

Etude des problèmes de caractérisation de déchets activés dans l'environnement d'un cyclotron.

Ing. B.Bourgeois
Dr C.Pirart
Lic. M. Jeunechamps
GRAMME – Liège

Aujourd'hui, et ce dès le début de son exploitation, toute installation de type nucléaire doit établir un plan de démantèlement. Ce plan sera régulièrement mis à jour, en tenant compte de l'évolution des techniques de démantèlement.

Cet article présente diverses possibilités qui ont été explorées : algorithmes mathématiques, simulations à l'aide d'un logiciel, dosimètres, etc. La vraisemblance des résultats ainsi obtenus a été étudiée à l'aide de comparaisons avec des forages.

Mots-clés : Démantèlement, cyclotron, quadropôle, activation, capture-neutrons, simulations, dosimétrie, forages, transparence, homogénéité

Today every plant with nuclear purpose has to establish a decommissioning's plan. From the start of this concern this plan would regularly be bring up to date considering the dismantling technique's evolution.

This article presents different possibilities explored such as mathematical methods, simulations with software, dosimetric survey and so on. The likelihood of the results obtained in these ways was studying thanks to comparisons with borings.

Keywords: Decommissioning, cyclotron, quadropole, activation, neutron capture, simulation, dosimetric survey, borings, transparency, homogeneity

1. Description de MDS Nordion S.A.

L'étude dont il est question dans cet article a été réalisée dans cette entreprise.

1.1 Nordion.

Nordion possède trois sites au Canada :

- une entreprise à Kanata, près d'Ottawa, qui produit des isotopes via des réacteurs ;
- une entreprise à Vancouver, côte ouest, qui utilise des cyclotrons ;
- une entreprise à Québec qui fabrique des irradiateurs au ^{60}Co .

Enfin, MDS Nordion SA est la filiale belge, installée à Fleurus.

1.2 MDS.

MDS est composé de filiales regroupées en quatre grands secteurs d'activités : la production d'**isotopes** pour la médecine nucléaire, la gestion des *essais cliniques*, les laboratoires de **biologie clinique**, la **recherche** fondamentale.

C'est dans le département radiopharmaceutique du secteur production d'isotopes que sont traitées les substances produites en réacteurs, dont l' ^{131}I utilisé en diagnostic et en thérapie, et les ^{123}I et ^{201}Tl (Iode et Thallium) produits grâce au cyclotron. Les activités de ces éléments, appelées doses patients sont de l'ordre du mCi¹.

2. Démantèlement des installations.

2.1 La problématique des déchets.

Le secteur nucléaire, comme tous les autres secteurs industriels, produit des déchets ; il faut pouvoir gérer (conditionnement et stockage) et démanteler

1 L'activité, c'est à dire le nombre de désintégration par unité de temps, s'exprime en Curies (Ci). $1\text{Ci} = 3,7 \times 10^{10}$ désintégrations par seconde (étalon : source d'un gramme de radium).

les installations, une fois l'exploitation terminée. Le démantèlement est une obligation légale. L'organisme chargé de sa surveillance est l'ONDRAF², créé par les autorités belges en 1980.

Cet organisme possède quatre missions de base :

- établir un inventaire des déchets radioactifs présents sur le territoire belge et des différents producteurs de ces déchets ;
- mettre sur pied un système de gestion fiable de ces déchets ;
- coordonner les travaux de démantèlement des installations nucléaires mises à l'arrêt ;
- gérer les matières fissiles enrichies.

Son rôle est de définir, en accord avec les exploitants, les modalités de déclasserment et de financement des programmes de déclasserment, l'exploitant restant légalement et financièrement responsable du site jusqu'à sa libération inconditionnelle.

Pour ce faire, l'entreprise doit passer par différentes phases. La phase d'identification permet de déterminer la nature du matériel à démanteler, afin d'estimer les coûts, proportionnels à leur masse et à leur volume³. Ensuite la phase de caractérisation sert à rechercher les isotopes qui pourraient être produits dans les matériaux préalablement recensés. La nature de ces isotopes et leur activité permettront de déterminer si l'élément dont il est question doit être considéré ou non comme un déchet.

2.2 Les phases de déclasserment.

Par définition, le déclasserment est l'ensemble des opérations techniques et administratives qui permettent de retirer une installation classée d'après les dispositions de l'Arrêté Royal du 28/02/1963.

Ces opérations commencent dès la cessation partielle ou totale de l'exploitation de l'installation nucléaire, et se terminent par la libération inconditionnelle du site.

2 Organisme National des Déchets Radioactifs et des matières Fissiles enrichies

3 Proportionnel dans le sens où plus la masse et / ou le volume de déchets augmente(nt), plus le coût de démantèlement sera important.

L'agence internationale de l'énergie atomique (AIEA) définit trois phases de déclassement. Chacune d'elles est caractérisée par deux éléments : l'état physique de l'installation et de ses équipements annexes et le degré de surveillance nécessitée par cet état. Ces trois phases sont : le stockage avec surveillance, la libération du site avec restriction et la libération inconditionnelle du site.

3. Activation du cyclotron.

3.1 Principe de base du cyclotron.

Un cyclotron est une machine dans laquelle des particules chargées sont soumises à un champ magnétique, perpendiculaire à leur trajectoire. Deux électrodes, soumises à une différence de potentiel sinusoïdale de fréquence fixe, permettent de les accélérer.

A chaque période, le paquet de particules se trouve en mesure de franchir l'espace entre les deux électrodes de par l'accélération que celles-ci leur fournissent. L'énergie des particules est ainsi constamment augmentée. Les particules se déplacent donc sur des trajectoires circulaires de rayon croissant avec leur vitesse. Ces particules sont le plus souvent des protons ou des atomes d'hydrogène avec un électron supplémentaire (noté H⁻).

3.2 Activation directe par les protons.

Cette activation peut être considérée comme relativement locale (quelques mm de pénétration). Certains matériaux sont irradiés volontairement, ce sont les cibles : Nordion Fleurus utilise des cibles de thallium ou d'iode.

Le ^{201}Tl est utilisé pour le dépistage des maladies du cœur, l' ^{123}I pour l'imagerie des tumeurs du cerveau ou de la thyroïde.

D'autres matériaux sont irradiés involontairement. Il peut s'agir des structures permettant de guider le faisceau vers la cible : pertes du faisceau lors de son transport entre la source et la cible (exemple : collimateurs du transport faisceau (TF)).

Il peut encore s'agir des matériaux du cyclotron proprement dit : H⁻ neutralisés à l'intérieur du cyclotron par le gaz résiduel (5% du courant de H⁻) et qui, transformés en H⁰, bombardent les structures internes de l'accélérateur.

3.3 Activation indirecte par les neutrons.

Dans un cyclotron, les neutrons sont produits par les protons. Dépourvus de charge, ils pénètrent profondément dans le matériau et induisent de l'activation lors de leur capture par les noyaux. Ils activent donc en volume les matériaux qui se trouvent sur leur trajet. Dans le plan de démantèlement, il faut donc tenir compte non seulement des équipements de production, mais également des blindages, des locaux et de tout ce qui se trouve à l'intérieur du local d'irradiation.

On estime qu'un cyclotron IBA de 30 MeV avec cible épaisse produit environ un neutron pour dix protons incidents.

Un cyclotron accélérant des protons de 150 MeV donne un neutron par proton incident et un accélérateur de 1 GeV peut produire plus de 20 neutrons par proton incident.

Sur base de ces données, vérifiées dans de nombreux cas pratiques, le cyclotron CGR de Fleurus a produit, sur ses cibles, 0,2-0,3 neutron par proton incident.

4. Etude des différentes méthodes pouvant s'avérer utiles pour la caractérisation des déchets.

4.1 Introduction.

La plupart des techniques de caractérisation de la contamination en profondeur, actuellement utilisées par les industries nucléaires, emploient des approches destructives. Dans la plupart des cas, un échantillon est prélevé et analysé dans un laboratoire se situant hors du site. Cela prend couramment de plusieurs jours à plusieurs semaines pour obtenir les résultats.

L'objectif est donc de trouver un outil meilleur, plus rapide, fiable et moins coûteux que les pratiques utilisées à ce jour en décontamination et en démantèlement.

Pour l'acier des accélérateurs, le but est de déterminer si un élément se situe soit en dessous de 0,3 Bq/g, soit au-dessus de 200 Bq/g, sans prélever (dans la mesure du possible ou à tout le moins en diminuant le nombre) d'échantillons (méthode non destructive) et de la façon la moins coûteuse possible. Dans le premier cas, le matériau peut être démantelé sans précaution particulière; dans le second, ce sera un déchet non recyclable de basse activité. Entre les 2 limites, l'acier pourrait être recyclé. On peut comprendre l'intérêt de cette détermination pour des accélérateurs dont la masse peut atteindre 200 tonnes.

4.2 Gamma Penetration Depth Unfolding Algorithm (GPDUA).

Ce paragraphe est destiné à décrire brièvement une méthode couramment utilisée à l'heure actuelle. Ce n'est cependant pas celle qui a été utilisée lors de l'étude menée sur le cyclotron et les quelques pages suivantes tentent d'en expliquer le pourquoi (difficulté de mise en œuvre et, qui plus est, inexactitude dans le cas du cyclotron).

Cet algorithme est une méthode non destructive de détermination de la profondeur à laquelle se situe un radionucléide.

Elle est basée sur une méthode qui consiste en un calcul géométrique précis d'activité, c'est-à-dire sans assimiler la source et le détecteur à des objets ponctuels, mais bien à leur forme réelle. C'est en intégrant sur les surfaces de ces dernières que l'activité peut-être trouvée (fig.1).

La méthode GPDUA s'intéresse plus particulièrement aux isotopes qui émettent deux ou plusieurs rayons gammas lors de leur désintégration, ou à ceux qui n'émettent qu'un seul rayon gamma, mais dont la descendance émet des rayonnements gammas dans le cas des chaînes de désintégration en équilibre séculaire.

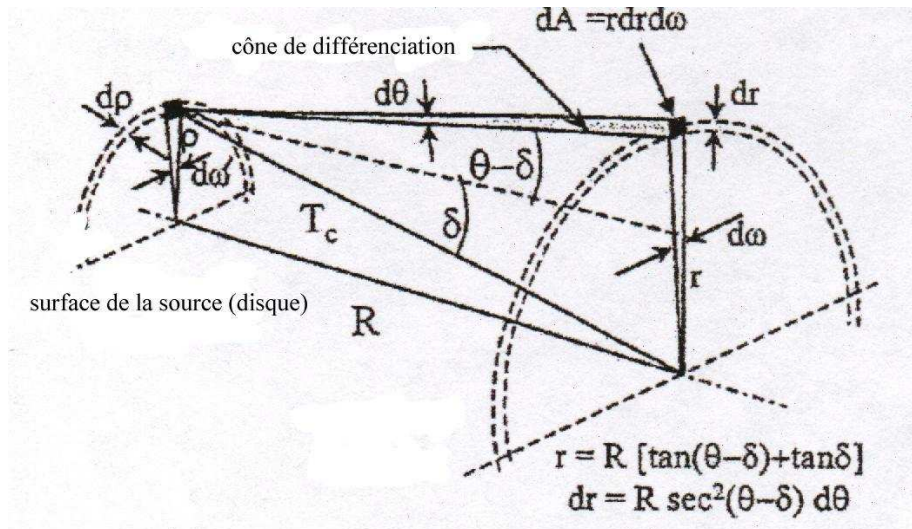


Figure 1 : Calcul d'intégration du GPDUA

NB : Sur cette figure, il serait plus correct de remplacer les dr , dA , $d\omega$, etc par des Δr , ΔA , $\Delta \omega$, car il s'agit de différences finies et non de dérivées, à l'exception du petit r dont on prend la dérivée pour trouver $R \sec^2(\theta - \delta) d\theta$.

Ces deux γ émis en coïncidence permettent en effet de positionner l'isotope dans la matière, en fonction de la manière dont ils ont été atténués en traversant celle-ci. Ainsi si la source de l'activation se trouve en profondeur, un rayonnement d'énergie initiale faible aura une valeur presque nulle lors de sa détection. C'est le rapport entre le nombre de coups détectés dans chacun des pics (après passage dans la matière) et le nombre de coups qu'on aurait mesuré sans matière interposée entre la source et le détecteur, qui va fournir les informations nécessaires à la détermination de la profondeur de contamination. En effet, plus la source est proche de la surface, plus son pic se rapprochera d'une droite verticale, car l'énergie des rayonnements qu'elle émet sera peu atténuée et tous les coups se superposeront dans le canal d'énergie attendue. Par contre, si la source est située plus en profondeur, le pic va « s'étaler » et le nombre de coups obtenus à l'énergie considérée sera moindre, signifiant une atténuation du rayonnement. Ces résultats dépendent de la statistique de comptage (plus la durée de comptage s'allonge et plus le

nombre de coups recensés augmente, améliorant ainsi la précision⁴).
 Considérons à cet effet les deux schémas suivants :

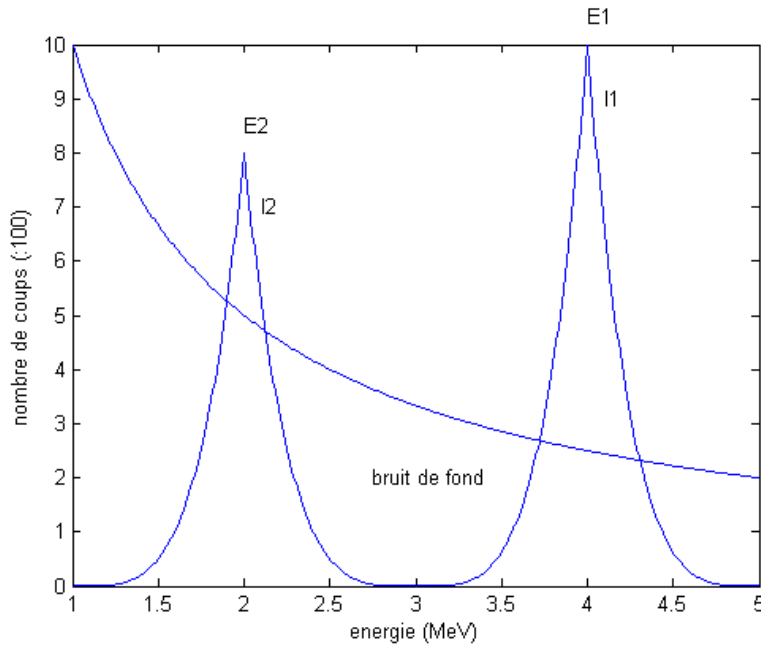


Figure 2 : Détermination de la profondeur par le GPDUA

Les deux rayons ont une énergie inaltérée au moment de leur émission, soit 100%.

Celui des deux qui est le plus énergétique au départ sera le moins atténué par son passage dans la matière⁵. Attribuons au premier une intensité résiduelle par rapport à l'intensité initiale de 10% de son énergie initiale et au deuxième, une énergie de 8% de son énergie initiale.

C'est cette différence d'atténuation qui permettra de déterminer la

4 Pour des mesures de ce type, l'incertitude (absolue) dans un canal de N coups est de

\sqrt{N} . Il faut ainsi 3000 cps pour que l'incertitude relative soit inférieure à 2% ($\frac{\sqrt{3000}}{3000} = 0,018$)

5 $I = I_0 \times e^{-\mu l}$ où l est l'épaisseur de matériau traversé ; μ , le coefficient d'absorption de cette matière ; I et I_0 , les énergies à la sortie de la matière et à la source (énergie initiale)

profondeur à laquelle se trouve la source : plus la différence entre les intensités résiduelles est grande, plus la source est profonde.

Si pendant leur trajet vers le détecteur, les rayons subissent une diffusion Compton ou photoélectrique, l'énergie que cet effet leur fera perdre ne leur permettra pas de figurer dans le pic dont l'énergie correspond à celle qu'ils auraient eue sans interaction. Cela permet de dire que seuls les rayonnements provenant en droite ligne de la source seront détectés et interviendront dans l'estimation de la profondeur à laquelle se trouve la source.

Ainsi, connaissant l'énergie des deux gammas émis, leur coefficient d'atténuation et leur pourcentage en sortie, on peut déterminer la profondeur à laquelle ils ont été initiés.

En comparant les profondeurs fournies par cet algorithme à des résultats connus, on observe que ce modèle fournit avec une très bonne précision l'endroit où se trouve la source de contamination (divergence de moins de 3% avec les profondeurs connues), et ce d'autant plus que la profondeur est importante. Seuls sont véritablement observés les γ n'ayant pas interagi, la profondeur étant supérieure à leur libre parcours moyen⁶.

Cependant, un problème se pose dans le cas du cyclotron dans la mesure où l'acier considéré possède plusieurs sources d'activation et sa contamination est uniformément répartie et non pas située à une profondeur bien déterminée. L'épaisseur de matière, variant en fonction de la source considérée, va provoquer une absorption différente des rayonnements, rendant impossible le calcul du rapport d'énergie préconisé par le GPDUA. Considérons pour faire simple, deux sources A et B, placées à des profondeurs différentes dans la matière, B étant située le plus loin. Ces deux sources émettent toutes deux 2γ (γ_1 et γ_2). Les radiations issues de B sont plus fortement absorbées, puisque traversant une épaisseur plus importante de matière. Le γ_2 , d'énergie supérieure à celle du γ_1 est quant à lui moins absorbé.

Sur les verticales tracées par les abscisses des énergies des γ , la contribution à la dose est supérieure pour les rayonnements issus de A par rapport à ceux

6 distance parcourue par une particule entre deux collisions

issus de B et l'atténuation inférieure sur la droite du gamma d'énergie la plus élevée. Les droites A et B ne sont plus dans un rapport constant, il est impossible de trouver la profondeur exacte de la source, mais seulement une profondeur moyenne située entre les deux points considérés.

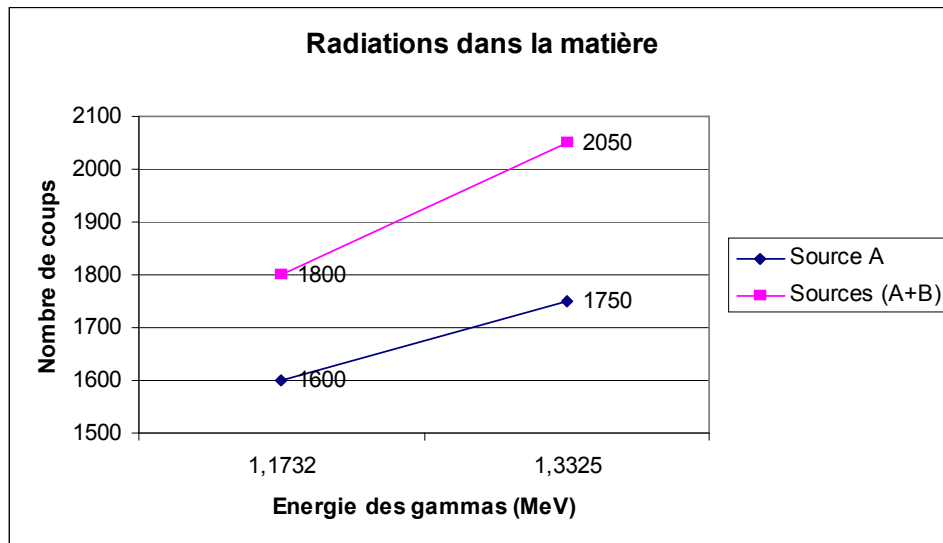


Figure 3 : Tentative d'application du GPDUA dans le cas du cyclotron (activation due au cobalt 60).

En effet, si on considère les deux sources A et B séparément, les γ émis étant les mêmes, on peut déduire de par leur intensité de sortie leurs coefficients d'atténuation respectifs (plus élevés pour B que A). Par contre, quand les deux sources sont ensemble dans le matériau, l'énergie détectée pour le premier rayonnement résulte des émissions de A et B, $\gamma_1 = \gamma_{1A} + \gamma_{1B}$ où B est plus atténué que A et l'énergie détectée pour le deuxième : $\gamma_2 = \gamma_{2A} + \gamma_{2B}$ où B est plus atténué que A et en plus, γ_2 plus atténué que γ_1 .

Le coefficient d'atténuation trouvé est donc en quelque sorte une moyenne des coefficients de chaque rayonnement. La distance qui en sera déduite sera donc située quelque part entre les deux sources réelles.

Le type d'activation du cyclotron n'entre donc pas dans les cas traités par le GPDUA et tout ce que la méthode permettrait d'obtenir est une idée de la

profondeur moyenne de contamination, résultant des différents rayonnements.

De plus, rien ne permet d'assurer que les deux rayonnements perçus en coïncidence par le détecteur sont bien issus de la même source. En effet, dans l'exemple traité ci-dessus, le γ de 1,1732 MeV de la source A pourrait très bien être perçu en coïncidence avec le γ de 1,3325 MeV de la source B, ce qui s'avérerait faux, puisque ces deux sources présentent des événements distincts. Il faudrait en outre se procurer un détecteur HPGe, relativement coûteux, et dont l'efficacité intrinsèque devrait être déterminée pour ajuster le spectre gamma obtenu. De plus, le programme de calcul accompagnant ce modèle est aussi assez lourd.

4.3 Alternative envisagée : Microshield.

La méthode GPDUA se révèle donc inappropriée dans le cas du cyclotron et est en outre fort compliquée au niveau de ses algorithmes. Les méthodes physiques sont fort longues (donc coûteuses), dangereuses et destructives. Il est dès lors intéressant de tester un logiciel de simulation (nommé Microshield) à l'aide de mesures relevées par des dosimètres. Pour valider les mesures au moyen de dosimètres, des forages ont été réalisés aux endroits où ceux-ci ont été installés. Cela permet d'évaluer la dose en profondeur et de calculer la dose en surface.

Le logiciel en question permet de simuler la pièce considérée du point de vue forme, matériau et source radioactive dans un environnement déterminé, afin d'en déduire la dose en surface.

L'idée est de pouvoir effectuer des mesures de doses via des détecteurs, placés un temps suffisant pour obtenir une détection significative des faibles activités (statistique de comptage convenable), de les fournir au logiciel pour qu'il détermine l'activité en profondeur et de la comparer à celle fournie par les forages.

La simulation a pour inconvénient que les matériaux traités doivent avoir une activité spécifique suffisamment homogène. Il faut donc découper la matière en blocs. Comme des analyses antérieures de la culasse du cyclotron ont montré que seul l'isotope simple ^{60}Co représentait un cas préoccupant, Microshield peut être utilisé (ce radioélément est présent dans sa

bibliothèque de nucléides), et ce d'autant plus que le ^{60}Co émet des rayons gamma de grande énergie, c'est-à-dire assez facilement détectables, ce qui permettra de comparer les simulations aux doses réelles.

4.4 Dosimètres.

Les détecteurs choisis pour la “ cartographie ” doivent être portables afin de pouvoir faire les mesures sur le terrain. De plus, leur petite taille doit permettre de les placer dans des endroits inaccessibles à de plus gros détecteurs tels que les appareils au germanium intrinsèque, et ce afin de pouvoir analyser des géométries complexes sans avoir à découper les pièces considérées.

Il faut également évaluer le temps de comptage nécessaire à ces détecteurs pour que ce temps ne dépasse pas certaines limites (plusieurs mois !). En effet, plus l'activité est faible, plus le temps de comptage correspondant est grand. Nous devons aussi placer l'un de ces détecteurs à l'abri de toute activité issue des dispositifs mesurés, afin d'évaluer le bruit de fond et de pouvoir le soustraire de l'activité obtenue par les autres détecteurs.

On peut utiliser des pastilles de fluorure de lithium (LiF), matériau phosphorescent standard utilisé en dosimétrie, avantageux parce que sa réponse est presque indépendante de l'énergie entre 30 keV et 3 MeV. De plus, il résiste à la corrosion et est difficilement soluble dans l'eau. Il permet de détecter les doses supérieures ou égales à 10mrad ($1\text{mrad/h} = 10\mu\text{Sievert/h}$ et $1\text{rad} = 0,01\text{ Gray}$)⁷.

Ces pastilles fonctionnent suivant le principe de la thermoluminescence (thermo, chaleur et lumen, lumière). Quand certains cristaux sont exposés à des radiations, les électrons et les trous produits sont capturés par des impuretés du cristal et leur énergie est donc stockée dans le cristal. Cette énergie peut être libérée sous forme de lumière en chauffant le cristal. Ce phénomène s'explique par le passage de certains électrons des atomes du corps excité d'un niveau d'énergie à un autre.

⁷ Le rad, exprime la dose absorbée, c'est à dire la quantité d'énergie cédée à la matière par chaque rayonnement. Le rad correspond à 100erg/g. A l'heure actuelle, il est remplacé par le Gray (Gy) équivalent à 1J/kg. Un Gy vaut donc 100 rad

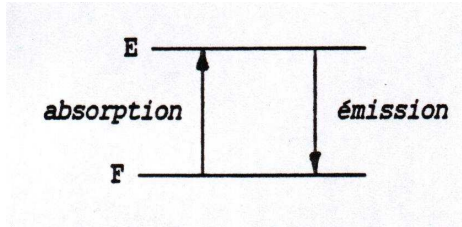


Figure 4 : Fluorescence

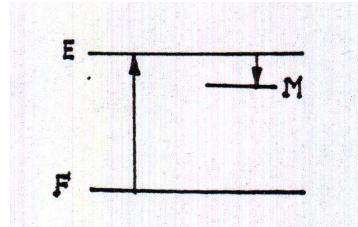


Figure 5 : Phosphorescence

En général, après le passage d'un électron de son niveau d'énergie initial (fondamental F), (le plus souvent la bande de valence), au niveau supérieur (excité E), (appelé bande de conduction), par une irradiation adéquate, l'électron retrouve spontanément son niveau initial en réémettant un photon lumineux. La durée de vie du niveau excité est de l'ordre de 10^{-8} secondes à 10^{-10} secondes, c'est le phénomène de fluorescence (fig. 4).

Cependant, il existe certains éléments pour lesquels on trouve des niveaux d'énergie métastables M situés entre deux niveaux "classiques" (fig. 5). Ainsi, dès que l'on irradie ces éléments, les électrons déplacés viennent se positionner dans ces niveaux métastables, appelés pour cette raison "niveaux pièges" et le phénomène de luminescence n'a alors pas lieu.

C'est là qu'intervient la thermoluminescence qui consiste à chauffer le corps en question, pour fournir à l'électron, l'énergie nécessaire pour retrouver le niveau supérieur et ensuite retourner naturellement à son niveau initial en émettant de la lumière (excédent d'énergie). En effet, la probabilité que l'électron retourne au niveau M est alors très inférieure à celle qu'il a de revenir en F. On parle ici de phosphorescence car le temps qui sépare l'irradiation de l'émission est supérieur à 10^{-8} s du fait du temps de séjour dans le piège. La lumière est détectée et mesurée à l'aide de tubes photomultiplicateurs.

5. Etude d'un quadrupôle.

Des éléments de quadrupôles (lentilles magnétiques situées à la sortie du cyclotron) peuvent être analysés pour tester la méthode. En effet, on peut penser qu'ils sont relativement fort activés car ce sont les parties du cyclotron les plus proches du faisceau.

Cela permet d'obtenir des résultats assez rapidement afin de voir si l'approche préconisée est réaliste et réalisable.

5.1 Rôle du quadrupôle.

Les quadrupôles se situent à la sortie du cyclotron proprement dit, afin de focaliser le faisceau extrait de ce dernier. En effet, les différentes particules d'un faisceau ne suivent pas exactement la même trajectoire et le faisceau doit être périodiquement refocalisé. En théorie statistique du comportement d'un faisceau, un groupe de particules est représenté par l'ellipse de la figure 6(a). En simple translation dans les tubes de transport, elle verra sa forme changer (b)⁸, la superficie de l'ellipse restant en moyenne inchangée (espace de phase). L'axe x' (angle) est une projection du faisceau sur l'axe x (position).

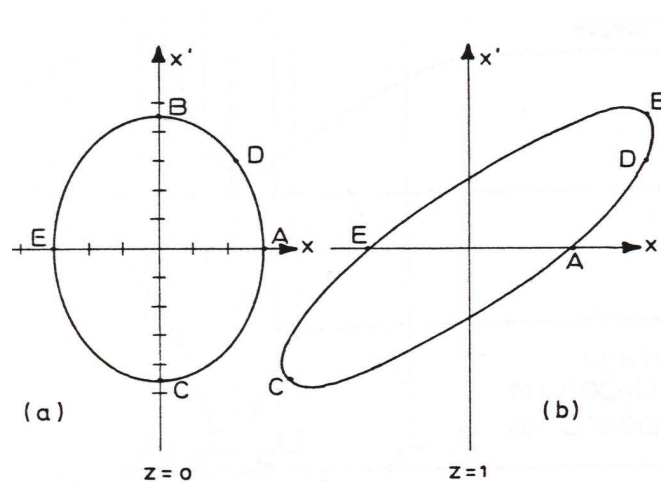


Figure 6 : Défocalisation faisceau

8 à cause de la variation du champ magnétique.

Le faisceau est en général le plus large à l'intérieur des quadrupôles; les pertes de faisceau, même minimales, sur les parois des tubes de transport, génèrent des neutrons qui activent les pôles. Selon qu'un quadrupôle est focalisant vertical ou horizontal, l'activation des paires de pôles Nord/Sud du quadrupôle pourrait être différente.

Pour en avoir le cœur net, on peut démonter un quadrupôle en ses différentes parties : pôle et bobines. En ôtant un pôle de son support, on peut également voir l'incidence de ce dernier sur la dose détectée.

5.2 Première cartographie.

Si on place 20 pastilles de LiF à différents endroits du pôle et de sa plaque support de façon à former des « couples », la dose relevée devrait être semblable. Une des pastilles sert à la mesure du bruit de fond.

Ci-dessous, la représentation du pôle et de ses 9 pastilles.

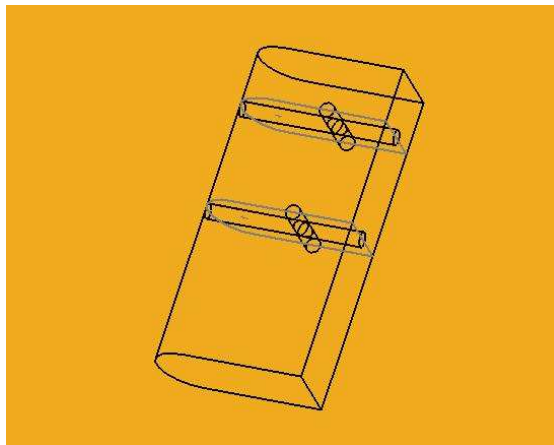


Figure 7 : localisation des pastilles sur le pôle

Si on les relève après un peu moins d'une semaine (162h pour les 10 premières et 140h pour les 10 dernières), les résultats obtenus sont insatisfaisants dans la mesure où on constate parfois des doses très disparates pour les « couples de pastilles » prédéterminés.

De plus, certaines mesures sont identiques au bruit de fond, ce qui pourrait signifier que la dose « réelle » en ces points est nulle !

On obtient des résultats bien meilleurs par la méthode des forages. Pour mieux cerner le problème, une nouvelle campagne de mesures s'impose : en doublant le temps d'exposition (deux semaines à la place d'une) et en plaçant deux dosimètres côte à côte par point de mesure. Si ces deux points divergent encore fortement, c'est que le problème se situe ailleurs.

5.3 Deuxième cartographie.

De nouvelles incohérences apparaissent encore (voir ci-dessous), notamment une dose négative après soustraction du bruit de fond. De plus, les pastilles placées à la partie inférieure (7, 8, 14 et 15) offrent de bien meilleurs résultats que celles placées à mi-hauteur de la pièce (1, 2, 5, 6, 10, 11, 12 et 13). Plus étonnant encore par rapport à cette « série médiane » : l'écart par rapport à la moyenne (respectivement 0,457 et 0,368) de l'une des deux pastilles d'un couple est systématiquement important, un peu comme si une pastille sur deux avait un défaut (voir la ligne « Déviation % »).

	Avant		G	
	Point 3		Point 5	
Moyenne	1	2	12	13
	0,657	0,488	0,460	0,291
Déviation %	30,36	6,25	0,51	-57,3
	Point 7		Point 8	
Moyenne			14	15
	0,368		0,319	0,432
Déviation %			-15,4	14,67

Arrière		Dr	
Point 4		Point 6	
10	11	5	6
0,422	0,619	0,460	0,263
-8,33	26,14	0,51	-74,1
Point 10		Point 9	
		7	8
		0,347	0,375
		-6,08	1,875

Les notations : « point 3 » à « point 10 » sont les forages qui ont été réalisés et correspondent aux emplacements des premières pastilles de LiF. Il n'est pas possible de mettre des pastilles en partie inférieure de la face arrière car il y a le trou permettant de visser le pôle sur sa plaque support.

Ce phénomène pourrait s'expliquer par la présence d'impuretés dans l'acier, réparties de façon non homogène dans celui-ci, et qui, activées, provoqueraient des émissions de faibles énergies types rayons X, de l'ordre de 10 à 80 keV. En raison de cette faible énergie, les pastilles ne seraient sensibles qu'aux impuretés situées près de la surface, les impuretés plus profondes émettant des rayonnements absorbés par la masse de matière. Cette énergie faible pourrait aussi expliquer l'impact important observé au niveau des pastilles, la totalité du rayonnement étant alors atténué dans la pastille.

Ces suppositions pourraient être vérifiées en plaçant une fine feuille de cuivre entre le bloc d'acier et les pastilles. Elle permettrait d'éliminer ces rayonnements parasites tout en permettant aux gammas du Cobalt d'atteindre les LiF. Il serait même possible d'étudier l'effet du Cu en matière d'atténuation de ces γ à l'aide de microshield.

5.4 Simulations Microshield (μ S ou MS).

De nombreux calculs et / ou simulations ont été réalisés afin de tester la précision du logiciel et la validité des résultats qu'il fournit.

Le radioélément qui a été étudié est le cobalt, émetteur de deux gammas de respectivement 1,1732 MeV et 1,3325 MeV. C'est le plus abondant dans les forages et celui qui, au vu de sa période de 5,27 ans, est susceptible de poser le plus de problème.

Description du logiciel.

MS est un logiciel qui permet de calculer l'activité produite par une source de nucléide(s) ou à l'inverse de déduire la source à partir d'une dose.

L'idée consiste à utiliser μ S pour avoir une notion de l'activation en profondeur grâce à des mesures de dose en surface. Ce procédé pourrait se révéler intéressant dans le cas du fer, pour lequel on soupçonne une activation relativement homogène au vu des forages réalisés sur la culasse.

Pour employer le programme, l'utilisateur doit choisir un type de géométrie (source ponctuelle, linéaire, plane, différents types de surface et de volume pour les écrans, etc), dont il fixe les dimensions, ainsi que les coordonnées du point où il veut mesurer l'activité, dans un système d'axes cartésiens, où la source est prise comme origine.

Il place ensuite, s'il le souhaite, un ou plusieurs écran(s) dont il peut choisir l'épaisseur et le matériau et dont le but est d'étudier l'atténuation produite sur les rayonnements. Le nombre d'écrans peut être dicté par l'environnement. Par exemple si le rayonnement émis par la source traverse différents milieux, y compris des épaisseurs d'air, avant d'atteindre le point que l'on s'est fixé, on peut placer un écran par matériau. On peut également souhaiter mettre plusieurs écrans pour un même matériau afin de comparer les différentes atténuations et coefficients de build-up⁹ en fonction du nombre d'écrans considérés, et ainsi voir ce qui est le plus efficace. L'absence d'écran ou de composition pour un écran est assimilée à une

⁹ build-up : lors de la focalisation d'un faisceau, des particules ne se trouvant pas sur la trajectoire désirée peuvent être diffusées par les bords de la pièce assurant cette focalisation et se retrouver dans le faisceau, participant ainsi à l'activation. On retrouve principalement ce phénomène dans les écrans volumineux.

couche d'air. Enfin, l'utilisateur définit la source (nucléide(s), activité, etc).

Calcul d'un cas simple.

Pour la transmission du rayonnement (sans build up), ce calcul vise à comparer les résultats fournis par μS à ceux obtenus par une analyse numérique.

Il consiste à chercher la dose en surface passant par 1cm^2 . Pour ce faire, il faut tenir compte de l'atténuation due à la distance, qui dans un système d'axes cartésiens s'exprime par : $e^{-\mu l}$ où $l = \sqrt{x^2 + y^2 + z^2}$ et μ est le coefficient d'atténuation linéaire des deux gammas du Co, constant pour un γ donné. Il faut en plus tenir compte de l'angle solide formé entre chaque point successif considéré et le détecteur ce qui donne finalement l'intégrale suivante :

$$I = \int_{x_1}^{x_2} \int_{y_1}^{y_2} \int_{z_1}^{z_2} \frac{e^{-\mu \sqrt{x^2 + y^2 + z^2}}}{4 * \pi * (x^2 + y^2 + z^2)} dx dy dz \quad (\text{cm})$$

Pour pouvoir être comparé à μS , ce résultat est multiplié par l'activité du bloc simulé (Bq/cm^3) et par l'énergie du rayonnement considéré (MeV), pour obtenir la fluence en $\text{MeV}/\text{cm}^2\text{s}$.

Les μ des 2γ étant respectivement de $0,43841 \text{ cm}^{-1}$ et $0,41099 \text{ cm}^{-1}$, μS fournit les résultats suivants : $2,535$ et $3,050 \text{ MeV}/\text{cm}^2\text{s}$.

Les logiciels mathématiques Matlab et Mathcad permettaient d'obtenir pour le premier $2,5773$ et $3,1057$ et pour le second $2,56642$ et $3,09259$.

A priori, les résultats μS semblent donc fiables (valeurs proches eu égard aux unités importantes).

Afin de confirmer cette impression, d'autres essais ont été réalisés. Outre la vérification d'hypothèses physiques, ces derniers ont été menés en faisant varier les paramètres d'intégration afin de vérifier la cohérence des solutions fournies grâce à la convergence ou non des résultats. En effet, plus l'ordre d'intégration est élevé, plus la réponse est précise, mais plus le temps de calcul est long.

Variation des paramètres d'intégration.

Les paramètres d'intégration par défaut sont (10, 20, 20), nous avons testé les paramètres (11, 21, 21), (12, 22, 22) afin de voir si la parité du nombre d'itération pouvait jouer un rôle et (20, 40, 40) et (40, 80, 80) pour tester la convergence.

Buildup : Le matériel de référence est - Source	
Paramètres d'intégration	
X Direction	20
Y Direction	40
Z Direction	40

Même en augmentant très fort les ordres d'intégration, les résultats sont tout à fait convergents, et ce d'autant plus qu'on s'éloigne de la source (à partir de 5mm de l'extrémité de la pièce, tous les résultats sont identiques quels que soient les ordres d'intégration choisis.). Cela prouve bien la pertinence des résultats fournis.

Décroissance de la dose.

Cette simulation consistait simplement à vérifier que la dose fournie par le logiciel diminue bien lorsque le point de mesure s'éloigne de la source. Résultat affirmatif.

Homogénéité du matériau.

Ce test consiste à voir si la dose en surface est la même pour différents points d'un même plan.

Pour ce faire, on peut partir du centre de la surface considérée (point sur la figure 8) et se diriger vers son extrémité suivant des Z décroissants. Les dimensions du bloc sont : (9,7 ; 5,5 ; 24,0 en cm).

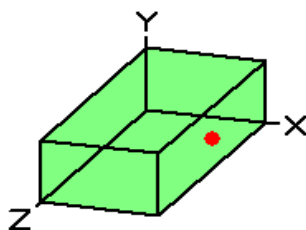


Figure 8 : Géométrie μS (homogénéité du matériau)

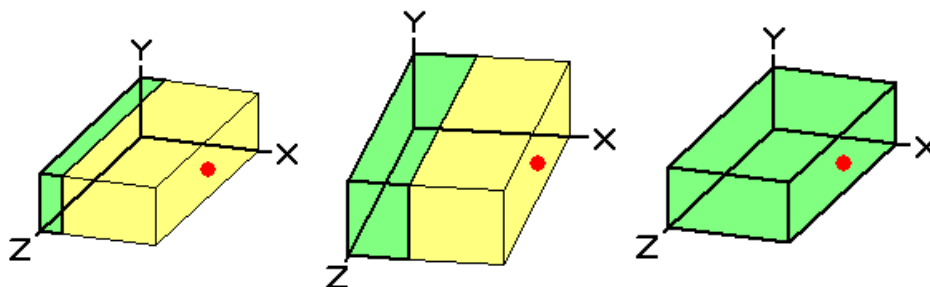
On constate que la dose ne varie quasiment pas entre le centre et les 5-6 cm qui suivent. On sait donc qu'à l'avenir, la mesure relevée par une pastille de lithium sera sensiblement la même dans un cercle de ± 6 cm de rayon, ce qui permettra de les placer plus opportunément.

Comme il semble normal que la dose diminue quand on se rapproche des extrémités (effets de bord), les phénomènes de diffusion étant moindres, on peut raisonnablement penser que le matériau est homogène.

Quand le quadrupôle est monté, cette face est la plus proche du faisceau. Pour étudier l'influence de la position des faces par rapport au faisceau, le même test a été réalisé sur d'autres faces et a abouti aux mêmes résultats, ce qui permet de supposer que le matériau dans son ensemble est homogène.

Effet dû à l'épaisseur de matière.

Afin d'étudier l'impact du volume de l'acier sur la dose en surface, le bloc est découpé en tranches de 2cm d'épaisseur. Le point de mesure de la dose est toujours placé au même endroit. Pour la première mesure, on considère 2cm d'acier contenant la source, la distance séparant le point de l'acier étant modélisée par un écran de 8cm en acier lui aussi (fig. 9a). On prend ensuite une épaisseur d'acier pour la source de 4cm, soit 6cm d'acier en écran jusqu'au point de mesure (fig. 9b) et ainsi de suite jusqu'à obtenir 10cm d'acier et le point à la surface du volume (fig. 9c).



Figures 9 a, b et c : étude de l'effet de l'épaisseur d'acier.

Comme attendu, la couche la plus éloignée de la surface est celle qui contribue le moins à la dose.

Pourcentage de la dose apportée par chaque couche à la dose totale				
1	3	8	24	100

Les résultats (en %) sont obtenus en divisant la dose obtenue pour chaque épaisseur avec le résultat obtenu pour l'épaisseur totale. On conçoit donc bien que dans ce cas, la couche considérée comporte la totalité de l'activité, d'où les 100% obtenus.

5.5 Forages.

On réalise les forages du pôle à l'aide d'une perceuse à colonne et d'une mèche de diamètre 10,5mm.

La mesure réalisée au service contrôle qualité de chez Nordion est faite à l'aide de Germanium intrinsèque et donne des résultats en Bq/g. Il n'est donc pas indispensable lors des forages de récupérer tous les copeaux à partir du moment où tous les échantillons sont pesés avant d'être contrôlés. Mais plus on en a, plus cela réduit les temps de comptage. Les copeaux sont placés tels quels dans le système de mesure (pas de dilution ou traitement préalable). Ce faisant, on a négligé les phénomènes d'auto-absorption, mais la très petite taille des copeaux, liée à la demi-épaisseur du Co supérieure à la hauteur de copeaux obtenus, ce type de traitements ne se justifie pas¹⁰.

Comme supposé, l'isotope détecté est du Co⁶⁰. De plus, l'activité spécifique relevée, de l'ordre du Bq/g, confirme les résultats fournis par les simulations μ S, tout comme la répartition de la dose en profondeur qui confirme l'hypothèse faite sur l'homogénéité de l'acier (doux magnétique, donc relativement pur) et le grand pouvoir de pénétration des neutrons.

La mèche utilisée ne permettant que de réaliser des passes d'un cm avant de récupérer les copeaux, les mesures suivantes représentent l'activité relevée pour chacune de ses passes. Les pastilles placées étaient en partant de la gauche et en tournant dans le sens des aiguilles d'une montre : 10, 9, 7 et 8 (fig. 7)

¹⁰ Si le volume de copeaux récupérés avait été important, une partie du rayonnement émis par ceux du fonds du tube aurait pu être absorbé par la couche supérieure et fausser les résultats.

					1,2328					11
					1,2968					
0,700	0,854	0,937	1,098	1,159/1,164		1,435	1,386	1,369	1,391	1,582
					1,2353					
					1,2765					

En traçant les courbes de l'activité en fonction de la distance de matière traversée, et ce tant transversalement que longitudinalement, on peut en trouver les équations. Il devient alors possible de déduire l'activité en tout point.

6. Conclusion.

Les forages ont permis de constater la transparence de l'acier étudié vis-à-vis des neutrons, c'est à dire que ceux-ci peuvent parcourir de grande distance dans l'acier sans que leur énergie soit fortement atténuée. Cela permet, une fois les mesures dosimétriques au point, et pour des objets de taille réduite (quelques dizaines de cm), de se contenter d'une mesure de ce type sur chaque face de la pièce considérée pour caractériser cette dernière (puisque cette mesure peut être assimilée à celle en « profondeur »). Avant de pouvoir utiliser cette méthode, il faut encore résoudre le problème de disparité rencontré au niveau des pastilles de LiF. Il serait peut-être possible d'en savoir plus à ce sujet en interposant une mince feuille de Cu entre la pièce étudiée et les pastilles, afin de savoir si ces différences peuvent être causées par des impuretés émettrices de rayonnements de faible ampleur.

Si cela s'avérait nécessaire, le logiciel μ S devrait permettre de déduire la dose à l'intérieur du matériau, connaissant la dose en surface grâce aux mesures précédentes. Le recours aux forages ne serait alors plus nécessaire. Enfin, il serait intéressant de vérifier ces constatations notamment quant à la transparence des neutrons, avec d'autres matériaux considérés comme purs, telles que les conducteurs de cuivre OFHC, autre matériau constitutif d'un quadropôle.

11 Les résultats ont été obtenus à l'aide d'un détecteur CANBERRA Ge CoAx Extended Range (GX2518), support court.

7. Références bibliographiques.

- BETTE L, Radioprotection et dosimétrie physique des radiations, Université libre de Bruxelles
- CRAYBECK B, *Première contribution à l'étude du déclassement des accélérateurs*, (mémoire), Louvain, 1991-1992
- FRIEDLANDER Gerhart, KENNEDY Joseph.W, MACIAS Edward.S, MILLER Jullian Malcolm, *Nuclear and Radiochemistry*, Wiley-Interscience Publication, 3rd Edition, 1981
- GROVE ENGINEERING, INC., *MicroShield Version 4 : User's Manual*, Grove, 1992-2
- HINE G.J, BROWELL G.L, *Radiation Dosimetry*, Boston Massachusetts, Academic Press inc. Publishers, New York, 1956
- <http://www.emse.fr/fr/transfert/spin/formation/ressources/sam96/fichierspdf/luminesc.pdf>
- JAEGER R.G, BLIZARD E .P, CHILTON A.B, GROTENHUIS M, HÖNIG A, JAEGER Th.A, EISENLOHR H.H, *Engineering Compendium on Radiation Shielding*, New York, 1970
- NAESSENS E.P, XU X.G, *A non destructive method to determine the depth of radionuclides in materials IN-SITU*
- PIRART Claude, *Le cyclotron de l'Institut National des Radioéléments- "IRE" Fleurus, Belgique* dans Revue IRE Tijdschrift, Vol 9, n°3, 1985
- SCHEID F, Theory and Problems of Numerical Analysis, Schaum's outline series, Mc Graw Hill book company, 1968