



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<sup>e</sup> 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<sup>er</sup> 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<sup>e</sup> siècle et donc, le fait qu'une source d'élément émetteur  $\alpha$  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  $\alpha$  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  $\alpha$  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 radio-activité.

*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. Étalonage 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
--	-----

<b>Glossaire .....</b>	<b>183</b>
------------------------	------------

# *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](http://www.lavoisier.fr)



978-2-7430-1414-8