

ETALONNAGE DES CHAINES DE SPECTROMETRIE γ -

BILAN ACTUEL DES ETALONS, BESOINS FUTURS -

FR8001279

J. MOREL, L. IMBERT, C. THOMAS

I - PREAMBULE

Les applications de plus en plus répandues de la spectrométrie γ entraînent une exigence croissante quant à la qualité et la précision des mesures.

Les résultats des mesures d'énergies récemment publiées / 1 / sont entachées d'une erreur meilleure que l'électron-volt pour des rayonnements de 100 keV, et de quelques électrons-volt pour 1000 keV. De telles performances résultent d'une part, de mesures alliant les propriétés de la spectrométrie γ à celles de la diffraction par cristal courbe, et d'autre part, d'une réévaluation de l'échelle de l'énergie où la référence est l'énergie de 411 keV émise par l'¹⁹⁸Au, connue à 1,1 eV / 2 /

En faisant abstraction du caractère fondamental de la métrologie, les mesures précises d'énergies n'ont pas, pour la plupart des expérimentateurs, des retombées immédiates, tant sur l'identification des radionucléides que sur le calcul d'efficacité. Par contre, il n'en est pas de même pour les mesures des taux d'émission photonique qui conduisent au dosage en activité des radionucléides, et pour lesquelles la qualité des résultats est moins bonne. En effet, une récente comparaison internationale, portant sur la détermination des taux d'émission photonique / 3 /, a montré qu'un nombre très restreint de laboratoires pouvait revendiquer des incertitudes de l'ordre du pourcent. Aussi cette constatation explique les besoins des utilisateurs de disposer d'étalons aussi précis que possible, et la nécessité de résoudre au mieux les problèmes posés par l'étalonnage d'un ensemble de spectrométrie γ .

II - ETALONNAGE EN EFFICACITE

1 - CHOIX DES REFERENCES

a) les références d'activité

Les méthodes des coïncidences ($M\beta\gamma, M\alpha\gamma$) est en grande partie à l'origine de ces étalons ; les radionucléides utilisés doivent être caractérisés par un schéma de désintégration simple et bien connu pour pouvoir présenter un intérêt en spectrométrie γ .

b) Les références du taux d'émission photonique

Par rapport aux précédentes, ces références ont l'avantage de ne pas faire intervenir l'intensité absolue de l'émission γ , et par conséquent de s'affranchir de l'erreur correspondante. Selon l'énergie du rayonnement, trois méthodes de mesure sont employées, le radionucléide étant considéré monoénergétique. Pour des faibles énergies, 5 à 30 keV, l'émission des photons est mesurée, à mieux que 2 %, au moyen d'un compteur proportionnel 4π de haute pression. Pour des énergies plus élevées, 30 à 150 keV, la mesure nécessite l'emploi d'un cristal d'iodure de sodium à puits ; une incertitude meilleure que 1 % est escomptée étant donné l'efficacité de ce détecteur est proche de 100 %. Le troisième procédé est fondé sur l'étalonnage en efficacité totale d'un cristal scintillateur Na I (Tl) et s'applique à la mesure des rayonnements d'énergie supérieure à 200 keV.

Le tableau joint en annexe fait apparaître les radionucléides utilisés comme étalons d'activité - 1 - ou comme étalons de taux d'émission photonique - 2 - ; il fait état également de l'intensité absolue de la raie X ou γ correspondante, ainsi que l'incertitude sur le taux d'émission photonique.

c) La référence multigamma europium 152

Antérieurement, l'étalonnage des spectromètres γ résultait d'un grand nombre de mesures, impliquait la constitution d'une bibliothèque de sources étalons et leur utilisation l'une après l'autre. C'est pour échapper à ces contraintes qu'a été proposé l'europium 152 / 4 / . Par son nombre important de raies γ intenses qu'il présente, bien réparties en énergie depuis 0,1 MeV jusqu'à 1,5 MeV, ce radionucléide permet d'établir, en une seule mesure, la réponse de l'instrumentation, tant en énergie qu'en efficacité ; en outre, sa période longue (~ 13 ans) autorise l'emploi d'une même source pour des contrôles périodiques de l'étalonnage.

2 - CALCUL DE L'EFFICACITE ET CAUSES D'ERREUR

En admettant que le contrôle de l'efficacité soit relativement simple, il n'en demeure pas moins que l'exploitation des spectres nécessite certaines précautions, et que des erreurs importantes - plusieurs % - sont commises si certaines corrections délicates à évaluer, ne sont pas apportées à la mesure. Ainsi, le temps de résolution électronique de la chaîne, particulièrement long (40 μ s) pour des ensembles équipés de détecteurs de photons de faible énergie (< 200 keV) limite le taux de comptage à quelques milliers

d'impulsions par seconde, de telle sorte que la correction des effets d'empilements soit aussi faible que possible. De même, l'échappement des photons X du détecteur se traduit par une perte de comptage du pic d'absorption totale (10 % à 20 keV - 1 % à 50 keV) et l'apparition de pics parasites aux énergies $E - 9,9$ keV et $E - 11,1$ keV, E étant l'énergie du rayonnement mesuré. Une autre correction tient compte de la détection simultanée de plusieurs photons émis en cascade ; elle est d'autant plus difficile à quantifier que le schéma de désintégration du radionucléide est complexe, et que les coïncidences à considérer sont du type X - X, X - γ , γ - γ . Il convient de citer deux autres causes d'erreur, l'une imputable à la reproductibilité de la géométrie détecteur et échantillon, l'autre à l'affaiblissement de l'efficacité dû à l'autoabsorption de la source et à l'absorption des divers écrans situés entre celui-ci et le détecteur.

3 - COURBE D'EFFICACITE

La réponse en efficacité est définie d'après l'ajustement par les moindres carrés des couples efficacité-énergie à une relation polynomiale dans un système de coordonnées logarithmiques. Cet ajustement est d'autant plus correct que les valeurs ajustées sont pondérées par l'inverse des carrés des erreurs, et qu'un test est effectué pour éliminer les valeurs aberrantes.

III - BESOINS FUTURS -

La commercialisation récente des détecteurs au germanium intrinsèque, à haut pouvoir de résolution, a permis de rendre crédible l'exploitation des spectres dans le domaine des basses énergies - 20 à 200 keV - et d'étendre ainsi les possibilités de la spectrométrie γ . Aussi pour permettre l'étalonnage dans ce domaine, deux radionucléides seront proposés prochainement comme références multigamma ; ces deux radionucléides, le baryum 133 et l'ytterbium 169, en cours d'étude actuellement, ont été choisis en raison de leur nombre appréciable de raies γ intenses, et de leur mode de production aisé. Dans une seconde phase sera également étudié le cobalt 56 qui présente les propriétés d'une référence multigamma dans la gamme 1 - 3,5 MeV. C'est alors en complément de l'¹⁵²Eu que le ⁵⁶Co et le ¹³³Ba ou l'¹⁶⁹Yb permettront l'étalonnage précis des spectromètres γ , depuis 20 keV jusqu'à 3,5 MeV.

Il convient de signaler que des efforts doivent être accomplis ces prochaines années pour pouvoir adapter l'étalon aux conditions d'expérience de certains utilisateurs, c'est - à -dire de disposer du radionucléide étalonné sous forme d'échantillon de géométrie et de milieu aussi divers que possible.

- REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES -

- 1 - R.G.HELMER, R.C. GREENWOOD , R.J. GEHRKE ; Nucl. Inst. Méth. 155, (1978), 189
 - 2 - E.G.KESSLER, R.D. DESLATTES; A. HENINS, W.C.SAUDER ; Phys. Rev. Lett 40 (1978) 171
 - 3 - K. DEBERTIN, Nucl. Inst. Méth. 158 (1979) 479
 - 4 - J.LEGRAND, J.MOREL, A.TRAVERSE ; BULLETIN BNM 19 (1975) 23
 - 5 - Table des Radionucléides - Laboratoire de Métrologie des Rayonnements Ionisants - (1974 - 1979)
-

TABLEAU D'ANNEXE

REFERENCE POUR L'ETALONNAGE EN EFFICACITE DES SPECTROMETRES γ

Energie (keV)	Radionucléide	Intensité absolue %	Incertitude sur le taux d'émission Photonique
6,0* (K α + K β)	⁵⁵ Fe	27,8 \pm 2,1	< 2,0 (2)
6,5* (K α + K β)	⁵⁷ Co	55,8 \pm 2,0	< 4,0 (1)
8,1* (K α + K β)	⁶⁵ Zn	38,7 \pm 1,8	< 2,0 (2)
13,6* (K α + K β)	⁸⁵ Sr	53,8 \pm 0,8	< 2,0 (2)
14,4	⁵⁷ Co	9,6 \pm 0,3	< 3,5 (1)
16,9* (K α + K β)	^{93m} Nb	87,0 \pm 2,3	< 2,0 (2)
22,9* (K α + K β)	¹⁰⁹ Cd	102 \pm 4	< 2,0 (2)
23,6* (K α + K β)	¹¹¹ In	82,4 \pm 2,8	< 3,5 (1)
26,4	²⁴¹ Am	2,4 \pm 0,1	< 4,5 (1)
30,7* (K α + K β)	¹³¹ Cs	74,9 \pm 2,2	< 2,0 (2)
35,5	¹²⁵ I	6,7 \pm 0,1	< 2,5 (1)
46,8 (K α + K β + γ)	¹⁵⁹ Dy	125 \pm 8	< 2,0 (2)
59,6	²⁴¹ Am	36,5 \pm 0,2	< 1,0 (2)
88,0	¹⁰⁹ Cd	3,75 \pm 0,07	< 1,0 (2)
123,7 (122,0 + 136,5)	⁵⁷ Co	96,2 \pm 0,2	< 1,0 (2)
145,4	¹⁴¹ Ce	48,8 \pm 0,4	< 1,0 (2)
165,8	¹³⁹ Ce	80,1 \pm 0,3	< 1,0 (2)
171,3	¹¹¹ In	90,9 \pm 0,6	< 1,0 (1)
243,4	¹¹¹ In	94,2 \pm 0,3	< 1,0 (1)
279,2	²⁰³ Hg	81,4 \pm 0,2	< 1,0 (2)
320,0	⁵¹ Cr	9,83 \pm 0,10	< 1,0 (2)
391,7	^{113m}	64,9 \pm 0,2	< 1,0 (1)
477,6	⁷ Be	10,45 \pm 0,25	< 1,0 (2)

Energie (keV)	Radionucléide	Intensité absolue	Incertitude sur le taux d'émission Photonique
514 0	⁸⁵ Sr	99,28 ± 0,04	< 1,0 (2)
661,6	¹³⁷ Cs	85,4 ± 0,8	< 1,0 (2)
765,8	⁹⁵ Nb	99,80 ± 0,02	< 1,0 (1)
834,8	⁵⁴ Mn	99,978 ± 0,002	< 1,0 (1)
898,0	⁸⁸ Y	93,4 ± 0,7	< 1,5 (1)
1115,4	⁶⁵ Zn	50,75 ± 0,30	< 1,5 (1)
1173,2	⁶⁰ Co	99,87 ± 0,06	< 1,0 (1)
1274,5	²² Na	99,95 ± 0,03	< 1,0 (1)
1332,5	⁶⁰ Co	99,980 ± 0,009	< 1,0 (1)
1368,5	²⁴ Na	99,994 ± 0,002	< 1,0 (1)
1836,1	⁸⁸ Y	99,37 ± 0,02	< 1,0 (1)
2753,9	²⁴ Na	99,87 ± 0,02	< 1,0 (1)

COMMENTAIRES

a) Les valeurs repérées par l'astérisque correspondent à des énergies moyennes.

b) L'incertitude mentionnée sur le taux d'émission photonique est celle escomptée en utilisant le radionucléide comme étalon d'activité - 1 - ou comme étalon de taux d'émission photonique - 2 -

c) Les intensités absolues sont pour la plus grande part, extraites de la Table des Radionucléides citée en référence 5.

