



CETAMA

DOSSIER DE RECOMMANDATIONS POUR
L'OPTIMISATION DES MESURES

Mesure du rayonnement alpha

coordonnateurs :
Éric Ansoborlo
Jean Aupiais
Nicolas Baglan

Editions
TEC
& **DOC**

Lavoisier

DOSSIER DE RECOMMANDATIONS
POUR L'OPTIMISATION DES MESURES

Mesure du rayonnement alpha

Éric Ansoborlo
Jean Aupiais
Nicolas Baglan
Coordonnateurs

CETAMA

Commission d'établissement des méthodes
d'analyse du Commissariat
à l'énergie atomique



11, rue Lavoisier
75008 Paris

Du même auteur chez le même éditeur

Spectrométrie gamma appliquée aux échantillons de l'environnement
Dossier de recommandations pour l'optimisation des mesures
CETAMA, G. Le Petit, G. Granier (coord.), 2002

Modélisation et estimation des erreurs de mesure
CETAMA, M. Neuilly, 2^e édition, 1998

Modelling and estimation of measurement errors
CETAMA, 1998

Contrôle des performances des mesures industrielles
CETAMA, 1998

Précision des dosages de traces : répétabilité et limite de détection
CETAMA, 1996

Direction éditoriale : Emmanuel Leclerc

Édition : Élodie Lecoquerre

Mise en pages : Atelier SMB

Couverture : Isabelle Godenèche

Fabrication : Estelle Perez



© LAVOISIER, 2012

ISBN : 978-2-7430-1414-8

Toute reproduction ou représentation intégrale ou partielle, par quelque procédé que ce soit, des pages publiées dans le présent ouvrage, faite sans l'autorisation de l'éditeur ou du Centre français d'exploitation du droit de copie (20, rue des Grands Augustins, 75006 Paris), est illicite et constitue une contrefaçon. Seules sont autorisées, d'une part, les reproductions strictement réservées à l'usage privé du copiste et non destinées à une utilisation collective, et, d'autre part, les analyses et courtes citations justifiées par le caractère scientifique ou d'information de l'œuvre dans laquelle elles sont incorporées (Loi du 1^{er} juillet 1992 - art. L 122-4 et L 122-5 et Code pénal art. 425).

Préface

On peut penser que le premier être humain à avoir observé le rayonnement alpha est Marie Curie, après la découverte du polonium en juillet 1898. Elle le nomme tout d'abord « rayon non déviable », seul rayon émis par cet élément, selon elle (mais ce n'est pas loin de la vérité). Ce qui est surprenant est la rapidité avec laquelle sont obtenues les propriétés de ce rayon : étant « plus absorbable que l'épaisseur de matière est grande », il se comporte donc comme un projectile (ce qui est nouveau à l'époque), pouvoir qui disparaît après un parcours dans l'air, qui est toujours le même, 4 centimètres. Sa très grande absorbabilité par un matériau dense est mise en évidence à la fin du XIX^e siècle et donc, le fait qu'une source d'élément émetteur α doive être disposée en couche mince s'impose dès cette époque.

Sa traversée dans l'air se fait par ionisation de ce mélange gazeux. Toutefois, dès 1905, Bragg et Kleeman, en étudiant les rayons alpha émis par les radium A et C (respectivement le polonium 218 et le bismuth 214) montrent que les trajectoires qu'ils mesurent avec une très grande précision, dépendent de leur élément-source.

Comme on le voit, le décor est planté très tôt, avant la découverte de la structure même de l'atome. Ce rayonnement α est bien nommé puisqu'on sait qu'il sera à l'origine de la mise en évidence de la structure nucléaire de l'atome. En offrant à Rutherford une source de polonium afin qu'il mène ses expériences avec une source plus intense que le radium, Pierre et Marie Curie ont offert en fait un outil fantastique à la physique mondiale pour explorer la matière et faire ainsi une avancée considérable dans la connaissance humaine. Ce rayonnement sera aussi celui utilisé pour la découverte de la radioactivité artificielle, une génération plus tard, par la fille et le gendre des Curie, Irène et Frédéric Joliot. La boucle sera bouclée.

Aujourd'hui, des décennies plus tard, tous ces phénomènes sont bien connus et bien maîtrisés. Il était important toutefois de faire le point sur les différentes techniques de préparation des sources, de mesure et sur les performances actuelles des

détecteurs. En effet, ne serait-ce que parce qu'il est le rayonnement principal émis par les précurseurs et descendants des chaînes d'uranium et de thorium, ne serait-ce que parce qu'il est également l'un des principaux rayonnements émis dans les applications électrogènes de l'industrie nucléaire, sa détection est primordiale, que ce soit pour le contrôle de l'environnement ou le suivi de toute opération technique industrielle. La préparation des sources nécessite un soin et un savoir-faire tout à fait particulier ; la chimie qui y est associée est, elle aussi, très spécifique.

C'est la raison pour laquelle cette mission de collecter toutes les informations métrologiques pour en faire un dossier de recommandation pour l'optimisation des mesures de rayonnement α ne pouvait être confiée qu'à des spécialistes dont les connaissances et les compétences sont les fruits de nombreuses années de recherche et de pratique. Ceux-ci sont réunis au sein de la CETAMA et il était indispensable que cette tâche leur fût confiée. Nul doute que ce document sera un outil précieux pour toutes celles et tous ceux qui mesurent et contrôlent la radioactivité.

Professeur Jacques Foos

Liste des auteurs

Ce document a été rédigé par un groupe de travail qui s'est réuni d'avril 2007 à 2011 et dont les membres figurent ci-dessous :

ANSOBORLO Éric
CEA/DEN/MAR

AUPIAIS Jean
CEA/DAM/DIF

BAGLAN Nicolas
CEA/DAM/DIF

BERTAUX Maité
CEA/DEN/CAD

BISCARRAT Christine
CEA/DEN/MAR

BONNIEC Frédéric
CEA/DSM/SAC

CURNIER Jean Pierre
AREVA-NC/Marcoule

DECOSSE Hélène
ARENA-NC/La Hague

DUDA Jean Marie
CEA/DAM/VA

FLORIS-FLEURY Sandrine
IRSN/DEI

GRANGEON Thomas
CEA/DEN/SAC

HENRY Agnès
ARENA-NC/La Hague

LIOZON Gérard
CEA/DEN/MAR

LOSSET Yvan
CEA/DAM/VA

MAILLARD Christophe
CEA/DEN/MAR

MALOUBIER Didier
CEA/DAM/VA

MOKILI Bandombele Marcel
SUBATECH (EMN, CNRS/IN2P3,
Université de Nantes)

PIERRE Sylvie
CEA/DRT/LIST/LNHB

LOIDL Martin
CEA/LIST/LNHB/LMA

POILANE Françoise
AREVA/SGN

TAUVEL Yves
EAMEA/SRD/GEA Marine

RAMADIER Jean Jacques
CEA/DEN/MAR

TENAILLEAU Lionel
EAMEA/SRD/GEA Marine

Avant sa diffusion, il a fait l'objet d'une relecture par les experts suivants :

CASSETTE Philippe
CEA/DRT/LIST/LNHB/LMA

FOOS Jacques
Professeur

CHEVALLIER Pierre
Professeur

Table des matières

Préface	III
Liste des auteurs	V
Introduction	1

Chapitre 1

Documents de référence

1. Documents scientifiques et techniques	3
1.1. Principes physiques	3
1.2. Calculs statistiques	4
1.3. Documents spécifiques	4
1.4. Références relatives au management de la qualité	4
2. Documents normatifs	4
2.1. Références normatives relatives au management de la qualité et environnement	4
2.2. Références normatives relatives à la technique utilisée ou à l'échantillonnage	5
3. Données nucléaires	6

Chapitre 2

Radioactivité alpha naturelle et artificielle

1. Découverte du rayonnement alpha	9
2. Radioactivité alpha naturelle	10
2.1. Exposition naturelle	10
2.2. Radioactivité tellurique	10

3. Radioactivité alpha artificielle	13
3.1. L'exposition médicale	13
3.1.1. Le thorotrast	13
3.1.2. L'alpha-immunothérapie	13
3.2. L'exposition d'origine industrielle	14
3.2.1. Industries non nucléaires	14
3.2.2. L'industrie électronucléaire	14
3.2.3. L'utilisation militaire	15
4. Méthode de datation par les phénomènes nucléaires	15
4.1. Principes	15
4.2. Chronomètres naturels	17
4.3. Méthodes de datation par les déséquilibres dans les familles de l'uranium	17
Références bibliographiques	18

Chapitre 3

Les rayonnements alpha : émissions et interactions

1. Émission des particules alpha	19
1.1. Principe théorique de l'émission alpha	19
1.2. Probabilité de désintégration alpha et constante radioactive	20
1.3. Systématique de la désintégration alpha	21
1.4. Structure fine de l'émission alpha	22
2. Interaction des particules alpha avec la matière	24
2.1. Pouvoir d'arrêt	27
2.2. Parcours dans la matière	28
Références bibliographiques	29

Chapitre 4

Préparation des sources

1. Objectifs et spécificité des dépôts	31
2. Le dépôt direct	32
2.1. Principe	32
2.2. Mise en œuvre et précautions	32
2.3. Avantages et inconvénients	33
3. Dépôts directs des solutions organiques	34
4. Le dépôt spontané – cas du polonium	37
5. Fabrication des sources alpha par coprécipitation	37
5.1. Aspects théoriques	37
5.1.1. Loi de Berthelot-Nernst	37
5.1.2. Loi de Doerner-Hoskins	38
5.2. Aspects pratiques	38
6. L'électrodépôt	40
6.1. Principe	40

6.2. Mise en œuvre et précautions	41
6.1. Avantages et inconvénients	44
7. Les sources alpha pour la scintillation liquide	45
7.1. Principe	45
7.2. Mise en œuvre et précautions	45
Références bibliographiques	48

Chapitre 5

Mesure du rayonnement alpha

1. Généralités sur la détection des rayonnements alpha	49
1.1. Comptage alpha global	49
1.2. Spectrométrie alpha	50
2. Étalonnage et détermination du bruit de fond pour les mesures de rayonnement alpha	52
2.1. Bruit de fond	52
2.2. Étalonnage	53
2.2.1. Étalonnage en énergie (uniquement pour la spectrométrie) . .	54
2.2.2. Rendement de comptage	54
3. Comptage alpha global	57
3.1. Compteur proportionnel	57
3.1.1. Principe	57
3.1.2. Collectage des charges : formation du signal	58
3.1.3. Appareillage	60
3.1.4. Performances	62
3.1.5. Avantages et inconvénients	63
3.2. Scintillateur solide	63
3.2.1. Principe	64
3.2.2. Appareillage	66
3.2.3. Performances	68
3.2.4. Avantages et inconvénients	69
4. Spectrométrie	72
4.1. Généralités	72
4.2. Spectromètre alpha avec chambre à grille	75
4.2.1. Principe	75
4.2.2. Appareillage	78
4.2.3. Performances	80
4.2.4. Avantages et inconvénients	81
4.3. Spectromètre alpha avec détecteur semi-conducteur	82
4.3.1. Principe	82
4.3.2. Caractéristiques des semi-conducteurs	86
4.3.3. Principe	88
4.3.4. Performances	90
4.3.5. Avantages et inconvénients	91
5. Scintillation liquide et scintillation PERALS	91
5.1. La scintillation liquide	91

5.1.1. Principe	91
5.1.2. Étalonnage avec des radionucléides se désintégrant par transitions alpha	96
5.1.3. Conclusion	98
5.2. La technique PERALS	98
5.2.1. Principe	98
5.2.2. Appareillage	100
5.2.3. Préparation des échantillons avant mesure	102
5.2.4. Performances	102
5.2.5. Avantages et inconvénients	103
6. Synthèse des différentes techniques employées pour la mesure du rayonnement alpha	104
Références bibliographiques	105

Chapitre 6

Expression des résultats

1. Définitions métrologiques	108
2. Recherche et identification des pics, vérification de la dérive en énergie	108
3. Traitement des spectres	110
3.1. Estimation du bruit de fond	110
3.2. Estimation des aires de pics	111
3.2.1. Introduction	111
3.2.2. Traitement manuel	112
3.2.3. Traitement automatique et semi-automatique : déconvolution	116
3.3. Cas particuliers des spectres alpha obtenus par scintillation liquide alpha (PERALS®)	126
4. Interprétation des résultats	130
4.1. Estimation des activités et des incertitudes	131
4.1.1. Cas de la spectrométrie alpha	133
4.1.2. Cas des comptages alpha	139
4.2. Seuil de décision – limite de détection	141
4.2.1. Introduction	141
4.2.2. Situation du problème	141
4.2.3. Définitions	142
5. Rapport d'analyse	146
5.1. Expression complète des grandeurs	146
5.2. Nombre de chiffres significatifs	146
5.3. Écriture du résultat	147
5.4. Informations reportées sur le rapport d'analyse <i>a minima</i>	148
5.5. Informations complémentaires	148
Références bibliographiques	149

Chapitre 7

Comparaison des techniques non radiométriques

1. La spectrométrie de masse à ionisation secondaire	151
2. La spectrométrie de masse à ionisation résonnante (RIMS)	152
3. La spectrométrie de masse couplée à une source à thermo-ionisation (SMTI ou TIMS)	152
4. La spectrométrie de masse couplée à une source à plasma (Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry : ICP-MS)	152
5. La spectrométrie de masse par accélérateur (SMA)	153
6. Comparaison des différentes techniques	153
Références bibliographiques	156

Chapitre 8

L'assurance qualité et la spectrométrie alpha

1. Introduction	157
2. Achats de fournitures et équipements	158
2.1. Achats de fournitures	158
2.2. Achats d'équipements	158
2.2.1. Fiche signalétique	159
2.2.2. Fiche de vie	160
2.2.3. Fiche de maintenance	160
2.2.4. Fiche d'intervention	160
2.3. Autorisations spécifiques pour les achats de radionucléides	160
3. Installations et conditions ambiantes	160
3.1. Détention de sources radioactives	160
3.2. Locaux	162
4. Méthodes d'essai et d'étalonnage et validation des méthodes	162
4.1. Étalonnage et vérification	162
4.1.1. Étalonnage	162
4.1.2. Vérifications	163
4.2. Validation des méthodes	163
5. Conclusion	164
Références bibliographiques	164

Annexe 1

Exemple d'appareillage avec un détecteur à semi-conducteur : mesure en angle solide défini

1. Principe	165
2. Électronique	167
2.1. Incertitudes associées : exemples de facteurs de correction	167
2.1.1. Période du radionucléide	167
2.1.2. Temps mort	167
2.1.3. Angle solide	168

2.1.4. Intensité d'émission	168
2.1.5. Diffusions	168
2.1.6. Horloge	169
2.1.7. Reproductibilité	169
2.1.8. Spectre	169
2.2. Incertitude sur l'intégrale du spectre.....	170
2.3. Incertitude sur l'extrapolation	170
Références bibliographiques	171

Annexe 2

Détecteurs cryogéniques pour la spectrométrie alpha

1. Introduction.....	173
2. Conclusion	177
Références bibliographiques	177

Annexe 3

Métrologie d'activité

1. Méthode du rapport des coïncidences triples à doubles	179
--	-----

Glossaire	183
------------------------	------------

Introduction

Le « Dossier de Recommandations pour l'OPTimisation des mesures du rayonnement alpha » (DROP alpha) a été conçu comme un document pratique à l'usage des laboratoires en apportant des informations dans le domaine :

- de la préparation des sources pour la mesure par spectrométrie alpha ;
- de la mise en œuvre des mesures pour chaque technique : le compteur proportionnel, la spectrométrie alpha avec semi-conducteur, la chambre à grille et la scintillation liquide ;
- de l'assurance de la qualité.

Ce dossier est une œuvre collective dont l'ambition est de rassembler les connaissances de base aussi bien pratiques que théoriques nécessaires à tout opérateur souhaitant utiliser la spectrométrie alpha comme méthode d'analyse quantitative et qualitative.

Ce dossier n'a pas pour vocation d'explorer dans le détail la méthodologie requise pour élaborer des sources radioactives, pour effectuer une mesure avec une chaîne correctement calibrée et pour interpréter les spectres obtenus à l'aide de logiciels dédiés. En revanche, il a pour but de donner au lecteur les éléments lui permettant d'éviter tout écueil méthodologique et biais expérimental.

Ainsi, il synthétise le savoir-faire des laboratoires dans la fabrication des sources minces en donnant les règles simples mais nécessaires ainsi que des informations permettant d'appréhender les limites physiques et chimiques des sources minces.

Il liste les techniques relatives à la détection des particules alpha en décrivant, pour chacune d'elles, la sensibilité, les avantages et inconvénients, le champ d'action.

Il apporte de manière aussi simple que possible les outils mathématiques requis pour déconvoluer les spectres selon les techniques employées et donne des exemples de traitement qui permettent d'appréhender la complexité des cas rencontrés.

Il fournit à l'utilisateur les bases pratiques et théoriques indispensables à la production de résultats fiables et validés. Il inclut et discute les dernières réflexions dans le calcul des seuils de décision et limites de détection.

Composition et mise en pages

S M B

17, rue Auguste Frot

77590 Bois le Roi

Utilisé dans le domaine médical, présent dans l'industrie militaire ou encore électronucléaire, le rayonnement alpha constitue l'un des principaux rayonnements dont la détection et la mesure sont primordiales, que ce soit pour le contrôle de l'environnement, le suivi de toute opération technique industrielle ou la mesure de l'impact de la radioactivité sur la santé.

Cet ouvrage rassemble les connaissances de base, aussi bien pratiques que théoriques, ainsi que les recommandations nécessaires à tout opérateur, technicien ou ingénieur souhaitant utiliser la spectrométrie alpha comme méthode d'analyse quantitative et qualitative tout en lui évitant tout écueil méthodologique et biais expérimental.

Il apporte ainsi des informations dans les domaines :

- de la préparation des sources pour la mesure par spectrométrie alpha ;
- de la mise en œuvre des mesures pour chaque technique : compteur proportionnel, spectrométrie alpha avec semi-conducteur, chambre à grille et scintillation liquide ;
- du traitement et de l'expression des résultats ;
- de l'assurance de la qualité.

Ainsi, **Mesure du rayonnement alpha** synthétise le savoir-faire des laboratoires dans la fabrication des sources minces en donnant les règles simples mais nécessaires ainsi que des informations permettant d'appréhender les limites physiques et chimiques des sources minces. Il liste les techniques relatives à la détection des particules alpha en décrivant, pour chacune d'elles, la sensibilité, les avantages et inconvénients, et le champ d'action. Il apporte de manière aussi simple que possible les outils mathématiques requis pour déconvoluer les spectres selon les techniques employées et donne des exemples de traitement qui permettent d'appréhender la complexité des cas rencontrés. Il fournit à l'utilisateur les bases pratiques et théoriques indispensables à la production de résultats fiables et validés. Enfin, il inclut et discute les dernières réflexions dans le calcul des seuils de décision et limites de détection.

www.lavoisier.fr



978-2-7430-1414-8