



République Tunisienne



Ministère de l'Enseignement Supérieure

De la recherche Scientifique et de la Technologie

*Université de Monastir*

Institut Supérieure des Sciences Appliquées et de Technologie de Mahdia

**Sujet :**

**Etude par résonance paramagnétique électronique  
(RPE) de polyméthacrylate de méthyle (PMMA)  
irradié par des photons gamma issus de cobalt 60**

**MEMOIRE**

*Pour l'obtention du*

**DIPLOME DU MASTÈRE PROFESSIONNEL EN PHYSIQUE**

***Spécialité : Matière et interactions***

**Réalisé par :**

***JALALI Hajer***

**Soutenu le 03/07/2013**

**Devant le Jury composé de :**

**Président : M. Hafedh Ben Ouada**

**Encadreur ISSAT : M. Khaled Farah**

**Encadreur CNSTN : M. Faouzi Hosni**

**Rapporteur : M. Nawfel Sakli**

**Année universitaire : 2012-2013**

# Remerciements

*En préambule à ce mémoire, je souhaitais adresser mes remerciements les plus sincères aux personnes qui m'ont apporté leur aide et qui ont contribué à l'élaboration de ce mémoire ainsi qu'à la réussite de cette formidable année universitaire.*

*Je tiens à remercier sincèrement Monsieur **Faouzi Hosni**, qui, en tant que Directeur de mémoire, s'est toujours montré à l'écoute et très disponible tout au long de la réalisation de ce mémoire, ainsi pour l'inspiration, l'aide et le temps qu'il a bien voulu me consacrer et sans qui ce mémoire n'aurait jamais vu le jour.*

*Mes remerciements s'adressent également à Monsieur **Khaled Farah**, pour sa générosité et la grande patience dont il a su faire preuve malgré ses charges professionnelles.*

*Mes vifs remerciements vont également aux membres du jury pour l'intérêt qu'ils ont porté à notre recherche en acceptant d'examiner notre travail et de l'enrichir par leurs propositions.*

*Mes remerciements s'étendent également aux personnels du Centre National des Sciences et Technologies Nucléaires (CNSTN) qui par leurs compréhensions et leurs aides, j'ai pu accomplir mon travail.*

*Merci à mes parents qui m'ont toujours épaulée et encouragée dans mes études et dans ma vie en général. Merci également à ma famille et à mes amis pour leur pensée à moi.*

*Enfin, je ne saurai conclure ces remerciements sans une pensée pour mon fiancé Adel qui m'a soutenu tout le long de mastère, merci pour son inquiétude et son aide. Je vous aime tous et que dieu vous protège ♥.*

*Merci* 

# Table des matières

Remerciement.....	i
Liste des Tableaux.....	ii
Liste des Figures.....	iii
Introduction générale.....	1
Présentation du Centre National des Sciences et Technologies Nucléaires (CNSTN).....	4
I. Présentation et mission de la CNSTN.....	4
II. Liste des prestations.....	5
III. Unité pilote de traitement par rayonnements ionisants.....	5
III.1 Mission : Prestation de Services.....	5
III.2 Unité de radiotraitement.....	6
III.2.1 Présentation Générale et Missions.....	6
III.2.2. Unité de Radiotraitement GAMMA.....	6

## Chapitre 1

### Généralités sur les polymères et le PMMA

I. Généralité sur les polymères.....	7
I.1 Origine du terme polymère.....	7
I.2 Historique.....	7
I.3 Définition.....	7
I.4 Classification des polymères.....	8
I.4.1. selon la structure chimique et la microstructure.....	8
I.4.2 Selon l'origine.....	9
I.4.3 Selon les propriétés.....	9
I.4.3.1 Les thermoplastiques.....	9
I.4.3.2 Les thermodurcissables.....	9
I.4.3.3 Les élastomères.....	10
I.4.4 Selon l'importance économique.....	10
I.4.5 Selon le délai d'utilisation.....	11

I.4.6 Selon le mode d'emploi .....	11
I.5 Synthèse des polymères .....	11
I.5.1 Polymérisation en chaîne .....	11
I.5.2 Polymérisation par addition ou condensation.....	11
II. Le polyméthacrylate de méthyle (PMMA) comme modèle .....	12
II.2 Présentation de PMMA.....	12
II.3 Synthèse de PMMA .....	12
II.4 Relation entre la formule chimique et les propriétés de PMMA .....	13
III. Les différents types de PMMA .....	14
III.1 Plaques acryliques coulées (PMMA GS ou CN) .....	14
III.2 Plaques acryliques extrudés (PMMA XT).....	14
IV. Propriétés.....	14
V. Application.....	15

## Chapitre 2

### Rayonnements ionisants et leurs processus d'interactions avec la matière

I. Radioactivité .....	17
II. Rayonnement ionisant .....	18
II.1 Découverte des rayonnements ionisants .....	19
II.2 Rayonnements ionisants utilisés .....	19
II.2.1 Rayonnement $\alpha$ .....	20
II.2.2 Rayonnement $\beta$ .....	20
II.2.3 Rayonnement $\gamma$ .....	21
II.2.4 Les électrons.....	22
II.3 Les sources de rayonnements.....	22
II.3.1 Les sources de rayon bêta.....	22
II.3.2 Les sources de rayon gamma : L'ioniseur gamma.....	22
II.3.2.1 Présentation .....	22
II.3.2.2 Les irradiateurs au Césium 137 .....	23
II.3.3 Les irradiateurs au cobalt 60 .....	23
II.3.3.1 Sources utilisées .....	23
II.3.3.2 Les types d'irradiateurs .....	24

II.3.3.3 Capacité et charge de l'irradiateur.....	24
III. Atomes radioactifs.....	24
III.1 Loi de décroissance radioactive.....	25
III.2 Période radioactive .....	26
III.3 Activité d'un radio élément .....	26
IV. Définition d'un rayonnement ionisant.....	26
IV.1 Rayonnement directement ionisants .....	26
IV.2 Rayonnement indirectement ionisants.....	27
IV.3 Trace d'un rayonnement ionisant dans la matière.....	27
IV.3.1.Interaction des photons $\gamma$ ou X avec la matière .....	27
IV.3.2 Modes d'interaction des photons $\gamma$ avec la matière .....	28
IV.3.2.1'Effet photoélectrique .....	29
IV.3.2.2. Effet Compton .....	30
IV.3.2.3. Effet de matérialisation (Production de paires) .....	31
IV.3.2.4 Synthèse des trois mécanismes .....	32
V. Dosimétrie des rayonnements ionisants.....	35
V.1.Définition de la dosimétrie .....	35
V.2.Rôle de la dosimétrie .....	35
V.3 Grandeurs et unités dosimétriques.....	36
V.3.1 dose absorbée .....	36
V.3.2 débit de dose absorbée .....	36
V.4 Équilibre électronique.....	37
V.5 Techniques de contrôle de traitement par rayonnement ionisant .....	37
V.6 Systèmes dosimétriques.....	38
V.6.1 Classification des systèmes dosimétriques.....	38
V.6.1.3 Système de référence.....	38
V.6.1.5 Système de routine .....	38
V.6.1.5.3 Principe .....	39
V.6.1.5.4 Conditions de l'opération.....	39
V.6.1.5.5 Mode opératoire .....	39
V.6.2 Principaux types de dosimètres .....	40
V.6.2.1 Systèmes dosimétriques physiques .....	40
V.6.2.1.1 Calorimétrie .....	40

V.6.2.1.2 Ionométrie .....	40
V.6.2.1.4 Films dosimètres .....	41
V.6.2.2.2 Dosimètres à base de polymères .....	41
V.6.2.2.3 Dosimètres à radicaux libres .....	41
V.6.2.3.5 Les dosimètres Harwell PMMA .....	41

### Chapitre 3

#### Matériels et méthodes

I. Sources d'irradiation au CNSTN .....	43
II. La spectroscopie par Résonance paramagnétique Electronique (RPE) : .....	47
II.1 Introduction.....	47
II.2 Principe .....	47
II.3 Spectre RPE .....	47
II.4 spectromètre RPE.....	48

### Chapitre 4

#### Résultat et discussion

I. Courbe de réponse en RPE .....	50
II. Effet de la puissance micro-onde .....	50
III. Détermination du centre de la cavité.....	51
IV. Réponse dosimétrique à faible dose .....	52
V. Réponse dosimétrique à haute dose .....	55
VI. Etude cinétique .....	57
VI.1 Cinétique juste après irradiation.....	57
VI.2 Cinétique de décroissance à 1 kGy.....	58
VI.2 Cinétique de décroissance à 5kGy.....	59
VI.4 Cinétique de décroissance à 20kGy.....	60
Conclusion.....	61
Références .....	<b>Erreur ! Signet non défini.</b>

# Liste des figures

Figure 1 : structure supramoléculaire de polymères .....	8
Figure 2 : Formule développée de PMMA.....	14
Figure 3 : courbe du paysage nucléaire $N=f(z)$ .....	18
Figure 4 : spectre électromagnétique .....	18
Figure 5 : Rayonnements ionisants .....	19
Figure 6: Schéma de désintégration du Cobalt60 [5].....	25
Figure 7 : Les différentes interactions d'une particule chargée avec l'atome.....	27
Figure 8 : Atténuation d'un faisceau mono-énergétique de rayons $\gamma$ ou X.....	28
Figure 9: Effets photoélectriques .....	30
Figure 10 : Diffusion Compton collision d'un photon avec un électron au repos .....	30
Figure 11 : création des paires.....	32
Figure12: Importance relative des trois types majeurs d'interactions photon-matière. Établie à partir des tables de coefficients d'atténuation .....	33
Figure 13: mécanisme simplifié d'oxydation d'un polymère .....	34
Figure 14 : macroradical primaire .....	34
Figure 15 : l'irradiateur au cobalt-60 du CNSTN .....	44
Figure 16: Source du Cobalt-60 .....	45
Figure 17 : Plan architectural de l'unité de traitement par rayons $\gamma$ au CNSTN.....	46
Figure 18 : Spectre RPE .....	48
Figure19 : Spectromètre RPE du CNSTN.....	49
Figure 20 : Courbe intensité en fonction de la racine carrée de P.....	51
Figure 21 : réponse RPE d'un échantillon irradié en fonction de sa position par rapport au centre de la cavité.....	52
Figure 22 : Amplitude du signal RPE en fonction du champ magnétique (batch EB) .....	53
Figure 23 : Amplitude du signal RPE en fonction du champ magnétique (batch JF).....	53
Figure 24 : Amplitude du signal RPE en fonction du champ magnétique (batch KS) .....	53
Figure 25 : courbe du signal RPE en fonction de la dose .....	55
Figure 26: Amplitude du signal RPE en fonction du champ magnétique (batch EB) .....	56
Figure 27 : Amplitude du signal RPE en fonction du champ magnétique (batch JF).....	56

Figure 28 : Amplitude du signal RPE en fonction du champ magnétique (batch KS) .....	56
Figure 29: courbe de l'amplitude du signal RPE en fonction de la dose .....	57
Figure 31: courbe cinétique juste après irradiation .....	58
Figure 32 : courbe cinétique de décroissance de 1kGy .....	59
Figure 33 : courbe cinétique de décroissance de 5kGy .....	60
Figure 34: courbe cinétique de décroissance de 20kGy .....	61



# Liste des tableaux

Tableau 1 : exemples des polymères thermoplastiques et thermodurcissables.....	10
Tableau2: Les principaux isotopes émetteurs de rayons gamma .....	23
Tableau 3 : Comparaison entre l'énergie cédée au photon diffusé et celle cédée à l'électron éjecté.....	31
Tableau 4 : Différents types de dosimètres PMMA .....	42
Tableau 5 : légende relative au plan architecturale de l'unité de traitement par rayons .....	46

# Introduction générale

Lorsqu'on parle de nucléaire, les esprits se dirigent généralement vers le nucléaire énergétique, plus précisément la production d'électricité ou l'armement. Cette image dominante du nucléaire ne devrait pas occulter l'autre produit de la recherche nucléaire que constitue l'application des rayonnements et des radioéléments.

Une de ces applications est l'irradiation (ionisation). Cette technique est basée sur l'émission de rayonnements ionisants. L'usage de cette application touche plusieurs domaines tels que la médecine, l'industrie ou l'agriculture.

En ce qui concerne le domaine industriel l'utilisation des rayonnements ionisants est une révolution surtout dans l'industrie agro-alimentaire. L'impact de ces rayonnements sur les produits est de modifier leurs caractéristiques physico-chimiques. Ces modifications doivent être maîtrisées afin de contrôler la quantité d'énergie absorbée par le produit. C'est dans ce contexte que vient la dosimétrie comme étant la science qui permet la mesure de l'énergie absorbée par la matière. Cette mesure se fait par l'intermédiaire d'un dosimètre qui peut être défini comme étant un capteur passif dont la réponse au rayonnement absorbé est mesurable et reproductible.

La dosimétrie joue un rôle important dans le contrôle de la qualité des traitements par rayonnements ionisants, non seulement dans le traitement des produits agro-alimentaires mais également dans le domaine de la stérilisation des produits médicaux et pharmaceutiques ainsi que pour d'autres utilisations des rayonnements. Ces utilisations exigent de grande exactitude sur la détermination de la dose délivrée. Il en va tout de même si l'on considère l'aspect économique du problème puisque le coût de l'irradiation est pratiquement indexé sur la dose délivrée. Ce qui implique par ailleurs une reproductibilité, la meilleure possible, et par conséquent un contrôle de cette reproductibilité.

La mesure de la dose absorbée comporte l'utilisation d'un système dosimétrique qui se compose non seulement des dosimètres physiques ou chimiques bien établis mais également de l'instrument qui mesure l'effet induit par le rayonnement dans le matériau dosimètre (par exemple, spectrophotomètres, spectromètres à résonance paramagnétique électronique (RPE), spectromètre à photoluminescence, thermoluminescence, ... ) et leurs étalons de référence

associés (tels que des étalons de longueur d'onde et d'absorbance), et de la procédure d'utilisation du système. L'instrument de mesure doit être bien caractérisé, de sorte qu'il donne des résultats reproductibles et précis. Tout effet induit par rayonnement (également appelé la réponse du dosimètre) s'il est reproductible et mesurable peut être en principe employé pour la dosimétrie. Ainsi une caractérisation complète est tout à fait essentielle avant d'employer n'importe quel système dosimétrique pour la mesure de dose.

La caractérisation d'un système dosimétrique consiste à étalonner le système dosimétrique, établir la traçabilité par rapport aux étalons nationaux ou internationaux, déterminer l'homogénéité des lots des dosimètres (batch), et comprendre et mesurer les effets des quantités d'influence sur les performances du système de dosimétrie : La réponse de presque chaque type de dosimètre est influencée par divers paramètres externes à un degré variable. Cet effet devrait être soigneusement étudié et son impact sur la réponse du dosimètre doit être réduit au minimum ou corrigé. Par exemple, si le système dosimétrique est employé pour une mesure de dose à une température différente que celle pour laquelle il a été étalonné, la réponse du dosimètre doit être corrigée avant de l'employer pour déterminer la valeur de la dose. La réponse d'un dosimètre après l'irradiation change souvent avec du temps. L'étude de l'influence de la durée de stockage des dosimètres entre l'irradiation et leur dépouillement par l'instrument de mesure paraît naturelle dans certains cas, par exemple, lors de la caractérisation d'une installation d'ionisation où le travail de dépouillement peut être long.

Dans ce contexte nous avons mené une étude expérimentale pour améliorer la sensibilité de PMMA et corrélérer sa réponse avec la dose d'irradiation. Pour faire les corrections suite aux pertes des radicaux induits par irradiation une suivie de l'évolution du signal RPE en fonction du temps (FADING) est nécessaire.

La présentation de ces différents travaux débutera par une étude bibliographique sur les notions de base de la radioactivité, les rayonnements ionisants et leur production. Ces rayonnements issus de la radioactivité, en particulier les photons gamma, ont été utilisés pour l'irradiation des échantillons de PMMA. Suite à cette irradiation des centres paramagnétiques ont été formés et qui seront tous présentés au chapitre II. Nous donnerons ensuite dans ce même chapitre, les éléments de base de la dosimétrie, une science étudiant la métrologie de rayonnement ionisant. Le chapitre III traitera les équipements qui ont notamment permis d'expérimenter tels que la source d'irradiation, l'appareil RPE. Finalement nous décrirons au

chapitre IV les résultats obtenus de l'effet d'irradiation sur le PMMA et les interprétations qui révélerons l'intérêt de ce travail.

## Présentation du Centre National des Sciences et Technologies Nucléaires (CNSTN)

### I. Présentation et mission de la CNSTN

Le Centre National des Sciences et Technologies Nucléaires (CNSTN) est un établissement public et a caractère industriel et commercial. Il est doté de la personnalité civile et de l'autonomie financière, créé par la loi n° 93-115 du 22 novembre 1993.

Le Centre a pour mission de réaliser les études et recherches nucléaires à caractère pacifique dans différents domaines, ainsi que la maîtrise des technologies nucléaires, leur développement et leur utilisation aux fins du développement économique et social", et notamment dans les domaines de l'agriculture, de l'industrie, de l'énergie, de l'environnement et de la médecine, et d'une façon générale, la réalisation de toutes les activités tendant à assurer le développement des sciences nucléaires, la promotion de ses différentes applications et la maîtrise des technologies nucléaires à des fins pacifiques. [1]

En particulier, il doit mener les actions suivantes :

- **Développement de la recherche** : Il réalise des activités liées à la recherche dans le domaine des sciences et technologies nucléaires et leurs applications, à savoir les études, les projets et les programmes de recherches théoriques et pratiques ;
- **Diffusion de l'information** : Il collecte et traite les informations et données liées aux sciences, technologies et thèses de recherche nucléaires ;
- **Fournitures de services** : Prestation de service aux institutions universitaires et entreprises publiques et privées sous forme d'assistance technique, formation et stages;
- **Avis et conseils** : Il donne son avis et conseils sur les questions relatives à la sûreté nucléaire et à la radioprotection lors de la réalisation de projets utilisant des techniques nucléaires à des fins pacifiques. Pour atteindre les objectifs traces dans sa mission, le **CNSTN** est appelé à mettre en place une infrastructure nucléaire constituée d'installations pour l'application des techniques nucléaires à des fins pacifiques.

La première unité pilote spécialisée dans les applications nucléaires qui a été retenue par la Commission Nationale de l'Energie Atomique (CNEA) est l'unité de traitement par rayonnement ionisant des produits agro-alimentaires, pharmaceutiques et paramédicaux. Elle contribue au développement des techniques d'irradiation des aliments pour une meilleure conservation de ces produits et par la stérilisation des produits pharmaceutiques et paramédicaux.

Le **CNSTN** contribue aussi à la réalisation des projets d'intérêt général intéressant les secteurs de la sante, la sureté nucléaire, l'environnement, la mesure de la radioactivité, la gestion des déchets radioactifs, la mutation des plantes dans l'agriculture, l'hydrologie, la météorologie, la prospection géologique et minière, etc...

De même, le **CNSTN** encourage la réalisation de projets a but lucratif tels que l'irradiation des produits alimentaires, la stérilisation des produits paramédicaux, la détection des défauts par gammagraphie, le contrôle de la qualité des soudures, le tannage des cuirs, le traitement des eaux usées, etc... [1]

## **II. Liste des prestations**

- Unité d'Hydrologie Isotopique
- Unité Radiopharmaceutiques
- Unité Pilote de Traitement par Rayonnements Ionisants
- Unité d'Electronique et Instrumentation Nucléaire
- Unité de Radioanalyse
- Unité Pilote de Production des Males Stériles de la Cératite
- Unité de Microbiologie
- Unité de Radioprotection
- Unité de Radiochimie

## **III. Unité pilote de traitement par rayonnements ionisants**

### **III.1 Mission : Prestation de Services**

#### **Agroalimentaire**

- inhibition de la germination ;
- ralentissement de la maturation des fruits et légumes frais ;
- prolongation de la durée de conservation (viandes, produits de la mer, etc...) [1].

#### **Pharmacie, cosmétique et biomatériaux**

- débactérisation des produits pharmaceutiques et cosmétiques ;
- stérilisation des produits parapharmaceutiques et biomatériaux.

#### **Industrie**

- coloration des verres et céramiques ;

- réticulation des plastiques ;
- polymérisation.

## **III.2 Unité de radiotraitement**

### **III.2.1 Présentation Générale et Missions**

L'unité de radiotraitement utilise les rayonnements ionisants pour la conservation, la stérilisation ou encore la modification des propriétés physicochimiques des produits industriels.

Opérationnel depuis 1999, l'irradiateur pilote (utilisant un rayonnement Gamma provenant d'une source de Cobalt 60) a prouvé son utilité aussi bien pour la recherche et l'encadrement des étudiants que pour la prestation de service. Afin d'élargir son champ d'action, l'unité de radiotraitement va se doter d'un accélérateur linéaire 4 (rayonnement Beta) qui sera opérationnel fin 2007 [1].

### **III.2.2. Unité de Radiotraitement GAMMA**

L'équipe affectée à l'unité de radiotraitement est multidisciplinaire. L'unité est destinée aux traitements par le rayonnement Gamma de produits de différentes natures comme les produits agro-alimentaires, les dispositifs médicaux et différents autres matériaux.

L'unité est dotée d'une source scellée radioactive de Cobalt - 60.

L'unité d'irradiation est constituée d'une cellule d'irradiation abritant la source, d'un labyrinthe, d'une salle de commande, d'un laboratoire de dosimétrie, d'un hall de stockage des produits ionisés et non ionisés et de chambres froides.

Une armoire électrique automatisée, connectée à un ordinateur qui contient le système de commande et de supervision.

- Un système hydraulique de levage de la source.
- Un système de climatisation de la salle de traitement.
- Un convoyeur à chaîne fixée au sol, permettant de transporter six chariots contenant une tonne de produit à traiter chacun.
- Quatre chambres froides.
- Un chariot élévateur, fonctionnant à l'énergie électrique.
- Autres dispositifs pour traiter les différents types de produits (plateaux tournants, tables tournantes...) [1].

## Chapitre 1

# Généralités sur les polymères et le PMMA

Ce chapitre est divisé en deux parties : la première est consacrée à présenter les polymères d'une façon générale alors que la deuxième partie présente le polymère d'intérêt qui est le PMMA (le polyméthacrylate de méthyle).

## I. Généralité sur les polymères

### I.1 Origine du terme polymère

Le mot polymère vient du grec « polus » plusieurs, et « meros » partie. Un polymère est une énorme molécule constituée de l'enchaînement répété d'un même motif appelé monomère ce dernier terme aussi est d'origine grec mono désigne un seule, et moros désigne partie.

### I.2 Historique

Les polymères appartiennent à une science qui a pris son essor dans les années 40, car pendant la guerre, il était vraiment nécessaire pour les pays qui vivaient de fabriquer certains matériaux qui manquaient. En 1940, il y avait déjà eu des sursauts. Les premiers soubresauts de la chimie des polymères sont apparus dès les années 1900. A cette époque, on distinguait les molécules organiques en deux types : les cristalloïdes se sont des composés organiques cristallisables, de température de fusion et de masses molaires bien définies et les colloïdes sont des molécules visqueuses ne cristallisent pas et leurs température de fusion est mal définie.

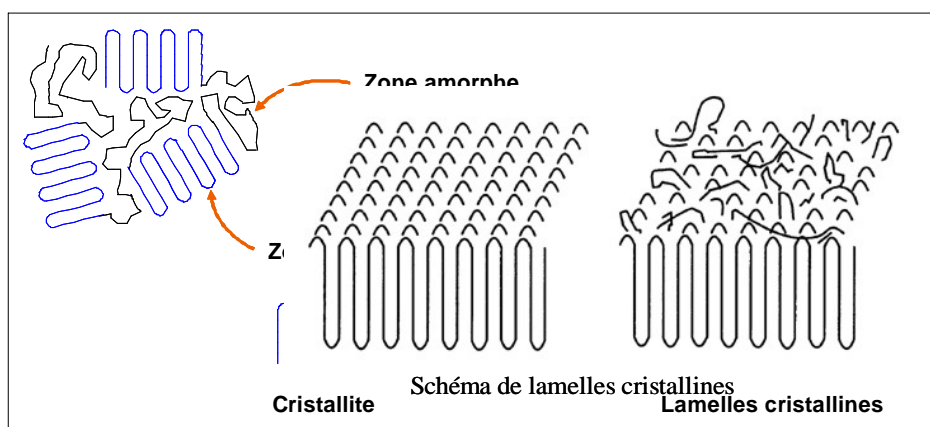
### I.3 Définition

Un polymère est une substance, organique ou inorganique, constituée de l'enchevêtrement de macromolécules. Chaque macromolécule est constituée de l'enchaînement d'un même motif de répétition, appelé monomère, motifs liés entre eux par liaisons covalentes. Sous forme solide ou liquide à température ambiante, un polymère peut être d'origine naturelle mais il peut également être obtenu par modification chimique d'un polymère naturel ou encore être entièrement synthétisé par voie chimique ou enzymatique par une réaction de polymérisation. Ces réactions de polymérisation provoquent la formation de liaisons covalentes entre les monomères.



Les polymères possèdent une structure supramoléculaire. En effet, un polymère peut être amorphe ou cristallin ; les deux phases peuvent aussi coexister au sein d'une même matrice : les polymères sont alors dits semi-cristallins.

A l'état amorphe, une chaîne se replie/déploie dans l'espace pour adopter une configuration de pelote statistique dans laquelle on ne distingue aucun ordre à grande échelle. Cette absence d'ordre donne au polymère une structure de liquide figé. La transition vitreuse est une transition de la phase amorphe d'un polymère. La transition vitreuse marque le passage d'un état vitreux à un état liquide/caoutchoutique : mouvements locaux en dessous de la température de transition vitreuse ( $T_g$ ), mouvements coopératifs au dessus.



**Figure 1** : structure supramoléculaire de polymères

L'état cristallin est caractérisé par l'existence d'un ordre à grande distance. Les chaînes s'empaquettent de façon ordonnée et compacte, il est possible de définir une maille cristalline. Ce type de structure diffracte les rayons X. L'état cristallin est caractérisé par l'existence d'un point de fusion et l'absence de transition vitreuse.

#### **I.4 Classification des polymères**

Les polymères peuvent être classés selon plusieurs critères qui n'excluent pas les uns les autres :

##### **I.4.1. selon la structure chimique et la microstructure**

Constitution : polymères à chaîne carbonée ou non silicone, homopolymère et copolymère

Dimension : polymère linéaire, ramifié, réticulé

Enchaînement des unités constitutives dans les copolymères : copolymères statistiques, à bloc greffés, alternés

Configuration : isotactique, syndiotactique, atactique

#### **I.4.2 Selon l'origine**

Les polymères ici sont classés en 3 types :

Polymères naturels : caoutchouc naturel, cellulose, etc.

Polymères artificiels : sont des dérivés des polymères naturels : nitrate et acétate de cellulose, ébonite (caoutchouc réticulé par le soufre)

Polymères synthétiques : obtenues à partir des réactions de polymérisation

#### **I.4.3 Selon les propriétés**

Selon le facteur température on peut classer les polymères en deux familles :

##### **I.4.3.1 Les thermoplastiques**

Ils acquièrent par chauffage une fluidité suffisante pour être transformés sans changement de leur structure chimique, et donc a priori de façon réversible, aux phénomènes de dégradation près.

##### **I.4.3.2 Les thermodurcissables**

Une augmentation de température entraîne le durcissement du matériau, en lui conférant sa structure définitive, de façon irréversible. Par extension, on inclut dans cette famille tout polymère qui subit une transformation irréversible, même si la chaleur n'est pas indispensable.

On donne dans le tableau suivant quelques exemples de ces deux types de polymères :

POLYMERES		
THERMOPLASTIQUES		THERMODURCISSABLES
AMORPHE	CRISTALLIN	
Polycarbonate, Polystyrène, Polyméthacrylate de méthyle, Acrylonitrile/Butadiène/Styrène	Polyéthylène, Polypropylène, Nylon, Polyoxométhylène (polyacetal), Poly (éteréthercetone), Polytétrafluoroéthylène	Epoxy, polyester insaturé, vinylester phénoliques, Polyuréthanes

**Tableau 1 :** exemples des polymères thermoplastiques et thermodurcissables

### I.4.3.3 Les élastomères

En outre le comportement élastique donne naissance à une autre famille de polymère appelée les élastomères qui sont des polymères qui ont des propriétés élastiques réversibles (allongement réversible important). Exemple caoutchouc naturel, polybutadiène, polyisoprène. A côté des propriétés mécaniques les polymères possèdent aussi des propriétés physiques en effet la densité la température de fusion et la température vitreuse se modifie par l'architecture moléculaire.

### I.4.4 Selon l'importance économique

Comme tout produit industriel il existe toujours une corrélation entre le produit et le prix on distingue alors 3 types de polymères commerciaux.

Les polymères à haute performance : caractérisés par un volume de vente le plus faible et le prix le plus haut.

Les polymères de grande diffusion : le volume de vente et la production sont élevés et leurs prix est très faibles exemple (PE, PVC, PS).

Les polymères techniques : leurs volumes de vente et prix sont entre les deux types précédents exemple (polyamides, PET).

#### **I.4.5 Selon le délai d'utilisation**

On distingue deux genres : les polymères jetables qui ont une durée de vie inférieure à un an et des polymères durable pour l'infrastructure qui ont une durée de vie supérieure à 20 ans.

#### **I.4.6 Selon le mode d'emploi**

Colles et adhésifs, peintures, vernis, mastics, matières plastiques, caoutchoucs, fibres textiles, mousses, etc.

### **I.5 Synthèse des polymères**

La réaction qui conduit à la formation des polymères est appelée polymérisation.

Il existe deux modes de synthèse des polymères : la polymérisation en chaîne et la polymérisation par addition ou condensation (polycondensation ou polyaddition).

#### **I.5.1 Polymérisation en chaîne**

C'est une réaction chimique qui a besoin d'un apport d'un centre actif (radical, ion, liaison métal carbone, liaison métal oxygène), elle aura lieu qu'avec des monomères saturés. Elle se déroule en trois étapes : Initiation ou amorçage, propagation et la terminaison.

#### **I.5.2 Polymérisation par addition ou condensation**

Ces réactions mettent en œuvre des monomères de réactivité qui sont complémentaires et puis ils procèdent par couplage d'entités réactives de plus en plus longues.

On distingue les réactions de polyaddition ou polycondensation selon qu'il a formation ou pas de sou- produit de réaction. Généralement le sou- produit est de l'eau

## II. Le polyméthacrylate de méthyle (PMMA) comme modèle

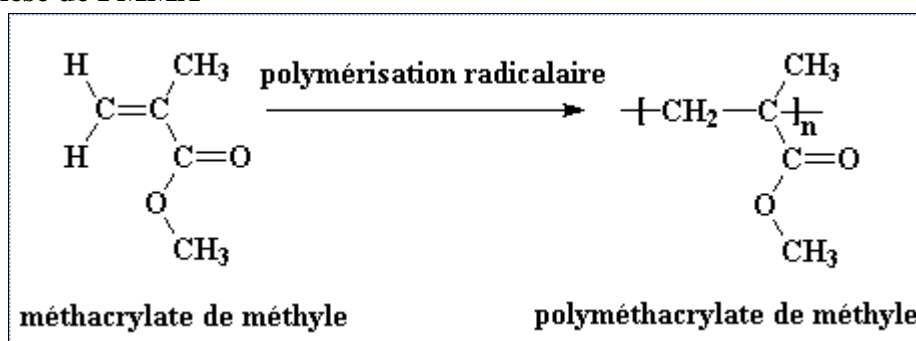
### II.2 Présentation de PMMA

Le polyméthacrylate de méthyle, PMMA, est issu de la polymérisation du méthacrylate de méthyle, MMA. L'acide acrylique a été découvert en 1843. L'acide méthacrylique, dérivé de l'acide acrylique, a été formulé en 1865. Les chimistes allemands Fittig et Paul ont découvert en 1877 le procédé de polymérisation qui transforme le méthacrylate de méthyle en polyméthacrylate de méthyle. En 1933, le chimiste allemand Otto Röhm a breveté la marque Plexiglas et lancé la première production commerciale. Simultanément, ICI lança le PMMA sous forme de feuilles coulées. Au cours de la Seconde Guerre mondiale, le verre acrylique a été utilisé pour les périscopes de sous-marins, des pare-brise, des auvents, et tourelles pour les avions.

La polymérisation du PMMA se fait selon trois procédés classiques : par coulée, en suspension et en masse. La polymérisation par coulée permet d'obtenir des plaques de forte épaisseur, à parfait état de surface, entre deux plaques de verre. Les deux autres procédés, suspension et masse, permettent d'obtenir des granulés et des plaques extrudées.

Le PMMA est un plastique essentiellement amorphe. Le monomère, sans adjonction d'inhibiteurs, est très instable. L'action de la chaleur, de l'oxygène, des rayons UV ou l'addition d'un peroxyde suffisent pour provoquer la polymérisation. Cette propriété est ainsi utilisée pour la coulée de plaques, entre autres.

### II.3 Synthèse de PMMA



Il se polymérise à l'aide de radicaux qui amorcent une polymérisation radicalaire en chaîne. Également possible, la polymérisation anionique, à l'aide d'amorceurs nucléophiles de types carbanions.

La polymérisation anionique doit se faire en milieu anhydre ; en effet, dans ce type de réaction, il n'y a pas d'étapes de terminaison, la chaîne en construction continue à absorber des

monomères jusqu'à épuisement du stock. C'est seulement à ce moment-là que l'on peut précipiter le PMMA en lui fournissant un proton (à l'aide d'un acide par exemple), ou y ajouter un monomère différent, dans le but de former des copolymères à blocs (de type AAABBB).

Le milieu anhydre sert donc à éviter que les chaînes de PMMA ne se terminent trop tôt à cause d'un proton, ce qui ferait baisser leur degré de polymérisation (nombre de monomères présents dans la chaîne). C'est aussi pour cette raison que la réaction se fait sous atmosphère inerte (argon, azote).

Le solvant et l'amorceur utilisés définiront la tacticité du polymère et donc ses propriétés physiques.

Il existe trois principaux procédés de polymérisation :

- par coulée entre deux plaques de verre
- en suspension
- en masse

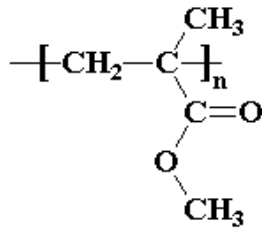
Les deux derniers procédés sont principalement utilisés pour la production de plaques extrudées et la fabrication de granules.

Le PMMA peut être moulé par compression, injection, coulée, soufflage et extrusion. Les feuilles et plaques de PMMA sont facilement thermoformées. On peut facilement le métalliser. Le PMMA peut également être soudé par ultrasons.

#### **II.4 Relation entre la formule chimique et les propriétés de PMMA**

Le PMMA est un thermoplaste amorphe et transparent clair doué de toute une série de propriétés caractéristiques. C'est un matériau inodore aux dimensions stables et à grande dureté de surface, ce qui garantit une excellente résistance à l'abrasion. Vu ses remarquables propriétés optiques, le verre acrylique est un "Ersatz" idéal du verre silicate et il sera utilisé de préférence à celui-ci dans les cas où des colorations transparentes ou opaques, un poids peu élevé, des possibilités illimités de façonnage ou une grande résistance à la rupture sont exigées.

Il résiste très bien aux intempéries et aux UV, mais n'entre pas en ligne de compte comme matériau de coussinet.



**Figure 2 :** Formule développée de PMMA

### **III. Les différents types de PMMA**

Le PMMA existe sous 2 formes principales qui sont fonction du mode de fabrication : coulé ou extrudé.

#### **III.1 Plaques acryliques coulées (PMMA GS ou CN)**

Le PMMA coulé, grâce à une excellente tenue aux rayons U.V., garde indéfiniment ses propriétés mécaniques et de transparence. Le PMMA incolore à une transmission lumineuse supérieure à celle du verre et égale à celle du cristal. Les plaques coulées ne s'opacifient pas et gardent leur aspect initial. Le PMMA coulé est disponible dans une grande variété d'épaisseurs.

#### **III.2 Plaques acryliques extrudés (PMMA XT)**

Les plaques extrudées sont produites à partir de polyméthacrylate de méthyle. Elles sont extrudées et calandrées, ce qui leur confère une tolérance d'épaisseur excellente et constante. Elles sont remarquablement thermoformables.

### **IV. Propriétés**

Sa transition vitreuse ( $T_g$ ) est comprise entre 48 °C pour un PMMA syndiotactique (les groupements sont alternés autour de la chaîne) et 160 °C dans le cas d'un PMMA isotactique (tous les groupements esters sont alignés du même côté de la chaîne). La majorité des PMMA sur le marché actuellement est atactique avec  $T_g$  une entre 90 °C et 105 °C. La modification

du groupe ester induit également un abaissement du  $T_g$  (ex. Ethyl +65 °C, n-Buthyl +20 °C). Le PMMA peut également être modifié par copolymérisation avec d'autres monomères tels que des acrylates, des acrylonitriles, des styrènes et butadiènes.

- très grande transparence, très limpide avec un aspect brillant ;
- propriété optique exceptionnelle (transmission lumineuse supérieure à celle du verre jusque dans le proche UV, transparence, limpidité, brillance). Indice de réfraction de 1,49 ;
- aspect de la surface très lisse et brillant ;
- excellente résistance aux agents atmosphériques ;
- excellente tenue aux rayons ultraviolets et à la corrosion ;
- légèreté : Masse volumique de 1,19 g/cm<sup>3</sup> (beaucoup plus léger que le verre) ;
- coefficient de dilatation thermique :  $10^{-4} \text{ K}^{-1}$
- usage dentaire : sensible à long terme (plusieurs mois) à la présence de la salive (le matériau devient cassant), de chlorexidine (désinfectant buccal) ou de certains colorants alimentaires (colorations).

## V. Application

- enseigne, bandeaux lumineux, panneaux signalétiques et publicitaires,
- PLV, présentoir, gravure, ameublement, agencement de magasin, décoration,
- pièces industrielles,
- accessoires de sécurité,
- balle de contact,
- prothèse dentaire,
- Implant en ophtalmologie,
- membranes pour hémodialyseurs, etc.
- fibres optique
- art (objets design, sculpture)
- lentilles d'appareils photo économiques (jetables) - la polymérisation en masse permet l'obtention de pièces sans contraintes internes, possédant donc un indice de réfraction constant et isotrope
- support d'impression directe avec encres UV pour les tableaux photos [3]

Le PMMA a de nombreux avantages dont deux principaux :



- il est transparent
- il est résistant

Il peut remplacer le verre dans la fabrication de vitres car il permet une excellente transmission de la lumière. Il transmet jusqu'à 92 % de la lumière visible, soit plus que le verre. Pour sa résistance aux ultraviolets, il est utilisé pour les vitrages, les protections de tuiles ou certains éléments de voiture (feux arrière).

C'est le seul polymère qui soit transparent aux ultraviolets. Contrairement aux polycarbonates, polystyrènes et autres polymères transparents, il n'offre pas de coloration jaunâtre qui impose l'addition d'azurants optiques. On obtient alors un polymère d'une transparence exceptionnelle.

Les surfaces de PMMA montrent une grande rigidité, ainsi qu'une bonne résistance aux produits chimiques. C'est ainsi le matériau idéal pour les parois transparentes des grands aquariums.

Malgré tout le PMMA est assez fragile et brûle facilement. Ce polymère exige également une trempe (recuisons) pour relâcher les tensions internes du polymère. Il a une faible résistance aux solvants, particulièrement aux carburants.

Le PMMA a une assez faible résistance à l'abrasion. Si nécessaire, on lui préfère alors le copolymère SAN (styrène acrylonitrile), surtout pour les pièces colorées (feux arrière de voiture) où la transparence est moins importante.

Le PMMA ne peut pas être utilisé pour fermer des machines industrielles, il est nécessaire d'utiliser du polycarbonate qui ne présente pas de danger lorsqu'il se brise.

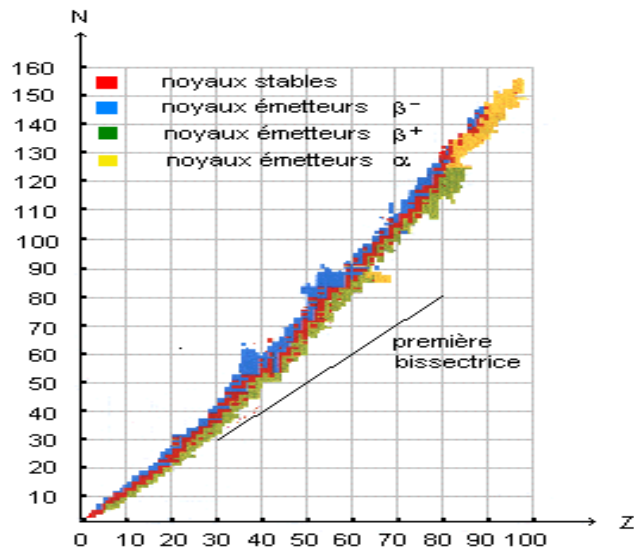
## Chapitre 2

# Rayonnements ionisants et leurs processus d'interactions avec la matière

Après avoir prendre une idée sur les polymères et en particulier sur le matériau à étudier, nous nous intéressons dans ce chapitre à la production des rayonnements ionisants et leur processus d'interaction avec la matière.

### I. Radioactivité

La radioactivité est un phénomène physique qui résulte généralement de l'émission de particules par les atomes instables. En effet l'atome est composé de particules de tailles et de masses (énergie) différentes. Ces particules sont organisées de manière à ce que l'atome soit stable. Cette structuration est le produit d'interaction des différentes forces qui coexistent au sein de l'atome. Le moindre bouleversement de cette organisation induit l'émission de particules ( $\alpha$ ,  $\beta$ ,  $\gamma$ ). En effet, comme vous pouvez le remarquer sur la figure 2 donnant le nombre de neutrons  $N$  en fonction du nombre de charges  $Z$ , les éléments qui présentent un déséquilibre entre le nombre de neutrons et de protons sont instables. Ils sont des émetteurs  $\beta^-$ ,  $\beta^+$  pour ceux riches respectivement en neutrons, protons. Les éléments stables se situent autour de la ligne de stabilité donnée par l'équation  $N = Z$ . Les éléments instables sont à l'origine de la radioactivité. Ils présentent plusieurs applications dans le domaine : médical, environnement, agricole et industries pharmaceutiques.



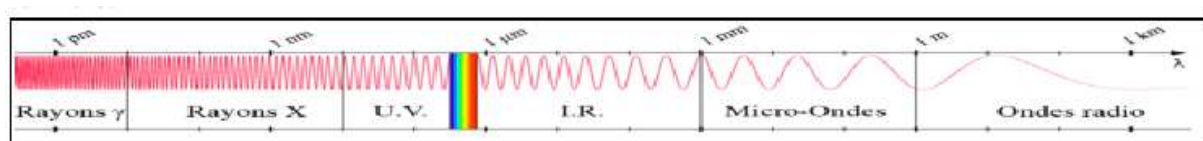
**Figure 3 :** courbe du paysage nucléaire  $N=f(z)$

Certains atomes possèdent naturellement une structure instable et produisent des émissions naturelles. Cette activité caractérise surtout les atomes lourds dont le nombre de masses dépasse 209 comme les différents isotopes de l'Uranium. Cependant, il existe des technologies permettant d'accélérer les particules ce qui génère une forme de radioactivité dite électrique.

Cela nous amène à dire qu'il existe deux types de radioactivités : une radioactivité naturelle qui provient de l'émission des atomes instables et une radioactivité artificielle provenant de l'accélération des particules. Ainsi, on peut classifier les rayonnements radioactifs selon plusieurs types dont les principaux sont :  $\alpha$ ,  $\beta^-$ ,  $\beta^+$  et  $\gamma$ .

## II. Rayonnement ionisant

Dans la nature il existe deux types de rayonnements : rayonnement électronique et le rayonnement corpusculaire, pour le premier type il s'agit d'une propagation d'un champ électromagnétique (E, B) sinusoïdal de longueur d'onde  $\lambda$  dans le vide à la vitesse c, ce champ électromagnétique est équivalent à des photons transparent une énergie  $E = h\nu$ .



**Figure 4 :** spectre électromagnétique

Pour le rayonnement corpusculaire c'est un flux des particules en mouvement à une vitesse  $v$  donc possède une énergie cinétique  $E = \frac{1}{2} mv^2$ , auxquelles on associe une onde de Broglie

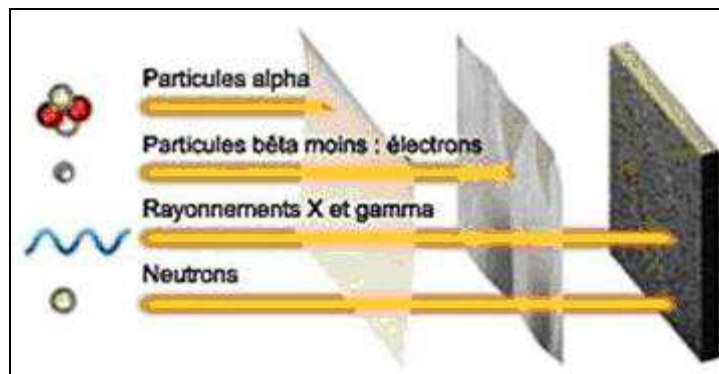
$$\lambda = h / (mv).$$

## II.1 Découverte des rayonnements ionisants

L'histoire de la découverte des rayonnements ionisants remonte à la fin du XIX<sup>ème</sup> siècle dernier avec l'expérimentation sur la décharge électrique dans les gaz raréfiés et la découverte de la radioactivité naturelle Elle s'est poursuivie à un rythme accélérer, au cours du siècle. Suivant, avec la découverte de nouvelles particules fondamentales issues de désintégrations nucléaires produites artificiellement ainsi qu'avec la construction des premiers grands accélérateurs de particules.

## II.2 Rayonnements ionisants utilisés

Les particules et les rayonnements découverts (neutrons, électrons, alpha, bêta, X, gamma) peuvent être manipulés par les physiciens et utilisés pour bombarder des échantillons macroscopiques de matière quelconque et, ainsi, l'explorer, la traiter, l'altérer.



**Figure 5 : Rayonnements ionisants**

Les natures, les masses, les charges électriques, les vitesses et les fréquences différentes de ces particules et rayonnements leur donnent des propriétés physiques propres, et les lois qui régissent leurs interactions avec la matière irradiée sont très complexes. Les processus de ces interactions dépendent de nombreux paramètres mais se déroulent toujours au niveau corpusculaire, donc microscopique.

### II.2.1 Rayonnement $\alpha$

Le rayonnement  $\alpha$  se caractérise par la perte de la matière de deux neutrons et deux protons cette composition correspond à celle du noyau d'hélium.



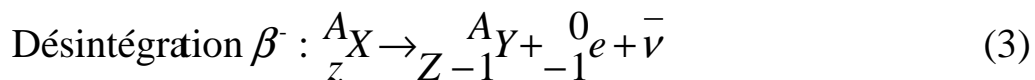
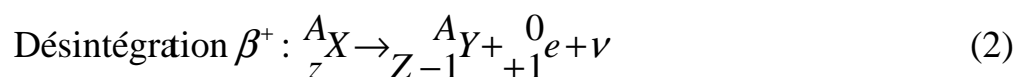
Où  $\alpha$  : le noyau d'hélium  ${}^4_2\text{He}$ .

La vitesse d'une particule  $\alpha$  est de 20 000 km/s. de qui correspond à une énergie cinétique variant de 3 à 7 MeV. Ce pendant, la particule étant lourde ( $m=6,644656 \times 10^{-27}\text{Kg}$ ), le rayonnement ne possède pas un pouvoir de pénétration élevé. Ce type de rayonnement provient généralement des noyaux de masse atomique supérieure à 200 comme le Radium, polonium ou l'Uranium. Comme le noyau perd 4 nucléons, il peut subir une désintégration donnant un noyau différent : exemple le Radium solide donne le Radon qui est un gaz.

### II.2.2 Rayonnement $\beta$

Les rayons  $\beta$  peuvent être de deux types :  $\beta^+$  ou  $\beta^-$ . Les rayons  $\beta^-$  sont issus de la désintégration de radionucléaires naturels ou artificiels, tandis que les rayons  $\beta^+$  proviennent exclusivement de la radioactivité d'éléments artificiels.

Les équations de réactions schématisant ces deux types de rayonnements sont déduites d'après les lois de conservations de Soddy et s'écrivent comme suit :



Les rayons  $\beta^-$  sont des faisceaux d'électrons et les rayons  $\beta^+$  des faisceaux de positrons. Tous deux sont formés par la transformation dans les noyaux d'un neutron en proton et vice versa : si un nucléide contient trop de neutrons, pour être stables, les neutrons excédentaires se transforment alors en protons selon la réaction :



Où, n désigne un neutron,  $p^+$  un proton,  $e^-$  un électron et  $\bar{\nu}_e$  un antineutrino. Inversement, un nucléide trop riche en protons est le siège de la réaction suivante :



Avec,  $\nu_e$  : le neutrino.

Dans notre laboratoire nous possédons une source de particules  $\beta^-$ . C'est un accélérateur d'électrons.

### II.2.3 Rayonnement $\gamma$

Les rayons  $\gamma$  sont très différents des électrons par leur origine, leurs sources, leur utilisation. Mais le processus d'interaction avec le produit traité, bien que différent de celui des électrons, aboutit également à une ionisation des atomes touchés, donc à un transfert d'énergie à la masse irradiée.

Les rayonnements gamma sont émis par des noyaux radioactifs. Pour ioniser les denrées alimentaires, on utilise principalement comme sources de rayonnements les deux radio isotopes suivants, à savoir:

- Le cobalt 60, dont le descendant (nickel 60), issu de sa désintégration  $\beta^-$ , émet, pour se désexciter, deux photons  $\gamma$  successifs de 1.172 MeV et 1.333 MeV. On obtient ce radionucléide, par irradiation neutronique, dans les réacteurs nucléaires, du cobalt 59, seul isotope stable du cobalt. Il convient de signaler particulièrement que l'énergie des  $\gamma$  émis est telle qu'il n'y a pas de radioactivité induite dans la matière irradiée avec une source de cobalt-60. Cette impossibilité représente la première condition à remplir dans le choix d'une source de rayonnements ionisants

– Le césium 137, dont le noyau- fils (baryum 137) provenant de sa désintégration  $\beta^-$ , émet, afin de rejoindre son état fondamentalement stable, un photon  $\gamma$  de 0.662 MeV. On récupère ce radionucléide, au moyen d'une séparation par voie chimique, parmi les nombreux produits de fission des combustibles irradiés dans les centrales électronucléaires.

Il présente l'avantage d'avoir une période beaucoup plus longue que celle du cobalt-60, son rayonnement est suffisamment pénétrant pour beaucoup d'applications tout en permettant une protection biologique plus compacte.

## II.2.4 Les électrons

Utilisés comme agents d'irradiation destinés à ioniser, dans la masse des produits traités, les organismes vivants, les électrons sont produits en faisceaux denses et concentrés par les machines accélératrices ou accélérateurs.

Quantitativement ces faisceaux se décrivent et se mesurent en flux c'est-à-dire en nombre d'électrons traversant en 1 seconde une surface de 1 centimètre carré perpendiculaire aux trajectoires.

Ces accélérateurs soumettent les électrons à des différences de potentiel (ou les placent dans des champs électriques) qui leur impriment des vitesses extrêmement élevées et conditionnent ainsi leur pouvoir de pénétration dans l'air et dans les tissus de matière vivante, de même que leur pouvoir d'ionisation des atomes bombardés.

## II.3 Les sources de rayonnements

### II.3.1 Les sources de rayon bêta

Certains radionucléides sont, à la fois émetteurs  $\beta^-$  et  $\beta^+$  ( $^{64}_{29}\text{Cu}$ ).

Les rayons bêta sont souvent accompagnés de rayon  $\gamma$  produit par désintégration du noyau résiduel.

### II.3.2 Les sources de rayon gamma : L'ioniseur gamma

#### II.3.2.1 Présentation

Il s'agit d'une vaste cellule blindée, éventuellement climatisée (plusieurs dizaines à plusieurs centaines de mètres cubes), au centre de laquelle se trouvent des sources isotopiques appropriées, émettrices de radiations ionisantes et disposées sur un porte - source métallique

Le principe de fonctionnement est relativement simple puisqu'il consiste à faire circuler les produits à traiter autour des dites sources, de telle façon que:

- un maximum de rayonnement émis par ces sources soit absorbé par le produit
- l'écart entre les doses délivrées en différents points du produit ne soit pas trop important. La géométrie de convoyage des produits à irradier doit permettre par une série de permutations des positions de ceux-ci autour d'une source radioactive d'homogénéiser la dose d'énergie électromagnétique qu'ils reçoivent. [20]

Isotopes	Formes	Demi-vie (Période)	Energie (MeV)	Méthodes de production
$^{60}\text{Co}$	métal	3.5 ans	1.17 1.33	$^{59}\text{Co}$ soumis à un flux neutronique
$^{137}\text{Cs}$		33 ans	0.66	Fusion $^{235}\text{U}$
$^{182}\text{Ta}$	métal	111 jours	0.066	$^{181}\text{Ta}$ soumis à un flux neutronique
$^{192}\text{Ir}$	métal	74.5 jours	0.15 0.65	$^{191}\text{Ir}$ soumis à un flux neutronique

**Tableau 2:** Les principaux isotopes émetteurs de rayons gamma [20]

En irradiation industrielle, seuls deux isotopes, le cobalt 60 et le césium 137 présentent un intérêt. La radioactivité du cobalt 60 et celle du césium 137 sont des désintégrations accompagnées de rayonnements gamma [20].

### II.3.2.2 Les irradiateurs au Césium 137

Les Irradiateurs industriels au césium 137 actuellement ne sont plus développés.

L'utilisation de ce radio-isotope est moins favorable que celle du cobalt (énergie inférieure) et pose des difficultés en matière de sûreté. Aucun centre d'ionisation industrielle en exploitation dans le monde ne l'utilise [20].

### II.3.3 Les irradiateurs au cobalt 60

#### II.3.3.1 Sources utilisées

Le cobalt 60, métal insoluble dans l'eau très semblable au nickel par ses propriétés physiques et chimiques, est l'isotope produit en soumettant le cobalt ordinaire (59) à un flux de neutrons (dans un réacteur nucléaire), il est actuellement le mieux adapté à l'utilisation industrielle pour les raisons suivantes :

- pénétration suffisante du rayonnement émis permettant de traiter jusqu'à des palettes de produits.
- durée d'utilisation suffisante; l'activité de la source ne décroît que de 12% par an.



### **II.3.3.2 Les types d'irradiateurs**

Plus d'une centaine d'appareils industriels utilisant le cobalt 60 ont été réalisés dans le monde. Leur capacité va de quelques centaines de milliers de curies à plusieurs millions. Les conceptions des appareils industriels différents les uns des autres par des choix technologiques dont les principaux sont les suivants :

- conditionnement des produits ;
- les moyens pour assurer la circulation dans la cellule et les labyrinthes ;
- cinématique à l'intérieur de la cellule ;
- position respective de la source et de la cible (à ioniser) dans le sens de la hauteur ;
- géométrie et nombre de portes sources ;
- mode de stockage de la source à l'arrêt (sous la protection biologique de l'eau, en piscine, soit à sec)

### **II.3.3.3 Capacité et charge de l'irradiateur**

La capacité de l'irradiateur est l'activité maximale qu'on peut y introduire (elle est exprimée en curie ou becquerel); elle fixe la production maximum. L'effet d'échelle est très important pour ce type d'équipement, les niveaux habituels de capacité sont de 1 à 2 millions de curies. Les couts d'investissement des installations ne sont pas proportionnels à la puissance.

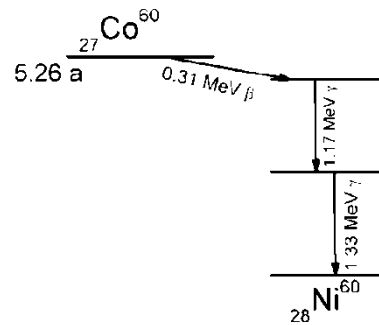
Une installation de 100000 curies coutera, a équipement comparable, environ trois fois moins cher qu'une installation d'un million de curies [20].

## **III. Atomes radioactifs**

Le cobalt 60 est un isotope radioactif dérivé du cobalt 59 naturellement stable. En effet l'introduction du cobalt 59 dans un réacteur nucléaire pendant une durée d'environ une année fait que celui-ci gagne un neutron et par la suite devient instable, d'où sa radioactivité. Cette opération est appelée l'irradiation neutronique [4].

Ce bouleversement dans la structure du noyau l'amène à se transformer dans un premier temps en Nickel doublement excité avec une émission de particules  $\beta^-$  et de photons  $\gamma$ . Le Nickel doublement excité se désexcite en émettant des photons  $\gamma$  avec une énergie de 1.172 MeV suivi d'une 2<sup>ème</sup> transformation à une énergie de 1.333 MeV.

On peut alors résumer : Le cobalt 60, dont le (descendant nickel 60), issu de sa désintégration  $\beta^-$ , émet pour se désexciter, deux photons  $\gamma$  successifs de 1.172 MeV et 1.333 MeV [5].



**Figure 6:** Schéma de désintégration du Cobalt60 [5]

D'autres atomes ont une émission semblable au Cobalt 60 par exemple le Césium137.

### III.1 Loi de décroissance radioactive

La radioactivité obéit aux lois des distributions binomiales : chaque atome radioactif présente une probabilité  $\lambda$ , donnée de se désintégrer durant un temps égal à l'unité.

Le nombre de noyaux se désintégrant pendant un temps  $dt$  est : [19]

$$dN = \lambda N dt \quad (6)$$

$N$  étant le nombre d'atomes présents à l'instant  $t$ .

$$D'où : N = N_0 e^{-\lambda t} \quad (7)$$

La probabilité que la vie du noyau soit comprise entre  $t$  et  $t+dt$  est :  $e^{-\lambda t}$ . La durée moyenne d'une population de noyaux est  $\tau = \frac{1}{\lambda}$

On emploie surtout la période  $t_{1/2}$  : le temps au bout duquel la moitié du nombre initial des noyaux ont disparu ( $N = \frac{N_0}{2}$ ) :

$$t_{1/2} = \frac{\ln 2}{\lambda} = 0.693\tau \quad (8)$$

En ce qui nous concerne, nous utilisons cette loi pour estimer le débit de dose à l'instant  $t$ .

### III.2 Période radioactive

Pour un type de noyaux radioactifs, la demi-vie  $T_{1/2}$  (période radioactive) est la durée au bout de laquelle la moitié des noyaux radioactifs initialement présents dans l'échantillon se sont désintégrés. La demi-vie n'a qu'une valeur statistique. Elle indique qu'un noyau radioactif a une chance sur deux de disparaître au bout d'une demi-vie.

### III.3 Activité d'un radio élément

L'activité d'un radioélément notée "A" correspond au nombre de désintégrations qui se produisent par unité de temps. Elle est exprimée dans le système international par le Becquerel (Bq). Elle peut aussi être exprimée en Curie(Ci).

Avec : 1Bq=1désintégration par seconde

$$1\text{Ci}=3,710^{10}\text{Bq}$$

L'activité initiale de la source  $\gamma$  du CNSTN est de 98000 curies (9/04/1999). Vu la décroissance radioactive, cette source a perdu 75% de son activité initiale.

## IV. Définition d'un rayonnement ionisant

Un rayonnement ionisant est un flux de particules (matérielles ou non) qui fournissent à la matière, lors d'interactions individuelles, plus d'énergie qu'il n'en est nécessaire pour ioniser les atomes.

L'énergie fournie doit être supérieure au potentiel d'ionisation le plus bas des atomes du milieu traversé. [19]

Les rayonnements ionisants sont :

- particules chargées légères :  $\beta^-$ ,  $\beta^+$
- particules lourdes :  $\alpha$ ,
- particules neutres :  $\gamma$

Selon leur nature, ces rayonnements peuvent être classés en deux types :

### IV.1 Rayonnement directement ionisants

Ils sont constitués de particules chargées qui délivrent directement à la matière leur énergie, par le jeu des forces coulombiennes s'exerçant entre elles et les atomes du milieu. Les transferts d'énergie dépendent des masses des particules en mouvement et il y a lieu de

distinguer entre particules chargées lourdes (protons, deutérons, alpha, ions lourds) et électrons, positrons.

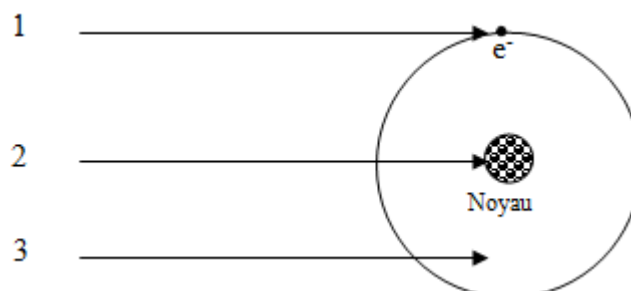
## IV.2 Rayonnement indirectement ionisants

Ils sont électriquement neutres et sont susceptibles de transférer une importante fraction ou la totalité de leur énergie en une seule interaction à des particules chargées.

- Les rayonnements électromagnétiques X ou  $\gamma$  qui agissent par l'intermédiaire d'électrons secondaires qui ionisent le milieu.
- Les neutrons qui, par collision, donnent naissance à des protons de recul ou des noyaux lourds de recul et qui, une fois ralentis, sont capturés par les noyaux des atomes du milieu traverse.

## IV.3 Trace d'un rayonnement ionisant dans la matière

Les rayonnements ionisants (X,  $\gamma$ ) ont en commun la propriété de provoquer des ionisations et excitations atomiques dans les milieux matériels où ils pénètrent. Lorsque ces rayonnements entrent en collision avec la matière, ils interagissent suivant trois possibilités.



**Figure 7 :** Les différentes interactions d'une particule chargée avec l'atome

1 : Soit avec les électrons

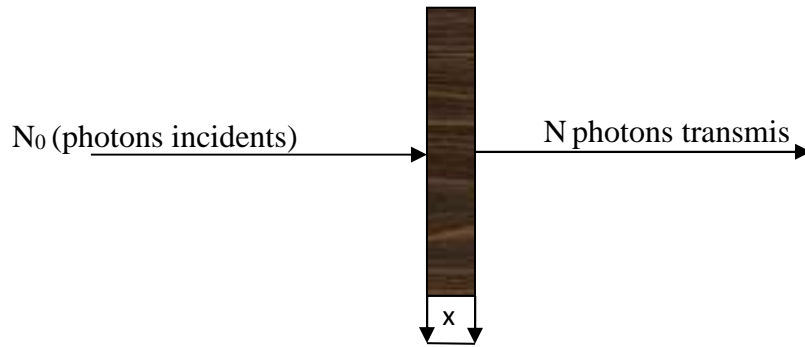
2 : Soit avec le noyau

3 : Soit avec le champ nucléaire

Dans le cas des photons X et  $\gamma$  d'énergie maximale 5MeV, les interactions avec le noyau et le champ nucléaire sont à négliger. Seules les interactions avec les électrons ont une importance.

### IV.3.1. Interaction des photons $\gamma$ ou X avec la matière

Considérons un faisceau de rayons  $\gamma$  ou X qui traverse un milieu d'épaisseur x (Fig. 8)



**Figure 8 :** Atténuation d'un faisceau mono-énergétique de rayons  $\gamma$  ou X

Le nombre de photons incidents et transmis sont reliés par :

$$N = N_0 \exp(-\mu x) \quad (9)$$

- $N$  : nombre de photons transmis,
- $N_0$  : nombre de photons incidents,
- $\mu$  est le coefficient d'atténuation linéaire.

A partir de cette grandeur, on peut définir aussi le coefficient d'atténuation massique  $\mu/\rho$  ( $\rho$  étant la masse volumique du matériau).

#### IV.3.2 Modes d'interaction des photons $\gamma$ avec la matière

En passant par la matière, les rayons gamma sont absorbés d'une manière exponentielle :

$$I(d) = I_0 e^{-\mu d} \quad (10)$$

Ici :

- $\mu = n\sigma$  est le coefficient d'absorption, mesuré en  $\text{cm}^{-1}$ ;
- $n$  le nombre d'atomes par  $\text{cm}^3$  dans la matière ;
- $\sigma$  la section efficace d'absorption en  $\text{cm}^2$  est donnée pour un couple rayonnement-matière caractérisé par l'énergie du faisceau incident et la nature chimique du matériau cible (son numéro atomique  $Z$ , au premier ordre) ;
- et  $d$  l'épaisseur du matériau en cm.

En pénétrant une substance, telle la matière vivante, la dose d'irradiation par les rayons gamma passe d'abord par un maximum ou "Crête de Tavernier", du nom du physicien belge Guy Tavernier qui découvrit ce phénomène en 1948, avant de décroître exponentiellement avec la profondeur. Ce maximum se situe à environ 1 cm de profondeur pour les rayons gamma et l'intensité de ce rayonnement gamma est forte dépendant de la longueur de diffusion valable pour la substance pénétrée.

Les rayons gamma interagissent avec la matière via trois mécanismes principaux :

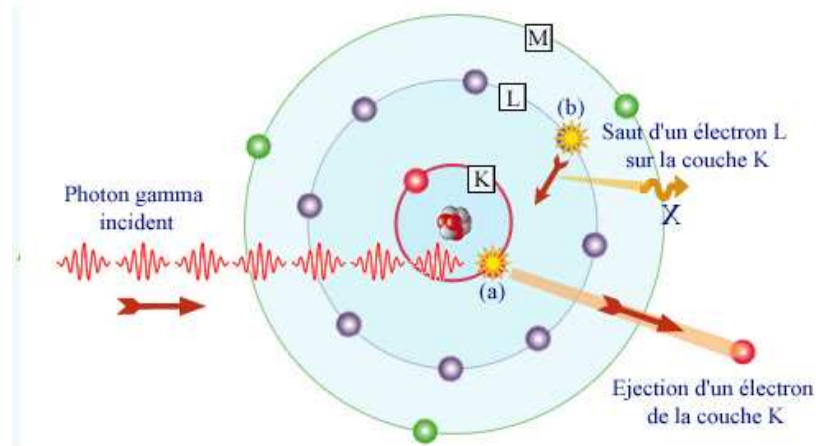
#### IV.3.2.1'Effet photoélectrique

Cet effet résulte du transfert de la totalité de l'énergie du photon incident à l'électron de l'atome cible qui est éjecté, créant ainsi un trou. Il se produit préférentiellement en couche atomique interne et ceci dès que l'énergie  $E$  du photon est supérieure à l'énergie de liaison  $E_l$  de l'électron. Ce dernier, appelé photoélectron, est alors éjecté du cortège électronique de l'atome avec une énergie cinétique  $E - E_l$  qu'il cède au cours d'ionisation et d'excitation des atomes de la matière. La place vacante est comblée par un électron de couche plus externe ou par un électron extérieur à l'atome. Ce remplacement s'accompagne soit d'une libération d'énergie sous forme de photons de fluorescence, ou communiquée à un électron d'Auger. L'effet Auger est prédominé à 90% pour les éléments légers.

Le coefficient d'atténuation massique de l'EPE est donné par :

$$\frac{\mu_{EPE}}{\rho} = k \frac{Z^5}{E^{3.5}} \quad (11)$$

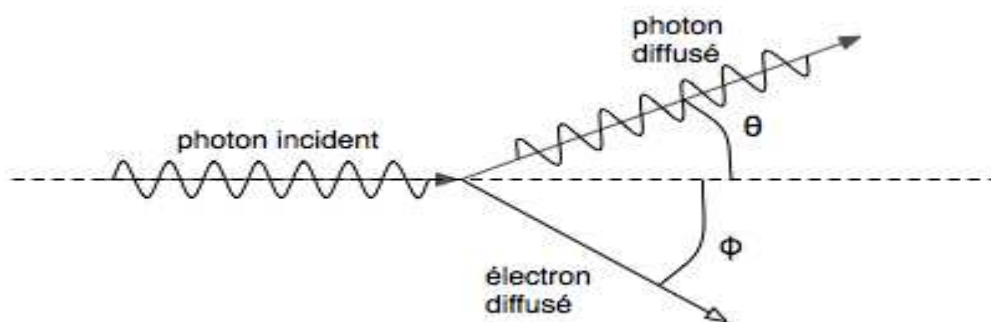
On déduit de cette figure que l'effet photoélectrique est d'autant plus important que  $Z$  est élevé.



**Figure 9:** Effets photoélectriques

#### IV.3.2.2. Effet Compton

Dans le cas de la diffusion Compton, le photon gamma possède une énergie plus que suffisante pour arracher un électron d'orbitale ; l'énergie restante est réémise sous forme d'un nouveau photon gamma de moindre énergie et dont la direction d'émission est différente de la direction incidente du photon gamma d'origine. L'efficacité de la diffusion Compton diminue avec l'augmentation de l'énergie des photons ; on pense que c'est le principal mécanisme d'absorption des rayons gamma dans la gamme d'énergie entre 100 keV et 10 MeV, qui est celle qui inclut la plus grande part de radiations gamma provenant d'une explosion nucléaire. La diffusion Compton est relativement indépendante du numéro atomique de la matière absorbant les photons gamma.



**Figure 10 :** Diffusion Compton collision d'un photon avec un électron au repos

Les résultats obtenus à partir des relations de Klein-Nishina nous donnent une idée sur les énergies moyennes du photon et de l'électron de diffusion en fonction de celle du photon incident.

énergie du photon incident (hv)	énergie du photon diffusé	énergie de l'électron éjecté
100 keV	86 keV	14 keV
500 keV	320 keV	180 keV
1 MeV	560 keV	440 keV
5 MeV	1,9MeV	3,1MeV
10Mev	3,2MeV	6,8MeV

**Tableau 3 :** Comparaison entre l'énergie cédée au photon diffusé et celle cédée à l'électron éjecté

On constate que l'énergie cédée à l'électron est faible par rapport à celle cédée au photon pour les faibles énergies. Cette tendance s'inverse pour les énergies importantes du photon incident.

Dans le cas du cobalt 60 l'énergie des faisceaux avoisine 1 MeV. Elles sont presque égales.

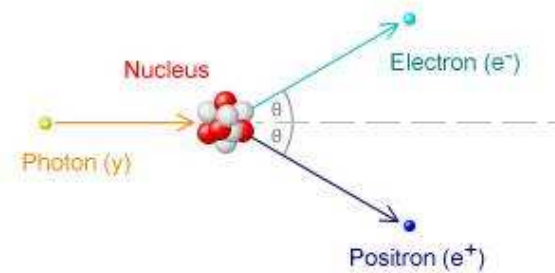
#### IV.3.2.3. Effet de matérialisation (Production de paires)

En interagissant avec la force de Coulomb au voisinage d'un noyau atomique, l'énergie du photon gamma incident peut spontanément être convertie en masse sous la forme d'une paire électron-positon. La production d'une telle paire nécessite une énergie supérieure à la masse au repos des particules qui la composent, soit 1,022 MeV : l'énergie excédentaire est transférée sous forme d'énergie cinétique à la paire formée ainsi qu'au noyau de l'atome. L'électron produit, qui est souvent appelé *électron secondaire*, est hautement ionisant. Quant au positon, très ionisant aussi, il possède une très courte durée de vie dans la matière :  $10^{-8}$  seconde, car dès qu'il est à peu près arrêté, il se combine avec un autre électron ; la masse



totale de ces deux particules est alors convertie en deux photons gamma de 0,511 MeV chacun.

Les électrons (positons) produits par ces trois processus, produisent beaucoup d'ionisations, qui les ralentissent jusqu'à la fin de leur parcours, où les positons s'annihilent.



**Figure 11** : création des paires

#### IV.3.2.4 Synthèse des trois mécanismes

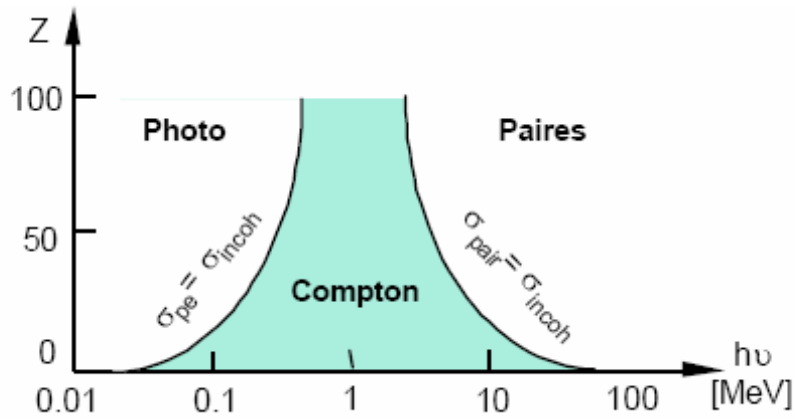
L'EPE, l'EC, et l'EPP, sont trois types d'interactions indépendantes. Le coefficient d'atténuation linéaire totale est donc la somme des trois coefficients.

$$\mu_{\text{tot}} = \mu_{\text{EPE}} + \mu_{\text{EC}} + \mu_{\text{EPP}} \quad (12)$$

D'où on peut écrire

$$\mu_{\text{tot}}/\rho = \mu_{\text{EPE}}/\rho + \mu_{\text{EC}}/\rho + \mu_{\text{EPP}}/\rho \quad (13)$$

L'importance des effets varie en fonction de l'énergie du photon incident et du numéro atomique Z de la matière.



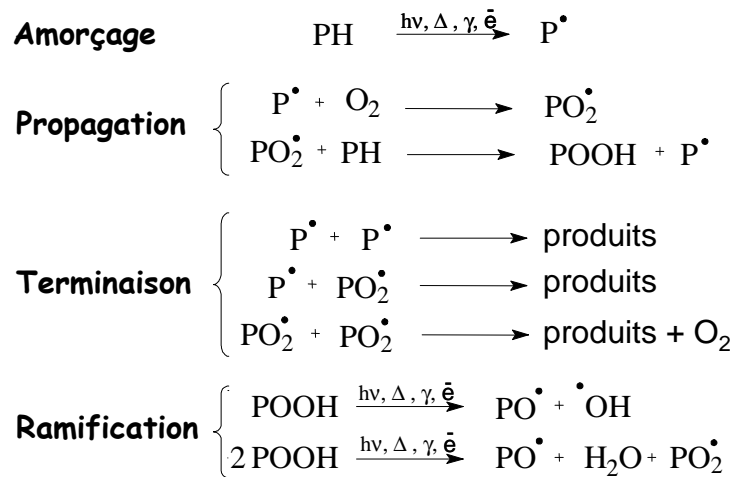
**Figure12:** Importance relative des trois types majeurs d'interactions photon-matière.  
Établie à partir des tables de coefficients d'atténuation

Les courbes représentent l'égalité entre deux types d'interactions établies à partir des tables des coefficients d'atténuation. L'effet photoélectrique et l'effet Compton sont prédominants dans la gamme d'énergie qui nous intéresse (50 keV-2 MeV).

On remarque que pour une énergie de 1,25MeV et Z élevé nous avons une prédominance de l'effet Compton ce qui est le cas pour des photons  $\gamma$  extraits d'une source au  $^{60}\text{Co}$ . Alors que pour les matériaux de faible Z comme l'eau, l'effet photoélectrique est prédominant.

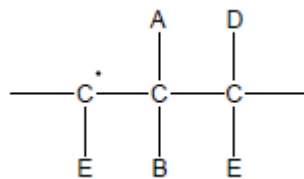
### IV.3.3. Interaction Polymère rayonnement

Les effets du gamma sur la matrice polymère, se traduisent par un transfert d'énergie linéique. Coupures de chaînes et réticulation. Lorsqu'un polymère subit une irradiation, que ce soit une émission photochimique, une radiation de haute énergie (gamma, électrons) ou une montée en température, il subit une dégradation de ses propriétés d'usage. Si l'irradiation s'effectue en présence d'oxygène, le polymère (représenté par la notion PH) peut subir une oxydation selon le mécanisme simplifié retranscrit dans la figure 13.



**Figure 13:** mécanisme simplifié d'oxydation d'un polymère

L'interaction polymère rayonnement dans les conditions aérobie ou anaérobie donne toujours naissance à une rupture homolytique d'une liaison latérale qui conduit à un macroradical



**Figure 14 :** macroradical primaire

L'évolution de ce macroradical dépend essentiellement de la condition de milieu de l'irradiation. En effet dans un milieu anaérobie deux réactions antagonistes sont en compétition, à savoir la réticulation et la coupure de chaîne, alors que dans une condition aérobie une troisième réaction qui aura lieu c'est l'oxydation par voie radicalaire [6].

L'oxydation modifie la résistance des polymères non seulement durant l'irradiation aussi après leur exposition aux rayonnements.

La résistance des polymères sous irradiation varie selon le type d'atmosphère

## V. Dosimétrie des rayonnements ionisants

Les premières notions de dosimétrie sont venues moyennant des expériences. En effet, on a remarqué que la soumission d'un litre d'eau pure isolée aux radiations provoquait dans ce dernier un phénomène de chauffage qui peut être mesuré au moyen d'un calorimètre.

Ainsi, on a vite compris que ce chauffage provenait de l'énergie déposée par les photons du champ de rayonnement qui ont interagit avec les molécules d'eau.

### V.1. Définition de la dosimétrie

La dosimétrie est la détermination quantitative de la dose absorbée par un organisme ou un objet, c'est-à-dire l'énergie reçue par unité de masse, suite à l'exposition à des rayonnements ionisants.

### V.2. Rôle de la dosimétrie

La traversée de la matière par un faisceau de particules aboutit à un transfert d'énergie vers cette matière.

*Le but de la dosimétrie* est d'évaluer quantitativement cette énergie absorbée, elle peut jouer le rôle de contrôle des traitements ionisants dans le domaine agroalimentaire, le domaine de stérilisation médicale, pharmaceutique... afin :

- De prévoir les effets des traitements par un rayonnement ionisant
- De mesurer l'énergie déposée dans les tissus lorsque les rayonnements ionisants (directs ou indirects) sont utilisés à des fins diagnostiques
- De définir des normes de protection vis-à-vis de ces rayonnements (radioprotection) soit individuellement (sur le plan personnel ou professionnel), soit collectivement.
- De caractériser l'installation d'irradiation. En effet, la mesure de la relation entre la dose absorbée et les paramètres clés de contrôle de l'installation, ainsi que la mesure de la distribution de dose dans un produit référence, permet la caractérisation globale de l'installation d'irradiation [22].

La dosimétrie permet donc d'assurer :

- La reproductibilité du traitement par les rayonnements ionisants
- L'exactitude dans les valeurs des doses absorbées selon l'application.
- Les valeurs de la dose appliquées sont soumises à des réglementations [23,24].

### V.3 Grandeurs et unités dosimétriques

#### V.3.1 dose absorbée

La dose absorbée,  $D$ , est le quotient  $d\bar{\epsilon}$  par  $dm$ , où  $d\bar{\epsilon}$  est l'énergie moyenne cédée par le rayonnement ionisant à la matière de masse  $dm$  :

$$D = \frac{d\bar{\epsilon}}{dm} \quad (14)$$

Unité S.I. :  $J. kg^{-1}$  Le nom spécial de l'unité de dose absorbée est le gray (symbole : Gy) :

$$1Gy = 1 J. kg^{-1}$$

L'ancienne unité de dose absorbée, rad, a pour valeur correspondante :  $1 rad = 10^{-2} J. kg^{-1}$

**N.B.** Pour une source de photon et sous les conditions de l'équilibre électronique, la dose absorbée,  $D$ , peut être exprimée comme suit :

$$D = \phi \cdot E \cdot \frac{\mu_{en}}{\rho} \quad (15)$$

Où :

$\phi$  = fluence des particules (particules /  $m^2$ ),

$E$  = énergie du rayonnement ionisant (J), et  $(\mu_{en} / \rho)$  = Le coefficient massique d'absorption d'énergie ( $m^2 / kg$ )

#### V.3.2 débit de dose absorbée

Le débit de dose absorbée  $\dot{D}$ , est le quotient de  $dD$  par  $dt$ , où  $dD$  est l'incrément de dose absorbée pendant l'intervalle de temps  $dt$  correspondant :

$$\dot{D} = \frac{dD}{dt} \quad (16)$$

Unité S.I:  $J. kg^{-1} s^{-1}$ .

Le nom spécial, gray (Gy), peut être substitué au joule par kilogramme :

$$1Gy. s^{-1} = 1 J. kg^{-1} . s^{-1}$$

L'ancienne unité de débit de dose absorbée, rad.  $s^{-1}$ , a pour valeur correspondante :

$$1rad. s^{-1} = 10^{-2} J.kg^{-1} s^{-1}$$

#### **V.4 Équilibre électronique**

Lors du passage du rayonnement ionisant par la matière, plusieurs phénomènes sont produits (collisions, diffusions, absorptions). L'équilibre électronique est la conséquence de ces phénomènes. Elle est réalisée sous certaines conditions.

Si on prend le cas des photons, la distribution de la dose près de la surface d'entrée pour un faisceau mono- énergétique et mono-directionnel est susceptible d'être non uniforme à cause du phénomène de buildup. La valeur exacte de la dose est sensible aux conditions extérieures. Il est plus facile de s'assurer de la valeur de la dose au delà de cette région où le spectre secondaire d'électron est suffisamment constant; à cette profondeur les conditions pour l'équilibre d'électron sont satisfaites. La région de buildup correspond approximativement à la gamme des électrons secondaires de l'énergie la plus élevée produits par des interactions des photons dans le milieu [16].

Pour assurer l'équilibre électronique pour es traitements qui nécessitent une grande exactitude. La solution technique généralement appliquée consiste à placer les dosimètres dans un fantôme. Cette espèce d'enveloppe en polystyrène ou en PMMA va assurer cet équilibre. De cette manière on garanti que la dose mesurée reflète réellement sa définition c'est-à-dire, l'énergie déposée par unité de masse d'un milieu particulier.

#### **V.5 Techniques de contrôle de traitement par rayonnement ionisant**

La métrologie de la dose consiste en la détermination de grandeurs caractérisant les transferts et dépôts d'énergie dans les milieux irradiés [17]. Tout comme pour la métrologie de la radioactivité, la variété des rayonnements en nature (électrons, photons, neutrons,...) et/ou en énergie ainsi que les limites instrumentales, impliquent qu'il ne peut y avoir d'étalon unique pour chacune des grandeurs dosimétriques. De ce fait, on est amené à considérer comme références des chaînes d'instrumentation, allant de la source de rayonnement à la méthode de mesure.

En ce qui concerne la dosimétrie de haute énergie les systèmes de mesures dosimétriques sont constitués généralement :

- D'un capteur qui est le dosimètre
- Et d'une chaîne de mesure permettant de déterminer les changements qu'a subit le capteur passif (dosimètre).

## **V.6 Systèmes dosimétriques**

La mesure de la dose absorbée nécessite l'utilisation d'un système dosimétrique qui se comporte non seulement des dosimètres physiques ou chimiques bien établis mais également de l'instrument qui mesure l'effet induit par le rayonnement dans le matériau du dosimètre.

### **V.6.1 Classification des systèmes dosimétriques**

Les systèmes dosimétriques peuvent classés en deux classes principales selon leurs qualités métrologiques : systèmes dosimétriques primaires et secondaires.

#### **V.6.1.3 Système de référence**

Le système de référence doit servir à l'étalonnage des systèmes de routine dans les faisceaux de l'utilisateur et à l'étalonnage initial des faisceaux produits par de nouveaux appareils.

L'instrument de référence doit, pour être considéré comme tel, répondre à plusieurs critères : Il doit donner une réponse identique d'une irradiation à la suivante au cours de plusieurs irradiations successives faites dans les mêmes conditions dans un faisceau caractérisé par un débit de dose constant : répétabilité de réponse.

La même réponse de l'instrument de référence doit être obtenue dans ces mêmes conditions d'irradiation, les mesures étant rapportés au même débit de dose : reproductibilité de réponse.

#### **V.6.1.5 Système de routine**

Les exigences requises pour les instruments utilisés en routine dépendent de leur fonction

- Si le dosimètre de routine est utilisé pour la mesure des doses absorbées de référence, il doit présenter les mêmes qualités que le dosimètre de référence et être étalonné par rapport à ce dernier dans les faisceaux de l'utilisateur.

- Si le dosimètre de routine est utilisé pour des mesures relatives de dose, il peut présenter des qualités métrologiques moindres que celles exigées pour l'instrument de référence. Les capteurs usuellement employés dans ce but sont les chambres d'ionisation, les semi-conducteurs, les dosimètres thermoluminescences, les films radiographiques.

Les systèmes dosimétriques utilisés en routine dans l'industrie sont principalement des systèmes solides à absorption optique (PMMA...).

Le choix d'un tel outil routinier de mesure de dose est bien sûr conditionné par la gamme de lecture du dosimètre, la stabilité et la reproductibilité de la mesure, mais également par la simplicité de la mise en œuvre et surtout par le coût d'utilisation (coût du dosimètre, de l'instrument d'analyse...).

### **V.6.1.5.3 Principe**

L'opération d'étalonnage consiste à irradier plusieurs dosimètres à des valeurs de doses qu'on calculera selon le protocole du type de dosimètre. Ensuite, nous procéderons aux mesures à l'aide de systèmes de mesure étalonnés. Enfin, nous ajusterons les points de mesures selon la méthode des moindres carrés. Ceci nous permet de trouver une relation mathématique entre la dose absorbée et l'absorbance.

### **V.6.1.5.4 Conditions de l'opération**

Afin de garantir une certaine traçabilité des résultats obtenus nous sommes amenés à respecter le protocole qu'indique la norme ISO-ASTM.. Ce dernier exige que les conditions de déroulement de l'étalonnage soient équivalentes à celles des traitements de routines.

Les conditions environnementales comme la température et l'humidité doivent être similaires à celles d'un traitement de routine. D'ailleurs les corrections apportées par la courbe d'étalonnage qu'on déterminera ne seront applicables que pour des traitements dans des conditions similaires.

### **V.6.1.5.5 Mode opératoire**

Avant d'irradier, il est nécessaire de déterminer les paramètres suivants :

#### **Le débit de dose :**

Le calcul du débit de dose au point de référence se fait dans le cadre d'une mission effectuée par un organisme indépendant accrédité (Laboratoire Aériel cas du CNSTN). Une fois le débit de dose au point de référence déterminé, il est nécessaire d'effectuer les corrections dues aux lois régissant la décroissance radioactive du  $^{60}\text{Co}$ . C'est ainsi qu'on détermine le débit exact de la source au jour J.

D'autre part, il est commode de vérifier la valeur du débit de dose au point de référence, à l'aide de dosimètre Fricke dont le CV est inférieur à 1%.

#### **Détermination des valeurs de doses à utiliser pour la procédure d'étalonnage :**

Les valeurs de doses pour l'opération d'étalonnage ne sont pas choisies de manière aléatoire. En effet, le nombre de points et leurs valeurs obéissent à des lois décrites par la norme ISO ASTM .



Pour un dosimètre dont la plage de mesure de dose est l'intervalle  $[D_{\max} \dots D_{\min}]$  :

$$\text{On calcule } R = \frac{D_{\max}}{D_{\min}} \quad (17)$$

$$\text{Puis } Q = \log R \quad (18)$$

Si  $Q > 1$ , la norme ISO ASTM indique que le nombre de points à mesurer doit être au minimum égal à  $5 \times Q$  (avec un arrondissement de la valeur). Ces points doivent être distribués géométriquement.

Dans le cas contraire ( $Q \leq 1$ ), on doit choisir au minimum 4 points qu'on distribuera arithmétiquement.

## **V.6.2 Principaux types de dosimètres**

Il est possible de déterminer la dose absorbée lors d'une exposition à un rayonnement déterminé. On utilise comme dosimètres principalement les dispositifs suivants :

### **V.6.2.1 Systèmes dosimétriques physiques**

#### **V.6.2.1.1 Calorimétrie**

On utilise le fait qu'une grande partie de l'énergie d'ionisation et d'excitation se dégrade finalement en chaleur, les transformations chimiques ou les changements physiques ne présentant en général que quelques %. Dans certains milieux absorbants, tels que le graphite ou les métaux, l'énergie localement déposée est dissipée entièrement en chaleur et ce pour beaucoup de rayonnements ionisants dans un large domaine d'énergie. La calorimétrie constitue ainsi une méthode absolue pour déterminer la dose absorbée à partir des mesures relativement simples de température et de capacités calorifiques.

Cette méthode permet en pratique l'étalonnage de champ de rayonnement et est surtout utilisée pour des contrôles quotidiens de traitement ionisant par faisceaux d'électron.

#### **V.6.2.1.2 Ionométrie**

Principale méthode de base avec la calorimétrie. Son principe est le suivant :

Un détecteur à ionisation comporte deux électrodes polarisées délimitant un volume gazeux irradié par une source de rayonnements ionisants qui peut être externe ou plus récemment interne. Les ions positifs et les électrons sont collectés sous l'action du champ électrique créé

entre ces électrodes reliées à un circuit RC qui enregistre un courant ou une impulsion. La collecte de ces ions est en concurrence avec des processus de recombinaison d'ions de signes contraires avant qu'ils atteignent les électrodes ou de multiplications ioniques par accélération des ions primaires dans des champs électriques suffisamment intenses. Le nombre de charges collectées varie en fonction de la tension inter électrode ; le régime de fonctionnement en chambre d'ionisation correspond à l'obtention d'un premier courant de saturation résultant de la collecte de tous les ions primaires en absence des effets de recombinaison et de multiplication ioniques.

#### **V.6.2.1.4 Films dosimètres**

Ce sont les plus utilisés des dosimètres pour la radioprotection individuelle. Leur port est obligatoire pour les personnes qui travaillent dans un service de radiologie, de radiothérapie ou de médecine nucléaire. Une partie du film est équipée d'un cache qui intercepte les rayons  $\beta$  et permet de ne mesurer que la dose d'exposition liée aux photons X ou  $\gamma$  ; la partie non cachée mesure la dose globale  $\beta$ , X et  $\gamma$ . Tous les mois, le film est développé et son noircissement permet de connaître la dose absorbée par comparaison à une gamme étalon.

Pratique et économique, ces dosimètres ont l'avantage de fournir un document conservable.

#### **V.6.2.2.2 Dosimètres à base de polymères**

Pour suivre produit par produit la dose reçue au cours du traitement ionisant, on a souvent recours à des films de polymère le plus souvent imprégné de colorant, dont on a pu relier au préalable le changement de densité optique dans le spectre UV visible à la réponse d'un dosimètre de référence tel que la solution de Fricke.

#### **V.6.2.2.3 Dosimètres à radicaux libres**

Lors de l'irradiation à la température ordinaire de la L- $\alpha$ -alanine à l'état solide, il y a formation de radicaux libres de très longue durée, dont la détection se fait par résonance paramagnétique électronique. De tels dosimètres sont caractérisés par l'excellente reproductibilité de la réponse radicalaire dans un très large intervalle de dose (1 à  $10^5$  Gy) [21]

#### **V.6.2.3.5 Les dosimètres Harwell PMMA**

Ils se présentent sous la forme d'une plaquette rectangulaire, de dimensions 30 x 11 mm et d'épaisseur variant de 1,5 à 3 mm. Ils contiennent un colorant différent selon la gamme de dose utilisée. Ils sont emballés dans une enveloppe hermétique composée de polyester et d'aluminium qui les rend imperméables à l'oxygène et à l'eau. Ces enveloppes sont très

résistantes et protègent les dosimètres contre les surfaces rugueuses et les changements des conditions atmosphériques.

Caractéristiques des dosimètres Harwell PMMA			
Type de dosimètre	Couleur	Domaine de dose	Longueur d'onde pour la lecture
Red_perspex 4034 Lots FB, FCet FG	Rouge	5-50 kGy	640 nm
Amber_perspex 3042 Lots K, M et N	Orange	1-30 kGy	603 nm ou 651nm
Gammachrome YR Lot 62	Jaune	0,1-3 kGy	530 nm

**Tableau 6 :** Différents types de dosimètres PMMA

La substance active de ce dosimètre est un colorant qui est dispersé dans le poly-méthyle de méthacrylate (PMMA). Le rayonnement ionisant entraîne l'ionisation du PMMA et des colorants ajoutés dans le polymère du PMMA. Les radicaux du polymère ionisé réagissent avec les molécules colorées pour produire une absorption optique dans le spectre visible.

## Chapitre 3

# Matériels et méthodes

Le suivi des propriétés paramagnétiques a été effectué sur des films et des pastilles de forme rectangulaires de PMMA. La technique analytique utilisée pour cela est la résonance paramagnétique électronique (RPE). La RPE nous renseigne sur les centres paramagnétiques formés suite à l'irradiation. Pour l'irradiation des échantillons nous avons utilisé la source au cobalt-60 qui fait l'objet du second paragraphe

### I. Sources d'irradiation au CNSTN

On dispose au CNSTN de deux sources rayonnements : Une source de photons  $\gamma$  et un accélérateur d'électrons. Ces installations servent non seulement pour la recherche mais aussi pour le traitement de produits médicaux, pharmaceutiques et agroalimentaires. Dans ce qui suit nous présenterons l'irradiateur sur lequel est axé ce travail.

#### L'irradiateur aux rayonnements gamma au Cobalt- 60

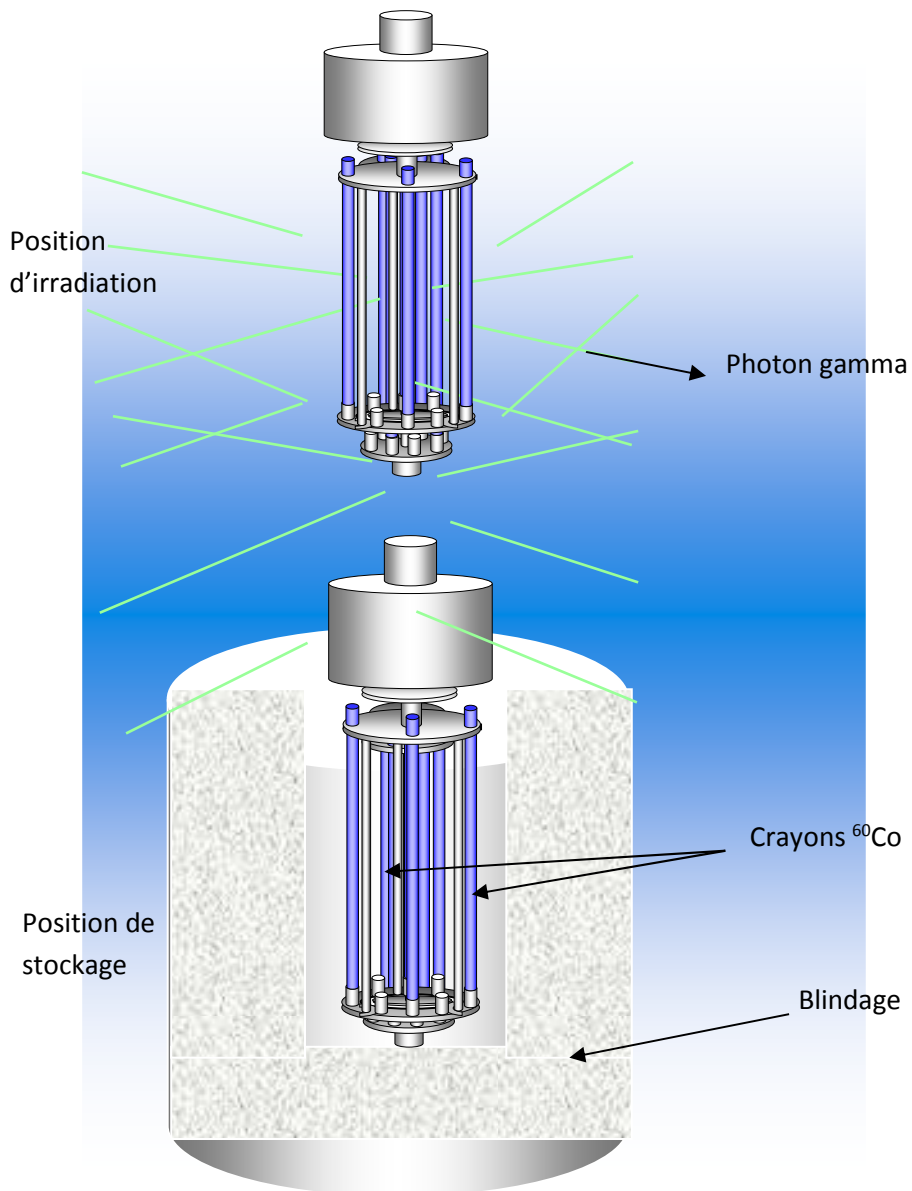
L'unité de radiotraitement présente une source scellée de cobalt – 60 émettrice de rayons gamma d'énergie moyenne 1.2 MeV. L'unité est multidisciplinaire, elle est destinée aux traitements de produits de différentes natures comme les produits agro-alimentaires, les dispositifs médicaux et différents autres matériaux.

La source d'irradiation est télescopique, elle est constituée de deux cylindres encastrables chacun contient 4 crayons de cobalt \_60 de 45,2 cm de long et sont disposés et encapsulés suivant une symétrie axiale.

Le stockage de cette source se fait à sec dans un container cylindrique dans lequel elle a été transportée. Il est constitué d'acier et de plomb. L'activité initiale de la source est de 98.000 Ci (9/4/99).



**Figure 15** : l'irradiateur au cobalt-60 du CNSTN

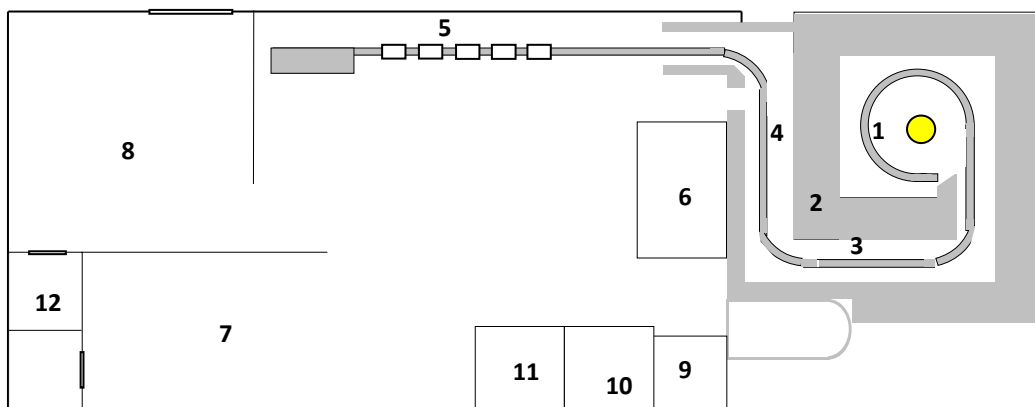


**Figure 16:** Source du Cobalt-60

L'unité d'irradiation est constituée d'une cellule d'irradiation abritant la source, d'un labyrinthe, d'une salle de commande, d'un laboratoire de dosimétrie, d'un hall de stockage des produits ionisés et non ionisés et de chambres froides.

Les produits industriels à traiter sont transportés à l'intérieur de la cellule d'ionisation à l'aide de 5 chariots conduits par un système de convoyage électromécanique fixé au sol. Chaque chariot peut transporter au maximum 24 caisses de dimensions (54 x 35 x 27) cm

chacun disposés à raison de 4 par étage, et sur une hauteur de six étages, soit un volume total de 1,22 m<sup>3</sup>. Au cours du traitement, les cinq chariots sont transportés à l'intérieur de la cellule et disposés autour de la source où seules deux rangées de caisses sont en face de la source, les deux autres rangées sont contre le mur. Un cycle de traitement comprend deux demi-cycles. A la fin du premier demi-cycle, les produits sont déplacés à l'extérieur de la cellule, subissent un retournement de 180° puis sont reconduits dans la cellule pour continuer le deuxième mi cycle de traitement. Cette opération est effectuée dans le but d'assurer une bonne homogénéité de dose absorbée.



**Figure 17** : Plan architectural de l'unité de traitement par rayons  $\gamma$  au CNSTN.

Indice	équipement	indice	Equipement	indice	équipement
1	source au Cobalt 60	5	Chariots	9	laboratoire Dosimétrie
2	cellule de traitement	6	salle de commande	10	Radioprotection
3	chaîne du convoyeur,	7	hall de stockage des produits ionisés	11	entretien et maintenance
4	labyrinthe,	8	Hall de stockage des produits non ionisés	12	chambres froide avant et après traitement

**Tableau 7** : légende relative au plan architecturale de l'unité de traitement par rayons

## II. La spectroscopie par Résonance paramagnétique Electronique (RPE) :

### II.1 Introduction

L'électron a un mouvement de rotation sur lui-même caractérisé par le nombre quantique de spin  $\hat{S}$  dont les valeurs propres  $\pm 1/2$  correspondent aux deux orientations que peut prendre le spin dans un champ magnétique, l'une parallèle, l'autre antiparallèle au champ. Deux niveaux énergétiques en résultent, niveaux entre lesquels des transitions peuvent être induites. Le but de la résonance paramagnétique électronique RPE est précisément d'étudier ces transitions.

Plusieurs termes sont utilisés dans la littérature anglo-saxonne pour désigner cette spectroscopie

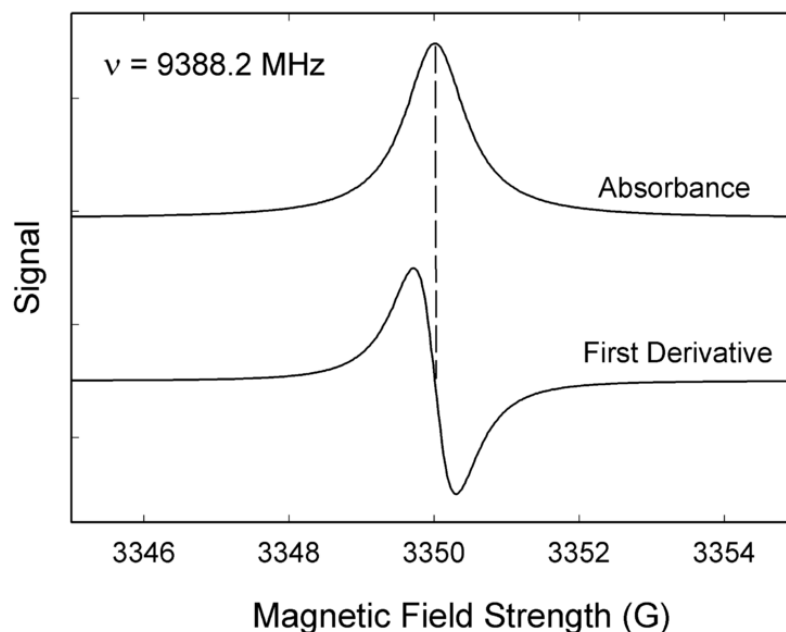
### II.2 Principe

La résonance paramagnétique électronique permet d'observer l'énergie absorbée par un système (électrons) immergé dans un fort champ magnétique homogène. Rappelons que l'électron possède un spin (moment angulaire de la particule en rotation sur elle-même) et un moment magnétique (il se comporte comme une aiguille aimantée): en présence d'un champ magnétique extérieur, les deux orientations permises du spin ( $\alpha$  et  $\beta$ ) déterminent deux niveaux d'énergie. On peut susciter le retournement du spin, c'est-à-dire induire une transition  $\alpha \rightarrow \beta$ , en appliquant un rayonnement électromagnétique de fréquence appropriée, et détecter l'absorption d'énergie qui résulte de cette transition. L'éclatement des deux niveaux d'énergie varie proportionnellement avec le champ magnétique. En pratique, l'expérience de RPE est réalisée en maintenant constante la fréquence de la source d'ondes électromagnétiques et en faisant varier continûment le champ extérieur. Lorsque l'écart entre les niveaux  $\alpha$  et  $\beta$  devient égal à l'énergie  $h\nu$  des photons, ceux-ci sont absorbés (phénomène de résonance).

### II.3 Spectre RPE

Le signal de RPE est la dérivée de l'absorption résonante. C'est la puissance absorbée par l'échantillon, qui correspond à la valeur moyenne de l'énergie électromagnétique reçue par l'échantillon. Le signal de RPE est donc proportionnel au volume de l'échantillon.





**Figure 18 :** Spectre RPE

#### II.4 spectromètre RPE

Le spectromètre RPE (fig 18) est conçu pour répondre à la condition de résonance :  $Hgh\beta\nu=0$ . Les différentes fréquences disponibles commercialement sont : L (1 GHz), S (3 GHz), X (10 GHz), Q (35 GHz), W (95 GHz). Il y a encore la bande H à très haute fréquence qui utilise une excitation optique. La bande la plus utilisée est la bande X, avec un électroaimant de 0 à 1.2 T typiquement pour une fréquence HF de 9-10 GHz. La source HF est généralement une diode Gunn (oscillateur à fréquence fixe), après avoir longtemps été un klystron. Une diode Gunn est un composant électronique dont la caractéristique courant-tension présente une pente négative dans certaines régions, ce qui lui confère des propriétés d'oscillateur HF. La puissance de l'onde émise par cet oscillateur est stabilisée par un contrôle automatique de fréquence (AFC) qui est une boucle de rétroaction sur le signal détecté par un cristal de silicium qui se comporte comme un redresseur de l'onde HF. Les puissances typiques sont faibles : elles ne dépassent pas 250 mW. Un atténuateur logarithmique permet de travailler jusqu'à de très faibles puissances de quelques  $\mu\text{W}$ , afin d'éviter les effets physiques de saturation.



**Figure19** : Spectromètre RPE du CNSTN

## Chapitre 4

# Résultat et discussion

Dans ce chapitre nous présentons les résultats de caractérisation spectroscopique par RPE de nos échantillons de PMMA. Nous commençons par une optimisation des paramètres de fonctionnements de l'appareil par la détermination du centre de la cavité et la puissance d'analyse des échantillons.

Nous étudierons ensuite la réponse des échantillons irradiés en fonction de la dose. Finalement nous étudions quelque paramètre d'influence tel que l'effet de fading.

## Résultats par RPE

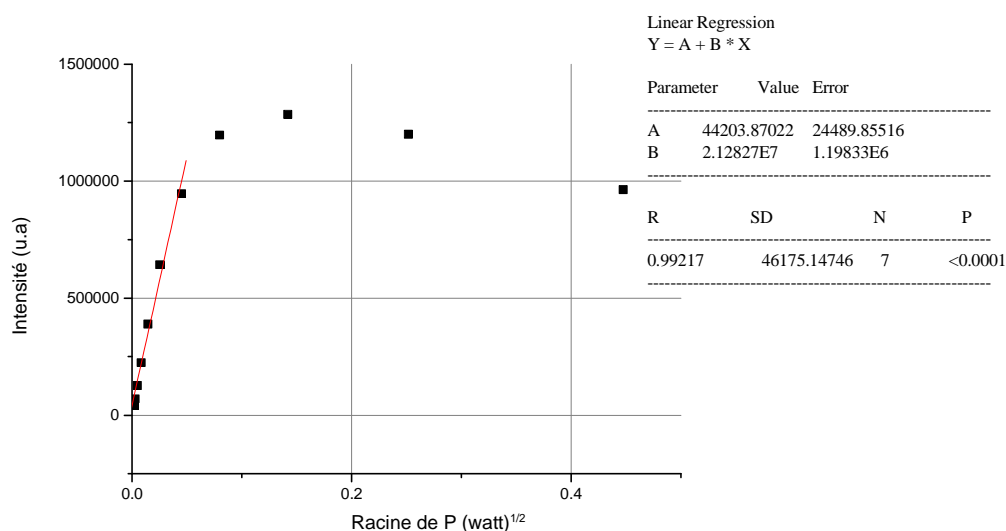
### I. Courbe de réponse en RPE

Pour déterminer cette courbe qui est l'évolution du signal RPE en fonction de la dose, il est nécessaire d'optimiser la puissance d'analyse de la micro-onde du spectromètre RPE. Les spectres RPE ont été mesurés avec la bande X à température ambiante en utilisant une cavité rectangulaire fonctionnant à des fréquences aux alentours de 9.5 GHz. Les paramètres d'acquisition devraient être choisis de façon à obtenir le maximum du signal. Ceci dit à déterminer la puissance, la modulation d'amplitude et la puissance de mesure. Important à noter que le nombre de pics observé dépend fortement des paramètres d'acquisition [18]

### II. Effet de la puissance micro-onde

Parmi les paramètres d'acquisition cités, la puissance de la micro-onde est d'une importance considérable. En effet elle joue un rôle primordial dans la saturation de la réponse d'une espèce radicalaire. Ainsi, l'étude des propriétés de saturation des raies de résonance peut être utile pour distinguer les différents centres paramagnétiques existant. Pour étudier le phénomène de saturation des centres, la méthode consiste à déterminer l'évolution de l'intensité du signal RPE en fonction de la puissance micro-onde.

La variation de l'intensité des raies en fonction de la racine de puissance de la micro-onde est représentée sur la figure 20.

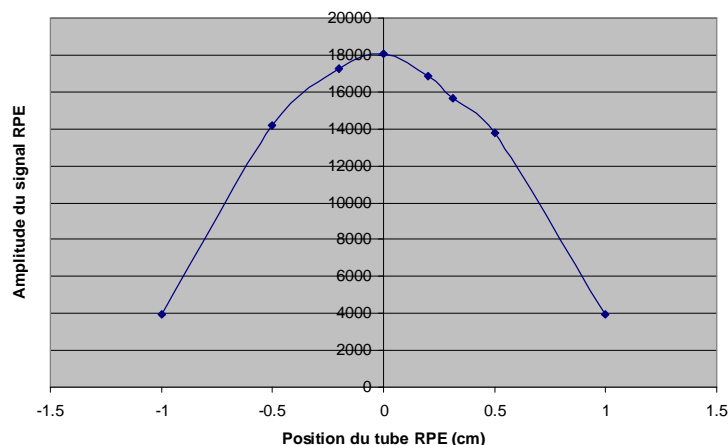


**Figure 20 :** Courbe intensité en fonction de la racine carrée de P

A partir de cette courbe expérimentale on peut remarquer une réponse linéaire jusqu'à une atténuation de 15 db, correspondant à une puissance 6.325 mW, alors pour les atténuations supérieures à 15 db nous remarquons un comportement linéaire avec un facteur de corrélation  $R^2 = 0.992$ . La puissance d'analyse qui sera utilisée dans la suite devrait être inférieure à 2 mW. Dans la suite de ce travail cette puissance a été fixée à 0.632 mW.

### III. Détermination du centre de la cavité

Pour déterminer le centre de cette cavité la méthode expérimentale consiste à déterminer la réponse RPE de l'échantillon irradié en fonction de sa position dans la cavité. La modulation d'amplitude a été fixée à 4 Gauss et l'amplification du signal à  $10^3$ . Le temps de conversion a été fixé à 83 ms. En ce qui concerne l'atténuation, elle est fixée à 25 dB. La représentation de cette réponse donnée par la figure 21.



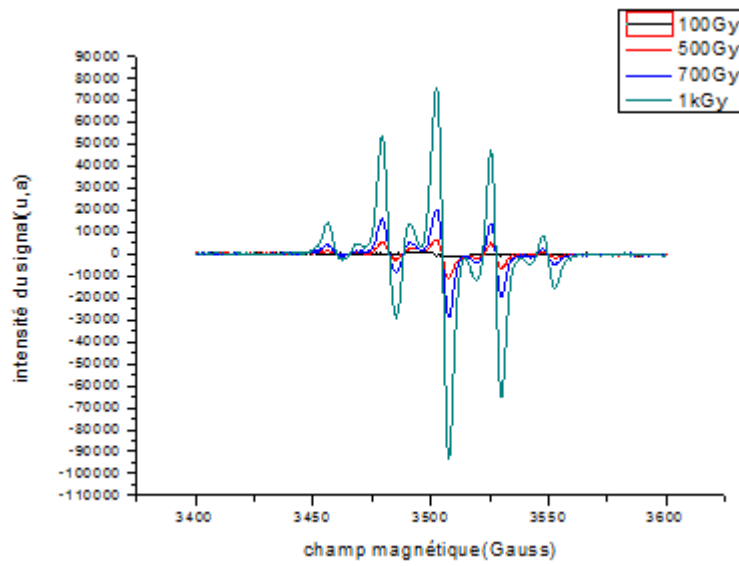
**Figure 21** : réponse RPE d'un échantillon irradié en fonction de sa position par rapport au centre de la cavité

Après avoir optimisé les paramètres qui peuvent influencer sur les mesures, nous étudions dans cette partie l'effet de l'irradiation sur les propriétés paramagnétiques. L'objectif d'analyse par RPE est consacré sur l'étude de la potentialité d'application dosimétriques de PMMA comme un capteur de radiation, ensuite nous étudions le problème de fading c'est-à-dire une étude cinétique de décroissance des espèces radicalaires au cours du temps.

#### IV. Réponse dosimétrique à faible dose

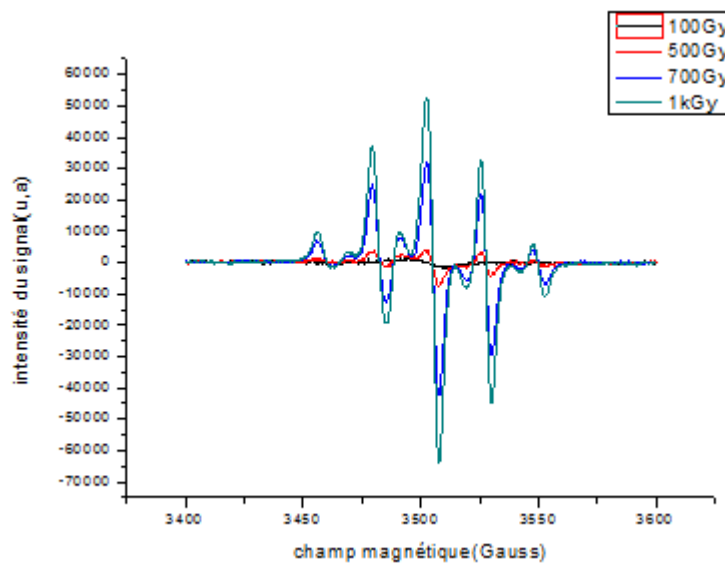
Nous donnerons dans les figures 22, 23 et 24, les spectres RPE des PMMA des trois batch KS, EB et JF, irradiés à faibles doses de 100 à 1000 Gy. L'analyse de ces figures montre que le spectre RPE du PMMA irradié présente 9 raies dont l'intensité (hauteur pic-à-pic) varie en fonction de la dose. La revue de la littérature manque un manque d'information sur l'identification de ces radicaux. Nous donnerons ici seulement des résultats préliminaires. En effet nous pensons que ces centres correspondent aux radicaux  $CH_2\dot{C}COOMeCH_3$  (présentant un quintuple de raies) et  $CO_2\dot{C}H_2$  (présentant un quadruplet de raies). L'intensité des raies est une fonction croissante de la dose [25, 26, 27].

- **Batch EB**



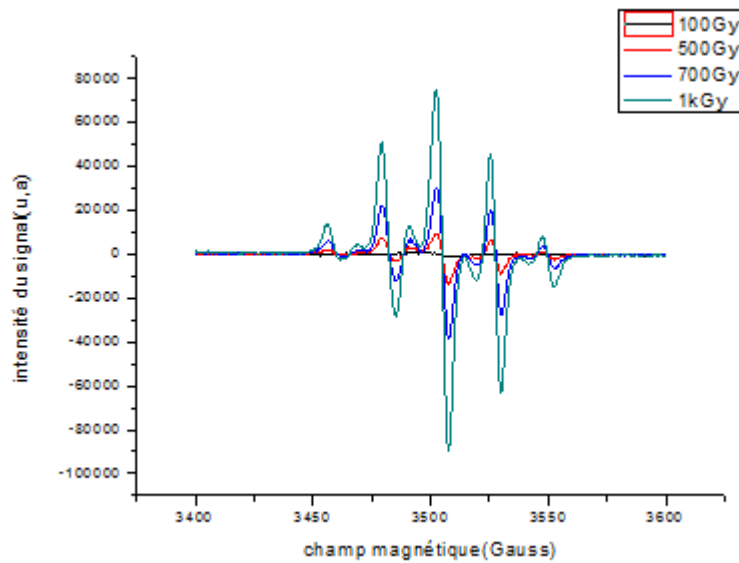
**Figure 22 :** Amplitude du signal RPE en fonction du champ magnétique (batch EB)

- **Batch JF**



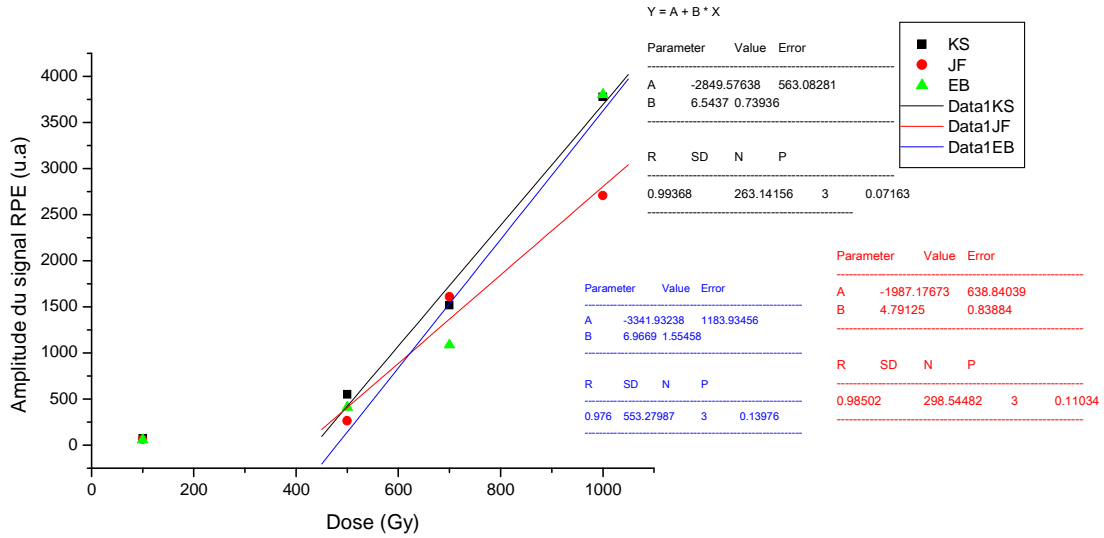
**Figure 23 :** Amplitude du signal RPE en fonction du champ magnétique (batch JF)

- **Batch KS**



**Figure 24 :** Amplitude du signal RPE en fonction du champ magnétique (batch KS)

L'évolution de l'amplitude du signal ( $h$  : hauteur pic à pic) en fonction de la dose est donnée par la figure 25. Nous obtenons une réponse linéaire dans la gamme de doses comprises entre 500 et 1000 Gy avec un coefficient de corrélation  $R^2=0.9$ . Il est important de noter que le minimum détectable mesuré est de 100 Gy alors que le fabricant Harwell donne une valeur de 5000 Gy [28]. La réponse dosimétrique nous permet de conclure que le PMMA est un dosimètre potentiel pour son application dans la gamme de faible dose en utilisant la RPE comme moyen d'analyse.

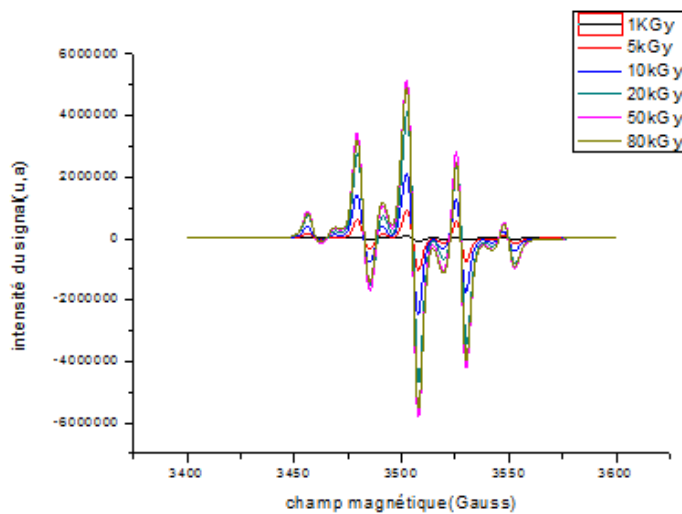


**Figure 25** : courbe du signal RPE en fonction de la dose

## V. Réponse dosimétrique à haute dose

Les figures 26,27 et 28 montrent les spectres obtenus suite à l'irradiation du PMMA de 1 à 80 kGy des trois batch EB, JF et KS. L'analyse de ces figures montre que les spectres R.P.E. du PMMA irradié présente 9 raies dont l'identification est similaire au paragraphe précédent. Le maximum détectable par RPE est supérieur à la valeur maximale donnée par le fabricant qui est de 50 kGy [28].

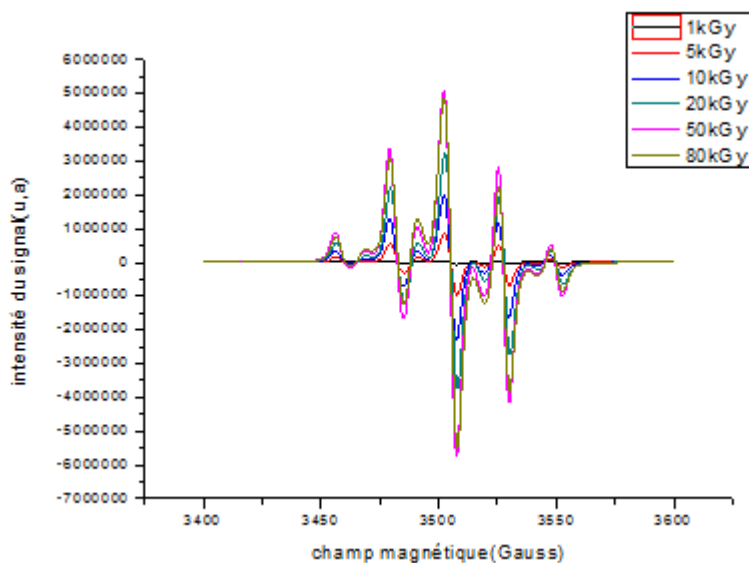
- **Batch EB**



**Figure 26**: Amplitude du signal RPE en fonction du champ magnétique (batch EB)

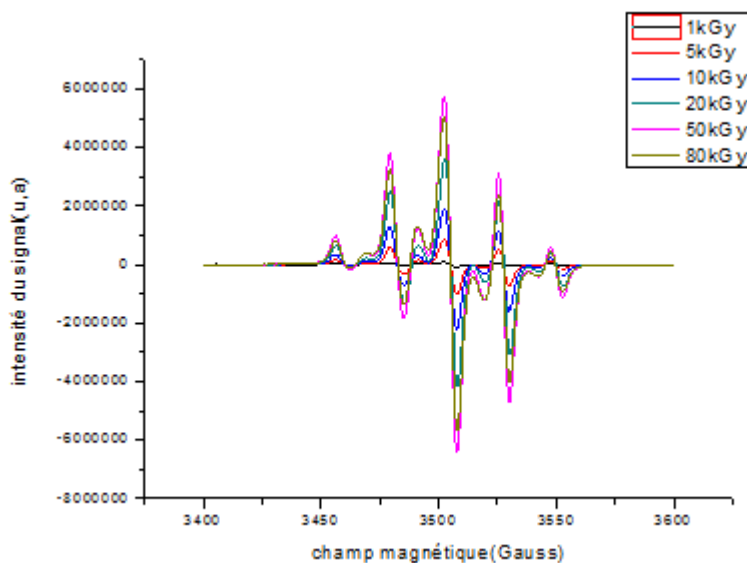


- **Batch JF**



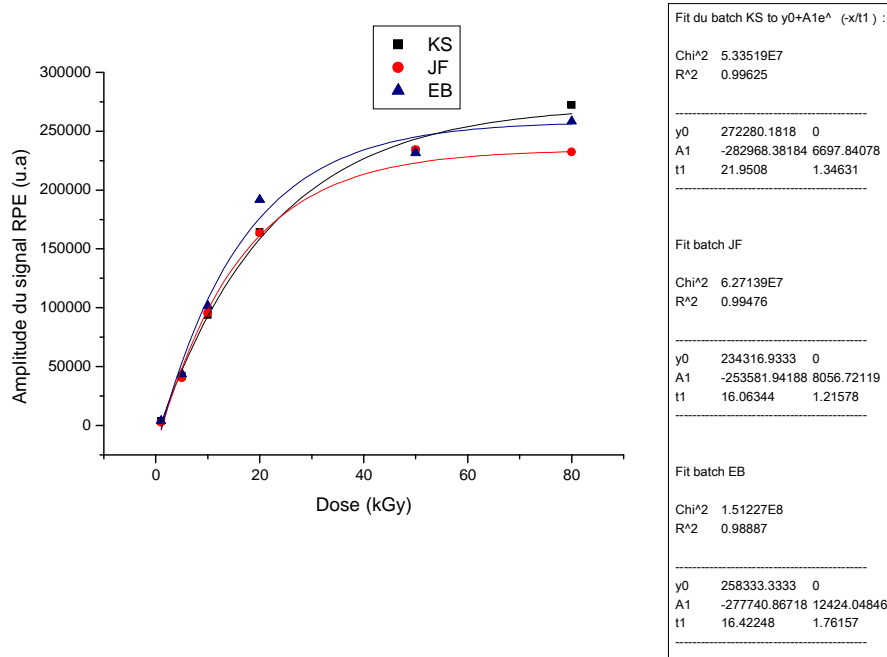
**Figure 27 :** Amplitude du signal RPE en fonction du champ magnétique (batch JF)

- **Batch KS**



**Figure 28 :** Amplitude du signal RPE en fonction du champ magnétique (batch KS)

L'évolution de l'amplitude du signal (h : hauteur pic à pic) en fonction de la dose est donnée par la figure 29 :



**Figure 29:** courbe de l'amplitude du signal RPE en fonction de la dose

Nous remarquons que l'amplitude du signal RPE varie exponentiellement en fonction de la dose avec un coefficient de corrélation  $R^2 = 0.9$ . Il est important de noter l'absence de saturation obtenue par lecture optique à 50 kGy.

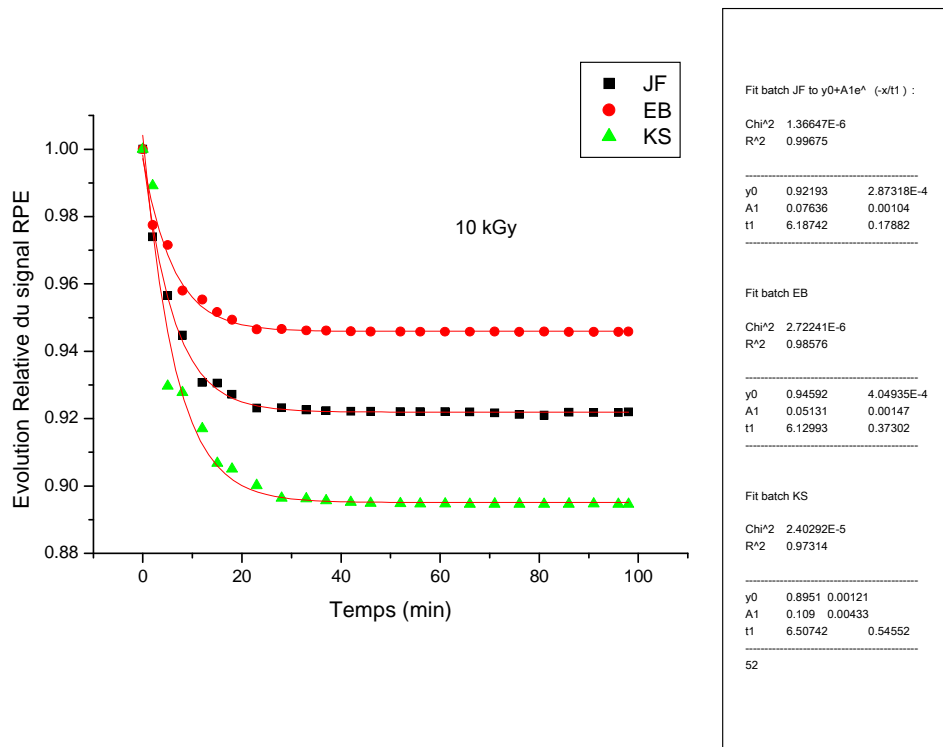
## VI. Etude cinétique

En dosimétrie de routine les paramètres affectant la réponse des dosimètres sont la température d'irradiation, la lumière, le débit de dose, l'énergie d'irradiation et le fading (post irradiation stabilité). Notre étude a été focalisée sur l'étude de la stabilité du signal RPE en fonction du temps. Pour cette raison nous avons pris 4 échantillons qui sont irradiés à différentes doses (1, 5, 10 et 20 kGy) et qui sont gardés à l'abri de la lumière dans des sachets en Aluminium.

### VI.1 Cinétique juste après irradiation

Dans la figure 30 on donne les courbes de décroissance des échantillons des batch KS, EB et JF, irradiés à 1 kGy. Ce suivi a été effectué pendant heures. Nous donnerons ici dans cette figure que la zone d'intérêt et celle de la stabilité obtenue pendant 100 min suite à l'irradiation. Nous remarquons que la décroissance suit une loi exponentielle avec un coefficient de corrélation  $R^2$  élevé de 0.99.

L'évolution relative du signal RPE peut être décomposée en deux parties, le premier est rapide pendant les premières minutes juste après irradiation, et le deuxième est lent juste après 20 minutes suite à l'irradiation. Cette dernière se tendre à se stabiliser jusqu'à 100 min. ce résultat montre que la lecture par RPE devrait se faire dans l'intervalle du temps allant de 20 à 100 min afin d'avoir une bonne stabilité du signal RPE.

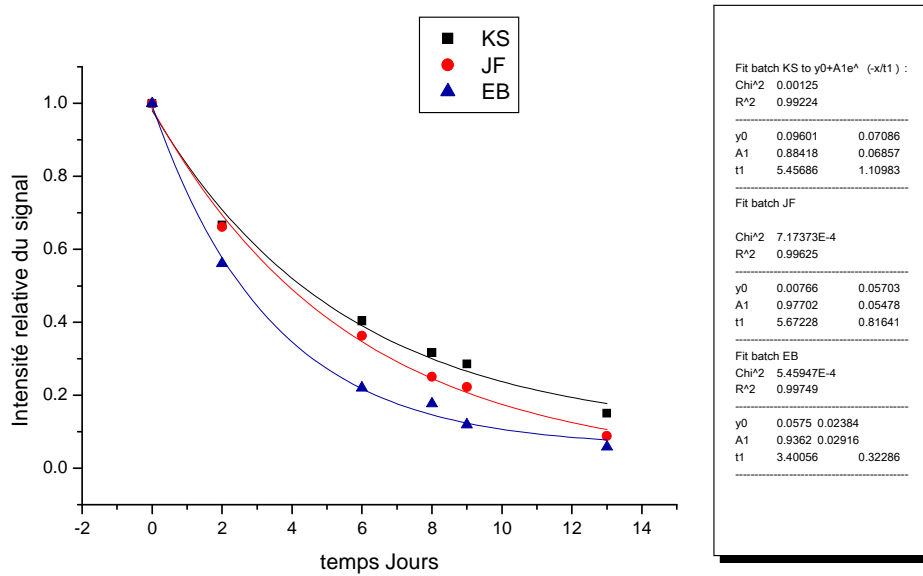


**Figure 31:** courbe cinétique juste après irradiation

## VI.2 Cinétique de décroissance à 1 kGy

Pour voir l'évolution du signal après stabilité, nous avons suivi l'évolution du signal pendant 13 jours après irradiation. Comme vous pouvez le remarquer dans la figure 32, l'amplitude du signal décroît exponentiellement jusqu'à la perte totale du signal. Les coefficients de corrélation de cette relation est supérieur à 0.99. Il est à noter que la lecture des dosimètres par RPE devrait se faire dans les premières heures qui suivent l'irradiation afin de ne pas perdre le signal RPE. D'autre part nous devons effectuer une correction afin

de tenir compte de la perte et signal et pour remonter à la dose réelle reçue. Ce résultat est validé par les trois batch.

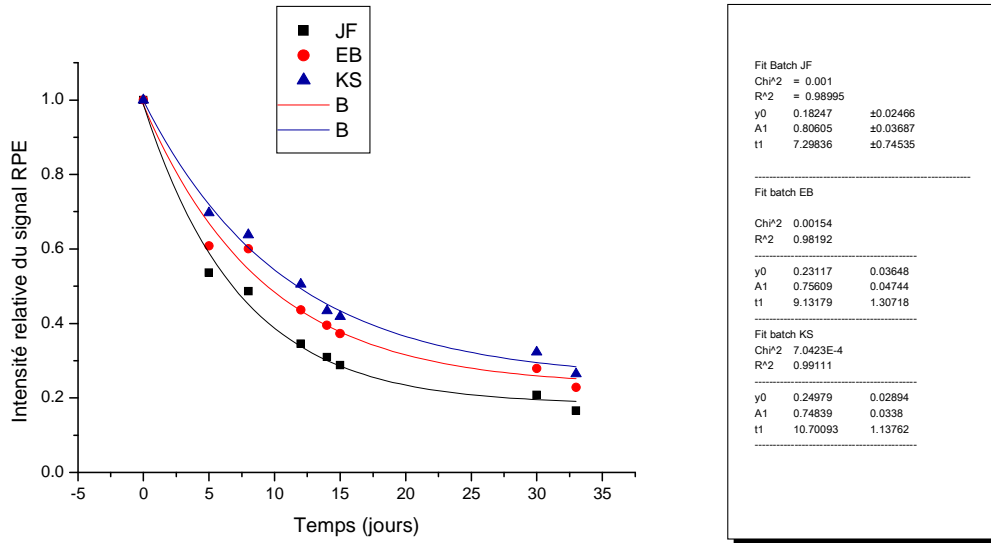


**Figure 32** : courbe cinétique de décroissance de 1kGy

## VI.2 Cinétique de décroissance à 5kGy

Dans la figure 33 nous donnons la variation relative du signal RPE des batch JF, EB et KS en fonction du temps et durant les 33 jours qui suivent l'irradiation. Nous remarquons que l'intensité relative du signal RPE décroît exponentiellement en fonction du temps avec un coefficient de corrélation  $R^2 = 0.99$ .

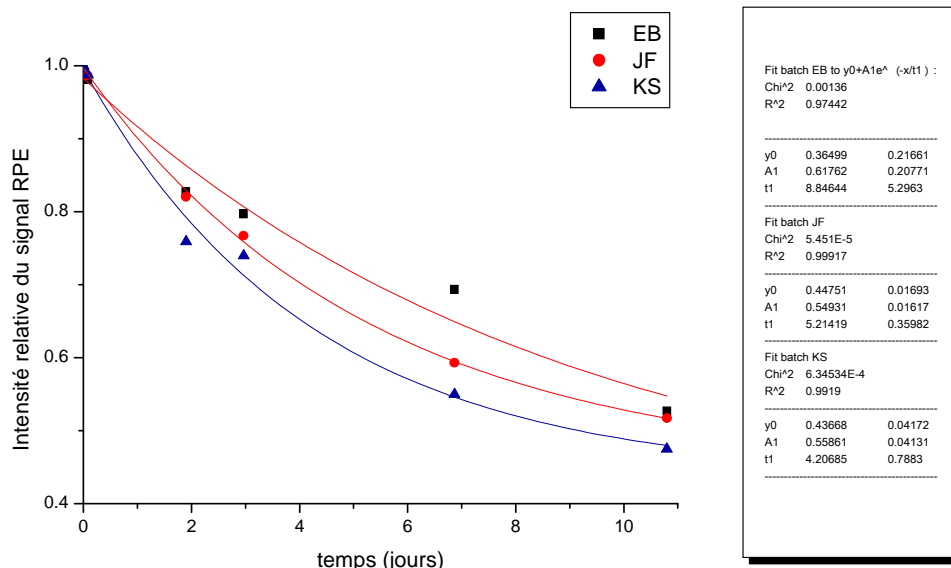
La perte relative du signal RPE est de 84, 78 et 74 %, respectivement pour les batch JF, EB et KS. La conclusion est identique au paragraphe précédent.



**Figure 33** : courbe cinétique de décroissance de 5kGy

#### VI.4 Cinétique de décroissance à 20kGy

La figure ci-dessus montre que pour une dose de 20 kGy l'intensité du signal RPE des trois batch décroît graduellement en suivant une loi exponentielle ayant un coefficient de corrélation  $\geq 0.98$  pour les trois batch analysés.



**Figure 34:** courbe cinétique de décroissance de 20kGy

# Conclusion

Ce travail a été effectué en collaboration entre le Centre National des Sciences et Technologies Nucléaires, l'académie militaire de Fondouk Jdid et l'Institut Supérieur du Transport de la Logistique de SOUSSE. Il avait pour objectif principal d'élargir la gamme d'utilisation de dosimètre PMMA qui est de 5 à 50 kGy. Ce dosimètre joue un rôle important dans le contrôle de la qualité des traitements par radiation des produits agro-alimentaires, la stérilisation des produits médicaux et pharmaceutiques.

Pour les traitements de routine, le PMMA est largement utilisé au CNSTN pour le contrôle dosimétrique. Ces utilisations nous ont obligés à bien caractériser ce dosimètre. En effet, des travaux ont été effectués pour étudier les paramètres d'influence comme la température, l'humidité, le débit de dose, et finalement l'effet de fractionnement. Ces travaux ont permis de montrer que ce type de dosimètre est aussi sensible aux faibles doses d'irradiation, contrairement aux spécifications du fabricant (Harwell Red-Pespex). En effet par l'utilisation du moyen de lecture comme la raisonneuse paramagnétique électronique nous avons réussi à détecter une faible dose de 100 Gy alors que le fabricant renseigne sur une limite de détection de 5 kGy par lecture optique (spectrophotométrie). En ce qui concerne les doses fortes, nous avons réussi à mesurer une dose de 80 kGy qui a dépassé le maximum concerté par le fabricant qui est de 50 kGy. Ces résultats sont une première à notre connaissance et qui nécessitent d'être validées métrologiquement (calcul d'incertitude, répétabilité...).

L'étude de la variation d'intensité du signal à des doses inférieures ou égales à 1 kGy a montré qu'elle augmente linéairement. Le coefficient de corrélation de cette relation est forte  $R^2 = 0.99$ . En ce qui concerne la réponse à des doses élevées ( $\geq 1\text{kGy}$ ) nous avons trouvé que l'intensité des pic suit une loi exponentielle sans saturation avec un coefficient de corrélation  $R^2 = 0.99$ . Ces résultats ont été validés pour les trois batch analysés.

L'étude de la cinétique de décroissance des signaux RPE en fonction du temps (Fading) montre que les réponses relatives se stabilisent après 20 min de l'irradiation. Cette stabilité est limitée temporellement jusqu'à 100 min. Nous avons montré que les réponses relatives suivent une loi de décroissance exponentielle jusqu'à la perte totale pour les doses

$\leq 1\text{kGy}$  alors pour les doses élevées cette perte est partielle. Pour améliorer la stabilité du signal il est envisageable d'étudier l'effet de dopage par des éléments métallique (éléments de transitions Cr, Mn, Fe, Ag) qui peuvent jouer un rôle de piège des radicaux afin de ne les pas perdre au cours de temps. Nous avons aussi proposé un protocole d'utilisation de PMMA par lecture RPE et ceux-ci juste proposé 20 min d'irradiation à condition de déterminer la courbe de réponse dans les mêmes conditions.

# Références

[1] [www.cnstn.rnrt.tn](http://www.cnstn.rnrt.tn)

[2]: Mémoire de master Khaled Farah 2004 Institut National des Sciences appliquées et de Technologie de Tunis (INSAT) « Caractérisation de plusieurs types de détecteurs solides pour la dosimétrie du traitement par rayonnements ionisants »

[3]: Plexi, lumière et profondeur [archive], sur <http://www.paragon-square.com> [archive], Paragon Square

[4]: P.Pissus, G.Gergoussis, V.A.Bershtein, E. Neagu, A.M. Fainleib, Dielectric studies in homogenous and heterogeneous polyurethane/polycyanurate interpenetrating polymer networks, *J. Non-Cryst.Solids* 305 (2002) 150-158.

[5]: E.J. HENLEY, E.R. JHONSON «The chemistry and physics of high energy reaction» University Press, Washington D.C., p 10, 1969.

[6]:F.A. MAKHLIS, “Radiation physics and chemistry of polymers”, John Wiley and Sons, New York, chapitre 3, 1975.

[7]: D.W. CLEGG, A.A. COLLYER, « Irradiation effects on polymers », page 110, Elsevier Applied Science, New York, 1991.

[8]:F.A. BOVEY “Effect of ionizing radiation on synthetic and natural polymers”, Interscience Publisher, New York, p 52, 1958.

[9]: E.J. HENLEY, E.R. JHONSON “The chemistry and physics of high energy reactions”, University Press, Washington D.C. p 159-160, 1969.

[10]: EL SAYED A. HEGAZY, T. SASUGA, T. SEGUCHI, *Polymer*, vol 33, n°14, 2897-2903, 1992.

[11]: R.P KUSKY, *Journal of polymer science*, vol A1, n° 10, p 1745, 1972.

[12]: Jean Pierre Mercier Ernest Maréchal, *Chimie des polymères*, Presse Polytechniques et universitaires Romandes, Suisse (1993).

[13]: Jan. F. Rabek, *Polymer Photodegradation*, Chapman and Hall, London (1995).



- [14] N.S.Allen, M.J.Parker, C.J.Regan, R.B.McIntyre & W.A.E.Dunk, *Polymer Degradation and Stability*, 47, p.117-127 (1995).
- [15] N.S.Allen, M.J.Parker, C.J.Regan, R.B.McIntyre & W.A.E.Dunk, *Polymer Degradation and Stability*, 52, pp 67-72 (1996).
- [16] :B.McGrath et al.,Effects of neutron radiation on the electrical resistivity of copper at room temperature, *Nucl. Instrum. Methods* 136,575 (1976).
- [17]: F.Coninckx et al.;High level dosimetry results for the CERN high energy accelerators, CERN-HS rapport de division, HS-RP/060 (1981).
- [18]: Mémoire de master Belkilani rouaa 2012 Faculté des sciences de Bizerte « etude de l'effet des photons gamma sur la coquille de moule : Développements d'applications dosimétriques »
- [19] Balestic F., *Rayonnements et traitements ionisants*, MASSON, Paris, 1995
- [20] Bonnet G., *Mémoire de DEA, L'IONISATION ALIMENTAIRE : Réalités et Perspectives*, Centre Science, technologie et société. 1994
- [21] Blanc D., *Precis de physique nucleaire*, DUNOD, 1999.
- [22] Norme EN 552 et ISO 11137
- [23] Decret n°2002-820 du 17avril 2002, relatif au denrees alimentaires traites par rayonnements ionisant destines a l'alimentation humaine ou animale et a leur commerce et les textes d'application.
- [24] Decret n°2003-2416 du 17 Novembre 2003, relatif a la radiosterilisation de dispositifs medicaux a usage nique.JORT 033, 1004-1005.
- [25] J.S. Peng et al, EPR study of radical annihilation kinetics of g-ray-irradiated acrylic (PMMA) at elevated temperatures, *Polymer* 52 (2011)6090-6096.
- [26] Abraham et al; Electron spin resonance spectra of free radicals in irradiated polymethyl methacrylate and related compounds. *Trans Faraday Soc* 1958;54:1133-9.
- [27] Ingram DJE, Symons MCR, Townsend MG. Electron resonance studies of occluded polymer radicals. *Trans Faraday Soc* 1958; 54:409-15.

[28] F. Hosni , K. Farah, A study of the fractionation dose on the radiation response of Harwell Red-Perspex PMMA dosimeter, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B 290 (2012) 69–71

## **Abstract**

Ionizing radiation is radiation able to deposit enough energy in the material through which they pass to create ionization. These ionizing radiations, when mastered, have many practical uses beneficial (areas of health, industry ...). Gamma rays are emitted by radioactive nuclei. The objective of our work is the study of polymethyl methacrylate (PMMA) irradiated by gamma photons from cobalt-60. To study the technique of radio spectroscopy (9 to 10Hz) electron paramagnetic resonance EPR is used. This technique is specific to characterize transient free radicals involved in chemical reactions such as oxidation, combustion, polymerization reactions ... We analyzed the EPR spectra three batch KS, EB, and JF our dosimeter according to the dose (high and low) and showed that the dosimetric response can be represented in exponential form (high dose) and linear form (low dose). We also studied the kinetics of decay of the EPR signal as a function of time (fading) and showed that the responses relating to stabilize after 20 min of irradiation.

---

## **Résumé**

Les rayonnements ionisants sont des rayonnements capables de déposer assez d'énergie dans la matière qu'ils traversent pour créer une ionisation. Ces rayonnements ionisants, lorsqu'ils sont maîtrisés, ont beaucoup d'usages pratiques bénéfiques (domaines de la santé, industrie...). Les rayonnements gamma sont émis par des noyaux radioactifs. L'objectif de notre travail est l'étude de polyméthacrylate de méthyle (PMMA) irradié par des photons gamma issus de cobalt 60. Pour faire cette étude on utilise la technique de spectroscopie hertzienne (9 à 10Hz) la résonance paramagnétique électronique RPE. Cette technique est spécifique de caractérisation des radicaux libres transitoires intervenant dans les réactions chimiques telles que : l'oxydation, la combustion, les réactions de polymérisation... Nous avons analysé les spectres R.P.E. des trois batch KS, EB, et JF de notre dosimètre en fonction de la dose (haute et faible) et montré que la réponse dosimétrique peut être représentée sous forme exponentielle (haute dose) et sous forme linéaire (faible dose). Nous avons aussi étudié la cinétique de décroissance des signaux RPE en fonction du temps (Fading) et montré que les réponses relatives se stabilisent après 20 min de l'irradiation.

---