

Rayonnements ionisants

Ionising radiation

1. Introduction

Dans ce domaine de métrologie, les missions sont réparties entre le LNE-LNHB au CEA/Saclay (activité et dosimétrie des photons et particules chargées) et un laboratoire associé au LNE : le LNE-IRSN (dosimétrie des neutrons).

2. LNE-LNHB

2.1. Comparaisons et actions internationales

Le LNE-LNHB a participé à la comparaison internationale de mesure d'activité massique d'une solution de phosphore 32, organisée par le CCRI (section II) du BIPM. La participation au Système International de Référence (SIR) s'est traduite par l'envoi au BIPM de solutions de ^{124}Sb , ^{134}Cs , ^{201}Tl et ^{67}Ga .

Le laboratoire a participé en tant que « linking lab » à la comparaison Euromet 813 (comparaison des références dosimétriques pour les photons du cobalt-60) en kerma dans l'air et en dose absorbée dans l'eau.

Le résultat de la comparaison BIPM en dose absorbée dans l'eau au cobalt-60 (BIPM.RI(I)-K4) effectuée fin 2003 a été communiqué par le BIPM : $D_w(\text{LNHB})/D_w(\text{BIPM}) = 0,997\ 0\ (0,005\ 3)$.

L'analyse des résultats de la comparaison des références d'iridium 192 à fort débit du NPL et du LNE-LNHB (Euromet RI(I)-K6) montre un bon accord : écart de 0,5 % pour une incertitude de 1,3 % ($k = 2$). Le rapport sera publié courant 2006.

Une comparaison concernant les performances des dosimètres individuels opérationnels dans le cadre d'EURADOS (programme EURADOS, WG2), a été effectuée à la demande de l'AIEA. Le LNE-LNHB y a contribué pour deux faisceaux de RX pulsés en radiodiagnostic et trois faisceaux de rayonnement bêta. Le rapport de cette comparaison sera publié dans le courant de l'année 2006 ou début 2007.

Le laboratoire a eu une forte contribution dans la conférence ICRM 2005 (*15th International Conference on Radionuclide Metrology and its Applications*) qui s'est tenue à Oxford : présidence de sessions, animation de deux groupes de travail, préparation de cinq présentations orales et sept posters.

Le LNE-LNHB a contribué au 3^e *Training Workshop du VERMI (Virtual European Radionuclide Metrology Institute)* sur les méthodes d'étalonnage de radionucléides. Se tenant à Varna (Bulgarie), il était destiné à la formation de métrologues originaires des états nouveaux membres de la Communauté européenne et des états balkaniques.

Le travail effectué au LNE-LNHB dans le cadre du groupe de travail du CCRI(II) sur l'extension du SIR aux émetteurs bêta a donné lieu à une étude sur le développement de nouveaux scintillateurs, à laquelle a participé W. M. Van Wyngaardt, (CSIR-NML, Afrique du Sud au cours de son séjour au laboratoire. Mme Li Mo (ANSTO, Australie) a également participé aux études menées sur la méthode RCTD en scintillation liquide.

La coopération avec l'Université de Heidelberg s'est concrétisée par la conception d'un bolomètre magnétique pour la spectrométrie d'électrons. Un absorbeur en or contenant une source de ^{36}Cl a été réalisé au LNE-LNHB. Les premières mesures ont été réalisées à l'Université de Heidelberg. Grâce à une collaboration avec le CEA/DETECS/SSTM, un traitement du signal adapté à ce nouveau détecteur a été développé. Les résultats préliminaires indiquent un rendement de détection remarquable, associé à une résolution en énergie inférieure à 1 keV sur l'ensemble du spectre (7 keV à 700 keV).

Une mission financée par l'AIEA pour un expert du LNE-LNHB a permis de mettre en route au LNMRI/IRD (Brésil, Rio) un système de mesures d'activité en anti-coïncidences basé sur des modules électroniques développés au LNE-LNHB.

2.2. Métrologie de l'activité

2.2.1. *Mesures de coefficients d'atténuation linéique de scintillateurs liquides à l'aide de la source monochromatique de photons X, SOLEX*

La méthode de mesure primaire d'activité par scintillation liquide (méthode RCTD) nécessite le calcul de l'énergie transférée au scintillateur du fait de l'absorption du rayonnement ionisant consécutif à la désintégration radioactive. Dans le cas d'émission de rayonnement photonique, ce calcul est fait en utilisant des codes stochastiques d'interaction rayonnement-matière. Ces codes de calcul utilisent des bases de données de coefficients d'atténuation linéiques du rayonnement. Les modèles utilisés, issus notamment des tables publiées par le NIST, présentent de fortes incertitudes à basse énergie

(en dessous de 15 keV). De plus, la composition chimique des scintillateurs liquides du commerce généralement utilisés est mal connue (secret commercial) et parfois fluctuante d'un lot à l'autre. Cette situation a conduit le laboratoire à entreprendre une campagne de mesure de coefficients d'atténuation des scintillateurs liquides à basse énergie, à l'aide de la source X monochromatique accordable du LNE-LNHB, l'installation SOLEX.

Le principe de mesure retenu est fondé sur la loi de Beer-Lambert. Une cellule de mesure spécifique comportant deux fenêtres parallèles en béryllium a été conçue. Ses dimensions ont été soigneusement caractérisées. Les flux incidents et sortant de la cellule ont été mesurés à l'aide d'un détecteur X en silicium (détecteur SDD). Les spectres ont été traités à l'aide du logiciel de déconvolution COLEGRAM développé par le LNE-LNHB. La gamme d'énergie des photons utilisés allait de 5 keV à 12 keV.

Les premières mesures ont été effectuées avec du toluène pur, cas favorable pour la comparaison avec les calculs théoriques, compte tenu de la composition chimique connue. Ces mesures ont également été comparées à une précédente mesure faite par le LNE-LNHB en 2000 avec un rayonnement synchrotron (LURE). Les résultats expérimentaux sont cohérents entre eux mais apparaissent systématiquement inférieurs aux résultats calculés, l'écart relatif étant compris entre 3 % et 6 % sur la gamme d'énergie considérée. Des tendances similaires ont été observées avec le scintillateur Ultima Gold, avec des écarts compris entre 8 % et 10 %.

Dans le cas du scintillateur Hionic Fluor, deux compositions chimiques apparaissent dans la littérature, l'une donnée par le fabricant, l'autre par le PTB. La comparaison entre les calculs et l'expérience indique que la composition donnée par le fabricant est la plus plausible, même si elle conduit à une surestimation notable des coefficients d'absorption linéique calculés avec le logiciel XCOM.

Ces valeurs seront utilisées en 2006 pour le calcul du rendement de détection de ^{55}Fe en scintillation liquide, dans le cadre d'une comparaison internationale.

2.2.2. Mesure de la période du sélénium 79

Le ^{79}Se est un produit de fission à vie longue qui se retrouve dans les déchets de retraitement du combustible nucléaire. La période radioactive de ce radionucléide était jusqu'à ce jour particulièrement mal connue, les rares valeurs rencontrées dans la littérature étant comprises entre $6,5 \cdot 10^4$ ans et $7 \cdot 10^6$ ans, soit un écart de plus de 2 décades. Les dernières valeurs publiées par une équipe chinoise entre 1995 et 2002 s'évaluaient entre $1,24 \cdot 10^5$ et $1,1 \cdot 10^6$ ans. Cette grande imprécision sur la période a conduit à retenir la période la plus courte comme valeur conservatrice pour évaluer l'impact de ce radionucléide dans la gestion des déchets nucléaires à vie longue. En effet, cette période est celle qui correspond au maximum d'activité pour une masse donnée.

Une nouvelle détermination de la période de ^{79}Se a été entreprise dans le cadre d'une coopération entre COGEMA La Hague, le CEA/Cadarache (LARC) et le LNE-LNHB. Une solution de ^{79}Se a été séparée dans des chaînes blindées de l'usine de COGEMA La Hague à partir d'une solution de produits de fission dont l'activité volumique était supérieure à 10^{11} Bq/l. Plusieurs phases de purification chimique ont permis d'obtenir quelques millilitres d'une solution contenant quelques dizaines de ng/g, soit une dizaine de Bq/g de ^{79}Se .

Le LARC a déterminé la masse de ^{79}Se dans cette solution à partir de la mesure du rapport isotopique $^{79}\text{Se}/^{82}\text{Se}$ par spectrométrie de masse (ETV-ICP/MS). Parallèlement, le LNE-LNHB a effectué une mesure d'activité par scintillation liquide en calculant le rendement de détection par une méthode de traceur utilisant un étalon primaire de tritium. Cette activité a été corrigée pour prendre en compte les impuretés résiduelles dans la solution (^{125}Sb et $^{106}\text{Ru-Rh}$) dont les activités ont été mesurées au LNE-LNHB en utilisant un spectromètre gamma muni d'un détecteur anti-cosmique. La valeur de la période de ^{79}Se obtenue est de $(3,77 \pm 0,19) \cdot 10^5$ ans.

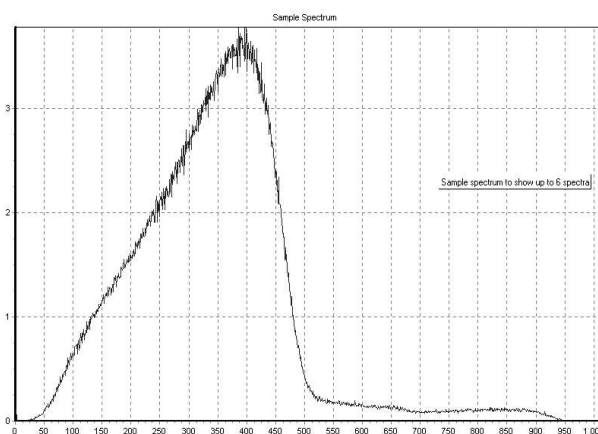


Fig. 1. – Spectre expérimental de l'échantillon de ^{79}Se mesuré par scintillation liquide. La partie de basse énergie correspond à ^{79}Se , la partie centrale à ^{125}Sb et la partie de haute énergie à ^{106}Rh .

2.3. Métrologie de la dose absorbée

2.3.1. Avancées en calorimétrie dans le graphite

La calorimétrie demeure la technique de dosimétrie absolue pour l'établissement des références en termes de dose absorbée.

Les deux axes principaux de développement au LNE-LNHB pour la calorimétrie dans le graphite sont la fabrication, qui sera achevée en 2006, d'un nouveau calorimètre de même conception que le précédent, qui a donné entière satisfaction, et le développement d'un nouveau mode de fonctionnement, dit « à température constante » qui en améliore les performances notamment en termes de reproductibilité des mesures.

Le mode de fonctionnement « à température constante » a été testé sur le calorimètre existant en

pratiquant une évaluation de la dose absorbée dans le graphite dans les faisceaux de cobalt 60. La comparaison des deux modes de fonctionnement, quasi adiabatique et à température constante, a donné entière satisfaction. Elle a permis de valider le principe du nouveau mode. Les résultats sont cohérents et s'écartent de moins de 0,04 %, l'incertitude type de lecture de type A associée au mode à température constante (0,03 %) étant significativement plus faible que celle du mode quasi adiabatique (0,06 %).

Parallèlement, deux études visant à améliorer l'exactitude des mesures ont été menées. Une réévaluation de la résistance des fils des thermistances de chauffage a été effectuée sur des bases théorique et expérimentale. Elle a permis de déterminer le biais introduit dans la mesure de la puissance dissipée dans l'absorbeur par la dissipation dans la partie des fils des thermistances de chauffage qui ne contribue pas à l'élévation de température de l'absorbeur. Le facteur de correction qui en résulte n'est pas négligeable (0,998 9). La seconde étude a concerné l'amélioration de l'évaluation de l'effet des impuretés sur la dose absorbée dans l'absorbeur dans un faisceau de photons. L'absorbeur du calorimètre graphite contient en effet des composants indispensables à sa réalisation et à son fonctionnement (fils de soie, colle, thermistances) mais qui, de composition autre que le graphite, nécessitent une correction pour se ramener à un équivalent graphite.

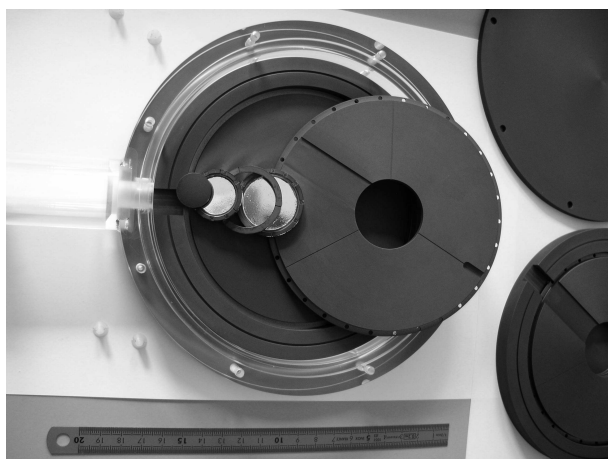


Fig. 2. – Eléments du nouveau calorimètre en graphite en cours de construction.

2.3.2. Veille technologique en dosimétrie par thermoluminescence

La veille technologique sur la dosimétrie par thermoluminescence a pour objectif de réduire au plus bas niveau possible la dispersion des résultats de mesures afin de pouvoir mettre en évidence les causes des variations ordinairement constatées avec cette méthode mais dont les raisons demeurent souvent dans le domaine des hypothèses (contact thermique, régénération des matériaux, refroidissement, paramètre du thermogramme...).

Pour cette étude, les dosimètres en poudre ont été abandonnés au profit des dosimètres frittés qui permettent de mieux maîtriser la lecture (positionnement, contact thermique avec le four,...) et qui sont totalement compatibles avec les lecteurs FIMEL type LTM à lecture « manuelle » et type PCL3 à lecture automatique, les deux types de lecteur ayant été utilisés avec succès. Chaque dosimètre fritté, choisi en fonction de son aspect et de sa masse, a été repéré et traité individuellement afin de pouvoir suivre son « histoire » personnelle. Deux lots de DTL Harshaw commercialisé par la société ARIES (TLD 100 et 700) ont ainsi été sélectionnés. L'écart type sur la distribution de tous les résultats de mesures, caractéristique de la répétabilité des mesures, est de l'ordre de 0,4 %. Toutes sources d'incertitudes prises en compte (valeur de référence de l'irradiation, distance...), l'incertitude type composée des mesures est de 1 %.

Les essais ont mis en évidence une dérive lente mais quasi inexorable de la réponse des détecteurs qu'une normalisation adéquate permet de surmonter. Le fading est la modification de l'information en fonction des conditions et de la durée de stockage entre l'irradiation et la lecture : cet effet a été mesuré pour un entreposage à température ambiante, 20 °C. La très bonne répétabilité des mesures a permis de chiffrer ce fading à 1,7 % en moyenne sur 28 jours. Ces études se poursuivront en 2006.

3. LNE-IRSN : dosimétrie des neutrons

Le Laboratoire de Métrologie et de Dosimétrie des Neutrons (IRSN/DRPH/SDE/LMDN) est en charge du domaine des rayonnements neutroniques de références. Il est accrédité par le Cofrac sous le n° 2.55. Il assure le transfert des références neutroniques vers les utilisateurs.

3.1. Intercomparaison Euromet 608

Cette comparaison a été co-organisée par la PTB, le NPL et le LNE-IRSN. Le pilotage de la comparaison est effectué par le LNE-IRSN. Les premières mesures effectuées en 2005 ont consistées à mettre les instruments de transfert en situation d'étalonnage dans les champs de rayonnement disponibles en accord avec les recommandations de la norme ISO 8529 : ^{252}Cf et $(^{252}\text{Cf}+\text{D}_2\text{O})/\text{Cd}$. La grandeur de référence « mesurée » est l'équivalent de dose ambiant, $H^*(10)$.

3.2. Source de californium

La nouvelle source de californium a été approvisionnée auprès de « AEA Technology ». Sa caractérisation a été effectuée par le LNE-LNHB en avril 2005 par deux méthodes différentes, elle possède une activité de 2,6 GBq.