

Détermination d'une correction de l'efficacité de détection aux basses énergies par simulation Monte-Carlo, en réponse aux problèmes des effets d'auto-absorption en spectrométrie gamma

Déborah Degrelle, Jean-Emmanuel Groetz, Christophe Mavon
Damien Rius, Laurent Millet

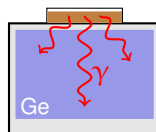
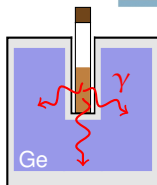
Laboratoire Chrono Environnement
UMR CNRS 6249

Université de Bourgogne Franche-Comté



Introduction : la spectrométrie γ

CHRONO
ENVIRONNEMENT

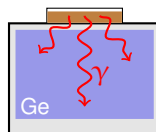
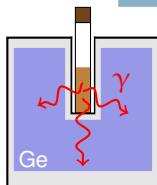


Quantification des photons gamma

- surveillance de la radioactivité dans l'environnement,
- métrologie,
- datation de sols, de sédiments ...

Introduction : la spectrométrie γ

CHRONO
ENVIRONNEMENT

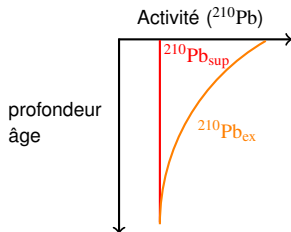
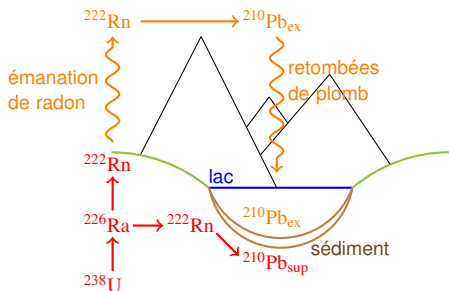


Quantification des photons gamma

- surveillance de la radioactivité dans l'environnement,
- métrologie,
- datation de sols, de sédiments ...

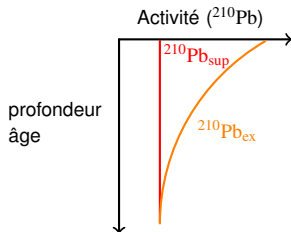
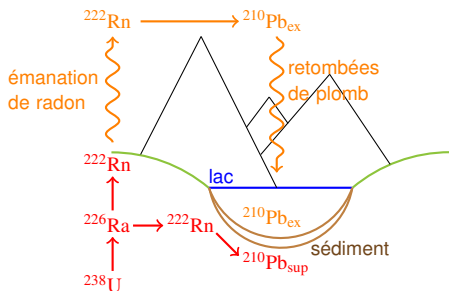
Introduction : la datation au ^{210}Pb

- provient de la filiation radioactive de ^{238}U
- photons γ caractéristiques à **faible énergie** : 46,5 keV



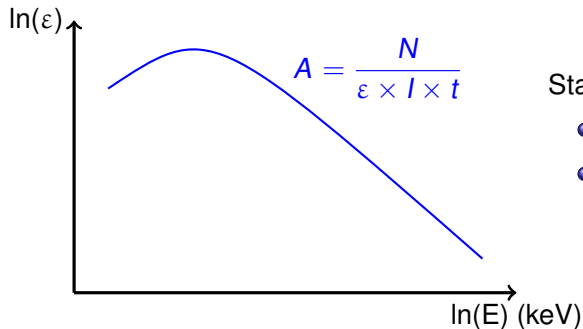
Introduction : la datation au ^{210}Pb

- provient de la filiation radioactive de ^{238}U
- photons γ caractéristiques à **faible énergie** : 46,5 keV



Comment déterminer l'activité ?

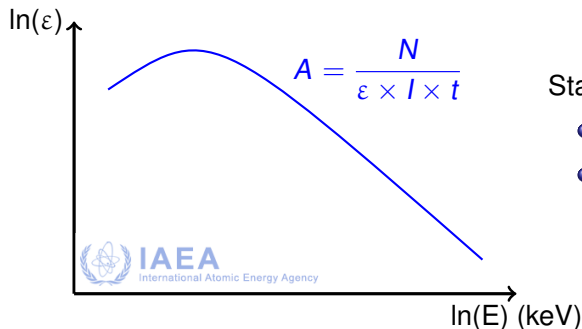
Étalonnage expérimental



Standard :

- radioéléments connus
- activités connues

Étalonnage expérimental

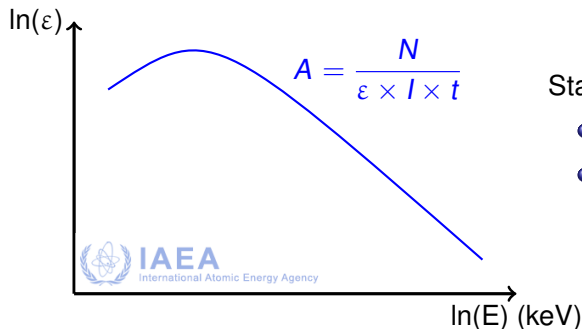


Standard :

- radioéléments connus
- activités connues

⇒ choix : standard IAEA-447

Étalonnage expérimental



Standard :

- radioéléments connus
- activités connues

⇒ choix : standard IAEA-447

Est-ce le bon choix par rapport aux échantillons sédimentaires ?

Problème d'auto-absorption

Caractéristiques :

- épaisseur,
- masse volumique,
- composition chimique

⇒ Sont-elles identiques ?

Problème d'auto-absorption

Caractéristiques :

- épaisseur,
- masse volumique,
- composition chimique

⇒ Sont-elles identiques ?

NON

Problème d'auto-absorption

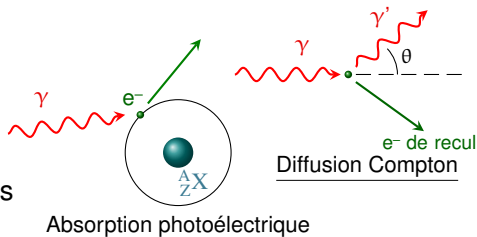
Caractéristiques :

- épaisseur,
- masse volumique,
- composition chimique

⇒ Sont-elles identiques ?

NON

Influence sur les
interactions γ /matière
régies par les sections efficaces
(Z et énergie)



Problème d'auto-absorption

Caractéristiques :

- épaisseur,
- masse volumique,
- composition chimique

⇒ Sont-elles identiques ?

NON

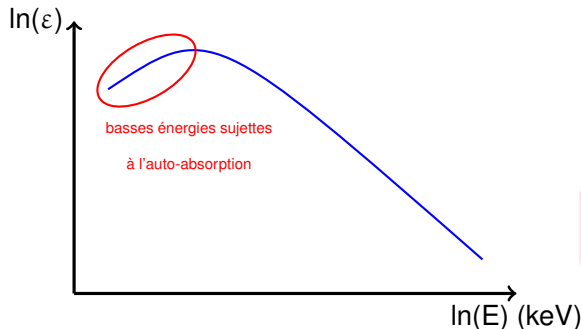
standard

≠

échantillons sédimentaires

degré d'auto-absorption du
rayonnement, différent

Efficacité biaisée
aux basses énergies



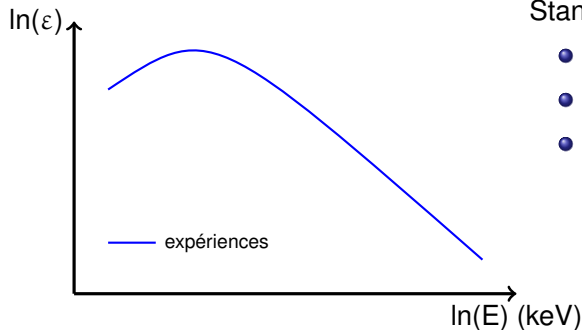
Standard idéal

Standard idéal :

- même épaisseur
- même masse volumique
- même composition chimique

Simulation
numérique ?

Standard idéal

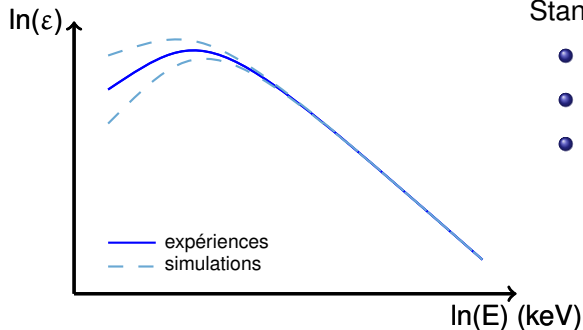


Standard idéal :

- même épaisseur
- même masse volumique
- même composition chimique

Simulation
numérique ?

Standard idéal



Standard idéal :

- même épaisseur
- même masse volumique
- même composition chimique

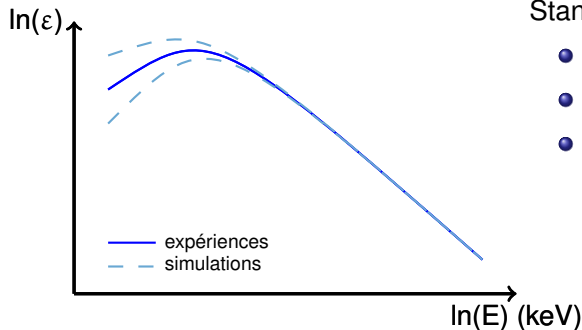
Simulation
numérique ?

échantillon virtuel

≡

échantillon sédimentaire

Standard idéal



Standard idéal :

- même épaisseur
- même masse volumique
- même composition chimique

Simulation
numérique ?

échantillon virtuel

≡

échantillon sédimentaire

- épaisseur ✓
- masse volumique ✓
- composition chimique ✗

Coefficient d'atténuation massique

Nouvelle méthode ^[1] pour déterminer μ_m :

- par simulations et expériences,
- à basse énergie.

$$\mu_m = \sum(\mu_{mi} \cdot \omega_i)$$

Composition virtuelle $\implies$ même degré d'atténuation

^[1] Degrelle et al. NIMA 816 (2016) 47

Coefficient d'atténuation massique

Nouvelle méthode ^[1] pour déterminer μ_m :

- par simulations et expériences,
- à basse énergie.

$$\mu_m = \sum (\mu_{mi} \cdot \omega_i)$$

Composition virtuelle $\implies$ même degré d'atténuation

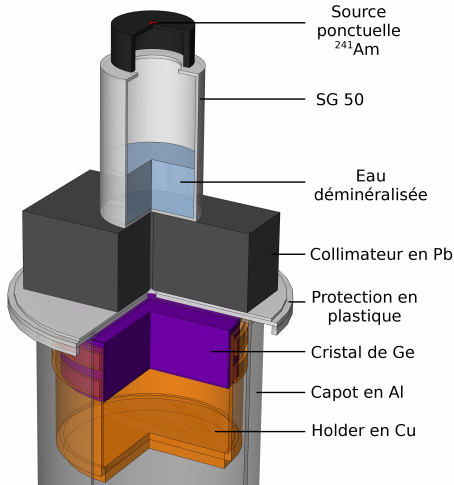
Vérification de la méthode :

- étude sur de l'eau déminéralisée,
- étude à 59,54 keV (^{241}Am),
- μ_m connu grâce aux bases de données,

$$\mu_m(\text{H}_2\text{O}) = 0,2066 \text{ cm}^2 \cdot \text{g}^{-1} \\ \text{à } 59,54 \text{ keV}$$

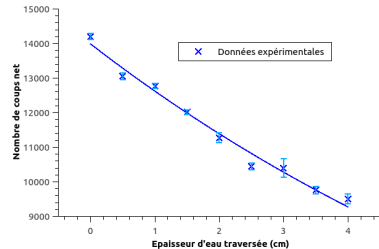
^[1] Degrelle et al. NIMA 816 (2016) 47

1^{ère} étape : dispositif expérimental



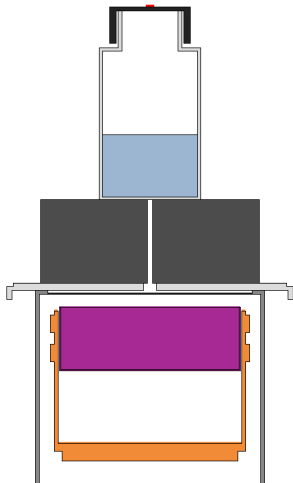
Série d'acquisitions en faisant varier la hauteur de l'eau dans le flacon SG 50
⇒ permet de travailler à plusieurs hauteurs

$$N = N_0 \cdot \exp(-\mu_L \cdot x)$$



2^{ème} étape : simulation Monte-Carlo

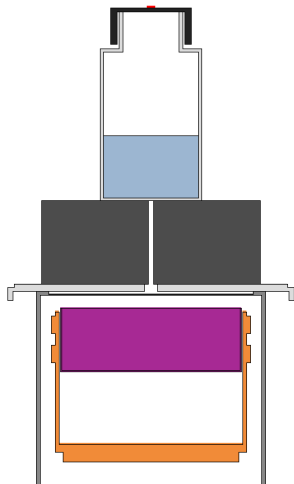
MCNP6



- modélisation des géométries
 - choix des matériaux
 - choix des densités
 - choix des énergies des photons incidents
- simulation des processus physiques
 - interactions entre photons γ et matière

2^{ème} étape : simulation Monte-Carlo

MCNP6



- modélisation des géométries
 - choix des matériaux
 - choix des densités
 - choix des énergies des photons incidents
- simulation des processus physiques
 - interactions entre photons γ et matière

La simulation doit être fidèle à l'expérience !

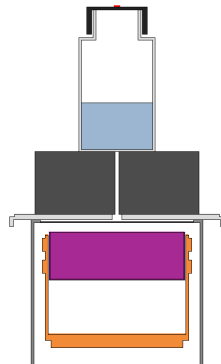
$$f = \frac{N(\text{exp})}{N(\text{MCNP6})}$$

Energie	59,54 keV	>100 keV
Facteur correctif	0,77	~ 1

But de la simulation

$N_{simu} = f(\mu_m)$
à 59,54 keV, et pour chaque
hauteur de remplissage

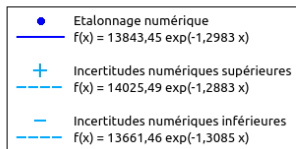
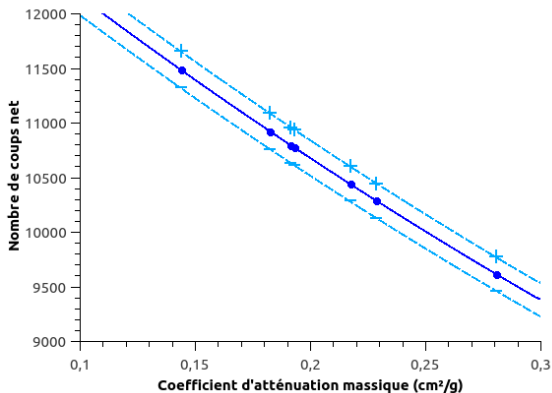
- choix d'éléments au μ_m connu à 59,54 keV
- les μ_m doivent "encadrer" la valeur de $\mu_m(\text{H}_2\text{O}, \text{théorique})$ ($0,2066 \text{ cm}^2.\text{g}^{-1}$)
- densité des matériaux simulés $\equiv$ densité de l'eau déminéralisée ($0,9889 \text{ g.cm}^{-3}$)



Éléments	Li	N	O	F	Ne	Na	Al
μ_m	0,1440	0,1823	0,1915	0,1930	0,2175	0,2286	0,2808

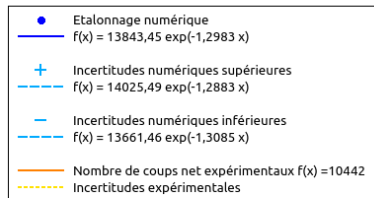
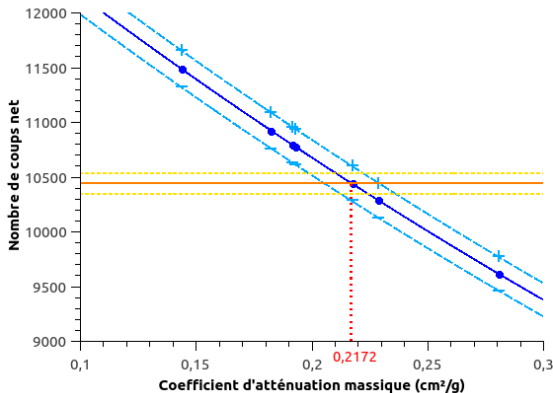
Exemple

Pour une épaisseur d'eau traversée de 2,44 cm



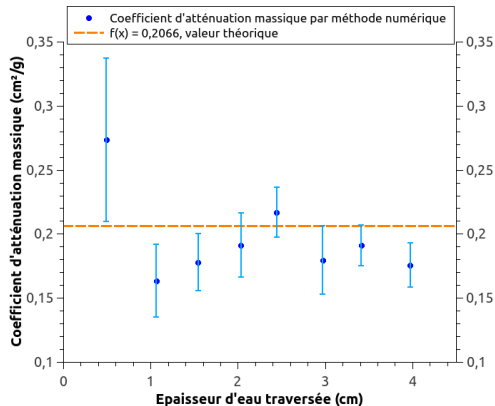
Résultat de l'exemple

Pour une épaisseur d'eau traversée de 2,44 cm



Pour 2,44 cm d'eau traversée
 $\mu_m = 0,2172 \text{ cm}^2 \cdot \text{g}^{-1}$ (9%)

Résultats



- Sur toutes les épaisseurs : $\langle \mu_m \rangle = 0,1964 \pm 0,0350 \text{ cm}^2.\text{g}^{-1}$
- Déviation relative par rapport à la valeur théorique : 4,9 %
- Éviter l'étude sur de faibles épaisseurs

Conclusion

Méthode numérique

fiable !

4,9 % d'erreur

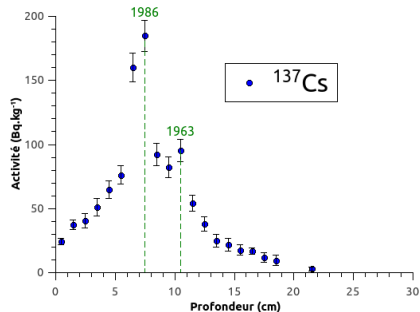
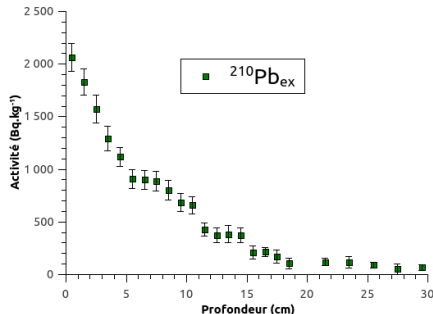
- une seule acquisition nécessaire (favoriser une épaisseur importante)
- connaître parfaitement les caractéristiques du détecteur ou apporter une correction à la modélisation
- applicable pour déterminer μ_m des sédiments

Étude de cas : datation du lac de Longemer

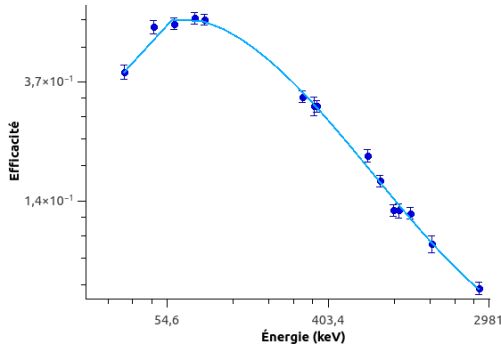
Lac de Longemer
(les Vosges)

Carottage en
2013
Échantillonnage tous
les centimètres

Analyses par le
détecteur puits de Modane



Étalonnage du détecteur puits



Étalonnage expérimental par
le standard IAEA-447

- $h = 2,8 \text{ cm}$
- $\rho = 0,6743 \text{ g.cm}^{-3}$
- composition précise inconnue

Comparaison sédiment et standard

Étalonnage expérimental par le standard IAEA-447

$h = 2,8 \text{ cm}$; $\rho = 0,6743 \text{ g.cm}^{-3}$

échantillons	1	2	3	4	5
$h \text{ (cm)}$	2,8	2,8	2,8	2,8	2,8
$\rho \text{ (g.cm}^{-3}\text{)}$	0,4038	0,3404	0,3309	0,3505	0,3575
échantillons	6	7	8	9	10
$h \text{ (cm)}$	2,8	2,8	2,8	2,8	2,8
$\rho \text{ (g.cm}^{-3}\text{)}$	0,4435	0,4289	0,3987	0,3168	0,3158

Standard IAEA-447 $\neq$ échantillons à analyser

l'efficacité doit être corrigée !

1^{ère} étape : détermination de μ_m

Composition chimique hétérogène le long de la carotte

Cas idéal $\Rightarrow$ détermination de μ_m pour chaque échantillon

- étude longue,
- quantité de matière insuffisante,

1^{ère} étape : détermination de μ_m

Composition chimique hétérogène le long de la carotte

Cas idéal $\Rightarrow$ détermination de μ_m pour chaque échantillon

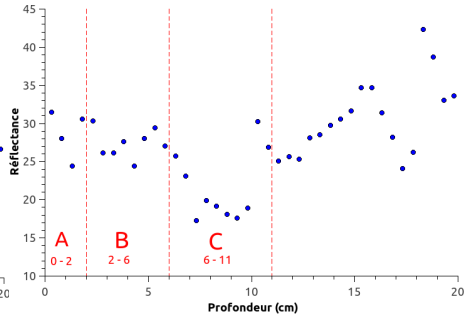
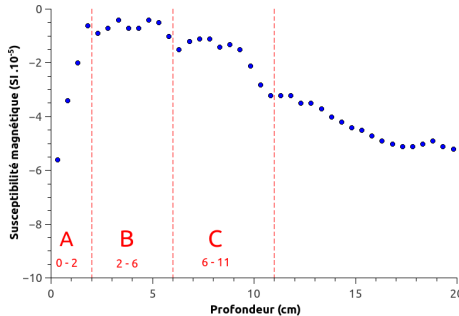
- étude longue,
- quantité de matière insuffisante,

- nouveau carottage en 2016
- regroupement de certains échantillons
- étude sur les 10 premiers cm de la carotte

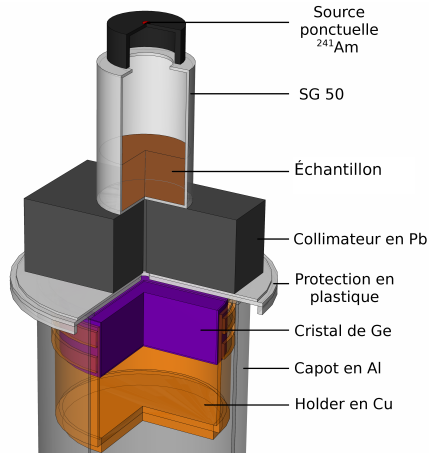
Regroupement des échantillons

Regroupement sur quels paramètres ?

analyse de la carotte par *Sedilog*



Détermination de μ_m par la méthode numérique



Étude à 59,54 keV

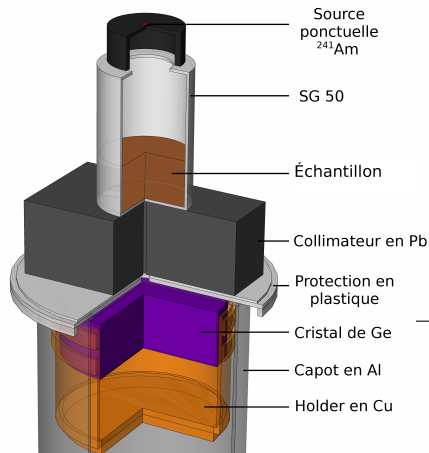
	t (actif)	N_{net}
A	5 h	12213 ± 139
B	7 h	16331 ± 138
C	7 h	14698 ± 121

Détermination de μ_m par la méthode numérique

Étude à 59,54 keV

	t (actif)	N_{net}
A	5 h	12213 ± 139
B	7 h	16331 ± 138
C	7 h	14698 ± 121

groupe	échantillons	μ_m (cm ² .g ⁻¹)
A	1 à 2	$0,5454 \pm 0,0381$
B	3 à 6	$0,3180 \pm 0,0197$
C	7 à 11	$0,4617 \pm 0,0236$



2^{ème} étape : détermination des compositions fictives

Échantillon B : $\mu_m = 0,3180 \text{ cm}^2.\text{g}^{-1}$ à 59,54 keV

$$\mu_m = \sum \mu_{mi} \cdot \omega_i$$

+

Base de données XCOM [2]
(NIST)

$\Rightarrow$

$$\omega_1 + \omega_2 = 1$$

$$\omega_1 \cdot \mu_{m1} + \omega_2 \cdot \mu_{m2} = 0,3180$$

2^{ème} étape : détermination des compositions fictives

Échantillon B : $\mu_m = 0,3180 \text{ cm}^2.\text{g}^{-1}$ à 59,54 keV

$$\mu_m = \sum \mu_{mi} \cdot \omega_i$$

+

Base de données XCOM [2]
(NIST)

$\Rightarrow$

$$\omega_1 + \omega_2 = 1$$

$$\omega_1 \cdot \mu_{m1} + \omega_2 \cdot \mu_{m2} = 0,3180$$

Compo	Mg	Al	Si	P	N_{net}	dév. rel.
1		14,87%	85,13%		16221	0,67%
2	38,05%			61,95%	16209	0,75%
3	9,89%		90,02%		16214	0,72%
4		49,18%		50,82%	16216	0,70%
exp					16331	

[2] Berger et al. Photon Cross Sections Database. < <http://physics.nist.gov/PhysRefData/Xcom/html/xcom1.html> >

2^{ème} étape : détermination des compositions fictives

groupe	μ_m (cm ² .g ⁻¹)	composition retenue
A	0,5454 $\pm$ 0,0381	Ar 31,01% + K 68,99%
B	0,3180 $\pm$ 0,01965	Al 14,87% + Si 85,13%
C	0,4617 $\pm$ 0,0236	S 19,52% + Ar 80,48%



Ce ne sont pas les compositions réelles !

2^{ème} étape : détermination des compositions fictives

groupe	μ_m (cm ² .g ⁻¹)	composition retenue
A	0,5454 $\pm$ 0,0381	Ar 31,01% + K 68,99%
B	0,3180 $\pm$ 0,01965	Al 14,87% + Si 85,13%
C	0,4617 $\pm$ 0,0236	S 19,52% + Ar 80,48%



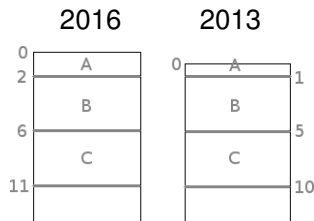
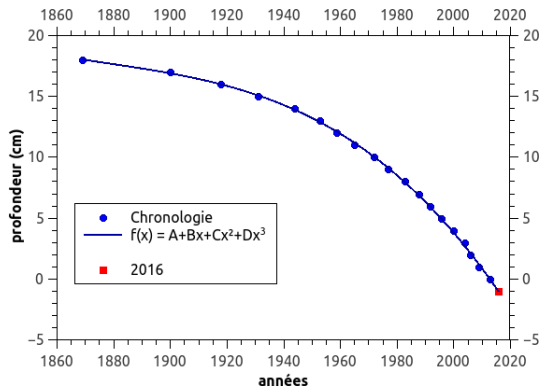
Ce ne sont pas les compositions réelles !

composition
quantifiable



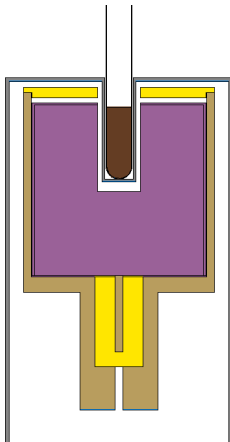
efficacité numérique possible
à 59,54 keV

Ajustement de la carotte de 2016 à celle de 2013



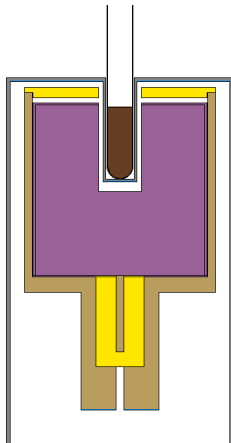
Entre 2013 et 2016, il y a 1,03 cm de sédiment qui s'est déposé

Étalonnage numérique à 59,54 keV



échantillon	groupe	ρ (g.cm ⁻³)
1	A	0,4038
2	B	0,3404
3	B	0,3309
4	B	0,3505
5	B	0,3575
6	C	0,4435
7	C	0,4289
8	C	0,3987
9	C	0,3168
10	C	0,3158

Étalonnage numérique à 59,54 keV

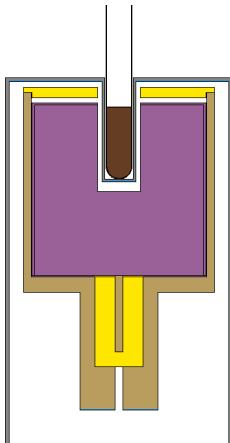


échantillon	groupe	ρ (g.cm ⁻³)	ϵ (simu)	erreur %
1	A	0,4038	0,7119	0,6810
2	B	0,3404	0,7476	0,2898
3	B	0,3309	0,7485	0,2817
4	B	0,3505	0,7465	0,2982
5	B	0,3575	0,7458	0,3041
6	C	0,4435	0,7169	0,4699
7	C	0,4289	0,7190	0,4554
8	C	0,3987	0,7232	0,4250
9	C	0,3168	0,7350	0,3408
10	C	0,3158	0,7351	0,3397

$$\epsilon(\text{exp}) = 0,6 \text{ avec standard IAEA-447}$$

$$\rho = 0,6743 \text{ g.cm}^{-3}$$

Étalonnage numérique à 59,54 keV



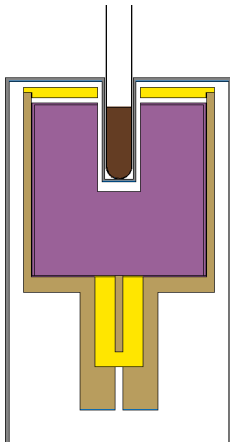
échantillon	groupe	ρ (g.cm ⁻³)	ϵ (simu)	Correction
1	A	0,4038	0,7119	1,187
2	B	0,3404	0,7476	1,246
3	B	0,3309	0,7485	1,248
4	B	0,3505	0,7465	1,244
5	B	0,3575	0,7458	1,243
6	C	0,4435	0,7169	1,195
7	C	0,4289	0,7190	1,198
8	C	0,3987	0,7232	1,205
9	C	0,3168	0,7350	1,225
10	C	0,3158	0,7351	1,225

$\epsilon(\text{exp}) = 0,6$ avec standard IAEA-447

$\rho = 0,6743$ g.cm⁻³

$$C = \frac{\epsilon(\text{simu})}{\epsilon(\text{exp})}$$

Étalonnage numérique à 59,54 keV



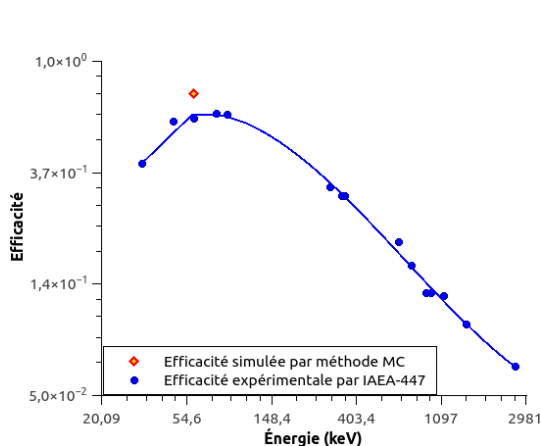
échantillon	groupe	ρ (g.cm ⁻³)	ϵ (simu)	Correction
1	A	0,4038	0,7119	1,187
2	B	0,3404	0,7476	1,246
3	B	0,3309	0,7485	1,248
4	B	0,3505	0,7465	1,244
5	B	0,3575	0,7458	1,243
6	C	0,4435	0,7169	1,195
7	C	0,4289	0,7190	1,198
8	C	0,3987	0,7232	1,205
9	C	0,3168	0,7350	1,225
10	C	0,3158	0,7351	1,225

$$\epsilon(\text{exp}) = 0,6 \text{ avec standard IAEA-447}$$

$$\rho = 0,6743 \text{ g.cm}^{-3}$$

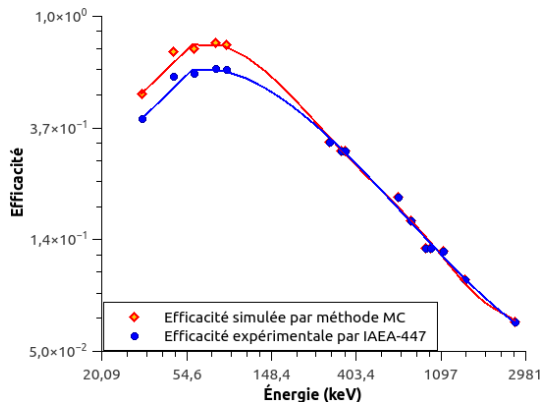
$$C = \frac{\epsilon(\text{simu})}{\epsilon(\text{exp})}$$

Perspectives sur la correction d'auto-absorption



⇒ Réaliser la même étude à d'autres énergies

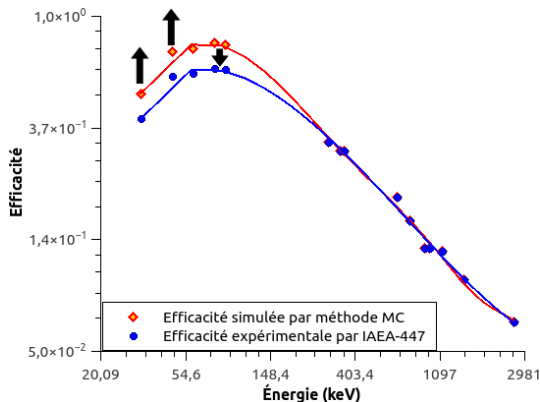
Perspectives sur la correction d'auto-absorption



Correction à
59,54 keV

⇒ Réaliser la même étude à
d'autres énergies

Perspectives sur la correction d'auto-absorption



Correction à
59,54 keV

⇒ Réaliser la même étude à
d'autres énergies

$$C = f(E)$$

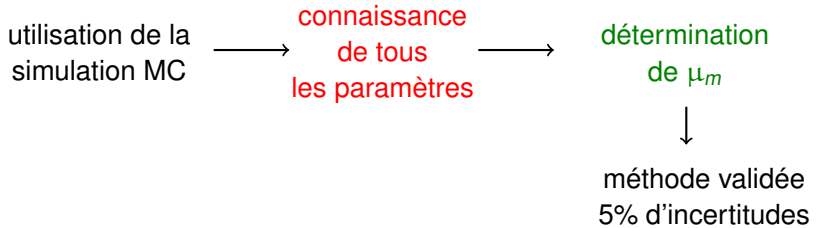
Indispensable !

voir l'impact
sur
la datation

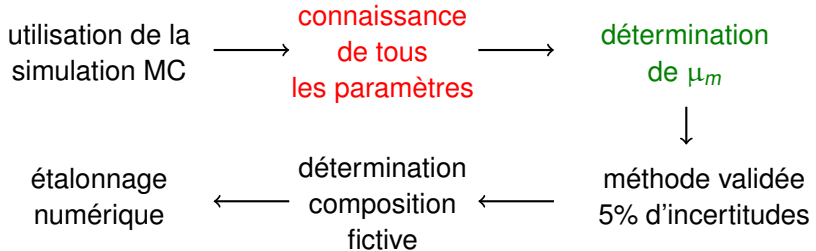
Conclusion

utilisation de la
simulation MC $\longrightarrow$ connaissance
de tous
les paramètres

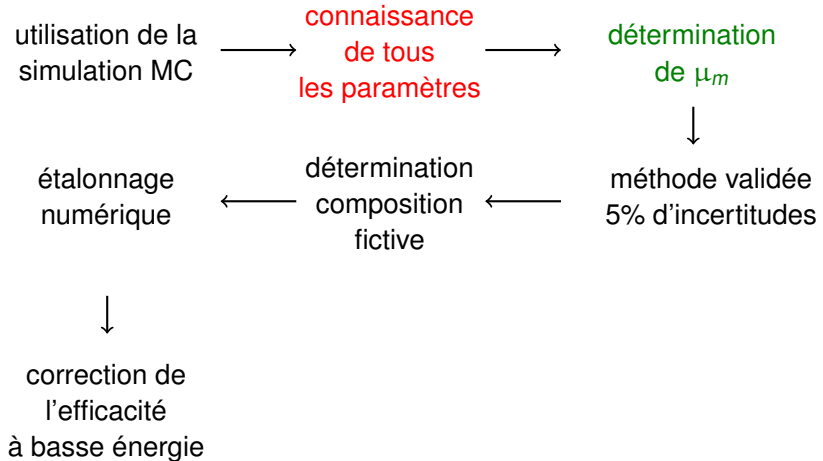
Conclusion



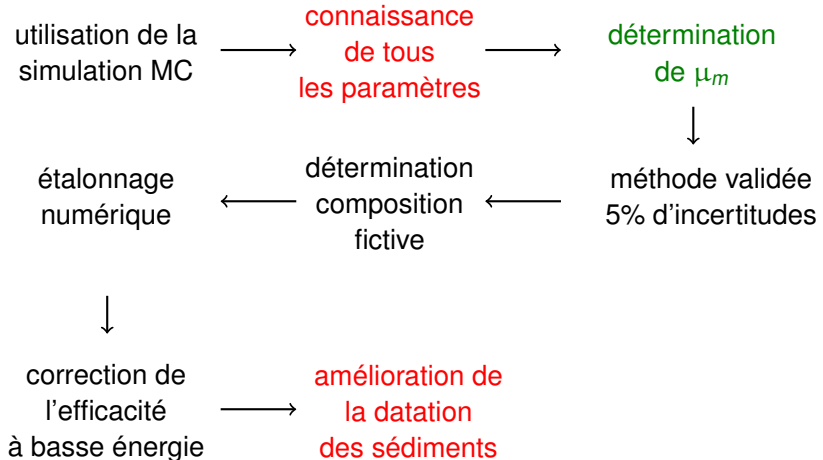
Conclusion



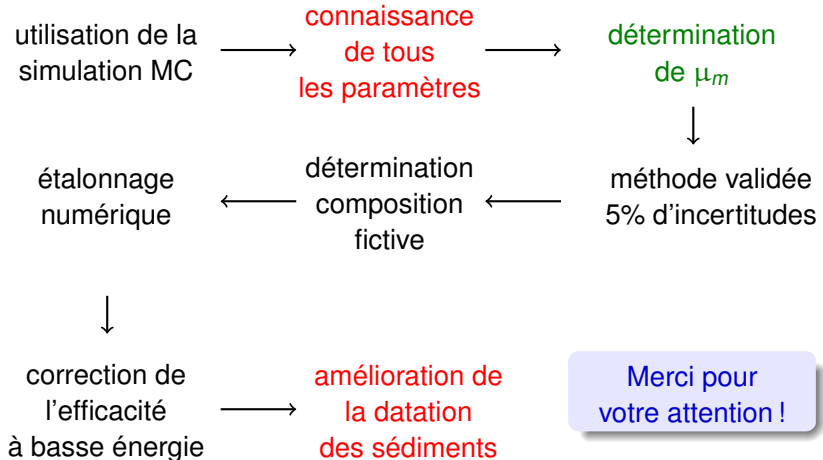
Conclusion



Conclusion



Conclusion



Merci pour
votre attention !