

list
cea tech



SPECTROMÉTRIE GAMMA ET X AU LNHB

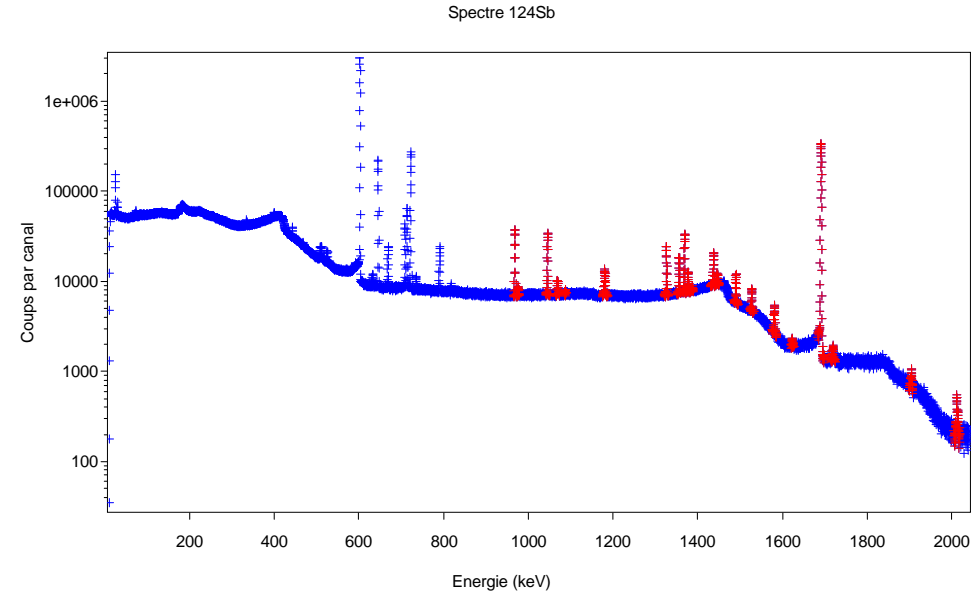
Journées Utilisateurs 2017



Rôle spécifique de la spectrométrie :

Identification radionucléides émetteurs de photons

$$N = A \cdot I(E) \cdot t \cdot \varepsilon_p(E) \cdot \prod C_i$$



Mesure secondaire nécessitant des étalonnages et permettant :
l'identification et le dosage de radionucléides émetteurs gamma

- > **Activité et dosage d'impuretés**
- > **Mesure d'intensités d'émission photonique**

Technique de mesure non destructive très courante dans les laboratoires ...
avec quelques spécificités au LNHB.

SPECTROMÉTRIE GAMMA ET X : SES CARACTÉRISTIQUES



Détecteurs et électronique conventionnels,
mais utilisés avec des précautions :

Système de positionnement reproductible et
précis des sources

Distance source-détecteur : environ 10 cm

- réduction des incertitudes de
positionnement
- réduction des phénomènes de
coïncidences

SPECTROMÉTRIE GAMMA ET X : LES INSTALLATIONS



Gamme d'énergie de 10 keV à 2 MeV



mBq au GBq



ETALONNAGE EN RENDEMENT

Solutions étalonnées (activité massique) par les méthodes primaires (Bq.g⁻¹)

Sources pesées réalisées à partir de ces solutions : Activité (Bq) avec une incertitude-type < 0,5%

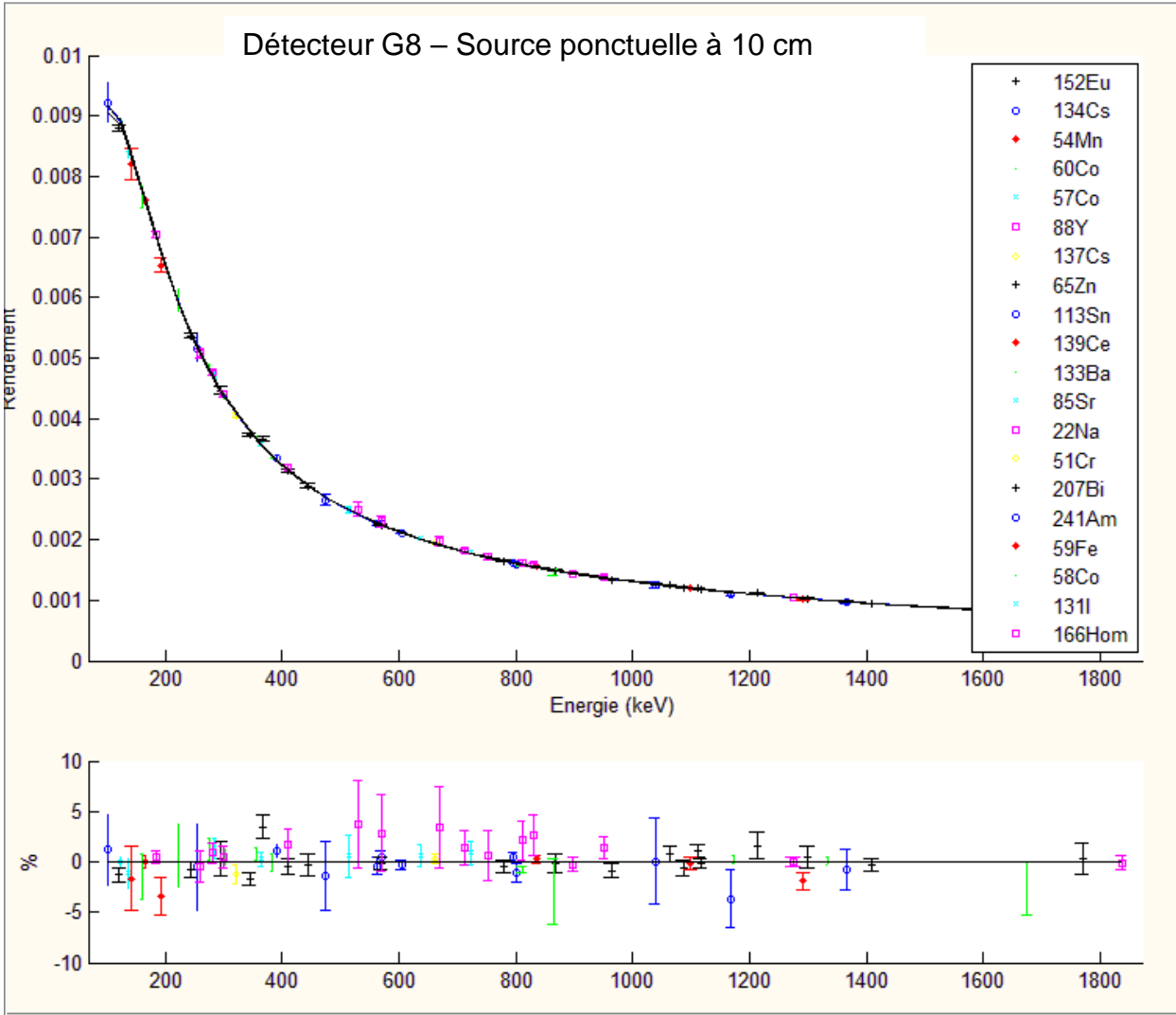
				¹³³Ba		période : 10,539 a 0,006									
Spectre:	G81-133Ba-SP-289A(3).Chn					période : 3,3258E+08 s 1,9E+05									
Géométrie	G81					période : 5,5430E+06 min 3,2E+03						1 a = 365,242 j			
Distance de réf (mm)	106,9	±	0,1	0,1			période : 9,2383E+04 h 5,3E+01						1 a = 3,2E+07 s		
Source :	289A(3)					période : 3,8493E+03 j 2,2E+00									
						période : 1,0539E+01 a 6,0E-03									
Date/heure de réf. :	1/10/11 12:00	TU	Activité (date de référence)	1 987	Bq	±	0,43	%							
Date/heure de mesure :	10/11/11 9:35	TU	Corr. déc. :	1,0072		±	0,00	%					Pour ramener le comptage à la date de référence		
TA	250 000	s													
TR	251 164	s	Corr mesure	1,00026		±	1,49E-05	%					Pour ramener le comptage au début de la mesure		
E (keV)	Surface nette	Inc abs surface	Inc rel surf. %	Surf corrigée	Sx (%)	Intensité	inc. %	Corr. Coïnci.	inc. %	Corr. milieu dil	inc %	Rendement	inc. %	inc abs	
30,85	4465565	2113	0,05	4498942,01	0,2	0,962	0,84	1,018	0,2	1,00	0,0	9,583E-03	1,0	9E-05	
35,22	1076874	1038	0,10	1084922,888	0,2	0,2269	1,38	1,018	0,2	1,00	0,0	9,798E-03	1,5	0,0001	
53,16	103279	321	0,31	104050,9391	0,4	0,0214	2,80	1,028	0,3	1,00	0,0	1,007E-02	2,9	0,0003	
80,90	1703355	1305	0,08	1716086,401	0,2	0,3596	0,99	1,011	0,1	1,00	0,0	9,711E-03	1,1	0,0001	
160,61	24029	489	2,04	24208,60016	2,0	0,0064	0,94	1,002	0,0	1,00	0,0	7,655E-03	2,3	0,0002	
223,24	12749	360	2,82	12844,28996	2,8	0,00450	1,11	1,036	0,4	1,00	0,0	5,953E-03	3,1	0,0002	
276,40	165364	494	0,30	166599,9815	0,4	0,0713	0,84	1,030	0,3	1,00	0,0	4,847E-03	1,1	5E-05	
302,85	385076	605	0,16	387954,1768	0,3	0,1831	0,60	1,025	0,2	1,00	0,0	4,370E-03	0,8	4E-05	
356,01	1109336	1009	0,09	1117627,519	0,2	0,6205	0,31	1,018	0,2	1,00	0,0	3,692E-03	0,6	2E-05	
383,85	148567	367,6602	0,25	149677,4356	0,3	0,0894	0,67	1,003	0,0	1,00	0,0	3,379E-03	0,9	3E-05	
Données Nucléide		KRI 2015													

Développement du logiciel
AÇORES pour
l'ajustement des courbes
d'étalonnage

Prise en compte des
corrélations entre les
données d'entrée

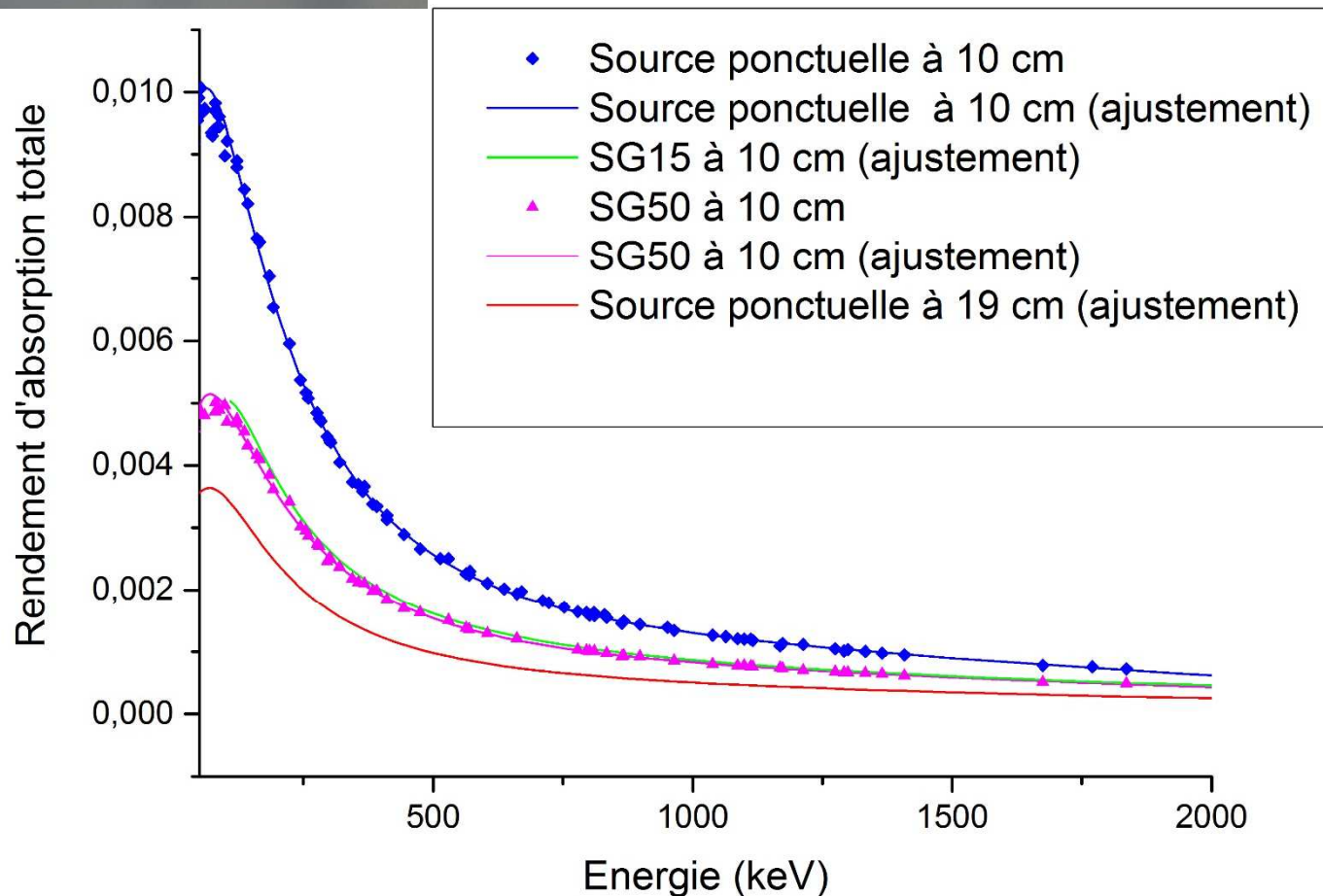
Incertitudes-type relatives:
100 keV < E < 1,8 MeV: 0,5 %
50 keV < E < 100 keV : 1 %

Mise à jour en fonction de
nouveaux résultats issus
des mesures primaires





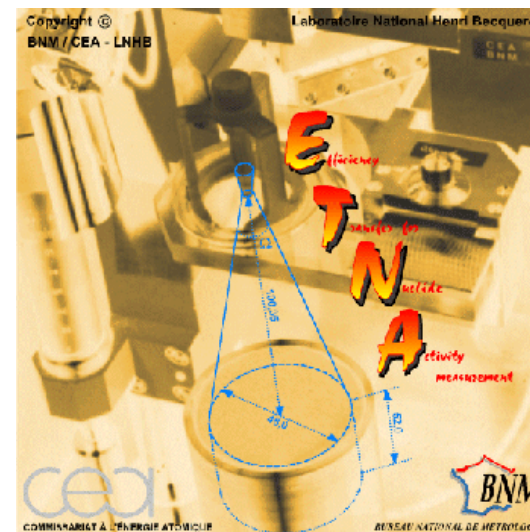
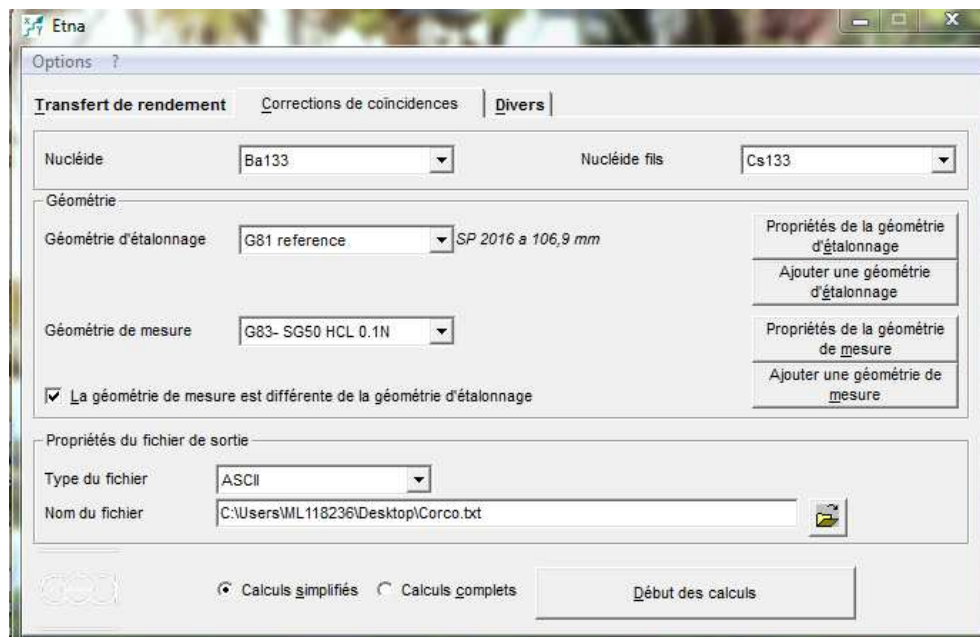
ETALONNAGE EN RENDEMENT (2)



- Principales géométries + SG500 à 8 cm, SG500 gaz (partiel)
- Difficultés avec SG15

Corrections de coïncidences (qq 10^{-2} pour un radionucléide émetteur multigamma à 10 cm)

Logiciel «ETNA » développé au LNHB



Base de données : DDEP

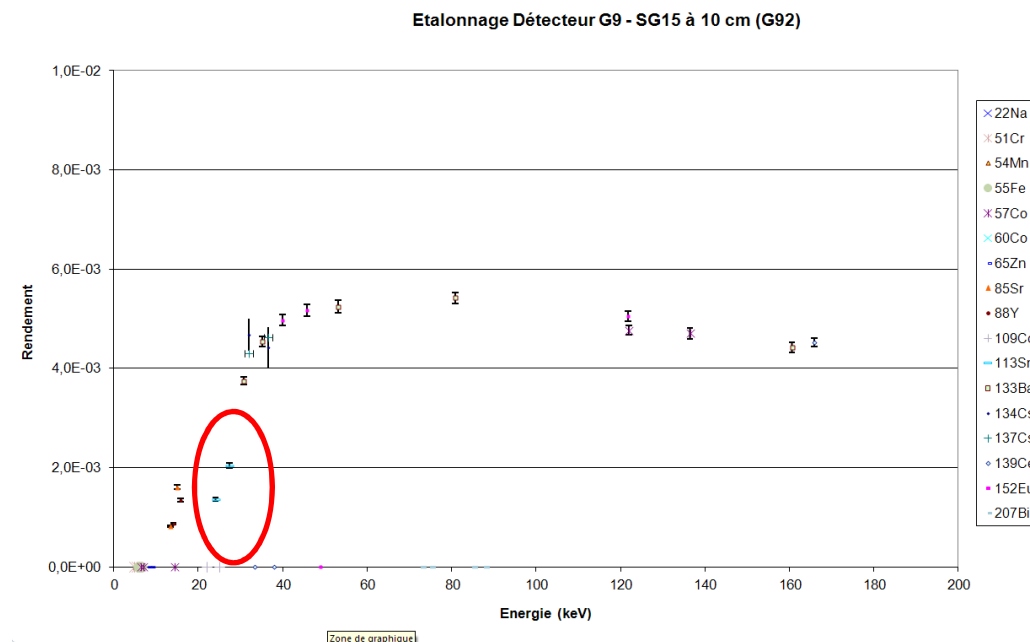
Récente mise à jour :
 $^{225}\text{Ac} \rightarrow ^{95}\text{Zr}$: 251 radionucléides

CORRECTION D'AUTO-ABSORPTION

Pour les géométries volumiques : atténuation du rayonnement dans le milieu

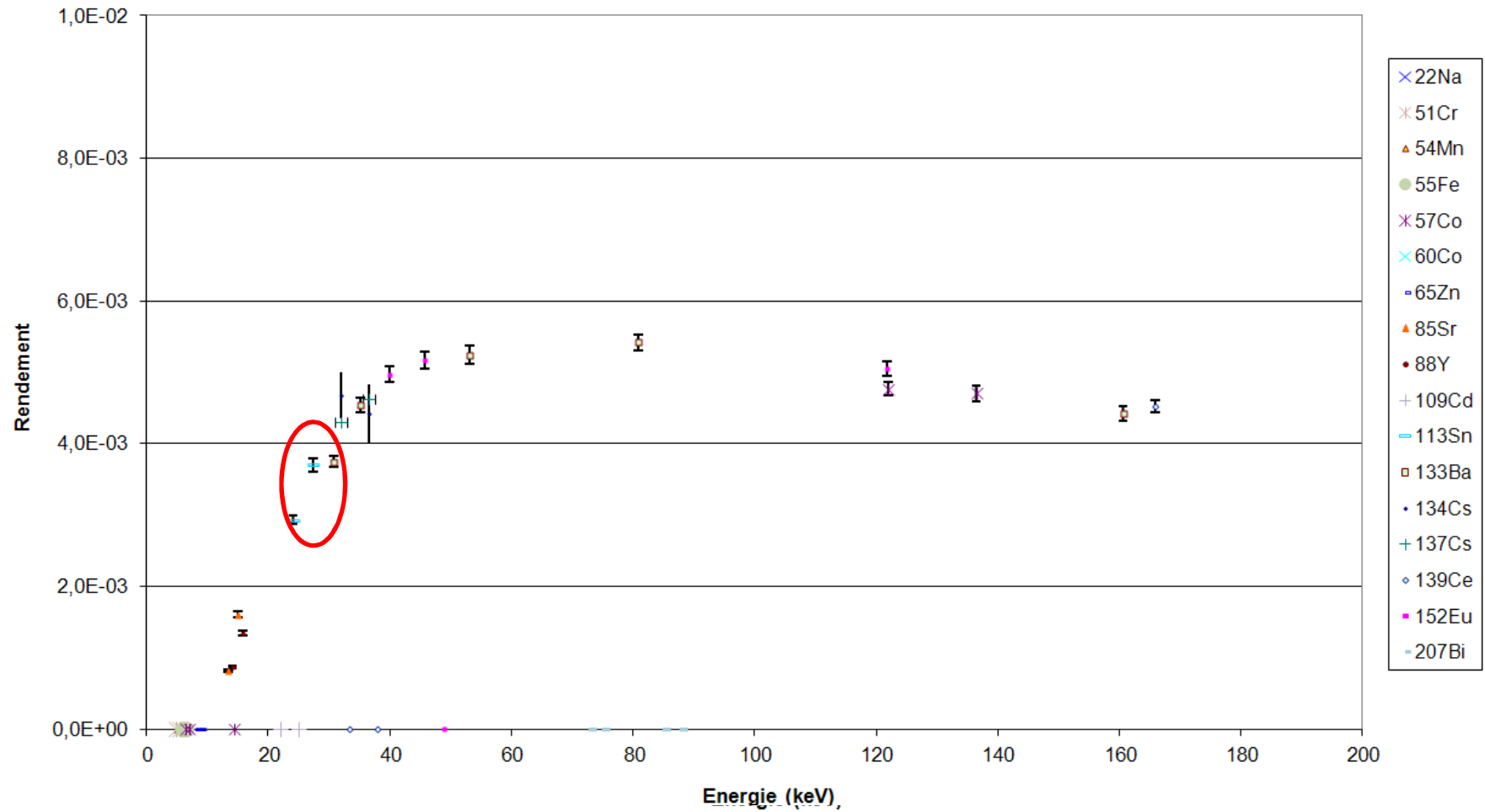
Composition chimique de la solution dépendant du radionucléide (stabilité):
en général HCl 0,1N.

Référence	HCl 0,1 N
75Se, ¹²⁹ I, ¹³¹ I	H ₂ O
109Cd	HCl 1N
113Sn	HCl 6N
125Sb	HCl 2N
152Eu, ^{166m} Ho	HCl 1N
241Am, ²³⁹ Pu	HNO ₃ 1N
210Pb	HNO ₃ 0,1N



Importance pour les énergies < 200 keV

Etalonnage Détecteur G9 - SG15 à 10 cm (G92)



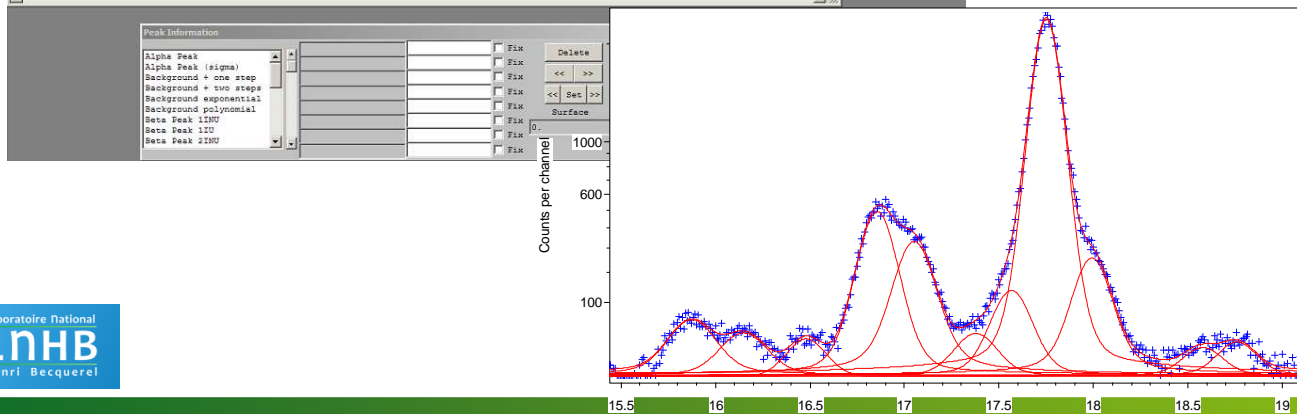
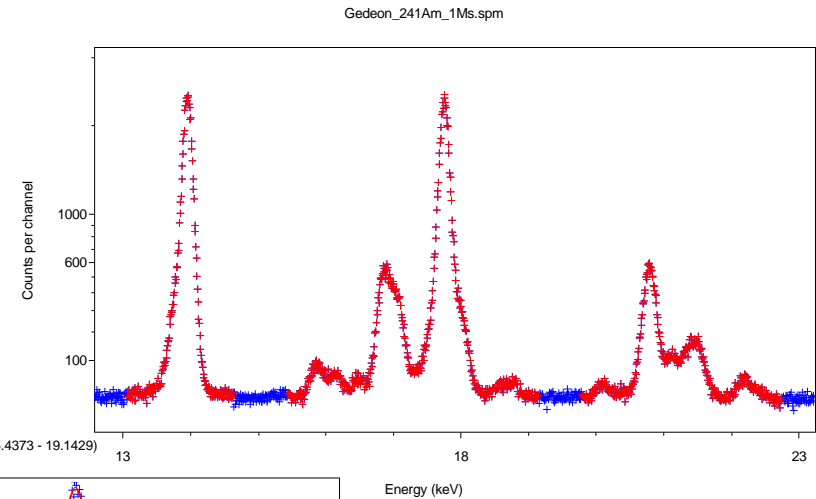
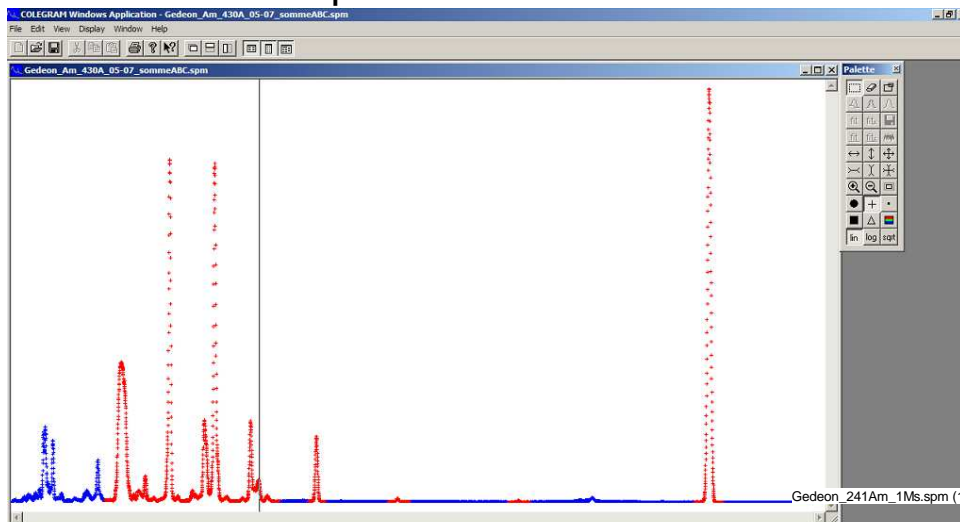
Zone de graphique



COLEGRAM : PROGRAMME DE TRAITEMENT DES SPECTRES

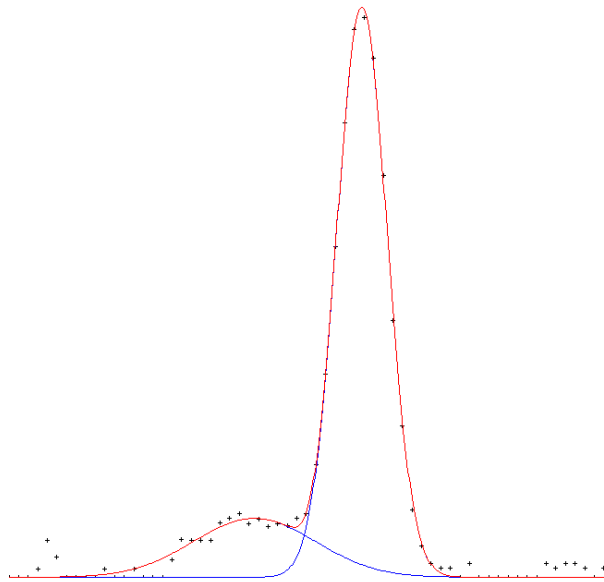
L'une des composantes de l'incertitude est liée au surfaçage des pics d'absorption totale.

Pour le traitement des régions complexe (régions X) : COLEGRAM
Spectre XL ^{241}Am

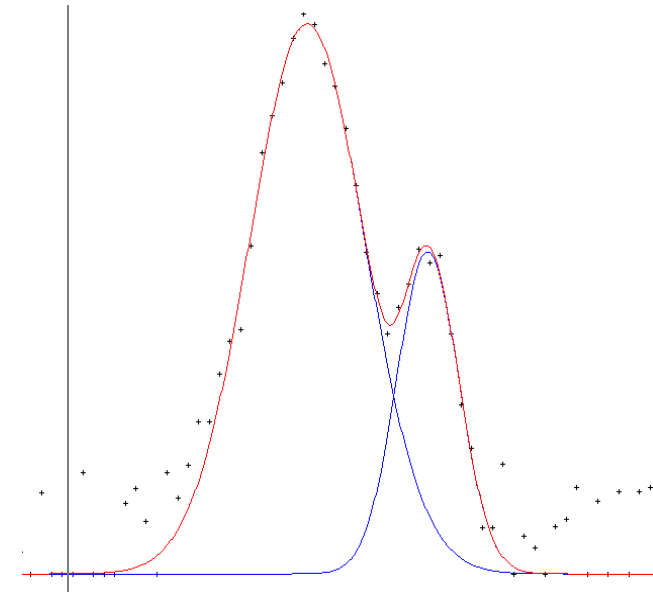


TRAITEMENT DU DOUBLET 511-514 (COLEGRAM)

SG500 gaz (^{85}Kr : $E = 514 \text{ keV}$ - $I_{\gamma} = 0,435 \%$)



Déconvolution à 18 kBq



Déconvolution à 70 Bq

(Nécessité d'imposer les largeurs à mi-hauteur)

PTI : RECHERCHE DES IMPURETÉS

Détecteur « Haute activité »

Mesure sur les solutions mères (1 goutte dans un tube « RIA » à 1 m) servant à la préparation du PTI

Durée d'acquisition 50 000 à 300 000 secondes



Impuretés: en général en proportion négligeable (qq 10^{-5} à 10^{-4})

Correction pour la mesure en chambre d'ionisation

Radionucléide	Impuretés principales – Activité relative (%)	Correction (%)
^{123}I	^{121}Te (0,22) - ^{96}Tc (0,004) - ^{124}I et ^{99}Mo (0,001)	0,33
^{153}Sm	^{152}Eu (0,0012) - ^{154}Eu (0,0022) - ^{156}Eu (0,0064)	0,02
^{186}Rh	^{184}Re (0,002)	0,02
^{90}Y	^{88}Y (0,00027) - ^{153}Sm (0,00582) - ^{140}Ba (0,00021)	0,14

MESURE D'ACTIVITÉ DES SOLUTIONS PTI

A priori, connaissant l'activité massique des solutions de départ, les différentes dilutions effectuées et les proportions des différents radionucléides, l'activité des composés du mélange est connue.

Une mesure de vérification est effectuée sur le mélange par spectrométrie gamma pour déterminer l'activité des différents radionucléides et contrôler la préparation.

$$A = \frac{N_{\text{net}}}{I(E) \cdot t \cdot \varepsilon_p(E)} \cdot \prod C_i$$

Bilan d'incertitudes :

Contribution	Source ponctuelle à 10 cm Incertitude-type relative (%)	SG500 à 8 cm Incertitude-type relative (%)	SG50 à 10 cm Incertitude-type relative (%)	SG15 à 10 cm Incertitude-type relative (%)
Intensité d'émission	0,5	0,5	0,5	0,5
Statistique (surface pic)	0,1	0,1	0,1	0,1
Surfaçage du pic	0,2	0,5	0,5	0,5
Etalonnage en rendement	1,0	2,0	2,0	2,0
Correction de période et de durée de comptage	négligeable	négligeable	négligeable	négligeable
Géométrie	0,1	0,6	0,5	1,0
Correction de coïncidences	0,3	0,2	0,1	0,1
Correction d'autoabsorption	0	0,2	0,1	0,1
Reproductibilité	0,3	0,5	0,5	0,5
Activité	1,2	2,3	2,2	2,4

MESURE D'ACTIVITÉ (VALEUR ASSIGNÉE)

Mesure sur 4 flacons SG50 -> valeur moyenne

Radionucléide	Activité massique (Bq/g)	Incertitude relative (k=1) (%)	Activité massique (Bq/g)	Incertitude relative (k=1) (%)	Activité massique (Bq/g)	Incertitude relative (k=1) (%)	Activité massique (Bq/g)	Incertitude relative (k=1) (%)	Ecart-type	Ecart-type relatif (%)
Numéro de flacon	40R		44R		47R		50R			
⁶⁵ Zn	9,670	1,0	9,700	1,0	9,750	1,0	9,680	1,0	0,0356	0,37
⁸⁸ Y	5,720	1,0	5,690	1,0	5,690	1,0	5,720	1,0	0,0173	0,30
¹²⁵ Sb	3,950	2,0	3,940	2,0	4,000	2,1	3,910	2,0	0,0374	0,95
¹³³ Ba	5,064	1,4	5,076	1,4	5,045	1,4	5,067	1,4	0,0131	0,26
¹³⁴ Cs	3,365	1,0	3,384	1,0	3,363	1,0	3,368	1,0	0,0096	0,28
¹³⁹ Ce	1,906	1,0	1,917	1,0	1,909	1,0	1,900	1,0	0,0071	0,37

Comparaison avec les valeurs suite à la préparation des sources (dilution d'une solution étalonnée)

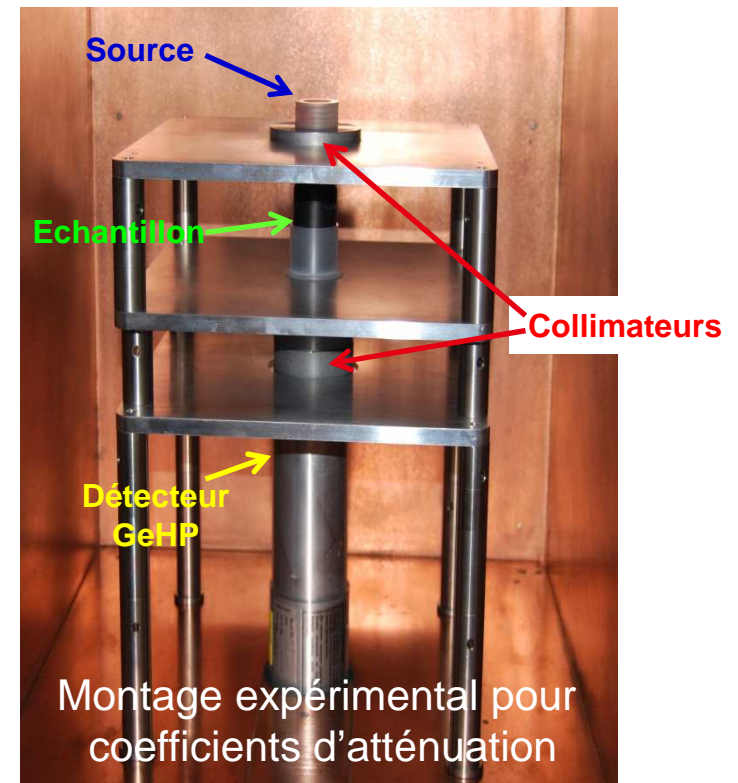
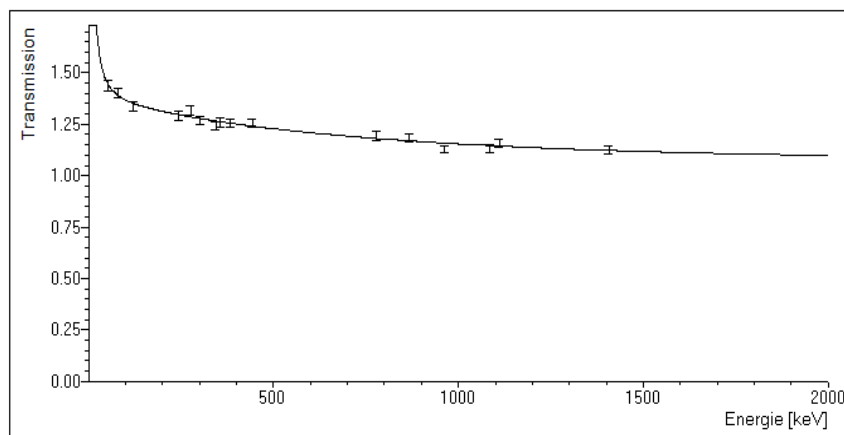
Résultats Spectro			
Radionucléide	Activité massique (Bq/g)	Incertitude-type relative (k=1) (%)	Incertitude absolue (k=1) (mBq/g)
⁶⁵ Zn	9,7	1,08	0,1
⁸⁸ Y	5,71	1,01	0,06
¹²⁵ Sb	3,95	2,29	0,09
¹³³ Ba	5,06	1,4	0,07
¹³⁴ Cs	3,37	1,08	0,04
¹³⁹ Ce	1,908	1,09	0,02

Résultats Préparation des PTI			
Radionucléide	Activité massique (Bq/g)	Incertitude-type relative (k=1) (%)	Incertitude absolue (k=1) (mBq/g)
⁶⁵ Zn	9,751	0,003	0,03
⁸⁸ Y	5,703	0,007	0,04
¹²⁵ Sb	3,935	0,0123	0,05
¹³³ Ba	5,044	0,006	0,03
¹³⁴ Cs	3,369	0,003	0,01
¹³⁹ Ce	1,872	0,72	1,35

Mesures pour l'environnement : végétaux, matériaux divers

Pas d'étalonnage : nécessité de calculer le transfert de rendement (changement d'auto-absorption) entre la solution de référence (HCl 0,1N) et la matrice.

En général, composition non connue
 → détermination expérimentale des coefficients d'atténuation linéique



VALIDATION DES MESURES POUR DIVERSES MATRICES

Pas de « SIR », mais des comparaisons internationales (AIEA, BIPM, etc.)

Exemples récents :

Myrtilles (^{137}Cs , ^{40}K), Riz , Mousse (^{137}Cs et chaînes naturelles)

Matériaux de démantèlement (acier, scories (^{137}Cs et ^{60}Co),
sues (^{241}Am), etc.)

NORM: phosphogypse

Prochainement :

Maïs en poudre (^{134}Cs , ^{137}Cs , ^{131}I)

Pour les échantillons de faible activité :
installation dédiée:

Spectromètre gamma bas bruit de fond
équipé d'un système anti-cosmique



Pour des sources ponctuelles, étalonnage en rendement avec une incertitude-type relative de l'ordre de 0,5%, pour les sources volumiques liquides de 1 % à 2 %.

Les mesures d'activité correspondantes sont effectuées avec des incertitudes-type du même ordre de grandeur. Pour des matrices différentes, les incertitudes-type relatives montent à 2-5 %.

Large gamme d'activités du mBq au GBq.

Utilisée pour de nombreuses études (intensités d'émission photoniques absolues, spectrométrie X, etc.).

La spectrométrie gamma/X intervient à différentes étapes lors des mesures effectuées au LNHB et en particulier pour les tests interlaboratoires.

La spectrométrie gamma/X est :
Indispensable,
Incontournable ...

Irremplaçable !

Groupe « spectro »

Laurine Brondeau

Yves Ménesguen

Sylvie Pierre

Benoit Sabot

Et tout le LNHB/LMA:

Préparation des sources

Mesures primaires

Données

Coordination

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