

Rayonnements ionisants

Ionising radiation

1. Introduction

Dans ce domaine, les activités de métrologie sont réparties entre les deux laboratoires : le LNE-LNHB (Laboratoire National Henry Becquerel), laboratoire national de métrologie du CEA/Saclay et le LMDN (Laboratoire de Métrologie de la Dose), laboratoire associé rattaché à l'IRSN/Cadarache.

Les activités couvertes relèvent de la métrologie de l'activité et de celle de la dose, pour l'ensemble des rayonnements ionisant (émissions de photons, neutrons, électrons).

2. LNE-LNHB

2.1. Comparaisons et actions internationales

Le LNE-LNHB a organisé en 2006 la 12^e Conférence sur la spectrométrie X (EXRS 2006), qui s'est déroulée du 19 au 23 juin, à Paris. Elle a réuni plus de 300 chercheurs, issus de 40 pays différents.

Dans le cadre des activités du CCRI du BIPM, le LNE-LNHB a participé à la comparaison sur la mesure d'activité massique du ⁸⁵Kr. Par ailleurs, le laboratoire est intervenu sur les comparaisons pour le SIR, concernant les radio-nucléides suivants : ⁵⁴Mn, ¹¹¹In, ⁵¹Cr et ⁷⁵Se.

La comparaison Euromet 739 (pour les rayonnements β) s'est terminée en 2006. La publication de ces résultats interviendra dans le courant de cette année, de même que ceux relatifs à la comparaison bilatérale avec le NPL pour l'exercice Euromet n° 814 (concernant les références d'¹⁹²Ir fort débit utilisées en curiethérapie).

On notera également l'intervention d'un membre du laboratoire, en tant qu'expert, à l'audit d'accréditation ISO 17025 de l'IRSG du NRCC. Cet audit a eu lieu en décembre 2006.

2.2. Métrologie de l'activité

2.2.1. Avancées sur la technique de séchage des solutions radioactives par le procédé de lyophilisation

En vue d'améliorer l'homogénéité des dépôts radioactifs réalisés au sein du laboratoire, le LNE-LNHB étudie le procédé de lyophilisation depuis 2002. Cette amélioration est l'un des axes majeurs contribuant à la

réduction des incertitudes en métrologie de l'activité : en effet, l'inhomogénéité des dépôts radioactifs conduit à une augmentation des phénomènes d'auto absorption dans la source considérée et en conséquence à une sous-estimation de son activité.

Cette année, le laboratoire a donc acquis un nouvel équipement de séchage par lyophilisation. L'appareil, développé par l'IRMM (*Institute for Reference Materials and Measurements*) permet le séchage sous pression réduite et contrôlée de dépôts radioactifs, en ajustant le flux d'azote et la température dans l'enceinte de séchage. Le LNE-LNHB a validé l'utilisation de cette technique en caractérisant les dépôts de ⁵¹Cr réalisés dans le cadre de sa participation au SIR.

Dans un premier temps, différentes compositions de solutions chimiques pour ce radio-nucléide ont été étudiées : l'objectif étant d'assurer la stabilité thermodynamique de la solution, tout en limitant les phénomènes d'auto absorption du rayonnement dans le dépôt lui-même. Ceci a ainsi permis de déterminer la solution radioactive optimale, en ajustant la concentration en entraîneurs. Les dépôts ont ensuite été réalisés, conformément à cette étude préalable, puis mesurés par les techniques de spectrométrie X ou de coïncidences.

Les autoradiographies de ces sources ont été prises afin d'en caractériser les profils. Elles sont présentées en figure 1. Ces clichés montrent que l'homogénéité des dépôts est nettement améliorée lorsque l'on utilise le procédé de lyophilisation.

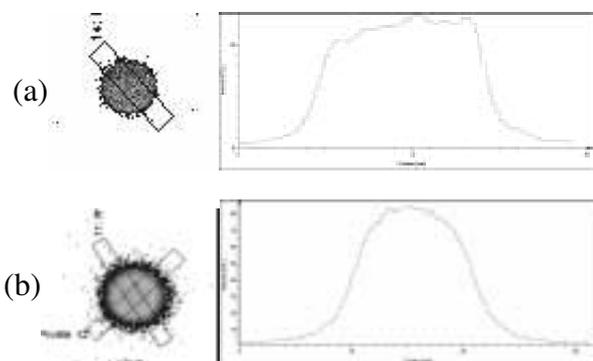


Fig. 1. – Autoradiographies et profils associés de sources de ⁵¹Cr obtenues par séchage de solution radioactives par lyophilisation (a) ou sous jets d'azote (b).

Par ailleurs, les rendements de détection de plusieurs dépôts ont été mesurés par spectrométrie X, en fonction de la masse de produits radioactifs déposée. Il a ainsi été démontré que l'auto absorption dans les sources, d'une masse supérieure à 15 mg, pouvait être diminuée jusqu'à 10 %.

Compte tenu des perspectives d'amélioration induites par l'utilisation de cette technique de séchage, l'étude sera poursuivie sur d'autres radio-nucléides afin de valider ce nouvel équipement.

2.2.2. Utilisation de temps morts reductibles pour les mesures d'activité de radio-nucléides par la méthode des anti-coïncidences

Le ^{67}Ga est un radio-pharmaceutique à durée de vie courte (de l'ordre de 3 jours) utilisé dans le diagnostic pour la localisation de lésions inflammatoires ou de tumeurs. En 2005, le laboratoire a participé à un exercice du SIR : la mesure d'activité massique du ^{67}Ga a été réalisée par le LNE-LNHB en utilisant la méthode des anti-coïncidences $4\pi(\text{SL})\beta\text{-}\gamma$, sur la chaîne d'instrumentation primaire du laboratoire.

La figure 2 présente les résultats obtenus par les différents laboratoires nationaux participants. On remarquera, tout particulièrement, la grande dispersion de l'ensemble des valeurs. Concernant les résultats du LNE-LNHB, ceux-ci sont cohérents de ceux obtenus par le laboratoire dans le cadre de sa précédente participation au SIR, en 1981. Toutefois, ces deux résultats se situent bien en dessous de ceux obtenus par les autres laboratoires nationaux, avec un écart de l'ordre de 2 % par rapport à la valeur de référence établie par le BIPM.

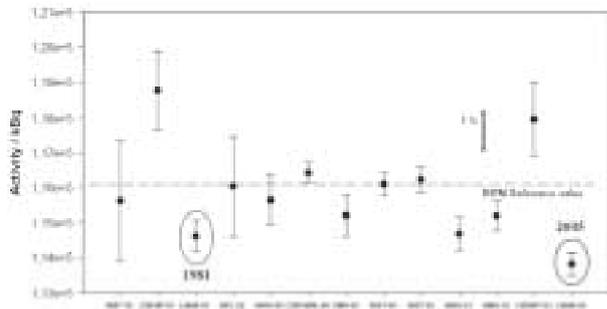


Fig. 2. – Inter comparaison du SIR ^{67}Ga : résultats obtenus par les différents laboratoires nationaux participants.

Une analyse plus poussée du ^{67}Ga , démontre que l'existence d'un état métastable (un des niveaux excités de ce radio-nucléide), peut induire un comptage en excès, suivant la méthodologie de la mesure qui est appliquée.

C'est dans l'objectif d'éviter ce type de surestimation que le LNE-LNHB a choisi initialement de mettre en oeuvre une chaîne d'instrumentation primaire en développant ses propres modules électroniques pour traiter les comptages et intégrer un temps mort reductible. En effet, en imposant un temps mort minimum, adapté au schéma de désintégration du radio-nucléide étudié, on élimine les causes de double comptage. Ce temps mort,

déclenché à chaque émission de type β détecté sur la voie adaptée, est reconduit durant toute la durée de la mesure. On s'affranchit ainsi du comptage en excès et la mesure d'activité peut être réalisée de façon standard. Cette installation est donc parfaitement adaptée à la mesure d'activité massique du ^{67}Ga : le temps mort reductible prend en compte la durée de vie de l'état métastable, qui par désexcitation émet un rayonnement β supplémentaire et corrélé (produit indirect de la même désintégration).

Si l'on analyse maintenant les chaînes d'instrumentation utilisées par les autres laboratoires dans le cadre des participations aux exercices du SIR, on constate que seule l'installation de l'OMH en 1986 est comparable à celle du LNE-LNHB. La majorité des installations est classique, et le traitement du signal basé sur l'utilisation d'un temps mort fixe. Dans ce cas, il est nécessaire de prendre en compte le comptage en excès introduit par l'état métastable : une extrapolation à temps mort infini est généralement appliquée.

Cependant, la correction supplémentaire dépend fortement du schéma de désintégration, qui est mal connu. La littérature montre d'ailleurs clairement que tous les effets engendrés par l'utilisation de temps morts fixes ne sont pas toujours pris en compte. Il en résulte un taux de comptage en excès et donc une surestimation de l'activité de ^{67}Ga , pouvant aller jusqu'à quelques pour-cent.

Ainsi, l'installation de mesure en anti-coïncidences utilisée au LNE-LNHB évite l'introduction de corrections supplémentaires dans le cas de la mesure d'activité du ^{67}Ga . L'analyse des résultats du SIR par le laboratoire permet d'expliquer les valeurs basses obtenues par le LNE-LNHB, ainsi que la variabilité anormale de l'ensemble des valeurs. La valeur d'activité massique du ^{67}Ga donnée par le LNE-LNHB est ainsi validée. Les résultats de cette étude feront l'objet en 2007 d'un débat en workshop et d'une publication internationale.

2.3. Métrologie de la dose

2.3.1. Etablissement des références de dosimétrie des photons X de faibles et moyennes énergies

Les références primaires dosimétriques de kerma dans l'air pour les faisceaux X (équipements pour le diagnostic, la mammographie et la radio-protection) ont été transférés du LCIE en 2001. Deux autres laboratoires du CEA et de l'ETCA, ont, dans la même période, arrêté leurs activités sur les rayonnements X. Leurs différents matériels ont donc été rapatriés au LNE-LNHB, nécessitant pour partie, leur rénovation. Les installations nouvellement disponibles ont ainsi déclenché des études liées à l'amélioration métrologique de ces références.

Le démarrage d'une thèse, en janvier 2006, a permis de traiter plus spécifiquement la remise à niveau de matériels dédiés à la mise en place d'un faisceau RX pouvant aller jusqu'à 320 kV.

Dans un premier temps, un travail spécifique a été réalisé sur le détecteur primaire. Dans l'objectif de réduire le courant de fuite, la conception de cette chambre

d'ionisation a été reprise partiellement, puis validée par simulation en étudiant spécifiquement les paramètres suivants : distribution spectrale de la fluence des photons, fluorescence des matériaux constitutifs de la chambre, et blindage de l'enceinte.

Concernant la mise en place de la chaîne de mesure, toutes les adaptations mécaniques nécessaires au positionnement des matériels ont été réalisées. La source de RX a été alignée avec la chambre à paroi d'air, sur le banc de mesure. Le porte filtre permettant d'occulter le faisceau a été réceptionné et installé. La chambre à parois d'air WK06, provenant de l'ancien laboratoire a été remise à niveau. Une vue de l'ensemble du banc de mesure est présentée en figure 3.



Fig. 3. – Vue générale du banc de mesure RX 320 kV.

Concernant les premières mesures : le contrôle dimensionnel de la chambre WK06 a été réalisé et le volume d'interaction déterminé avec une incertitude de 0,05 % ($k = 1$). Le LNE-LNHB dispose à présent d'une chaîne d'instrumentation primaire permettant la réalisation d'irradiations d'environ 0,5 mGy/s avec un rapport signal sur bruit supérieur à 10^4 . Le faisceau X de 14 cm de diamètre, assure une homogénéité de dose de 0,6 % et le mouvement propre de la chambre a été mesuré à hauteur de quelques femto-ampère. Une première mesure de kerma dans l'air a ainsi été mesurée avec une incertitude type composée de $\pm 0,3$ % ($k = 1$).

Ce banc de mesure est opérationnel et son utilisation sera qualifiée en 2007, à l'issue de deux inter-comparaisons organisées respectivement par le BIPM et Euromet.

2.3.2. Avancées en dosimétrie RPE

L'alanine est un acide aminé, qui sous la forme de comprimés, constitue des dosimètres mesurant des doses d'irradiation de quelques unités à plusieurs milliers de grays. Leur lecture est réalisée par une mesure en Résonance Paramagnétique Electronique (RPE) : l'irradiation provoque la formation de radicaux libres, et l'électron non apparié qui en résulte, étant paramagnétique, peut-être détecté par absorption d'énergie entre les niveaux Zeeman, lorsque l'on réalise une levée de dégénérescence de ces mêmes niveaux. De telles

mesures ne sont pas destructives et les propriétés de vieillissement de ces dosimètres sont telles qu'ils constituent de très bons candidats pour les industries agroalimentaire et pharmaceutique (utilisation pour le contrôle des procédés de stérilisation).

Au laboratoire, cette méthode est appliquée en routine pour mesurer des doses de 1 Gy à 100 kGy, avec une incertitude relative globale inférieure à 2 %. Compte tenu du fort potentiel de demandes dans le domaine de la radiothérapie et de celles existantes en irradiation industrielle, les activités du laboratoire suivent deux axes :

- le développement de références nationales (constituées des techniques associées aux mesures par spectrométrie) et la réduction des incertitudes ;
- le maintien d'une source forte dose. Afin de respecter la législation en vigueur, la source actuelle sera remplacée par un dispositif Gammacell GC220 fonctionnant en ^{60}Co avec un débit de kerma dans l'air de $12 \text{ kGy}\cdot\text{h}^{-1}$.

Pour répondre au premier objectif du laboratoire, un nouvel équipement de mesures (ELEXSYS) a été acquis en 2005. Il a été validé cette année : il présente une sensibilité (séparation des raies d'absorption et niveau de bruit) meilleure de plus d'un ordre de grandeur par rapport à l'ancien équipement. Ceci permet donc au laboratoire d'effectuer des analyses de la variation angulaire des signaux RPE et d'envisager des applications dans le domaine des faibles doses.

L'analyse de dosimètres commerciaux a été poursuivie. Compte-tenu des écarts obtenus entre les différents lots, les travaux ont été recentrés sur la détermination du critère prépondérant pour la quantification des irradiations par RPE. La variation angulaire des signaux a été étudiée et la méthodologie de mesure associée a été, in fine, mise en oeuvre. En effet, les équipes du LNE-LNHB ont identifié l'un des pics RPE (usuellement non-utilisé) comme celui présentant la meilleure indépendance angulaire, et en conséquence la meilleure reproductibilité. Sur cette base, de nouveaux lots de comprimés ont été étudiés (tel qu'illustré par la figure 4). Au regard de la fiabilité de la réponse RPE, un procédé de fabrication des pastilles peut donc être retenu.

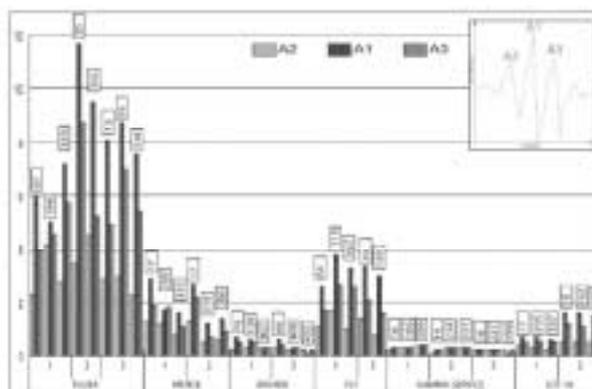


Fig. 4. – Comparaison des écarts types des réponses angulaires (3 orientations : 1, 2 et 3) des 3 signaux RPE de l'alanine (A1, A2 et A3) pour différents lots de comprimés.

En parallèle, dans le cadre du contrat d'incitation LNE n° 0503004 avec le Laboratoire de Pharmacie Galénique (LPG) de l'Université de Marseille I (cf. Revue française de métrologie, 7, 2006-3, 42), la radiolyse de l'alanine a été largement étudiée. Les résultats montrent que, contrairement à ceux exposés dans la littérature, seules deux espèces radicalaires contribuent aux spectres RPE. L'une d'entre elles est majoritaire à 95 %. Les modifications du spectre RPE observées au cours des mesures en haute résolution semblent être associées à des variations conformationnelles des radicaux dans le solide. Cette piste reste à l'étude.

Ce contrat a mis en lumière les effets non maîtrisés de la fabrication d'un comprimé sur la réponse RPE. La réduction des incertitudes pour la dosimétrie RPE de l'alanine, doit donc impérativement passer par la maîtrise de nombreux paramètres, dont : le protocole de mesure, la radiolyse de l'alanine et la proportion des radicaux produits mais aussi la granulométrie, la qualité des excipients et les actions mécaniques de fabrication des comprimés.

3. LNE-IRSN

Les activités du laboratoire de Métrologie et de Dosimétrie des Neutrons (IRSN/DRPH/SDE/LMDN) relèvent de la dosimétrie des neutrons. Le laboratoire associé est ainsi en charge des références neutroniques, ainsi que de leur transfert vers les utilisateurs.

3.1. Actions internationales

Le LMDN participe au groupe de travail du bureau de normalisation des équipements nucléaires pour les rayonnements de référence. Il a contribué à la finalisation de la norme ISO/12789, pour les champs neutroniques réalistes, qui a été validée.

Le laboratoire poursuit également sa participation au groupe de travail sur la dosimétrie des neutrons, réunissant plusieurs laboratoires nationaux (NPL, PTB, UAB).

3.2. Développement des références

Les systèmes de détection de monitoring et de référence de l'accélérateur AMANDE ont été finalisés en 2005. L'année 2006 a donc été consacrée à la réalisation des premiers plans d'expérience internes au laboratoire. Une campagne de mesure, pour des faisceaux mono-énergétiques de neutrons entre 800 keV et 20 MeV a été effectuée. En parallèle, une étude portant sur la modélisation d'un long compteur a également été menée. Son objectif est de définir le cahier des charges du système le plus adéquat, qui permettra l'IRSN de se doter aux termes de la réalisation et de la validation de ce futur équipement, d'une référence en fluence neutronique.

L'un des autres points examinés en 2006, concerne le remplacement réglementaire des 6 sources $^{241}\text{Am-Be}$ qui constituent l'installation SIGMA. L'étude réalisée a permis de modéliser la solution optimale, en adaptant l'installation actuelle, dans l'objectif d'avoir à disposition un champ neutronique de référence, à forte composante thermique.