

**UNIVERSITE DE LIMOGES**

---

**FACULTE DE PHARMACIE**

---

Année 1990

Thèse n° 40

**DOSIMETRIE A HAUT DEBIT DE DOSE EN VUE DE LA  
RADIOSTERILISATION ET DE LA RADIOCONSERVATION  
A L'AIDE DE MATERIAUX PLASTIQUES  
Etude particulière d'une résine acrylique  
le polyméthacrylate de méthyle**

**THESE  
POUR LE DIPLOME D'ETAT  
DE DOCTEUR EN PHARMACIE**

---

présentée et soutenue publiquement  
le 19 décembre 1990

par

**Philippe GOUDAL**  
né le 21 Février 1958 à Figeac (Lot)

**EXAMINATEURS DE LA THESE**

Monsieur le Professeur BERNARD,..... Président  
Mademoiselle le Professeur DELAGE,..... Juge  
Monsieur le Professeur MOLITON,..... Juge  
Monsieur DUROUX, Maître de conférences, ..... Juge

UNIVERSITE DE LIMOGES

---

FACULTE DE PHARMACIE

- DOYEN DE LA FACULTE : Monsieur le Professeur **RABY**
- ASSESSEURS : Monsieur le Professeur **GHESTEM** (1er Assesseur)  
Monsieur **DREYFUSS**, Maître de Conférences (2e Assesseur)

PERSONNEL ENSEIGNANT

. PROFESSEURS DES UNIVERSITES

<b>BENEYTOUT</b> Jean-Louis	Biochimie
<b>BERNARD</b> Michel	Physique-Biophysique
<b>BROSSARD</b> Claude	Pharmacotechnie
<b>BUXERAUD</b> Jacques	Chimie Organique, Chimie Thérapeutique
<b>CHULIA</b> Albert	Pharmacognosie
<b>CHULIA</b> Dominique	Pharmacotechnie
<b>DELAGE</b> Christiane	Chimie Générale et Minérale
<b>GALEN</b> François Xavier	Physiologie
<b>GHESTEM</b> Axel	Botanique et Cryptogamie
<b>GUICHARD</b> Claude	Toxicologie
<b>HABRIOUX</b> Gérard	Biochimie Fondamentale
<b>LEFORT des YLOUSES</b> Daniel	Pharmacie Galénique
<b>NICOLAS</b> Jean Albert	Bactériologie et Virologie, Parasitologie
<b>LOUDART</b> Nicole	Pharmacodynamie
<b>PENICAUT</b> Bernard	Chimie Analytique et Bromatologie
<b>RABY</b> Claude	Pharmacie Chimique et Chimie Organique
<b>TIXIER</b> Marie	Biochimie

SECRETARE GENERAL DE LA FACULTE - CHEF DES SERVICES ADMINISTRATIFS  
**CELS** René

Je dédie ce travail

à mes parents, en témoignage de ma  
profonde reconnaissance,

à Ghislaine pour son soutien et son aide,

à ma soeur,

à toute ma famille,

à tous mes amis.

A la mémoire d'Etienne,

A la mémoire de Jean-Jacques.

A notre Président de thèse

Monsieur le Professeur BERNARD  
Professeur de Physique et de Biophysique

Nous avons été très sensible à l'honneur  
que vous nous faites en acceptant de  
présider cette thèse.

Nous vous prions de trouver ici  
le témoignage de notre profonde et  
respectueuse reconnaissance.

A nos Juges

Mademoiselle le Professeur DELAGE  
Professeur de Chimie Générale et Minérale

Monsieur le Professeur MOLITON  
Professeur de Physique

Monsieur DUROUX  
Maître de Conférences

Nous sommes très sensibles à l'honneur  
que vous nous faites en acceptant de  
juger ce travail.

Veillez trouver ici l'expression de notre  
vive gratitude.

# P L A N

## **Première partie : LE RAYONNEMENT GAMMA**

### **I - RAPPEL RADIOACTIVITE**

#### **I.1 - Historique**

#### **I.2 - Les caractéristiques de l'élément**

#### **I.3 - Le processus nucléaire**

#### **I.4 - Les rayonnements radioactifs**

##### **I.4.1 - Travaux de Rutherford**

##### **I.4.2 - Le rayonnement alpha ( $\alpha$ )**

##### **I.4.3 - Le rayonnement bêta ( $\beta$ )**

###### **I.4.3.1 - Emission bêta négative ( $\beta^-$ )**

###### **I.4.3.2 - Emission bêta positive ( $\beta^+$ )**

###### **I.4.3.3 - Capture d'un électron orbital**

##### **I.4.4 - Le rayonnement gamma ( $\gamma$ )**

###### **I.4.4.1 - Emission de photons d'origine nucléaire**

###### **I.4.4.2 - Conversion interne**

##### **I.4.5 - Tableau récapitulatif**

### **II - PROPRIETES DU RAYONNEMENT PHOTONIQUE GAMMA**

#### **II.1 - Interaction photon gamma-matière**

##### **II.1.1 - Phénomène d'atténuation**

##### **II.1.2 - Les interactions élémentaires**

###### **II.1.2.1 - Effet photoélectrique**

###### **II.1.2.2 - Effet Compton**

###### **II.1.2.3 - Production de paire**

###### **II.1.2.4 - Le bilan des interactions élémentaires**

#### **II.2 - Effet biologique des radiations ionisantes gamma**

##### **II.2.1 - Introduction**

##### **II.2.2 - Réactions radiochimiques "in vitro"**

###### **II.2.2.1 - Radiochimie de l'eau**

###### **II.2.2.2 - Radiochimie des composés organiques**

###### **a - Formation des peroxydes**

###### **b - Action sur les groupements sulfurés**

###### **c - Action sur les acides nucléiques**

##### **II.2.3 - Effet des radiations in vivo**

- II.2.3.1 - Effet sur les fonctions cellulaires intégrées
- II.2.3.2 - Effet des radiations sur la synthèse de l'ADN de l'ARN et des protéines
- II.2.3.3 - Radiosensibilité
- II.2.3.4 - Effet au niveau génétique des radiations ionisantes

## II.2.4 - Conclusion

## II.3 - Radioconservation et radiostérilisation

### II.3.1 - Radiostérilisation

#### II.3.1.1 - Stérilisation

##### a - Définition

##### b - Rappel des différents modes de stérilisation

- $\alpha$  - Les procédés chimiques
- $\beta$  - Les procédés physiques

#### II.3.1.2 - Radiostérilisation gamma

##### a - Avant propos

##### b - Procédé de stérilisation par les rayons gamma

- $\alpha$  - Inscription à la PHARMACOPEE FRANCAISE
- $\beta$  - Sources de rayons gamma
- $\delta$  - Choix de la dose stérilisante
- $\zeta$  - Irradiation continue et discontinue
- $\xi$  - Contrôles d'irradiation

##### c - Quelques applications

- $\alpha$  - Application pharmaceutiques et médicales
- $\beta$  - Traitement des eaux

### II.3.2 - Radioconservation

#### II.3.2.1 - Stabilisation

##### a - Définition

##### b - Causes d'altération des aliments

- $\alpha$  - Processus endogène
- $\beta$  - Processus exogène

##### c - Rappel des différents modes de stabilisation

- $\alpha$  - Procédé chimique
- $\beta$  - Procédé physique

#### II.3.2.2 - Radioconservation gamma

##### a - Niveau d'action des rayons gamma

##### b - Innocuité

##### c - Stabilisation des denrées végétales

##### d - Stabilisation des denrées d'origine animales

##### e - Sources des rayons gamma et installations

##### f - Contrôle



## Deuxième Partie - Les DOSIMETRES PLASTIQUES

### I - DOSIMETRIE - GENERALITES

#### I.1 - Introduction

#### I.2 - Méthodes de contrôle du processus d'irradiation

##### II.2.1 - Contrôle des paramètres de l'irradiation

##### II.2.2 - Mesure de la dose absorbée par le produit

###### I.2.2.1 - Définition dosimétrie

###### I.2.2.2 - Grandeurs physiques dosimétriques

###### a - Dose absorbée et dose transférée

$\alpha$  - Dose absorbée : le gray, le rad

$\beta$  - Dose transférée : le Kerma

###### b - Dose d'exposition

###### II.2.2.3 - Aire d'application de la dosimétrie

###### II.2.2.4 - Méthodes et systèmes dosimétriques

###### II.2.2.5 - Classification des dosimètres

#### I.3 - Conclusion

### II - DOSIMETRES PLASTIQUES

#### II.1 - Introduction

#### II.2 - Matières plastiques - Généralités

##### II.2.1 - Définition des matières plastiques

##### II.2.2 - Historique

##### II.2.3 - Processus de fabrication des macromolécules

###### II.2.3.1 - Définition des macromolécules

###### II.2.3.2 - Polymérisation et polycondensation

###### a - Polymérisation

$\alpha$  - Polymérisation thermique

$\beta$  - Polymérisation photochimique

$\gamma$  - Polymérisation radicalaire

$\delta$  - Polymérisation ionique

$\mu$  - Stéréospécificité polymérisation

###### b - Polycondensation

##### II.2.4 - Classification des matières plastiques

###### II.2.4.1 - Matières plastiques naturelles

###### II.2.4.2 - Matières plastiques synthétiques

###### a - Les matières thermoplastiques

###### b - Les matières plastiques thermodurcissables

## **II.3 - Matières plastiques utilisées en dosimétrie**

### **II.3.1 - Matières plastiques cellulosiques**

#### **II.3.1.1 - Acétate de cellulose**

- a - Structure chimique**
- b - Propriétés physicochimiques**
- c - Emploi en dosimétrie**

#### **II.3.1.2 - Nitrate de cellulose**

- a - Structure chimique**
- b - Propriétés physicochimiques**
- c - Emploi en dosimétrie**

### **II.3.2 - Polyéthylène et polyéthylène terephthalate**

#### **II.3.2.1 - Polyéthylène**

- a - Structure chimique**
- b - Propriétés physicochimiques**
- c - Emploi en dosimétrie**

#### **II.3.2.2 - Polyéthylène terephthalate**

### **II.3.3 - Résines acryliques : le polyméthacrylate de méthyle (PMMA)**

#### **II.3.3.1 - Structure chimique**

#### **II.3.3.2 - Propriétés**

- a - Propriétés physiques**
- b - Propriétés mécaniques**
- c - Propriétés thermiques**
- d - Propriétés électriques**
- e - Propriétés chimiques**

#### **II.3.3.3 - Emploi en dosimétrie**

### **II.3.4 - Les résines vinyliques**

#### **II.3.4.1 - Structure chimique**

#### **II.3.4.2 - Propriétés physicochimiques**

#### **II.3.4.3 - Emploi en dosimétrie**

### **II.3.5 - Résine de polystyrène**

#### **II.3.5.1 - Structure chimique**

#### **II.3.5.2 - Propriétés physicochimiques**

#### **II.3.5.3 - Emploi en dosimétrie**

### **II.3.6 - Tableau récapitulatif**

## **II.4 - Conclusion**

**Troisième partie**  
**LE POLYMETHACRYLATE DE METHYLE**  
**Son utilisation en dosimétrie gamma**

**I. INTRODUCTION**

**II. FABRICATION DU POLYMETHACRYLATE DE METHYLE COLORE ET INCOLORE**

**II.1 - Obtention du méthacrylate de méthyle**

**II.2 - Polymérisation du méthacrylate de méthyle**

- II.2.1 - Initiation
- II.2.2 - Propagation
- II.2.3 - Interruption

- II.2.3.1 - Combinaison de chaînes de propagation
- II.2.3.2 - Dismutation

**II.2.4 - Les phénomènes de dégradation**

**II.3 - Le produit final**

**III - LES POLYMETRACRYLATES DE METHYLE DISPONIBLES SUR LE MARCHE**

**III.1 - Le polyméthacrylate de méthyle clair (incolore)**

- III.1.1 - Le perspex clair
- III.1.2 - Le metaplex et le plastiglass

- III.1.2.1 - Le plastiglass
- III.1.2.2 - Le metaplex

**III.2 - Le polyméthacrylate de méthyle coloré**

**IV - INTERACTION DES RAYONS GAMMA AVEC LE POLYMETHACRYLATE DE METHYLE**

**IV.1 - Rappel des interactions photon gamma-matière**

**IV.2 - Production de radicaux libres au sein du polyméthacrylate de méthyle au cours de son interaction avec une source de rayons gamma**

- IV.2.1 - Travaux de David et Fuld en 1970
- IV.2.2 - Travaux de David et Bie en 1975
- IV.2.3 - Cas de l'interaction des photons gamma avec le polyméthacrylate de méthyle coloré

## **V - UTILISATION DU POLYMETHACRYLATE DE METHYLE INCOLORE EN DOSIMETRIE GAMMA**

**V.1 - Spectre d'absorption du polyméthacrylate de méthyle incolore**

**V.2 - Choix de la meilleure longueur d'onde pour effectuer les mesures de densité optique**

**V.2.1 - Travaux de Berry et Marshall en 1969**

**V.2.2 - Travaux de Chadwick**

**V.3 - Courbe de calibration du polyméthacrylate de méthyle incolore**

**V.4 - Les paramètres influençant la réponse du dosimètre**

**V.4.1 - Temps de stockage**

**V.4.2 - Température de stockage**

## **VI- UTILISATION DU POLYMETHACRYLATE DE METHYLE COLORE EN DOSIMETRIE**

**VI.1 - Interaction des rayons gamma avec le polyméthacrylate de méthyle coloré**

**VI.2 - Spectre d'absorption du Rouge Perspex 400**

**VI.3 - Courbe de calibration du Rouge Perspex 400**

**VI.4 - Facteurs influençant la réponse et la stabilité du Rouge Perspex 400**

**VI.4.1 - Le numéro du lot de fabrication**

**VI.4.2 - Concentration en eau du dosimètre**

**VI.4.3 - Le débit de dose de l'irradiateur**

**VI.4.4 - La température**

**VI.4.5 - Temps qui s'écoule avant la lecture**

## **VII - CONCLUSION**

**PREMIERE PARTIE**

**LE RAYONNEMENT GAMMA**

# **I - RAPPEL RADIOACTIVITE**

## **I.1 - Historique**

La radioactivité de l'Uranium (1) fut découverte en 1896 par Henri BECQUEREL. Il réussit à cette date à impressionner une plaque photographique, entourée de papier noir, placée au contact de l'uranium. Ce corps émet spontanément dans toutes les directions un rayonnement capable de traverser la matière, d'entraîner la fluorescence de certains corps comme l'air qui devient lumineux, de produire des réactions chimiques, des actions biologiques, et d'ioniser des gaz.

On pouvait se demander si, seul parmi les éléments l'uranium était radioactif.

En 1934, Frédéric et Irène JOLIOT-CURIE montrèrent qu'il était possible de créer des éléments radioactifs inconnus dans la nature. Ces radio-éléments artificiels suivent les mêmes lois que les éléments naturels. Ce sont des isotopes des éléments naturels répartis dans la classification de Mendeleïev.

## **I.2 - Les Caractéristiques de l'élément**

En 1869, le chimiste Russe MENDELEIEV a établi une classification des éléments alors inconnus; les éléments ont été classés par ordre de masse atomique croissante, et répartis en série en tenant compte de leurs propriétés chimiques.

Donc à chacun des éléments définis par les chimistes, correspond une masse atomique, qui, d'après une convention internationale de 1961, est évaluée dans une échelle qui attribue la valeur 12 à l'isotope le plus important de l'atome de Carbone.

Le nombre de masse est symbolisé par la lettre A, qui est le nombre entier le plus voisin de la masse atomique.

Pour chaque élément, on définit aussi le nombre atomique ou numéro atomique qui est un nombre entier correspondant au numéro de sa case dans le tableau de Mendeleïev. Le nombre atomique est symbolisé par la lettre Z, on parle aussi de nombre de charge, car il correspond aux nombres d'électrons contenus dans l'élément.

En tenant compte de son nombre de masse et de son nombre atomique, chaque élément peut donc être représenté de la façon suivante :



A = nombre de masse

Z = nombre atomique

X = symbole chimique de l'élément

Maintenant que l'élément est défini, nous pouvons parler des isotopes et des isobares :

- Les isotopes d'un corps ont le même nombre atomique et des nombres de masse différents.

Exemple : l'hydrogène :

l'hydrogène a trois isotopes :

- hydrogène proprement dit	$\begin{matrix} 1 \\ H \\ 1 \end{matrix}$
- le Deuterium	$\begin{matrix} 2 \\ H \\ 1 \end{matrix}$
- Le Tritium	$\begin{matrix} 3 \\ H^* \\ 1 \end{matrix}$

Le Tritium est radioactif, nous l'indiquons en plaçant un astérisque en haut à droite du symbole chimique.

- Les isobares d'un corps ont le même nombre de masse et nombres de charge différents.

### **I.3 - Le processus nucléaire (2)**

Certains noyaux sont instables, ils ont tendance à subir une modification spontanée de leur structure. Au cours de cette modification, au moins l'un des trois paramètres suivants va varier :

- nombre de masse A
- nombre de charge Z
- niveau d'énergie

Le plus souvent, il va s'agir d'une scission du noyau en deux fragments très inégaux selon le schéma très général suivant :



Le noyau X est dit radioactif; la particule matérielle est plus petite que le noyau résiduel X' et peut être un noyau d'Hélium, un électron négatif, un électron positif et plus rarement un neutron; l'émission d'un photon n'est pas constante et correspond en fait à un second processus, distinct du premier cité, et qui le suit immédiatement.

La particule matérielle et le photon constituent le rayonnement radioactif.

## 1.4 - Les rayonnements radioactifs

### 1.4.1 - TRAVAUX de RUTHERFORD

Rutherford a étudié le rayonnement des corps radioactifs naturels (Figure I-1). Si un fragment de mélange radioactif est placé dans un cylindre de plomb, dont le rôle est de canaliser le rayonnement afin de ne conserver qu'un fin pinceau parallèle dont on peut objectiver la direction, et, si à la sortie, le pinceau est soumis à un champ électrique  $\vec{E}$ , on constate qu'il se partage en trois.

Trois rayonnements sont émis :

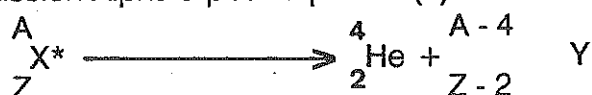
- le rayonnement  $\alpha$
- le rayonnement  $\beta$
- le rayonnement  $\gamma$

### 1.4.2 - LE RAYONNEMENT ALPHA ( $\alpha$ )

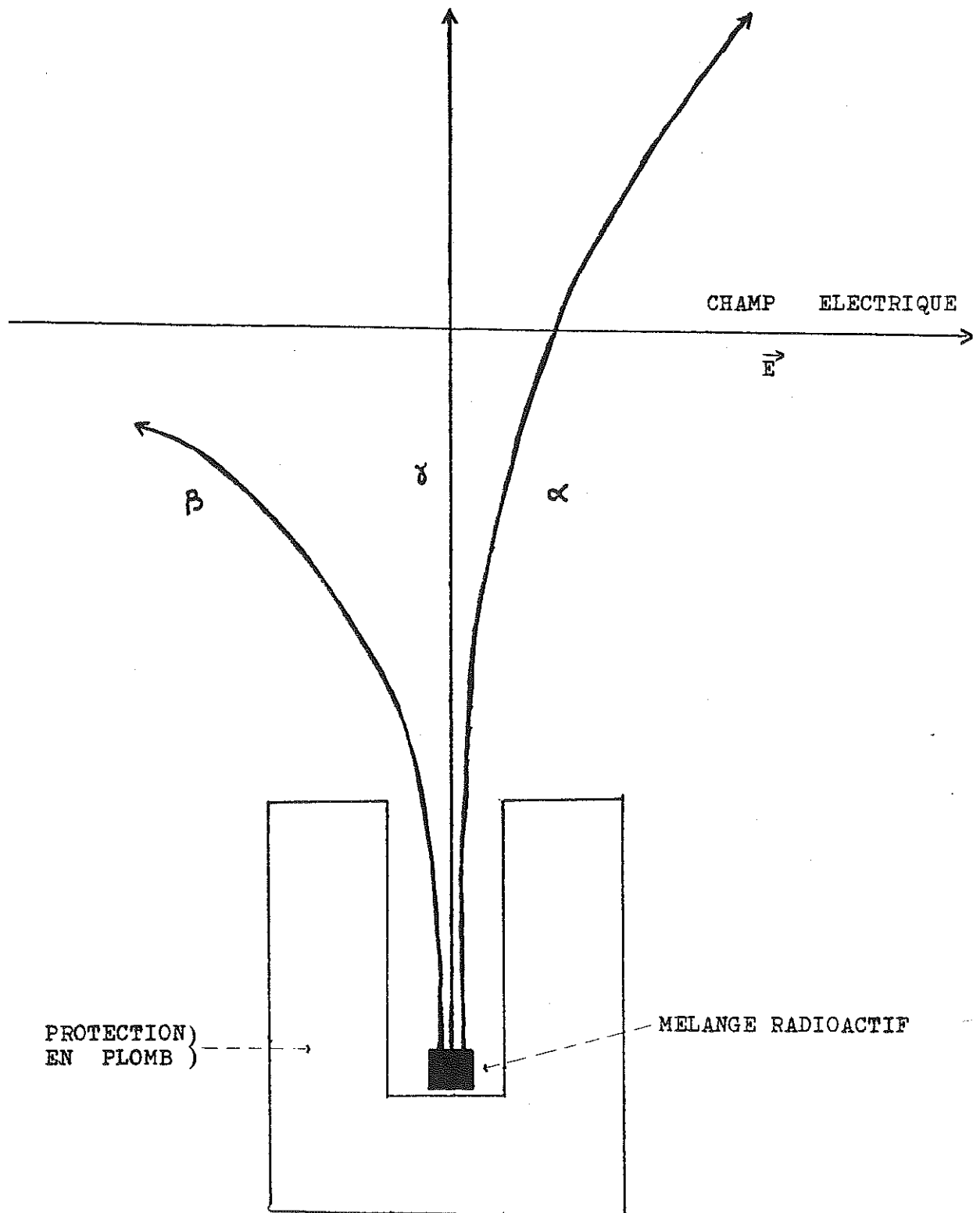
Les travaux de Rutherford montrent que le faisceau de rayons alpha est peu courbé dans le sens du champ, il est constitué de charges positives.

En 1906, Rutherford a montré que ces particules sont des noyaux d'Hélium ( ${}^4_2\text{He}$ ) possédant deux protons et deux neutrons.

L'émission Alpha a pour équation (3) :



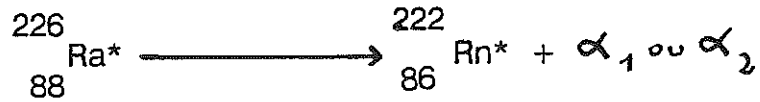




**Figure I.1 - Expérience de RUTHERFORD**

Le nouveau nuclide Y peut être radioactif ou stable.

Le processus alpha se rencontre pour les atomes radioactifs lourds ayant un nombre atomique supérieur à 82 (radioéléments naturels et transuraniens). Exemple :



radium

$$\alpha_1 : E_c = 4,8 \text{ MeV}$$

$$\alpha_2 : E_c = 4,6 \text{ MeV}$$

Le spectre caractéristique de l'énergie des particules est un spectre de raie variable selon la nature du nuclide X\*.

Malgré leur grande énergie cinétique, les particules alpha ont un très faible pouvoir pénétrant, une simple feuille de papier suffit à les stopper.

La vitesse des particules alpha est de 1 400 à 25 000 kilomètres par seconde.

### I.4.3 LE RAYONNEMENT BETA ( $\beta$ )

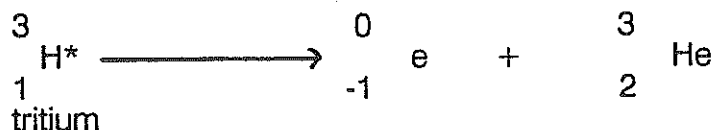
#### I.4.3.1 - Emission Bêta négative ( $\beta^-$ )

Les travaux de Rutherford montrent que le faisceau est très fortement courbé en sens inverse du champ électrique, il est donc composé de particules chargées négativement.

L'émission Bêta a pour équation :



Exemple :

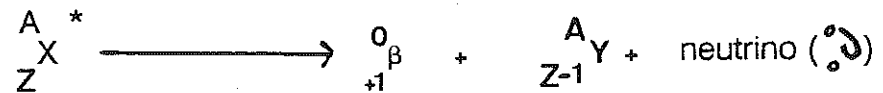


L'émission bêta négative est peu pénétrante, parcourt quelques mètres dans l'air, elle est stoppée par une centaine de feuilles de papier. Ce rayonnement n'interagit pratiquement pas avec la matière.

### 1.4.3.2 - Emission Bêta positive ( $\beta^+$ )

Cette émission n'a pas été mise en évidence dans les travaux de Rutherford, car elle n'est produite que par les radioéléments artificiels.

L'émission Bêta positive a pour équation :



La particule bêta positive est aussi appelée positon.

Le spectre d'absorption de l'émission bêta est un spectre continu.

La transmutation bêta positive est isobarique. Le positon émis va épuiser son énergie cinétique par des collisions successives (ceci se produit en  $10^{-9}$  seconde); le positon va alors se combiner avec un électron ordinaire dans une réaction d'annihilation. Dans cette réaction électron et positon disparaissent et nous avons la naissance de deux photons de même énergie dans deux directions opposées à  $180^\circ$  (Figure 1 - 2). C'est le phénomène de matérialisation.

### 1.4.3.3. Capture d'un électron orbital

L'électron orbital mis en jeu est un électron de la couche K ou de la couche L (le plus souvent couche K). L'électron est "happé" par le noyau, se combine avec un proton et donne un neutron.

Equation :



Exemple.:



Berilium

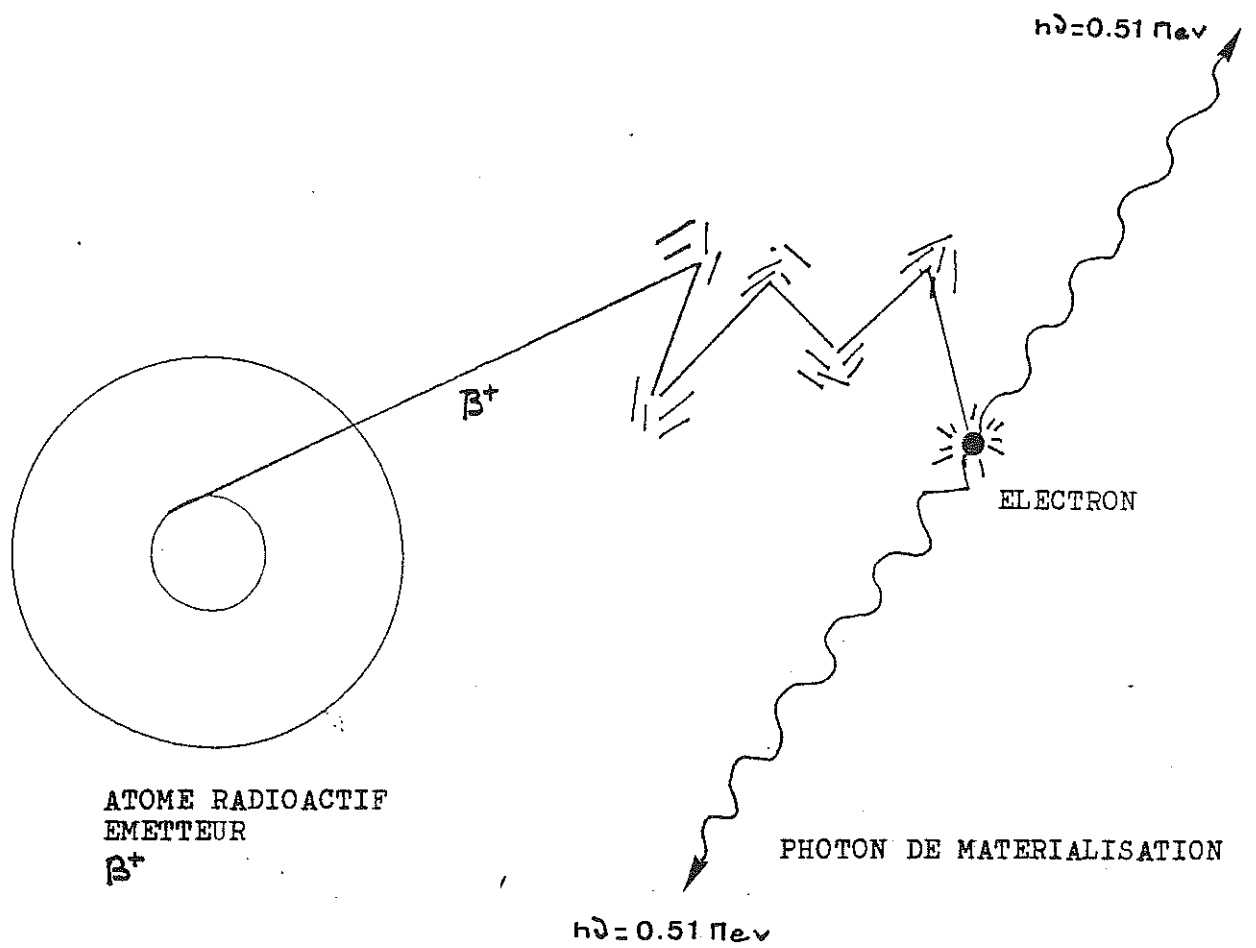


Figure I.2 - Phénomène de Matérialisation

### I.4.4. - LE RAYONNEMENT GAMMA ( $\gamma$ )

Les processus, ou transitions gamma sont aux nombres de deux. Il y a transformation isomérique du noyau, c'est-à-dire un changement de niveau d'énergie de celui-ci. Les deux processus sont :

- L'émission de photon d'origine nucléaire
- La conversion interne

#### I.4.4.1 - Emission de photons d'origine nucléaire

Comme le montre l'expérience de Rutherford, ce rayonnement n'est pas dévié par le champ électrique auquel il est soumis, il n'est pas chargé électriquement.

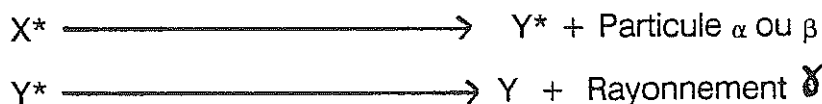
En 1914, Rutherford a établi qu'il était de nature électromagnétique comme la lumière et les rayons X; le rayonnement est composé de photons très énergétiques qui se propagent en ligne droite à la vitesse de la lumière. Parmi les photons d'énergie supérieure à l'ultra-violet, on appelle gamma ceux qui sont d'origine extra-nucléaire.

Les photons sont des particules n'ayant pas de charge ni de masse. L'énergie des photons s'exprime en électron-volt.

$$1 \text{ eV} = 1,6 \times 10^{-19} \text{ Joule}$$

L'électron-volt est l'énergie acquise par un électron accéléré par une différence de potentiel de 1 volt.

Equation :



Le plus souvent, les photons gamma ( $\gamma$ ) sont émis après le processus alpha ( $\alpha$ ) ou Bêta ( $\beta$ ) par le nuclide dérivé qui n'est pas dans son état fondamental.

Le spectre des rayons gamma est un spectre de raie. Les raies du spectre sont caractéristiques des transitions entre les niveaux d'énergie quantifiés du noyau. L'énergie du photon est égale à la diminution d'énergie entre les deux niveaux.

La radiation gamma est une radiation très pénétrante qui présente de nombreuses applications, comme nous le verrons plus loin. Nous allons étudier la façon dont elle interagit avec la matière, ses propriétés biologiques ainsi que ses utilisations en radiostérilisation et pour la radioconservation.

#### 1.4.4.2 - Conversion interne

L'énergie nucléaire  $\Delta E$  rendue disponible par la transaction est transférée à un électron de l'atome. Si  $\Delta E$  est l'énergie transmise, et  $E_L$  l'énergie de liaison de l'électron, ce dernier va être émis avec une énergie cinétique  $E_e$ .

$$E_e = \Delta E - E_L$$

On obtient un spectre de raie.

#### 1.4.5 - TABLEAU RECAPITULATIF

Processus Radioactif		Radiation émise	Type de Spectre
ALPHA		Rayonnement ALPHA ${}^4_2\text{He}$	Spectre de Raie
	BETA Négatif	Electron négatif ${}^0_{-1}\text{e}$ $\beta^-$	Spectre continu
BETA	BETA Positif	Electron positif ${}^0_{+1}\text{e}$ $\beta^+$	Spectre continu
	Capture Electronique	Photon de matérialisation	Spectre de raie
GAMMA	Photon GAMMA	Photon d'origine nucléaire	Spectre de raie
	Conversion Interne	Emission d'électron	Spectre de raie

## II - PROPRIETES du RAYONNEMENT PHOTONIQUE GAMMA

### II .1 - Interaction photon gamma - matière

Pour la suite de notre étude, il est important de connaître la façon dont les photons gamma (4) interagissent avec la matière. De ces phénomènes découlent les applications.

Avant d'aller plus loin, il nous faut définir les photons : ils sont tous semblables entre eux et n'ont pas de masse au repos, ils n'existent sous leur forme particulière qu'au moment où une onde électromagnétique interagit avec la matière. N'ayant pas de masse au repos, le photon peut être considéré comme de l'énergie cinétique pure.

$$E_c = h \nu$$

$$h = \text{Constante de Planck} = 6,6 \times 10^{-34} \text{ J/s (SI)}$$

$$\nu = \text{Fréquence de l'onde électromagnétique}$$

#### II.1.1 - PHENOMENE D'ATTENUATION

D'une façon générale, quand un faisceau mince (pinceau) (5) unidirectionnel de photons mono-énergétique traverse un écran matériel (figure II-1) l'énergie  $W_T$  (énergie transmise) transportée par le faisceau après traversée de l'écran est inférieure à l'énergie  $W_I$  (énergie incidente) transportée par le faisceau incident, il y a atténuation du faisceau.

L'énergie perdue par le faisceau (5) se retrouve sous deux formes :

- Partie  $W_A$  : Energie absorbée par les atomes ou les molécules de l'écran.
- Partie  $W_D$  : Energie diffusée, qui traverse l'écran mais dont la direction de propagation a changé

$$W_I = W_T + W_A + W_D$$

Pour un écran constitué d'un corps simple de numéro atomique  $Z$  connu et de masse atomique  $A$  bien définie, on peut définir son coefficient d'atténuation de la façon suivante : (6)

Soit  $N_0$  le nombre de photons avant toute atténuation (Figure II-2), soit  $x$  l'épaisseur de l'écran; si on place une série d'écrans d'épaisseur  $x$ , on constate que le nombre de photons transmis diminue géométriquement. La va-

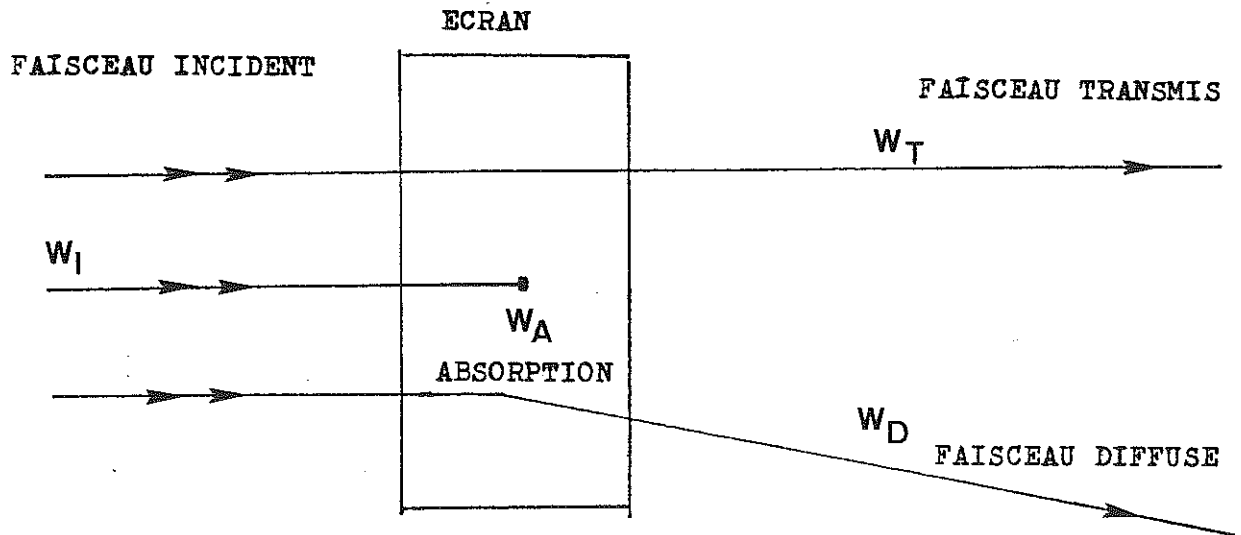


Figure II.1 - Interaction d'un faisceau de photons avec un écran matériel

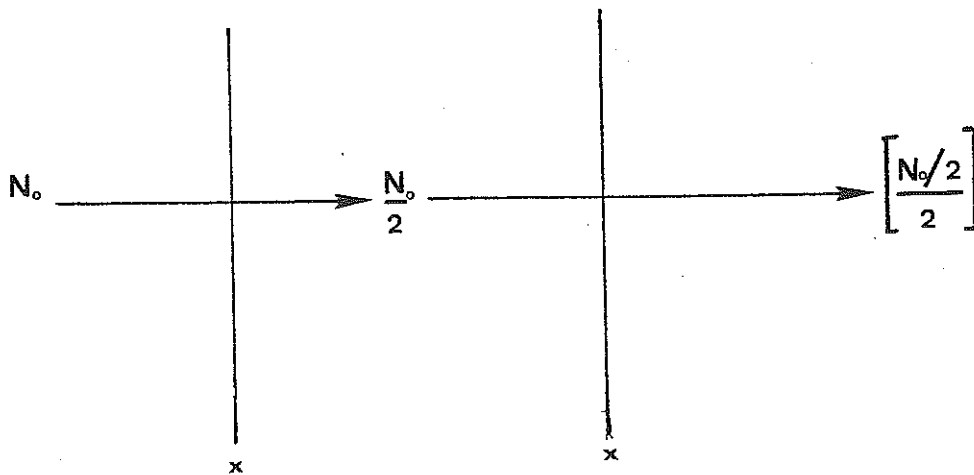


Figure II.2 - Atténuation du faisceau de photons par une série d'écran d'épaisseur  $x$



riation du nombre  $N$  de photons qui traversent un écran sans interaction est fonction de l'épaisseur  $x$  de l'écran (Figure II-3). Du point de vue mathématique, on peut écrire :

$$N(x) = N_0 e^{-\mu x}$$

$N_0$  = nombre de photons incidents

$e$  = logarithme de base népérien

$\mu$  = Constante caractéristique de l'énergie  $h\nu$  des photons et de la nature du matériau traversé, dont la dimension est l'inverse d'une longueur ( $L^{-1}$ ), on appelle  $\mu$  coefficient linéaire d'atténuation.

Le coefficient linéaire d'atténuation dépend de la nature du matériau, mais cette notion est insuffisante. En effet, si nous prenons deux écrans, l'un constitué d'eau et l'autre de vapeur d'eau, les résultats obtenus sont différents. Il faut définir un autre coefficient tenant compte de la masse volumique du matériau. Ce nouveau coefficient est le coefficient massique d'atténuation  $\mu/\rho$  ayant pour dimension  $L^2 M^{-1}$  ( $cm^2/g$ ).

## II.1.2. - LES INTERACTIONS ELEMENTAIRES (7)

### II.1.2.1 - Effet photoélectrique

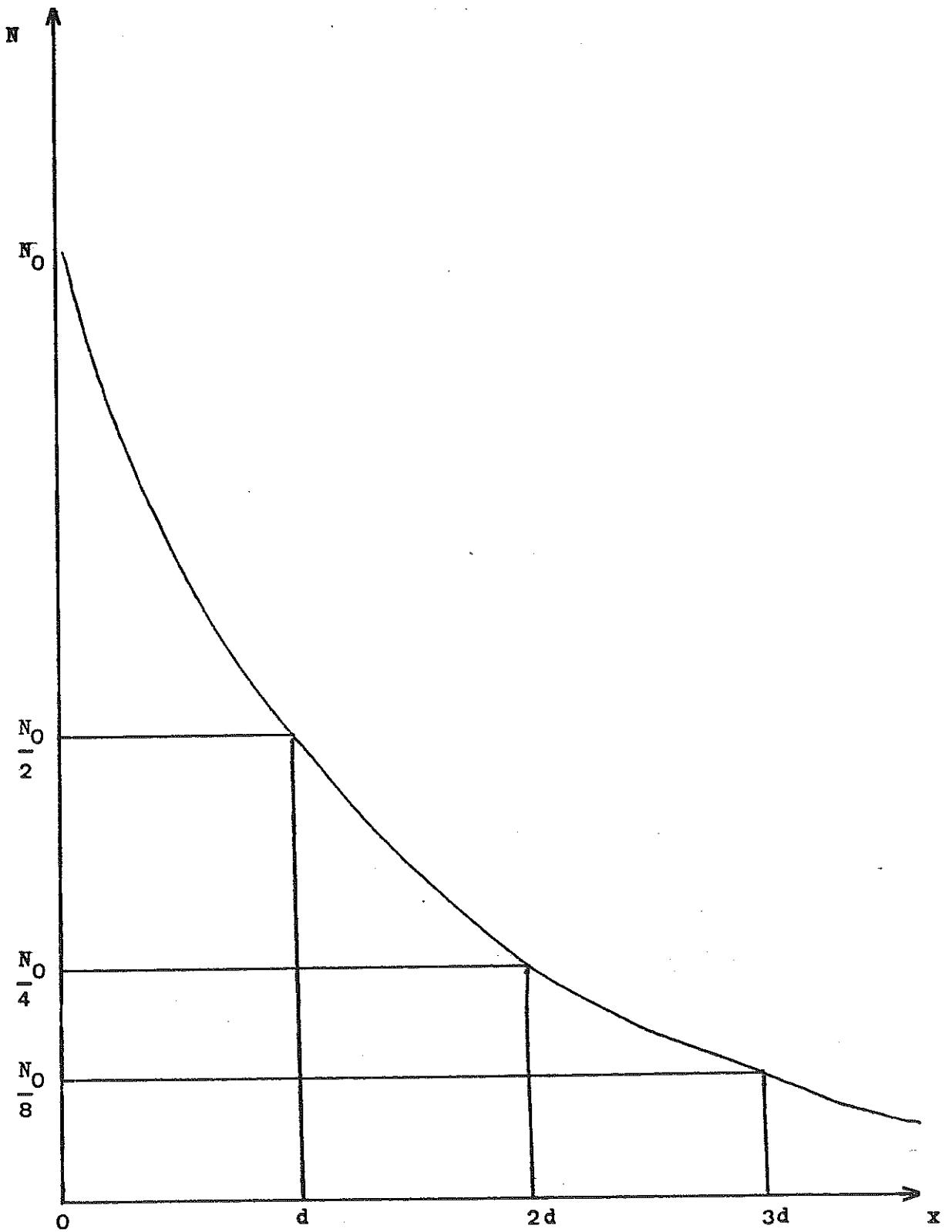
L'effet photoélectrique résulte d'un transfert total de l'énergie  $E_0$  du photon incident sur un électron des atomes de la cible. L'effet photoélectrique ne se produit que si l'énergie du photon incident ( $E_0$ ) est supérieure à l'énergie de liaison de l'électron ( $W_L$ ). L'excès d'énergie se transforme en énergie cinétique  $W$  pour l'électron. Cet électron émis s'appelle le photoélectron. (Figure II-4).

$$W_e = E_0 - W_L$$

$$E_0 > W_L$$

Mais le phénomène ne se produit que pour les électrons dont l'énergie est la plus voisine de  $E_0$ . L'électron émis désemploie un niveau d'énergie, il laisse une place vacante qui va être prise par un électron d'ordre supérieur (électron plus périphérique). Le retour à la structure fondamentale s'accompagne d'une émission d'énergie qui peut se faire soit par :

- Emission d'un photon de fluorescence
- Expulsion d'un électron AUGER



**Figure II.3 - Variations du Nombre ( $N$ ) de photons traversant un écran en fonction de son épaisseur ( $x$ )**

Dans le cas de l'émission d'un photon de fluorescence, plusieurs photons sont émis en cascade (Figure II-5). Au stade final, l'atome cible est donc ionisé.

Dans le cas de l'émission AUGER, si l'électron de remplacement appartient à la couche  $i$ , l'énergie de transition ( $W_{\lambda} - W_i$ ) peut être communiquée à un électron périphérique d'énergie de liaison  $W_j$  ( $W_j < W_{\lambda} - W_i$ ) qui est expulsé avec une énergie cinétique  $W_A$  ( $W_A = W_{\lambda} - W_i - W_j$ ). L'électron émis est l'électron AUGER (Figure II-6).

### **II.1.2.2. - Effet COMPTON**

L'effet Compton consiste en une diffusion du photon incident accompagnée d'une perte partielle de l'énergie de celui-ci. Le photon incident va entrer en collision avec un électron faiblement lié à la cible. Au cours de ce choc, l'électron dit électron Compton acquiert une énergie cinétique  $W_e$  et le photon diffusé repart dans une direction, faisant un angle  $\theta$  avec la direction d'incidence : c'est le photon de recul (Figure II-7). Le partage de l'énergie entre l'électron Compton et le photon de recul, peut théoriquement se faire selon toutes les modalités intermédiaires entre le choc tangentiel ( $\theta = 0^\circ$ ) et le choc frontal ( $\theta = 180^\circ$ ).

Le résultat final est une ionisation.

### **II.1.2.3 - Production de PAIRE**

Au niveau du noyau, le champ électrostatique est d'autant plus intense que le numéro atomique  $Z$  est plus grand. Quand un photon passe à proximité de ce noyau, il peut se matérialiser sous forme d'une paire d'électrons de signes opposés : un électron et un positon. Pour que ce processus se déroule, il faut que le photon incident ait une énergie  $E_\gamma$  supérieure à  $2 \times 0,5111$  MeV soit 1,022 MeV. Le positon produit, avec un électron d'un autre atome, une réaction d'annihilation donnant naissance à deux photons de 0,5111 MeV émis dans deux directions opposées (Figure II-8).

### **II.1.2.4 - Le bilan des interactions élémentaires**

En ce qui concerne les interactions élémentaires des photons gamma avec la matière, tous les processus aboutissent à un phénomène d'ionisation. Nous parlons donc de radiation ionisante. La conséquence de ce pouvoir ionisant est à l'origine des propriétés biologiques des radiations gamma.

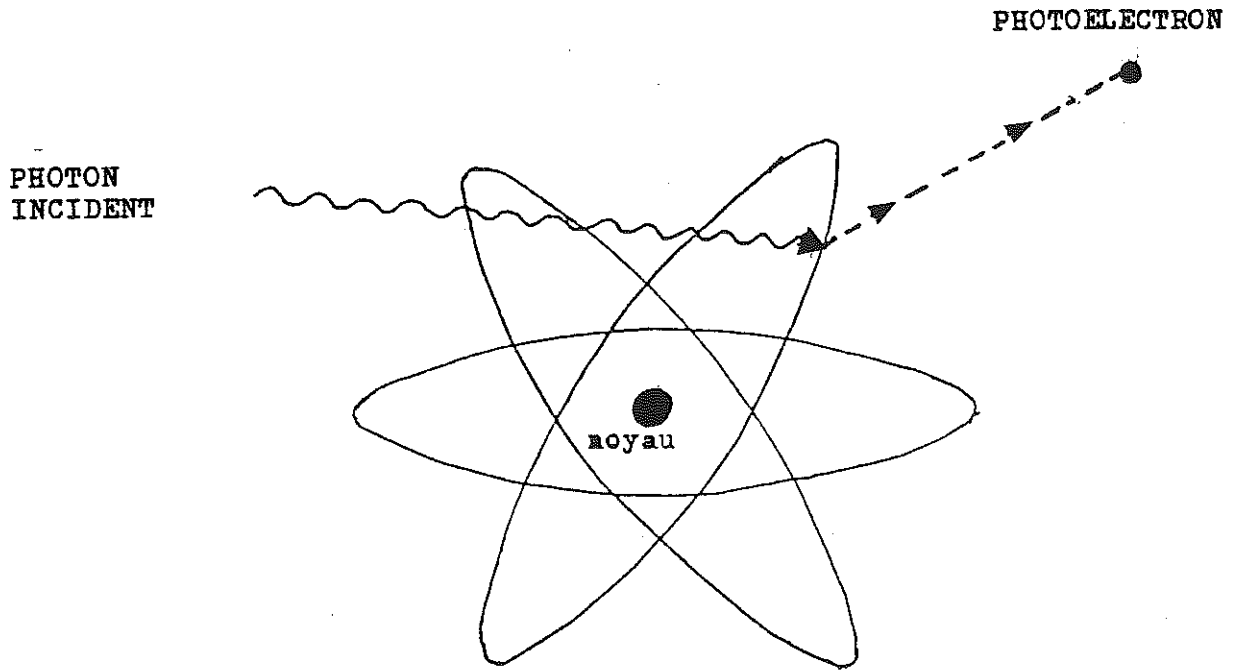


Figure II.4 - Effet Photoélectrique

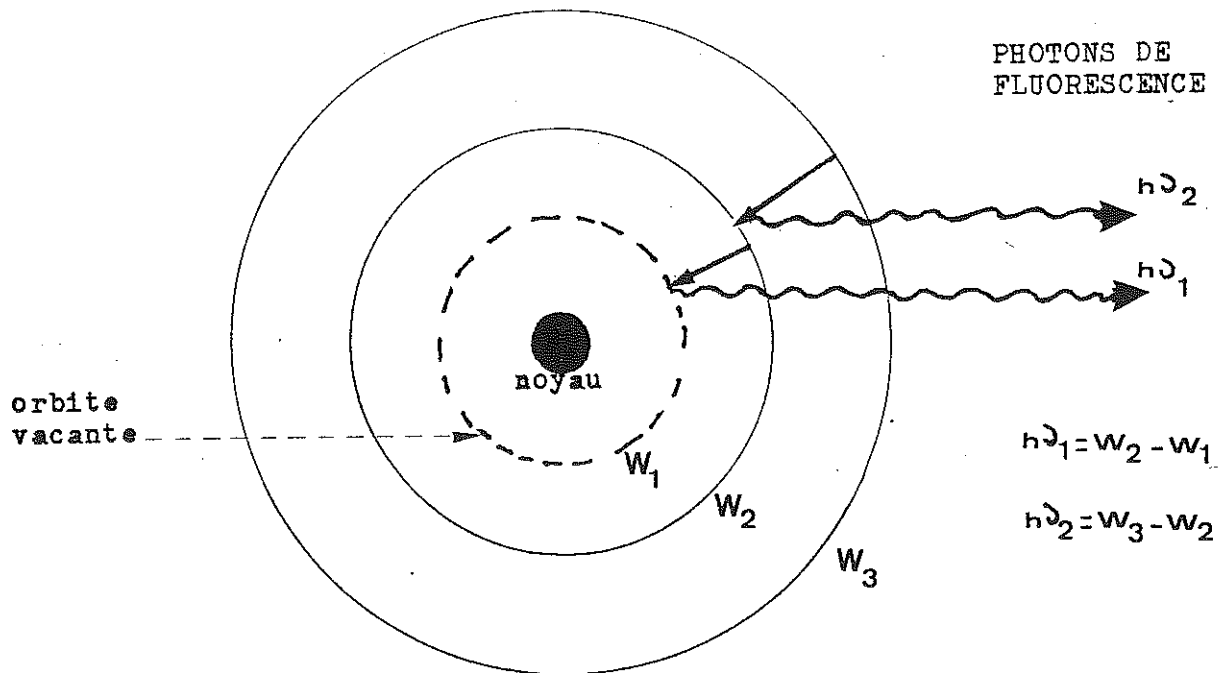


Figure II.5 - La fluorescence

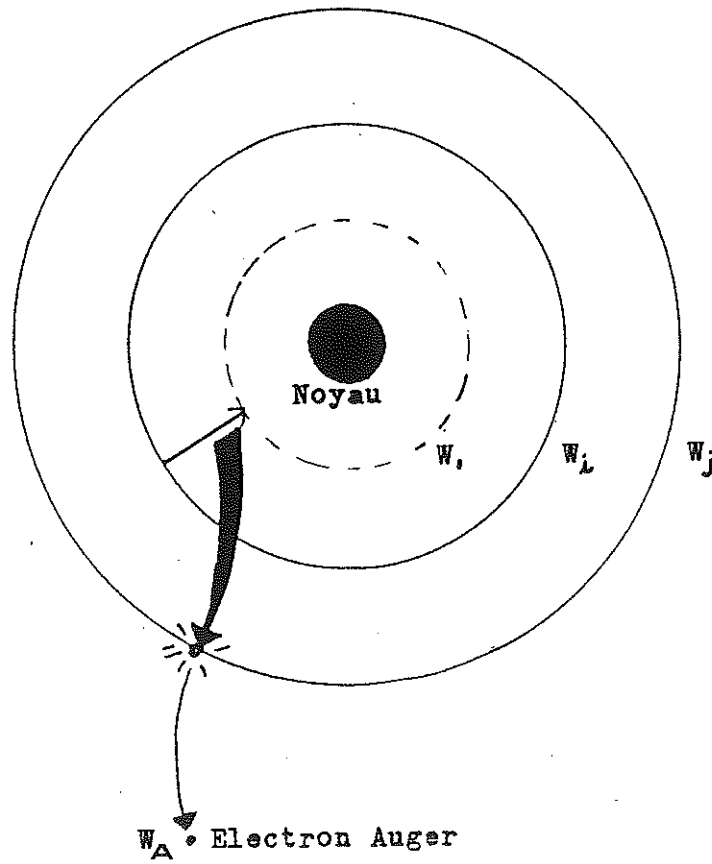


Figure II.6 - Emission electron Auger

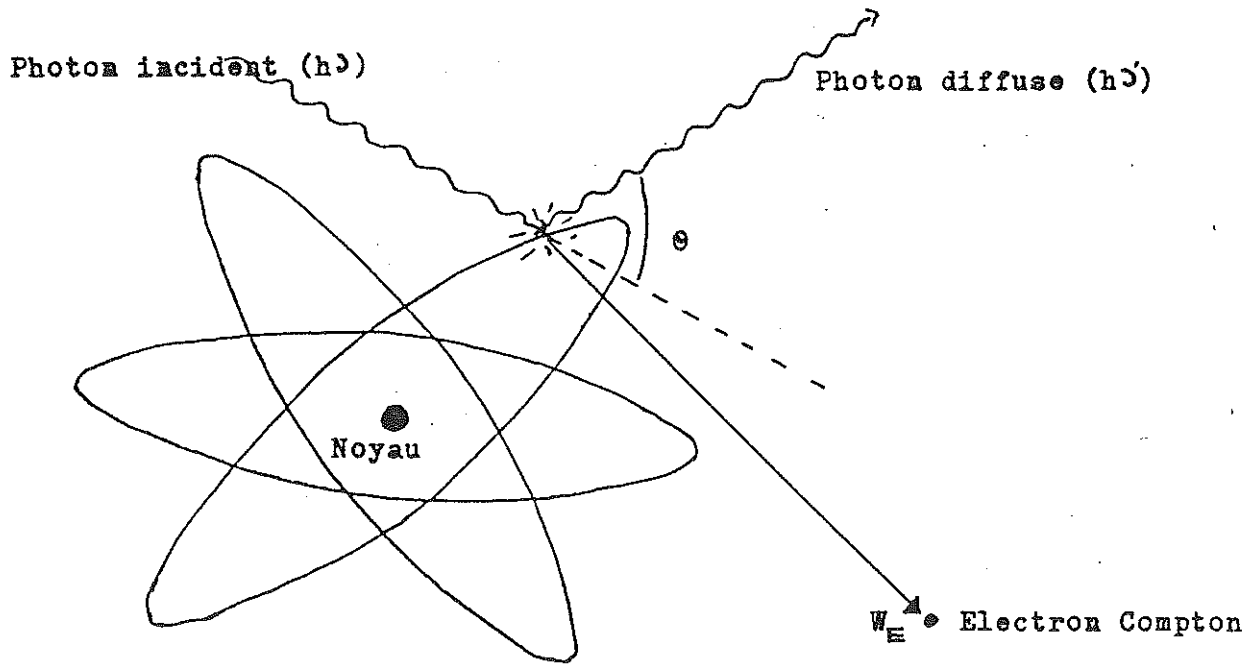


Figure II.7 - Effet Compton

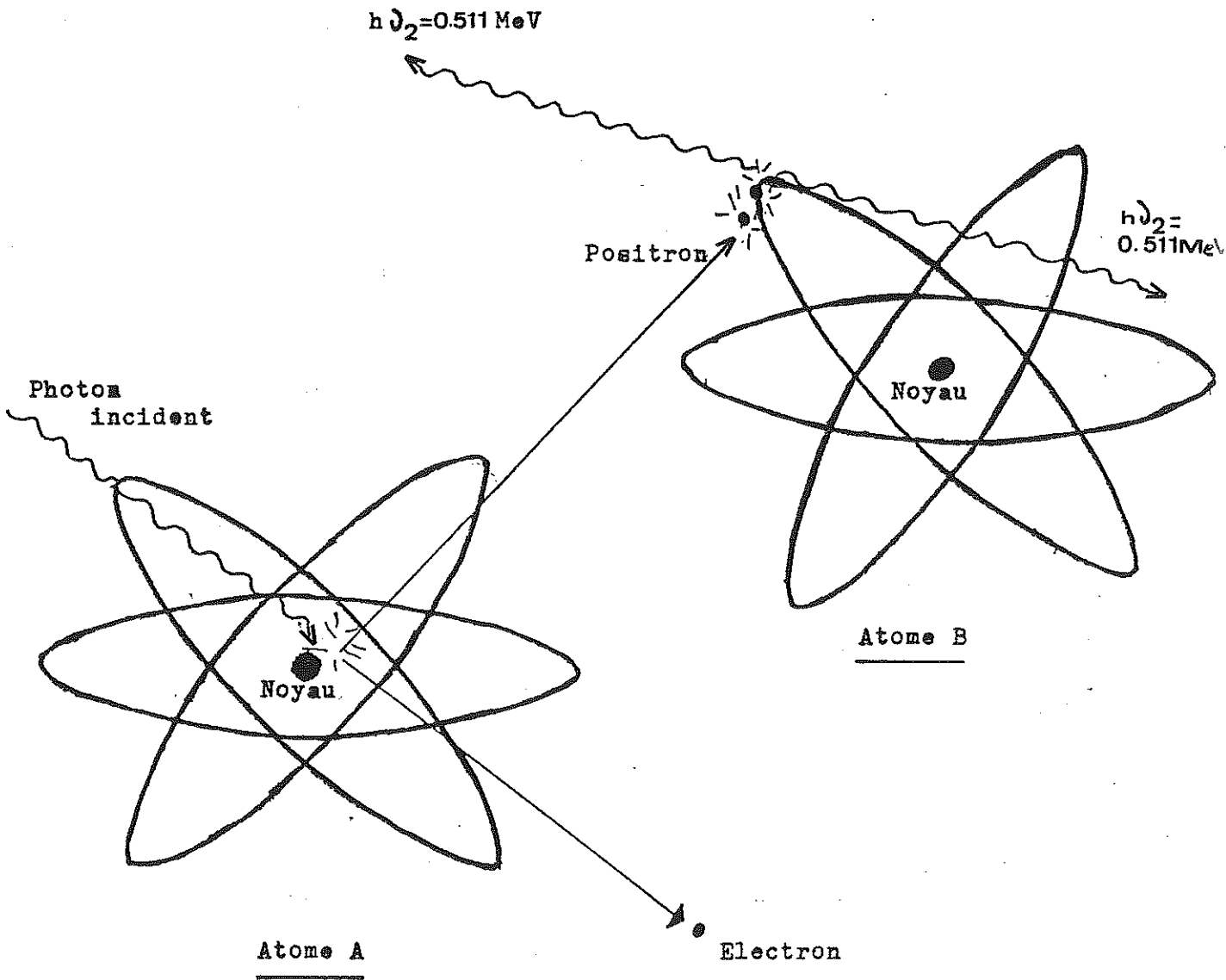


Figure II.8 - Production de paire

## II .2 - Effets biologiques des radiations ionisantes gamma

### II.2.1 - INTRODUCTION

L'absorption (8) de photons gamma ionisants par la matière en général et par la matière vivante en particulier, produit des effets complexes pour lesquels plusieurs phases sont distinguées :

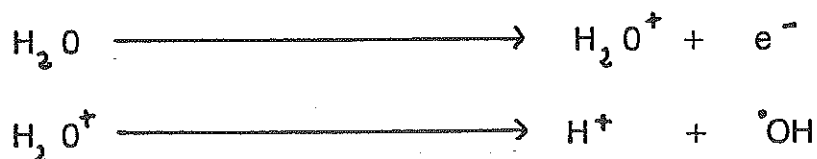
- Phase de réaction élémentaire qui est très courte ( $10^{-15}$  seconde). Dans cette phase, le rayonnement interagit avec les atomes et les molécules du milieu traversé, entraînant des ionisations et (ou) des excitations. Plus la quantité d'énergie absorbée est grande plus les effets observés sont importants. On note aussi des réactions radiochimiques avec production de radicaux libres, des ruptures moléculaires. Cette première phase est thermoindépendante.
- Phase de réaction chimique qui est plus longue que la précédente. Elle se déroule pendant quelques secondes à quelques heures. A ce stade, les radicaux libres formés et les molécules excitées, interagissent entre eux ou avec d'autres molécules. Cette phase est thermodépendante, les effets augmentent avec la température.
- Phase de modification des fonctions et des structures cellulaires. Cette phase peut durer plusieurs années, entraînant des lésions observables. Nous parlons de stade biologique.

### II.2.2 - REACTIONS RADIOCHIMIQUES "IN VITRO "

Dans ce paragraphe nous allons étudier les effets des rayons gamma sur l'eau et diverses macromolécules.

#### II.2.2.1 - Radiochimie de l'eau

Il y a formation de radicaux libres. On appelle radicaux libres, des radicaux porteurs d'électrons célibataires (Figure II-9). En 1947, LEA dans ses travaux a décrit les diverses étapes conduisant à la formation de ces radicaux libres.



L'électron projeté va s'associer avec une autre molécule d'eau selon la réaction suivante :



Le bilan de ces diverses étapes donne :



Mais comme  $\text{H}_2\text{O}^-$  n'a jamais été mis en évidence, il a été suggéré que l'électron était piégé par des molécules d'eau dipolaires. Nous obtenons un électron solvaté ou polaron (figure II-10) puis :



Les radicaux libres ont une durée de vie très courte, ils vont réagir entre eux pour donner naissance à de l'eau, de l'hydrogène et de l'eau oxygénée.



### II.2.2.2 - Radiochimie des composés organiques

#### a - Formation des peroxydes

Si nous considérons une solution organique RH en présence d'oxygène sous l'effet du rayonnement gamma, nous obtenons :





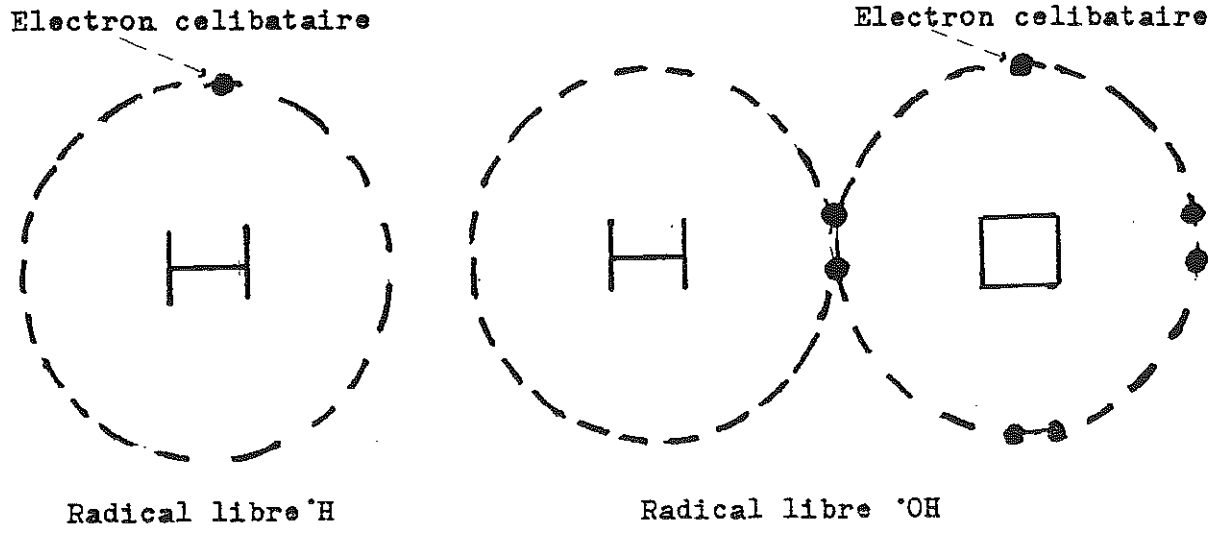


Figure II.9 - Les radicaux libres

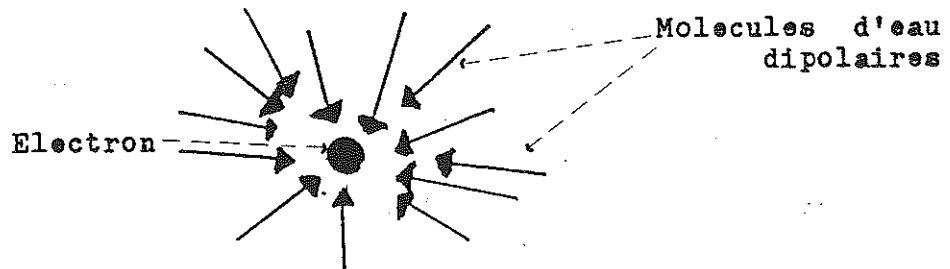


Figure II.10 - Le polaron



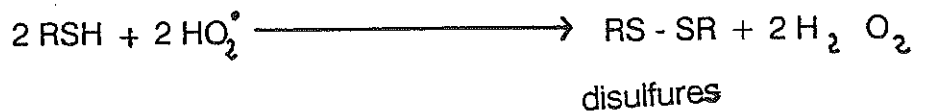
Les peroxydes ont une durée de vie très longue et peuvent expliquer les effets retard de l'irradiation.

### b - Action sur les groupements sulfurés

Formation de disulfures :



En présence d'oxygène :



### c - Action sur les acides nucléiques

L'effet des radiations gamma sur les acides nucléiques est très complexe; nous allons successivement étudier l'effet de ces rayonnements sur les acides nucléiques en solution diluée et à l'état sec.

#### . Cas des acides nucléiques en solution diluée

Les rayons gamma vont interagir avec l'eau du milieu, celle-ci va être décomposée et donner naissance à des radicaux libres. Ces radicaux libres vont réagir avec les acides nucléiques, entraînant leur altération voire leur destruction, par rupture des chaînes phospho glucidiques. En conséquence il y a modification de leurs propriétés.

#### . Cas des acides nucléiques à l'état sec

Le taux d'humidité est alors inférieur à 10 %, les rayons gamma attaquent directement les acides nucléiques qui vont se rompre.

### REMARQUE :

Il est à noter que dans le cas des acides nucléiques, l'action des rayonnements est soit directe, soit indirecte.

L'action est indirecte quand la radiation est absorbée par les molécules du milieu, l'eau par exemple, et les radicaux libres formés agissent ensuite sur les acides nucléiques.

L'action est directe quand la radiation attaque directement l'acide nucléique.

## **II.2.3 - EFFET DES RADIATIONS "IN VIVO"**

### **II.2.3.1 - Effet sur les fonctions cellulaires intégrées**

L'effet est fonction de la dose :

- Si la dose est faible, nous avons une modification du taux de croissance. Dans un premier temps, la masse de la culture cellulaire irradiée augmente, puis diminue dans un second temps.
- Si nous augmentons la dose, la cellule irradiée, pendant sa division avant la partie moyenne de sa prophase, a sa mitose retardée.
- Pour des doses plus fortes, l'irradiation entraîne la mort de la cellule, la descendance disparaît lors d'une tentative de division (Figure II.11), c'est la mort cellulaire retardée. Si les doses sont encore augmentées, la mort cellulaire est immédiate.

### **II.2.3.2 - Effet des radiations sur la synthèse de l'ADN, de l'ARN et des protéines**

#### **Cas de l'ADN**

L'ADN (Acide Desoxy-Ribonucléique) est un élément essentiel du noyau synthétisé au cours de l'interphase. Sous l'action des rayons gamma il y a une diminution de la synthèse de l'ADN, pour cela il faut utiliser des doses très importantes (dose d'exposition de l'ordre de 4000 à 5000 Roentgen.). Par irradiation l'ADN peut aussi être modifié qualitativement.

#### **Cas de l'ARN et des protéines**

L'ARN (Acide Ribonucléique) est synthétisé au niveau du noyau de la cellule puis on le retrouve dans le cytoplasme.

Les protéines sont élaborées à partir de cet ARN.

L'effet des radiations sur l'ARN et les protéines est mal connu.

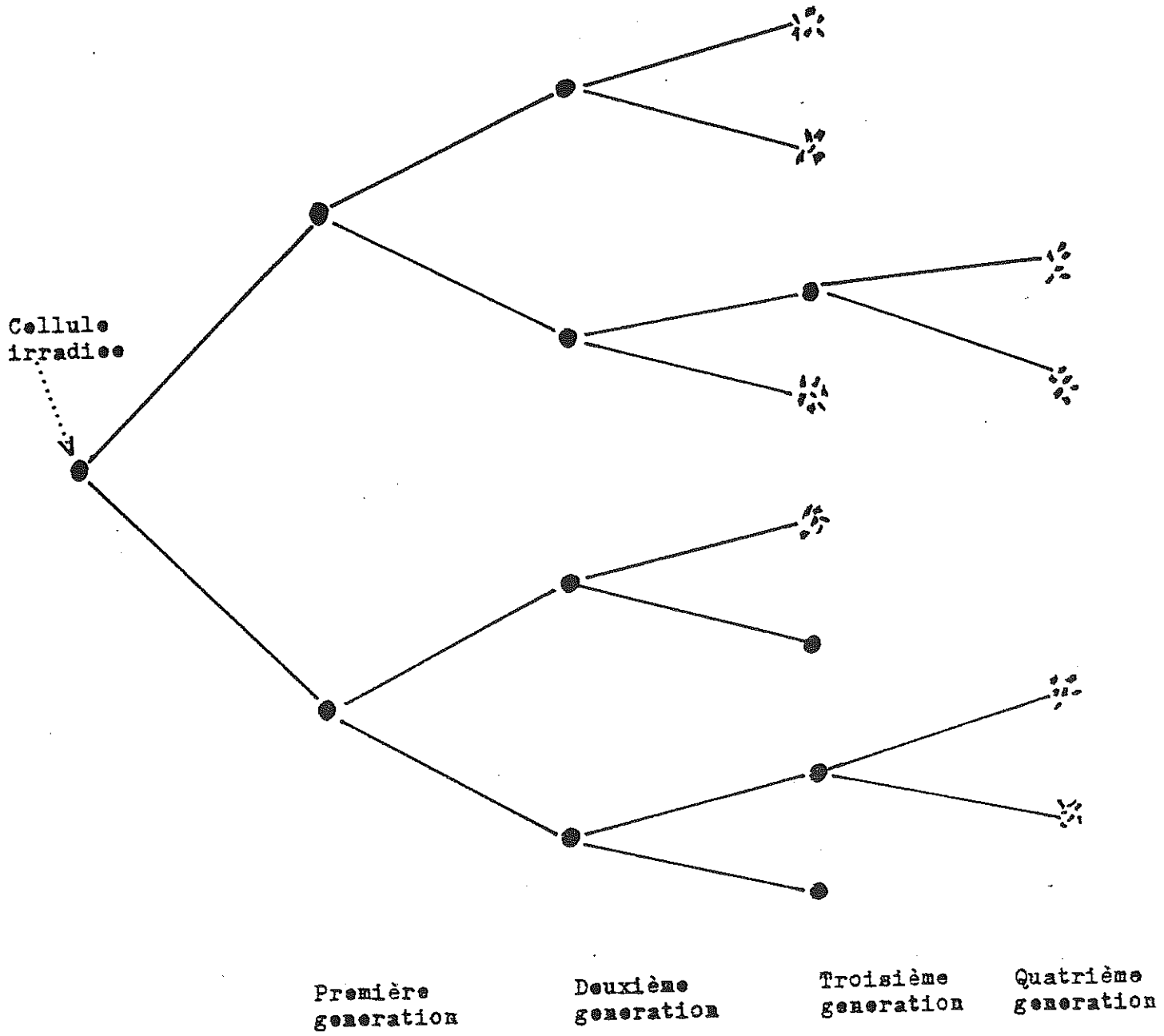


Figure II.11 - Mort cellulaire retardée

### **II.2.3.3 - Radiosensibilité**

Toutes les espèces cellulaires n'ont pas la même sensibilité aux radiations ionisantes. Depuis 1906 (travaux de Bergonie et Trihondeau) nous savons que les cellules dont l'activité mitotique est la plus grande sont les plus sensibles aux rayonnements gamma. Ces cellules sont dites plus radiosensibles.

### **II.2.3.4 - Effet au niveau génétique des radiations ionisantes**

Depuis 1927, nous savons que les radiations ionisantes peuvent induire des mutations. Ce phénomène a été étudié chez les bactéries et la drosophile. Les propriétés mutagènes des radiations sont communes à l'ensemble des êtres vivants. Deux types de mutations ont lieu :

- Les mutations géniques, c'est à dire les mutations au niveau des gènes.
- Les anomalies chromosomiques consistant à des duplications et à des remaniements chromosomiques.

### **II.2.4 - CONCLUSION**

Les rayons gamma interagissent avec la matière, ceux-ci ont des effets biologiques. Cette propriété des radiations gamma est utilisée en médecine et en pharmacie mais aussi en agriculture.

Deux applications vont nous intéresser plus particulièrement ce sont :

- La radiostérilisation
- La radioconservation.

## **II.3 - Radioconservation et Radiostérilisation**

Dans ce chapitre, nous allons développer deux applications des propriétés biologiques des rayons gamma. Cette étude va mettre en évidence la nécessité de l'emploi de dosimètres pratiques, peu onéreux, fiables afin de vérifier les doses absorbées par les matériaux traversés.

### **II.3.1 - RADIOSTERILISATION**

#### **II.3.1.1 - Stérilisation**

##### **a - Définition**

La stérilisation est une opération qui a pour but de priver un produit ou un objet des microorganismes qui le souille.

##### **b - Rappel des différentes méthodes de stérilisation (9)**

Les microorganismes peuvent être tués par :

- La chaleur
- Des agents chimiques
- Des rayonnements
- .....

Ils peuvent aussi être éliminés par filtration (cas des fluides et des gaz).

Donc, il existe plusieurs méthodes de stérilisation. Nous allons énumérer successivement les procédés chimiques et les procédés physiques.

##### **α - Les procédés chimiques**

Nous utilisons des antiseptiques liquides, dont la liste et les limites d'utilisation sont données par la pharmacopée française.

EXEMPLES : Pour les préparations injectables nous utilisons :

- Le phénol à des doses inférieures ou égales à 5%

- Le crésol à des doses inférieures ou égales à 3 %
- Etc ...

Pour le matériel médical nous utilisons :

- Les ammoniums quaternaires
- Le formol
- L'eau de javel
- Etc ...

Nous pouvons aussi utiliser des antiseptiques gazeux. Trois gaz sont employés : le formol, l'ozone et l'oxyde d'éthylène pour la stérilisation du matériel médical et des principes actifs en poudre.

### **β - Les procédés physiques**

=====

#### - Stérilisation par filtration :

Les filtres les plus utilisés sont les filtres d'amiante, de cellulose et les membranes filtrantes en ester de cellulose. Par ce mode de stérilisation, les microorganismes sont arrêtés soit par criblage, absorption ou attraction électrostatique. Ainsi seront stérilisés les liquides qui sont sensibles à la chaleur et les gaz.

#### - Stérilisation par la chaleur :

##### **Chaleur sèche :**

Dans le cas de la chaleur sèche, nous utilisons des fours ou étuves à air chaud (four Pasteur, stérilisateur Poupinel). Cette méthode est très employée pour stériliser les récipients en verre.

##### **Chaleur humide :**

Dans le cas de la chaleur humide, nous utilisons soit un stérilisateur à la vapeur sous pression continue, soit une autoclave classique. Avec les stérilisateurs à la vapeur sous pression, la température atteinte est supérieure à 100°.

Certaines solutions ne supportent pas des températures trop élevées, en particulier supérieures à 100°. Dans ce cas là, on utilise le procédé de tyndalisation qui consiste à effectuer trois chauffages successifs entre 56° et 100° d'une durée d'une heure chacun et séparés les uns des autres par un repos de 24 heures à température ordinaire.

- Stérilisation par les rayonnements ionisants : Radiostérilisation :

Nous pouvons avoir recours à plusieurs sortes de rayonnements ionisants :

- Les rayons ultra violets dont le pouvoir microbicide est très élevé pour des courtes longueurs d'ondes, mais dont l'inconvénient est qu'ils sont peu pénétrants. Par exemple pour des rayonnements de 2000 à 3000 Å, leur pouvoir microbicide est très important, mais ils sont stopés par une mince couche d'eau.
- Les électrons et le rayonnement gamma : ce mode de stérilisation n'est utilisé que depuis une vingtaine d'années. Les électrons sont émis par un accélérateur linéaire; les rayons gamma sont émis par une source de Cobalt 60. Il est à noter que les rayons bêta ne sont pas de nature électromagnétique. Ce procédé est très employé pour la stérilisation du matériel à usage unique.

### **II.3.1.2 - Radiostérilisation gamma**

#### **a - Avant propos**

La destruction totale des microorganismes par radiostérilisation est un but difficile à atteindre. Au cours de la radiostérilisation, plusieurs facteurs entrent en jeu à propos de la sensibilité des microorganismes vis-à-vis du flux photonique émis par une source de rayons gamma. Il faut, en effet, tenir compte des différents paramètres suivants :

- La nature des microorganismes et la forme sous laquelle ils se trouvent (forme végétative ou forme sporulée)
- La quantité de photons qui traversent le milieu
- Le nombre de germes avant traitement
- La réponse des germes au traitement (radiosensibilité)
- Le milieu dans lequel se trouvent les germes

Tous les germes n'ont pas la même sensibilité aux radiations. Certains sont tués par l'irradiation, d'autres non. Ils sont donc plus ou moins radiosensibles. De plus, pour un microorganisme donné il peut se trouver sous deux formes différentes, la forme sporulée et la forme végétative, en règle générale, la forme sporulée est plus résistante que la forme végétative.



Les germes radiosensibles soumis au traitement radiostérilisant vont être progressivement détruits, une partie des germes seront tués et d'autres vont continuer à se reproduire. En augmentant la dose des rayons électromagnétiques, le nombre des germes va diminuer progressivement, et cela se traduit par une courbe exponentielle qui théoriquement tend vers le zéro mais sans jamais l'atteindre. Cette constatation conduit à deux conclusions qui sont les suivantes :

#### Première conclusion

Le risque de survie après traitement est d'autant plus faible qu'il y a moins de germes au départ dans le milieu. Donc avant traitement le nombre des germes présents dans le milieu doit être le plus petit possible pour avoir un niveau de stérilisation élevé. On peut diminuer le nombre de germes initiaux, en :

- employant un matériel et de la verrerie très propre,
- utilisant dans le cas des solutés aqueux de l'eau fraîchement distillée (de telle sorte que les germes apportés par l'atmosphère n'aient pas le temps de souiller l'eau),
- utilisant des matières premières aussi pures que possible et dans un parfait état de conservation.

#### Deuxième conclusion

Il n'est théoriquement pas possible d'atteindre la stérilité absolue. La courbe est logarithmique et tend vers le zéro sans jamais l'atteindre. Pour être plus précis, nous ne devrions plus dire qu'un produit, qu'un matériau est stérile, mais qu'il est pratiquement stérile. Nous parlons donc de marge de sécurité suffisante qui est garante d'une diminution très importante du taux des germes.

### **b - Procédé de stérilisation par les rayons gamma**

#### **α - Inscription à la PHARMACOPEE FRANCAISE**

---

La stérilisation (10) par les rayons gamma est utilisée depuis une vingtaine d'années, mais n'a fait son apparition dans la PHARMACOPEE FRANCAISE qu'à la neuvième édition, avec une monographie intitulée "Stérilisation par les rayonnements ionisants du matériel chirurgical à usage unique et d'articles de pansement et de suture".

Le matériel médico-chirurgical recouvre :

- les seringues et aiguilles
- nécessaire à perfusion
- sondes
- appareils pour dialyse sanguine
- etc ...

L'avantage de cette méthode est que l'on peut stériliser ces accessoires dans leur emballage. Ce sont des articles à usage unique dont le réemploi est interdit.

La PHARMACOPEE FRANCAISE précise aussi les conditions de conservation et d'étiquetage.

**Conservation** : Le matériel stérilisé doit être conservé à l'abri de l'humidité, de la chaleur, des risques de déchirure ou de perforation de l'emballage, l'intégrité de celui-ci doit être vérifiée avant l'emploi.

Le délai de péremption est fixé à deux ans comptés à partir de la date de stérilisation.

**Etiquetage** : L'étiquetage est conforme aux prescriptions générales internationales et nationales régissant la matière.

Chaque unité de conditionnement et chaque article est revêtu, en outre, d'une étiquette mentionnant :

- le nom de l'établissement d'irradiation et son adresse,
- la dose minimale de rayonnement ionisants absorbée,
- la date de stérilisation (mois, année),
- le numéro de lot de stérilisation
- la date limite d'utilisation.

### **β - Sources de rayons gamma**

Deux types de sources émettrices de rayons gamma peuvent être utilisées :

- La source au Cobalt 60
- La source au Césium 137

La source au Cobalt 60 est celle que nous utilisons la plus fréquemment, car elle fournit une énergie plus grande (meilleure pénétration) et une réussite supérieure (forme métallique des sources). Par contre, elle est plus onéreuse de par sa période relative

- 5 ans pour le Cobalt
- 30 ans pour le Césium.

La source au Cobalt 60 émet un rayonnement presque uniquement gamma, très bactéricide, dont l'énergie moyenne est de 1,27 MeV. Les rayons gamma étant très pénétrant, il faut donc prendre de nombreuses précautions pour protéger les manipulateurs.

### γ - Choix de la dose stérilisante

Le choix de la dose de rayonnements ionisants dépend de plusieurs facteurs (12) :

- Contamination initiale (aspect quantitatif)
- Radiosensibilité des germes (aspect qualitatif)
- Marge de sécurité

Donc, il faut définir la dose stérilisante efficace (DSE). La dose stérilisante efficace est la dose de rayonnement gamma nécessaire pour assurer la stérilité d'un milieu avec un coefficient de sécurité du même ordre que celui demandé pour la stérilisation par la chaleur. Ce calcul se fait soit par des méthodes expérimentales, soit par des méthodes statistiques.

Dans la méthode expérimentale, nous allons contaminer volontairement l'article, ou un support constitué d'un matériau aussi semblable que possible à celui à stériliser. La contamination est faite avec un nombre déterminé de germes, de spores bactériennes dont la radiosensibilité est connue :

- Bacillus Pumilus
- Bacillus Sphaerticus

Nous soumettons alors ces articles à des doses d'irradiation croissantes, et nous notons la plus petite dose nécessaire à la stérilisation ou dose d'inactivation. La dose utilisée sera la dose d'inactivation augmentée d'un certain facteur pour assurer une certaine marge de sécurité.

Pour des articles fabriqués selon les règles normales de travail et d'hygiène (donc à priori peu contaminés) une dose minimale de 25 kGy uniformément répartie, donne en général, une marge de sécurité suffisante.

### **δ - Irradiation continue et discontinue**

---

Dans tous les cas, les articles sont placés sur des convoyeurs qui assurent le passage de ceux-ci au-dessous de la source de rayons gamma.

L'irradiation est dite continue quand le convoyeur se déplace à une vitesse bien déterminée. Sur celui-ci, nous plaçons l'article non irradié qui subit le traitement et qui est remplacé par un article non irradié.

Pour l'irradiation discontinue, les paquets circulent en circuit fermé et passent successivement par toutes les positions possibles.

### **ε - Contrôles d'irradiation**

---

Avant l'irradiation, il faut contrôler quantitativement et qualitativement la contamination afin de déterminer :

- La nature des microorganismes pour savoir s'ils sont ou non radiosensibles,
- La contamination initiale qui a une influence sur la dose de rayonnement à utiliser au cours de l'irradiation.

Pendant l'irradiation, nous devons effectuer des contrôles de routine, c'est à dire des contrôles dosimétriques. En effet, avant l'irradiation, nous déterminons la dose minimale de rayonnement nécessaire pour que la stérilisation soit efficace. Il faut donc s'assurer que les articles à traiter ont bien reçu cette dose. Ce contrôle se fait au moyen de dosimètres qui sont des appareils de mesure physicochimique de la dose absorbée. Le plus souvent, nous faisons appel à des dosimètres plastiques colorés ou non, qui sont répartis à la surface ou à l'intérieur des unités de conditionnement.

Après l'irradiation, nous vérifions la stérilité des articles eux-mêmes ou des "fantomes" préalablement contaminés.

### **c - Quelques applications**

#### **$\alpha$ - Applications pharmaceutiques et médicales :**

- Le matériel médical à usage unique
- Le matériel médico-chirurgical à usage répétitif : ce sont des instruments utilisés en chirurgie tels que les vêtements, les spatules, les lames de rasoir, les ciseaux, les scies etc ...

#### **- Les médicaments :**

Actuellement les rayonnements gamma sont peu utilisés pour la stérilisation des médicaments eux-mêmes. Ils ont l'inconvénient d'être la cause de nombreuses réactions chimiques à l'origine de l'altération des principes actifs et des excipients. En particulier, quand ils sont en solution aqueuse, l'eau du milieu soumise au rayonnement est décomposée, le milieu est alors le siège de réactions d'oxydation et de réduction. La présence d'oxygène dans le milieu est à l'origine de la formation d'eau oxygénée. L'alcool, lui, est transformé en acétaldéhyde et glycol.

Si les produits en solution supportent mal le traitement, les produits à l'état sec peuvent être traités sans subir trop d'altération avec de nombreuses limites tout de même. Le facteur limitant est la stabilité des principes actifs soumis aux rayons gamma.

#### **Exemples :**

- Bétalactamines du groupe M : peu stables
- Bétalactamines du groupe A : stables
- Tétracyclines : très stables
- Pritinamycine : peu stable détruite par 25 kGy.

Nous pouvons aussi citer l'emploi de la radiostérilisation pour les tissus biologiques (plasma, tissu osseux), pour les vaccins (radiovaccins viraux, bactériens, parasitaires), pour les biomatériaux (nombreux pour hémodialyse).

#### **$\beta$ - Traitement des eaux :**

Cette méthode permet de tuer certains virus contaminant l'eau, particulièrement le Poliovirus qui n'est pas atteint par les doses de chlore couramment utilisées dans les stations d'épuration de l'eau.

## II.3.2 - RADIOCONSERVATION (11), (12)

### II.3.2.1 - Stabilisation

#### a - Définition

La stabilisation est un procédé qui a pour but d'augmenter la durée de vie des produits alimentaires destinés à la consommation humaine ou les semences destinées à l'agriculture.

#### b - Causes d'altération des aliments

##### $\alpha$ - Processus endogène

Prenons l'exemple d'un fruit, sous l'action des enzymes qu'il contient, le fruit subit la maturation qui est bénéfique dans un premier temps, mais si le phénomène se poursuit on peut aboutir à la germination qui n'est pas désirable en vue de la consommation humaine.

##### $\beta$ - Processus exogène

Celui-ci est lié au milieu dans lequel se trouvent les aliments.

Dans l'environnement de l'aliment nous pouvons retrouver :

- Des microorganismes (bactéries, virus ...)
- Des insectes
- Des invertébrés
- Des moisissures
- Etc ...

Ces éléments exogènes peuvent aboutir soit :

- à la destruction pure et simple du produit
- à sa contamination entraînant sa non consommation, nous pouvons citer la contamination du lait par *Listeria*.

#### c - Rappel de différents modes de stabilisation

Il existe deux grandes familles de procédés, les procédés chimiques et les procédés physiques.

### **α - Procédés chimiques**

- La déshydratation : le but est d'éliminer l'eau du milieu, eau qui est nécessaire au développement des microorganismes. Par déshydratation nous agissons sur un facteur exogène. Nous pouvons donner deux exemples :

- salage des poissons (saumure)
- salage des viandes (salaison)

- Utilisation des pesticides et des antimicrobiens : le niveau d'action est encore exogène, mais dans ce cas nous tuons directement les microorganismes, les insectes ou les invertébrés. L'emploi de ces produits chimiques pose le problème des résidus qui peuvent ensuite être ingérés par l'être humain et être à l'origine de troubles.

### **β - Procédés physiques**

#### Stabilisation par la chaleur

- Pasteurisation à basse température : ce procédé consiste à traiter les produits alimentaires à une température de 60 à 65° pendant une durée de trente minutes.

- Pasteurisation à haute température. Les produits alimentaires sont traités à une température de 150° pendant une durée de quelques secondes (procédé UHT : Ultra haute température).

La pasteurisation intervient au niveau des facteurs exogènes d'altération des aliments par destruction des germes pathogènes présents dans le milieu.

#### Stabilisation par le froid

- La réfrigération : les aliments sont conservés à une température comprise entre 2 et 5°.

- La congélation et la surgélation : la température de conservation est beaucoup plus basse, de l'ordre de -18°.

Le froid inhibe le développement de germes, il faut que la chaîne du froid soit respectée pour que le procédé soit efficace.

Stabilisation par les rayons gamma

Ce procédé est développé dans le chapitre suivant.

### **II.3.2.2 - Radioconservation gamma**

#### **a - Niveau d'action des rayons gamma**

Nous agissons à la fois sur les facteurs exogènes et les facteurs endogènes d'altération des produits alimentaires.

#### **b - Innocuité**

Tout en sachant que l'utilisation des rayons gamma était efficace en vue de la stabilisation, il a fallu démontrer l'innocuité du procédé. Toutes les expériences réalisées jusqu'à présent n'ont montré aucun effet nuisible.

#### **c - Stabilisation des denrées végétales.**

Le domaine d'application, les doses utilisées ainsi que l'effet produit par les rayons gamma sont récapitulés dans le tableau II,1.

#### **d - Stabilisation des denrées d'origine animales**

Dans le cas des denrée végétales, une dose allant jusqu'à 150 kGy peut être nécessaire, mais avec l'emploi de telles doses nous constatons une perte de la flaveur des denrées animales proportionnelle à la dose utilisée. La viande devient inconsommable à partir de 40 kGy, car étant riche en eau, l'eau contenue est radiolysée par les rayons gamma, radiolyse à l'origine du processus chimique altérant le goût.

En pratique, pour améliorer la conservation de la viande par radurisation (extension de la durée de conservation) nous utilisons des doses de l'ordre de 10 kGy, mais déjà avec de telles doses nécessaires à une réduction substantielle des microorganismes ravageurs, il y a des modifications des caractères organoleptiques.

Voici quelques exemples du seuil de détection de la flaveur d'irradiation

- Porc : 1,57 kGy
- Boeuf - poulet : 2,50 kGy
- Poisson : 5,00 kGy



Domaine d'application	Dose utilisée	Remarque
Stimulation de la germination des végétaux	moins de 10 kGy	Activation de la maturation des graines, bulbes afin d'améliorer la productivité des cultures.
Inhibition de la germination des végétaux	de 20 à 150kGy	Arrêt de la germination des tubercules (pomme de terre), des bulbes à (oignons) pour augmenter la durée de conservation
Désinfection	de 1 à 150 KGy	Destruction des insectes, des parasites des céréales afin d'augmenter le temps de conservation en vue de stockage
Conservation des produits végétaux frais (fruits, légumes)	moins de 3 kGy	La dose ne dépasse pas 3 kGy pour éviter une modification du goût
Conservation des produits végétaux sec (aromates, plantes médicinales)	de 10 à 25 kGy	Destruction des microbes

**Tableau II,1 - Stabilisation des denrées végétales**

### **e - Sources de rayons gamma et installations**

Comme pour la radiostérilisation, les deux sources de rayonnement employées sont :

- la source au Cobalt 60
- la source au Césium 137

Nous utilisons, en règle générale, le Cobalt 60.

La dose d'irradiation est obtenue plus ou moins vite, selon le débit de dose de l'irradiateur; dans le cas du Cobalt 60, un traitement d'une heure est nécessaire pour obtenir 10 kGy.

Les installations sont des systèmes industriels livrés clefs en main.

### **f - Contrôle**

Nous voyons que la notion de dose est une notion importante. Il faut utiliser la dose nécessaire et suffisante. Des contrôles seront nécessaires pour évaluer si la dose qui traverse les aliments est bien la dose nécessaire et suffisante. Nous avons alors recours à des dosimètres qui sont souvent comme dans le cas de la radiostérilisation des dosimètres plastiques.

**DEUXIEME PARTIE**

**LES DOSIMETRES PLASTIQUES**

# **I - DOSIMETRIE - GENERALITES**

## **I.1 - Introduction**

Au cours des processus de radioconservation et de radiostérilisation il est indispensable de déterminer avec précision la dose de rayonnement gamma absorbée (13). La mesure de la dose absorbée se fait au moyen de dosimètres.

## **I.2 - Méthodes de contrôle du processus d'irradiation**

### **I.2.1 - CONTROLE DES PARAMETRES DE L'IRRADIATION**

Dans le cas de l'irradiation avec une source de Cobalt 60 ou de Césium 137, les paramètres sont les suivants (14,15) :

- Position de la source
- Variation du débit de la dose
- Vitesse du convoyeur
- Temps de passage du produit
- Nature du produit (hétérogénéité, densité, taille ...)
- Configuration de la source
- Masse du produit traitée par unité de temps
- Variation de la distribution de l'énergie de l'irradiation dans le produit
- Facteurs extérieurs (température, humidité, gaz ...)

### **I.2.2. - MESURE DE LA DOSE ABSORBEE PAR LE PRODUIT**

#### **1.2.2.1 - Définition dosimétrie**

L'interaction d'un rayonnement avec la matière se fait avec un transfert partiel ou total de l'énergie du rayonnement à la matière (16). Plus la quantité d'énergie absorbée est grande plus les effets observés sont importants.

Si la radiométrie a pour objectif l'évaluation des grandeurs énergétiques qui caractérisent les rayonnements, le but de la dosimétrie consiste à caractériser le rayonnement gamma (17) par différentes grandeurs physiques, la dose d'exposition, la dose transférée et la dose absorbée.

### **I.2.2.2 - Grandeurs physiques dosimétriques**

#### **a - Dose absorbée et dose transférée**

Soit un photon  $\gamma$  traversant la matière (17). Au cours d'une interaction, il expulse un électron avec une énergie cinétique appelée énergie transférée par le photon au point de choc. L'électron expulsé cède son énergie cinétique par suite de collisions (excitations, ionisations) avec les atomes de l'absorbant. Cette énergie cédée est absorbée par la matière. L'énergie absorbée par la matière est en général inférieure à l'énergie transférée par le rayon incident, une partie de cette énergie est emportée sous forme de rayonnement secondaire émis lors du transfert d'énergie.

#### **$\alpha$ - Dose absorbée : le gray, le rad**

$$D = \frac{\Delta RA}{\Delta m}$$

$\Delta RA$  = énergie cédée par les électrons bombardés

$\Delta m$  = masse du volume dans lequel l'énergie  $\Delta RA$  est cédée

D = en Rad (Ergs par gramme)

1 Rad = 100 Ergs/gramme

Le Rad correspond à un rayonnement qui fournit par ionisation 100 ergs par gramme de matériau traversé quelque soit sa nature et celle des rayons  $\alpha$ ,  $\beta$ ,  $\gamma$ , ou x. Le rad est une unité mesurable.

Le Gray (Gy) est défini comme unité pour la quantité de dose absorbée par le comité international des poids et mesures (18) (C.I.P.M).

$$1 \text{ Gy} = 100 \text{ Rad} = 1 \text{ Joule par kilogramme}$$

### $\beta$ - Dose transférée : le Kerma

Soit un matériau de masse  $\Delta m$ , au cours des interactions les photons incidents vont céder au milieu l'énergie  $\Delta R$ . L'énergie  $\Delta R$  est appelée énergie transférée par les photons incidents, cette énergie est équivalente à l'énergie cinétique,  $R_c$ , acquise par les électrons de la cible.

Le Kerma ("Kinetic Energie realeased per unit mass") correspond au rapport :

$$K = \frac{\Delta R}{\Delta m} = \frac{R_c}{\Delta m}$$

$\Delta R$  Energie transférée

$\Delta m$  Masse de la cible

$R_c$  Energie cinétique acquise par les électrons cible

K s'exprime en ergs par gramme.

L'énergie transférée dépend de :

- l'énergie des photons incidents : R
- la nature de l'absorbant

Si l'on suppose que l'énergie R des photons suit une loi d'atténuation exponentielle, on peut écrire :

$$\frac{dR}{R} = -\mu \cdot dx = -\frac{\mu}{\rho} \cdot \rho \cdot dx$$

$\mu$  : coefficient linéaire d'atténuation

$\rho$  : masse volumique de l'absorbant

$$\begin{aligned} \rightarrow dR &= -\frac{\mu}{\rho} \cdot R \cdot \rho \cdot dx \\ \text{or } dm &= \rho \cdot dV = \rho \cdot S \cdot dx \end{aligned}$$

$dV$  : Volume de la masse  $dm$

$$\rightarrow \frac{dR}{dm} = - \frac{\mu}{\rho} \cdot \frac{R}{s}$$

$$\rightarrow \boxed{K = \frac{|\Delta R|}{\Delta m} = \frac{\mu}{\rho} \cdot \frac{R}{s}}$$

Le Kerma n'est pas une grandeur mesurable.

### b - Dose d'exposition

La dose d'exposition (16) évalue le nombre d'ionisations provoqués par un rayonnement gamma ou X dans un millilitre d'air dans des conditions normales de température et de pression.

L'énergie moyenne (17) nécessaire pour donner naissance à une paire d'ions (+ et -) ou pour ioniser une molécule dans l'air est :  $\bar{\omega} \approx 34$  électron-volt.

Si  $R_c$  est l'énergie cinétique acquise par les électrons cible (énergie transférée par les photons incident) le nombre de paire d'ions créés est :

$$N = \frac{R_c}{\bar{\omega}}$$

La charge moyenne totale  $Q$  libérée par chaque signe d'ion est égale à :

$$Q = Ne \quad e : \text{charge élémentaire}$$

$$\rightarrow Q = R_c \cdot \frac{e}{\bar{\omega}}$$

L'exposition  $X$  est la charge totale ou quantité d'électricité libérée par unité de masse  $\Delta m$ .

$$\boxed{X = \frac{Q}{\Delta m} = \frac{e}{\bar{\omega}} \cdot \frac{R_c}{\Delta m} = \frac{e}{\bar{\omega}} \cdot K}$$

X en u.e.s C.G.S : g si :

- K en erg/gramme

- e en v.e.s. CGS : e =  $4,810 \cdot 10^{-10}$  u.e.s. CGS

-  $\bar{\omega}$  en erg

L'unité d'exposition est le Roentgen : R

### **Définition du Roentgen**

Une exposition est égale à un Roentgen si les électrons mis en mouvement dans  $1\text{cm}^3$  d'air pris dans les conditions normales de température et de pression (soit  $1,293 \cdot 10^{-3}$  grammes) créent dans l'air par ionisation, tout au long de leur trajectoire une quantité d'électricité de chaque signe égale à un u.e.s CGS.

Un u.e.s CGS correspond à :

$$\frac{1}{4,810^{-10}} = 2,082 \cdot 10^9 \text{ charges élémentaires}$$

Un Roentgen représente une exposition énergétique de 87 ergs par gramme.

### **I.2.2.3 - Aire d'application de la dosimétrie**

Le champ d'application (13) de la dosimétrie des rayons gamma et des rayons X est très étendu. Les domaines concernés sont indiqués dans le tableau I.1.

Au cours de notre étude nous nous intéresserons plus particulièrement aux applications médicales et biologiques dans le but de contrôler les doses absorbées dans les procédés de radioconservation et de radiostérilisation.

### **I.2.2.4 - Méthodes et systèmes dosimétriques.**

Dans des domaines tels que la médecine et la biologie, afin de déterminer la dose absorbée par le produit traité l'utilisateur aura le choix entre diverses méthodes. Son choix devra se porter sur la méthode la mieux adaptée au do-



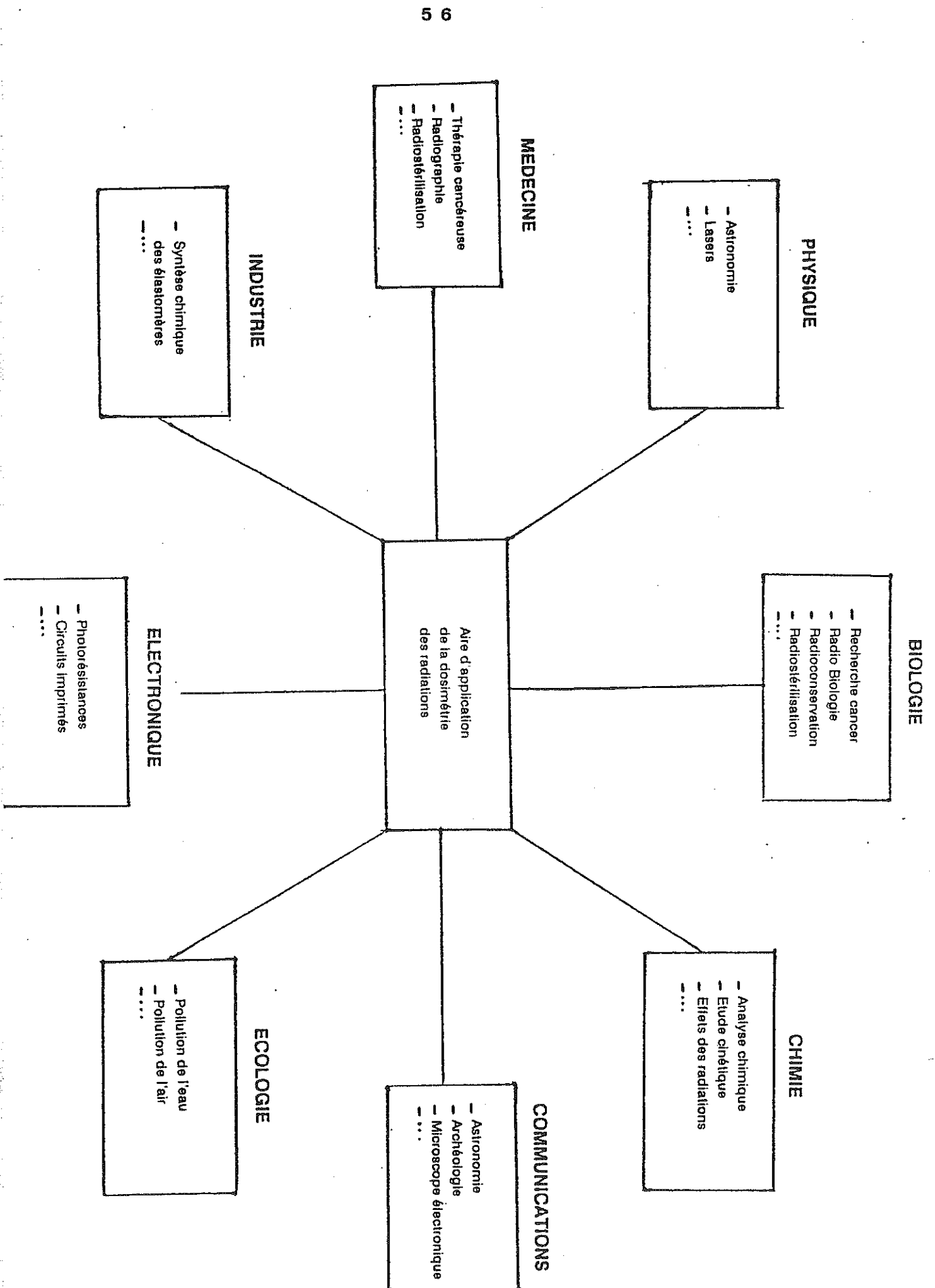


Tableau I.1 - Aire d'application de la dosimétrie des radiations

maine dans lequel il travaille. Pour faciliter ce choix des guides sont disponibles (14), (19).

Les diverses méthodes et systèmes parmi lesquels le choix pourra être fait sont :

- des méthodes optiques
- des méthodes électriques
- des méthodes chimiques
- des méthodes biologiques
- les systèmes solides
- les systèmes atomiques et nucléaires
- des méthodes thermiques

Tous ces procédés sont récapitulés dans la figure I.2.

#### **I.2.2.5 - Classification des dosimètres**

Nous pouvons différencier trois classes de dosimètres (13).

##### **a - Les dosimètres primaires**

Les dosimètres primaires permettent une mesure directe de la dose absorbée ou de quantifier une valeur qui peut être reliée directement à la dose absorbée. Ces systèmes ne nécessitent pas un calibrage par rapport à un système de référence.

##### **b - Les dosimètres secondaires**

Les dosimètres secondaires donnent une lecture reproductible grâce à des changements de caractères physiques, chimiques ou biologiques. Ces dosimètres doivent être calibrés au moyen d'un système primaire.

##### **c - Les dosimètres tertiaires**

Les dosimètres tertiaires ne donnent qu'une estimation de la dose absorbée.

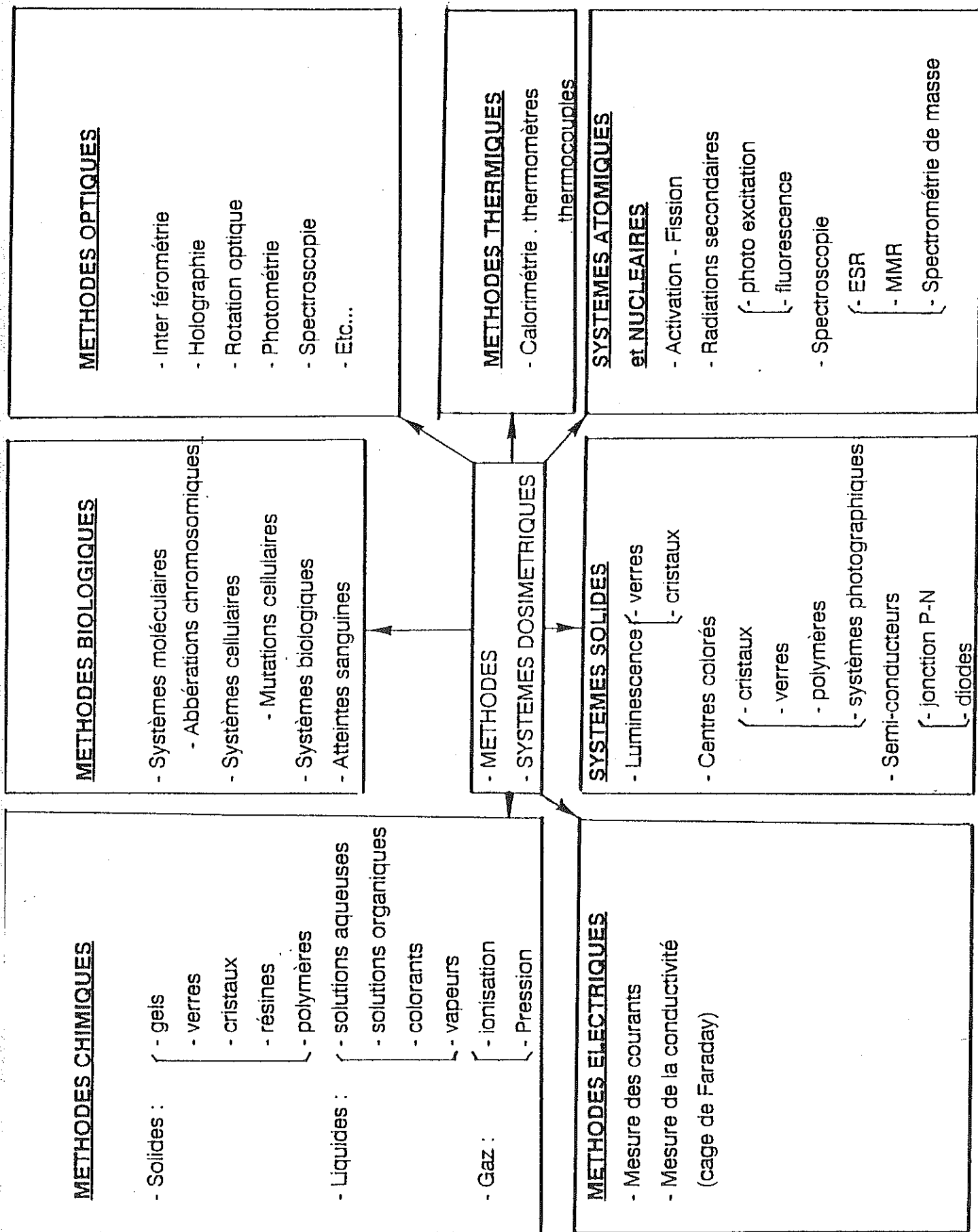


Figure 1.2 - Méthodes et systèmes dosimétriques

#### **d - Tableau récapitulatif**

Le tableau I.2 (20), (21) donne la liste des différents procédés de dosimétrie en fonction de leur appartenance à l'une des trois classes.

### **I.3 - Conclusion**

En conclusion de ce chapitre nous pouvons dire que le processus d'irradiation nécessite un contrôle à différents niveaux :

- Contrôle au niveau de la source émettrice des rayons gamma,
- Contrôle au niveau du produit traité afin de connaître la dose absorbée.

La suite de notre étude va porter sur l'utilisation des dosimètres plastiques, qui sont des dosimètres secondaires permettant la détermination de la dose absorbée à l'aide de méthodes optiques (spectroscopie). Les systèmes primaires permettant leur calibration sont les chambres d'ionisation, le dosimètre de Fricke etc ...

Les plastiques ont la propriété de développer une bande d'absorption pour une longueur d'onde donnée, la variation de la densité optique est en relation avec la variation de la dose absorbée.

<u>SYSTEMES PRIMAIRES</u>	<u>SYSTEMES SECONDAIRES</u>	<u>SYSTEMES TERTIAIRES</u>
<ul style="list-style-type: none"> <li>- Calorimétrie</li> <li>- Chambres d'ionisation</li> <li>- Dosimètre de Fricke</li> <li>- "Super" Fricke</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>- Systèmes biologiques</li> <li>- Semi conducteurs</li> <li>- Polymères               <ul style="list-style-type: none"> <li>- Changement de viscosité</li> <li>- Changement de conductivité</li> </ul> </li> <li>- Diverses solutions               <ul style="list-style-type: none"> <li>- Mesure potentiométrique</li> <li>- Mesure oscillométrique</li> </ul> </li> <li>- Plastiques (mesure optique)               <ul style="list-style-type: none"> <li>- Plastiques colorés</li> <li>- Plastiques non colorés</li> </ul> </li> <li>- Solutions colorées (mesure optique)               <ul style="list-style-type: none"> <li>- Glucose - Maltose</li> </ul> </li> <li>- Systèmes cristallins</li> <li>- Verres</li> <li>- Emulsions photographiques</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>- Indicateurs de PH</li> <li>- Papiers radiochromiques</li> </ul>

Tableau I.2 - Classification des systèmes dosimétriques

## **II - DOSIMETRES PLASTIQUES**

### **II.1 Introduction**

L'intérêt croissant des films plastiques en dosimétrie est lié étroitement au développement de l'utilisation des sources radioactives dans le traitement de divers matériaux.

Des études initiales sur les propriétés des plastiques ont montré que le phénomène général qui a lieu en premier pendant l'irradiation du plastique est le changement de couleur qui est grossièrement proportionnel à la dose de rayonnement absorbée.

Des études plus récentes montrent que pour des longueurs d'ondes sélectionnées dans l'ultraviolet et le visible, l'augmentation de la densité optique des plastiques est proportionnelle à la dose absorbée.

Cette observation ouvre des horizons nouveaux en vue de l'utilisation des plastiques pour mesurer les doses absorbées par les matériaux traités au moyen des rayons gamma. De nombreux travaux ont alors été réalisés pour développer l'utilisation des dosimètres plastiques.

Aucun plastiques spéciaux n'ont été fabriqués en vue de leur utilisation en tant que dosimètres, les échantillons employés sont ceux disponibles dans le commerce, à la seule exception du polyméthacrylate de méthyle, fabriqué exclusivement en vue de la dosimétrie, vendu sous le nom commercial de Perspex.

### **II.2 - Matières plastiques - généralités**

#### **II.2.1 - DEFINITION DES MATIERES PLASTIQUES**

Sont désignés sous le nom de matières plastiques des produits synthétiques ou naturels qui contiennent comme principal constituant des substances organiques de haut poids moléculaire. Les différents procédés chimiques permettant l'obtention des composés organiques synthétiques sont :

- La polymérisation
- La condensation

Les matières plastiques synthétiques sont aussi appelées résines synthétiques.

## **II.2.2. - HISTORIQUE**

Les plastiques naturels (corne, écaille etc ...) sont connus et utilisés depuis la plus haute antiquité.

Les plastiques synthétiques sont de création récente.

- En 1855 fût élaboré le celluloïd, combinaison de la nitrocellulose et du camphre, permettant la fabrication de feuilles et de tubes.

- Au début du XXème siècle la combinaison de la caseïne et du formol donnait naissance à la galathite.

- En 1914 une grande famille de plastiques, les phénoplastes fût découverte par Backeland. Les phénoplastes sont obtenus par la condensation du formol avec du phénol.

- Vers 1920 débuta la grande industrie des matières plastiques avec la découverte des résines vinyliques (1928), des résines acryliques (1935), des résines de polystyrène (1936), des résines mélanine-formol (1938), etc ...

## **II.2.3 - PROCESSUS DE FABRICATION DES MACROMOLECULES**

### **II.2.3.1 - Définition des macromolécules**

Les macromolécules sont des molécules géantes formées de plusieurs milliers, voire de plusieurs dizaines ou centaines de milliers d'atomes.

Le concept de macromolécules extension du concept de molécule a valu à son auteur le chimiste allemand H. Staudinger le prix Nobel de chimie en 1953.

La science des macromolécules a fait en quelques décennies des progrès étonnants, progrès permettant de réaliser, par synthèse, d'innombrables matériaux plastiques se substituant aux métaux, au verre, au papier, aux liants pour peintures et vernis, aux colles et aux adhésifs.

### **II.2.3.2 - Polymérisation et polycondensation**

Il existe de nombreuses macromolécules naturelles :

- Les protéines fibreuses

- La fibrinoïne de la soie
- Le diamant
- Le graphite
- etc ...

Peu de ces matériaux ont pu être synthétisés chimiquement.

Par contre, les chimistes organiciens ont créés d'innombrables macromolécules nouvelles, grâce à deux processus chimiques qui sont :

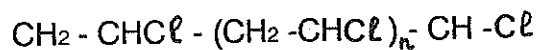
- la polymérisation
- la polycondensation

### a - Polymérisation

Les réactions de polymérisation consistent à unir directement des petites molécules (monomères) à la faveur de l'ouverture de doubles ou de triples liaisons.

Exemple : le chlorure de vinyle :  $\text{CH}_2 = \text{CH} - \text{C} \ell$

La double liaison du chlorure de vinyle va s'ouvrir, et la réunion de plusieurs monomères vinyliques aboutit à la formation du chlorure de polyvinyle.



Chlorure de polyvinyle

Selon la façon dont la liaison va s'ouvrir (amorçage) nous allons distinguer quatre types de polymérisation :

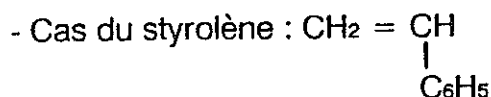
- la polymérisation thermique
- la polymérisation photonique
- la polymérisation radicalaire
- la polymérisation ionique

#### α - La polymérisation thermique

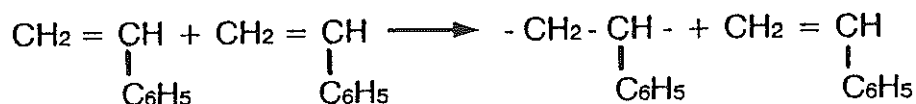
La chaleur est à l'origine de chocs moléculaires, chocs qui provoquent l'ouverture de la double liaison. Les valences libres sur les atomes de carbone,



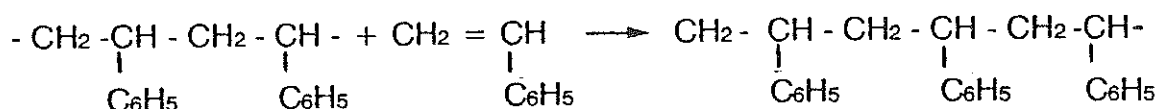
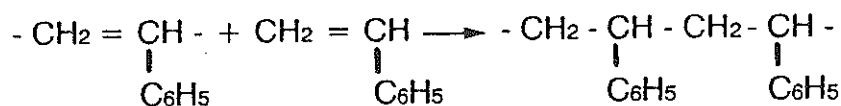
en se saturant monomère à monomère permettent la polymérisation qui est accélérée par une élévation de température.



- Amorçage (chocs moléculaires)



- Propagation



### $\beta$ - La polymérisation photochimique

=====

Dans le cas de la polymérisation photochimique, l'ouverture de la double liaison est déterminée par l'absorption d'énergie des radiations ultraviolettes, des rayons X et des rayons bêta.

- Cas du styrolène

- Amorçage (absorption lumineuse)



- Propagation (comme l'exemple précédent)

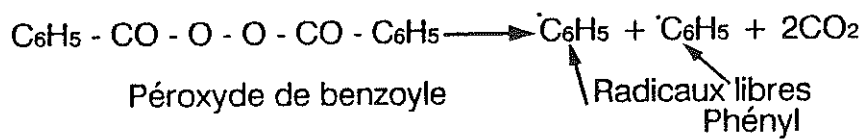
### $\gamma$ - La polymérisation radicalaire

=====

La polymérisation est amorcée par une substance chimique dite sub-

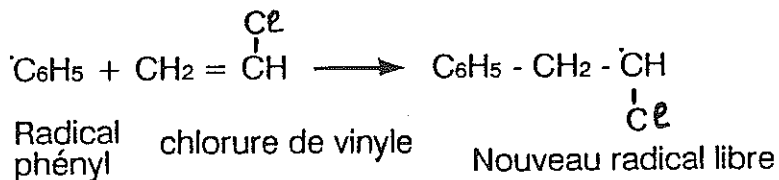
stance amorçante qui par coupure donne naissance à des radicaux qui ont un électron célibataire, ce sont les radicaux libres.

- Cas du peroxyde de benzoyle (substance amorçante)



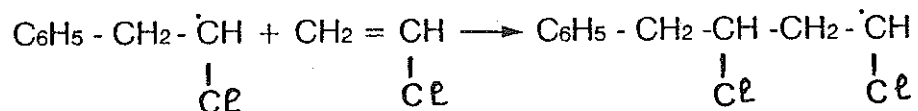
Au cours de la polymérisation du chlorure de vinyle le radical libre formé va se fixer sur la molécule vinylique entraînant la formation d'un nouveau radical libre, cette étape est l'amorçage.

- Amorçage de la polymérisation du chlorure de vinyle



Le nouveau radical libre va pouvoir se fixer à un autre monomère vinylique et ainsi de suite, c'est la phase de propagation qui est plus rapide que l'amorçage.

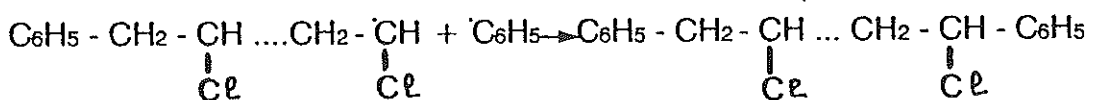
- Propagation



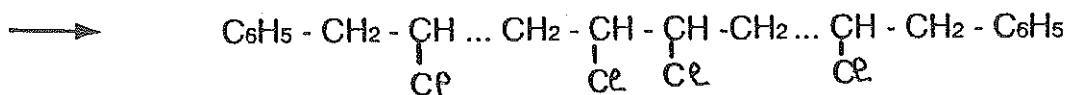
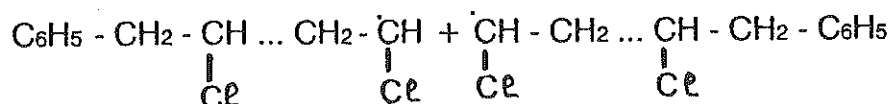
Le degré de polymérisation des macromolécules (nombre de motifs monomères enchaînés) est limité par une phase d'interruption qui peut faire intervenir divers types de réactions.

- Interruption

- Interruption par fixation de l'amorceur

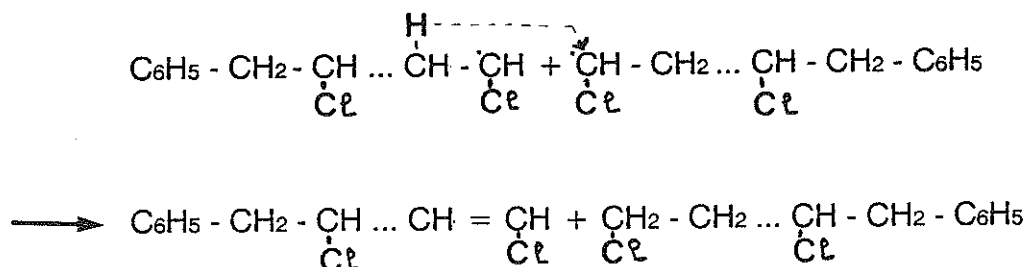


- Interruption par combinaison de chaînes



## - Interruption par transfert d'hydrogène (dismutation)

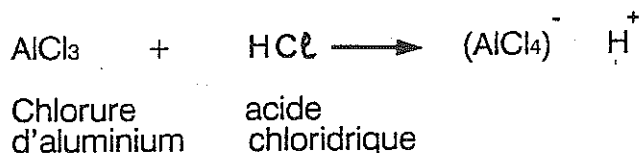
L'extrémité radicalaire d'une chaîne en croissance est saturée par prélevement d'un atome d'hydrogène sur une autre chaîne.



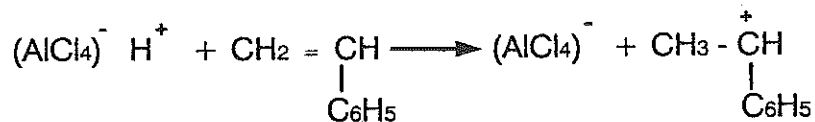
### § - La polymérisation ionique

Comme pour la polymérisation radicalaire, la polymérisation est amorcée par une substance chimique. Dans le cas de la polymérisation ionique la substance chimique est un composé salin libérant des ions. Un ion va se fixer sur le monomère donnant naissance à un composé à extrémité ionique qui réagissant avec un autre monomère va amorcer une chaîne à extrémité ionique et ainsi de suite.

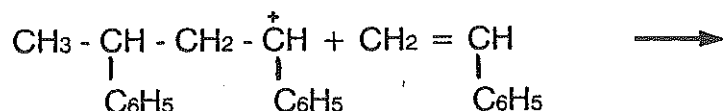
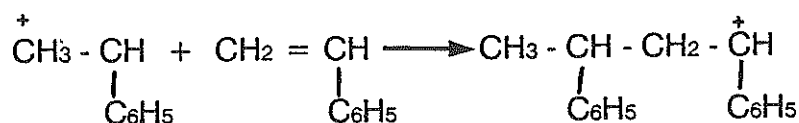
## - Polymérisation ionique du styrolène

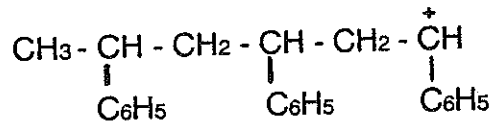


## - Amorçage



## - Propagation

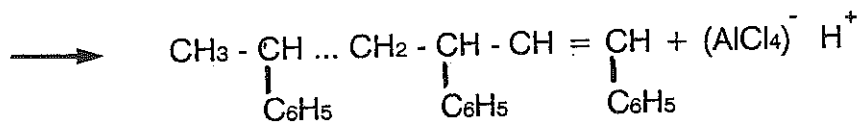
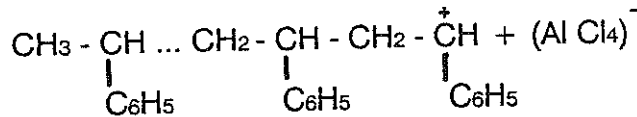




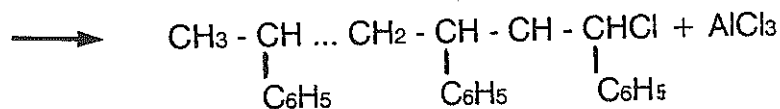
L'interruption se fait soit par départ de l'ion primitivement fixé ou par fixation d'un ion de signe contraire.

- Interruption

- Interruption par départ de l'amorceur



- Interruption par fixation d'un ion



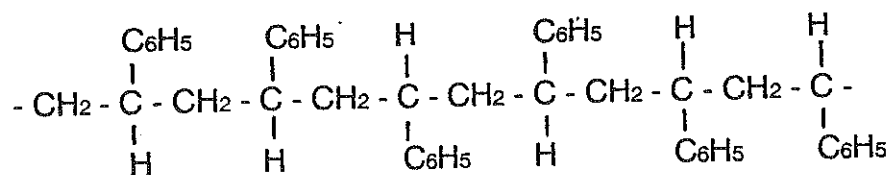
### μ - Stéréospécificité de la polymérisation

Au cours de la polymérisation les monomères s'enchaînent tête à queue et selon la position dans l'espace des substituants latéraux par rapport à cet axe principal nous allons distinguer trois dispositions.

- Disposition atactique

Les substituants latéraux se placent au hasard de part et d'autre de la chaîne principale.

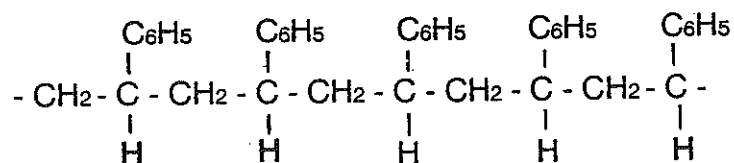
Exemple : Cas du Styrolène



Disposition atactique du polystyrolène

## - Disposition isotactique

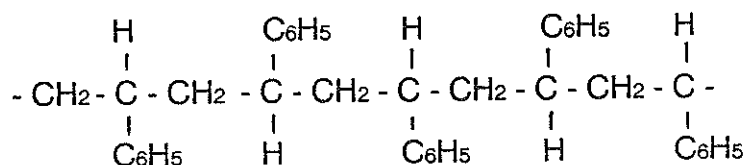
Les substituants latéraux sont du même côté de la chaîne macromoléculaire.



Disposition isotactique du polystyrène

## - Disposition syndiotactique

Les substituants sont placés alternativement à droite et à gauche de la chaîne macromoléculaire.



Disposition syndiotactique du polystyrène

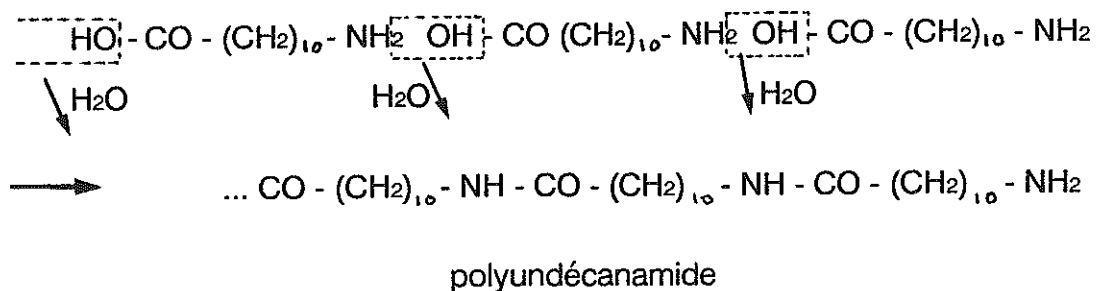
**b - Polycondensation**

La polycondensation est la soudure en une macromolécule unique d'un grand nombre de molécules homogènes ou hétérogènes, qui réagissent par leurs fonctions libres avec élimination de produits simples (eau, acide chlorhydrique ...) . Les polycondensations sont des réactions classiques de la chimie organique :

- estérification
- amidification
- etc ...

La différence avec les réactions de polymérisation est le départ d'un produit de réaction. La réaction nécessite la présence d'un catalyseur.

Prenons comme exemple la polyamidification linéaire de l'acide amino 11 undécanoïque.



## II.2.4 - CLASSIFICATION DES MATIERES PLASTIQUES

Les matières plastiques peuvent être classées en deux groupes qui sont :

- Les matières plastiques naturelles
- Les matières plastiques synthétiques

### II.2.4.1 - Matières plastiques naturelles

Ce sont les matières plastiques que l'on trouve dans la nature :

- L'écaille
- La corne ...

### I.2.4.2 - Matières plastiques synthétiques

Ces matières peuvent être classées en deux groupes principaux suivant leur comportement à la chaleur :

- Les matières thermoplastiques
- Les matières plastiques thermodurcissables

#### a - Les matières thermoplastiques

Elles fondent sous l'action de la chaleur et se resolidifient après refroidissement. Aucun phénomène chimique ne se produit pendant le chauffage.

Les principales matières thermoplastiques sont :

- Les dérivés cellulosiques
  - Nitrocellulose
  - Les esters cellulosiques :
    - acétate
    - propionates
    - acétobutyrate
  - Les éthers cellulosiques :
    - méthylcellulose
    - ethylcellulose
    - carboxyméthylcellulose
    - hydroxyéthylcellulose
- Les résines de polystyrène
- Les résines acryliques
  - polyméthacrylates
  - polyacrylonitriles
- Les polyéthylènes
- Les résines vinyliques
  - chlorure de polyvinyle
  - acétate de polyvinyle
  - copolymères
  - alcool polyvinylique
  - acétates
  - chlorure de polyvinyldiène
- Les superpolyamides
- Les silicones

### **b - Les matières plastiques thermodurcissables**

Sous l'action de la chaleur leur structure chimique est modifiée, elles gardent la forme qu'elles ont acquise par chauffage.

Les principales matières plastiques thermodurcissables sont :

- Les phénoplastes
  - Résines phénol-formol
  - Autres résines phénoliques
- Les aminoplastes
  - Résines urée-formol
  - Résines mélanine-formol

- Les polyesters

- Glyptals
- Autres résines
- Fibres

## II.3 - Les matières plastiques utilisées en dosimétrie

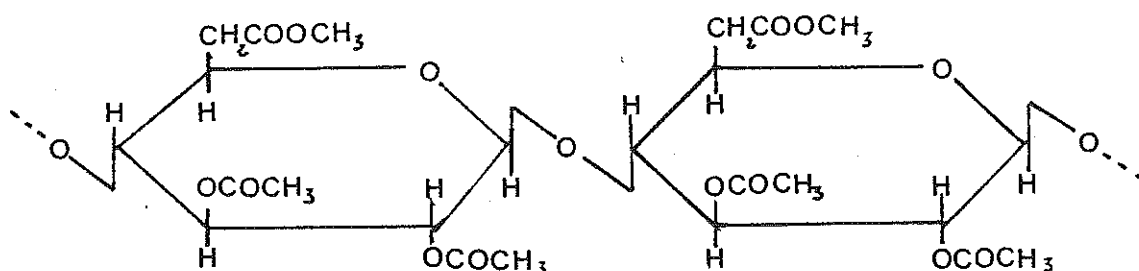
### II.3.1 - LES MATIERES PLASTIQUES CELLULOSIQUES

En dosimétrie gamma nous utilisons des esters cellulosiques, ce sont des esters acétiques ou des esters nitriques.

#### II.3.1.1 - Acétate de cellulose

##### a - Structure chimique

C'est un ester acétique de la cellulose, le produit utilisé est le triacétate de cellulose (26) qui a été commercialisé pour la première fois en 1927.



Triacétate de cellulose

##### b - Propriétés physicochimiques

- Densité de 1.28
- Qualités mécaniques très bonnes, se travaille très facilement
- Insoluble dans l'eau
- Solvants :
  - alcools méthyliques
  - alcools éthyliques
  - éthers éthyliques
  - éthers sulfuriques
  - etc ...



- Pratiquement pas attaqué par les acides minéraux, leurs alcalis faibles et dilués.

- Matière thermoplastique qui se ramollit entre 60° et 100°, au delà elle devient fluide. La décomposition commence à 240°.

- Du point de vue électrique c'est un excellent isolant dont la rigidité diélectrique est de 70.000 volts par millimètre environ et la résistivité de  $50 \cdot 10^{12}$  ohms par mètre.

- Transparence parfaite.

### **c - Emploi en dosimétrie**

Le triacétate de cellulose (26) est employé en dosimétrie pour mesurer des niveaux de dose élevés. Le niveau de dose mesuré est lié à l'épaisseur du triacétate de cellulose.

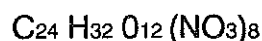
- Niveau de dose : 100 à 250 KGy

- Lecture : Pic d'absorption en spectrophotométrie ultraviolet visible à 284 nanomètres.

## **II.3.1.2 - Nitrate de cellulose**

### **a - Structure chimique**

Le nitrate de cellulose est un gel de cellulose octonitré.



### **b - Propriétés physicochimiques**

- Densité de 1,35

- Qualités mécaniques remarquables. Le nitrate de cellulose est assez dur et en même temps très élastique et très souple, c'est un matériau qui se travaille très facilement.

- Insoluble dans l'eau

- Les solvants sont identiques à ceux du triacétate de cellulose

- Pratiquement pas attaqué par les acides minéraux et leurs alcalis faibles et dilués.

- Matière thermoplastique qui se ramollit entre 80° et 90°, qui ne supporte pas les températures très élevées. C'est un produit très inflammable et brûlant vers 140°.

### **c - Emploi en dosimétrie**

Les noms commerciaux des produits utilisés en dosimétrie sont :

- Le mica
- Le polycarbonate
- Le LIF (22)
- Le diacel (23)
- Le makrofol (25)

Franck et Benton (24) ont suggéré l'utilisation du nitrate de cellulose (diacel) comme détecteur de fortes doses de rayons gamma. Les doses absorbées mesurées se situent entre 10 et 10<sup>3</sup> KGy.

- Lecture : La mesure des doses absorbées se fait par spectrophotométrie ultraviolet-visible à 300 nanomètres.

Shak et Al (25) ont suggéré l'utilisation du makrofol, les résultats obtenus sont voisins de ceux obtenus avec le diacel.

L'intérêt de l'emploi du nitrate de cellulose est son faible coût, sa facilité d'utilisation ainsi que le bon degré de reproductibilité des mesures.

## **II.3.2 - POLYETHYLENE ET POLYETHYLENE TEREPHTALATE**

### **II.3.2.1 - Polyéthylène**

#### **a - Structure chimique**

Le polyéthylène est obtenu par polymérisation de l'éthylène gazeux.

Ethylène :  $\text{CH}_2 = \text{CH}_2$

Polyéthylène :  $-\text{CH}_2 - (\text{CH}_2 - \text{CH}_2)_n - \text{CH}_2-$

Le polyéthylène a été commercialisé en 1942.

### **b - Propriétés physicochimiques**

- Densité de 0,92 (sa densité est la plus faible de celle des matières plastiques).
- Propriétés mécaniques satisfaisantes
- Matière thermoplastique devenant fluide à 105 °, c'est un matériau que l'on peut donc travailler facilement par moulage.
- Le polyéthylène est soluble au dessus de 60° dans un certain nombre de solvants organiques.
- Pas attaqué par les acides minéraux
- Excellentes propriétés électriques.

### **c - Emploi en dosimétrie**

- Niveau de dose : le polyéthylène est employé pour des doses allant de 1 KGy à 400 KGy.
- Effets des radiations sur le polyéthylène : les radiations sont à l'origine de phénomènes d'oxydation des radicaux libres, de ruptures de chaînes, de phénomènes de cyclisation.
- Lecture : Nous utilisons la spectrophotométrie ultraviolet visible. La réponse donnée n'est pas proportionnelle à la dose absorbée. L'emploi d'un tel dosimètre présente de nombreux problèmes.

### **II.3.2.2. Le polyéthylène téréphtalate**

Nous avons peu d'informations au sujet de ce type de dosimètre.

- Noms commerciaux :
  - Mylar
  - Mélinex
- Niveau de dose : 10 KGy à 10<sup>4</sup> KGy

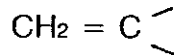
- Lecture : en spectrophotométrie ultraviolet visible, le polyéthylène téréphtalate présente un pic d'absorption vers 325,330 nanomètres mais la réponse n'est pas proportionnelle à la dose absorbée.

### **II.3.3. - LES RESINES ACRYLIQUES : LE POLYMETHACRYLATE DE METHYLE (PMMA)**

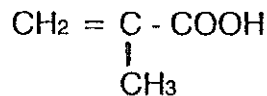
#### **II.3.3.1 - Structure chimique**

La première commercialisation du polyméthacrylate de méthyle date de 1936.

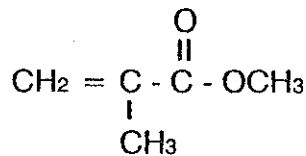
Dans les résines acryliques les monomères constitutifs (26) ont en commun le groupement :



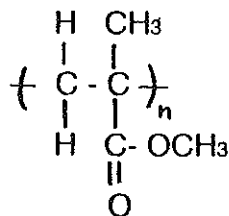
La polymérisation de l'ester méthylique de l'acide méthacrylique conduit au polyméthacrylate de méthyle.



acide méthacrylique



méthacrylate de méthyle



polyméthacrylate de méthyle - PMMA

#### **II.3.3.2 - Propriétés**

##### **a - Propriétés physiques**

- Polymère amorphe

- Propriétés optiques remarquables. La transparence du polyméthacrylate de méthyle est comparable à celle du cristal, en effet la transmission lumineuse est supérieure à 92 %. L'indice de réfraction est égal à 1,491.

- Masse volumique : 1,18 g par centimètre cube

- Grandes possibilités de coloration

### **b - Propriétés mécaniques**

- Allongement faible

- Matériau qui est rayable mais qui se polit facilement.

### **c - Propriétés thermiques**

- Coefficient de dilatation linéaire assez important.

- Retrait au moulage faible.

- Température limite d'utilisation de l'ordre de 80°

- Inflammable, la combustion du polyméthacrylate de méthyle est lente

### **d - Propriétés électriques**

C'est un matériau électrostatique

### **e - Propriétés chimiques**

Le polyméthacrylate de méthyle

n'est pas attaqué par :

- l'eau
- l'alcool
- les acides et les bases dilués

est attaqué par :

- les acides minéraux concentrés
- les aldéhydes et les cétones
- les esters de l'acide acétique

est solubilisé par :

- les hydrocarbures chlorés (chloroforme etc ...)

### II.3.3.3 Emploi en dosimétrie

En dosimétrie sont utilisés le polyméthacrylate de méthyle incolore et coloré. Les noms commerciaux des différentes résines acryliques utilisées sont

- le Perspex
- le plexiglass
- le Diakon
- la Lucite
- le Transpex
- le plastiglass
- le rouge perspex

Il est à noter que le perspex est fabriqué exclusivement en vue de son utilisation en dosimétrie gamma.

- Niveau de dose :

- Polyméthacrylate de méthyle incolore : 1KGy à  $10^2$  KGy
- Polyméthacrylate de méthyle coloré : 0,5 KGy à  $5 \times 10^2$  KGy

- Lecture : En spectrophotométrie ultraviolet visible le polyméthacrylate de méthyle incolore présente un pic d'absorption à 305nm tandis que le polyméthacrylate de méthyle coloré (rouge) présente un pic d'absorption aux alentours de 640nm. Dans les deux cas la réponse en fonction de la dose absorbée est linéaire.

## II.3.4 - LES RESINES VINyliQUES

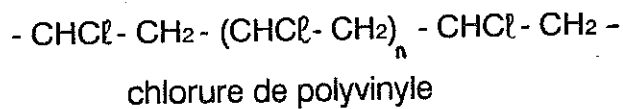
### II.3.4.1 - Structure Chimique (28) (29)

Les résines vinyliques sont obtenues à partir de monomères possédant le groupement vinyle.



groupement vinyle

Le produit utilisé en dosimétrie est le chlorure de Polyvinyle (mise sur le marché en 1927).



### II.3.4.2 - Propriétés physicochimiques

- Grande thermo plasticité : Le chlorure de polyvinyle ne se ramollit qu'à des températures supérieures à 100° C. Sa plasticité augmente avec la température ce qui permet le moulage.

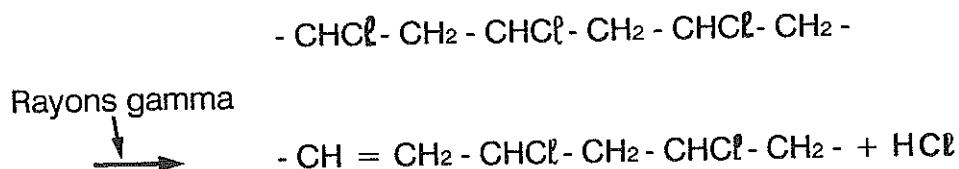
- Grande résistance aux agents chimiques
- Imperméable à l'eau
- Imputrescible

### II.3.4.3 - Emploi en dosimétrie

Les noms commerciaux des résines vinyliques employées en dosimétrie sont :

- le Vynan
- le PVC
- l'Europfan MZ 200/523
- l' Astralon

L'irradiation du chlorure de polyvinyle entraîne le développement d'une couleur qui s'explique par le départ d'acide chlorhydrique (HCl), départ à l'origine de la formation d'une double liaison.



Il y a donc formation d'un système polyénique (Artandi, Stonehill 1960). La couleur est d'abord verdâtre puis tourne au brun jaunâtre et progressivement au brun foncé en fonction de la dose absorbée.

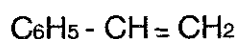
Le chlorure de polyvinyle présente un pic d'absorption en spectrophotométrie ultraviolet visible à 396 nanomètres.

- Niveau de dose
  - Chlorure de polyvinyle : 1KGy à 10<sup>2</sup> KGy
  - Chlorure de polyvinylecolore : 10KGy à 10<sup>2</sup> KGy

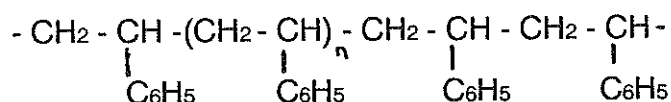
## II.3.5 - RESINE DE POLYSTYROLENE

### II.3.5.1 - Structure chimique

Ces résines appelées aussi polystyrols sont obtenues par polymérisation du styrolène. (Mise sur le marché en 1938)



Styrolène



Polystyrolène

### II.3.5.2 - Propriétés physicochimiques

- Densité de 1,05
- soluble dans les solvants organiques sauf l'alcool, l'essence et les huiles.
- Excellentes propriétés électriques : constante diélectrique faible
- excellentes propriétés optiques : transparence parfaite.

### II.3.5.3 - Emploi en dosimétrie

Les rayons gamma qui traversent le polystyrolène entraînent la formation :

- de doubles liaisons
- de radicaux libres



Bande d'absorption en spectrophotométrie ultraviolet visible à 420 nanomètres.

- Niveau de dose : 5KGy à  $2 \times 10^3$  KGy

### **II.3.6 - TABLEAU RECAPITULATIF**

Dans ce tableau (tableau II.1) sont donnés les différents plastiques utilisés en dosimétrie avec les valeurs des différents niveaux de doses mesurées et la longueur d'onde du pic d'absorption.

## **II.4 - Conclusion**

De nombreux dosimètres plastiques sont donc disponibles pour la mesure de la dose absorbée au cours des processus d'irradiation.

L'opérateur devra donc faire un choix, choisir le matériau le mieux adapté à ses besoins.

Les critères de son choix seront :

- Le niveau de dose à mesurer
- La reproductibilité des résultats obtenus
- Le coût de la méthode
- Etc ...

Dans le prochain chapitre nous allons étudier avec plus de précision l'emploi du polyméthacrylate de méthyle en dosimétrie gamma.

**Tableau II.1 Dosimètre plastique, niveaux de dose et pic d'absorption**

MATIERES PLASTIQUES		NIVEAUX DE DOSE	PIC D'ABSORPTION
Cellulosique	Nitrate de cellulose	10 à 10 <sup>3</sup> KGy *	300 nm **
	Acétate de cellulose	10 <sup>2</sup> à 2,510 <sup>2</sup> KGy	284 nm
Polyéthyléniques	Polyéthylène	1 à 4 x 10 <sup>2</sup> KGy	325-330 nm
	Polyéthylène téréphtalate	10 à 10 <sup>4</sup> KGy	325-330 nm
Résines acryliques	PMMA incolore	1 à 10 <sup>2</sup> KGy	305 nm
	PMMA coloré	0,5 à 5 x 10 <sup>2</sup> KGy	640 nm
Résines vinyliques	Chlorure de polyvinyle incolore	1 à 10 <sup>2</sup> KGy	396 nm
	Chlorure de polyvinyle	10 à 10 <sup>3</sup> KGy	396 nm
Résine de polystyrène		5 à 2 x 10 <sup>3</sup> KGy	402 nm

\* Gy = Gray

\*\* nm = nanomètre

**TROISIEME PARTIE**

**LE POLYMETHACRYLATE DE  
METHYLE  
SON UTILISATION EN DOSIMETRIE GAMMA**

# I - INTRODUCTION

Depuis le début des années cinquante l'utilisation du polyméthacrylate de méthyle, comme dosimètre pour mesurer les doses de radiation ionisantes, a été préconisé.

En effet, en 1950 (31) Day et Stein examinèrent les effets des radiations ionisantes sur un certain nombre de matières plastiques et en particulier sur le polyméthacrylate de méthyle coloré et non coloré. Après étude du spectre d'absorption du polyméthacrylate de méthyle avant et après irradiation, ils constatèrent la présence de bandes d'absorption induites par l'irradiation.

D'autres travaux, ceux de Boag et AL (32) en 1958, portèrent sur le développement de bandes d'absorption dans le polyméthacrylate de méthyle incolore; cette étude conclut à la présence d'un pic d'absorption à 292 nm, pic qui augmente proportionnellement avec la dose de rayons ionisants.

Au cours des années cinquante-soixante, devant l'intérêt croissant que l'on pouvait porter au polyméthacrylate de méthyle, des études ont été réalisées afin de connaître plus précisément l'effet des radiations; on étudiera plus particulièrement les modifications de structure du polymère dues à l'irradiation.

Au cours des années soixante le développement de la commercialisation d'irradiateurs à hautes doses en vue du procédé de radiostérilisation accrut la demande en dosimètres pratiques et fiables. La demande de polyméthacrylate de méthyle incolore et coloré augmenta (33,34). Les utilisateurs du procédé constatèrent rapidement que les résultats étaient influencés par de petites variations dans la composition des polyméthacrylates de méthyle (PMMA) incolore disponibles pour la dosimétrie. Cette constatation fût à l'origine de la mise au point du Perspex HX (35).

D'autres travaux portèrent alors sur la coloration du Perspex HX, en particulier à l'aide d'un colorant rouge, qui stabilise le polyméthacrylate de méthyle avant et après l'irradiation (36).

Donc nous avons à notre disposition du polyméthacrylate de méthyle incolore et coloré.

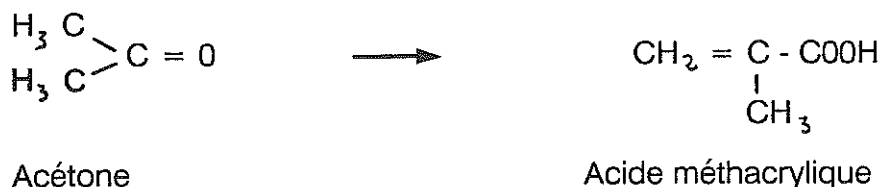
Notre étude va porter sur la structure du PMMA<sup>(\*)</sup>, les différents polyméthacrylate de méthyle disponibles sur le marché, l'interaction des rayons gamma avec ce matériau. Nous allons aussi détailler les spectres d'absorption du PMMA coloré et incolore et étudier certains paramètres affectant la réponse du polyméthacrylate de méthyle.

(\*) PMMA = Polyméthacrylate de méthyle

## II - Fabrication du polyméthacrylate de méthyle coloré et incolore

### II.1 - Obtention du méthacrylate de méthyle

L'obtention du produit de base est assez complexe, et nécessite de nombreuses réactions successives. En simplifiant nous pouvons dire que nous partons de l'acétone qui subit diverses transformations puis l'action de l'alcool méthylique pour donner naissance à l'acide méthacrylique.



A partir de l'acide méthacrylique nous obtenons par estérification le méthacrylate de méthyle.



### II.2 - Polymérisation du méthacrylate de méthyle

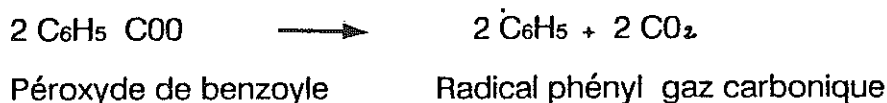
La polymérisation du méthacrylate de méthyle (37) est une polymérisation radicalaire amorcée par le peroxyde de benzoyle. Cette polymérisation se fait par chauffage à l'autoclave à 60° celsius pendant plusieurs heures sous une pression de huit atmosphères.

Les étapes de la polymérisation du méthacrylate de méthyle sont :

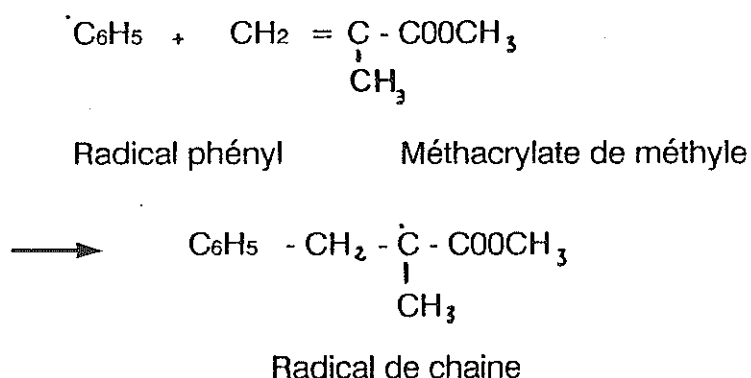
- l'initiation
- la propagation
- l'interruption

## II.2.1 - INITIATION

Au cours de l'initiation il y a décomposition du peroxyde de benzoyle.

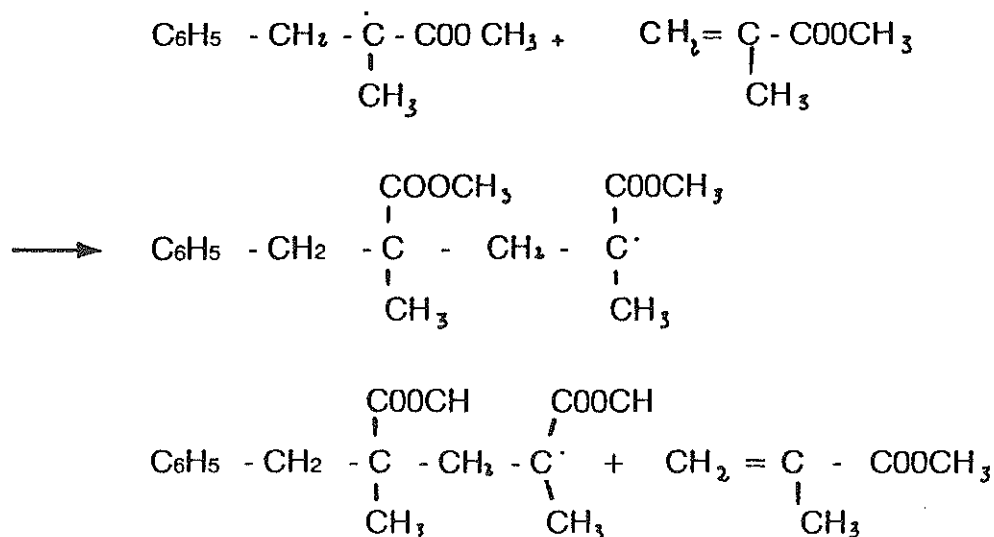
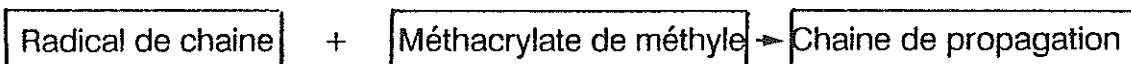


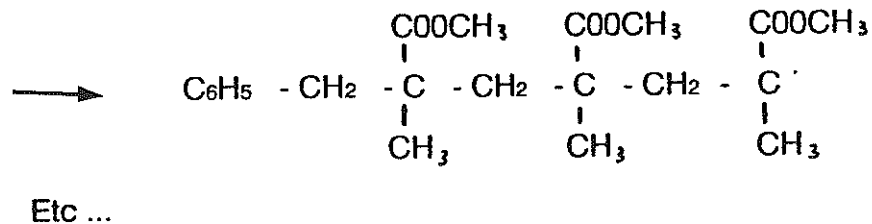
La deuxième étape de la phase d'initiation consiste en l'amorçage de la réaction de polymérisation. L'addition du radical phényl au méthacrylate de méthyle donne naissance, par ouverture de la double liaison du méthacrylate de méthyle, au radical de chaîne.



## II.2.2 - PROPAGATION

La propagation consiste en une addition linéaire des monomères.





### II.2.3 - INTERRUPTION

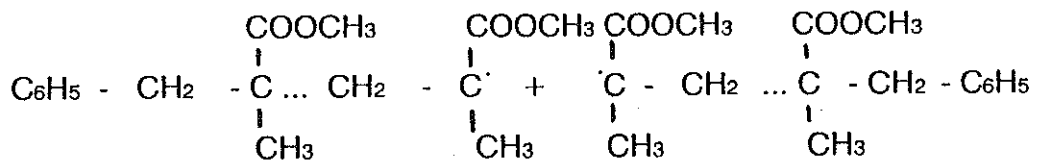
La dernière étape de la polymérisation est la phase d'interruption qui peut se réaliser de deux manières différentes en fonction de la température.

- Si la température est inférieure à 60° l'interruption se fait par :

- Combinaison de deux chaînes de propagation
- Dismutation

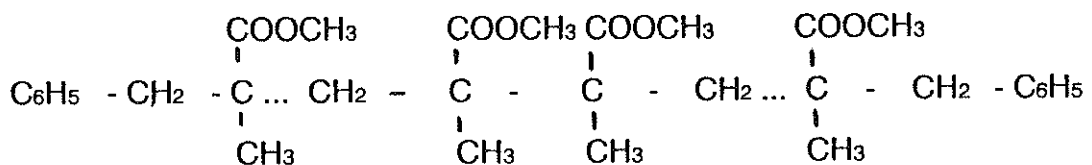
- Si la température est supérieure à 60° l'interruption se fait par dismutation.

#### II.2.3.1 - Combinaison de chaînes de propagation



Chaîne de Propagation A

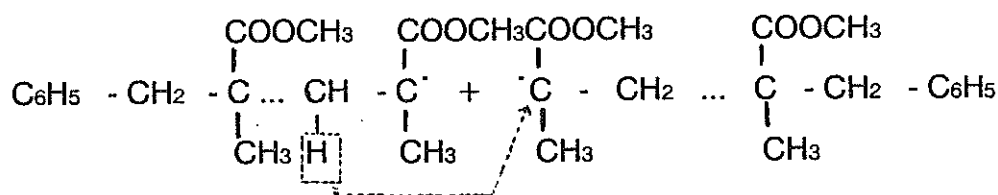
Chaîne de Propagation B



Polyméthacrylate de méthyle

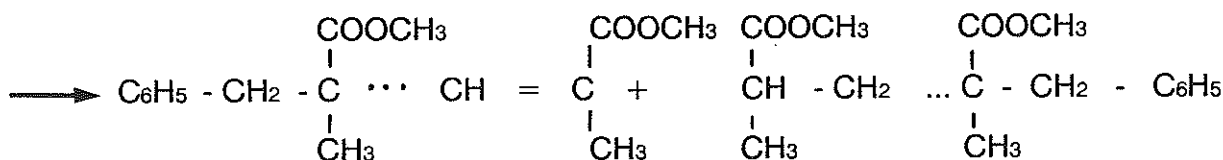
#### II.2.3.2 - Dismutation

La dismutation consiste en un transfert d'hydrogène. Nous aurons alors un groupement terminal insaturé.



Chaîne de propagation A

Chaîne de propagation B



Polyméthacryle de méthyle possédant un groupement terminal insaturé.

## II.2.4 - LES PHENOMENES DE DEGRADATION

Le polyméthacrylate de méthyle peut être le siège de phénomènes de dégradation au niveau de maillons faibles ou à l'extrémité des chaînes. Le processus mis en jeu est certainement une réaction chimique entraînant le départ d'hydrogène. Cette dégradation peut être accélérée par les ultraviolets.

## II.3 - Le Produit final

Pour obtenir le produit final nous partons d'un sirop de polyméthacrylate de méthyle. C'est à ce stade que nous rajouterons un colorant afin d'obtenir un polyméthacrylate de méthyle coloré.

Ce sirop est injecté dans des cellules que nous chauffons à 60° soit dans de l'eau, soit dans un four afin d'obtenir après refroidissement les plaques de polyméthacrylate de méthyle.

Le produit final va contenir :

- Un certain nombre de groupements réactionnels terminaux,
- Des fragments d'amorceur,
- Des monomères résiduels,
- Des gaz dissous.

Le taux de ces différents éléments va influencer les performances du polyméthacrylate de méthyle en dosimétrie.



### **III - LES POLYMETHACRYLATE DE METHYLE (PMMA) DISPONIBLES SUR LE MARCHE**

Nous avons à notre disposition des PMMA clairs et colorés.

#### **III.1 - Le Polyméthacrylate de méthyle clair (incolore)**

Suivant son origine le PMMA porte une dénomination différente.

Sur le marché nous trouvons :

- Le perspex clair (37) (38) (39)
- Le plastiglass (39)
- Le métaplex.

##### **III.1.1 - LE PERSPEX CLAIR (37) (38) (39)**

Le perspex clair est le polyméthacrylate de méthyle le plus utilisé en dosimétrie. C'est Orton en 1966 qui proposa une formulation très précise du polyméthacrylate de méthyle commercialisé sous le nom de Perspex HX.

Le Perspex HX est fabriqué en Angleterre, exclusivement en vue de son utilisation en dosimétrie gamma. Il est livré avec une courbe de calibration obtenue sur un spectrophotomètre UNICAMS P Z 00 A RECORDING ou ZEISS PM Q II.

Ses caractéristiques propres sont les suivantes :

- Taux de précurseur (Péroxyde de benzoyle), égal à 0,15 %.
- Taux de monomère résiduel égal à 1,25 %.

Le perspex HX est disponible à :

UK Panel for electron and gamma radiation Finsbury square house  
3537 A Finsbury Square  
LONDON EC2  
UK

ou

UK Panel on Gamma and electron irradiation Gillette UK  
Lrd, 452 Basingstoke Road Reading Berk IK

### **III.1.2 - LE METAPLEX ET LE PLASTIGLASS**

#### **III.1.2.1 - Le plastiglass (40)**

Le plastiglass est fabriqué au Pakistan, son emploi est réservé à la dosimétrie gamma. Le fabricant précise :

- Sa plage d'utilisation (10 à 45 KGy)
- Sa température optimale d'utilisation (25°)

#### **III.1.2.2 - Le métaplex**

Le métaplex est fabriqué par la Société SI, ZYWIEC.

Il est disponible en deux épaisseurs 0,5 et 1 millimètre.

Sa plage d'utilisation est de 10 à 70 KGy.

### **III.2 - Le polyméthacrylate de méthyle coloré**

Divers colorants sont employés, le rouge, l'ambre, le jaune, le bleu ...

Nous pouvons donner une liste non limitative des divers polyméthacrylate de méthyle colorés disponibles.

- Le rouge perspex 4034 (37) ou rouge perspex 400 disponible à :  
AERE Harwell Didcot Berks UK  
dont la plage d'utilisation se situe entre 5 et 60 KGy
- L'amber perspex 3042  
dont la plage d'utilisation se situe entre 1 et 50 KGy
- Le polyméthacrylate de méthyle bleu
- Le plastiglass coloré (40) disponible en différentes couleurs et épaisseurs.
- Etc ...

# IV - INTERACTION DES RAYONS GAMMA AVEC LE POLYMETHACRYLATE DE METHYLE

La mesure de la dose absorbée de rayons gamma émis par les isotopes radioactifs et le principal intérêt de l'utilisation du polyméthacrylate de méthyle clair ou coloré. En effet, les photons gamma interagissent avec le polyméthacrylate de méthyle entraînant des modifications structurales de celui-ci, modifications qui permettent d'évaluer avec précision la dose absorbée.

## IV.1 - Rappel des interactions photon gamma-matiere

Les photons gamma qui vont traverser la matière ont une certaine énergie. Cette énergie peut être supérieure à l'énergie de liaison de l'électron avec son noyau, dans certains cas elle est supérieure aux forces internes du noyau, mais ce genre de réaction nucléaire est faible et sans importance.

En fonction de l'énergie apportée certains phénomènes vont prédominer par rapport à d'autres.

- Si l'énergie est supérieure à 1.02 Mev : nous assisterons au processus de production de paire, c'est à dire à l'émission d'une paire d'électrons : un électron positif (positron) et un électron négatif.

- Si l'énergie est inférieure à 60 Kev : nous serons en présence du phénomène photoélectrique, dans ce cas le photon incident perd toute son énergie dans le milieu traversé et disparaît.

- Si l'énergie est comprise entre 60 Kev et 25 Mev : le photon incident ne va perdre qu'une partie de son énergie nous assistons à l'effet Compton.

Tous ces phénomènes se déroulent très rapidement dans un temps de l'ordre de  $10^{-18}$  secondes. Les photons sont des sources internes de radiations électroniques. Si l'électron est éjecté de l'atome il va se produire une ionisation, si l'énergie apportée est juste suffisante pour permettre à l'électron de passer d'un niveau d'énergie initial à un niveau d'énergie plus élevé il va se produire une excitation.

Le bilan de l'interaction photon gamma-matière sera la production :

- d'ions positifs
- d'électrons libres
- d'atomes et de molécules excités.

Ces produits initiaux peuvent interagir entre eux, par exemple un ion positif interagit avec un électron libre pour donner naissance à une molécule excitée, si l'électron libre interagit avec une molécule neutre il peut se former un ion radical, l'électron peut aussi être "solubilisé" dans le milieu.

Le devenir des molécules excitées est variable :

- L'excès d'énergie disponible peut être à l'origine d'une énergie vibratoire dissipée par collision.
- L'excès d'énergie disponible peut être à l'origine de la dissociation d'une molécule, la molécule donnant naissance à deux radicaux libres, et la différence d'énergie entre l'énergie apportée et l'énergie nécessaire à la dissociation peut se dissiper sous forme d'énergie cinétique ou être utilisée pour exciter des radicaux libres.

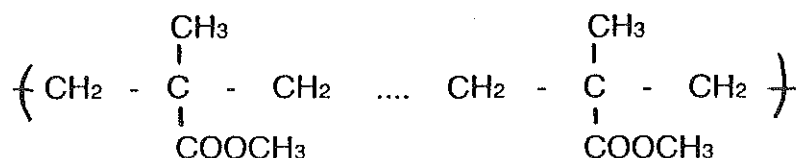
Le bilan final pourra donc être la production :

- d'ions positifs : cations
- d'ions négatifs : anions
- de radicaux libres.

## **IV.2 - Production de radicaux libres au sein du polyméthacrylate de méthyle au cours de son interaction avec une source de rayons gamma**

Le polyméthacrylate de méthyle possède deux groupements fonctionnels qui sont :

- le groupement méthyle
- le groupement ester



Polyméthacrylate de méthyle : PMMA

- CH<sub>3</sub> : groupement méthyle

-  $\overset{\text{O}}{\parallel}{\text{C}} - \text{O} - \text{CH}_3$  : groupement ester (ester acétique)

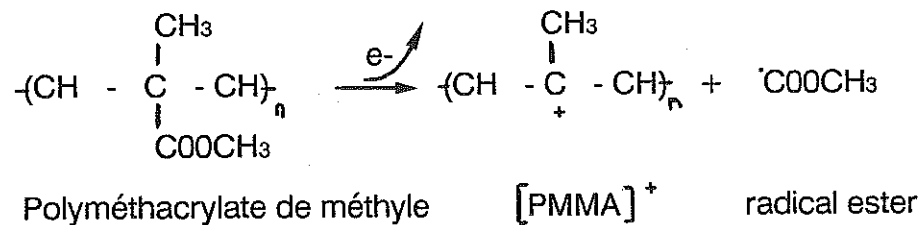
#### IV.2.1. - TRAVAUX DE DAVID ET FULD EN 1970 (41)

Pour connaître le niveau d'action des photons incidents David et Fuld (41) étudièrent les produits volatils naissant après irradiation. Par ordre d'importance ils notèrent la présence de :

- oxyde de carbone : CO
- gaz carbonique : CO<sub>2</sub>
- acide acétique : CH<sub>3</sub> - COOH
- méthane : CH<sub>4</sub>
- hydrogène : H<sub>2</sub>

La présence de tous ces composés chimiques prouvent que c'est le groupement ester et non le groupement méthyle qui est en cause.

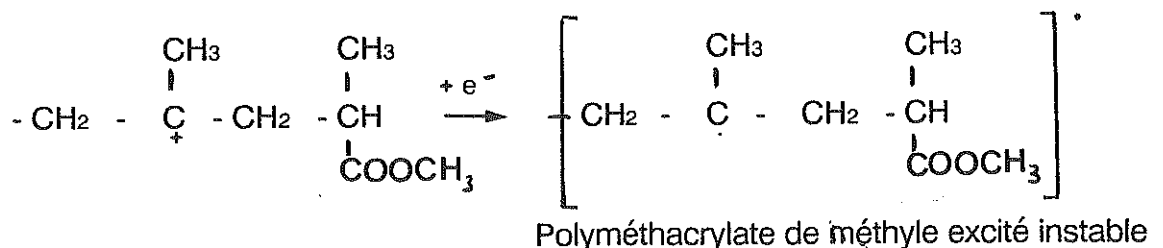
L'éjection d'un électron au sein du polyméthacrylate de méthyle, sous l'effet de l'irradiation, entraîne la libération d'un radical ester et la formation d'un cation que nous pouvons symboliser par [PMMA]<sup>+</sup> (polyméthacrylate de méthyle positif).

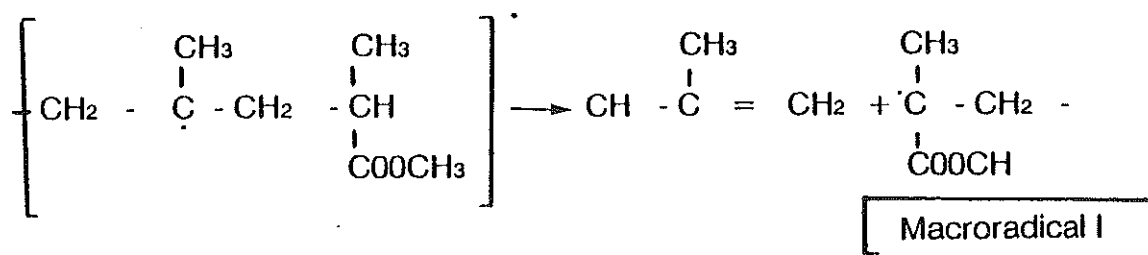


Le radical ester va ensuite se décomposer :



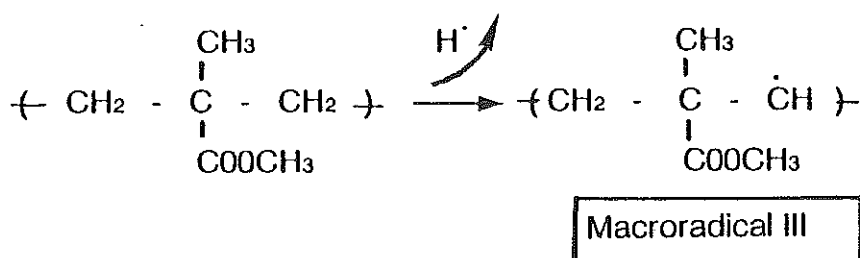
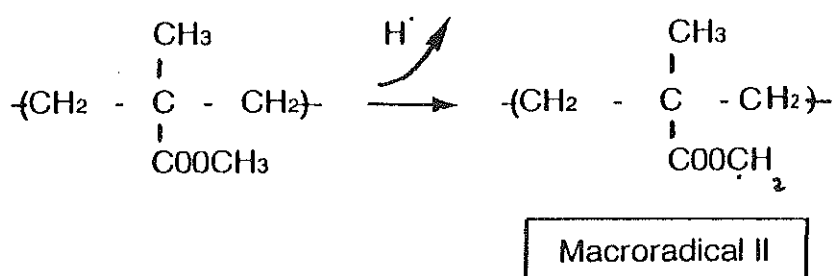
Le [PMMA]<sup>+</sup> va ensuite recapter un électron, il va donc se former une molécule excitée instable qui va se couper pour donner naissance à un radical libre noté radical libre (I).



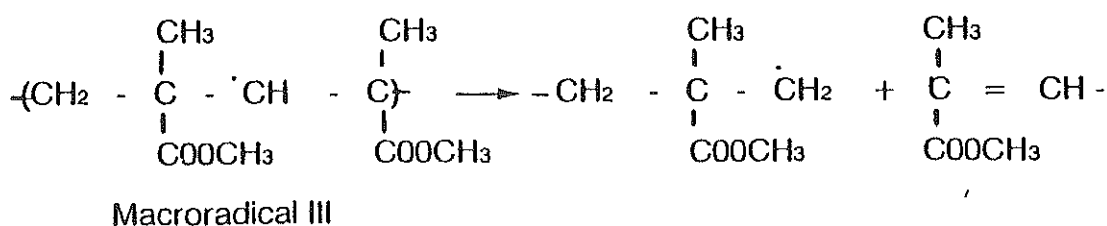
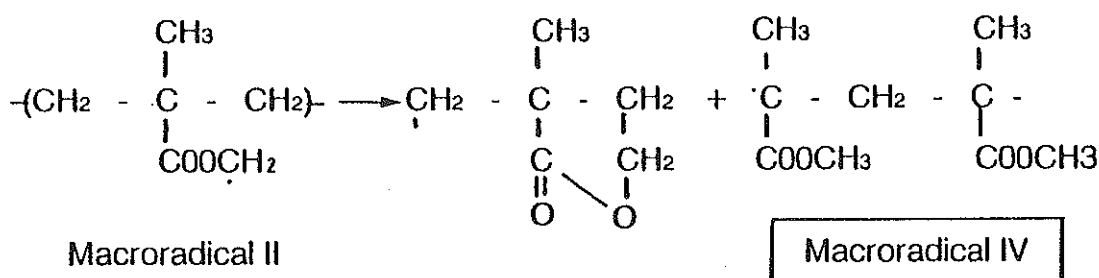


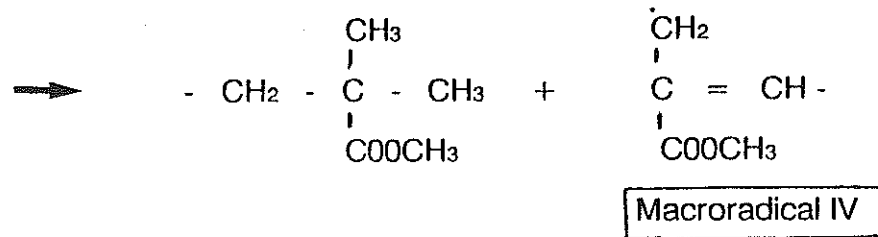
#### IV.2.2 - TRAVAUX DE DAVID ET DE BIE EN 1975 (42)

Des travaux plus récents de David et Bie en 1975 (42) ont permis l'identification de plusieurs macroradicaux provenant d'un départ d'hydrogène au niveau du polyméthacrylate de méthyle.



La présence des radicaux libres provoque une faiblesse dans la structure du polyméthacrylate de méthyle. Cette faiblesse est à l'origine de cassures donnant naissance à de nouveaux macroradicaux libres.





Le macroradical V est le macroradical allylique.

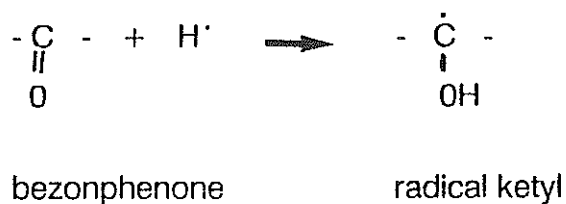
Les macroradicaux I et IV sont les radicaux de propagation.

### IV.2.3 - CAS DE L'INTERACTION DES PHOTONS GAMMA AVEC LE POLYMETHACRYLATE DE METHYLE COLORE

Les phénomènes qui se produisent au sein du polyméthacrylate de méthyle coloré sont similaires à ceux qui se produisent au sein du polyméthacrylate de méthyle incolore.

Nous savons qu'au cours de l'irradiation des atomes d'hydrogène sont libérés (42). Campbel et Looney (43) suggèrent que ces atomes d'hydrogène produits sont capturés par les molécules colorées dispersées dans la structure du polyméthacrylate de méthyle, pour donner naissance à des radicaux.

Whittaker (44) a développé cette théorie et a montré que dans le polyméthacrylate de méthyle contenant de la benzophénone le spectre d'absorption induit était similaire à celui du "Neutral Benzophénone Ketyl radical" obtenu chimiquement.



## **V - UTILISATION DU POLYMETHACRYLATE DE METHYLE INCOLORE EN DOSIMETRIE GAMMA**

Dans les paragraphes précédents nous avons vu que les rayons gamma qui traversent le polyméthacrylate de méthyle entraînent des changements dans sa structure. La question que nous pouvons nous poser est de savoir si ces modifications de structure peuvent être utilisées avec succès pour déterminer la dose de rayons gamma absorbée par la matière.

La propriété du polyméthacrylate que nous allons utiliser pour déterminer la dose absorbée est son changement de densité optique en fonction de la dose de rayons gamma absorbée.

### **V.1 - Spectre d'absorption du polyméthacrylate de méthyle incolore**

Les travaux de Boag en 1958 (32) ont mis en évidence la présence d'un pic d'absorption pour le polyméthacrylate de méthyle à 292 nanomètres. Ces travaux ont été repris en 1988 par Hasan (40).

#### **Travaux de Hasan :**

##### **Matériel**

- Le polyméthacrylate de méthyle qui sert aux mesures est le polyméthacrylate de méthyle incolore de 2 millimètres d'épaisseur.
- Les échantillons sont irradiés à l'aide d'une source au cobalt 60 à différents niveaux de dose.
- Le débit de dose de l'irradiateur est déterminé en employant le dosimètre de Fricke.
- Avant l'expérimentation les échantillons de polyméthacrylate de méthyle sont nettoyés à l'aide d'un détergent doux, puis sont rincés à l'eau courante.
- L'épaisseur des dosimètres est mesurée grâce à un micromètre.
- La mesure des différentes densités optiques est effectuée à l'aide du spectrophotomètre Shimadzo double faisceau UV 160. Les mesures sont faites pour des longueurs d'onde allant de 0 à 400 nanomètres, la dose est de 10 kilogray (KGy).



### Résultats (Fig. IV.1)

- Le tracé n° 1 représente la densité optique du polyméthacrylate de méthyle non irradié en fonction de la longueur d'onde.
- Le tracé n° 2 représente la densité optique du polyméthacrylate de méthyle irradié en fonction de la longueur d'onde.
- Le tracé n° 3 est obtenu par différence entre le tracé n° 1 et le tracé n° 2.

### Commentaire

Nous constatons que les tracés n° 1 et n° 2 ne se superposent pas, ce qui montre que l'irradiation entraîne une modification de la densité optique du polyméthacrylate de méthyle.

La différence des tracés n° 1 et n° 2 donne un troisième tracé présentant un pic d'absorption aux alentours de 292 nanomètres.

Les travaux de Hasan et de Boag conduisent à la même constatation.

## **V.2 - Choix de la meilleure longueur d'onde pour effectuer les mesures de densité optique**

### **V.2.1 - TRAVAUX DE BERRY ET MARSHALL EN 1969**

Berry et Marshall (45) ont constaté que le pic d'absorption à 292 nanomètres n'était en fait qu'un artefact dû à une coupure optique dans le polyméthacrylate de méthyle à cette longueur d'onde et aux lumières parasites dans le spectrophotomètre.

Il faut donc choisir une autre longueur d'onde à laquelle seront effectuées les mesures de densité optique.

Berry et Marshall proposent la longueur d'onde de 305 nanomètres, car à cette longueur nous n'avons pas les problèmes rencontrés à 292 nanomètres et, de plus, c'est la valeur de longueur d'onde utilisée pour le dosimètre de Fricke. Cette longueur d'onde a été acceptée internationalement comme étant la longueur d'onde à laquelle les mesures devaient être effectuées avec le polyméthacrylate de méthyle.

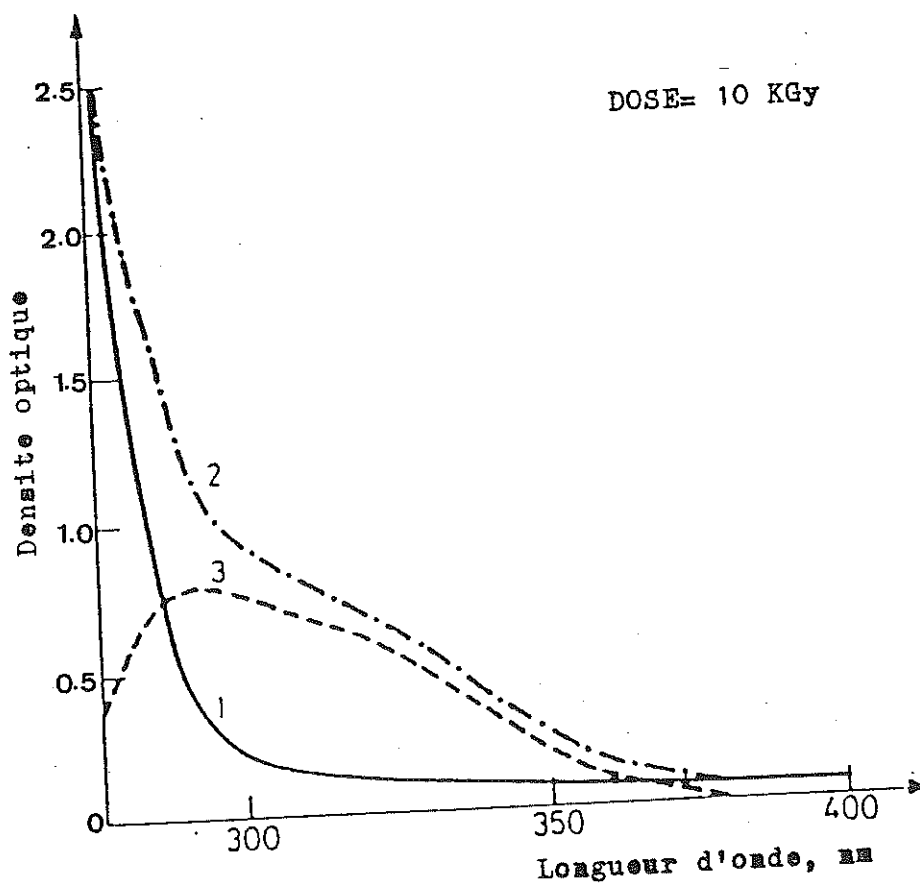


Figure V.1 - Spectre d'absorption du polyméthacrylate de méthyle non irradié (courbe 1) et irradié (courbe 2). La courbe 3 représente la différence entre les courbes 1 et 2

## V.2.2 - TRAVAUX DE CHADWICK

En 1969 Chadwick (46) proposa 314 nanomètres comme longueur d'onde à laquelle devaient être réalisées les mesures de densité optique. Ces études portaient sur un polyméthacrylate de méthyle fabriqué par "UK Panel for electron and gamma irradiation, Finsbury Square house London" et commercialisé sous le nom de Perspex.

En 1972 Chadwick (47) effectua des travaux complémentaires, travaux ayant pour but de donner des arguments en faveur de ce changement de longueur d'onde. Nous allons examiner de plus près ces travaux.

### Travaux de Chadwick (1972)

#### Matériel

- Polyméthacrylate de méthyle incolore fabriqué par "UK Panel" contenant 0,15 % de peroxyde de benzoyle, 1,25 % de monomère résiduel, présentant une coupure optique à 290 nanomètres. Les échantillons de polyméthacrylate de méthyle sont lavés avec de l'alcool dilué, rincés à l'eau puis séchés.

- La mesure des densités optiques est effectuée grâce au spectrophotomètre Zeiss PMQII et au spectrophotomètre Unicam SP 700

#### Résultats

Trois séries de tracés ont été réalisées :

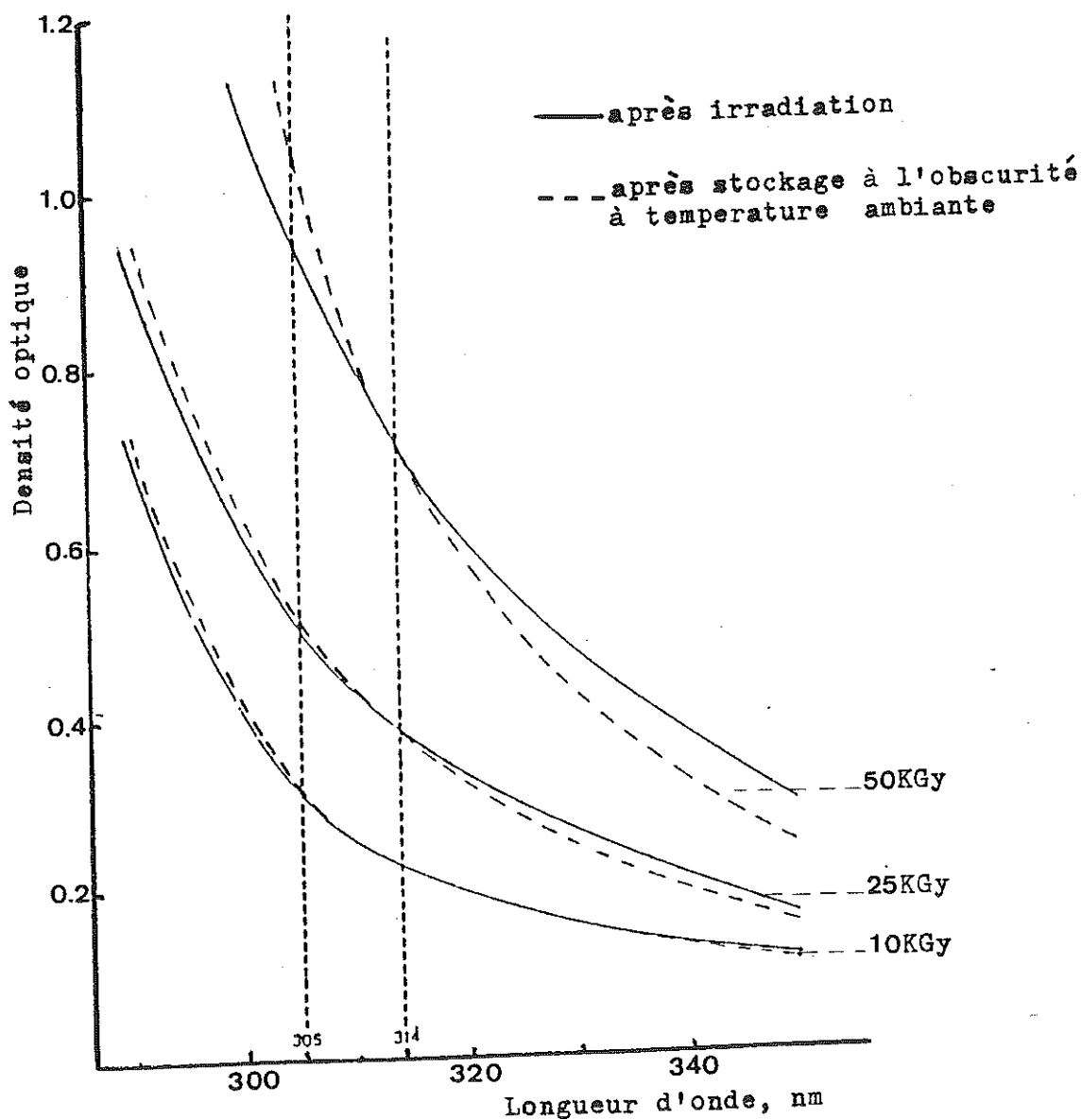
La figure V.2 représente le spectre d'absorption du Perspex deux heures après l'irradiation et après un stockage dans l'obscurité à température ambiante pour des doses de 10, 25 et 50 KGy.

La figure V.3 représente le spectre d'absorption du Perspex deux heures après l'irradiation et après un stockage de 5 heures dans l'obscurité à 55° pour des doses de 5, 10 et 25 KGy.

La figure V.4 représente le spectre d'absorption du Perspex deux heures après l'irradiation et après plusieurs périodes de stockage à 35° pour une dose de 16 KGy.

#### Commentaires

Les travaux de Chadwick font intervenir de nouveaux paramètres (stockage des dosimètres, température de stockage des dosimètres).



**Figure V.2 - Spectre d'absorption du polyméthacrylate de méthyle 2 heures après irradiation et après stockage dans l'obscurité à température ambiante pour des doses de 10,25 et 50 KGy**

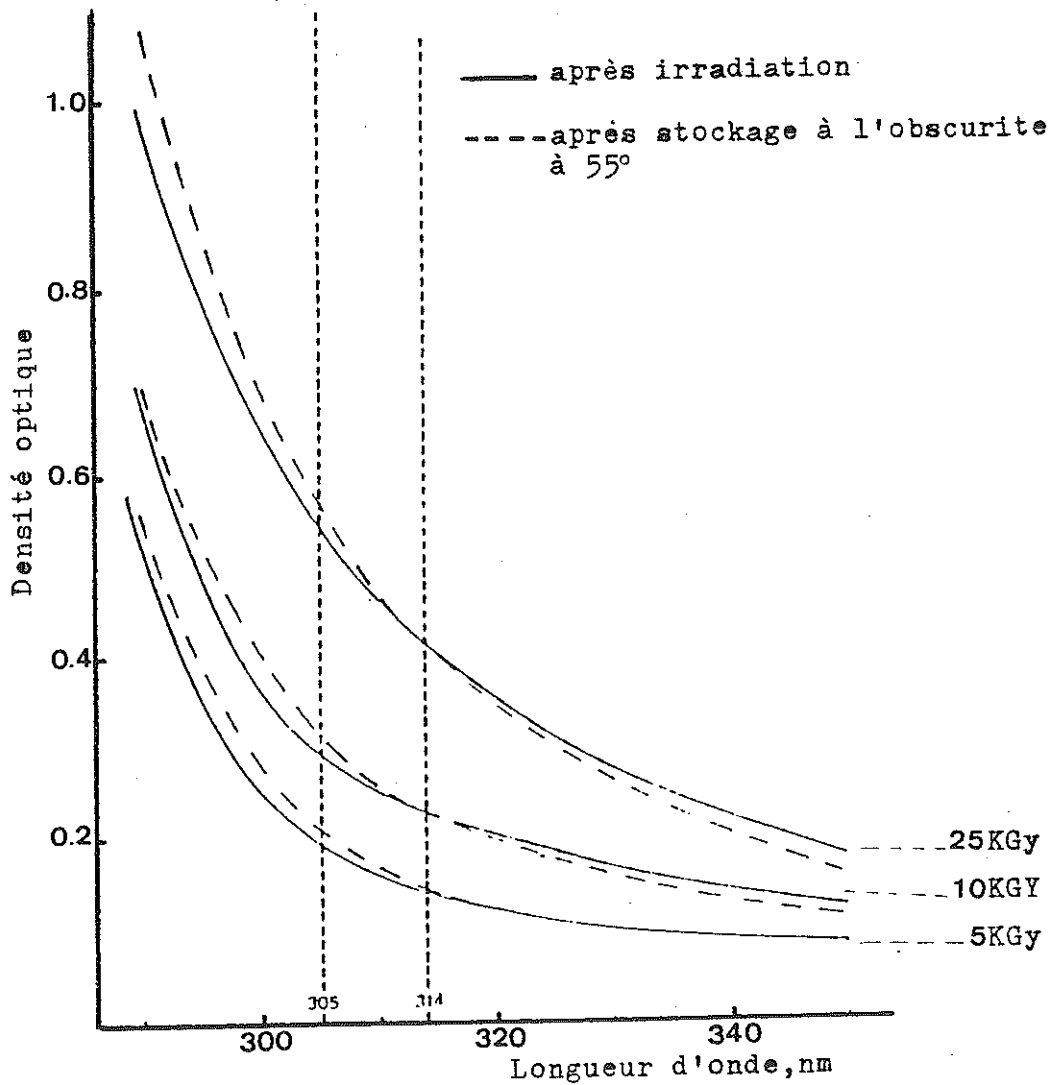
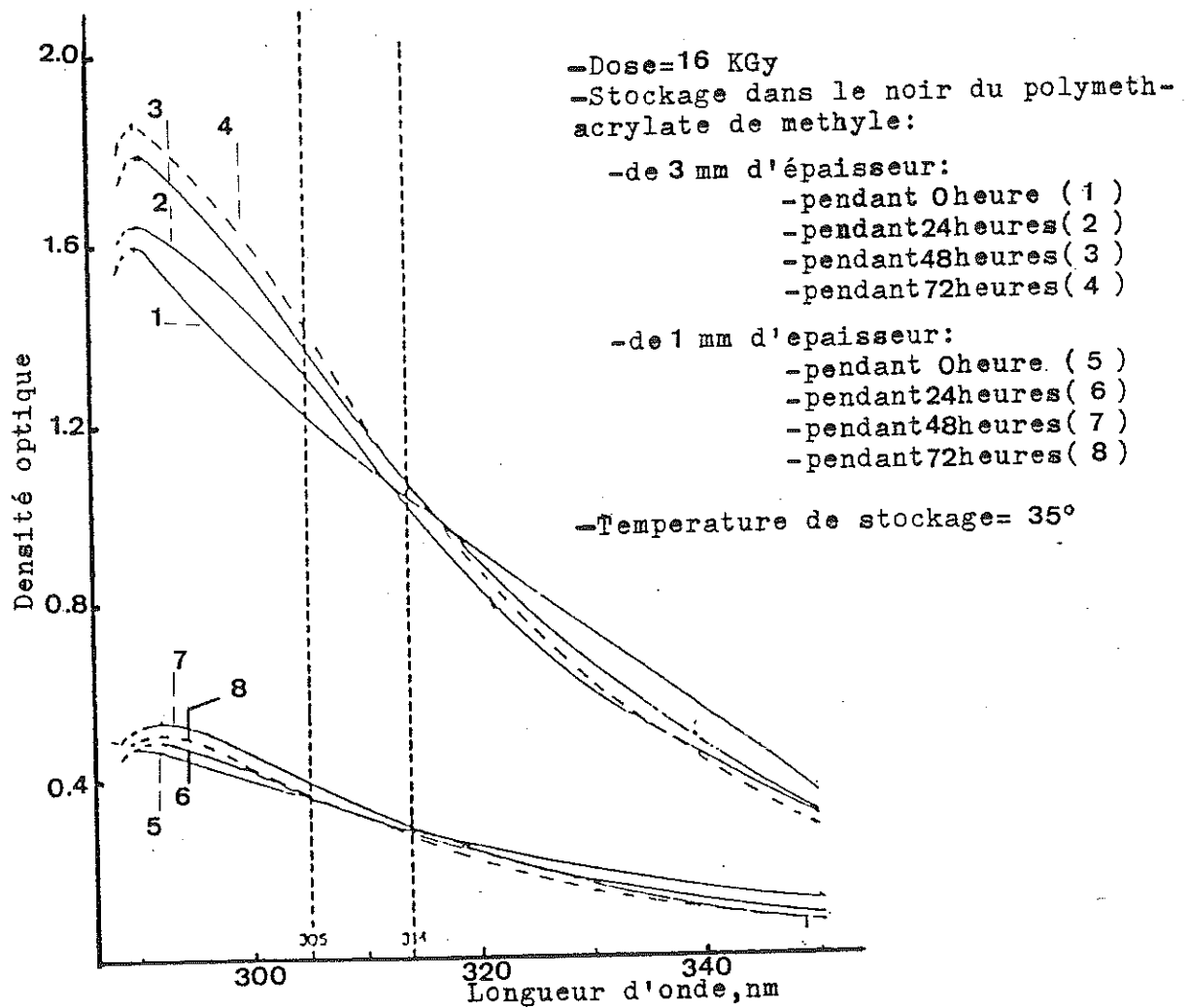


Figure V.3 - Spectre d'absorption du polyméthacrylate de méthyle 2 heures après irradiation et après stockage dans l'obscurité à 55 degrés pour des doses de 5,10 et 25 KGy



**Figure V.4 - Spectre d'absorption du polyméthacrylate de méthyle 2 heures après irradiation et après plusieurs périodes de stockage à 35° pour une dose de 16 KGy**

Après examen de la figure V.2 et de la figure V.3 la première constatation importante que nous pouvons faire est que pour des niveaux de dose différents nous obtenons des tracés différents. La réponse du polyméthacrylate de méthyle est influencée par le niveau de dose.

Les figures V.2, V.3 et V.4 indiquent que si la réponse est dépendante de la dose absorbée elle est aussi modifiée par la température et le temps de stockage du dosimètre. Pour un même niveau de dose, mais pour des conditions de stockage différentes, les tracés ne sont plus superposables, il y a un certain décalage. Si les mesures de densité optique sont effectuées à 305 nanomètres les résultats ne sont pas stables, comme les tracés se croisent aux alentours de 314, 316 nanomètres les risques d'erreurs seront donc diminués si les mesures de densité optique sont effectuées à ces valeurs de longueur d'onde.

### **V.3 - Courbe de calibration du polyméthacrylate de méthyle incolore**

Les paragraphes précédents nous ont permis de mettre en évidence le fait que le polyméthacrylate de méthyle irradié présentait un pic d'absorption à 292 nanomètres et qu'il valait mieux effectuer les mesures à 305 ou à 314 nanomètres.

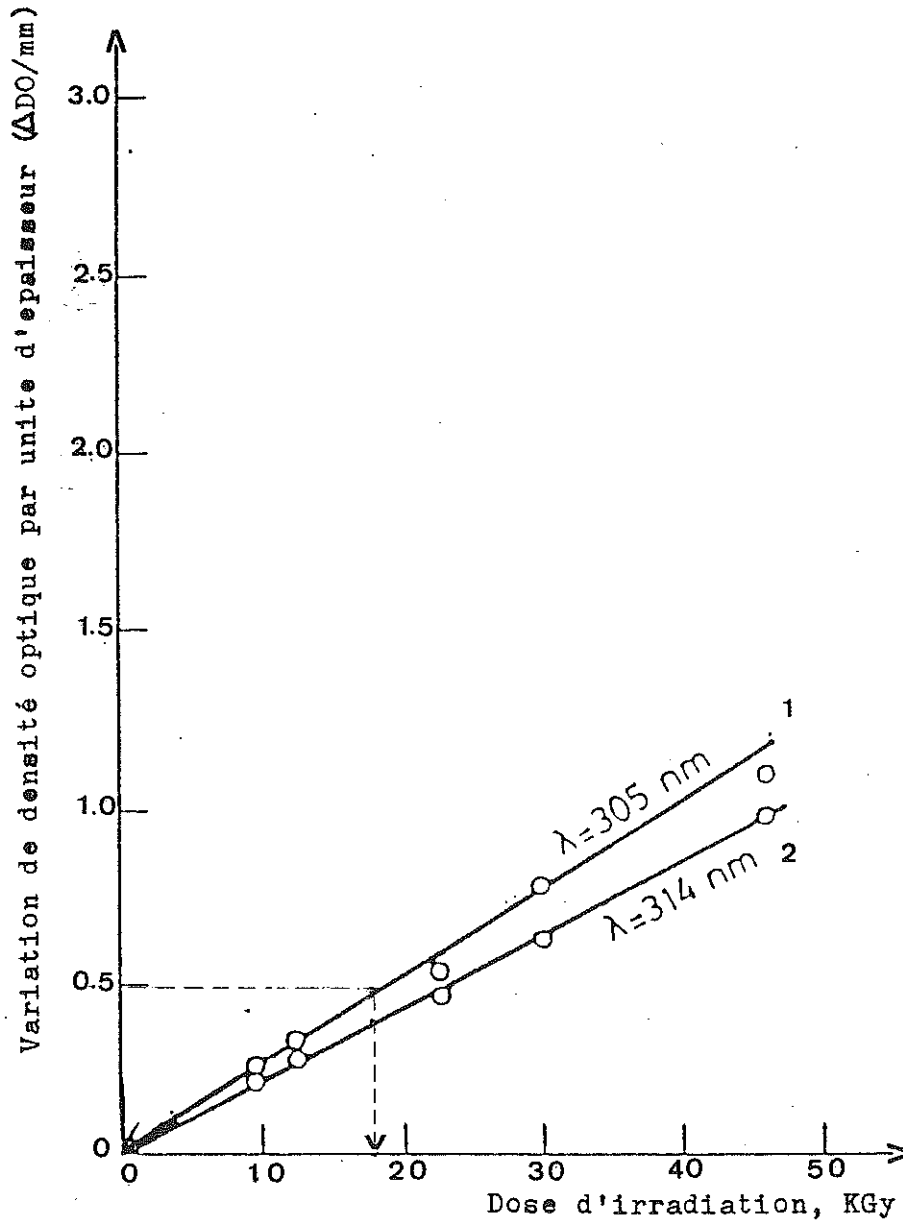
La question que nous pouvons nous poser est de savoir si la variation de densité optique ( $\Delta D_0$  :  $\Delta D_0 =$  densité optique du polyméthacrylate de méthyle irradié - densité optique du polyméthacrylate de méthyle non irradié) que l'on peut exprimer en fonction de l'épaisseur du dosimètre ( $\Delta D_0/\text{mm}$ ) est proportionnelle à la dose de rayons gamma absorbée.

Berry et Orton (39) ont tracé les courbes de variation de densité optique par unité d'épaisseur ( $\Delta D_0/\text{mm}$ ) à 305 et à 314 nanomètres pour des doses d'irradiation allant de 10 à 50 KGy. Les résultats obtenus sont reportés sur la figure V.5.

Après examen de la figure V.5 nous constatons que la variation de densité optique par unité d'épaisseur augmente linéairement en fonction de la dose d'irradiation. La courbe obtenue est la courbe de calibration du polyméthacrylate de méthyle.

L'intérêt de cette courbe de calibration est majeur, elle permet à partir d'une valeur de variation de densité optique par unité d'épaisseur mesurée au spectrophotomètre de connaître la dose absorbée par le dosimètre.

Exemple : Si la variation de densité optique par unité d'épaisseur est égale à 0,5 à 305 nm, la dose absorbée est égale à 17,5 KGy.



**Figure V.5 - Courbes de réponse du polyméthacrylate de méthyle en fonction de la dose d'irradiation à 305 nm (courbe 1) et à 314 nm (courbe 2). Courbe de calibration**



## **V.4 - Les paramètres influençant la réponse du dosimètre**

Nous allons étudier deux paramètres pouvant influencer la réponse du polyméthacrylate de méthyle.

Premier paramètre : Temps de stockage du dosimètre

Deuxième paramètre : Température de stockage du dosimètre.

### **V.4.1 - TEMPS DE STOCKAGE**

Hasan (40) en 1988 a étudié les effets du temps de stockage après irradiation sur la réponse du polyméthacrylate de méthyle.

#### **Travaux de Hasan**

##### Matériel et méthode

- Polyméthacrylate de méthyle incolore
- Spectrophotomètre Shimadzu double faisceau UV. 160 et UV 260
- Température de stockage de 25° C
- Temps de stockage allant de 0 à 15 jours après l'irradiation
- Mesure de la densité optique à 305 et à 314 nanomètres pour des doses de 9, 4, 22·5 et 46·0 KGy.
- Les variations de densité optique sont exprimées par unité d'épaisseur (  $\Delta D_0/\text{mm}$ ).

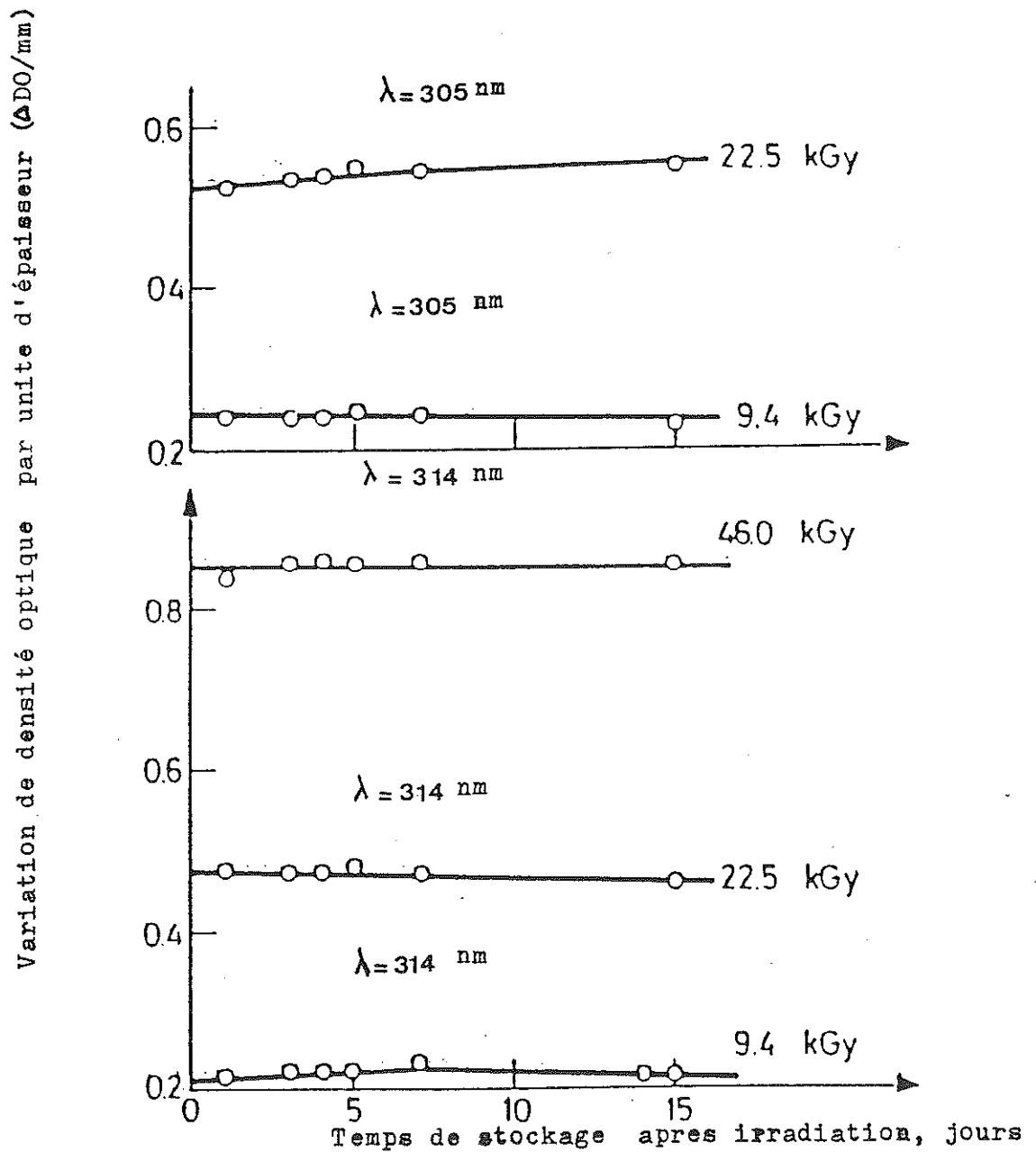
##### Résultat

La figure V.6 représente la variation de densité optique par unité d'épaisseur à 305 et à 314 nanomètres en fonction du temps de stockage.

##### Commentaire

Après examen des tracés nous pouvons dire que les résultats sont peu affectés par la durée du stockage à 25° C.

Si les dosimètres sont conservés à 25° C leur stabilité est bonne.



**Figure V.6 - Effets du temps de stockage après irradiation sur la réponse du polyméthacrylate de méthyle soumis à des doses d'irradiation de 9.4, 22.5 et 46.0 KGy**

## V.4.2 - TEMPERATURE DE STOCKAGE

Au cours de ces travaux Hasan (40) a aussi étudié le comportement du dosimètre pour différentes températures de stockage.

### Travaux de Hasan

#### Matériel et méthode

- Même matériel que pour les travaux précédents.
- Mesure de la variation de densité optique par unité d'épaisseur pour quatre séries de température de stockage différentes :

$$\begin{aligned} T_1 &= - 10^\circ \text{ C} \\ T_2 &= 35^\circ \text{ C} \\ T_3 &= 46^\circ \text{ C} \\ T_4 &= 55^\circ \text{ C} \end{aligned}$$

- La durée de stockage est de 9 jours
- La dose est de 25 KGy

#### Résultats

La figure V.7 représente les variations de densité optique par unité d'épaisseur mesurées à 305 et à 314 nanomètres en fonction du temps de stockage à différentes températures.

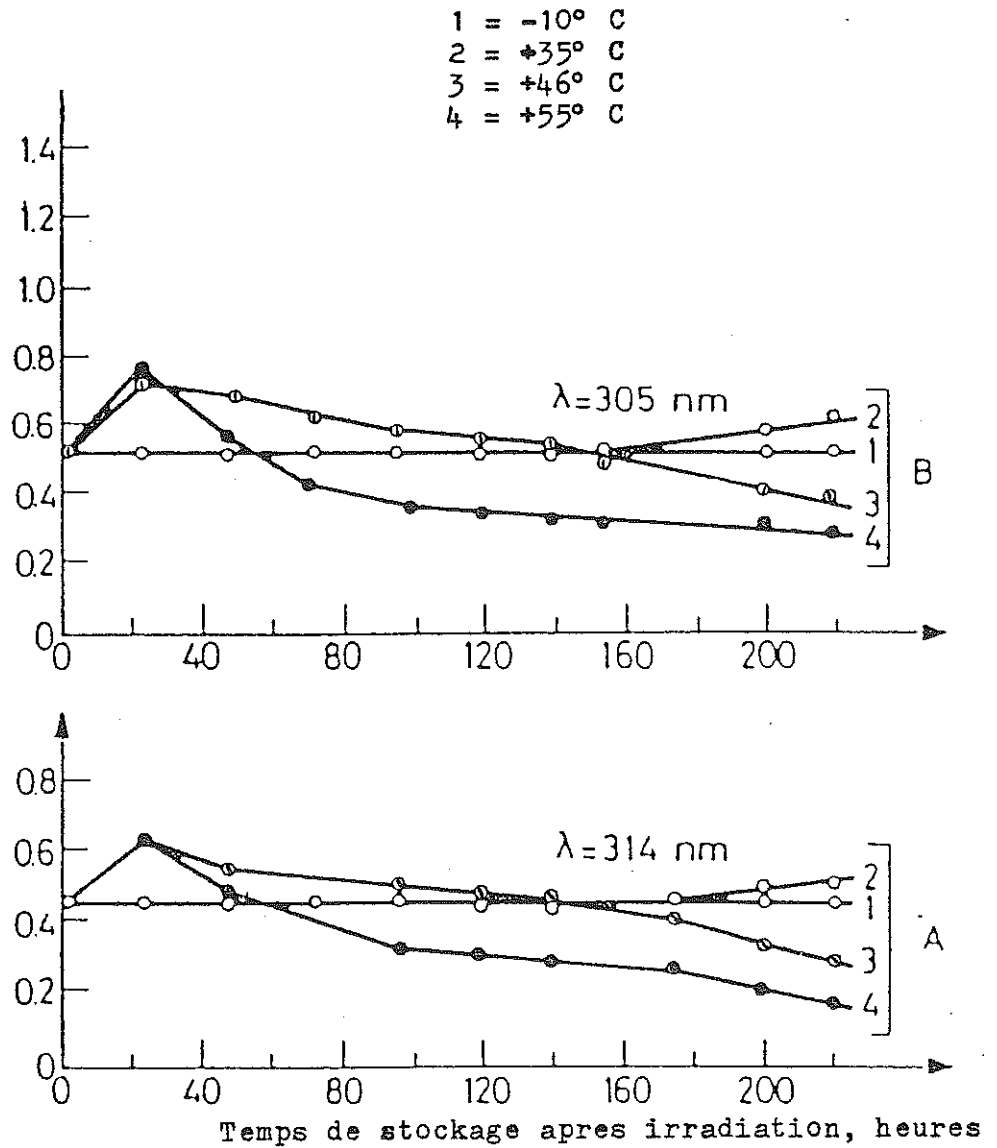
#### Commentaire

Pour des températures de stockage de  $- 10^\circ \text{ C}$  et de  $+ 35^\circ \text{ C}$  les résultats sont stables.

Pour des températures de stockage de  $+ 46^\circ \text{ C}$  et de  $+ 55^\circ \text{ C}$  les résultats ne sont pas stables, la variation de densité optique par unité d'épaisseur augmente au cours des 20 premières heures puis ensuite décroît légèrement aussi bien à 305 qu'à 314 nanomètres.

La température de stockage du dosimètre après irradiation est donc un paramètre dont il faut tenir compte, il faudra éviter de stocker ceux-ci à des températures supérieures à  $35^\circ \text{ C}$ .

Variation de densité optique par unite d'epaisseur ( $\Delta DO/mm$ )



**Figure V.7 - Effets de la température de stockage après irradiation sur la réponse du polyméthacrylate de méthyle soumis à une dose d'irradiation de 25 KGy**

## **VI - UTILISATION DU POLYMETHACRYLATE DE METHYLE COLORE EN DOSIMETRIE**

Les résines acryliques colorées sont, depuis une trentaine d'années, souvent utilisées en dosimétrie.

Sont à notre disposition :

- Le polyméthacrylate de méthyle bleu
- Le polyméthacrylate de méthyle ambre
- Le polyméthacrylate de méthyle rouge.

Au cours de notre étude nous allons nous intéresser plus particulièrement au polyméthacrylate de méthyle rouge qui est fabriqué exclusivement en vue de son utilisation en dosimétrie et qui est commercialisé sous la dénomination de Rouge Perspex 400.

Ce produit a été employé pour la première fois en 1960 (48) au cours du procédé d'irradiation des plantes.

### **VI.1 - Interaction des rayons gamma avec le polyméthacrylate de méthyle coloré : Les effets visibles à l'oeil nu**

Le polyméthacrylate de méthyle rouge soumis aux rayons gamma va s'assombrir.

Le polyméthacrylate de méthyle bleu va en fonction de la dose devenir d'abord bleu pâle, puis vert et enfin jaune (il est à noter que le Polyméthacrylate de méthyle incolore devient jaune).

L'origine de ces changements de couleur est lié à une modification structurelle du polymère marqué par la production de radicaux libres et la libération d'hydrogène piégé par les centres colorés.

Quand de très fortes doses d'irradiation sont mise en jeu le polymère coloré se décolore et il ne va subsister alors que la couleur jaune (49).

## **VI.2 - Spectre d'absorption du rouge perspex 400**

Nous allons nous intéresser aux travaux de Whittaker (50)

### Matériel et méthode

- Rouge perspex 400 fabriqué par "Impérial Chemical Industry CTD England" d'une épaisseur de 3 mm et recouvert d'un papier protecteur pour éviter les rayures. Le dosimètre est nettoyé à l'aide d'un détergent doux puis rincé à l'eau et séché à l'air libre.

- Les dosimètres sont soumis à des doses de :

- 10 KGy

- 20 KGy

- 30 KGy

- Les mesures de densité optique sont effectuées grâce à un spectrophotomètre UV visible classique, juste après l'irradiation et quatre jours après l'irradiation.  
On détermine  $D^* = D_i - D_0$

### Résultats

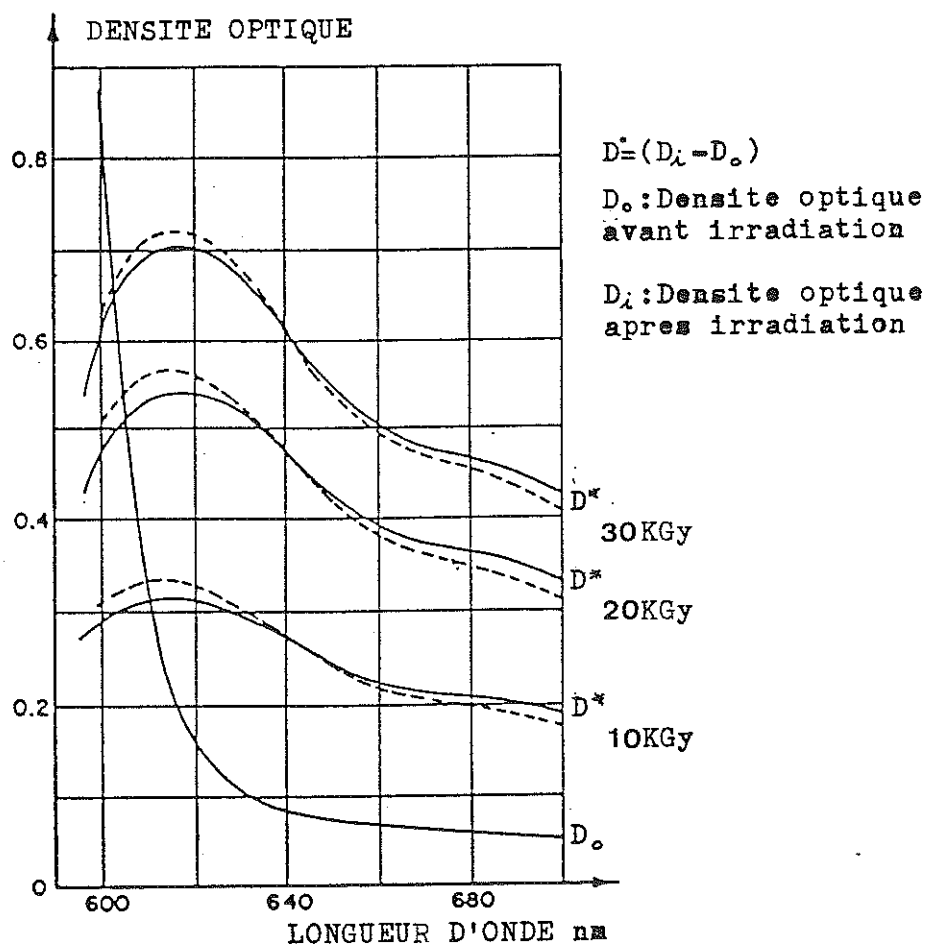
- Pour chaque niveau de dose nous mesurons la densité optique en fonction de la longueur d'onde. Les résultats sont reportés sur la figure VI.1

- Pour chaque niveau de dose 10, 20 et 30 KGy nous avons un tracé différent, nous pouvons en conclure que le spectre d'absorption du rouge perspex 400 est influencé par la dose absorbée.

- Le tracé est modifié par le temps qui s'écoule entre le moment de l'irradiation et le moment de la lecture. En effet, les tracés correspondants aux mesures effectuées juste après l'irradiation et ceux effectués quatre jours après l'irradiation ne sont pas superposables.

- Dans tous les cas nous avons un pic d'absorption aux alentours de 615 nm.

Des travaux complémentaires de Whittaker (50) vont nous inciter à effectuer des mesures à 640 nm.



(—juste apres irradiation,--- 4 jours apres irradiation.)

**Figure VI.1 - Spectre d'absorption du Rouge Perspex 400  
à 10, 20 et 30 KGy**

## Travaux complémentaires de Whittaker sur l'effet du temps qui s'écoule entre l'irradiation et la lecture

### Matériel et méthode

- Rouge Perspex 400 comme pour les premiers travaux de Whittaker.
- Mesure des variations du coefficient d'absorption induit pour des doses de 10, 20 et 30 KGy sur une période de 25 jours.
- Mesures effectuées sur un spectrophotomètre classique à 615 et 640 nm.

Avant d'aller plus loin nous devons définir le coefficient d'absorption induit.

Le coefficient d'absorption induit noté  $K^*$  se définit comme suit :

$$\boxed{K^* = K_i - K_o} \left\{ \begin{array}{l} K : \text{coefficient d'absorption (cm}^{-1}\text{)} \\ K^* : \text{coefficient d'absorption induit} \\ K_i : \text{coefficient d'absorption après irradiation} \\ K_o : \text{coefficient d'absorption avant irradiation} \end{array} \right.$$

or  $D = Kt$  (loi Beer Lambert)

$$\left\{ \begin{array}{l} D = \text{densité optique} \\ t = \text{épaisseur du dosimètre en cm} \end{array} \right.$$

$$K^* = \frac{D_i}{t_i} - \frac{D_o}{t_o} \quad \text{avec } t_i \simeq t_o$$

$$\rightarrow \boxed{K^* = \frac{D_i - D_o}{t_i} = \frac{D^*}{t_i}}$$

La densité optique induite  $D^*$  peut être mesurée directement en faisant la différence entre la DO du dosimètre irradié et la DO d'un dosimètre non irradié de référence.



$K^*$  est une grandeur indépendante de l'épaisseur du dosimètre.

### Résultats

Les résultats sont répertoriés sur la figure VI.2 où l'on note le pourcentage de croissance du  $K^*$  en fonction du temps à 615 et à 640 nm.

Si nous examinons les tracés obtenus nous pouvons dire que la variation est moins importante à 640 nm qu'à 615 nm.

Pour une dose de 10 KGy la variation est de l'ordre de 4 % à 640 nm sur une période de 25 jours, tandis que pour la même dose et la même durée la variation est de l'ordre de 13 % à 615 nm.

En conclusion il vaut mieux effectuer les mesures à 640 nm.

## **VI.3 - Courbe de calibration du Rouge Perspex 400**

Pour établir la courbe de calibration nous allons évaluer le coefficient d'absorption induit  $K^*$  pour un jeu de dosimètre Rouge Perspex 400 soumis à des doses de 0 à 50 KGy.

Les mesures sont effectuées au spectrophotomètre à 625 et à 640 nm (50).

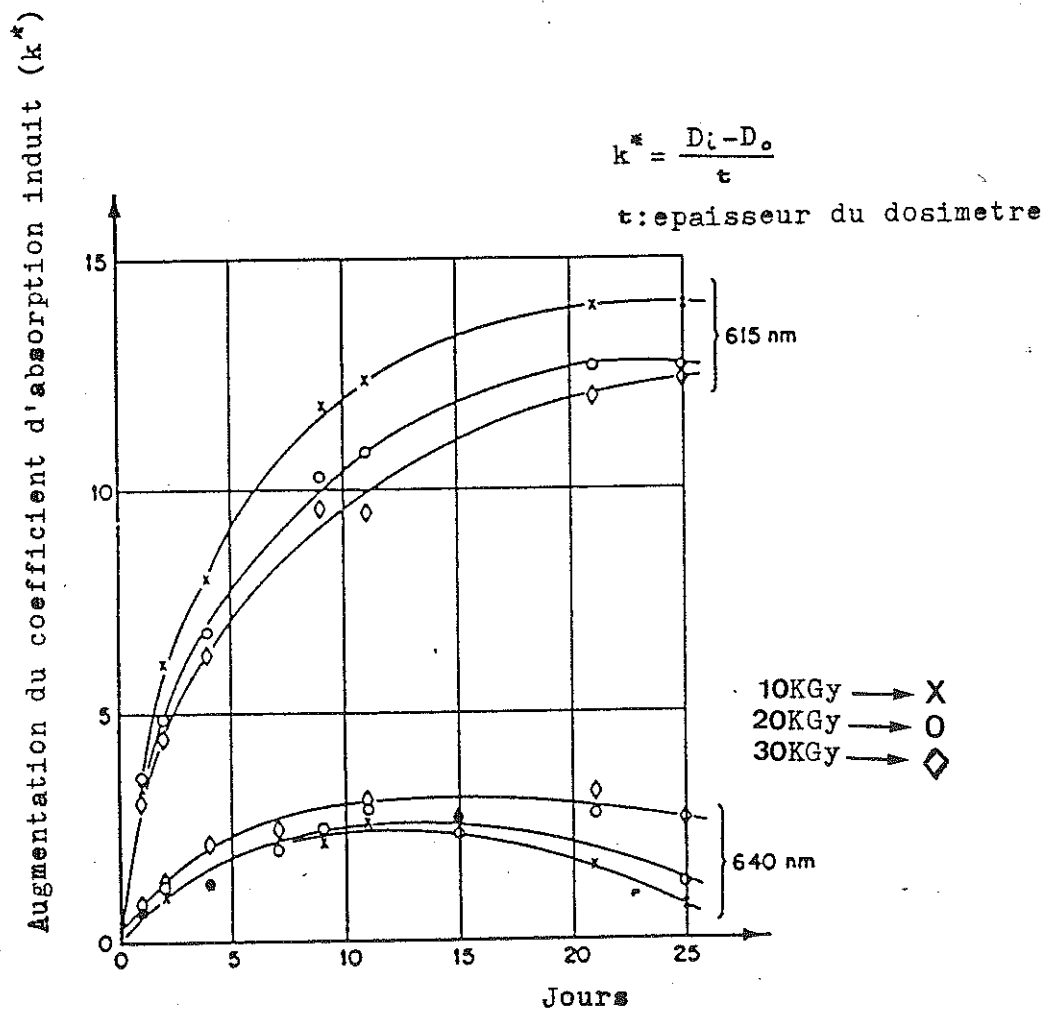
Les résultats obtenus sont reportés sur la figure VI.3.

Nous constatons que la valeur de  $K^*$  est proportionnelle à la dose absorbée à 615 et à 640 nm. A partir de ce tracé de calibration, pour une dose inconnue connaissant la valeur de  $K^*$ , nous pourrions déterminer la dose de rayons gamma absorbée.

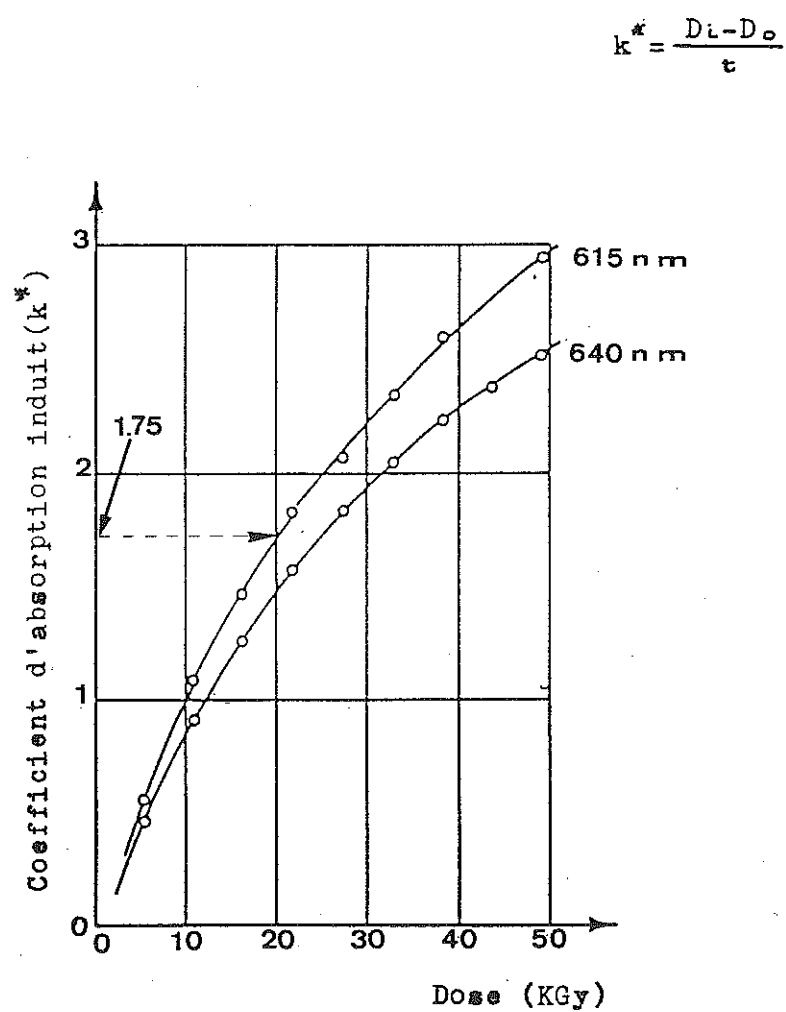
Exemple :

Si  $K^* = 1,75$  la dose absorbée est de 20 KGy.

Donc dans tous les cas l'utilisateur du dosimètre devra avoir une courbe de calibration à sa disposition, dans certains cas celle-ci est fournie par le fabricant du rouge Perspex 400 et sert de référence pour toutes les mesures. D'autre fois l'utilisateur préfère réaliser lui-même la courbe de calibration comme le préconise Boeykens (1985) (51). A chaque commande un jeu de détecteur



**Figure VI.2 - Effet du temps de stockage après irradiation sur le coefficient d'absorption induit ( $K^*$ ) du polyméthacrylate de méthyle rouge soumis à des doses d'irradiation de 10, 20 et 30 KGy, à 615 et à 660 nm**



**Figure VI.3 - Courbes de réponse du polyméthacrylate de méthyle rouge en fonction de la dose d'irradiation à 615 et à 640 nm (courbe de calibration)**

de référence est également commandé; ceux-ci ont été irradiés par des doses allant de 5 à 50 KGy par intervalle de 5 KGy; le manipulateur peut alors effectuer les mesures sur son propre matériel spectrophotométrique ce qui assure une plus grande exactitude des résultats.

## **VI.4 - Facteur influençant la réponse et la stabilité du Rouge Perspex 400**

Dans un premier temps, au cours de ses premières utilisations, on pensait que le Rouge Perspex 400 était relativement insensible aux facteurs autres que la dose absorbée (48). En effet, la qualité d'une méthode, utilisée dans la pratique courante, est liée au fait qu'aucun autres facteurs hormis la dose n'interfèrent.

Des travaux récents (52) de Whittaker en 1985 ont porté sur plusieurs facteurs influençant la réponse des dosimètres Rouge Perspex 400.

Dans le but de produire un outil de meilleure qualité on a tout fait pour améliorer les méthodes de fabrication et les contrôles de qualité du produit fini. Les différents facteurs connus comme ayant une influence sur la réponse des dosimètres Rouge Perspex 400 sont :

- Le numéro du lot de fabrication,
- La concentration en eau du dosimètre,
- Le débit de dose de l'irradiateur,
- La température pendant l'irradiation,
- Le temps qui s'écoule avant la lecture.

Nous allons successivement étudier ces différents facteurs.

### **VI.4.1 - LE NUMERO DU LOT DE FABRICATION**

Les feuilles de polyméthacrylate de méthyle sont produites à partir d'un lot de base. La formulation du colorant est exactement reproductible d'un bain à l'autre. Mais ce qui peut varier d'un bain à l'autre est, pour des raisons techniques, la concentration en colorant de chaque bain.

Ces dernières années des progrès ont été réalisés, la composition des bains est plus constante.

La précision des mesures est augmentée par la réalisation d'une courbe de calibration pour chaque lot de dosimètres.

#### **VI.4.2 - CONCENTRATION EN EAU DU DOSIMETRE**

Le Rouge Perspex 400 est légèrement hygroscopique, exposé dans un milieu humide il va absorber de l'eau. Le Rouge Perspex 400 peut absorber 2 % de son poids en eau. La teneur en eau du dosimètre peut être un facteur influençant la réponse spectrophométrique, donc influençant les valeurs de dose absorbées données par le Rouge Perspex 400.

Les dosimètres Rouge Perspex 400 sont commercialisés avec un taux de concentration en eau de 1 %, de plus pour éviter qu'ils absorbent de l'eau avant d'être utilisés ils sont conditionnés en sachets individuels hermétiques.

Au début de leur utilisation, la teneur en eau des dosimètres posait un gros problème car on était incapable d'évaluer leur teneur en eau. Ce n'est qu'en 1977 qu'un système de mesure fiable a été disponible et ceci grâce aux travaux de Jones (53).

Une série d'expériences a eu pour objet de définir la relation existant entre l'absorbance à 640 nm des dosimètres Rouge Perspex 400 et leur teneur en eau (52) - Travaux de Whittaker.

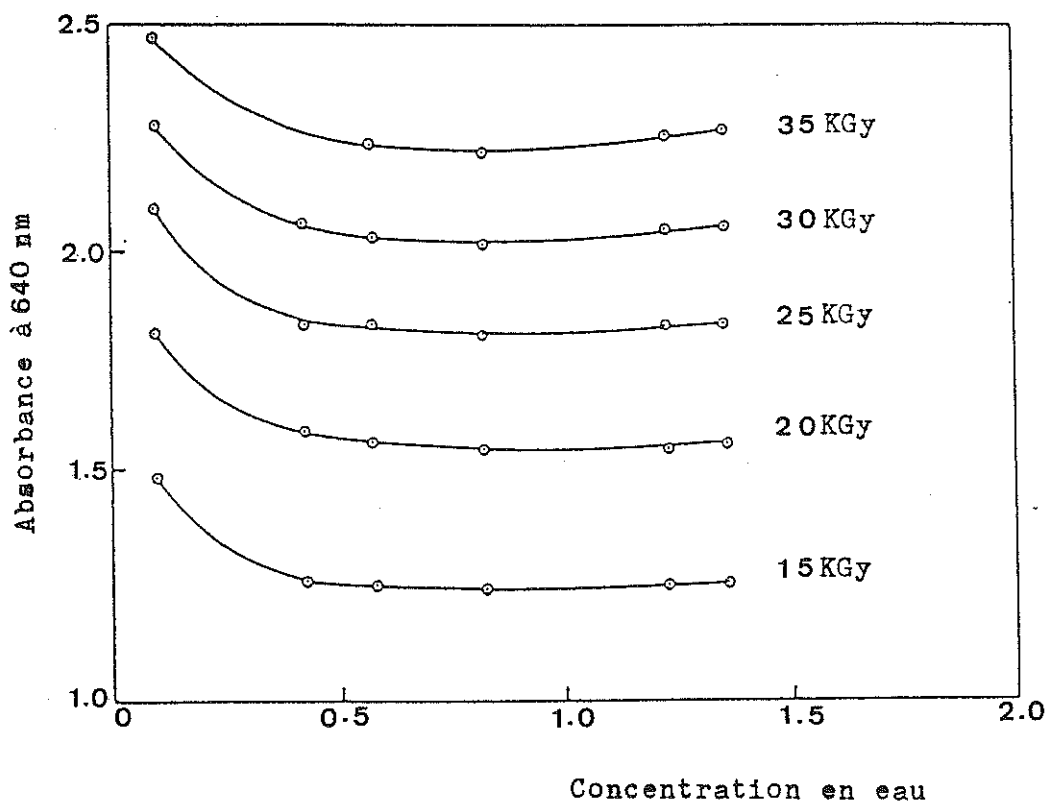
#### **Travaux de Whittaker (52)**

##### Matériel et méthode

- Rouge Perspex 400 avec des teneurs en eau allant de 0,1 à 1,4 %.
- Niveaux de dose allant de 15 KGy à 35 KGy par paliers de 5 KGy.
- Mesure de l'absorbance à 640 nm.

##### Résultats

Nous allons tracer les courbes de l'absorbance à 640 nm en fonction du contenu en eau pour des doses de 15, 20, 25, 30, 35 KGy (figure VI.4).



**Figure VI.4 - Absorbance du polyméthacrylate de méthyle rouge à 640 nm en fonction de son contenu en eau pour des doses d'irradiation allant de 15 à 35 KGy**

On constate que quelque soit la dose, l'absorbance à 640 nm diminue rapidement avec l'augmentation de la concentration en eau pour des concentrations allant de 0,1 à 0,4 %. Entre 0,4 et 0,6 % la diminution est plus lente (de l'ordre de 2 %).

Pour des teneurs en eau allant de 0,6 à 1,0 % les valeurs d'absorbance mesurées sont indépendantes de la concentration en eau.

Pour des teneurs en eau supérieures à 1 % nous avons une légère augmentation de l'absorbance.

Des travaux complémentaires utilisant les mêmes dosimètres se sont intéressés à l'effet conjugué du temps et de la teneur en eau.

#### Matériel et méthode

- Même matériel que lors de l'expérience précédente.
- Mesure du pourcentage de variation de l'absorbance pour une dose de 25 K Gy, pour des teneurs en eau allant de 0,1 à 1,4 % sur une période de 15 jours.
- Mesures à 640 nm.

#### Résultats

Se référer à la figure VI.5

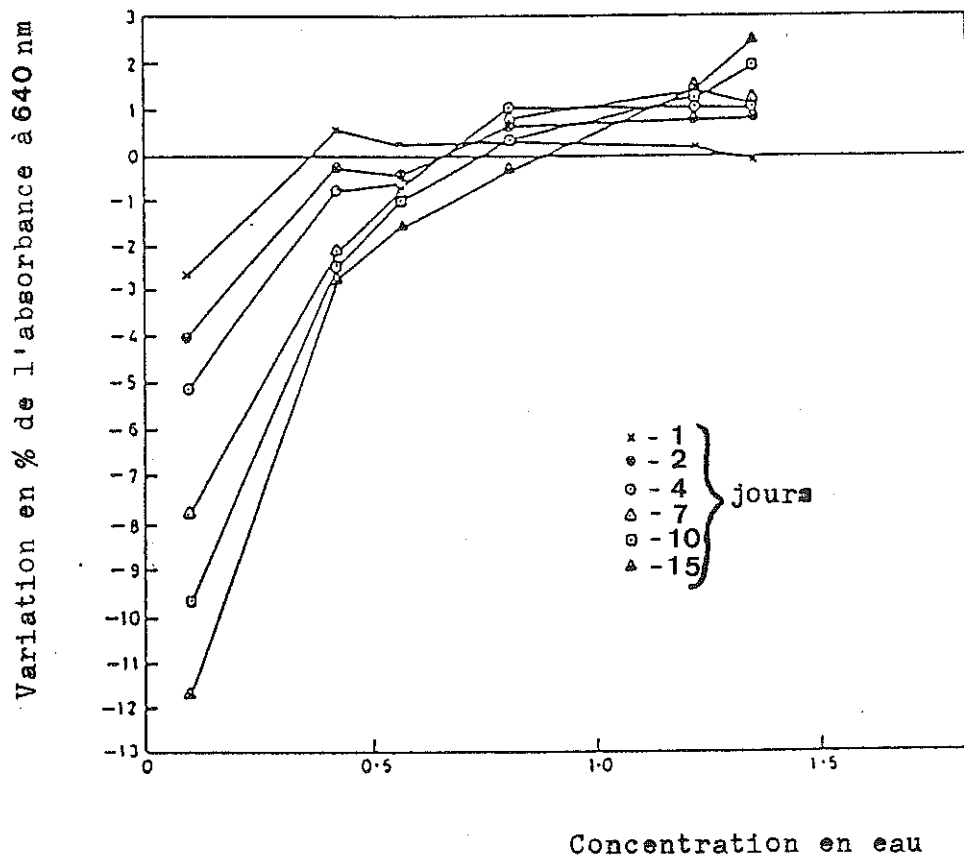
Nous constatons que pour des teneurs en eau allant de 0,7 à 1,0 % les changements après irradiation liés au temps sont au minimum de l'ordre de 2 %.

En conclusion de cette série de travaux il semble qu'une teneur en eau allant de 0,7 à 1,0 % donne des dosimètres avec des comportements stables.

Il est à noter que l'absorption de l'eau par le Rouge Perspex 400 est réversible. Selon les conditions de température et d'humidité il peut absorber ou perdre de l'eau. Pour éviter toutes variations il faudra donc conserver les dosimètres dans des sachets hermétiques.

### **VI.4.3 - LE DEBIT DE DOSE DE L'IRRADIATEUR**

Des travaux de Chu et Antoniadès, en 1975, (54) révélèrent une relation entre le comportement des dosimètres et le débit de dose de l'irradiateur.



**Figure VI.5 - Effet conjugué du temps et de la teneur en eau sur la réponse du polyméthacrylate de méthyle**



Des travaux plus récents de Whittaker (52) ont eu pour but d'étudier le comportement des dosimètres Rouge Perspex 400 soumis à des débits de dose allant de 0,14 à 3,25 Gy par seconde. Les expérimentateurs ont voulu évaluer la relation réponse dosimètre/débit de dose.

Les effets examinés sont très faibles, pour qu'il ne soient pas masqués par d'autres phénomènes on a effectué les mesures à différentes longueurs d'ondes, et sur une période de 20 à 25 jours après l'irradiation.

### Matériel et méthode

- Dosimètre Rouge Perspex 400
- Débits de dose
  - 0,142 Gy/s
  - 0,525 Gy/s
  - 0,662 Gy/s
  - 1,547 Gy/s
  - 3,252 Gy/s

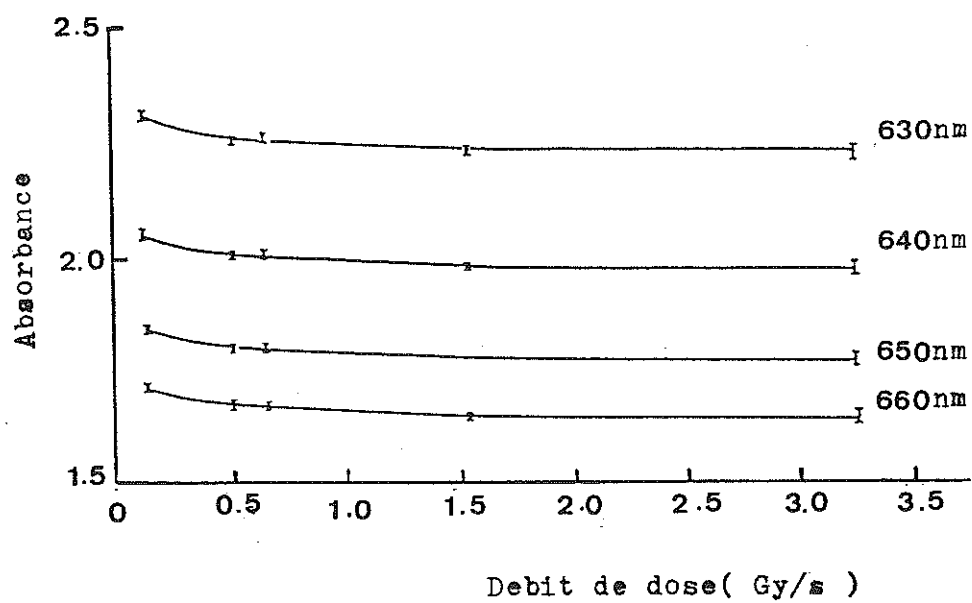
Les débits de dose sont contrôlés au moyen du dosimètre de Fricke.

- Dose absorbée de 25 KGy pour chaque débit
- Mesures au spectrophotomètre à :
  - 630 nm
  - 640 nm
  - 650 nm
  - 660 nm

### Résultats

Pour chaque longueur d'onde de mesure nous allons tracer les courbes d'absorbance en fonction du débit de dose. (Figure VI.6)

Nous constatons que l'absorbance augmente quand le débit de dose diminue avec un plateau pour des débits de dose allant de 1,55 à 3,25 KGy. On peut conclure que pour des débits de dose compris entre 1,55 et 3,25 KGy la réponse du dosimètre est constante.



**Figure VI.6 - Absorbance du polyméthacrylate de méthyle rouge en fonction du débit de dose à 630, 640, 650 et 660 nm**

Une étude complémentaire évalue l'effet du temps qui s'écoule entre l'irradiation et la lecture de dosimètres pour des débits de dose de :

- 0,142 Gy/s (Figure VI.7)
- 0,525 Gy/s (Figure VI.8)
- 0,662 Gy/s (Figure VI.9)
- 1,55 Gy/s (Figure VI.10)
- 3,25 Gy/s (Figure VI.11)

La durée va de 0 à 25 jours.

Les mesures spectrophotométriques sont effectuées à diverses longueurs d'ondes :

- 630 nm
- 640 nm
- 650 nm
- 660 nm

Les tracés obtenus indiquent tous que les résultats sont influencés par le débit de dose, en effet nous avons quatre séries de tracés différents.

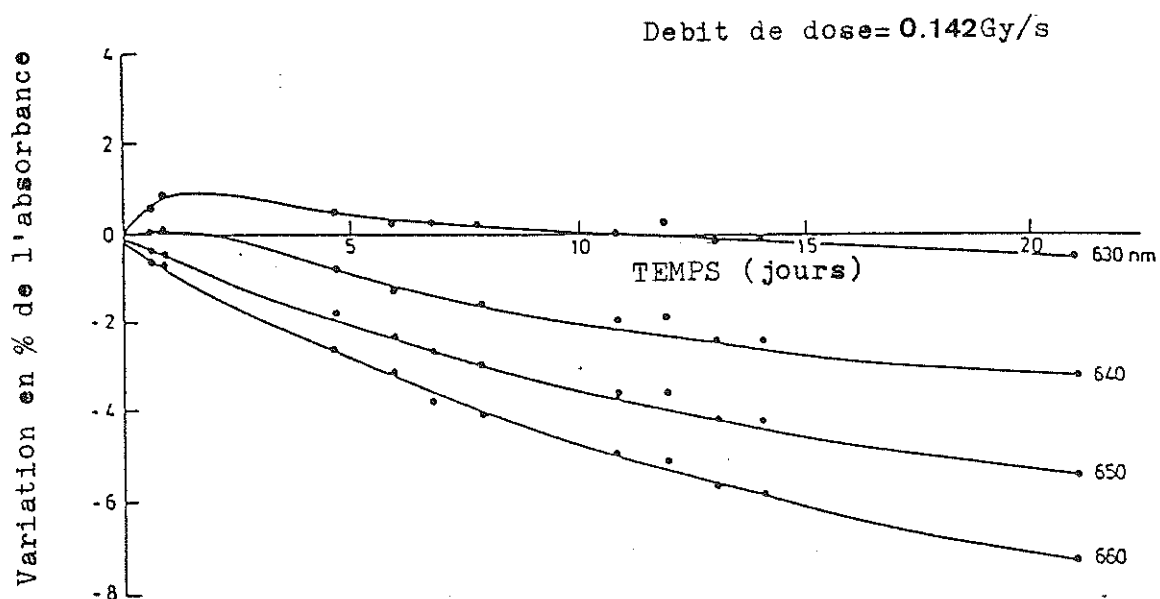
Prenons l'exemple d'un débit de dose de 3,25 Gy/s, dans ce cas précis si les mesures sont effectuées à 640 nm l'absorbance ne diminue que de l'ordre de 2 % sur une durée de 25 jours ce qui est très peu. Tandis que pour les autres longueurs d'onde les variations sont beaucoup plus importantes.

En conclusion pour un débit de dose de 3,25 Gy/s il faut mieux effectuer les mesures spectrophotométriques à 640 nm.

Prenons maintenant comme exemples les débits de dose de 0,142 Gy/s. Dans ce cas les variations les moins importantes sont observées à 630 nm.

Notons qu'à 1,55 Gy/s comme débit de dose les variations sont notables pour toutes les longueurs d'onde.

En conclusion nous pouvons dire qu'en fonction du débit de dose de l'irradiation le choix de l'utilisateur va se porter sur une longueur d'onde plutôt que sur une autre.



**Figure VI.7 - Variation de l'absorbance du polyméthacrylate de méthyle rouge après irradiation à 630, 640, 650 et 660 nm sur une période de 20 jours pour un débit de dose de 0.142 Gy.s**

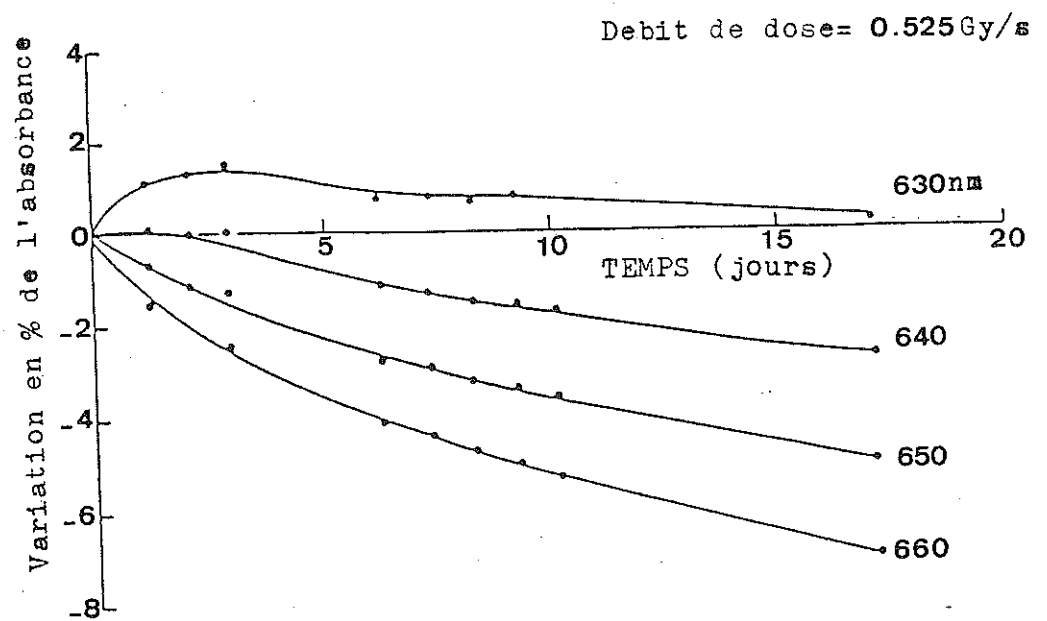
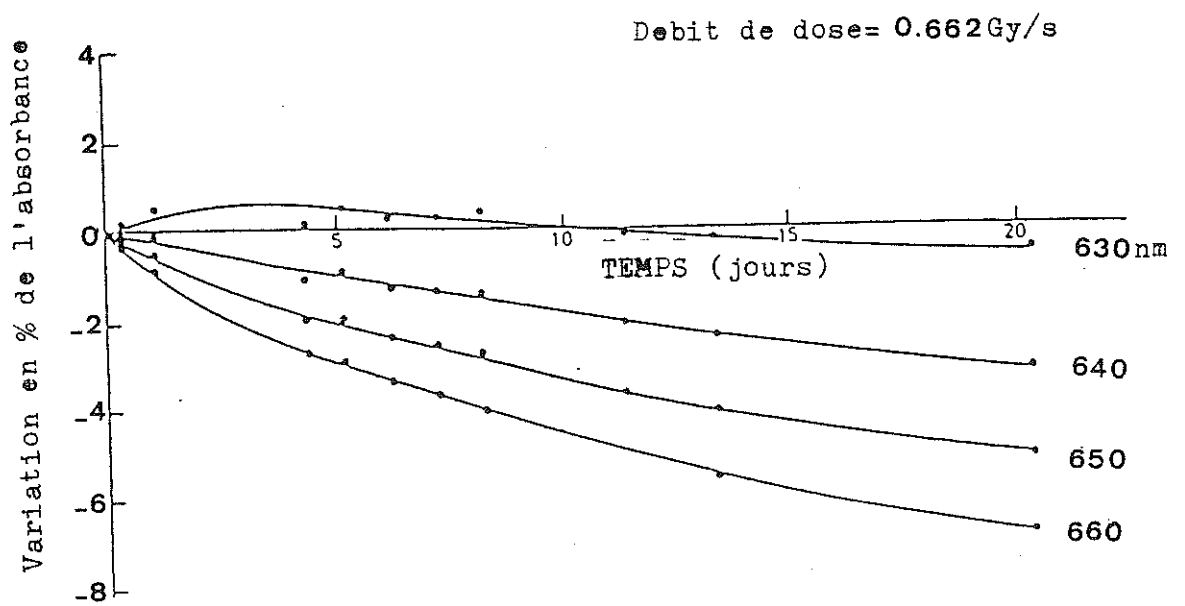
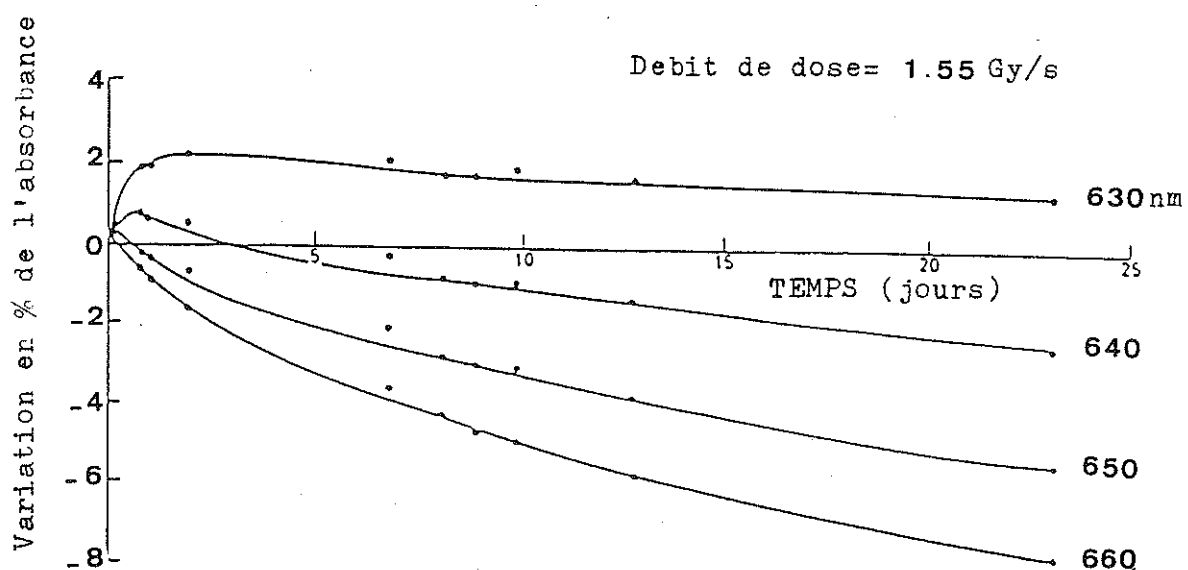


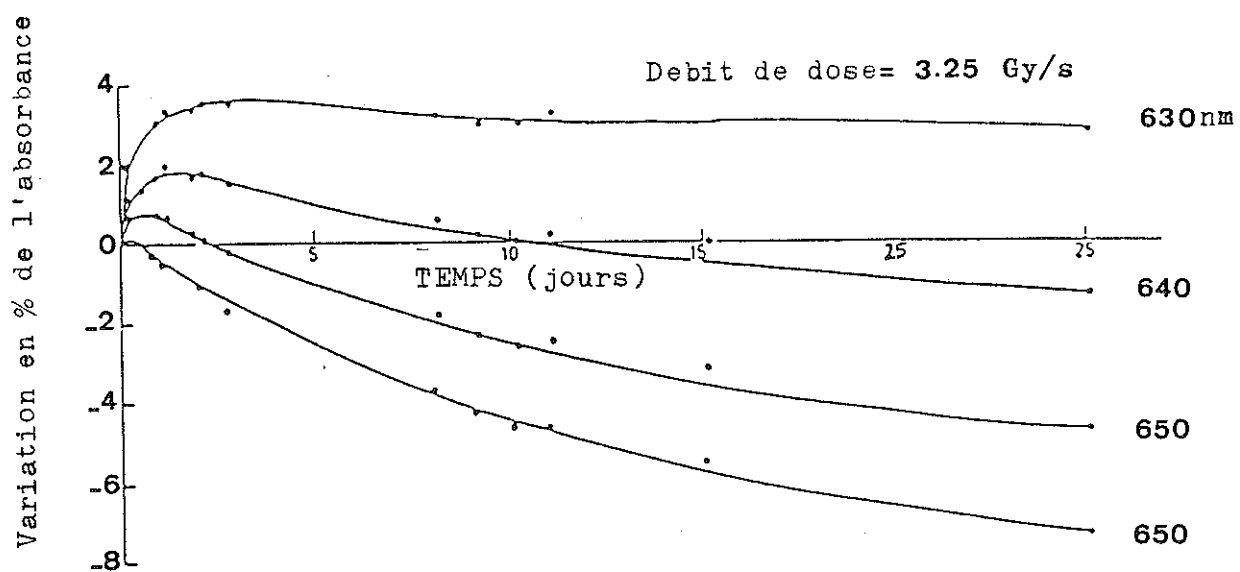
Figure VI.8 - Variation de l'absorbance du polyméthacrylate de méthyle rouge après irradiation à 630, 640, 650 et 660 nm sur une période de 17 jours pour un débit de dose de 0.525 Gy.s



**Figure VI.9 - Variation de l'absorbance du polyméthacrylate de méthyle rouge après irradiation à 630, 640, 650 et 660 nm sur une période de 20 jours pour un débit de dose de 0.662 Gy.s**



**Figure VI.10 - Variation de l'absorbance du polyméthacrylate de méthyle rouge après irradiation à 630, 640, 650 et 660 nm sur une période de 24 jours pour un débit de dose de 1.55 Gy.s**



**Figure VI.11 - Variation de l'absorbance du polyméthacrylate de méthyle rouge après irradiation à 630, 640, 650 et 660 nm sur une période de 25 jours pour un débit de dose de 3.25 Gy.s**



#### **VI.4.4 - LA TEMPERATURE**

De nombreux travaux concernant le comportement du Rouge Perspex 400 vis à vis de la chaleur ont montré que les résultats étaient peu influencés pour des températures de 0° à 30° C.

Les travaux de Miller (55) (56) ont porté sur le Rouge Perspex 400 soumis à des températures allant de - 80° C à + 80° C. Les résultats obtenus indiquent que :

- Pour des températures allant de - 20° à 40° C les variations d'absorbance ne sont que de 2 %.
- Pour des températures inférieures à -30° C et supérieures à 50° C les variations d'absorbance sont plus significatives.

En conclusion pour des températures courantes les résultats sont peu ou pas dépendants de la température.

#### **VI.4.5 - TEMPS QUI S'ECOULE AVANT LA LECTURE**

Les travaux effectués montrent qu'en pratique on obtient toujours les meilleurs résultats quand la lecture est faite juste après le processus d'irradiation.

La dépendance temps-absorbance n'est pas linéaire, de plus, elle est affectée par d'autres facteurs qui s'additionnent au facteur temps.

Les facteurs sont les suivants :

- Contenu en eau
- Débit de dose
- Longueur d'onde de la lecture
- Température de stockage après irradiation (57).

## VI - CONCLUSION

Les différents travaux que nous avons repris dans ce chapitre nous permettent de conclure que le polyméthacrylate de méthyle est un dosimètre fiable pour des niveaux de dose absorbée compris entre 5 et 50 KGy. Nous pouvons donc l'employer au cours des processus de radioconservation et de radiostérilisation.

L'utilisateur peut porter son choix soit sur le polyméthacrylate de méthyle incolore, soit sur le polyméthacrylate de méthyle coloré. Il faut, pour s'assurer d'une bonne reproductibilité des résultats, tenir compte d'un certain nombre de paramètres pouvant être à l'origine de variations dans les résultats obtenus. Un paramètre important est la structure propre du polyméthacrylate de méthyle; en effet, il faut connaître avec précision la quantité d'amorceur, le taux de monomère résiduel ainsi que le lot de fabrication en ce qui concerne le polyméthacrylate de méthyle coloré.

Pour le polyméthacrylate de méthyle incolore, Berry et Marshall (1969) préconisent une lecture de la densité optique à une longueur d'onde de 305 nanomètres tandis que Chadwick (1972) préconise 314 nanomètres. Mais si l'on tient compte des erreurs éventuelles liées au temps et à la température de stockage des dosimètres, Hasan (1988) nous incite à réaliser les mesures à 314 ou 316 nanomètres le plus tôt possible après l'irradiation, les dosimètres étant stockés à une température de 25°C.

Pour le polyméthacrylate de méthyle coloré en rouge les travaux de Whittaker (1970) nous indiquent que les mesures de densité optique doivent être réalisées à une longueur d'onde de 640 nanomètres. Des travaux plus récents de Whittaker (1985) passent en revue les facteurs influençant les résultats et permettent de conclure que :

- La teneur en eau des dosimètres doit être maintenue à 1%,
- La longueur d'onde à laquelle sont effectuées les mesures doit être adaptée au débit de dose.

Dans tous les cas il est préférable d'effectuer les mesures juste après le processus d'irradiation et de conserver les dosimètres à une température ambiante de 25° C.

Une étude plus approfondie de paramètres pouvant influencer la réponse du dosimètre peut être mise à profit en vue de la mise au point de "chronodosimètres" permettant de connaître avec précision le moment auquel s'est effectué l'irradiation.

## BIBLIOGRAPHIE

- 1 - **DUHAMEL J.**  
Physique, Tome III. Electricité, éléments de physique nucléaire. Radioactivité pp 376. 395.  
Editions Masson et Cie éditeurs (1964).
  
- 2 - **GREMY J.François, PERRIN Jean**  
Eléments de biophysique, tome II. Radioactivité p 205.  
Editions Flammarion, Médecine sciences (1971)
  
- 3 - **GREMY J.François**  
Biophysique, premier cycle des études médicales. Radioactivité chap. 21.  
Editions Flammarion Médecine, sciences.
  
- 4 - **BLANC Daniel**  
Les radioéléments; production, dosage et applications. Interaction des rayons gamma avec la matière. Chapitre V pp 53.60 (1966)
  
- 5 - **ROGER J., BERRY R.J., HOLM N.W.**  
Manuel on radiation dosimetry. Introduction to basic concepts and principles in radiation dosimetry. pp 3, 9.  
Marcel Dekker inc; New York (1970)
  
- 6 - **GREMY J.François**  
Biophysique, premier cycle des études médicales. Interaction élémentaires entre les rayonnements ionisant et la matière. Chap. 22 pp 323.335.  
Editions Flammarion, Médecine, sciences
  
- 7 - Physique des radiations ionisantes. Travaux dirigés. Annales corrigées.  
Radioactivité chap. IV.  
Edition Atlandi. Diffusion Maloine.
  
- 8 - **GREMY J.François, PERRIN Jean.**  
Eléments de biophysique Tome II. Effets biologiques des radiations ionisantes p 277 ...  
Editions Flammarion, Médecine, sciences (1971)
  
- 9 - **LE HIR**  
Abrégé de pharmacie galénique. Deuxième édition. Stérilisation pp 166.192  
Editions Masson (1972)
  
- 10 - Pharmacopée Française - IXème Edition. Deuxième partie Stérilisation  
II.212.7 à 212.15

- 11 - BOLNOT F., CARLIER V., ROZIER J.**  
L'irradiation des aliments, Rev. Tech. des industries de la viande et denrées animales. N° 196 à 199 (1984)
- 12 - SAINT-LEBE L., RAFFI J. HENON Y.**  
Le traitement ionisant des denrées alimentaires, rapport CEA - R 5162, Saclay (1982)
- 13 - Mc LAUGHLIN William**  
Rad. Phys. Chim. Radiation measurements and quality control. pp 147.181. Pergamon Press (1977)
- 14 - ATTIX FH., TOCHILIN E.**  
Radiation dosimetry. Chap. 33 Dosimetry in Industrial processing, pp 869.904  
Academic Press New York (1969)
- 15 - HOLM NW., BERRY RJ.**  
Manual on Radiation dosimetry Chap. 6. Films, dyes, and photographic systems, Mc LAUGHLIN William pp 129.177.  
Marcel Dekker, inc, New York (1970)
- 16 - LE HIR A.**  
Abrégé de Pharmacie galénique. Chap. 7 Dosimétrie pp 105.111  
Masson Editeur (1977)
- 17 - Physique des radiations ionisantes. Travaux dirigés. Annales corrigées.**  
Dosimétrie Chap. VIII.  
Edition Atlandi - Diffusion Maloine
- 18 - KLINDEN**  
Phys. Med. Biol. pp 1029.1030 (1975)
- 19 - CHANDLER L., CHADWICK K.H.**  
Dosimetry for the radiation processing of food  
IAEA Vienna (1976)
- 20 - HOLM NW., BERRY RJ.**  
Manual on Radiation dosimetry  
Marcel Dekker, inc, New York (1970)
- 21 - FRANK M. and STOLZ W.**  
Eerst Körper dosimetrie ionisierende strahlung.  
BSB B.G. Teurneur Liepzig (1969)
- 22 - Mc LAUGHLIN WILLIAM**  
Manual on Radiation dosimetry. Appendix 1 : Dosimetry system; Plastic Film  
pp 155.157.  
Marcel Dekker, inc, New York (1970)

- 23 - RAM S., BOSE S.K.**  
Diacel as high exposure gamma ray dosimeter pp 80.81. Health physique  
G.B Tome 42 Month J. (1982)
- 24 - BENTON E.V. and FRANCK AL.**  
Dielectric plastic as high exposure gamma ray detector pp 269.279  
Rad effects (1970)
- 25 - SHAH S., BHAGWAT**  
Makrofol as a high exposure gamma ray dosimeter pp 885.886  
Curr. Scie 47 (1978)
- 26 - CHAGNEAU M. , HAMON H.**  
Les matières plastiques à usage pharmaceutique et médico-chirurgical  
Tome 1. Polyacryliques pp 64.67  
EM inter
- 27 - BROSIEWZ R.K., BULLAK R.**  
Plastic film dosimeter pp 599.605. Proceedings of a symposium on dosime-  
try...  
IAEA Vienna (1972)
- 28 - ARTANDI C.**  
Rigid vinyl film dosimeter pp 353.359. Manual on radiation dosimetry.  
Marcel Dekker inc, New York (1970)
- 29 - CHADIRO A.J.**  
J.Chem. phys. 53 p 895 (1956)
- 30 - DAY M.J. and STEIN G.**  
G. Nature pp 186, 645 (1951)
- 31 - DAY M.J. and STEIN G.**  
G. Nature (Lond) pp 168, 645 (1951)
- 32 - BOAG J.W., DOLPHIN G.W. and ROTBLAT**  
J. Radiat. Res. 9; pp 589 - 610 (1958)
- 33 - BOAG J.W.**  
J.Radiol. 36 p 779 (1963)
- 34 - MARSHALL C.H. and ORTON C.G.**  
Phys. Med. Biol. 11 p 563 (1966)
- 35 - ORTON C.G.**  
Phys. Med. Biol. 11 p 337 (1966)

- 36 - **BARRET J.H., SHARPE P.H.G. and STUART I.P.**  
NPL Rappports R5 p 49  
NPL Teddington (1980)
- 37 - **BARRET John H.**  
Int. J. Applied Rad. Isot. vol 33. Dosimetry with dyed and undyed acrylic plastic pp 1777.1787  
Pergamon Press (1982)
- 38 - **ORTON C.G.**  
Phys. Med. Biol. 11 p 377 (1966)
- 39 - **BERRY R.J., ORTON C.G.**  
Phys. Med. Biol. vol 11 p 475 (1966)
- 40 - **HASAN., KHAN., GULZAR., ATTAR and DURRANI.**  
Journal of radioanalytical and nuclear chemistry vol 125 N° 1. Radiation dosimetry using clear PMMA and PVC in the range of 5-45 KGy pp 127.134 (1988)
- 41 - **DAVID C., FULD D., and GEUSKENS G.**  
Makromol chem., 139 p 269 (1970)
- 42 - **DAVID C., DE BIE F.**  
Makromol chem. 176 p 3493 (1975)
- 43 - **CAMPBELL I.D. and LOONEY F.D.**  
J.chem. 16 p 1141 (1963)
- 44 - **WHITTAKER B.**  
Thesis (London) 1969
- 45 - **BERRY R.J., MARSHALL CH.**  
Phys. Med. Biol. 14 p 585 (1969)
- 46 - **CHADWICK K.H.**  
Atom praxis 15.3. The use of clear PMMA as a dosimeter for irradiation studies in the range of 10 K Rads to 10 M Rads p 181 (1969)
- 47 - **CHADWICK K.H.**  
Proceedings of a symposium on dosimetry in agriculture industry biology and medicine. The choice of measurement wavelength for clear Perspex HX. p 563.568  
IAEA Vienna (1972)
- 48 - **WHITTAKER B.**  
Radiation dosimetry technique using commercial red perspex.  
UKAEA. Rep AERE R.3360 (1960)

**49 - MOUSE A.M., TAHER NH.**

Proceedings of the 5th International symposium of Heidelberg. Color changes in irradiated plastics and their application to radiation dosimetry p 666 Heidelberg (1985)

**50 - WHITTAKER B.**

Manuel on radiation dosimetry. Red perspex dosimetry pp 363.369 Marcel DEKKER, inc, New York (1970)

**51 - BOEYKENS W.**

Proceedings of an international symposium. High dose dosimetry. Irradiation gamma au centre d'études de l'énergie nucléaire de Belgique pp 61.68 IAEA Vienna (1985)

**52 - WHITTAKER B.**

Proceedings of an international symposium. High dose dosimetry. Some parameters affecting of the radiation response and post irradiation stability of Red 4034 Perspex dosimeters. pp 293.306 IAEA Vienna (1985)

**53 - JONES I.G.**

Water contents of red perspex dosimeters UKAEA Rep AERE M. 293 (1977)

**54 - CHU R., ANTONIADES M.T.**

Use of ceric sulfate and perspex dosimeters for the calibration of irradiation facilities. IAEA Report. S.M. pp 192 (1975)

**55 - MILLER A., BJERKBATHE E., Mc LAUGHLIN WL.**

Journ. Appl. Rad. Isot. 26. p 611. (1975)

**56 - MILLER A., Mc LAUGHLIN WL.**

High dose measurements in industrial radiation processing. IAEA Technical Rep. 205 (1981)

**57 - BARRET JH., SHARPE P.H.G., STUART I.P.**

UK National physical laboratory. Rep RS 49 (1980)

# TABLE DES MATIERES

## Première partie : LE RAYONNEMENT GAMMA

<b>I - RAPPEL RADIOACTIVITE</b>	p 13
I.1 - Historique	p 13
I.2 - Les caractéristiques de l'élément	p 13
I.3 - Le processus nucléaire	p 14
I.4 - Les rayonnements radioactifs	p 15
I.4.1 - Travaux de Rutherford	p 15
I.4.2 - Le rayonnement alpha ( $\alpha$ )	p 15
I.4.3 - Le rayonnement bêta ( $\beta$ )	p 17
I.4.3.1 - Emission bêta négative ( $\beta^-$ )	p 17
I.4.3.2 - Emission bêta positive ( $\beta^+$ )	p 18
I.4.3.3 - Capture d'un électron orbital	p 18
I.4.4 - Le rayonnement gamma ( $\gamma$ )	p 20
I.4.4.1 - Emission de photons d'origine nucléaire	p 20
I.4.4.2 - Conversion interne	p 21
I.4.5 - Tableau récapitulatif	p 21
<b>II - PROPRIETES DU RAYONNEMENT PHOTONIQUE GAMMA</b>	p 22
II.1 - Interaction photon gamma-matière	p 22
II.1.1 - Phénomène d'atténuation	p 22
II.1.2 - Les interactions élémentaires	p 24
II.1.2.1 - Effet photoélectrique	p 24
II.1.2.2 - Effet Compton	p 26
II.1.2.3 - Production de paire	p 26
II.1.2.4 - Le bilan des interactions élémentaires	p 26
II.2 - Effet biologique des radiations ionisantes gamma	p 30
II.2.1 - Introduction	p 30
II.2.2 - Réactions radiochimiques "in vitro"	p 30
II.2.2.1 - Radiochimie de l'eau	p 30
II.2.2.2 - Radiochimie des composés organiques	p 31
a - Formation des peroxydes	p 31
b - Action sur les groupements sulfurés	p 33
c - Action sur les acides nucléiques	p 33
II.2.3 - Effet des radiations in vivo	p 34



II.2.3.1 - Effet sur les fonctions cellulaires intégrées	p 34
II.2.3.2 - Effet des radiations sur la synthèse de l'ADN de l'ARN et des protéines	p 34
II.2.3.3 - Radiosensibilité	p 36
II.2.3.4 - Effet au niveau génétique des radiations ionisantes	p 36
<b>II.2.4 - Conclusion</b>	p 36
<b>II.3 - Radioconservation et radiostérilisation</b>	p 37
<b>II.3.1 - Radiostérilisation</b>	p 37
II.3.1.1 - Stérilisation	p 37
a - Définition	p 37
b - Rappel des différents modes de stérilisation	p 37
$\alpha$ - Les procédés chimiques	p 37
$\beta$ - Les procédés physiques	p 38
II.3.1.2 - Radiostérilisation gamma	p 39
a - Avant propos	p 39
b - Procédé de stérilisation par les rayons gamma	p 40
$\alpha$ - Inscription à la PHARMACOPEE FRANCAISE	p 40
$\beta$ - Sources de rayons gamma	p 41
$\gamma$ - Choix de la dose stérilisante	p 42
$\delta$ - Irradiation continue et discontinue	p 43
$\mu$ - Contrôles d'irradiation	p 43
c - Quelques applications	p 44
$\alpha$ - Application pharmaceutiques et médicales	p 44
$\beta$ - Traitement des eaux	p 44
<b>II.3.2 - Radioconservation</b>	p 45
II.3.2.1 - Stabilisation	p 45
a - Définition	p 45
b - Causes d'altération des aliments	p 45
$\alpha$ - Processus endogène	p 45
$\beta$ - Processus exogène	p 45
c - Rappel des différents modes de stabilisation	p 45
$\alpha$ - Procédé chimique	p 46
$\beta$ - Procédé physique	p 46
II.3.2.2 - Radioconservation gamma	p 47
a - Niveau d'action des rayons gamma	p 47
b - Innocuité	p 47
c - Stabilisation des denrées végétales	p 47
d - Stabilisation des denrées d'origine animales	p 47
e - Sources des rayons gamma et installations	p 49

f - Contrôle

p 49

## Deuxième Partie - Les DOSIMETRES PLASTIQUES

<b>I - DOSIMETRIE - GENERALITES</b>	p 51
<b>I.1 - Introduction</b>	p 51
<b>I.2 - Méthodes de contrôle du processus d'irradiation</b>	p 51
<b>II.2.1 - Contrôle des paramètres de l'irradiation</b>	p 51
<b>II.2.2 - Mesure de la dose absorbée par le produit</b>	p 51
I.2.2.1 - Définition dosimétrie	p 51
I.2.2.2 - Grandeurs physiques dosimétrie	p 52
<b>a - Dose absorbée et dose transférée</b>	p 52
$\alpha$ - Dose absorbée : le gray, le rad	p 52
$\beta$ - Dose transférée : le Kerma	p 53
<b>b - Dose d'exposition</b>	p 54
II.2.2.3 - Aire d'application de la dosimétrie	p 55
II.2.2.4 - Méthodes et systèmes dosimétriques	p 55
II.2.2.5 - Classification des dosimètres	p 57
<b>a - Les dosimètres primaires</b>	p 57
<b>b - Les dosimètres secondaires</b>	p 57
<b>c - Les dosimètres tertiaires</b>	p 57
<b>d - Tableau récapitulatif</b>	p 59
<b>I.3 - Conclusion</b>	p 59
<b>II - DOSIMETRES PLASTIQUES</b>	p 61
<b>II.1 - Introduction</b>	p 61
<b>II.2 - Matières plastiques - Généralités</b>	p 61
<b>II.2.1 - Définition des matières plastiques</b>	p 61
<b>II.2.2 - Historique</b>	p 62
<b>II.2.3 - Processus de fabrication des macromolécules</b>	p 62
II.2.3.1 - Définition des macromolécules	p 62
II.2.3.2 - Polymérisation et polycondensation	p 62
<b>a - Polymérisation</b>	p 63
$\alpha$ - Polymérisation thermique	p 63
$\beta$ - Polymérisation pothochimique	p 64
$\gamma$ - Polymérisation radicalaire	p 64
$\delta$ - Polymérisation ionique	p 66
$\mu$ - Stereospécificité polymérisation	p 67
<b>b - Polycondensation</b>	p 68
<b>II.2.4 - Classification des matières plastiques</b>	p 69

II.2.4.1 - Matières plastiques naturelles	p 69
II.2.4.2 - Matières plastiques synthétiques	p 69
a - Les matières thermoplastiques	p 69
b - Les matières plastiques thermodurcissables	p 70
<b>II.3 - Matières plastiques utilisées en dosimétrie</b>	<b>p 71</b>
<b>II.3.1 - Matières plastiques cellulosiques</b>	<b>p 71</b>
II.3.1.1 - Acétate de cellulose	p 71
a - Structure chimique	p 71
b - Propriétés physicochimiques	p 71
c - Emploi en dosimétrie	p 72
II.3.1.2 - Nitrate de cellulose	p 72
a - Structure chimique	p 72
b - Propriétés physicochimiques	p 72
c - Emploi en dosimétrie	p 73
<b>II.3.2 - Polyéthylène et polyéthylène terephthalate</b>	<b>p 73</b>
II.3.2.1 - Polyéthylène	p 73
a - Structure chimique	p 73
b - Propriétés physicochimiques	p 74
c - Emploi en dosimétrie	p 74
II.3.2.2 - Polyéthylène terephthalate	p 74
<b>II.3.3 - Résines acryliques : le polyméthacrylate de méthyle (PMMA)</b>	<b>p 75</b>
II.3.3.1 - Structure chimique	p 75
II.3.3.2 - Propriétés	p 75
a - Propriétés physiques	p 75
b - Propriétés mécaniques	p 76
c - Propriétés thermiques	p 76
d - Propriétés électriques	p 76
e - Propriétés chimiques	p 76
II.3.3.3 - Emploi en dosimétrie	p 77
<b>II.3.4 - Les résines vinyliques</b>	<b>p 77</b>
II.3.4.1 - Structure chimique	p 77
II.3.4.2 - Propriétés physicochimiques	p 78
II.3.4.3 - Emploi en dosimétrie	p 78
<b>II.3.5 - Résine de polystyrène</b>	<b>p 79</b>
II.3.5.1 - Structure chimique	p 79
II.3.5.2 - Propriétés physicochimiques	p 79
II.3.5.3 - Emploi en dosimétrie	p 79

II.3.6 - Tableau récapitulatif	p 80
II.4 - Conclusion	p 80

Troisième partie  
**LE POLYMETHACRYLATE DE METHYLE**  
**Son utilisation en dosimétrie gamma**

I. INTRODUCTION	p 83
II. FABRICATION DU POLYMETHACRYLATE DE METHYLE COLORE ET INCOLORE	p 84
II.1 - Obtention du méthacrylate de méthyle	p 84
II.2 - Polymérisation du méthacrylate de méthyle	p 84
II.2.1 - Initiation	p 85
II.2.2 - Propagation	p 85
II.2.3 - Interruption	p 86
II.2.3.1 - Combinaison de chaînes de propagation	p 86
II.2.3.2 - Dismutation	p 86
II.2.4 - Les phénomènes de dégradation	p 87
II.3 - Le produit final	p 87
III - LES POLYMETRACRYLATES DE METHYLE DISPONIBLES SUR LE MARCHE	p 88
III.1 - Le polyméthacrylate de méthyle clair (incolore)	p 88
III.1.1 - Le perspex clair	p 88
III.1.2 - Le metaplex et le plastiglass	p 89
III.1.2.1 - Le plastiglass	p 89
III.1.2.2 - Le metaplex	p 89
III.2 - Le polyméthacrylate de méthyle coloré	p 89
IV - INTERACTION DES RAYONS GAMMA AVEC LE POLYMETHACRYLATE DE METHYLE	p 90
IV.1 - Rappel des interactions photon gamma-matière	p 90
IV.2 - Production de radicaux libres au sein du polyméthacrylate de méthyle au cours de son interaction avec une source de rayons gamma	p 91
IV.2.1 - Travaux de David et Fuld en 1970	p 92
IV.2.2 - Travaux de David et Bie en 1975	p 93

IV.2.3 - Cas de l'interaction des photons gamma avec le polyméthacrylate de méthyle coloré	p 94
<b>V - UTILISATION DU POLYMETHACRYLATE DE METHYLE INCOLORE EN DOSIMETRIE GAMMA</b>	p 95
V.1 - Spectre d'absorption du polyméthacrylate de méthyle incolore	p 95
V.2 - Choix de la meilleure longueur d'onde pour effectuer les mesures de densité optique	p 96
V.2.1 - Travaux de Berry et Marshall en 1969	p 96
V.2.2 - Travaux de Chadwick	p 98
V.3 - Courbe de calibration du polyméthacrylate de méthyle incolore	p 102
V.4 - Les paramètres influençant la réponse du dosimètre	p 104
V.4.1 - Temps de stockage	p 104
V.4.2 - Température de stockage	p 106
<b>VI- UTILISATION DU POLYMETHACRYLATE DE METHYLE COLORE EN DOSIMETRIE</b>	p 108
VI.1 - Interaction des rayons gamma avec le polyméthacrylate de méthyle coloré	p 108
VI.2 - Spectre d'absorption du Perspex rouge 400	p 109
VI.3 - Courbe de calibration du Rouge Perspex 400	p 112
VI.4 - Facteurs influençant la réponse et la stabilité du Rouge Perspex 400	p 115
VI.4.1 - Le numéro du lot de fabrication	p 115
VI.4.2 - Concentration en eau du dosimètre	p 116
VI.4.3 - Le débit de dose de l'irradiateur	p 118
VI.4.4 - La température	p 128
VI.4.5 - Temps qui s'écoule avant la lecture	p 128
<b>VII - CONCLUSION</b>	p 129

## LISTE DES FIGURES ET TABLEAUX

Figure I.1 - Expérience de Rutherford .....	p 16
Figure I.2 - Phénomènes de matérialisation .....	p 19
Figure II.1 - Interaction d'un faisceau de photons avec un écran matériel .....	p 23
Figure II.2 - Atténuation du faisceau de photons par une série d'écrans d'épaisseur $x$ .....	p 23
Figure II.3 - Variations du nombre (N) de photons traversant un écran en fonction de son épaisseur (x) .....	p 25
Figure II.4 - Effet photoélectrique .....	p 27
Figure II.5 - La fluorescence.....	p 27
Figure II.6 - Emission électron Auger .....	p 28
Figure II.7 - Effet Compton .....	p 28
Figure II.8 - Production de paire .....	p 29
Figure II.9 - Les radicaux libres.....	p 32
Figure II.10 - Le polaron.....	p 32
Figure II.11 - Mort cellulaire retardée .....	p 35
Tableau II.1 - Stabilisation des denrées végétales.....	p 48
Tableau I.1 - Aire d'application de la dosimétrie des radiations .....	p 56
Figure I.2 - Méthodes et systèmes dosimétriques .....	p 58
Tableau I.2 - Classification des systèmes dosimétriques .....	p 60
Tableau II.1 - Dosimètres plastiques, niveaux de dose et pic d'absorption .....	p 81
Figure V.1 - Spectre d'absorption du polyméthacrylate de méthyle non irradié (courbe 1) et irradié (courbe 2). La courbe 3 représente la différence entre les courbes 1 et 2 .....	p 97
Figure V.2 - Spectre d'absorption du polyméthacrylate de méthyle 2 heures après irradiation et après stockage dans l'obscurité à température ambiante pour des doses de 10, 25 et 50 KGy .....	p 99
Figure V.3 - Spectre d'absorption du polyméthacrylate de méthyle 2 heures après irradiation et après stockage dans l'obscurité à 55° pour des doses de 5,10 et 25 KGy.....	p 100

Figure V.4 - Spectre d'absorption du polyméthacrylate de méthyle 2 heures après irradiation et après plusieurs périodes de stockage à 35° pour une dose de 16 KGy.....	p 101
Figure V.5 - Courbes de réponse du polyméthacrylate de méthyle en fonction de la dose d'irradiation à 305 nm (courbe 1) et à 314 nm (courbe 2). Courbe de calibration .....	p 103
Figure V.6 - Effets du temps de stockage après irradiation sur la réponse du polyméthacrylate de méthyle soumis à des doses d'irradiation de 9.4, 22.5 et 46.0 KGy .....	p 105
Figure V.7 - Effets de la température de stockage après irradiation sur la réponse du polyméthacrylate de méthyle soumis à une dose d'irradiation de 25 KGy .....	p 107
Figure VI.1 - Spectre d'absorption du Rouge Perspex 400 à 10, 20 et 30 KGy.....	p 110
Figure VI.2 - Effet du temps de stockage après irradiation sur le coefficient d'absorption induit ( $K^*$ ) du polyméthacrylate de méthyle rouge soumis à des doses d'irradiation de 10,20 et 30 KGy, à 615 et à 660 nm .....	p 113
Figure VI.3 - Courbes de réponse du polyméthacrylate de méthyle rouge en fonction de la dose d'irradiation à 615 et à 640 nm (courbe de calibration) .....	p 114
Figure VI.4 - Absorbance du polyméthacrylate de méthyle rouge à 640 nm en fonction de son contenu en eau pour des doses d'irradiation allant de 15 à 35 KGy.....	p 117
Figure VI.5 - Effet conjugué du temps et de la teneur en eau sur la réponse du polyméthacrylate de méthyle.....	p 119
Figure VI.6 - Absorbance du polyméthacrylate de méthyle rouge en fonction du débit de dose à 630, 640, 650 et 660 nm.....	p 121
Figure VI.7 - Variation de l'absorbance du polyméthacrylate de méthyle rouge après irradiation à 630, 640, 650 et 660 nm sur une période de 20 jours pour un débit de dose de 0.142 Gy.s.....	p 123
Figure VI.8 - Variation de l'absorbance du polyméthacrylate de méthyle rouge après irradiation à 630, 640, 650 et 660 nm sur une période de 17 jours pour un débit de dose de 0.525 Gy.s.....	p 124
Figure VI.9 - Variation de l'absorbance du polyméthacrylate de méthyle rouge après irradiation à 630, 640, 650 et 660 nm sur une période de 20 jours pour un débit de dose de 0.662 Gy.s.....	p 125
Figure VI.10 - Variation de l'absorbance du polyméthacrylate de méthyle rouge après irradiation à 630, 640, 650 et 660 nm sur une période de 24 jours pour un débit de dose de 1.55 Gy.s.....	p 126

**Figure VI.11 - Variation de l'absorbance du polyméthacrylate de méthyle rouge après irradiation à 630, 640, 650 et 660 nm sur une période de 25 jours pour un débit de dose de 3.25 Gy.s..... p 127**



## RESUME

Ce travail a eu pour but d'étudier un dosimètre plastique employé pour contrôler les procédés de radiostérilisation et de radioconservation

Dans le premier chapitre, nous rappelons les caractéristiques des rayonnements ionisants et, en particulier, deux applications : la radiostérilisation et la radioconservation.

Dans le deuxième chapitre nous passons en revue les dosimètres plastiques employés pour mesurer la dose absorbée de rayons gamma.

Et enfin, dans le troisième chapitre nous étudions plus particulièrement une résine acrylique le polyméthacrylate de méthyle.

### MOTS-CLES :

- Rayonnement gamma
- Radiostérilisation
- Radioconservation
- Dosimétrie
- Plastiques
- Dosimètres plastiques
- Polyméthacrylate de méthyle.