
MESURE DIRECTE D'ACTIVITÉ PAR SCINTILLATION LIQUIDE, MÉTHODE DU RAPPORT DES COÏNCIDENCES TRIPLES À DOUBLES (RCTD)

Cette méthode de mesure directe permet l'étalonnage en activité de solutions radioactives. Le mesurande est l'activité de la source scintillante mesurée, qui permet de remonter à l'activité massique de la solution à mesurer, si les sources scintillantes sont préparées par pesée. Les radionucléides pouvant être étalonnés par cette méthode sont ceux pour lesquels il est possible de déterminer quantitativement le spectre moyen d'énergie absorbé par la source scintillante à la suite d'une désintégration. En règle générale, la mesure est d'autant plus facile que le schéma de désintégration est simple et elle est d'autant plus précise que le rendement de détection est élevé. Cela concerne notamment les radionucléides se désintégrant par transition bêta pure (i.e. sans désexcitation gamma associée) et par capture électronique vers un niveau fondamental du noyau fils. Les radionucléides suivants ont notamment été étalonnés avec cette méthode : ^3H , ^{14}C , ^{18}F , ^{32}P , ^{33}P , ^{35}S , ^{36}Cl , ^{45}Ca , ^{51}Cr , ^{54}Mn , ^{55}Fe , ^{59}Ni , ^{63}Ni , ^{68}Ga , ^{68}Ge , ^{89}Sr , ^{90}Sr , ^{90}Y , ^{99}Tc , ^{103}Pd , ^{109}Cd , ^{113}Sn , ^{129}I , ^{137}Cs , ^{204}Tl , ^{210}Pb , ^{210}Po , ^{222}Rn , ^{226}Ra , ^{147}Pm , ^{153}Sm , ^{169}Er , ^{238}Pu , ^{239}Pu , ^{240}Pu , ^{241}Pu , ^{242}Pu , ^{241}Am .

La gamme d'activité couverte est conditionnée par le taux de comptage apparent de la source scintillante, qui doit être notablement supérieur au bruit de fond de l'appareil et suffisamment faible pour limiter la durée du temps mort global. En pratique, les valeurs confortables de mesure se situent dans une plage de taux de comptage apparent comprise entre 10^2 et 10^4 impulsions lumineuses par seconde, l'optimum se situant à quelques milliers d'impulsions par seconde. La quantité de solution radioactive pouvant être introduite dans le scintillateur liquide (flacon de 20 ml, 10 ml de scintillateur) est comprise entre 10 mg et 10 g. En fonction de ces valeurs extrêmes et des rendements de détection généralement compris entre 0,5 et 1, la plage de mesure d'activité massique s'étend de quelques centaines de Bq/g à quelques MBq/g. Cette gamme de mesure peut être étendue vers les hautes activités si la solution à étalonner est diluée de façon quantitative.

La détermination des incertitudes de mesure résulte de l'analyse des données relatives à une mesure particulière et ne saurait en général être déterminée a priori. Cependant, afin de fixer des ordres de grandeurs, les plus faibles incertitudes obtenues avec cette méthode sont relatives à la mesure d'émetteurs alpha ou bêta de haute énergie. À titre d'exemple, la mesure d'activité

d'une solution de ^{90}Y (émetteur bêta de haute énergie) peut être entachée d'une incertitude type relative inférieure à 0,2 %. L'analyse des sources d'incertitude montre que les termes irréductibles proviennent de la pesée et de la variabilité entre les sources. Une incertitude relative type inférieure à environ 0,1 % peut donc difficilement être obtenue avec cette méthode. Pour les radionucléides les plus difficiles à mesurer, par exemples ceux émettant une basse énergie et dont le spectre est mal connu, l'incertitude de mesure peut être supérieure à 1 %. C'est le cas par exemple de ^{241}Pu .

Description de la méthode

La mise en œuvre de cette méthode nécessite un compteur à scintillation liquide comportant 3 photomultiplicateurs. Ce compteur permet d'acquérir le nombre moyen de coïncidences triples et doubles et le rendement de détection est calculé à partir du rapport des coïncidences triples et doubles. La méthode de calcul du rendement repose sur les trois hypothèses fondamentales suivantes:

Hypothèse 1 : pour un rayonnement mono-énergétique, la densité de probabilité du nombre de photons lumineux émis suit une distribution de poisson

Si le dépôt dans le scintillateur d'une énergie E conduit à une émission de m photons en moyenne, la distribution statistique du nombre de photons émis suit une loi de Poisson: la probabilité d'émission de x photons pour un nombre moyen m est :

$$P(x / m) = \frac{m^x e^{-m}}{x!} \quad (1)$$

Hypothèse 2 : la probabilité de détection d'un photon n'est pas nulle

Le rendement de détection est la probabilité de détection. En observant que la probabilité de détection est le complément de la probabilité de non-détection, l'hypothèse 2 nous permet d'assimiler le rendement de non-détection à la probabilité d'émission de 0 photon pour m en moyenne. En utilisant l'hypothèse 1 on obtient :

$$\text{Rendement de détection} = 1 - P(0 / m) = 1 - e^{-m} \quad (2)$$

En fait l'observable est la distribution statistique du nombre de photoélectrons qui résulte d'une cascade de trois processus aléatoires : une émission de lumière selon une distribution de Poisson, une répartition des photons dans la chambre de mesure selon un processus multinomial et l'effet photoélectrique dans les photocathodes selon un processus binomial. On peut montrer que cette cascade peut être résumée par une loi de Poisson.

Sur un détecteur à 3 photodétecteurs (symétrie 1/3) d'efficacité quantique ν on obtient :

- Rendement de détection pour 1 photodétecteur : $R_1 = 1 - e^{-\frac{\nu m}{3}}$ (3)

- Rendement de détection pour 2 photodétecteurs en coïncidence : $R_2 = (1 - e^{-\frac{\nu m}{3}})^2$ (4)

- Rendement de détection pour 3 photodétecteurs en coïncidence : $R_T = (1 - e^{-\frac{\nu m}{3}})^3$ (5)

- Rendement de détection pour la somme logique des coïncidences doubles :

$$R_D = 3(1 - e^{-\frac{\nu m}{3}})^2 - 2(1 - e^{-\frac{\nu m}{3}})^3 \quad (6)$$

Hypothèse 3 : le rendement lumineux suit la loi de Birks :

Le processus d'émission de lumière par un scintillateur liquide n'est pas linéaire, le nombre de photons émis en moyenne n'étant pas proportionnel à l'énergie déposée par le rayonnement ionisant. Ce rendement dépend de la densité locale de dépôt d'énergie, donc du transfert d'énergie linéique. Le modèle semi-empirique décrivant cette non-linéarité, la loi de Birks, donne le nombre moyen de photons émis pour l'absorption dans le scintillateur d'une énergie E :

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

$m(E)$ est le nombre moyen de photons émis pour une énergie absorbée E , A est un paramètre libre homogène à un nombre de photons émis par keV, kB est un paramètre semi-empirique du modèle et dE/dx est le transfert d'énergie linéique dans le scintillateur, calculé par la loi de Bethe.

En tenant compte des hypothèses précédentes et en considérant que le spectre normalisé de l'énergie émise par le radionucléide est décrit par une densité de probabilité de $S(E)$, le rapport arithmétique des probabilités de «e coïncidences triples sur les probabilités de coïncidence doubles, RCTD, est :

$$RCTD = \frac{\int_{\text{spectre}} S(E)(1 - e^{-\eta})^3}{\int_{\text{spectre}} S(E)((3(1 - e^{-\eta})^2 - 2(1 - e^{-\eta})^3))} \quad \text{avec} \quad \eta = \frac{\nu}{3} \int_0^E \frac{AdE}{1 + kB \frac{dE}{dx}} \quad (8)$$

Les fréquences de coïncidences triples et de coïncidences doubles étant observées expérimentalement et en considérant que, pour un grand échantillon, le rapport des fréquences converge vers le rapport des probabilités, l'algorithme de calcul consiste à trouver le paramètre libre νA , tel que :

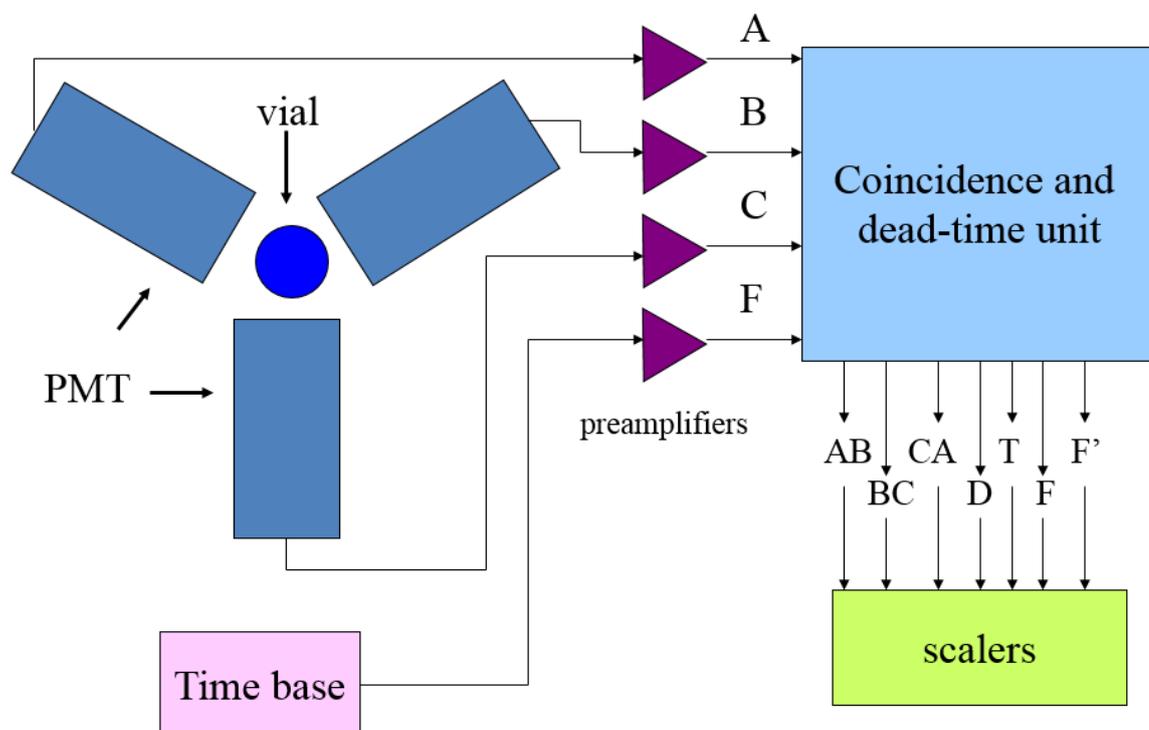
$$RCTD = \frac{T_{\text{expérimental}}}{D_{\text{expérimental}}} \quad (9)$$

Pour les radionucléides se désintégrant par transition bêta pure il y a une solution unique à l'équation (9), le rendement de détection étant une fonction monotone du rapport expérimental T/D.

Pour certaines transitions (par exemple captures électroniques), un rapport T/D expérimental peut correspondre à plusieurs valeurs du rendement de détection. Dans ce cas l'ambiguïté est levée en faisant varier le rendement de détection, soit en défocalisant les photomultiplicateurs, soit en utilisant des filtres optiques gris.

Schéma de l'appareil

LSC TDCR Counter



Pour en savoir plus :

P. Cassette. Mesure d'activité par scintillation liquide. *Les Techniques de l'Ingénieur*, P 2 552, (2004) 1-19.

R. Broda, P. Cassette and K. Kossert. Radionuclide metrology using liquid scintillation counting. *Metrologia* 44 (2007) S36-S52.