

Mesure par spectrométrie gamma des activités relatives d'un mélange de radioéléments d'énergies voisines

— Note préliminaire —

par

R. FUKAI * J.-L. RAPPAIRE** et D. VAS *

* *Laboratoire de Radioactivité Marine AIEA, Monaco*

** *Laboratoire de Radioactivité Appliquée, CSM, Monaco*

Introduction

Plusieurs méthodes sont employées pour mesurer la radioactivité gamma de l'eau de mer. Deux sortes de détecteurs sont généralement utilisés en spectrométrie.

Les semiconducteurs ont un excellent pouvoir de résolution et un bon rendement au-dessus de 800 KeV (1). Pour des énergies inférieures, celui des monocristaux, d'un prix de revient beaucoup moins élevé, est meilleur. Cependant, si l'on utilise un NaI (TI), son pouvoir de résolution, environ 10 %, ne permet pas l'analyse quantitative directe d'un mélange d'émetteurs ayant des pics photoélectriques d'énergies voisines. Une séparation chimique pour chaque radioélément est alors généralement faite. Toutefois, dans certains cas, un calcul par une méthode de moindres carrés permet de l'éviter. Ce calcul est aussi valable pour un mélange de deux radioisotopes d'un même élément.

Nous décrivons tout d'abord l'ensemble de spectrométrie gamma utilisé et la méthode de calcul employée. Une application pratique est ensuite présentée. Il s'agit de la détermination de l'activité en césium 137 et 134 d'échantillons d'eau de mer d'Irlande. Ce travail préliminaire a été effectué dans le cadre d'une campagne d'interétalonnage des méthodes de mesures employées par divers laboratoires s'occupant de radioactivité marine.

L'ensemble de spectrométrie gamma

L'ensemble de spectrométrie gamma utilisé comprend :

— un détecteur à puits (\varnothing 1,5 cm, profondeur 5 cm) Scintibloc 31 NP 75 Quartz et Silice, constitué par un scintillateur NaI (TI) associé à un photomultiplicateur à faible teneur en potassium. La résolution est 12,4 % pour la raie à 0,662 MeV du ^{137}Cs .

— le cristal du détecteur est placé au centre d'une enceinte (100. 40. 40 cm) délimitée par 5 cm de fer et 20 cm de plomb de faible activité ($< 3 \text{ pCi.g}^{-1}$).

— un sélecteur d'amplitude à 400 canaux, Sa 40 Intertechnique.

La méthode des moindres carrés

Soit un spectre gamma représentant l'activité d'un mélange de n radioéléments et une bibliothèque de n spectres, correspondant à une activité connue prise comme étalon, des mêmes radioéléments. On peut écrire pour chaque canal (2)

$$M_p = a_{1p} x_1 + a_{2p} x_2 + \dots + a_{np} x_n + Z_p$$

$M_p, a_{1p}, \dots, a_{np}$, représentent le nombre d'impulsions stockées par unité de temps dans le canal p des spectres du mélange (M) et des étalons (a).

x_1, x_2, \dots, x_n sont les facteurs de proportionnalité recherchés.

Z_p est un complément variable (positif ou négatif).

En égalant à zéro les dérivées par rapport à (a) de l'expression $\sum_0^p Z^2 = f(ax)$ on obtient un système de n équations à n inconnues donnant les valeurs de x.

Avantages et limites de la méthode

A condition de connaître qualitativement tous les radioéléments contribuant à l'activité d'une bande d'énergie donnée, cette méthode permet l'analyse quantitative.

Voici quelques résultats caractéristiques obtenus avec des mélanges, en proportions diverses, de ^{137}Cs et ^{134}Cs . Les étalons ont des activités respectives de 110 ± 2 et 102 ± 2 pCi. Les conditions de mesure du sélecteur d'amplitude sont : réglage 0 1,5 MeV - 200 canaux, temps de comptage 1000 mn. Les données numériques (du 71^e au 120^e canal) sont traitées par ordinateur Marcel Dassault EMD 8-48 associé à un Perforateur Imprimeur Lecteur.

activité théorique (pCi)		activité calculée (pCi)	
^{137}Cs	^{134}Cs	^{137}Cs	^{134}Cs
14 ± 2	101 ± 2	12 ± 1	92 ± 2
55 ± 2	51 ± 2	52 ± 1	46 ± 2
55 ± 2	25 ± 1	52 ± 1	23 ± 1
55 ± 2	13 ± 1	52 ± 1	11 ± 2
14 ± 1	13 ± 1	$12,4 \pm 0,5$	$10,4 \pm 0,6$

L'erreur sur l'activité théorique ne tient compte que de la préparation chimique, celle sur l'activité calculée, que des fluctuations statistiques sur le contenu des canaux du spectre. Pour des activités plus faibles, les fluctuations statistiques diminuent la précision des mesures. Il est possible de l'améliorer en lissant le spectre.

activité théorique (pCi)		activité calculée (pCi)		
^{137}Cs	^{134}Cs	^{137}Cs	^{134}Cs	
$3,3 \pm 0,2$	$3,0 \pm 0,2$	$2,6 \pm 0,5$	$3,3 \pm 0,6$	sans lissage*
» »	» »	$2,6 \pm 0,3$	$3,3 \pm 0,4$	quatre lissages
$1,6 \pm 0,2$	$1,5 \pm 0,2$	$1,1 \pm 0,3$	$1,6 \pm 0,4$	sans lissage*
» »	» »	$1,1 \pm 0,2$	$1,5 \pm 0,3$	quatre lissages

Le lissage est effectué en assimilant, par fractions de 5 canaux, le spectre à une équation du troisième degré (3).

Il découle de ces mesures :

— les activités, dans un rapport 10, d'un mélange de deux radioéléments ayant des pics photoélectriques d'énergies voisines, sont déterminées à 10 % près (^{134}Cs 92 ± 2 pCi, ^{137}Cs 12 ± 1 pCi).

— pour un rapport 1 le seuil de sensibilité mesuré de l'appareillage dans la bande 0,5 - 0,9 MeV est 1 pCi par émetteur (précision 30 %, valeur à comparer à la limite de détection théorique de ^{137}Cs 0,7 pCi (4σ du mouvement propre — temps de comptage 4000 mn rendement mesuré 25 % pour un échantillon de 2 cm³).

Mesure de l'activité en ^{137}Cs et ^{134}Cs d'échantillons d'eau de mer d'Irlande

Les échantillons d'un volume unitaire de 5 litres, sont filtrés puis acidifiés (Ph I à 2) avec HCL. Un gramme de phosphomolybdate d'ammonium est ensuite ajouté. La solution obtenue est filtrée 15 heures plus tard, environ, sur un papier millipore 0,45 μm .

Les échantillons d'eau de mer d'Irlande ont été collectés par le Laboratoire de Radiobiologie des Pêcheries du Royaume Uni, en janvier 1970. Les activités mesurées en ^{137}Cs et ^{134}Cs , sans tenir compte du rendement de la préparation chimique, sont les suivantes : (activités en pCi l⁻¹ ramenées à la date de prélèvement).

	^{137}Cs	^{134}Cs
échantillon 1	$42,4 \pm 0,7$	$10,8 \pm 0,9$
échantillon 2	$35,1 \pm 0,6$	$12,0 \pm 0,7$
échantillon 3	$33,0 \pm 0,9$	$6,9 \pm 0,9$
échantillon 4	$30,3 \pm 0,9$	$11,7 \pm 1,0$

* temps de comptage de l'échantillon 4000 mn.

Conclusion

Les activités en ^{137}Cs et ^{134}Cs d'échantillons d'eau de mer ont été déterminées par spectrométrie gamma avec un simple NaI (Tl). Dans ce cas particulier, notre installation peut rivaliser avec des ensembles beaucoup plus élaborés, utilisant des détecteurs à semiconducteurs par exemple. Nous espérons par la suite, appliquer la méthode des moindres carrés décrite à la mesure d'autres radioisotopes (^{95}Zr , ^{95}Nb , ^{106}Ru , ^{106}Rh , etc.).

Références bibliographiques

- GILAT (R.), & STEIGER-SHAFRIR (N.H.), 1969. — *Radioactive contamination in marine environment and biota in the eastern basin of the Mediterranean sea*. Israel Institute of Technology, department of nuclear science (fourth progress report).
- LEGRAND (J.), MALET (G.) & LE GALLIC (Y.), 1962. — Analyse spectrométrique quantitative en micro-activité - BIST **67**, pp. 74 - 80.
- QUITNER (P.) & WAINERDI (R.E.), 1970. — Computer evaluation of NaI (Tl) and Ge (Li) gamma ray spectra - *Revue d'énergie atomique*, AIEA, **8**, 2, pp. 361-415.

