

Étude des schémas de désintégration de ^{108m}Ag et ^{110m}Ag

L. Ferreux, M.-C. Lépy, M.-M. Bé,
V. Lourenço, M.A. Kellett

- Introduction
 - Contexte et évaluations de données
 - Préparation des échantillons
 - Dispositif expérimental et étalonnage
 - Mesures des intensités d'émission
 - Principe
 - ^{108}mAg
 - ^{110}mAg

- Conclusions

INTRODUCTION : DECAY DATA EVALUATION PROJECT (DDEP)

- Un groupe international a été créé en 1995. Cette collaboration est coordonnée par le LNHB depuis mi-2012.
 - Mise en commun de nos travaux dans le cadre d'une collaboration internationale rassemblant les meilleurs spécialistes.
 - Les évaluations sont faites suivant une méthodologie commune, les évaluations revues par un (ou plusieurs) relecteur(s).
- Les résultats sont compilés, édités par le LNHB et publiés comme Monographie BIPM-5, document de référence pour les inter-comparaisons internationales (décision du CCRI-(II)).
- L'évaluation de données fait souvent apparaître des défauts ou méconnaissance des schémas de désintégration.
- Il devient nécessaire de procéder à de nouvelles mesures (mesure absolue d'activité, détermination des intensités gamma, de période radioactive, etc.).
- À l'aide de ces nouveaux résultats, un nouveau schéma de désintégration pourrait être établi.



DECAY DATA EVALUATION PROJECT (DDEP) – MEMBRES

- Les spécialistes dans ce groupe :

Mark A. Kellett (Coordinateur), Xavier Mougeot & Christophe Dulieu (IT)
(LNHB, France)

Alan L. Nichols

Surrey Université, RU

Aurelian Luca

IFIN, Roumanie

Huang Xiaolong

CIAE, Chine

Valery P. Chechev & Nikolai Kuzmenko

KRI, Russie

Andy Pearce & Arzu Arinc

NPL, RU

- Et des nouveaux membres depuis 2016 :

Brian Zimmerman Herbert Janssen

NIST, EU

PTB, Allemagne

Haoran Liu

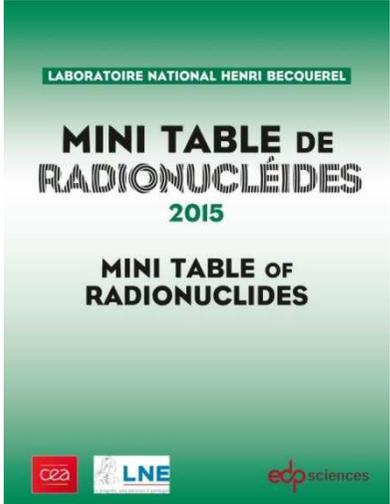
NIM, Chine

Mónica Galán

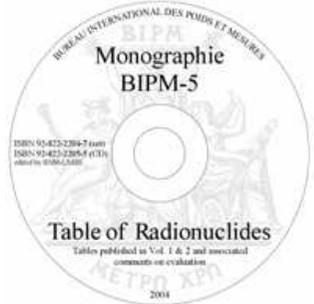
CTBTO

- Avec l'aide de **Tibor Kibédi (ANU, Australie) – Brlcc & BrlccMixing codes** – et d'autres spécialistes qui nous aident avec des revues, par ex. **Eddie Browne (LBNL, EU), Jag Tuli (BNL, EU), Balraj Singh (McMaster, Canada), Des MacMahon (ret. NPL, RU), et al.**

PUBLICATIONS DES SCHÉMAS DE DÉCROISSANCE (1)



EDP Sciences



PUBLICATIONS DES SCHÉMAS DE DÉCROISSANCE (2)

- Volume 7 de la Monographie BIPM-5 a été publié en février 2013 (29 radionucléides):

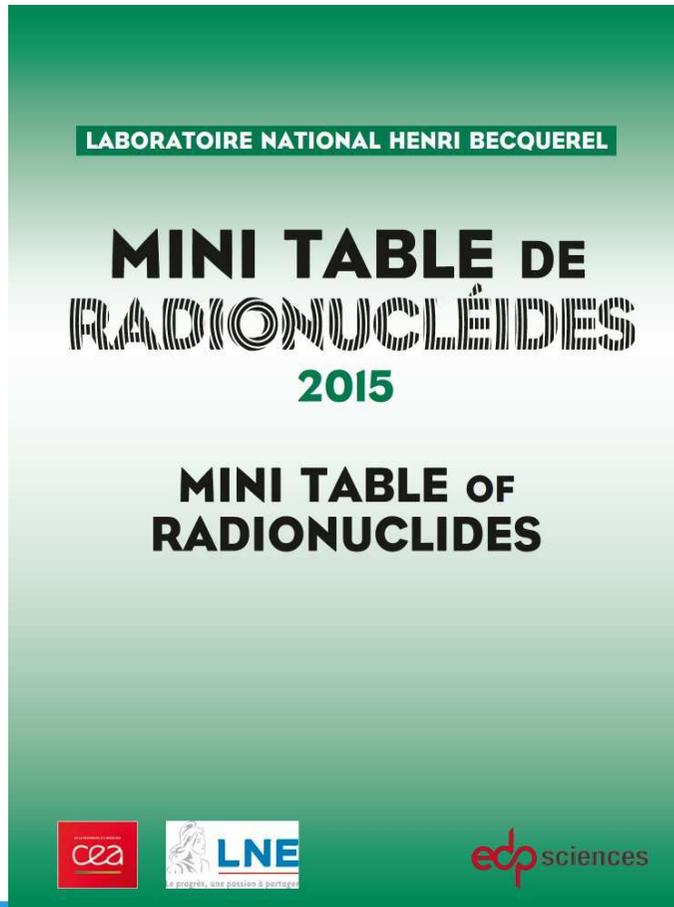
^{14}C , ^{35}S , ^{36}Cl , ^{37}Ar , ^{45}Ca , ^{67}Ga , ^{68}Ga , ^{68}Ge , ^{127}Sb , ^{127}Te , $^{127\text{m}}\text{Te}$, ^{134}Cs , ^{141}Ce , ^{147}Nd , ^{147}Pm , ^{195}Au , ^{206}Hg , ^{207}Tl , ^{208}Tl , ^{209}Tl , ^{211}Pb , ^{211}At , ^{213}Bi , ^{215}Bi , ^{228}Th , ^{242}Cm , ^{243}Cm , ^{244}Cm , ^{245}Cm
- Volume 8 de la Monographie BIPM-5 a été publié en décembre 2016 (32 radionucléides):

^{41}Ca , ^{47}Sc , ^{52}Fe , ^{58}Co , ^{61}Cu , ^{63}Zn , ^{73}Se , ^{82}Rb , ^{82}Sr , ^{88}Y , ^{89}Zr , ^{93}Zr , $^{93\text{m}}\text{Nb}$, $^{94\text{m}}\text{Tc}$, ^{106}Ru , ^{106}Rh , ^{109}Cd , ^{131}I , ^{127}Xe , $^{131\text{m}}\text{Xe}$, ^{133}Ba , ^{140}Ba , ^{138}La , ^{140}La , ^{144}Ce , ^{144}Pr , $^{144\text{m}}\text{Pr}$, ^{148}Pm , $^{148\text{m}}\text{Pm}$, ^{151}Sm , ^{169}Er , ^{198}Au
- Metrologia Special Issue, “Uncertainties in Nuclear Decay Data Evaluations”,

M.-M. Bé, V.P. Chechev, A. Pearce, publié le 22 mai 2015, Metrologia 52 (2015) S66–S72

MINI TABLE DE RADIONUCLÉIDES 2015

Nouvelle édition de la Mini Table de Radionucléides publiée en mars 2015, vendue et distribuée par EDP Sciences (25 €) : ~1 200 copies vendues

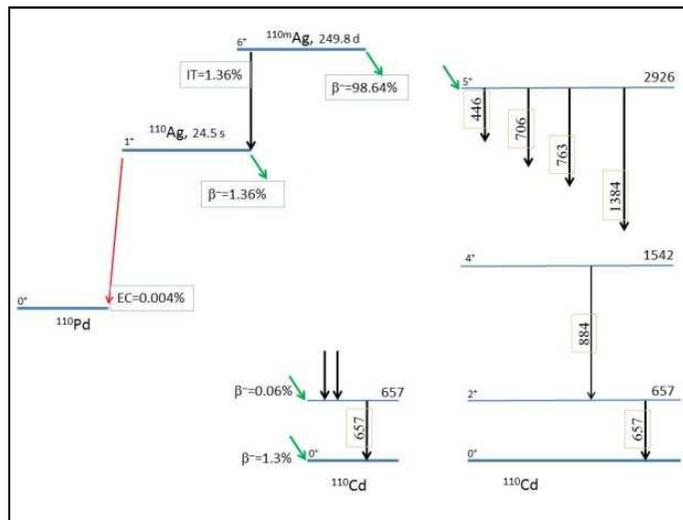


61 29 Cu	$T_{1/2}$: 3,366 (33) h Copper / Cuivre
Descendant(s): (β^- , ϵ , 100 %) Ni-61 Q^+ : 2237,5 keV	
Electrons (10 lines) - $\Sigma(I_e)$ omitted: 0,6 %	
Energy (keV)	Intensity (%) Type Origin
0,6 - 1	51,2 Auger L Ni-61
6,3 - 8,3	20,0 Auger K Ni-61
Beta + (8 lines) - $\Sigma(I_{\beta^+})$ omitted: 0,035 %	
E max. (keV)	E avg. (keV) Intensity (%)
559,5	238,5 2,52
932,5	398,9 5,4
1 148,1	493,8 2,1
1 215,5	523,8 51,6
X (4 lines) - $\Sigma(I_X)$ omitted: 0,44 %	
Energy (keV)	Intensity (%) Type Origin
7,46	4,33 $X_{K\alpha 2}$ Ni-61
7,48	8,4 $X_{K\alpha 1}$ Ni-61
8,3	1,76 $X_{K\beta 1}$ Ni-61
Gamma (34 lines) - $\Sigma(I_\gamma)$ omitted: 1,9 %	
Energy (keV)	Intensity (%) Type Origin
67,41	4,0 γ Ni-61
282,96	12,0 γ Ni-61
373,05	2,09 γ Ni-61
511	123 γ_{\pm}
588,61	1,15 γ Ni-61
656,01	10,4 γ Ni-61
908,63	1,12 γ Ni-61
1 185,23	3,6 γ Ni-61
Production mode	Possible impurities
Ni-61 (p, n) Cu-61	-
Zn-64 (p, α) Cu-61	-
Cu-63 (γ , 2n) Cu-61	-
Reference: CEA/LNE-LNHB - 2013	

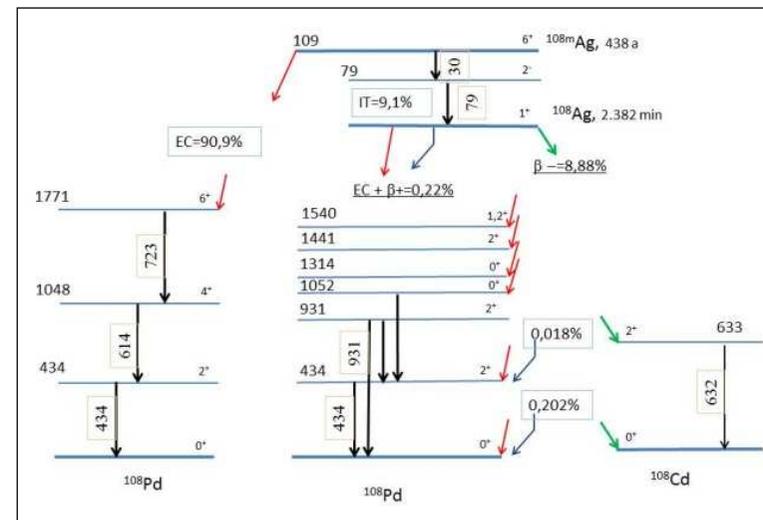
241 95 Am	$T_{1/2}$: 432,6 (6) a Americium / Américium
Descendant(s): (α , 100 %) Np-237 ($2,144 \times 10^6$ a) Q^+ : 5637,82 keV	
Alpha (23 lines) - $\Sigma(I_\alpha)$ omitted: 0,7 %	
Energy (keV)	Intensity (%) Type Origin
5 388,25	1,66 α Am-241
5 442,86	13,23 α Am-241
5 485,56	84,45 α Am-241
Electrons (48 lines) - $\Sigma(I_e)$ omitted: 2,6 %	
Energy (keV)	Intensity (%) Type Origin
6,3	14 ec L Np-237
6 - 13,5	33,4 Auger L Np-237
13,2	15,9 ec L Np-237
21,6	3,7 ec M Np-237
23,4	8,8 ec L Np-237
28,5	4,0 ec M Np-237
32,2	1,08 ec N Np-237
38,7	2,3 ec M Np-237
39,5	30,2 ec L Np-237
54,8	8,12 ec M Np-237
X (9 lines) - $\Sigma(I_X)$ omitted < 0,01 %	
Energy (keV)	Intensity (%) Type Origin
11,89	0,544 $X_{L\alpha}$ Np-237
13,85	13,02 $X_{L\alpha}$ Np-237
15,88	0,384 $X_{L\gamma}$ Np-237
16,96	18,58 $X_{L\beta}$ Np-237
21,16	4,83 $X_{L\gamma}$ Np-237
Gamma (179 lines) - $\Sigma(I_\gamma)$ omitted: 0,29 %	
Energy (keV)	Intensity (%) Type Origin
26,34	2,31 γ Np-237
59,54	35,92 γ Np-237
Production mode	Possible impurities
Pu-241 (β^-) Am-241	$T_{1/2} = 14,33$ a
Reference: KRI - 2009	

PROBLÉMATIQUE POUR L'AG-108M ET L'AG-110M

- ^{110m}Ag and ^{108m}Ag sont produits dans des réacteurs nucléaires, mais leurs périodes sont très différentes :
- $^{110m}\text{Ag} = 249,78 \text{ j}$ → Accident avec relâchement dans l'atmosphère
- $^{108m}\text{Ag} = 438 \text{ a}$ → Stockage de déchets radioactives
- Les schémas sont complexes avec deux modes de désintégration :



Les mesures des intensités ne sont pas toujours cohérents



Seulement quelques mesures dans les années 1970s

PRÉPARATION DES ÉCHANTILLONS ET MESURE D'ACTIVITÉ

- Activation par neutron de ^{109}Ag poudre métallique (99,75 % ^{109}Ag , avec ^{107}Ag en impureté):



Section efficace : $^{107}\text{Ag}(n,\gamma)^{108\text{m}}\text{Ag}$ moins que $^{109}\text{Ag}(n,\gamma)^{110\text{m}}\text{Ag}$

- Dissolution dans 14M HNO_3
- Dilution \rightarrow 14mL de solution dans 3,9M HNO_3 media (SG15 géométrie)
- Mesures d'activités massiques (A_m) et analyse d'impuretés par gamma-ray spectrométrie :

$$^{108\text{m}}\text{Ag} = 270 \text{ (8) Bq.g}^{-1}$$

$$^{110\text{m}}\text{Ag} = 13400 \text{ (190) Bq.g}^{-1}$$

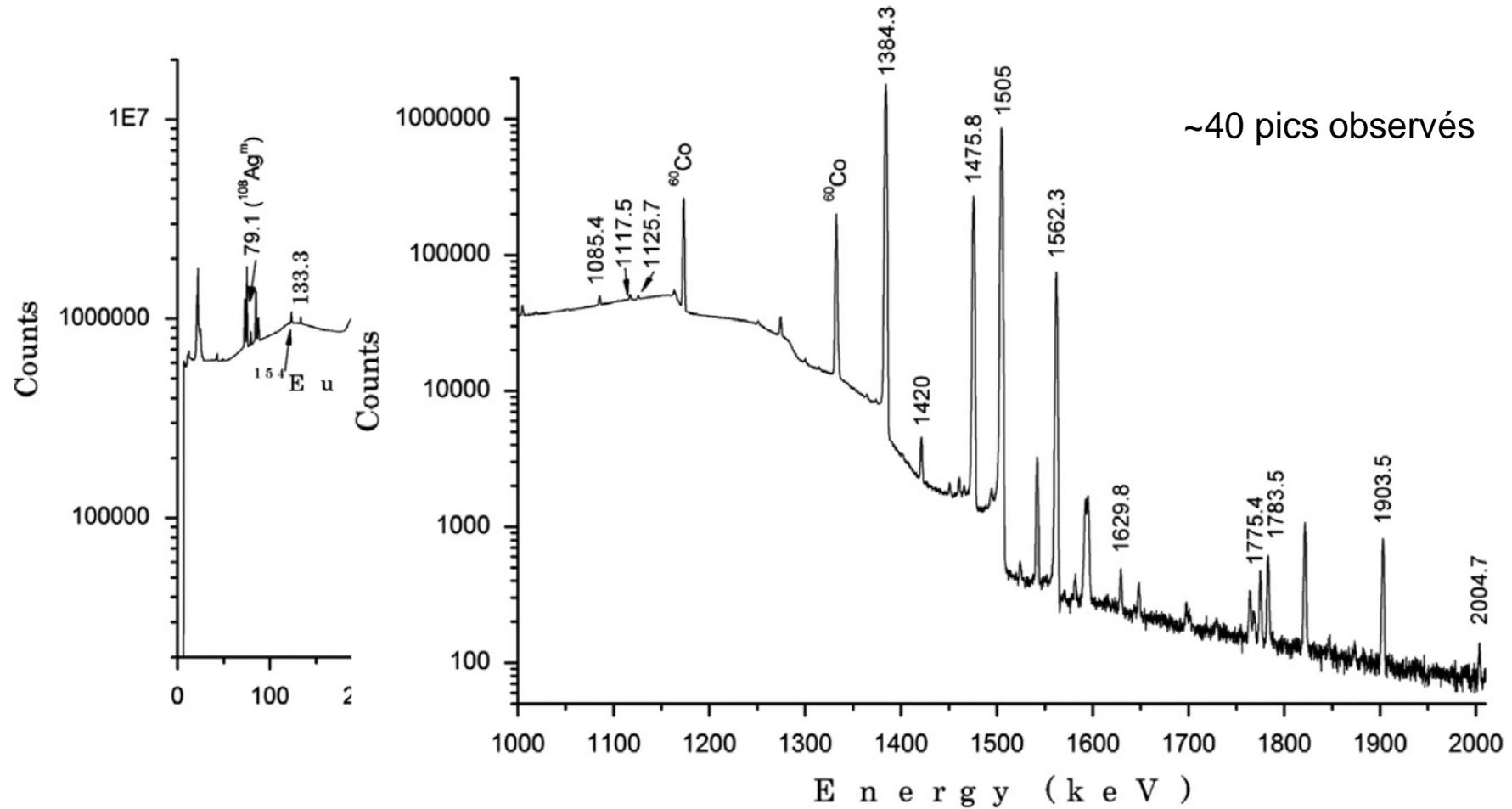
Impureté : $^{154}\text{Eu} = 6,3 \text{ (3) Bq.g}^{-1}$ pris en compte, et ^{60}Co ,
mais pas de ^{152}Eu

DES MESURES PAR SPECTROMÉTRIE GAMMA

À 10 cm le temps mort est trop important



Mesures à 25 cm



Temps d'acquisition : $1,65 \times 10^6$ s (~19 j)

MESURES DES INTENSITÉS D'ÉMISSIONS – RAIE DE RÉFÉRENCE

$$I(E_M) = \frac{N(E_M)}{\varepsilon(E_M) \cdot C_G(E_M) \cdot \cancel{A_m} \cdot \cancel{t} \cdot \cancel{m}} \cdot C_C(E_M)$$

M : mesures

$$I(E_R) = \frac{N(E_R)}{\varepsilon(E_R) \cdot C_G(E_R) \cdot \cancel{A_m} \cdot \cancel{t} \cdot \cancel{m}} \cdot C_C(E_R)$$

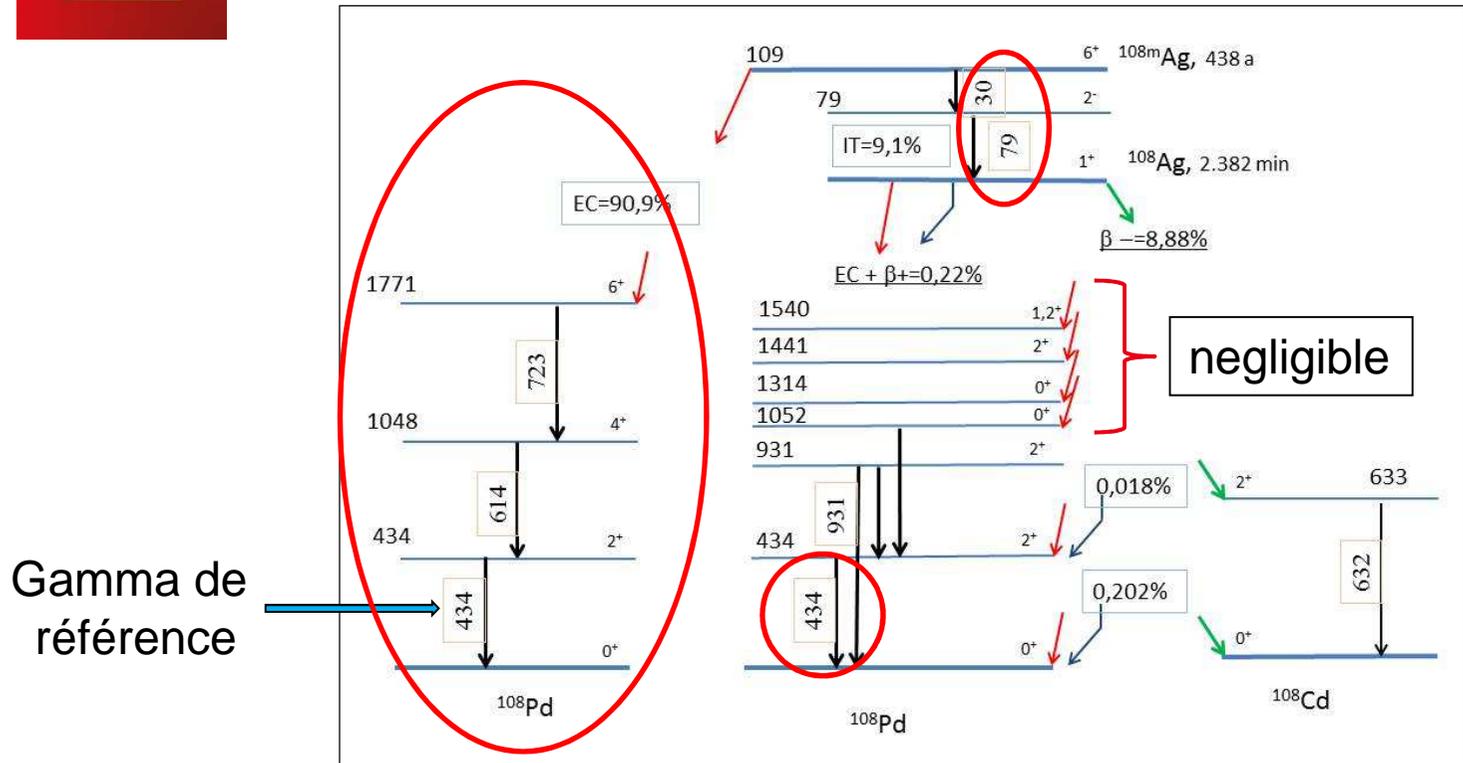
R : référence

$$I(E_R) = 100\%$$



$$I(E_M) = \frac{N(E_M) \cdot C_C(E_M)}{\varepsilon(E_M) \cdot C_G(E_M)} \cdot \frac{\varepsilon(E_R) \cdot C_G(E_R)}{N(E_R) \cdot C_C(E_R)}$$

108mAg : EXPLICATION DU SCHÉMA



Probabilités de transition : $P(723) = P(614) = P(434) = P(EC)$

Probabilités de transition : $P(30) = P(79) = P(IT)$

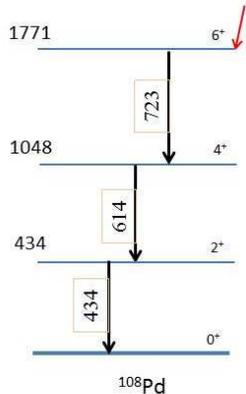
Donc, $P(434) + P(79) = 100\%$ décroissance de parent

Avec : $P(i) = (1 + \alpha_T(i)) \times I(i)$ ← γ intensité d'émission absolue

Coefficient de conversion interne →

108mAg : NOS MESURES (CAPTURE ÉLECTRONIQUE)

EC=90,9%



Rappel : $P(i) = (1 + \alpha_T(i)) \times I(i)$ et $\alpha_T(434) = 0,00911 (13)$

Énergie (keV)	Cette étude $I_{rel}(E)/I_{723}$	Cette étude : $I(E)$ Valeurs absolues (%)	Cette étude $I_{rel}(E)/I_{434}$	Cette étude : $I(E)$ Valeurs absolues (%)	Cette étude : $P(E)$ Valeurs absolues (%)
γ in ^{108}Ag					
79,131 (3)	6,11 (16)	5,64 (15)	6,19 (19)	5,68 (17)	
γ in ^{108}Pd					
433,938 (4)	98,7 (20)	91,2 (20)	100	91,7 (2)	92,55 (20)
614,276 (4)	99,8 (20)	92,2 (20)	101,1 (22)	92,7 (20)	
722,907 (10)	100	92,4 (2)	101,3 (22)	92,9 (20)	

Facteur de normalisation : N

$$N_{723} = \frac{100}{(1+\alpha_T(79))I_{rel}(79)+(1+\alpha_T(723))I_{rel}(723)} = 0.924(2)$$

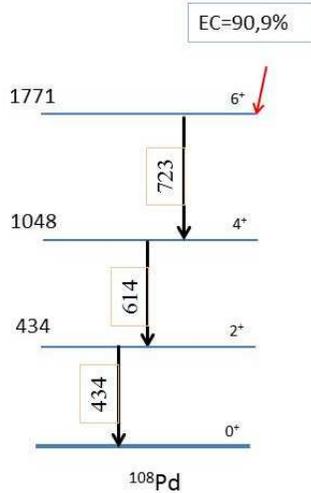
$$N_{434} = \frac{100}{(1+\alpha_T(79))I_{rel}(79)+(1+\alpha_T(434))I_{rel}(434)} = 0.917(2)$$

Capture électronique



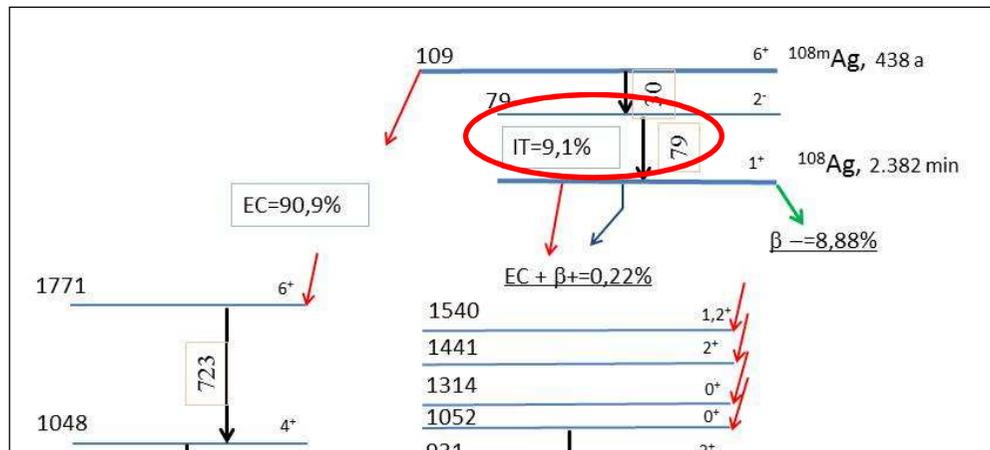
Intensités d'émission gamma s'accordent

108mAg : COMPARAISONS DES MESURES (CAPTURE ÉLECTRONIQUE)



Énergie (keV)	Purcell & Fauré (1966)	Dvorák <i>et al.</i> (1968)	Bartók <i>et al.</i> (1971)	Holst <i>et al.</i> (1974)	Cette étude $I_{rel}(E)/I_{434}$
γ in ^{108}Ag					
79,131 (3)	7,3 (8)	8,3 (9)	none	none	6,19 (19)
γ in ^{108}Pd					
433,938 (4)	100	100	100	100 (5)	100
614,276 (4)	103 (3)	105 (10)	99,3 (20)	100 (5)	101,1 (22)
722,907 (10)	102 (2)	102 (10)	100,4 (20)	100 (5)	101,3 (22)

Nos résultats sont cohérents avec des publications précédents



$$P(IT) = P(79) = 100 - P(434)$$

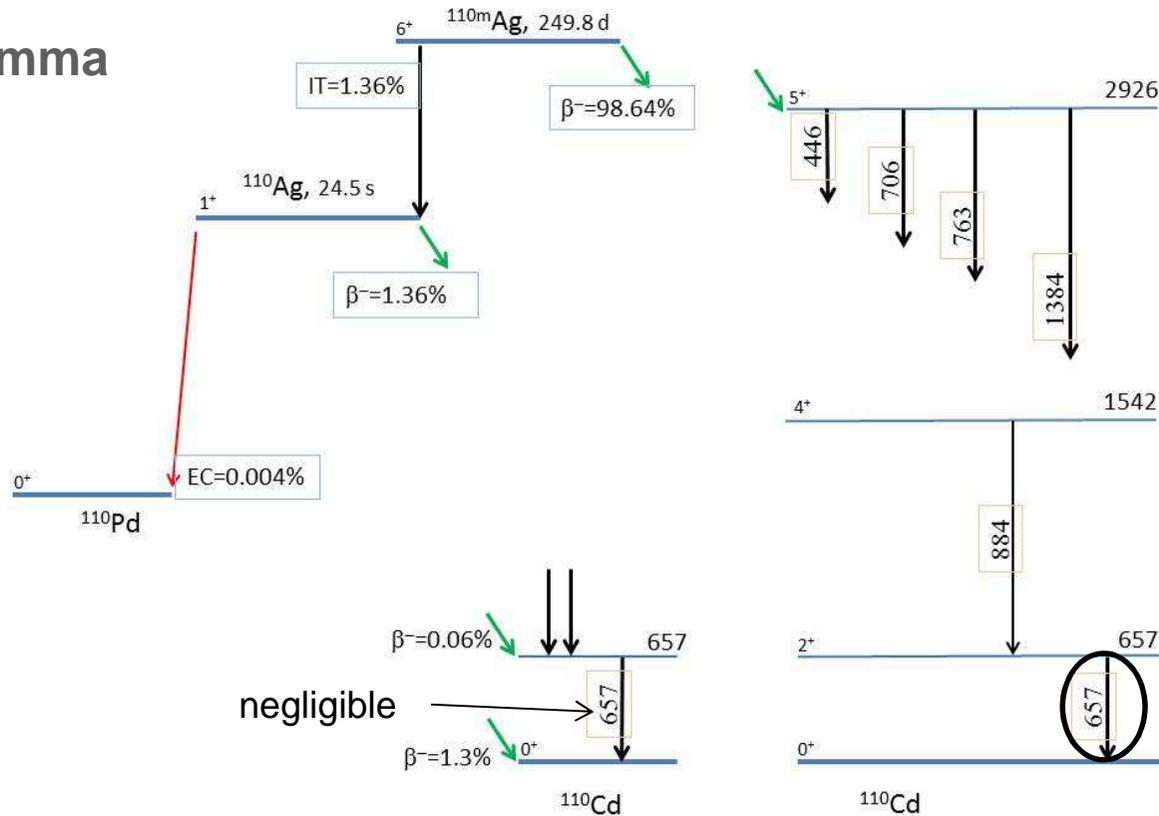
$$= 7,45 (20)\%$$

Évaluation par Chisté (dans Bé et al., 2006)

$$P(IT) = 9,1(6)\%$$

^{110m}Ag : SITUATION

- 33 émissions gamma



Comparaison de publications entre 1976 – 1993

- 25 des gamma sont cohérents entre eux
- 8 ne sont pas en accord, mais les intensités sont faibles ou < 267 keV

110mAg : MESURES DES ÉMISSIONS GAMMA

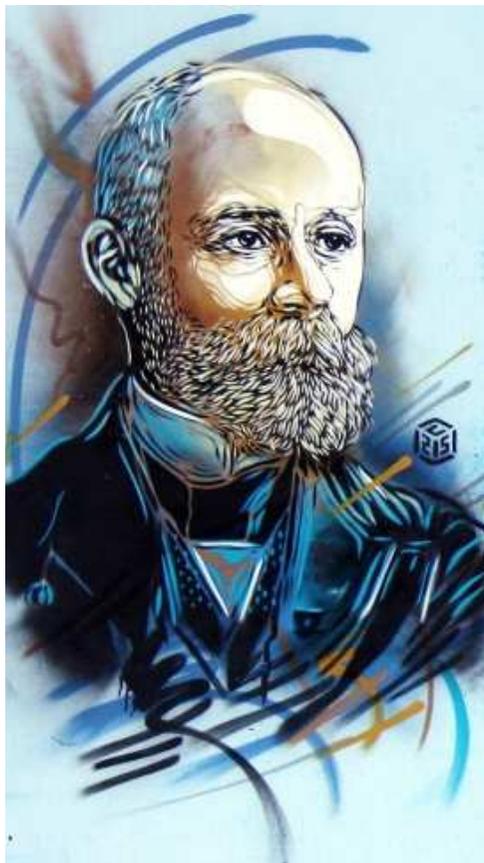
Energy (keV)	Debertin <i>et al.</i> (1976)	Gehrke (1977)	Verma (1979)	Roney (1980)	Yoshizawa (1980)	Mallet (1981)	Meyer (1990)	Kiang (1993)	This work	Nucléide
687.0091 (18)		68.5 (7)	75.8 (14)	69.0 (27)	68.0 (6)	67 (3)	68.5 (5)	69.2 (21)	68.7(15)	68.3 (3)
706.6760 (15)	175 (10)	176.7 (18)	175.4 (20)	176.2 (22)	176.6 (10)	174 (7)	172.8 (5)	176.9(26)	176.4(37)	174.6 (8)
744.2755 (18)		49.2 (5)	52.3 (8)	49.5 (16)	50.00 (27)	48.0 (25)	49.3 (8)	50.2 (14)	49.5(11)	49.9 (3)
763.9424 (17)	237 (2)	236.0 (24)	243.7 (30)	237.4 (31)	235.5 (9)	243 (12)	236 (3)	239.1 (53)	236(5)	236.4 (1)
818.0244 (18)		77.3 (8)	80.5 (10)	77.4 (17)	77.6 (4)	79 (4)	77.1 (5)	78.8 (18)	77.7(16)	77.7 (4)
884.6781 (13)	775 (5)	769 (8)	811 (10)	780 (10)	767.6 (26)	800 (40)	771 (10)	706.6(12)	771(16)	784 (13)
937.483 (3)	366 (3)	362.2 (36)	380 (4)	369 (4)	363.1 (12)	374 (18)	363 (6)	376 (8)	363(8)	365.6 (29)
997.243 (15)			1.6 (1)		1.42 (5)	1.4 (1)	1.32 (4)	1.33 (10)	1.392(30)	1.356 (43)
1085.447 (14)			0.95 (10)		0.66 (12)	0.74 (4)	0.71 (2)	0.81 (24)	0.692(35)	0.76 (4)
1117.46(3)			0.55 (20)		0.41 (6)	0.52 (3)	0.52 (1)	0.38 (20)	0.421(29)	0.517 (10)
1125.699 (20)			0.35 (10)		0.38 (8)	0.34 (2)	0.30 (2)	0.22 (21)	0.317(34)	0.322 (15)
1384.2931 (20)	261 (2)	257.0 (26)	277.9 (30)	271 (5)	256.6 (8)	278 (14)	261 (5)	276.6(26)	258(6)	262 (5)

Accord entre nos mesures et l'évaluation (avec meilleures incertitudes)

Moyennes pondérées calculées avec *Limitation of Relative Statistical Weight*

Energy (keV)	Debertin <i>et al.</i> (1976)	Gehrke (1977)	Verma (1979)	Roney (1980)	Yoshizawa (1980)	Mallet (1981)	Meyer (1990)	Kiang (1993)	This work
1125.699 (20)			0.35 (10)		0.38 (8)	0.34 (2)	0.30 (2)	0.22 (21)	0.317(34)
1384.2931 (20)	261 (2)	257.0 (26)	277.9 (30)	271 (5)	256.6 (8)	278 (14)	261 (5)	276.6(26)	258(6)
1420.07(5)					0.39 (3)	0.27 (2)	0.24 (2)	0.37 (9)	0.362(15)
1475.7792 (23)		42.1 (4)	44.8 (6)	44.9 (12)	42.22 (17)	45 (2)	42.4 (8)	45.7 (13)	42.2(9)
1505.0280 (20)	139 (1)	138.4 (1)	D'autres études nécessaires				(19)	149.2(28)	138.5(30)
1562.2940 (18)		12.50(13)	13.2 (2)	14.0 (8)	10.87 (7)	13.0 (7)	12.6 (6)	13.5 (4)	12.51(27)
1629.75 (15)					0.061 (11)	0.036 (4)	0.046 (5)	0.11 (5)	0.046(6)
1775.41(4)			0.067(10)		0.067 (11)	0.076 (4)	0.063 (4)	0.07 (6)	0.0626(19)
1783.46(3)			0.085 (30)		0.103 (11)	0.110 (6)	0.092 (3)	0.07 (4)	0.0942(26)
1903.52(4)			0.20 (2)		0.158 (15)	0.18 (1)	0.16 (1)	0.15 (2)	0.160(7)
2004.65 (10)						0.012(1)	0.011 (2)	0.028 (4)	0.0088(30)

- Un groupe international, le Decay Data Evaluation Project, a été créé en 1995, et ce collaboration est coordonné par le LNHB depuis mi-2012.
- Les résultats sont publiés comme Monographie BIPM-5.
- L'évaluation de données fait souvent apparaître des défauts ou méconnaissance des schémas de désintégration.
- Il devient nécessaire de procéder à de nouvelles mesures (mesure absolue d'activité, détermination des intensités gamma, de période radioactive, etc.).
- Dans ce contexte, étude au LNHB sur deux radionucléides, ^{108m}Ag et ^{110m}Ag , dont les γ raies les plus importantes ont été mesurées.
- ^{108m}Ag : mesure de branchement isomérique et valeurs cohérentes
 - Mais pas d'accord avec les deux autres mesures publiées (1966,1968)
 - D'autres études nécessaires
- ^{110m}Ag : résultats en accord avec d'autres mesures
 - Diminution des incertitudes dans la nouvelle évaluation, mais d'autres mesures sont nécessaires.



Merci pour votre attention

Commissariat à l'énergie atomique et aux énergies alternatives
Institut List | CEA SACLAY NANO-INNOV | BAT. 861 – PC142
91191 Gif-sur-Yvette Cedex - FRANCE
www-list.cea.fr

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