



## Application de la modélisation Monte Carlo Geant4 à un système de détection à trois photomultiplicateurs utilisé en métrologie primaire de l'activité

Cheick THIAM, Christophe BOBIN, Bruno Chauvenet, Jacques BOUCHARD  
Laboratoire national Henri Becquerel

« CODE DE CALCUL EN RADIOPROTECTION, RADIOPHYSIQUE ET DOSIMÉTRIE »  
Journées Scientifiques SFRP – 1<sup>er</sup> et 2 février 2018 – Sochaux (Musée Peugeot)



### Laboratoire National Henri Becquerel

- Double appartenance : CEA et LNE
- Métrologie dans le domaine des rayonnements ionisants
- Mission : **établir les références métrologiques (SI)**, assurer la cohérence et la traçabilité, ...

**Dosimétrie**  
dose absorbée, kerma (Gy)  
équivalents de dose (Sv)

**Données de désintégration**  
périodes, énergies,  
intensités...

**Radioactivité**  
activité (Bq)  
débit d'émission ( $s^{-1}$ )

### Mesures primaires de la radioactivité :

- Méthodes de mesures primaires (géométrie définie, géométrie  $4\pi$ , méthode des coïncidences ( $\beta$ - $\gamma$ ,  $\alpha$ - $\gamma$ ...))
- L'activité  $A$  est obtenue à partir du taux de comptage (mesuré) et du rendement du détecteur :
- Gamme de mesure suivant les types de radionucléides (émetteur  $\alpha$ ,  $\beta$ ,  $\gamma$ ...)
- Étalonnages (activimètres, sources, laboratoire...), inter-comparaisons, R&D

$$A = \frac{N}{\varepsilon}$$

### Le compteur à scintillation liquide à 3 photomultiplicateurs (PMs)

- Utilisé par deux méthodes primaires de mesures de l'activité :
  - ✓ RCTD (Rapport des Coïncidences Triples à Doubles)
  - ✓ Coïncidences  $4\pi\beta\text{-}\gamma$

#### → Méthode RCTD

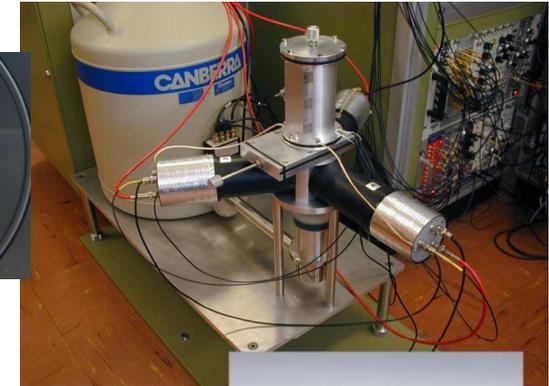
- Adaptée à la mesure des radionucléides **émetteurs  $\beta$  ou capture électronique**
- Rapport **RCTD** utilisé comme indicateur du rendement de détection
- Modélisation de l'émission lumineuse : détermination de l'activité à partir **d'une relation mathématique entre le rendement  $\varepsilon_D$  de détection et le rapport RCTD**

$$\varepsilon_D = f(RCTD)$$

#### → Méthode des coïncidences $4\pi\beta\text{-}\gamma$

- Adaptée à la mesure d'activité de radionucléides de **type émetteurs  $\beta\text{-}\gamma$**
- Ajout d'un **détecteur  $\gamma$**  pour des comptages dans la voie  $\gamma$  + **une voie de coïncidences  $\beta\text{-}\gamma$**
- Méthode directe ne nécessitant pas de modèle physique ( $\varepsilon_D = N_c/N_\gamma$ )

**Installation spécifique au LNHB :**  
 - Voie  $\beta$  : compteur RCTD (SL)  
 - Voie  $\gamma$  : NaI(Tl) ou HPGe



## Modèle statistique de l'émission lumineuse (à paramètre libre)

- Calcul du rendement de détection des coïncidences basé sur une **expression analytique** de la probabilité de compter au moins un photoélectron dans les PMs
- Nombre de **photons émis** calculé selon une distribution de Poisson de moyenne  $m(E)$  suite à un dépôt d'énergie  $E$  dans le liquide scintillant.
- Quenching d'ionisation décrit par la formule de Birks ( $k_B$ , facteur de Birks;  $\alpha$ , rendement de scintillation)
- Condition d'indépendance des PMs validée pour l'expression des probabilités de coïncidences

$$P_E(x) = 1 - \exp(-m(E) \nu / 3)$$

$$m(E) = \alpha \int_0^E \frac{dE}{1 + k_B \frac{dE}{dx}}$$

→ Calcul du rendement  $\varepsilon_D$  par d'un ajustement du paramètre libre ( $\nu\alpha$ )

$$\frac{\varepsilon_T}{\varepsilon_D} = \frac{\int_0^{E_{\max}} S(E) \left(1 - e^{-\frac{\nu\alpha m}{3}}\right)^3 dE}{\int_0^{E_{\max}} S(E) \left(3\left(1 - e^{-\frac{\nu\alpha m}{3}}\right)^2 - 2\left(1 - e^{-\frac{\nu\alpha m}{3}}\right)^3\right) dE}$$

$$\frac{T}{D} = \frac{\varepsilon_T}{\varepsilon_D} = TDCR$$

$\varepsilon_T/\varepsilon_D$  (calculé) = T/D (expérimental)

### Limites du modèle classique (modèle analytique) :

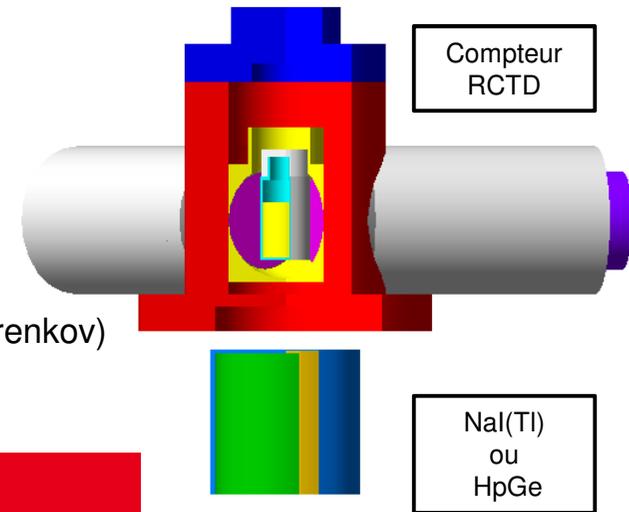
- Non prise en compte de la géométrie et des propriétés optiques de la cavité optique du détecteur
- Mise en évidence d'une source de lumière « parasite » émise en l'absence de source scintillante dans le compteur (dont la nature était à confirmer)
  - Phénomène pouvant entraîner un biais significatif de 1 à 2 % dans la mesure d'activité de  $^{54}\text{Mn}$

### Modèle Monte Carlo Geant4 : Obtenir un modèle proche de la physique et de la géométrie du détecteur

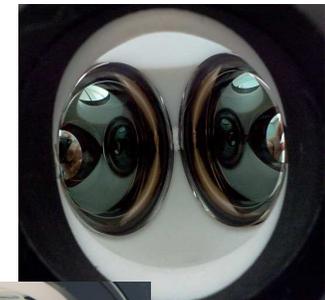
- Alternative avec l'approche classique (modèle analytique) : utilisation de Geant4 combinant la simulation des interactions rayonnement ionisant-matière à celle des photons optiques (scintillation et effet Cerenkov)
- Confirmation de [l'hypothèse de l'émission de photons Cerenkov dans les fenêtres d'entrée des PMs](#) comme source de lumière « parasite » due à la diffusion Compton des photons  $\gamma$
- Extension du modèle à la [mesure primaire par effet Cerenkov](#)
- Utilisation du modèle RCTD-Geant4 à l'étude des limites du modèle classique ([prévenir les risques de biais et mieux évaluer les incertitudes de mesures](#))

## Description physique et optique du compteur RCTD à 3 PMs

- Description du compteur RCTD et détecteur  $\gamma$  (géométrie, matériaux...)
- Propriétés physiques et optiques (modèles, particules, interactions)
- Description de la source (particules, émission, position)
- Transport des particules  $e^-$ ,  $\gamma$  et photons optiques (scintillation et effet Cerenkov)



Éléments du compteur RCTD	Matériaux	Paramètres optiques
PMT-face ( $\varnothing = 52$ mm)	Silice	Milieu dispersif, indice de réfraction = 1,47 à 400 nm et 1,64 à 160 nm Surface : diélectrique-diélectrique Finition : polie (Levin and Moisan, 1996)
PMT-photocathode ( $\varnothing = 46$ mm)	Bialkali ( $K_2CsSb$ )	Indice de réfraction $\sim 2,5$ à 430 nm (Harmer et al., 2006) Surface : diélectrique-diélectrique
Chambre optique	Teflon	Surface : diélectrique-métal réflectivité à 95 % (type lambertien)
Flacon (1 mm layer)	Borosilicate	Milieu dispersif, Indice de réfraction $\sim 1,52$ à 430 nm Surface : diélectrique-diélectrique ; Finition : polie
Solution radioactive (10 mL)	Ultima Gold	Indice de réfraction = 1,5 à 430 nm (correspondant au second fluorophore bis-MSB)



### Calcul stochastique des coïncidences entre les PMs

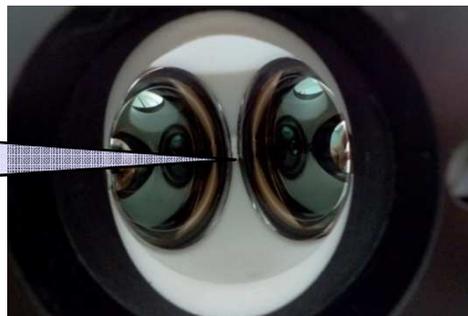
- Désintégration : tirage dans l'ensemble du volume liquide
- Photons produits dans la cavité optique : Scintillation et Cerenkov (aspect directionnel pris en compte)
- Transport des photons : prise en compte des phénomènes de réflexion et de réfraction dans la chambre optique
- Photoélectrons produits dans chaque PMT : tirage binomial appliqué aux photons réfractés par la couche photoémissive du PMT
- Coïncidences calculées à partir des probabilités mutuelles prenant en compte la dépendance entre PMTs

Événements	Photons créés	Comptage de photoélectrons			Détection dans les PMTs			Voie $\beta$	Voie $\gamma$		Coïncidences $\beta$ - $\gamma$
		PMT1	PMT 2	PMT3	PMT1	PMT2	PMT3	coïncidences doubles	E (keV)	Détection	Détection
1	20	5	2	2	1	0	1	1	527	1	1
-	12	3	0	7	1	0	0	0	23	1	0
-	33	4	6	3	1	1	1	1	0	0	0
N	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-

### Émission de photons Cerenkov dans les fenêtres d'entrée des PMTs

- Mise en évidence d'une émission de lumière « parasite » en dehors du flacon grâce à des sources ponctuelles placées dans la cavité optique (sans liquide scintillant)
- hypothèse : émission de photons Cerenkov dans les fenêtres d'entrée des photomultiplicateurs par les électrons générés par l'interaction de photons  $\gamma$

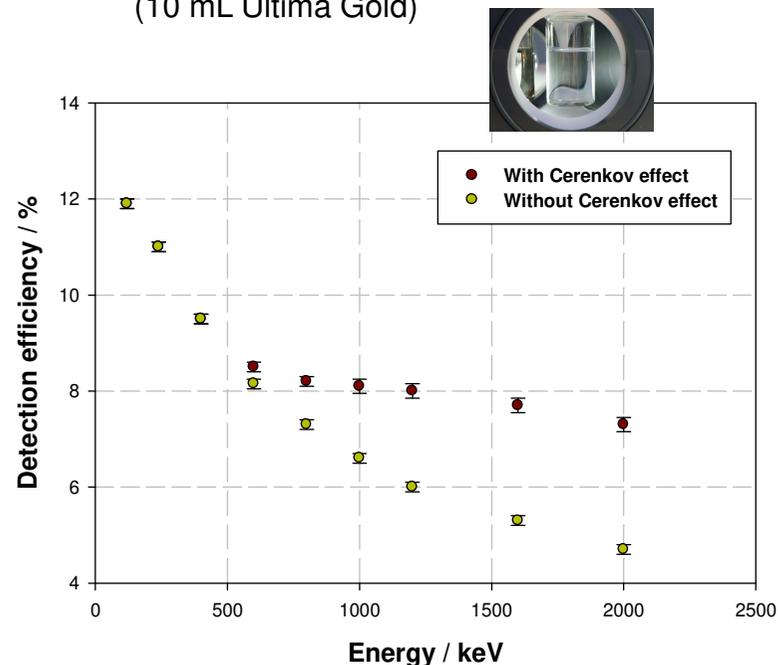
Sources ponctuelles émettrices de photons  $\gamma$  placées au centre de la cavité optique



### Résultats avec des sources ponctuelles

Énergie $\gamma$	Rdt coïncidences doubles / %		RCTD	
	Mesure	Calcul	Mesure	Calcul
662 keV (Cs-137)	0,66 (5)	0,69 (4)	0,15 (1)	0,16 (1)
835 keV (Mn-54)	1,00 (4)	1,2 (1)	0,16 (1)	0,17 (1)
1173-1332 keV (Co-60)	4,5 (1)	4,6 (1)	0,32 (1)	0,33 (2)

Modèle Geant4 : rendements de détection simulés pour des interactions  $\gamma$  dans le compteur LS (10 mL Ultima Gold)

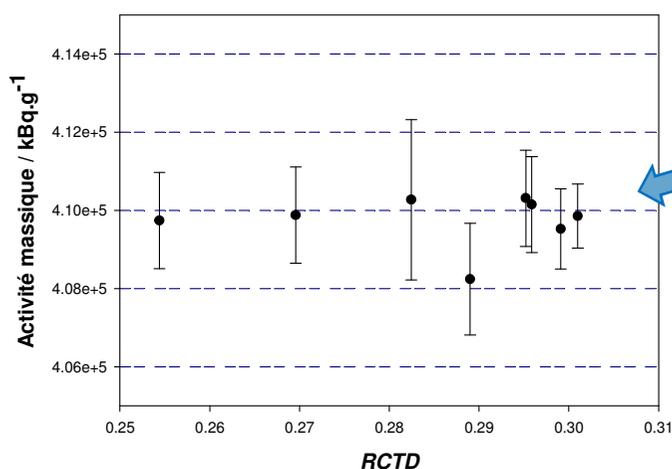


### Application à la mesure d'activité par effet Cerenkov

#### Intérêt :

- Mesure directe en solution aqueuse (pas de scintillateur) : préparation des sources simplifiée, réduction de possibles instabilités chimiques en scintillation liquide
- Propriété discriminante de l'effet de seuil Cerenkov ( $\sim 260$  keV dans l'eau)
  - ➔ Mesure de  $^{32}\text{P}$  ( $E_{\beta\text{max}} \sim 1710$  keV) avec impuretés possibles  $^{33}\text{P}$  ( $E_{\beta\text{max}} \sim 248$  keV) et  $^{35}\text{S}$  ( $E_{\beta\text{max}} \sim 167$  keV)

#### Mesure d'activité $^{11}\text{C}$ par la technique RCTD-Cerenkov



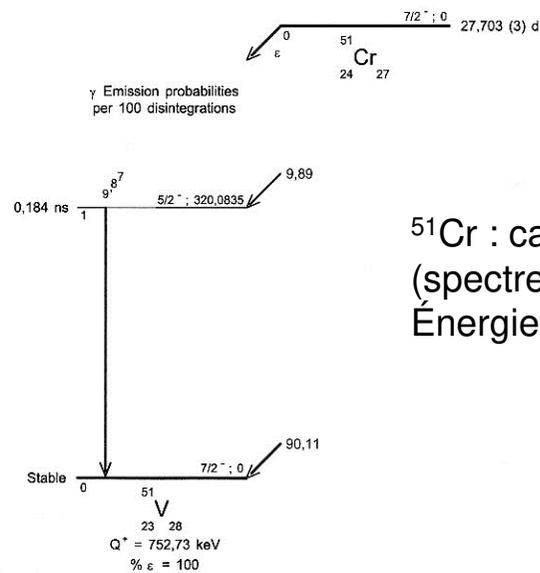
- ✓ Calcul de l'activité pour différentes valeurs expérimentales *RCTD*
- ✓ Pas de tendance observable de l'activité massique en fonction de *RCTD*
- ✓ Estimation de l'incertitude de modèle par variation de paramètres ayant une influence sur le nombre de photoélectrons obtenus dans les PMTs

#### Résultats

- ✓ RCTD-Cerenkov : 410,0 (35) kBq.g<sup>-1</sup>
- ✓ Méthode  $4\pi\beta\text{-}\gamma$  : 411 (2) kBq.g<sup>-1</sup>

## Application à la mesure d'activité par scintillation liquide (1)

→ Mesure d'activité de  $^{51}\text{Cr}$

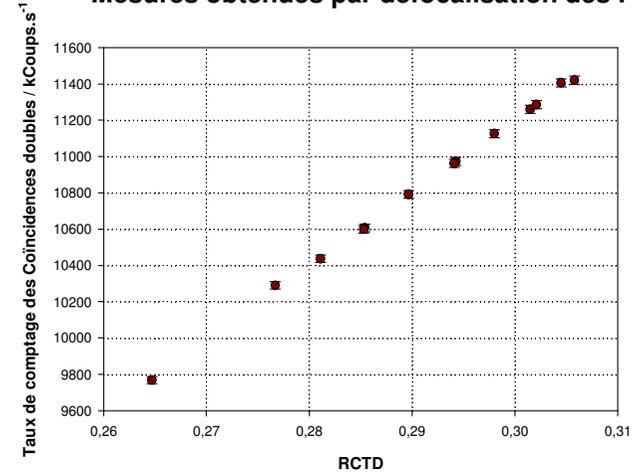


$^{51}\text{Cr}$  : capture électronique (spectre discret)  
Énergie : 4 à 6 keV

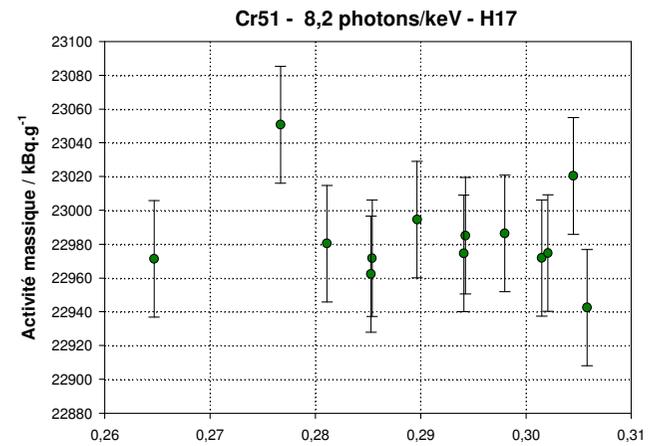
### Comparaison méthodes RCTD et coïncidences $4\pi(\text{SL})\beta\text{-}\gamma$

- Modèle RCTD statistique : 22,05 (12) MBq.g<sup>-1</sup>
- **Modèle RCTD-Geant4** : 22,98 (12) MBq.g<sup>-1</sup>
- Méthode  $4\pi(\text{SL})\beta\text{-}\gamma$  : 22,96 (12) MBq.g<sup>-1</sup>

Mesures obtenues par défocalisation des PMTs



Calcul du rendement de détection avec modèle RCTD-Geant4



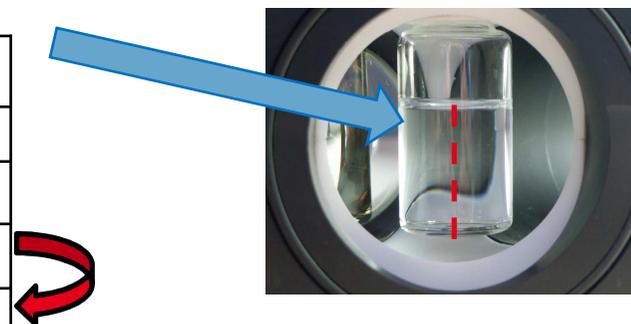
### Application à la mesure d'activité par scintillation liquide (2)

→ Étude de la dépendance de type géométrique entre les PMTs : dans le modèle classique, l'expression des probabilités des coïncidences triples et doubles nécessite l'indépendance des PMTs

RCTD simulé avec des dépôts d'énergies à 5 keV :

- ✓ Selon l'ensemble du volume du liquide scintillateur
- ✓ Sur l'axe central du liquide scintillateur : configuration s'approchant du modèle classique

	Volume Scintillateur	Axe central
RCTD simulé (RCTD-Geant4)	0,3273 (4)	0,4076 (5)
Rdt de détection simulé (RCTD-Geant4)	0,6094 (6)	0,7492 (6)
Rdt de détection calculé (modèle classique)	0,6386 (8)	0,7450 (9)
Écart relatif	4,8 %	~ 0,1 %



- ✓ **Surestimation du rendement de détection avec modèle classique** (simulation volume du scintillateur)
- ✓ **Cohérence des deux modèles pour dépôt d'énergie selon axe central**

→ Problème de dépendance entre PMTs pour dépôt de basses énergies (< 20 keV)

(combinaison entre la position d'origine de l'émission lumineuse dans le liquide scintillant et les processus de réfraction/réflexion dans la cavité optique (en particulier à l'interface verre/air du flacon))

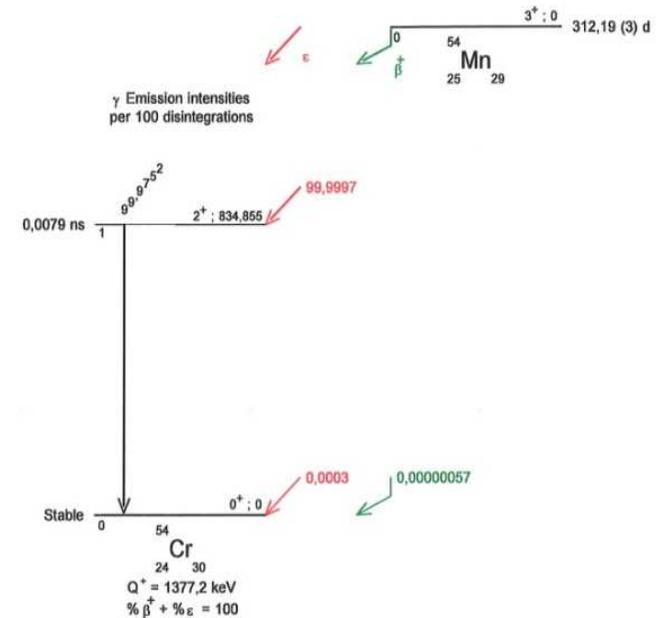
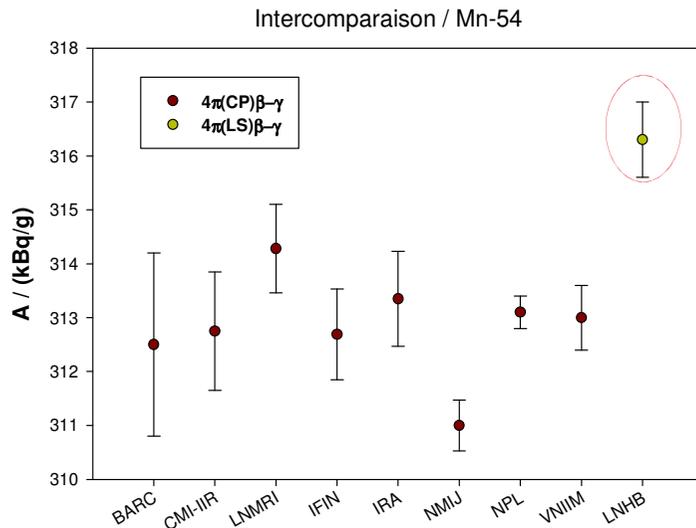
## Application à la mesure d'activité de $^{54}\text{Mn}$ par coïncidences $4\pi\beta\text{-}\gamma$

$^{54}\text{Mn}$  : désintégration par capture électronique

- ✓ émission de photons X et électrons Auger (énergies < 6 keV)
- ✓ désexcitation de  $^{54}\text{Cr}$  : photon  $\gamma$  à 835 keV

Mesurés dans la Voie  $\beta$

Mesuré dans la Voie  $\gamma$



### Comparaison internationale CCRI(II)-K2.Mn-54

- ✓ LNHB : méthode des coïncidences  $4\pi(\text{SL})\beta\text{-}\gamma$
- ✓ Ultima Gold : rendement de détection ~53 %
- ✓ Résultat du LNHB significativement plus élevé (~1,5 %) que les autres participants ( $4\pi(\text{CP})\beta\text{-}\gamma$ )

## Modèle RCTD-Geant4 : application aux coïncidences (2)

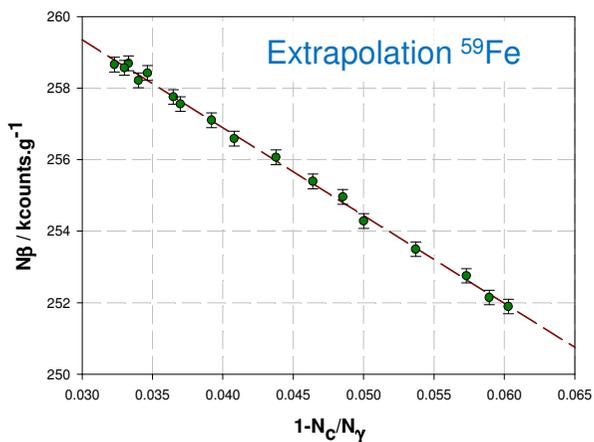
### Application à la mesure d'activité de $^{54}\text{Mn}$ par coïncidences $4\pi\beta\text{-}\gamma$

→ L'activité mesurée :  $A = \frac{N_\beta N_\gamma}{N_c}$

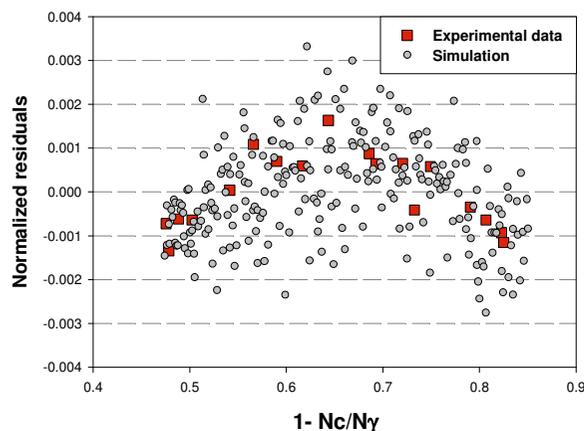
#### → Technique d'extrapolation du rendement

- ✓ Correction des comptages en excès en voie  $\beta$  dus à l'interaction des photons  $\gamma$
- ✓ Application par variation du rendement de détection dans la voie  $\beta$  (défocalisation des PMs, ou ajout d'agent quenchant)
- ✓ Activité déterminée à partir de la fonction d'ajustement des mesures

$N_\beta = A_c [1 - K_{\beta\gamma}(1 - N_c/N_\gamma)]$  → A obtenue par extrapolation  $(1 - N_c/N_\gamma) \rightarrow 0$



#### $^{54}\text{Mn}$ : résidus d'ajustement Fonction affine non valide



→ Biais calculé sur l'activité : 1,0 (3) %

→ biais non prédit par la simulation sans effet Cerenkov

- Approche stochastique du modèle RCTD basée sur Geant4 : première en métrologie de la radioactivité
- Modèle RCTD-Geant4 : outil intéressant pour **prévenir ou comprendre les biais potentiels d'une mesure primaire d'activité** avec la méthode RCTD d'une part, la méthode des coïncidences d'autre part
  - ✓ Confirmation de l'émission de photons Cerenkov dans les fenêtres d'entrée des PMTs par les électrons créés par diffusion Compton : **risque de biais sur la mesure d'activité de  $^{54}\text{Mn}$  ~ 1%**
  - ✓ Développement d'une **nouvelle technique primaire par effet Cerenkov** : RCTD(Cerenkov)-Geant4
    - mesure d'activité de  $^{90}\text{Y}$ ,  $^{32}\text{P}$  et  $^{11}\text{C}$
  - ✓ Étude du problème de la dépendance stochastique entre les PMTs pour les électrons de basses énergies (< 20 keV)
    - Mis en évidence dans le cas du  $^{51}\text{Cr}$  (écart ~4 % entre modèle classique et méthode des coïncidences)
  - ✓ Application du modèle RCTD(SL)-Geant4 pour la mesure d'activité de  $^{51}\text{Cr}$ ,  $^{63}\text{Ni}$  et  $^{60}\text{Co}$  : bon accord avec les références du laboratoire
  - ✓ Application du modèle RCTD-Geant4 à la **simulation de la technique d'extrapolation** pour la mesure d'activité par la méthode des coïncidences  $\beta$ - $\gamma$ 
    - Prédiction de non-linéarités dans la variation du rendement pour certains radionucléides

Bobin C., Thiam C., Bouchard 2017. Standardization of  $^{68}\text{Ge}/^{68}\text{Ga}$  using the  $4\pi\beta\text{-}\gamma$  coincidence method based on Cherenkov counting. *Appl. Radiat. Isot.* In Press, Available online 29 June 2017.

Bobin, C., et al., 2016. Calculation of extrapolation curves in the  $4\pi(\text{LS})\beta\text{-}\gamma$  coincidence technique with the Monte Carlo code Geant4. *Appl. Radiat. Isot.* 109, 319-324

Thiam C., Bobin C., Chauvenet B., Bouchard J., 2012. Application of TDCR-Geant4 modeling to standardization of  $^{63}\text{Ni}$ , *Appl. Radiat. Isot.* 70, 2195-2199.

Bobin C., Thiam C., Chauvenet B., Bouchard J., 2012. On the stochastic dependence between photomultipliers in the TDCR method, *Appl. Radiat. Isot.* 70, 770-780.

Thiam C., Bobin C., Bouchard J., 2011. Radiopharmaceutical  $^{11}\text{C}$  activity measurements by means of the TDCR-Cherenkov method based on a Geant4 model, *Proceedings of the 2010 International Liquid Scintillation Conference (LSC2010)*, 341-348.

Bobin C., Thiam C., Bouchard J., Jaubert, 2010. Application of a TDCR model based on Geant4 for Cherenkov primary measurements, *Appl. Radiat. Isot.* 68, 2366-2371.

Thiam C., Bobin C., Bouchard J. 2010. Simulation of Cherenkov photons emitted in photomultiplier windows induced by Compton diffusion using the Monte Carlo code Geant4, *Appl. Radiat. Isot.* 68, 1515-1518.

Commissariat à l'énergie atomique et aux énergies alternatives  
Centre de Saclay | 91191 Gif-sur-Yvette Cedex  
T. +33 (0)1 69 08 52 47 | F. +33 (0)1 69 08 26 19

Etablissement public à caractère industriel et commercial | RCS Paris B 775 685 019

DRT/LIST  
DM2I

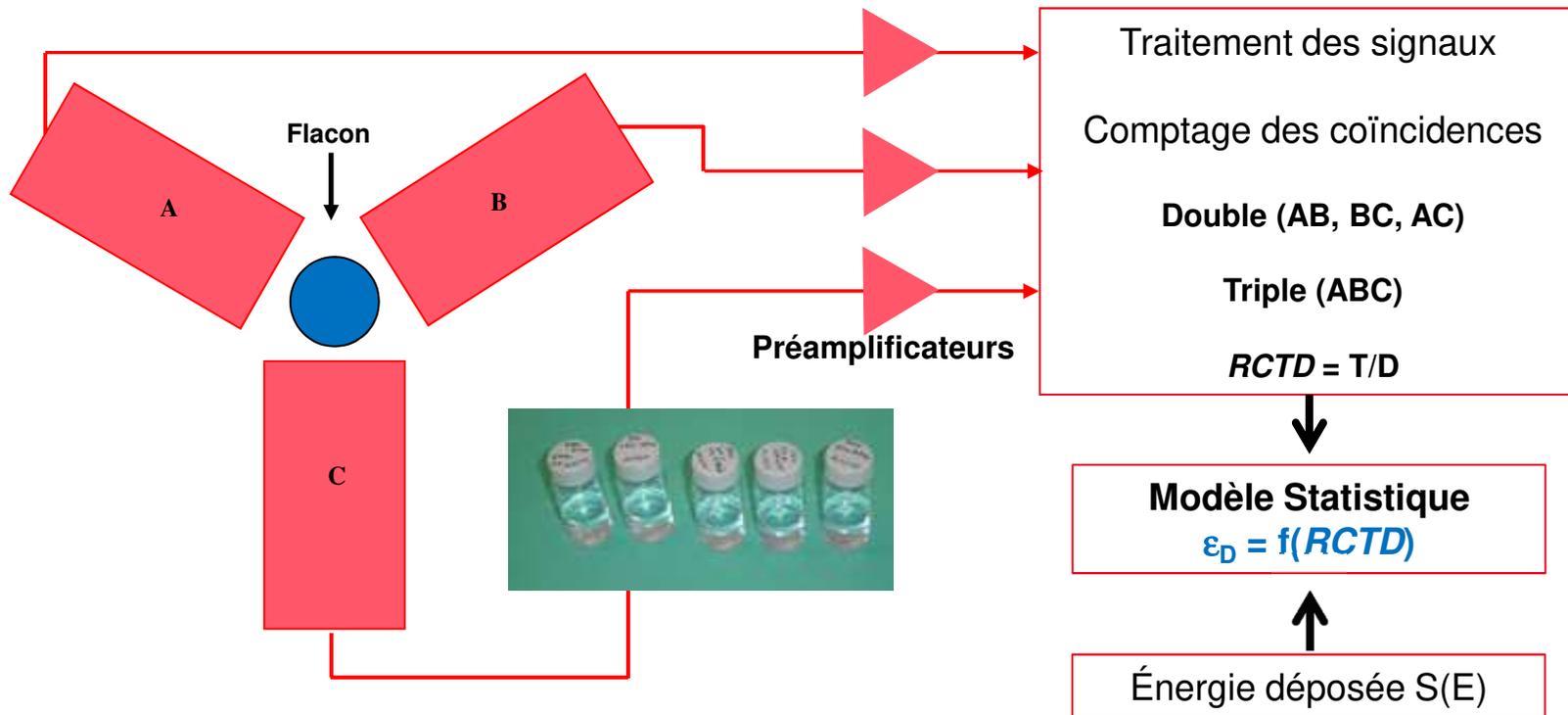
Laboratoire National Henri Becquerel  
Laboratoire de Métrologie de l'Activité

FROM RESEARCH TO INDUSTRY

cea tech

list

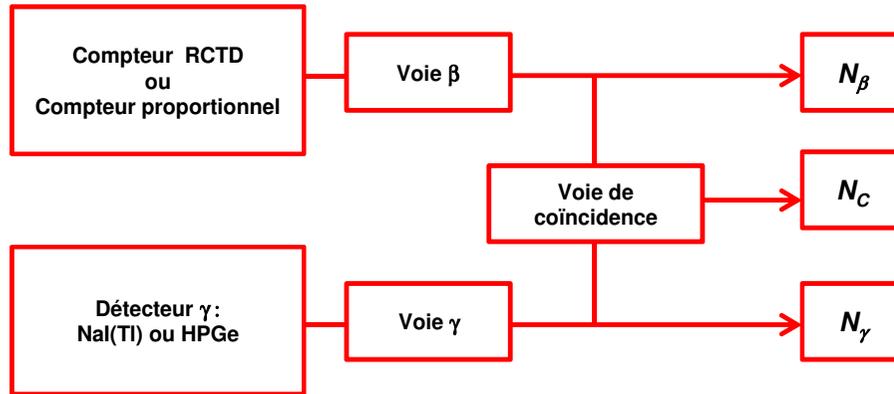
## La méthode RCTD (Rapport des Coïncidences Triples à Doubles)



### → Utilisation d'un modèle statistique de l'émission de lumière dans le compteur RCTD

- Hypothèses de calcul (émission de lumière, distribution dans le compteur....)
- Calcul des rendements de détections des coïncidences doubles et triples, en fonction de l'énergie S(E)

## Mesure des taux de comptages dans les trois voies



$$N_{\beta} = A \cdot \left[ \varepsilon_{\beta} + (1 - \varepsilon_{\beta}) \cdot \frac{\alpha_T \cdot \varepsilon_{CI} + \varepsilon_{\beta\gamma}}{1 + \alpha_T} \right]$$

$$N_C = A \cdot \left[ \frac{\varepsilon_{\beta} \cdot \varepsilon_{\gamma}}{1 + \alpha_T} + (1 - \varepsilon_{\beta}) \cdot \varepsilon_C \right]$$

$$N_{\gamma} = A \cdot \left[ \frac{\varepsilon_{\gamma}}{1 + \alpha_T} \right]$$

$$\Rightarrow N_{\beta} = A \cdot \left[ 1 - \left( 1 - \frac{N_C}{N_{\gamma}} \right) \cdot K \right] = A \cdot F \left( 1 - \frac{N_C}{N_{\gamma}} \right)$$

Fonction affine :

- Variable : inefficacité mesurée  $(1 - N_C/N_{\gamma})$
- Pente : dépend de la sensibilité de la voie  $\beta$  à la transition  $\gamma$
- Application de la technique d'extrapolation (ajustement linéaire des points expérimentaux)

