



PH. CASSETTE

# L'étalonnage par traceur Compton, une nouvelle méthode de mesure primaire d'activité en scintillation liquide

## *The Compton source efficiency tracing method, a new standardization method in liquid scintillation counting*

Philippe CASSETTE et Phuc DO

LNE-LNHB (Laboratoire national Henri Becquerel), LIST, CEA-Saclay, F91191 Gif-sur-Yvette Cedex, France, philippe.cassette@cea.fr.

### Résumé

Nous décrivons une nouvelle méthode d'étalonnage en scintillation liquide fondée sur l'utilisation d'une source d'électrons temporaire créée à l'intérieur du scintillateur par interaction Compton. La source de traceur Compton est mesurée par le compteur à scintillation de liquide à triples coïncidences après sélection des événements utiles grâce à un détecteur de rayonnement gamma. Cet article décrit le principe de la méthode, sa mise en œuvre pratique et les résultats obtenus pour l'étalonnage d'une source de tritium. Ces résultats sont comparés à ceux obtenus en utilisant la méthode classique du rapport des coïncidences triples à doubles. Une application possible de cette nouvelle méthode pour des comparaisons internationales est discutée.

**MOTS CLÉS :** SCINTILLATION LIQUIDE, MESURE D'ACTIVITÉ, SPECTROMÈTRE COMPTON, RCTD.

### Abstract

*We describe a new standardization method in liquid scintillation counting based on the use of a temporary virtual tracer source created inside the scintillator by Compton interaction. The Compton tracer source is measured by the triple coincidence liquid scintillation counter after selection of the Compton events by a gamma-ray detector. The paper describes the principle of the method, the experimental setup and presents the results obtained by this method for the standardization of a  $^3\text{H}$  solution. These later results are compared with those obtained using the classical Triple to Double Coincidence Ratio method. Possible application of this new method for international comparisons is addressed.*

**KEYWORDS:** LIQUID SCINTILLATION, RADIONUCLIDE STANDARDIZATION, COMPTON SPECTROMETER EFFICIENCY TRACING METHOD, TDCR.

### 1. Introduction

Les techniques de mesure d'activité employant une source de référence sont utiles pour des mesures comparatives ou pour garder la mémoire de l'étalonnage d'un radionucléide sur une longue période de temps. Un exemple est l'utilisation de chambres d'ionisation avec une source de référence de radium, dans le cadre du système international de référence (SIR) maintenu par le bureau international des poids et mesures (BIPM).

Pour des radionucléides se désintégrant par transition bêta pure, la méthode généralement utilisée est la scintillation liquide en référence à un traceur radioactif. Un exemple est la méthode CIEMAT/NIST employant le tritium comme traceur [1]. Si des mesures reproductibles sont nécessaires sur plusieurs dizaines d'années, par exemple dans le cadre d'un système de référence international, le tritium n'est pas un traceur judicieux du fait de sa période radioactive relativement courte (12,32 ans) et également parce que c'est un radionucléide difficile à étalonner avec une faible incertitude. Pour des raisons fondamentales liées aux modèles physiques employés dans la méthode CIEMAT/NIST, un traceur de basse énergie avec un spectre calculable est nécessaire et jusqu'ici, aucun radionucléide alternatif de longue période n'a été trouvé.

Par ailleurs, des méthodes d'étalonnage primaires peuvent être préférées aux méthodes par traceurs si les facteurs de variabilité de la mesure sont sous contrôle. En scintillation liquide, la méthode d'étalonnage primaire est celle du rapport des coïncidences triples à doubles (RCTD) [2]. Cette méthode exige une description correcte de la réponse non-linéaire du scintillateur qui dépend de la composition de la source scintillante et qui n'est pas facilement reproductible sur une longue période de temps. Pour résoudre ces problèmes nous avons développé un compteur à scintillation liquide couplé avec un spectromètre Compton, où une source de référence virtuelle est temporairement créée au sein du cocktail scintillant par effet Compton. Nous exposerons dans ce qui suit le concept et la réalisation de cette nouvelle méthode de mesure ainsi qu'un exemple d'application à l'étalonnage d'une source de tritium.

## 2. Méthodes de mesure par scintillation liquide

Les techniques de scintillation liquide (SL) peuvent être employées pour la mesure d'activité de radionucléides quand le calcul du rendement de détection est possible ou par comparaison avec un étalon. Les avantages principaux de ces techniques résident dans la possibilité de mesurer des radionucléides de basse énergie dans une géométrie de  $4\pi$  sr avec une préparation de sources relativement facile. À la différence de la plupart des autres méthodes de mesure de radioactivité, la source elle-même fait partie du détecteur et si une mesure précise est nécessaire (c'est-à-dire avec une incertitude type relative inférieure à 1 %) les sources scintillantes étalons doivent avoir une composition similaire à celle des sources à mesurer. Si aucun étalon n'est disponible, l'efficacité de détection peut être calculée dans certains cas. Cela est fait en utilisant une modélisation des processus physico-chimiques et statistiques impliqués dans l'émission de lumière, sa détection et le comptage des impulsions. Ce modèle est connu dans la littérature sous le nom de modèle à paramètre libre [3], qui représente le rendement lumineux intrinsèque du scintillateur ou, plus précisément, la valeur moyenne de photoélectrons créés dans chaque photomultiplicateur (PM) après l'absorption d'une unité d'énergie dans le scintillateur. Ce modèle peut en pratique être appliqué de deux façons différentes : en déduisant le paramètre libre à partir de la mesure d'un traceur (méthode CIEMAT/NIST) ou en calculant ce paramètre libre à partir du rapport des coïncidences triples à doubles dans un détecteur à trois PM (méthode RCTD).

Nous décrivons ici une autre façon d'appliquer le modèle à paramètre libre en scintillation liquide avec l'aide d'une source de traceur virtuelle créée *in situ* par interaction Compton.

## 3. Concept de la source Compton virtuelle

La source scintillante à mesurer est préparée selon la procédure habituelle et une source d'électrons virtuelle est créée temporairement dans celle-ci par effet Compton.

Cette source virtuelle est mesurée spécifiquement pour déduire le rendement lumineux intrinsèque du scintillateur dans ces conditions spécifiques de mesure, c'est-à-dire pour ce type de flacon, ce scintillateur, ce volume, cette composition chimique et ce compteur. Ce rendement lumineux intrinsèque peut être exprimé comme le nombre moyen de photons émis par unité d'énergie électronique absorbée par le scintillateur. La source virtuelle est ensuite supprimée et le rendement lumineux intrinsèque précédemment déterminé est employé pour calculer l'efficacité de détection du radionucléide dans ces conditions de mesure spécifiques. L'avantage principal de cette méthode consiste en ce que le traceur est mesuré exactement dans la même condition que la source à mesurer et aussi que l'efficacité de détection ne dépend pas du taux de comptage de ce traceur, mais seulement sur son spectre, qui est accessible expérimentalement avec une résolution qui ne dépend que de celle du détecteur gamma utilisé.

## 4. Création de la source virtuelle

La source scintillante à mesurer, placée à l'intérieur du compteur de scintillation liquide, est éclairée par un rayonnement gamma externe de 59,4 keV produit par une source scellée, filtrée et collimatée de  $^{241}\text{Am}$ . Un détecteur de rayonnement gamma est placé sous la chambre optique du compteur SL à angle droit de l'incidence du rayonnement gamma. Le détecteur de rayonnement gamma mesure les photons diffusés dans la source SL par diffusion cohérente ou par diffusion Compton. Pour les photons Compton, le spectre diffusé est centré sur l'énergie correspondant à une diffusion à angle droit, ce qui pour une excitation à 59,4 keV correspond à une valeur d'énergie moyenne de 53,2 keV.

Ce spectre Compton est facilement séparé du spectre de diffusion cohérente en employant un détecteur de rayonnement gamma présentant une résolution en énergie suffisante pour ne pas nécessiter d'étape de déconvolution de spectre, comme par exemple un détecteur germanium ou un détecteur CdTe. Le spectre Compton utile est sélectionné par un analyseur monocanal et ce signal est employé pour valider l'information issue des PM du compteur SL. Le compteur SL voit donc toutes les impulsions de lumière créées par des interactions de rayonnement gamma dans la source mais seules celles qui sont en coïncidence avec le signal du sélecteur monocanal de la voie gamma sont enregistrées. Les impulsions lumineuses émises par la désintégration du radionucléide présent dans la source sont également rejetées par le système de coïncidence. Cette méthode de mesure est rendue possible par la courte durée des impulsions de lumière SL et la probabilité de coïncidences fortuites peut être calculée à partir du taux de comptage non-coïncident des détecteurs. Il faut remarquer que le temps mort du compteur SL est déclenché par toutes les impulsions lumineuses et donc que le taux de comptage d'événements utiles est faible (en pratique quelques  $\text{s}^{-1}$ ), ce qui impose un temps d'acquisition relativement long pour obtenir une faible fluctuation statistique des comptages. Le

diagramme du système expérimental est décrit dans la figure 1.

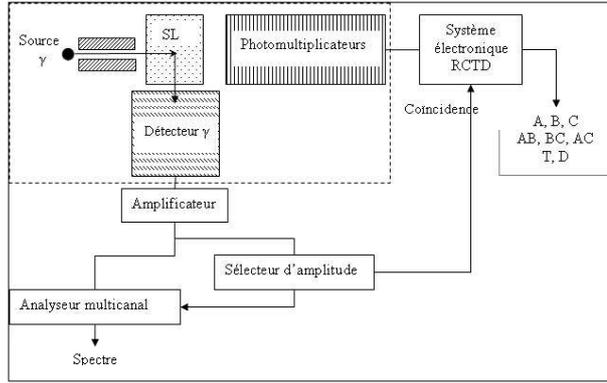


Fig. 1. – Principe d'un compteur à scintillation liquide utilisant un spectromètre Compton.

Le spectre de la source virtuelle peut être directement déduit du spectre des photons Compton diffusés, mesuré en coïncidence avec le compteur SL, en utilisant la relation de conservation de l'énergie de l'effet Compton en considérant que cet effet est prédominant avec des électrons peu liés aux atomes du milieu (la somme des énergies du photon et de l'électron Compton est égale à l'énergie du photon incident).

Ce système peut également être employé pour simuler une source électronique monoénergétique dans le scintillateur, si l'analyseur monocanal est ajusté pour sélectionner une faible plage d'énergie du spectre gamma. Cela permet d'examiner la réponse du cocktail scintillant aux électrons de basse énergie et mesurer ainsi la non-linéarité du scintillateur.

## 5. Mesure de la réponse du scintillateur

La réponse du scintillateur à la source virtuelle d'électrons peut être déduite de l'analyse du spectre d'amplitude des impulsions des PM. Cette méthode, employée précédemment par Péron [4] pour analyser la non-linéarité d'un scintillateur liquide, nécessite la déconvolution du spectre d'amplitude du PM sur la base de ses fonctions propres, calculées à partir des n-convolutions de la réponse de l'électron unique. Cette procédure a été employée pour une source monoénergétique mais son application à une source polyénergétique n'est pas directe, car le spectre de la source doit également être considéré dans le processus de déconvolution. Ici, nous avons utilisé une autre approche, fondée sur le modèle à paramètre libre en scintillation liquide et sur sa résolution par la méthode du rapport des coïncidences triples à doubles (RCTD).

En employant un compteur SL à triples coïncidences, avec des seuils de détection ajustés pour permettre la détection de photons uniques dans chaque canal, la probabilité de détection, pour un PM, de l'impulsion lumineuse émise après absorption d'énergie dans le scintillateur peut être déduite du calcul de la probabilité de

non-détection. Si l'énergie absorbée,  $E$ , dans une source SL produit un nombre moyen des photons  $m$ , la probabilité de détection dans le PM X est :

$$\varepsilon_X = 1 - \exp\left(-\frac{\nu_X m}{3}\right), \quad X = (A, B, C), \quad (1)$$

où  $\nu_X$  est le rendement quantique du PM X.

Les probabilités de détection pour 2 PM en coïncidences doubles et triples sont respectivement :

$$\varepsilon_{XY} = \left(1 - \exp\left(-\frac{\nu_X m}{3}\right)\right) \left(1 - \exp\left(-\frac{\nu_Y m}{3}\right)\right), \quad (2)$$

avec  $XY = (AB, BC, AC)$  ;

$$\varepsilon_T = \left(1 - \exp\left(-\frac{\nu_A m}{3}\right)\right) \times \left(1 - \exp\left(-\frac{\nu_B m}{3}\right)\right) \times \left(1 - \exp\left(-\frac{\nu_C m}{3}\right)\right) \quad (3)$$

Et le rendement de détection pour la somme logique des coïncidences doubles est :

$$\varepsilon_D = \sum_{XY=(AB, BC, AC)} (\varepsilon_{XY}) - 2\varepsilon_T \quad (4)$$

Pour un grand nombre d'événements observés, le rapport des fréquences des coïncidences triples et doubles converge vers le rapport des probabilités de ces coïncidences :

$$\frac{T}{XY} = \frac{\varepsilon_T}{\varepsilon_{XY}} = \left(1 - \exp\left(-\frac{\nu_Z m}{3}\right)\right), \quad Z \neq X \text{ ou } Y \quad (5)$$

Le nombre moyen de photons émis multipliés par l'efficacité quantique du PM Z peut être facilement calculée par une transformation logarithmique de l'équation (5) :

$$\nu_Z = -3 \ln\left(1 - \frac{T}{XY}\right), \quad (6)$$

avec  $XY = (AB, BC, AC)$ ,  $Z \neq X \text{ ou } Y$

Si l'énergie  $E$  varie d'un événement à un autre (c'est-à-dire si les impulsions de scintillation sont produites avec une source polyénergétique), les équations (1) à (5) doivent être pondérées par le spectre de la source  $S(E)$ . Le nombre moyen de photons,  $m(E)$ , devient alors une variable non-linéaire de l'énergie afin de tenir compte du phénomène de quenching d'ionisation. Birks [5], donne une relation semi-empirique pour décrire  $m(E)$  utilisant le pouvoir d'arrêt de l'électron,  $dE/dx$  ainsi qu'un paramètre décrivant la non-linéarité du scintillateur, le facteur de Birks,  $kB$  :

$$m(E) = \alpha \int_0^E \frac{dE}{1 + kB \frac{dE}{dx}}, \quad (7)$$

où  $\alpha$  est le nombre moyen de photons émis par unité d'énergie absorbée dans le scintillateur. Cette variable  $\alpha$

peut être considérée comme le rendement lumineux intrinsèque de la source dans ces conditions spécifiques de mesure. Dans ce cas, l'équation (5) devient un système de 3 fractions rationnelles avec trois inconnues, les trois valeurs  $v_X$  multipliées par  $\alpha$  :

$$\frac{T}{XY} = \frac{\int_0^{E_{max}} S(E) \prod_{X=(A,B,C)} \left(1 - \exp\left(-\frac{v_X}{3} m(E)\right)\right) dE}{\int_0^{E_{max}} S(E) \prod_{XY} \left(1 - \exp\left(-\frac{v_X}{3} m\right)\right) dE} \quad (8)$$

Le système d'équations (8) peut être résolu en minimisant  $\Delta$  qui exprime la différence entre les rapports des nombres de coïncidences expérimentales triples et doubles et les rapports des probabilités de détections associées :

$$\Delta = \sum_{XY=(AB,BC,AC)} \left( \frac{\varepsilon_T}{\varepsilon_{XY}} - \frac{T}{XY} \right)^2 \quad (9)$$

Cette résolution peut être faite grâce à un algorithme de minimisation multiparamétrique, comme par exemple le « *Downhill simplex* » [6].

En résumé, si l'on connaît le spectre de l'énergie transférée au scintillateur, le nombre moyen de photons émis multiplié par l'efficacité quantique de chaque PM peut être calculé à partir des rapports des taux de comptages en coïncidences triples et doubles. Ces trois valeurs caractérisent entièrement la réponse de la source scintillante utilisée dans ces conditions expérimentales. Elles permettent donc le calcul du rendement de détection de n'importe quel radionucléide présent dans la source, connaissant le spectre d'énergie transféré au scintillateur par ce radionucléide. Il faut cependant remarquer que cette méthode ne fonctionne que si le système n'est pas saturé, c'est-à-dire si les valeurs de RCTD sont inférieures à 1. Cela signifie que la source virtuelle ne doit pas couvrir une trop haute gamme d'énergie. En pratique, la gamme d'énergie comprise entre 1 keV et 10 keV est la plus utile parce que cela correspond à des valeurs de RCTD notablement inférieures à l'unité et de plus dans une région où la non-linéarité du scintillateur est la plus prononcée.

## 6. Application à la méthode RCTD en mesurant la non-linéarité du scintillateur

Dans cette application une source temporaire d'électrons est créée dans la source SL à mesurer en utilisant une source externe de  $^{241}\text{Am}$  dont le rayonnement est filtré pour ne laisser passer que des photons gamma de 59,4 keV. L'analyseur monocanal de la voie gamma est ajusté successivement pour sélectionner un signal gamma dans la gamme de 59 keV à 49 keV, qui correspond à la production d'électrons Compton d'énergies comprises entre 1 keV et 10 keV dans le scintillateur. La mesure de la source est faite pour chaque valeur d'énergie électronique, avec suffisamment de statistique de comptage. La réponse intrinsèque du scintillateur est

calculée pour chaque valeur d'énergie électronique, à partir des valeurs de RCTD expérimentales selon l'équation (6). Ces résultats donnent l'efficacité relative quantique de chaque PM, mais aussi la valeur moyenne de photons émis en fonction de l'énergie transférée. Ces données peuvent alors être ajustées à une fonction mathématique simple sans signification physique, comme par exemple une fraction rationnelle, et cette fonction est alors employée en remplacement de l'équation (7) dans la méthode traditionnelle RCTD. Le jeu de données peut aussi être ajusté à l'équation (7), pour donner la meilleure évaluation des paramètres libres et du facteur  $kB$  qui caractérisent entièrement l'ensemble de mesure dans ces conditions spécifiques.

En résumé, cette procédure permet l'utilisation de la méthode RCTD sans le besoin de choisir ou d'ajuster le paramètre  $kB$ , phase qui reste le point faible de la méthode RCTD classique, particulièrement pour la mesure de radionucléides de basse énergie.

## 7. Application à une mesure par traceur avec une source Compton virtuelle

Dans cette application une source virtuelle est également créée comme précédemment à l'aide d'une source de  $^{241}\text{Am}$  filtrée pour émettre seulement du rayonnement à 59,4 keV. Les seuils de l'analyseur monocanal sont ajustés pour sélectionner une gamme d'énergie correspondant aux interactions Compton uniques dans le cocktail scintillant. Le spectre est enregistré dans le canal gamma en coïncidence avec le signal de la somme logique des coïncidences doubles du compteur SL et le spectre d'énergie des électrons Compton créés dans le scintillateur est calculé en utilisant la relation de conservation de l'énergie dans l'effet Compton. Le système d'équations (8) est ensuite résolu pour obtenir la réponse intrinsèque de chaque PM pour cette source spécifique et dans ces conditions de mesure. La source externe de  $^{241}\text{Am}$  est alors enlevée et la source scintillante est mesurée en coïncidences triples et doubles. Le rendement de détection dans la somme logique des coïncidences doubles est alors calculé grâce à l'équation (4) pondérée par le spectre d'énergie de la source à mesurer :

$$\varepsilon_D = S(E) \left( \sum_{XY=(AB,BC,AC)} (\varepsilon_{XY}) - 2\varepsilon_T \right) \quad (10)$$

Les termes  $\varepsilon_{XY}$  et  $\varepsilon_T$  sont calculés employant les équations (2) et (3) où  $m(E)$  est calculé avec l'équation (7) ou bien en utilisant la réponse intrinsèque de chaque PM obtenue à l'étape précédente. Cette méthode d'étalonnage par traceur Compton (ETC), est dans son principe semblable à la méthode CIEMAT/NIST où l'efficacité de détection d'un radionucléide est déduite de la réponse intrinsèque d'une source scintillante déterminée grâce à une source étalon de tritium. Néanmoins, les avantages principaux de la méthode ETC sur la méthode CIEMAT/NIST sont :

- la caractérisation du système de mesure (c'est-à-dire de la source et du compteur SL) est réellement faite en utilisant la source à mesurer et non avec une autre source contenant le traceur ;
- le rendement de détection est déduit du spectre expérimental du traceur virtuel et non de son taux de comptage. Un éventuel changement de l'activité ou de la géométrie de la source de rayonnement gamma externe n'aura pas d'effet sur le résultat ;
- aucune source radioactive étalon n'est utilisée et il n'y a donc pas de facteur d'incertitude lié à l'activité d'un étalon ;
- le rendement de détection peut également être calculé en employant la méthode RCTD classique à partir du même jeu de données expérimentales. Cela donne une possibilité de contrôle des résultats.

## 8. Système expérimental

Le système expérimental a été réalisé par association d'un détecteur germanium avec le compteur à scintillation liquide RCTD1 du LNE-LNHB. Ce compteur, déjà décrit dans la littérature [7], utilise des flacons de scintillation liquide standards de 20 ml et trois photomultiplicateurs Burle 8850 PMT placés à 120° dans une chambre optique. Une fenêtre mince d'aluminium est placée au fond de la chambre devant la fenêtre en béryllium du détecteur germanium. La distance entre le fond de la fiole scintillante et la fenêtre de détecteur germanium est de 2 cm. Le détecteur germanium est sommairement blindé avec une feuille de 2 mm d'épaisseur de plomb. Un collimateur, composé d'un cylindre principal percé d'un orifice central de 0,8 mm de diamètre a été inséré à l'intérieur de la chambre optique entre 2 PM et dans le plan formé par leurs axes longitudinaux, comme cela apparaît sur la figure 2.

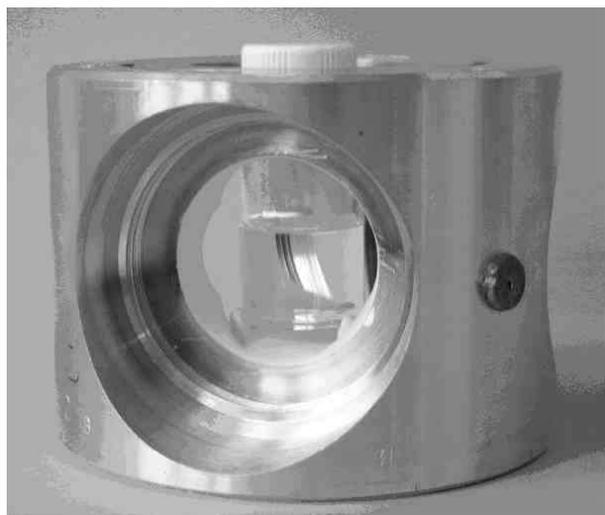


Fig. 2. – Chambre optique du compteur à scintillation liquide montrant le collimateur pour la source  $^{241}\text{Am}$  externe.

Une source scellée de 1,9 MBq de  $^{241}\text{Am}$  est placée dans un cylindre de plomb et adaptée sur ce collimateur.

Les rayonnements de basse énergie de  $^{241}\text{Am}$  sont filtrés par une feuille de fer. Le blindage de la source et le collimateur sont suffisants pour réduire à un niveau négligeable la détection directe par le détecteur germanium du rayonnement émis par la source. Le signal du détecteur germanium est amplifié par un amplificateur de spectrométrie (Intertechnique 7244) et le signal amplifié est connecté à un analyseur multicanaux (MCA) et en parallèle, à un analyseur monocanal (SCA) (Tennelec TC450). Le signal MCA peut être enregistré en coïncidence avec le signal SL en coïncidences doubles produit par le module MAC3 [8] après retard et mise en forme. Le module MAC3 a été modifié pour retarder et ajouter une entrée de veto au signal d'autorisation de sortie des signaux coïncidents, comme indiqué en figure 3.

Cette entrée veto est connectée à la sortie du SCA et les signaux sont synchronisés afin de permettre la validation des signaux de coïncidence du module MAC3 seulement si le signal SCA est présent pendant une fenêtre temporelle de coïncidence de 100 ns.

Une vue générale du système réalisé au LNE-LNHB apparaît sur la figure 4.

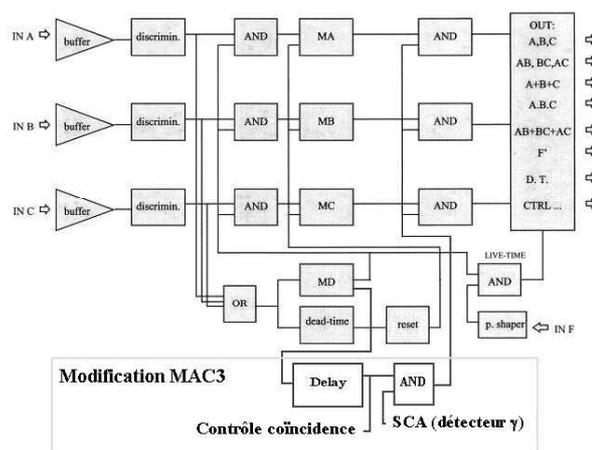


Fig. 3. – Schéma du module MAC3 modifié pour l'ajout d'un signal de veto sur les sorties.

## 9. Essai et validation de la méthode

La méthode a été évaluée par la mesure d'une source de tritium préparée avec le scintillateur liquide commercial Ultima Gold® (Perkin Elmer). La mesure employant la technique du traceur virtuel a été comparée avec les résultats donnés par la méthode de mesure traditionnelle RCTD en utilisant le même compteur (LNHB RCTD1).

Les rendements de détection calculés avec la méthode RCTD classique et avec la méthode du traceur Compton (ETC) sont présentés dans le tableau 1, en fonction de la valeur du paramètre  $kB$  utilisé dans le calcul de la formule Birks, Équation (7). L'évolution du rendement de détection en fonction de cette valeur de  $kB$  apparaît sur la figure 5 pour les deux méthodes de calcul.

Tableau 1

Calcul du rendement de détection d'une source de  $^3\text{H}$  dans l'Ultima Gold LS en utilisant la méthode RCTD et la méthode ETC.

$kB$ en cm/MeV	Méthode RCTD			Méthode ETC			Écart relatif (%)		
	RCTD	$\epsilon_D$	$\epsilon_T$	RCTD	$\epsilon_D$	$\epsilon_T$	RCTD	$\epsilon_D$	$\epsilon_T$
0,007	0,492 5	0,555 1	0,273 4	0,484 9	0,547 5	0,265 5	1,54	1,37	2,89
0,008	0,492 6	0,551 0	0,271 4	0,486 7	0,545 0	0,265 2	1,20	1,09	2,28
0,009	0,492 6	0,547 1	0,269 5	0,488 3	0,542 8	0,265 0	0,87	0,79	1,67
0,01	0,492 5	0,543 4	0,267 6	0,489 7	0,540 7	0,264 8	0,57	0,50	1,05
0,011	0,492 5	0,540 1	0,266 0	0,491 2	0,538 9	0,264 7	0,26	0,22	0,49
0,012	0,492 5	0,537 0	0,264 5	0,492 4	0,537 1	0,264 4	0,02	-0,02	0,04
0,013	0,492 5	0,534 3	0,263 1	0,493 6	0,535 5	0,264 3	-0,22	-0,22	-0,46
0,014	0,492 6	0,531 7	0,261 9	0,494 7	0,533 9	0,264 1	-0,43	-0,41	-0,84
0,015	0,492 6	0,529 2	0,260 7	0,495 9	0,532 6	0,264 1	-0,67	-0,64	-1,30

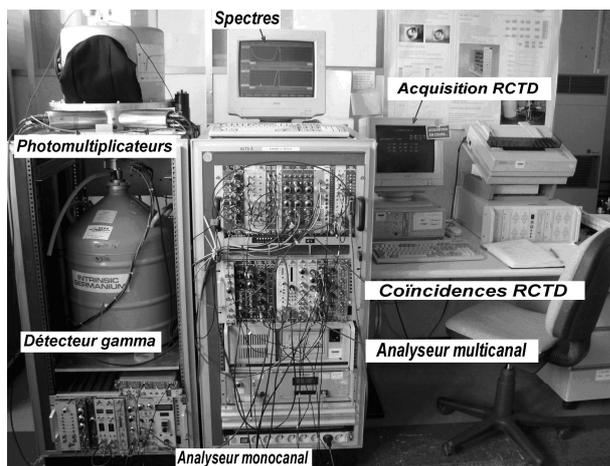


Fig. 4. – Système de mesure associant un compteur à scintillation liquide à triples coïncidences avec un spectromètre Compton pour la mise en œuvre de la méthode ETC.

L'examen de ces résultats conduit aux conclusions suivantes :

- Comme prévu, le rendement de détection du tritium calculé avec la méthode RCTD dépend beaucoup de la valeur du paramètre  $kB$ . Le rendement de détection diminue de 4,7 % si la valeur de  $kB$  passe de 0,007 cm/MeV à 0,015 cm/MeV, plage généralement admise pour ce paramètre ;
- La dépendance du rendement de détection avec la valeur de  $kB$  est plus faible que précédemment en utilisant la méthode de calcul par traceur Compton. En considérant la gamme de  $kB$  précédente, la variation du rendement de détection du tritium est de 2,7 %. Cela se constate également sur les pentes des deux courbes de la figure 5 ;

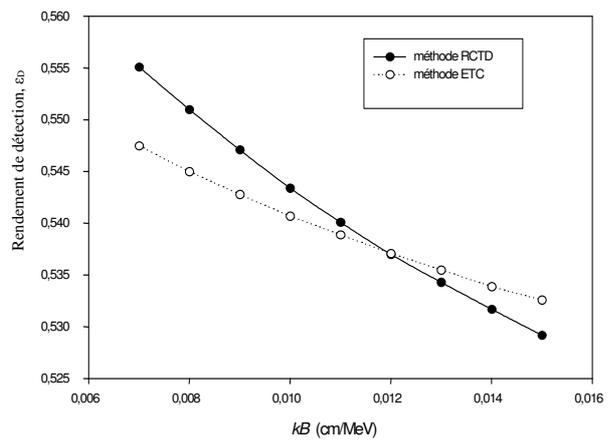


Fig. 5. – Variation du rendement de détection en coïncidences doubles d'une source scintillante de tritium pour la méthode RCTD et la méthode ETC.

- Les deux courbes de la figure 5 se croisent et il y a donc une valeur de  $kB$  pour laquelle les rendements de détection calculés avec les deux modèles sont égaux. Cela correspond à une valeur de  $kB$  de 0,012 cm/MeV, qui est similaire à la valeur précédemment déterminée pour des sources Ultima Gold par défocalisation de notre compteur RCTD1 ;
- On peut qualitativement expliquer pourquoi la méthode ETC est moins dépendante de la valeur de  $kB$  que la méthode RCTD. Dans la méthode ETC, l'équation de Birks est calculée deux fois : une fois pour le traceur Compton et une fois pour le radionucléide à mesurer. Cela conduit à une sorte de compensation des inexactitudes du modèle. Ce point a déjà été observé pour la méthode CIEMAT/NIST où l'influence de la valeur de  $kB$  dans la mesure de

radionucléides bêta purs est plus faible que dans la méthode RCTD. C'est aussi pourquoi, avec la méthode CIEMAT/NIST, la valeur de  $kB$  a une influence considérable dans le calcul de l'efficacité de détection de radionucléide se désintégrant par capture électronique vers un niveau fondamental, comme  $^{55}\text{Fe}$ , parce que dans ce cas, l'énergie produite par la capture électronique est presque monoénergétique (environ 6 keV pour  $^{55}\text{Fe}$ ) et la compensation précédemment mentionnée ne peut pas s'opérer.

Cela étant dit, la méthode ETC reste sensible à la valeur du paramètre  $kB$  mais trois méthodes peuvent cependant être utilisées pour lever cette dépendance :

- Par la comparaison entre les méthodes ETC et RCTD, en choisissant la valeur du paramètre  $kB$  pour laquelle les rendements calculés avec les deux méthodes sont égaux. Cela correspond au point d'intersection des courbes de la figure 5 ;
- Par variation du rendement de détection du compteur à scintillation liquide par défocalisation des PM ou utilisation de filtres gris coaxiaux de la source. La valeur optimale du paramètre  $kB$  est celle qui conduit à rendre l'activité de la source indépendante du rendement de détection. C'est la méthode traditionnellement utilisée avec la méthode RCTD ;
- En mesurant *in situ* la réponse du scintillateur et en remplaçant la fonction de Birks par une corrélation empirique ajustée sur les résultats expérimentaux obtenus avec des sources d'électrons Compton monoénergétiques, comme décrit § 5.

## 10. Utilisation de la méthode ETC pour l'extension du système international de référence aux radionucléides se désintégrant par transition bêta pure ou par capture électronique vers un niveau fondamental

Le comité consultatif des rayonnements ionisants (CCRI(II)) a identifié depuis longtemps la nécessité de développer un système de comparaison international d'activité pour les radionucléides se désintégrant par transition bêta pure ou par capture électronique. Un système de référence existe déjà pour les radionucléides émetteurs gamma (Système International de Référence, SIR). Il est fondé sur l'utilisation de chambres d'ionisation en référence à des étalons de longue période (sources de radium). Ce principe n'est cependant applicable qu'aux émetteurs gamma. Un groupe de travail ad hoc du CCRI (II) a été constitué pour développer un SIR utilisable pour les radionucléides n'émettant pas de photons gamma. Il semble qu'il y ait un consensus pour employer des techniques de scintillation liquide, mais jusqu'ici, aucune méthode satisfaisante n'a été retenue. Cela résulte principalement du fait que les deux méthodes d'étalonnage traditionnelles en SL, *i.e.* la méthode RCTD et la méthode CIEMAT/NIST, rendent nécessaire l'utilisation d'un scintillateur de référence et qu'à ce jour, aucun scintillateur ne répond complètement à ce besoin.

Nous pensons que la méthode ETC pourrait constituer un bon principe pour l'extension du SIR aux radionucléides non-émetteurs gamma. En effet, elle ne nécessite pas de scintillateur de référence car les caractéristiques intrinsèques de chaque source peuvent être mesurées *in situ*.

On pourrait objecter que l'inconvénient principal de cette méthode ETC est la nécessité d'employer un compteur SL spécifique avec 3 PM associé à un détecteur de rayonnement gamma. Nous avons prouvé dans ce papier que la construction d'un tel détecteur reste possible par la modification mineure d'un compteur RCTD classique. De plus, l'utilisation d'un compteur SL développé au laboratoire est, à notre avis, la meilleure garantie d'avoir un instrument de mesure sous contrôle. Ce n'est pas le cas des compteurs SL commerciaux qui sont surtout conçus pour des applications de mesure à bas niveau d'activité et qui sont essentiellement des boîtes noires pour l'utilisateur.

## 11. Conclusion

Nous avons montré qu'il était possible de créer temporairement au sein d'une source scintillante existante, un traceur virtuel par effet Compton à partir d'une source externe de  $^{241}\text{Am}$  et d'un détecteur gamma fonctionnant en coïncidence avec un compteur à scintillation liquide à triple photomultiplicateurs. Cette source virtuelle peut être employée pour étudier *in situ* la réponse non-linéaire du scintillateur liquide dans la gamme d'énergie comprise entre 1 keV et 10 keV. Cette source virtuelle peut également être utilisée comme traceur pour calculer le rendement de détection d'un radionucléide de spectre connu. Cette dernière méthode, appelée méthode d'Étalonnage par Traceur Compton (ETC) a été utilisée avec succès pour la mesure d'une source de tritium en comparaison avec la méthode traditionnelle RCTD. L'association de ces deux méthodes donne une façon simple d'optimiser le paramètre de non-linéarité du scintillateur, le facteur de Birks,  $kB$ , utilisé pour le calcul de rendement de détection en scintillation liquide. Comme la méthode ETC permet la caractérisation *in situ* de la source SL à mesurer, nous pensons qu'elle pourrait être employée dans un système de référence international pour des émetteurs bêta, sans exiger la mise au point d'un scintillateur de référence. Elle pourrait aussi être utilisée pour conserver sur une longue période, la mémoire d'un étalonnage de radionucléides non-émetteurs gamma.

## Références

- [1] GRAU MALONDA A. et GARCIA-TORAÑO E., "Evaluation of counting efficiency in liquid scintillation counting of pure  $\beta$ -ray emitters", *Int. J. Appl. Radiat. Isot.*, **33**, 1982, 249-253.
- [2] BRODA R., POCHWALSKI K. et RADOSZEWSKI T., "Calculation of liquid-scintillation detector efficiency", *Appl. Radiat. Isot.*, **39(2)**, 1988, 159-164.

- [3] GRAU MALONDA A., "Free parameter models in liquid scintillation counting", *CIEMAT Editions*, Madrid, 1999.
- [4] PÉRON M.N. et CASSETTE P., "Study of liquid scintillator response to low-energy electrons with a Compton coincidence experiment", *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res.*, **A369**, 1996, 344-347.
- [5] BIRKS J.B., "The theory and practice of scintillation counting", *Pergamon Press*, Oxford, 1964, 187.
- [6] PRESS W.H., TEUKOLSKY S.A., VETTERLING W.T. ET FLANNERY B.P., "Numerical recipes in Fortran 77", *Cambridge University Press*, Seconde édition, 1992, 402.
- [7] CASSETTE P. et VATIN R., "Experimental evaluation of TDCR models for the 3PM liquid scintillation counter", *Nucl. Instr. Meth.*, **A312**, 1992, 95-99.
- [8] BOUCHARD J. et CASSETTE P., "MAC3 : an electronic module for the processing of pulses delivered by a three photomultiplier liquid scintillation counting system", *Appl. Radiat. Isot.*, **52**, 2000, 669-672.

---

*Article reçu le 19 octobre 2007 ; version révisée reçue le 7 juillet 2008.*