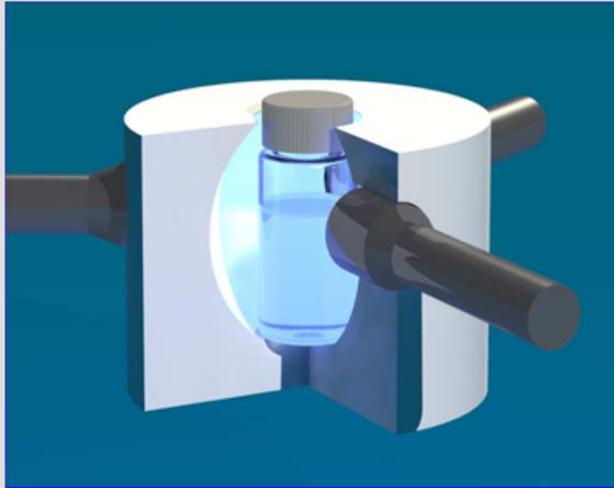
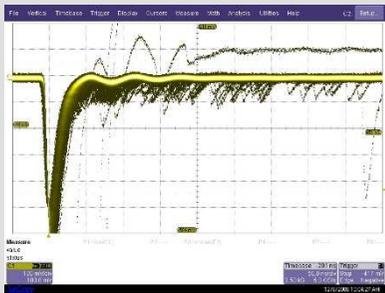




Journées Utilisateurs LNHB



TESTS INTERLABORATOIRES DU LNHB : MESURES PAR SCINTILLATION LIQUIDE

JU LNHB 2017 | Philippe Cassette, Isabelle Tartès



16 et 17 mars 2017



Contexte, champ d'application

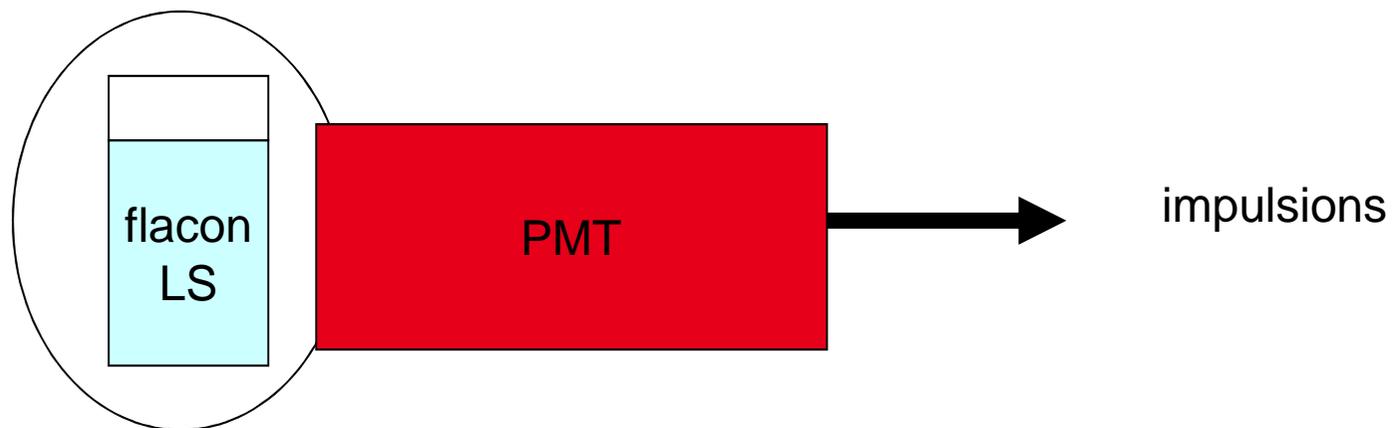
- Mesures SL pour étalonner les solutions utilisées pour préparer le mélange et pour caractériser le mélange après préparation
- Mesures primaires ou secondaires, traçables SI
- Radionucléides se désintégrant par transition bêta pure, par transition bêta accompagnée de désexcitation gamma de basse énergie ou par capture électronique sans désexcitation gamma
- Exemples : ^3H , ^{14}C , ^{63}Ni , ^{99}Tc , ^{241}Pu , ^{129}I , ^{55}Fe ...
- Solution d'activité massique $\geq \sim 100$ Bq/g : mesure primaire RCTD traçable au SI
- Solution d'activité massique $\leq \sim 100$ Bq/g : mesure secondaire traçables à des étalons primaires
- Traçabilité SI via comparaisons internationales

Caractérisation des solutions

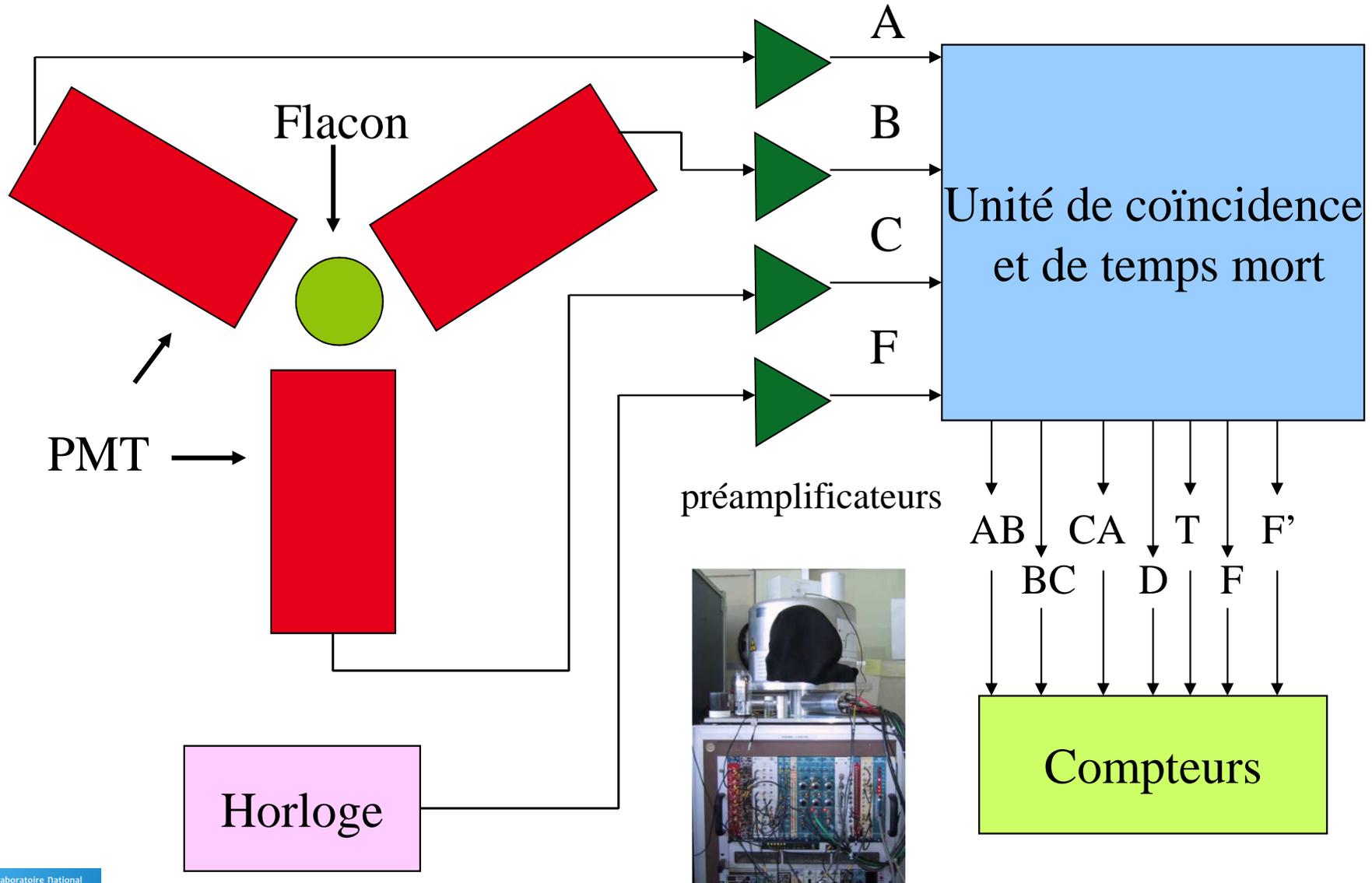
- Etalonnage des solutions initiales : activités de quelques dizaines à quelques centaines de kBq/g. Mesure d'impuretés (*cf.* spectro gamma), mesures RCTD, incertitudes-type relatives $\leq 1\%$
- Dilutions (contrôle par pesée et par mesures relatives)
- Après réalisation de la solution PTI :
 - Séparation (chimique, distillation)
 - Mesure d'activité (si basse activité, mesure relative)
 - Suivi de stabilité (répétition des mesures sur quelques mois)

Mesure par scintillation liquide

- Prendre une aliquote de la solution radioactive à mesurer
- Mélanger avec un scintillateur liquide dans un flacon *ad-hoc*
- Compter le nombre d'impulsions par unité de temps, N
- Calculer le rendement de détection, ε
- Activité de la source : $A=N/\varepsilon$



Méthode RCTD



Calcul du rendement de détection

- La statistique d'émission de photons a une distribution de Poisson
- Chaque photomultiplicateur peut détecter des photons uniques
- La non-linéarité d'émission de lumière est décrite par la loi de Birks
- Le spectre de l'énergie absorbée par le scintillateur, $S(E)$, est calculable

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

P_T et P_D : probabilités de détection en coïncidences triples et doubles

kB : coefficient de non linéarité

A : rendement intrinsèque du scintillateur (en nombre de photons par keV)

ν : rendement quantique des photocathodes des PM

Méthode RCTD

Pour un grand nombre de désintégrations observées :

Le rapport des taux de comptages en coïncidences triples et doubles est égal au rapport des probabilités de détection en coïncidence triples et doubles

$$\frac{P_T}{P_D} = \frac{T}{D} = RCTD$$

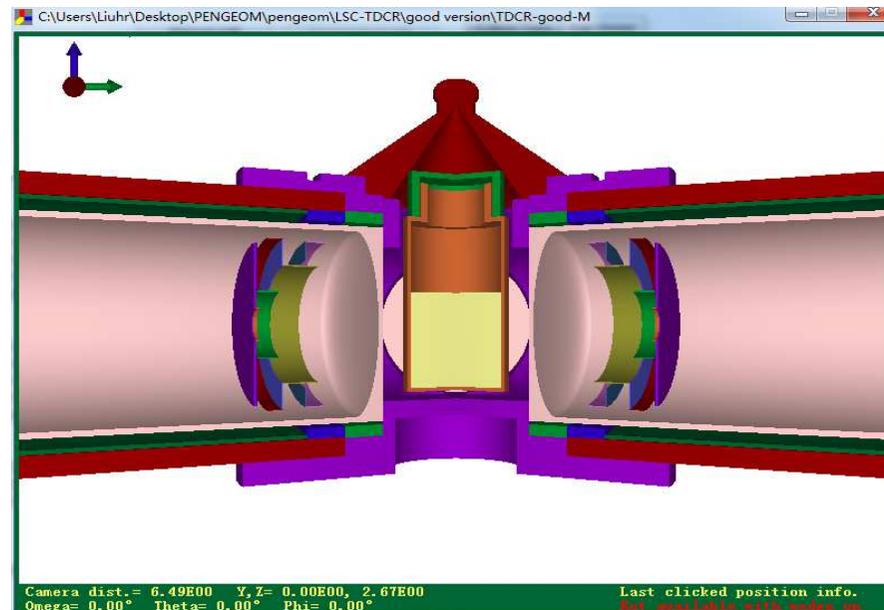
On cherche la valeur du paramètre libre νA pour lequel le rapport des probabilités calculées est égal au rapport des fréquences observées
Cela permet de calculer le rendement de détection...

Radionucléides bêta purs : 1 solution

Captures électroniques : en général 3 solutions

Calcul du spectre $S(E)$

- Pour des radionucléides bêta purs, $S(E)$ est le spectre bêta calculé
- Pour les radionucléides émettant du rayonnement X ou γ , $S(E)$ est calculé avec un code Monte Carlo d'interaction rayonnement-matière (PENELOPE)



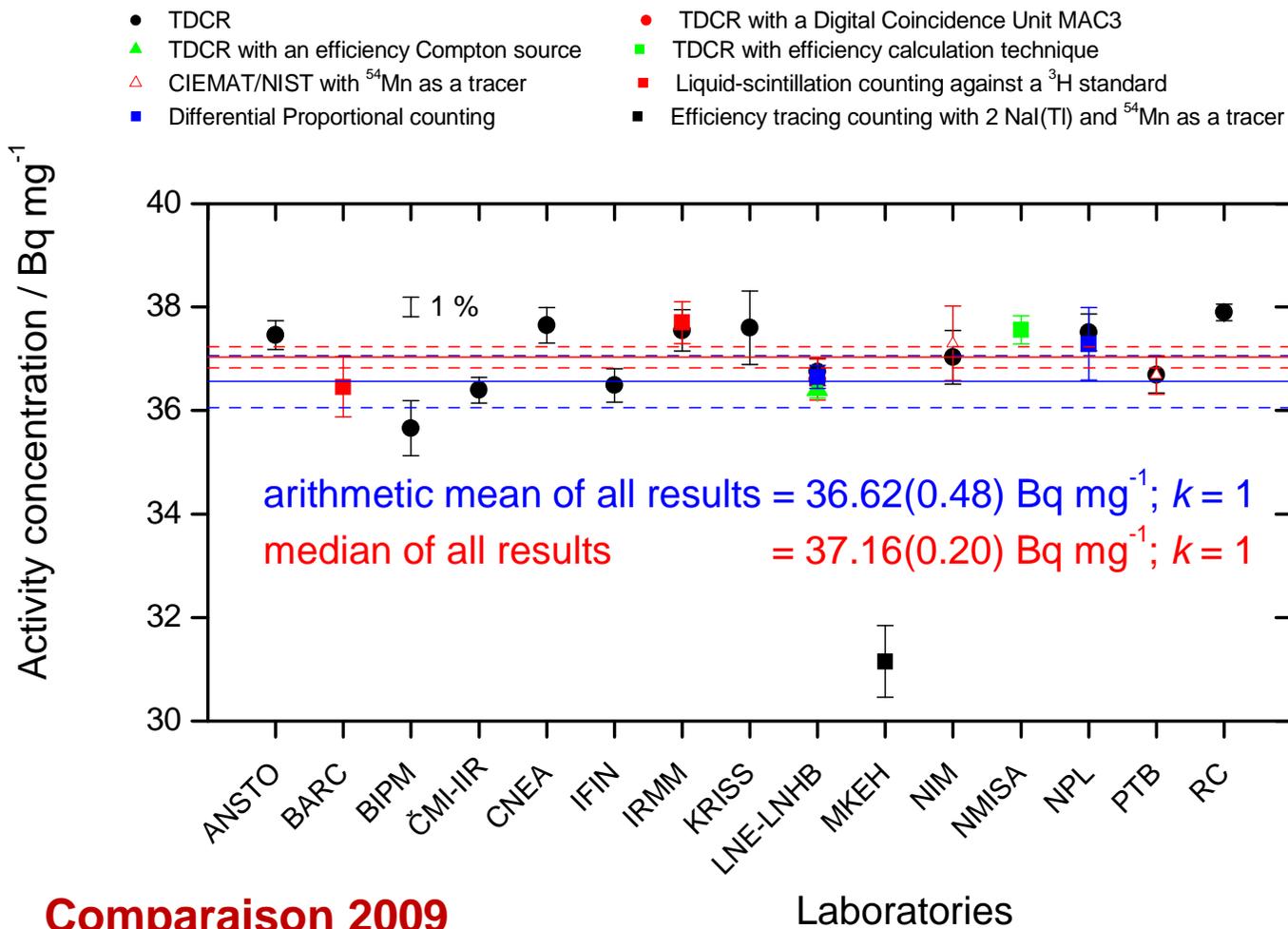
Modélisation détaillée du scintillateur et du compteur

Bilan d'incertitudes, exemple ^3H

	LNE-LNHB	
Contribution	u(a) %	Commentaire
Incertitude de comptage	0.16	Incluant la variabilité entre sources
Pesée	0.01	
Bruit de fond	0.03	
Temps mort	<0.01	Incertitude de l'horloge temps réel
Temps de résolution coïncidences	-	Inclus dans « temps mort »
Empilements	0.02	Probabilité d'occurrence d'impulsions multiples pendant le temps de coïncidence
Schéma de désintégration	-	
Période	0.01	
Impuretés	-	Pas d'impuretés observées
Adsorption	-	
Asymétrie du compteur	-	Considéré dans le calcul de rendement de détection
Temps de comptage	-	négligeable
Facteur de non-linéarité	0.64	Facteur kB
Stabilité, reproductibilité	-	Pas d'instabilité observée
Incertitude-type relative composée	0.66	Somme quadratique

Traçabilité internationale, exemple ^3H

International comparison of activity measurements of a solution of ^3H
All results (22)

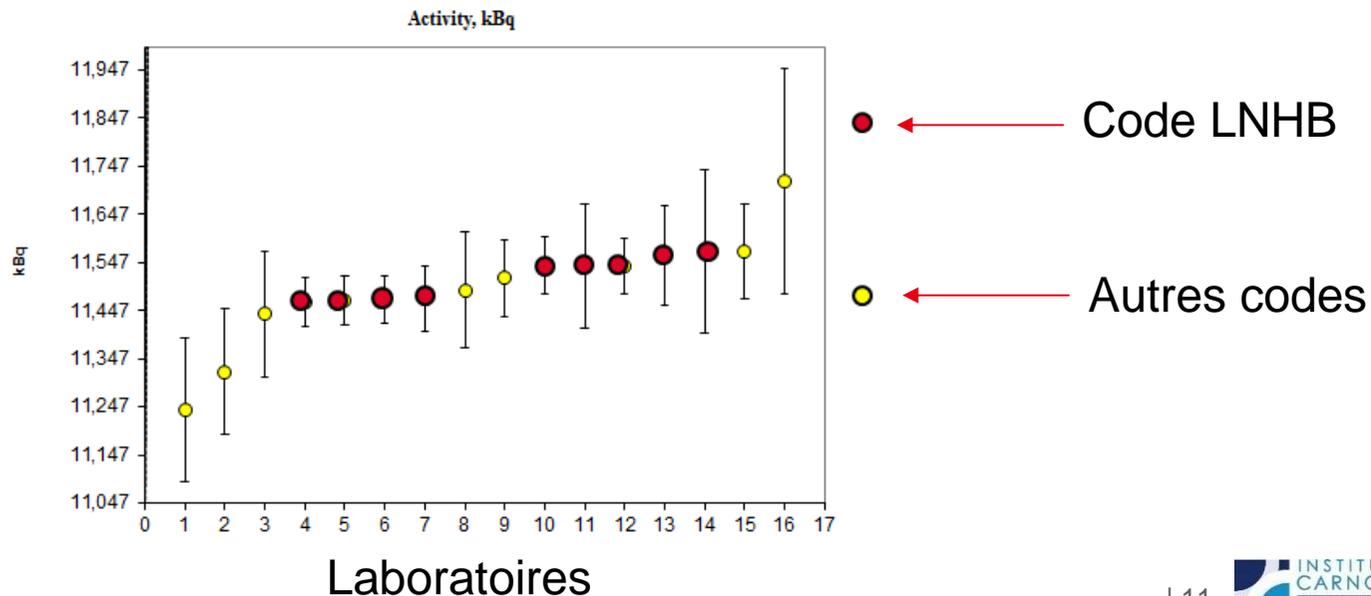


Comparaison 2009

Traçabilité internationale

- Vérification de la compatibilité avec les mesures des autres laboratoires nationaux de métrologie. Le LNHB se l'impose pour délivrer des certificats avec le logo COFRAC
- Donne la traçabilité SI... mais prouve seulement que l'on est en accord avec la valeur de référence définie par consensus international.
- Mais les mesures ne sont pas toujours indépendantes...

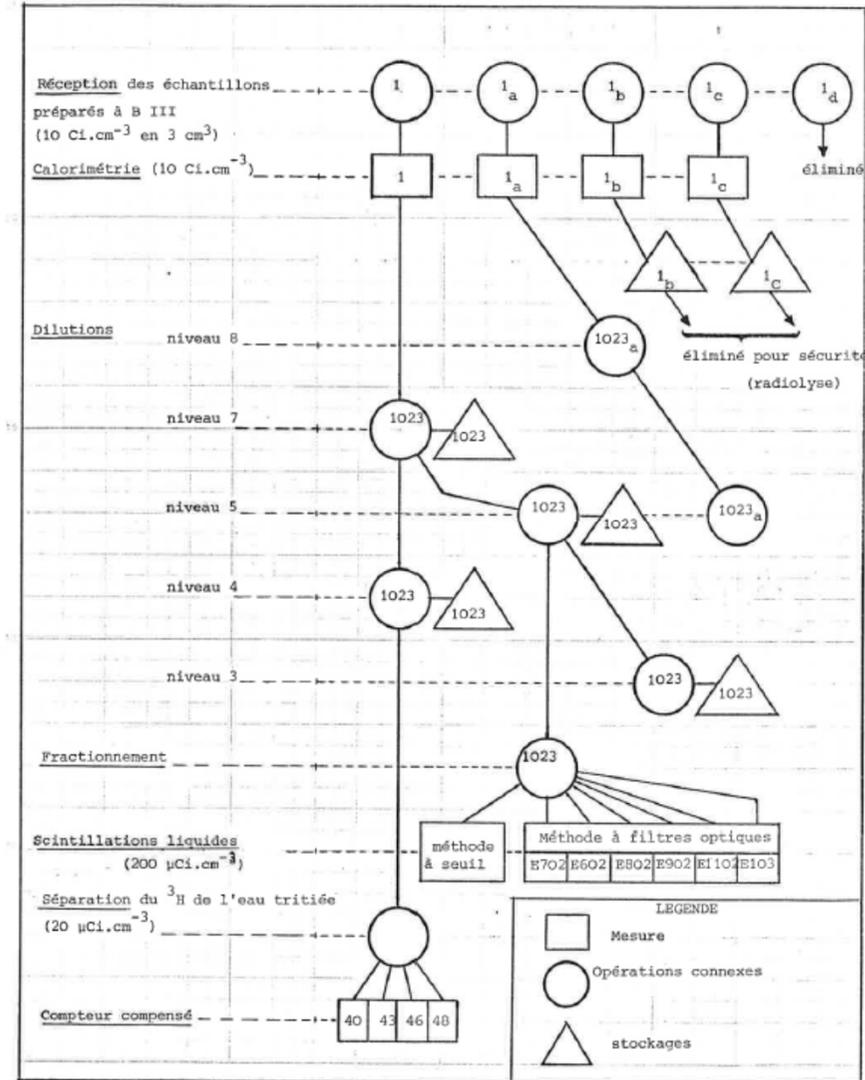
Exemple de comparaison internationale sur les calculs RCTD en 2016



Historique de l'étalon ^3H du LNHB

- Mesure initiale (1/12/1979) par calorimétrie d'une source de 30 Ci (370 GBq/g)
- Mesures initiales données avec une incertitude de 1,1 % ... avec un niveau de confiance de 99,7% (sic). Cela correspond à une incertitude-type relative de 0,37%
- Dilutions successives et caractérisation de l'activité de chaque niveau (incertitude-type relative de 0,8% pour chaque niveau)
- sur 38 ans, l'incertitude du calcul de décroissance est importante

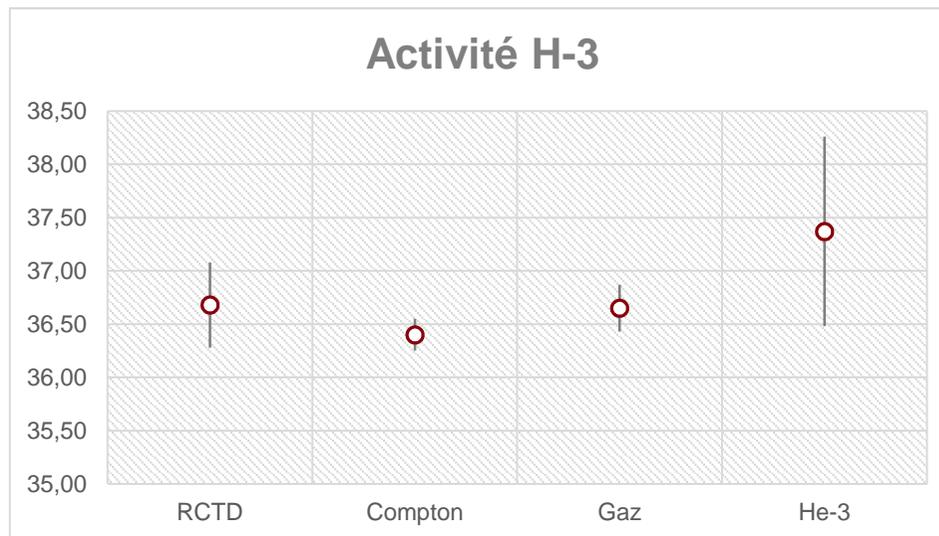
Fig. 1 : Synoptique de la manipulation tritium



Caractérisations complémentaires

L'étalon ^3H a également été mesuré par les méthodes suivantes:

- Mesure par compteurs proportionnels compensés en longueur après réduction de l'eau tritiée en hydrogène tritié (conservation de l'activité molaire lors de la conversion)
- Mesure SL par traceur Compton (spectre Compton créé par une source ^{241}Am externe)
- Mesure par croissance de ^3He (spectrométrie de masse, coopération avec CEA/LSCE). L'incertitude dominée par celle des étalons ^3He



On utilise, quand c'est possible, des méthodes de mesure physiquement différentes pour valider les mesures d'activité

Mesures secondaires

- La mesure RCTD permet d'obtenir une incertitude-type inférieure à 1% (dépend du radionucléide : règle générale, plus l'énergie est faible et plus l'incertitude est grande). Exemple : ^3H : $\approx 0,6\%$
- Si la solution à mesurer est de faible activité (i.e. \leq blanc) on peut utiliser:
 - Un compteur commercial étalonné avec des étalons primaires... après s'être assuré que la réponse de l'appareil est linéaire avec l'activité
 - La méthode des ajouts dosés

Ajouts dosés

- Fabrication d'une source scintillante avec une masse m_0 de solution active
- Mesure initiale de la source scintillante : taux de comptage N_0
- Ajout d'une **faible masse** (m), pesée précisément, d'une solution étalon d'activité massique A_m
- Nouvelle mesure de la source avec étalon : taux de comptage N
- Excès de taux de comptage dû à l'activité de l'étalon $A_m \cdot m$ est : $N - N_0$
- Rendement de détection : $(N - N_0) / (A_m \cdot m)$
- Activité massique de la source initiale : $N_0 \cdot (A_m \cdot m) / ((N - N_0) \cdot m_0)$

Cette méthode ne fonctionne que si l'on ajoute une quantité d'étalon négligeable devant celle de la solution ($m \ll m_0$), pour ne pas changer la composition, donc le quenching de la source

Conclusions

- Les valeurs de référence utilisée pour la détermination de la valeur assignée des tests interlaboratoires organisées par le LNHB sont en général issues de mesures primaires ou directement traçables à des mesure primaires
- Du fait du statut du LNE-LNHB (laboratoire national de métrologie pour les unités de radioactivité) ces étalons sont traçables au SI.
- Cette traçabilité est attestée par des certificats portant le logo COFRAC

La reproduction de ce document n'est autorisée que sous forme de fac-similé photographique intégral.
Le Cofrac est signataire de l'accord multilatéral de EA et d'ILAC de reconnaissance de l'équivalence des certificats d'étalonnage.





gracias	σας ευχαριστώ	
	благодаря	ngiyabonga
Dankie	obrigado	grazie
köszönöm	THANK YOU	谢谢
አመሰግናለሁ	спасибо	kiitos
təşəkkür edirəm	شكرا	Merci
tak	falemnderit	তোমাকে ধন্যবাদ
tapadh leibh	danke	dankon
eskerrik asko	ꠘꠗꠘꠗ ꠘ	
Շնորհակալություն		hvala
고맙습니다	pakka pér	ありがとう
enkosi	dank u	gràcies