1	39 —	7 —	32	5,6

Lorsque le détecteur est à l'intérieur du château de plomb, on constate que le mouvement propre est indépendant de l'épaisseur, il est de l'ordre de 7 coups/10 minutes dans une bande d'énergie qui s'étend de 10 à 22 KeV.

Faisons la différence entre la valeur du mouvement propre à l'extérieur et à l'intérieur du blindage : le résultat de cette opération est une quantité qui est pratiquement proportionnelle à l'épaisseur du cristal, c'est-à-dire son volume (colonne  $\delta$  du tableau ci-dessus).

On peut tenter d'expliquer ce résultat en faisant apparaître deux causes possibles pour le mouvement propre :

- rayonnement  $\gamma$  ambiant,
- phénomènes parasites ayant pour origine le photomultiplicateur.

Par diffusion Compton dans le cristal, le rayonnement  $\gamma$  ambiant donne un nombre de scintillations d'autant plus grand que le volume du cristal est plus important, cela correspondrait à la partie du mouvement propre qui est proportionnelle à l'épaisseur du cristal.

Le mouvement propre résiduel qu'on peut mesurer à l'intérieur du blindage étant constant en fonction de l'épaisseur du cristal, on peut penser qu'il s'agit en majeure partie du bruit de fond apporté par le tube photomultiplicateur ; cette hypothèse sera confirmée quand nous montrerons qu'on peut diminuer considérablement ce dernier en refroidissant la photocathode du P.M. en-dessous de la température ambiante.

D'après ces résultats, il semblerait que l'épaisseur du cristal n'ait pas une importance fondamentale, dans la mesure où on est amené à utiliser un blindage ; cependant, quand on cherche à diminuer encore le mouvement propre résiduel, en particulier en refroidissant la photocathode, on s'aperçoit qu'il est tout de même préférable de travailler avec un cristal de moins de 0,25 mm d'épaisseur, cela sans doute, parce qu'ayant diminué considérablement le "courant d'obscurité" du photomultiplicateur, le mouvement propre

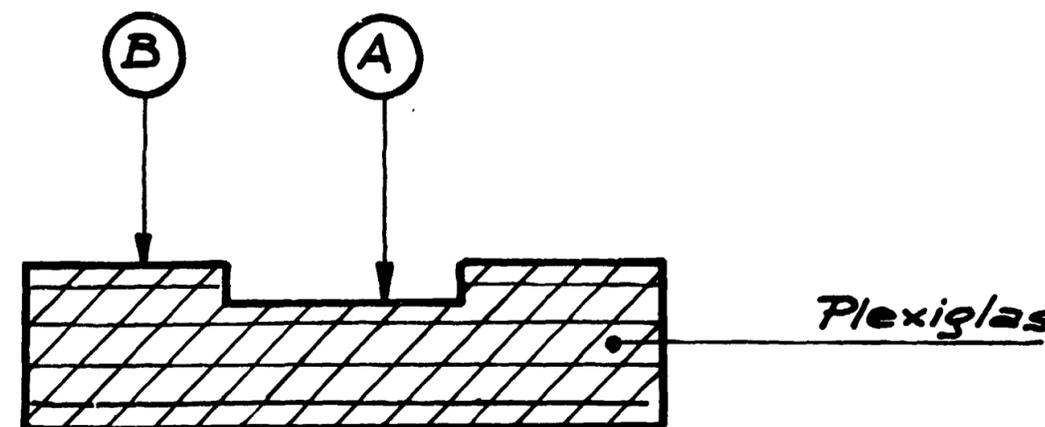


Figure 23

résiduel provient alors presque uniquement des éléments radioactifs qui se trouvent au sein même du cristal : une diminution de volume du cristal entraîne une diminution des éléments radioactifs qui sont toujours présents (<sup>210</sup>K en particulier) ; bien que donnant des résultats très intéressants quant à la faiblesse de son mouvement propre résiduel, un cristal de 0,25 mm d'épaisseur ne sera pas utilisé à cause de sa trop grande fragilité.

3.4.4 - Influence du blindage.

Les résultats de mesures du tableau XI nous montrent qu'un blindage constitué par des briques de plomb d'épaisseur 10 cm doublé à l'intérieur d'une feuille d'acier inoxydable de 8/10 mm d'épaisseur permet de réduire le mouvement propre par un facteur 3 pour un cristal de 1 mm d'épaisseur.

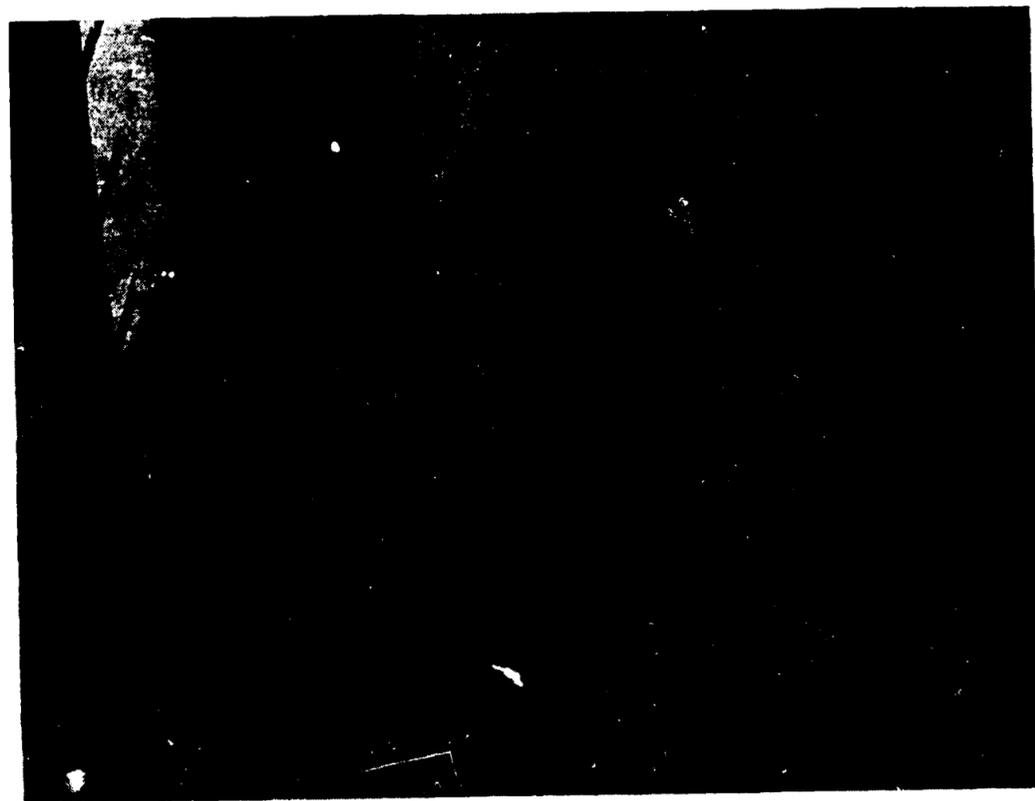
En employant une épaisseur de plomb moitiée (5 cm au lieu de 10 cm) mais en gardant toujours la chemise d'acier inoxydable, on constate que le mouvement propre augmente un peu : 10 coups/10 minutes au lieu de 7 coups/10 minutes.

La chemise d'acier inoxydable a pour but d'arrêter le rayonnement  $\gamma$  dû à la descendance radioactive du Radium D contenu dans le plomb, ainsi que les rayonnements  $\beta$  et  $\gamma$  dont la source est une peinture anti-rouille jaune (chrome) qui recouvre pour les protéger les traverses d'acier supportants les briques de plomb du blindage ; dans ce cas particulier, le mouvement propre passe de 7 à 25 coups quand on enlève les plaques d'acier inoxydable.

Lorsque l'épaisseur du cristal scintillateur diminue ( $e < 1$  mm), l'efficacité du blindage diminue aussi très notablement ( $\rho = 1,4$  pour  $e = 0,25$  mm), mais ceci n'est qu'une apparence car il est encore possible de faire baisser considérablement le mouvement propre résiduel en refroidissant la photocathode du photomultiplicateur (par. 3.4.5) :  $\rho = 5$  pour  $e = 0,25$  mm.

3.4.5 - Réduction du "bruit de fond" propre au photomultiplicateur.

Au paragraphe 3.2.1, nous avons montré que le "courant d'obscurité" du photomultiplicateur était créé en majeure partie par l'agitation thermique des électrons de la photocathode, aussi, avons-nous cherché à réduire ce bruit de fond en refroidissant la photocathode du photomultiplicateur.



BLINDAGE DE PLOMB DOUBLE INTERIEUREMENT  
D'UNE FEUILLE D'ACIER INOXYDABLE (Epaisseur totale 10 cm)

Pour ce faire, on entoure le tube photomultiplicateur, au niveau de la cathode, par une épaisse tresse de cuivre rouge dont le rôle est de "conduire le froid" depuis un réservoir métallique contenant un mélange réfrigérant (fig. 24) ; pour connaître avec une assez bonne approximation la température prise par la photocathode on mesure la résistance électrique d'une thermistance qui est enfermée dans un boîtier en argent soudé sur la tresse, cette thermistance étant préalablement étalonnée.

Mélanges réfrigérants utilisés dans le réservoir métallique :

- alcool éthylique pur et carboglace ( $t = -86$  °C)  
température prise par la photocathode :  $\theta = -10$  °C ;
- azote liquide ( $t = -186$  °C)  
température prise par la photocathode :  $\theta = -40$  °C.

TABLEAU XII

Température de la photocathode	Mouvement propre "extérieur" au blindage (10 à 22 KeV - t = 10 minutes)		Mouvement propre "intérieur" au blindage (10 à 22 KeV - t = 10 minutes)		efficacité $\rho$ du blindage	
	e = 1 mm	e = 0,25 mm	e = 1 mm	e = 0,25 mm	e = 1 mm	e = 0,25 mm
+ 23 °C	22 coups	10 coups	7 coups	7 coups	3	1,4
- 10 °C	19 coups	5 coups	3 coups	3 coups	6	1,7
- 40 °C	16 coups	3 coups	0,6 coup	0,6 coup	27	5

Remarque.

En refroidissant la photocathode du photomultiplicateur, la raie de 22 KeV d'une source de <sup>109</sup>/<sub>48</sub>Cd se trouve déplacée de 3 canaux vers les énergies croissantes, ce qui produit une variation concomitante du facteur de résolution :

$$R_{(\theta = -40^\circ \text{C})} = 27 \text{ p. } 100 \text{ au lieu de } R_{(\theta = 23^\circ \text{C})} = 28,1 \text{ p. } 100$$

Puisque  $R_{(-40^\circ \text{C})}$  est inférieur à  $R_{(+23^\circ \text{C})}$ , cela signifie que le rendement de détection du système a augmenté, ce résultat étant dû très certainement à un déplacement du maximum de la courbe de sensibilité spectrale de la photocathode qui est alors intensément refroidie, vers le maximum de la courbe d'émission spectrale de la lumière émise par le cristal scintillateur.

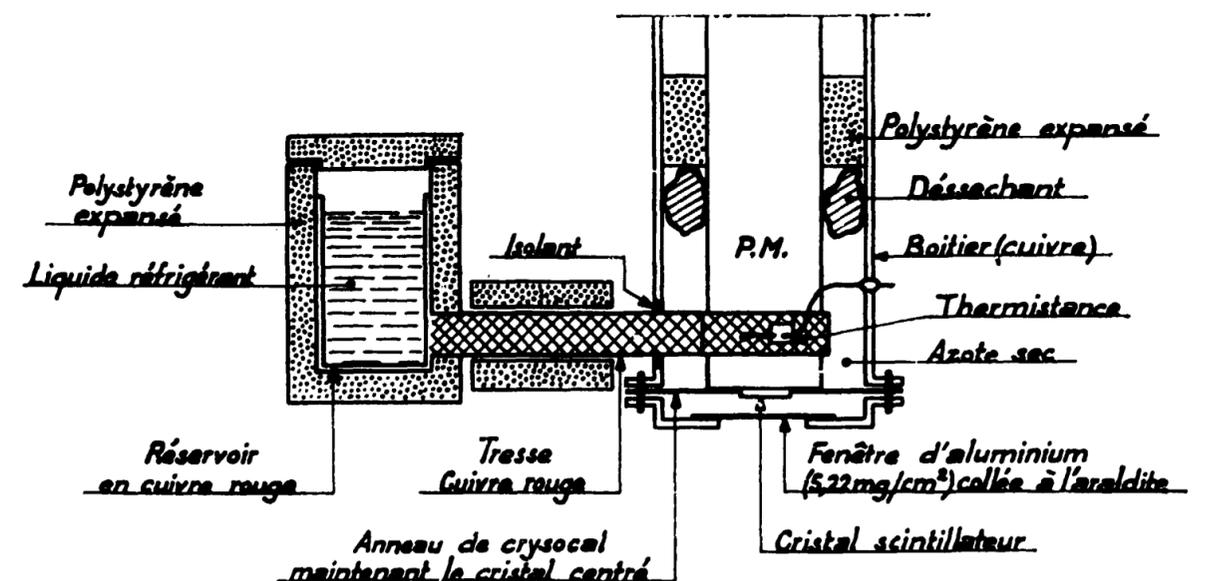
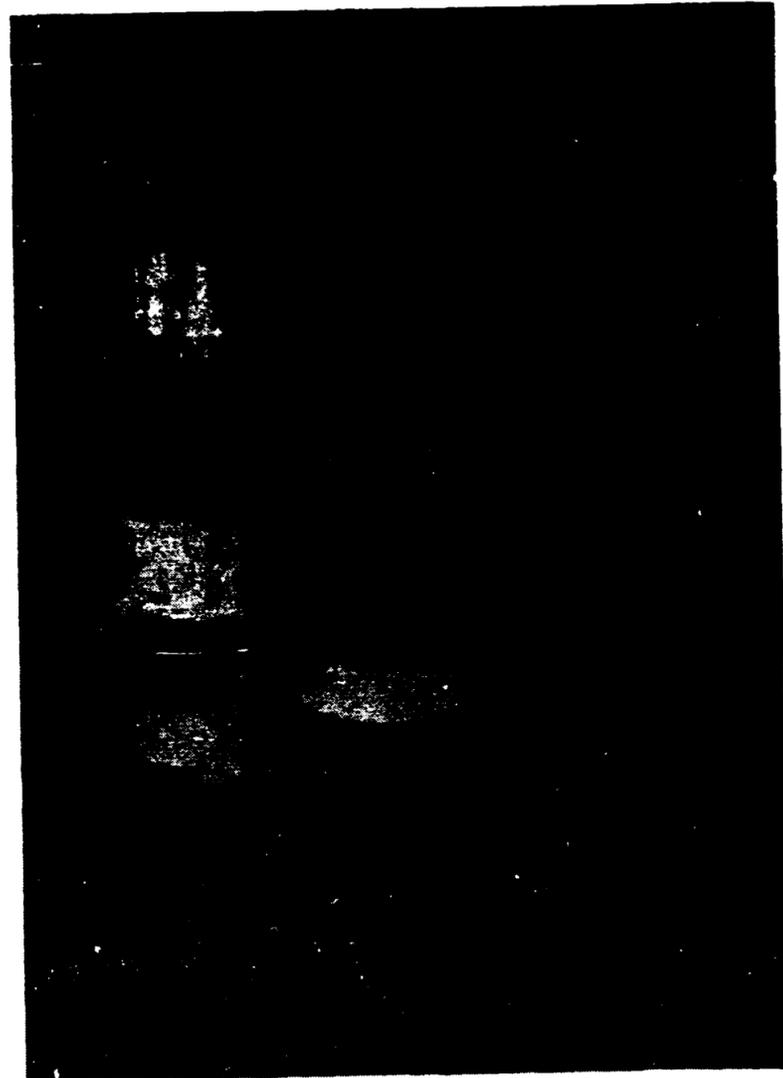


Figure 24



DETECTEUR A SCINTILLATIONS EQUIPE D'UN CRISTAL MINCE DE NaI(Tl)  
(voir aussi la figure 24)

## CHAPITRE IV

### APPLICATIONS

#### 4.1 - Mesures effectuées sur un prélèvement de 20 cm<sup>3</sup> de sang d'une personne ayant été contaminée par du plutonium 239 (blessures, inhalation de poussières).

On utilise un cristal scintillateur de 3 cm de diamètre et de 0,5 mm d'épaisseur directement collé sur la photocathode du P.M. ; la photocathode est refroidie à — 40 °C (paragraphe 3.4.5).

Disposant d'un volume donné de sang (20 cm<sup>3</sup>), il s'agit maintenant de déterminer les dimensions géométriques de cette source pour que le taux de comptage soit maximum, la distance de la source au cristal scintillateur étant de 5 mm.

##### 4.1.1 - Optimisation géométrique de la source (volume constant).

Le spectrogramme d'une source de plutonium 239 obtenu avec un cristal scintillateur de NaI(Tl) fait apparaître une raie unique de 16 KeV (par. 3.4.2), le coefficient d'absorption du sang est voisin de celui de l'eau (composition du sang : 78 pour cent d'eau et 22 pour cent pour la fibrine et l'hémoglobine) d'où :

$$\mu_{(\text{sang})} \simeq 1,2 \text{ cm}^2/\text{g} \quad (E_{\text{moyen}} = 16 \text{ KeV})$$

Pour obtenir l'angle solide global  $\Omega$  corrigé de l'absorption, on fractionne la source en couronnes dans chacune desquelles on suppose que l'absorption reste constante, d'où :

$$\sum S \times 2 \pi r \times \rho \times \omega \times e^{-\mu x} = P \cdot \Omega \quad (\text{voir figure 25})$$

$\omega$  est l'angle solide sous lequel on voit une ouverture circulaire à partir d'un point de l'espace (table de H. Tallqvist [25]). Dans ce calcul on tient également compte de l'effet de diffusion des parois (couches de liquide près de la paroi inférieure).

TABLEAU XIII

$d_{\text{em}}$	$e_{\text{em}}$	$\Omega_{\text{absorption}}$
3	2,8	0,77
4	1,6	1,02
5	1	0,95

La source choisie sera donc constituée par un cylindre de 4 cm de diamètre et de 1,6 cm de hauteur.

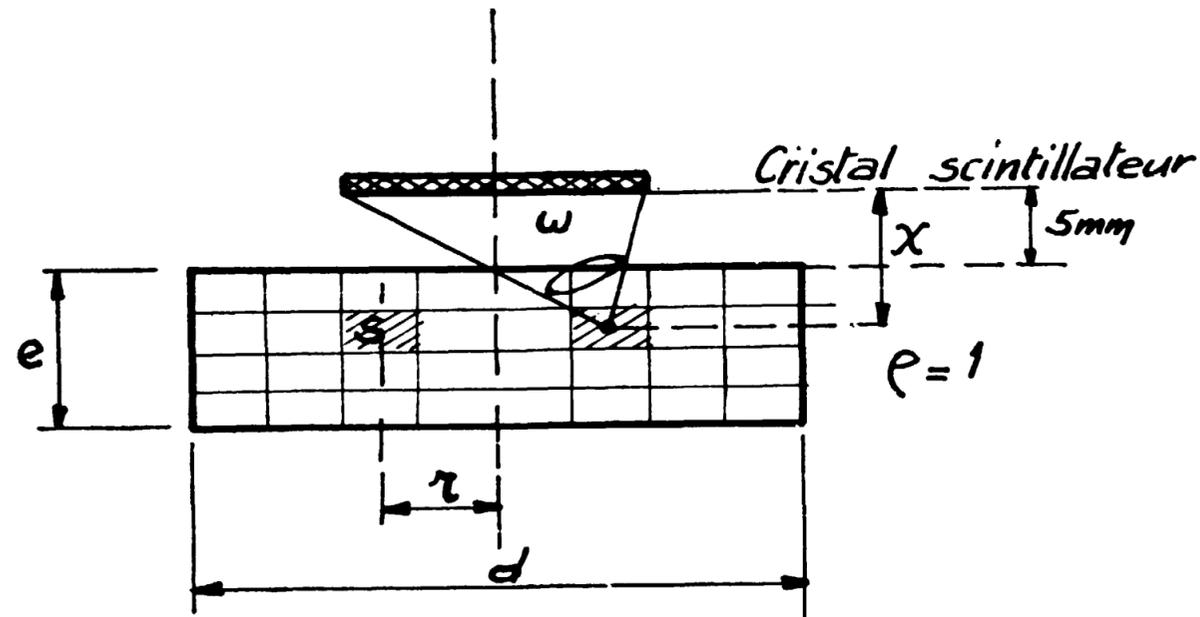


Figure 25

4.1.2 - Sensibilité de cette méthode de mesure.

Supposons que le temps de mesure soit de 30 minutes, le mouvement propre moyen  $N_b$  est donc de 1,8 coup (voir tableau XII).

Si  $N_t$  représente le nombre de coups total en présence de la source, nous avons donc  $N_s = N_t - N_b$ ,

$$\text{d'où } \sigma_{N_s} = \sqrt{\sigma_{N_t}^2 + \sigma_{N_b}^2} \quad [26]$$

Comme il s'agit ici de comptages faibles, on peut montrer que  $\sigma$  est égal à  $\sqrt{N} + 1$  au lieu de  $\sqrt{N}$  valeur qui est normalement utilisée pour les comptages importants [3]

$$\text{d'où : } \sigma_{N_s} = \sqrt{N_t + N_b + 2}$$

Prenons  $N_s = 2,576 \sigma_{N_s}$  comme nombre de coups minimum détectable, nous aurons ainsi une probabilité de 99 pour cent de compter ce nombre de coups. soit :

$$N_s = N_t - N_b = 2,576 \sqrt{N_t + N_b + 2}$$

d'où  $N_t = 12$  coups et  $N_s \approx 10$  coups.

Si "n" représente l'activité de la source exprimée en désintégration par seconde (particules  $\alpha$ ) nous pouvons écrire :  $n \times \delta \times \frac{\Omega}{4\pi} \times A = \frac{N_s}{30 \times 60}$  avec :

—  $A = 0,956$  (absorption due à la fenêtre d'aluminium).

—  $\delta = 4$  pour cent (rendement photons X/particules  $\alpha$ ).

—  $\Omega = 1,02$  st ("géométrie" de la source —  $d = 4$  cm et  $e = 1,6$  cm).

$$\text{d'où : } n = \frac{10}{30 \times 60} \times \frac{4\pi}{1,02} \times \frac{1}{0,956} \times \frac{100}{4} \approx 1,8 \text{ c/s}$$

or  $1 \mu\text{c} = 3700$  désintégrations par seconde

$$\text{d'où } I = \frac{1,8}{37000} = 4,9 \cdot 10^{-5} \mu\text{c}$$

On doit donc pouvoir détecter en 30 minutes une source de  $4,9 \cdot 10^{-5} \mu\text{c}$  de plutonium 239 répartie dans  $20 \text{ cm}^3$  de sang.

4.1.3 - Résultat expérimental.

Nous avons fait une mesure sur  $20 \text{ cm}^3$  de sang dans lequel nous avons ajouté  $0,5 \text{ cm}^3$  d'une solution acide de plutonium ayant une activité de  $1,2 \cdot 10^{-4} \mu\text{c}$  (mesure faite à la chambre d'ionisation à impulsions).

En employant la disposition géométrique préconisée ci-dessus ( $d = 4$  cm et  $e = 1,6$  cm) nous avons obtenu 29 coups pour une mesure de 30 minutes, soit un comptage net de 27 coups, le mouvement propre étant de 2 coups pour 30 minutes (cette dernière mesure ayant été faite en présence de  $20 \text{ cm}^3$  de sang exempt de plutonium). Théoriquement, avec une source dont l'activité est de  $1,2 \cdot 10^{-4} \mu\text{c}$ , nous aurions dû obtenir un comptage net de 25 coups en 30 minutes.

4.1.4 - Remarques.

4.1.4.1 - MOUVEMENT PROPRE DÙ AUX  $20 \text{ cm}^3$  DE SANG.

Il y a environ 0,2 pour cent de potassium naturel dans le sang humain, 1 gramme de potassium naturel donnant 30 bêta par seconde ( $^{40}\text{K}$ ) d'énergie maximum 1,33 MeV.

Le parcours maximum de ces particules  $\beta$  est environ de " $550 \text{ mg/cm}^2$ ", soit un coefficient d'absorption linéaire  $\mu$  de  $9 \text{ cm}^2/\text{g}$  pour le liquide constituant la source.

Pour simplifier, on admet que le volume utile de la source est constitué par un cylindre de sang ayant pour base le cristal scintillateur (diamètre 3 cm), on néglige la rétrodiffusion dans la source et enfin on suppose que le cristal scintillateur est contre la source,

$$\text{soit } I = \frac{1}{2} A \sigma \rho \int_0^t \exp(-\mu x) \cdot dx \quad (\text{activité à la surface de la source})$$

Compte tenu du parcours maximum des particules bêta, 5,5 mm environ, cela revient à dire que la source est infiniment épaisse, d'où l'approximation :

$$I = \frac{1}{2} \frac{A \sigma \rho}{\mu} \quad \text{avec} \quad \left\{ \begin{array}{l} A = \pi \times 1,5^2 \text{ cm}^2 \\ \sigma = 0,2 \cdot 10^{-2} \times 30 = 6 \cdot 10^{-2} \beta/\text{s/g} \\ \rho = 1 \\ \mu = 9 \text{ cm}^2/\text{g} \end{array} \right.$$

soit  $I = 0,02$  bêta/seconde (reçu par le détecteur)

Comme le détecteur est un cristal scintillateur de NaI(Tl) et que seule nous intéresse une bande d'énergie de 10 KeV environ (10 à 22 KeV) on ne compte finalement qu'environ 1 pour cent de toutes les particules bêta qui sont reçues par le détecteur (le cristal scintillateur de NaI(Tl) donne de la source de  $^{40}\text{K}$  un spectre très étalé), d'où :

$$I' = 0,02 \times 1 \cdot 10^{-2} \times 30 \times 60 = 0,4 \text{ coup/30 minutes}$$

Si on compare ce dernier résultat (0,4 coup/30 minutes) avec le mouvement propre qui est apporté par le système de détection (1,8 coup/30 minutes - tableau XII), le résultat expérimental du paragraphe 4.1.3 concernant le mouvement propre mesuré (2 coups/30 minutes) apparaît donc comme étant tout à fait cohérent.

4.1.4.2 - Si nous intercalons entre la source de plutonium et le cristal scintillateur un écran absorbant léger, du plexiglas par exemple, on constate une diminution du taux de comptage et une déformation du spectre. C'est ainsi que pour un écran de 2 cm d'épaisseur, le taux de comptage se trouve divisé par un facteur 5,5 ; on constate corrélativement un déplacement global de la courbe  $N = f(E)$  dont le maximum est maintenant à 17 KeV au lieu de 16 KeV, le facteur de résolution apparent passant de 49 à 37 pour cent. Le déplacement du maximum de la courbe  $N = f(E)$  peut s'expliquer par le fait que l'écran de plexiglas absorbe moins les photons les plus énergiques ( $\mu_{13,6 \text{ KeV}} > \mu_{17 \text{ KeV}}$ ), la composition des deux courbes  $N_1$  ( $E_1 = 13,6 \text{ KeV}$ ) et  $N_2$  ( $E_2 = 17 \text{ KeV}$ ) correspondant aux 2 raies principales donne alors une courbe résultante dont le maximum tombe à 17 KeV au lieu de 16 KeV, la courbe  $N_2$  devenant prédominante.

Le tableau ci-dessous donne d'une part le coefficient d'absorption totale d'une plaque de plexiglas ( $\text{Cs O}_2 \text{ H}_2\text{O}$ ) de 2 cm d'épaisseur pour les différentes raies  $X_\gamma$  du plutonium 239, d'autre part, compte tenu des intensités relatives des différentes raies, la nouvelle répartition spectrale (dernière colonne).

TABLEAU XIV

E (KeV)	$e^{-\mu x}$ (plexiglas)	Intensité relative $I_r$ des différentes raies	$I_r e^{-\mu x}$
13,6	0,094	1	0,094
17	0,135	1,1	0,149
20	0,346	0,26	0,090

En poursuivant le calcul, on s'aperçoit que l'intensité globale devrait être divisée par 7 si aucun gamma Compton produit dans le plexiglas n'atteignait le détecteur. La relativement bonne transparence de ce matériau fait espérer une détection possible dans le cas de poussières retenues dans les poumons ; toutefois, l'eau est moins transparente que le plexiglas en égard au facteur d'absorption de l'oxygène plus grand que celui du carbone.

4.2 - Mesures effectuées sur des rats contaminés.

La diffusion et l'absorption des photons X par la peau de l'animal et par un certain volume de chair entourant la radiosource permettent à ces mesures de se rapprocher de celles qu'on pourrait effectuer dans des cas réels de contaminations par blessures ou par piqûres ; l'appareillage utilisé est le même que celui qui est décrit au paragraphe 4.1.

— PREMIERE EXPERIENCE.

On injecte à un rat vivant, en haut de la patte arrière, une quantité de plutonium correspondant à une activité de  $9 \cdot 10^{-5} \mu\text{C}$  (200 c/mn en  $\alpha$ ), l'injection étant faite à une profondeur de 2 mm environ ; l'animal n'est tué que quelques minutes après l'injection pour permettre à la circulation sanguine d'effectuer une certaine diffusion de la solution acide de plutonium.

La partie contaminée du rat est mise contre le détecteur, le cristal scintillateur étant protégé par l'interposition d'une feuille mince de matière plastique.

Résultat des mesures :

- rat témoin non contaminé :  $N_1 = 3$  coups/30 minutes ;
- rat contaminé :  $N_2 = 21$  coups/30 minutes.

Soit un comptage net de 18 coups en 30 minutes ( $N = N_2 - N_1$ ).

Si nous calculons  $\sigma_N = \sqrt{N_2 + N_1} = 4,9$ , nous constatons que  $N \simeq 3,7 \sigma_N$ , ce qui signifie que la contamination est confirmée avec une probabilité supérieure à 99 pour cent.

— DEUXIEME EXPERIENCE.

Le rat est tué avant d'être contaminé ; l'injection est faite en 4 points sur une surface rasée de  $1 \text{ cm}^2$  et à une profondeur de 2 mm environ.

La source est identique à celle qui est utilisée dans la première expérience, soit  $9 \cdot 10^{-5} \mu\text{C}$  de plutonium 239.

Résultat de mesures :

- rat témoin :  $N'_1 = 3$  c/30 mn ;
- rat contaminé :  $N'_2 = 45$  c/30 mn.

Comptage net :  $N' = N'_2 - N'_1 = 42$  c/30 mn.

La différence entre N et N' vient de ce que, dans cette deuxième expérience, la diffusion de la source n'a pratiquement pas eu lieu, la circulation sanguine étant arrêtée, la source locale étant vue par le détecteur avec une meilleure "géométrie" que dans la première expérience.

4.3 - Détection du plutonium en présence de produits de fission.

Il peut arriver que le plutonium soit mélangé avec des produits de fission (usine dans laquelle on extrait le plutonium, par exemple) et si on essaie alors d'analyser un tel mélange avec un détecteur équipé d'un cristal scintillateur, on constate une augmentation considérable du taux de comptage par rapport au mouvement propre, le problème est donc de savoir si cette augmentation correspond effectivement à la détection du rayonnement X du plutonium. Pour essayer de répondre à cette dernière question, nous avons interposé un écran d'aluminium de 4 mm d'épaisseur entre ce mélange radioactif et le détecteur.

Dans le tableau ci-après figurent les résultats relatifs aux deux composants du mélange ; K est le nombre qui représente le rapport du taux de comptage sans écran et avec écran (bande d'énergie : 10-22 KeV).

TABLEAU XV

	avec écran	sans écran	K
$^{239}_{94}\text{Pu}$ (pur)	21 c/5 mn	5 188 c/5 mn	250
Produits de fission	1 718 c/5 mn	6 621 c/5 mn	4

Si les produits de fission sont peu abondants par rapport au  $^{239}_{94}\text{Pu}$  présent dans le mélange, il sera donc possible de dire si oui ou non l'augmentation du mouvement propre est due au  $^{239}_{94}\text{Pu}$ , ceci en raison de la grande différence d'atténuation apportée par l'écran d'aluminium pour le  $^{239}_{94}\text{Pu}$  et les produits de fission.

CONCLUSION

La détection du  $^{239}_{94}\text{Pu}$  par son rayonnement X peut entrer en concurrence avec la méthode classique de comptage  $\alpha$  dans la mesure où la contamination se présente sous une forme diffuse et plus précisément lorsque la source se trouve séparée du détecteur par un milieu absorbant.

En expérimentant sur des rats contaminés nous avons montré qu'on pouvait détecter en toute sûreté une activité de  $9 \cdot 10^{-5} \mu\text{C}$  de  $^{239}_{94}\text{Pu}$  sous 2 mm de peau, ce qui représente 2 pour mille de la dose permise pour tout le corps qui est de  $0,04 \mu\text{C}$  de  $^{239}_{94}\text{Pu}$  pour un poids moyen de 70 kg.

Si nous examinons la courbe de la figure 26 qui donne le facteur de transmission de l'eau en fonction de l'épaisseur traversée et ceci pour une énergie moyenne de 16 KeV (l'eau est un matériau très voisin de la

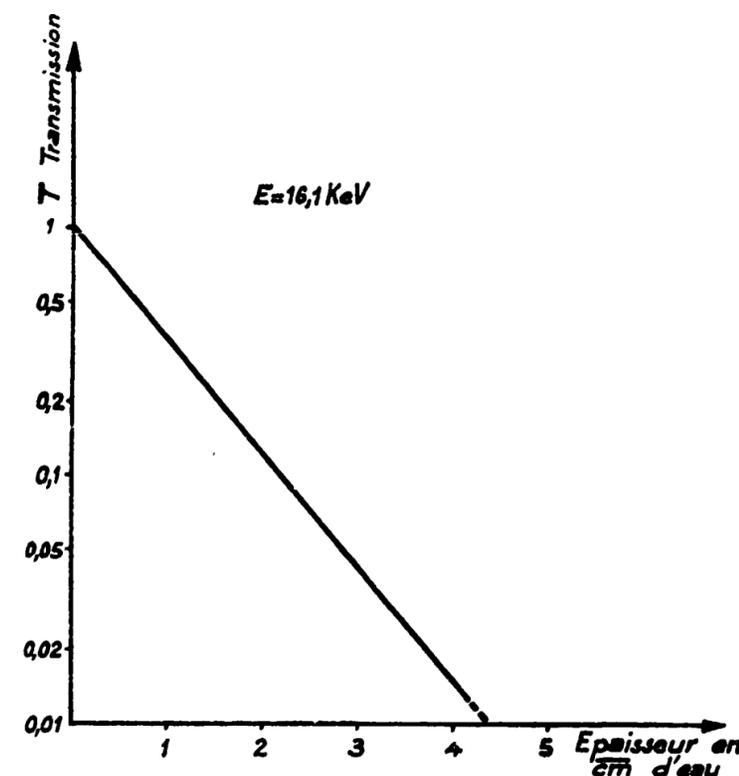


Figure 26

chair en ce qui concerne l'absorption du rayonnement X), nous voyons qu'avec une épaisseur de 2,3 cm d'eau, il reste encore 10 pour cent de rayonnement incident [2]; ce dernier résultat montre donc qu'il est possible de faire une mesure valable dans le cas d'une blessure profonde, mesure qui serait pratiquement impossible avec un détecteur  $\alpha$ , et de permettre le cas échéant une rapide intervention chirurgicale. Certaines sondes utilisant un détecteur  $\alpha$  de très petites dimensions, peuvent dans des cas de localisation très précise permettre une mesure sur une contamination profonde, l'appareillage reste cependant très fragile et à quelques 40  $\mu$  près, cette sonde peut ne pas voir une contamination importante en raison d'un faible parcours des particules  $\alpha$  dans la chair.

Si maintenant, nous comparons les résultats obtenus avec une source diffuse telle que le comptage des particules  $\alpha$  donne néanmoins un résultat valable, là encore, la méthode utilisant la détection du rayonnement X a une sensibilité comparable et même un peu supérieure aux mesures classiques :  $4,9 \cdot 10^{-5}$   $\mu$ c pour la "détection X" au lieu de  $11 \cdot 10^{-5}$   $\mu$ c pour la "détection  $\alpha$ ".

En résumé, la détection du rayonnement X du  $^{239}_{94}\text{Pu}$  par la scintillation dans un cristal mince est une méthode bien appropriée dans le cas d'une contamination profonde et en particulier pour une blessure intéressant les tissus superficiels.

Ce mode de détection nous fait envisager l'emploi d'une mosaïque de cristaux qui permettrait la détection au niveau des voies respiratoires du  $^{239}_{94}\text{Pu}$  inhalé par l'intermédiaire des poussières.

Manuscrit reçu le 12 septembre 1966.

## Bibliographie

- [1] W.C. ROESCH and J.W. BAUM.  
Detection of plutonium in wounds.  
A./Conf./15/P/756 U.S.A. - 1958.  
Second United Nations International Conf. on the Peaceful uses of Atomic Energie.
- [2] W.H. LANGHAM.  
Health Physics, volume 2, n° 2 (1959).  
Pergamon Press, New York-Oxford.
- [3] J.W. KENNEDY and FRIENDLANDER.  
Introduction to Radiochemistry, p. 151 et 212.  
John Wiley, New York (1964).
- [4] P.H. HENRY.  
Détermination du plutonium urinaire.  
Note C.E.A. n° 300 - Centre de Marcoule.
- [5] M<sup>me</sup> ROULE et M. MOULET.  
Principales publications relatives à la Radiotoxicologie du  $^{239}_{94}\text{Pu}$  :  
1) Page 33.  
2) Page 9-32.  
Série Bibliographies - C.E.A. n° 6 (1959).
- [6] M.S. FREEDMAN, P. WAGNER and D.W. ENGEL KMEIR.  
The  $\beta$  Spectra of  $^{239}_{94}\text{Pu}$ ,  $^{240}_{94}\text{Pu}$ ,  $^{241}_{94}\text{Pu}$ .  
Physical Review, vol. 88, n° 5, p. 1155 (déc. 1952).
- [7] J. LABEYRIE.  
Génie Atomique - Electronique et pilotage de réacteurs, chap. VII, page 4.  
Presses Universitaires de France (1960).
- [8] Les divers renseignements sur le sélecteur d'amplitude S.A.I. 32 d'Intertechnique ont été tirés de la notice accompagnant l'appareil.
- [9] C.E. CROUTHAMEL.  
Applied gamma ray spectrometry.  
Pergamon Press (1960).
- [10] S. FINE and C.F. HENDEE.  
Nucleonics March (1955), p. 213.  
Mac Graw Hill Publ.
- [11] D. WEST and J.K. DAWSON.  
Proc. Phy. Soc., London 64 A, 586 (1951).
- [12] H.L. HAGEDOORN and A.H. WAPSTRA.  
Measurements of the fluorescent yield of the K shell.  
Nuclear Physics, vol. 15, p. 146-151.  
North Holland Publishing Company (1960).
- [13] 1) G.A. MORTON and J.A. MITCHELL.  
R.C.A. Review, 9, 532 (1948).  
2) G.T. WRIGHT.  
Journal of Scientific. Instr., 31, 379 (1954).  
3) A. LINDBY.  
Archiv. for math. or. Naturv. B. L 1-91 (1952).  
4) WRIGHT G.T.  
Proc. Phys. Soc. B., LXIX, 358 (1956).
- [14] J. BONANOMI et J. ROSSELL.  
Scintillations de luminescence dans les iodures alcalins.  
Helvetica Physica Acta, 25, 7, 725-752 (1952).
- [15] H. KNOEFFEL, E. LOEPFE and P. STOLL.  
Helv. Phys. Acta, 29, 241 (1958).
- [16] B. HAHN et J. ROSSELL.  
Scintillations dans CsI et Spectrométrie  $\gamma$ .  
Helv. Phys. Acta, 26, 17 X (1953).
- [17] R. HILSCH.  
Z. Physik, 44-421, 860 (1927).
- [18] H.E. BUCKLEY.  
Crystal growth.  
John Wiley and Sons editor (1951).
- [19] P.R. BELL.  
The scintillation method in  $\beta$  ray and  $\gamma$  ray spectroscopy.  
Interscience publishers, Inc., New York, p. 133 (1955).
- [20] G. VALLADAS.  
Fluctuations dans les mesures en physique nucléaire.  
Cours de Génie Atomique, p. 18.  
Presses Universitaires de France (1960).
- [21] D. ROBLEY EVANS.  
The Atomic Nucleus, p. 747.  
Mc Graw Hill - Book Company (1955).

- [22] D. TAYLOR.  
Second Int. Conf. Peaceful. Genève, 15/P/60.  
23-404 (1958).
- [23] KAI SIEGRIAN.  
 $\beta$  and  $\gamma$  ray spectroscopy, p. 873.  
North Holland Publ. C\* (1955).
- [24] 1) D. WEST, J. DAWSON and C. MANDLEBERG.  
Phil. Mag. Series 7, vol. XLIII, p. 875 (1952).  
2) H. ISRAEL.  
Phys. Review, 88-682 (1952).
- [25] H. TALLGVIST.  
Soc. Sci. fennica Comment. phy. math. Finlande.  
5, 24, 1, 36 (1931).
- [26] D. ROBLEY EVANS.  
The Atomic Nucleus, p. 746-771.  
Mc Graw Hill Book Public. (1955).
- [27] J. SHARPE and D. TAYLOR.  
Mesure et détection des rayonnements nucléaires,  
p. 138.  
Dunod. \*

Manuscrit reçu le 12 Septembre 1966

---

Sonovision - Imprimerie  
104, rue Castagnary - Paris-XV<sup>e</sup>  
Dépot légal n° 166 - 1967

---

Édité par :  
le Service de Documentation C.E.A.  
Centre d'Études Nucléaires de Saclay  
Boîte Postale n° 2 - 91 - GIF-sur-Yvette  
France