

**list**  
cea tech



## TESTS INTERLABORATOIRES: MESURES RÉALISÉES POUR LES ÉCHANTILLONS GAZEUX

Journée des utilisateurs LNHB/LMA | RODRIGUES Matias

## MESURES RÉALISÉES POUR LES ÉCHANTILLONS GAZEUX

### Objectifs du test :

→ fournir aux participants des échantillons en SG500G contenant 30 Bq en Kr-85, 30 Bq en Xe-133 et du Xe-131m (impureté)



- Préparation de bouteilles mère étalons
  - Kr-85
  - Xe-133
    - raccordement de la spectrométrie  $\gamma$  du LNHB en SG500G
- Préparation d'une bouteille mère de mélange Kr85, Xe-133
  - réalisation de 27 SG500G pour le test
- Contrôle des SG500G par la spectrométrie  $\gamma$ 
  - homogénéité et suivi des SG500
  - envoi des SG500G à 20 participants (EDF)



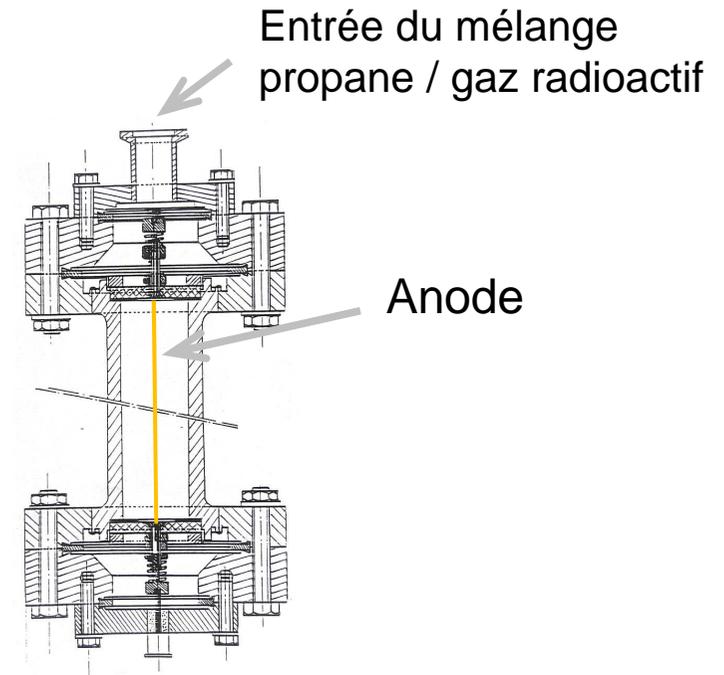
## PLAN

- Méthode des compteurs proportionnels différentiels triples
  - Méthode de la mesure
  - Cas du Kr-85
  - Cas du Xe-133
- Test interlaboratoire (PTI)
  - Préparation des bouteilles mères Kr-85 et Xe-133
    - Etalonnage des bouteilles
    - Préparation de SG500G étalons pour raccorder la spectrométrie  $\gamma$
  - Préparation de la bouteille de mélange Kr-85 et Xe-133
  - Préparation de 27 SG500G
  - Homogénéité et suivi des échantillons



# LA MÉTHODE DES COMPTEURS PROPORTIONNELS DIFFÉRENTIELS TRIPLES

## LA MÉTHODE DES COMPTEURS PROPORTIONNELS DIFFÉRENTIELS TRIPLES



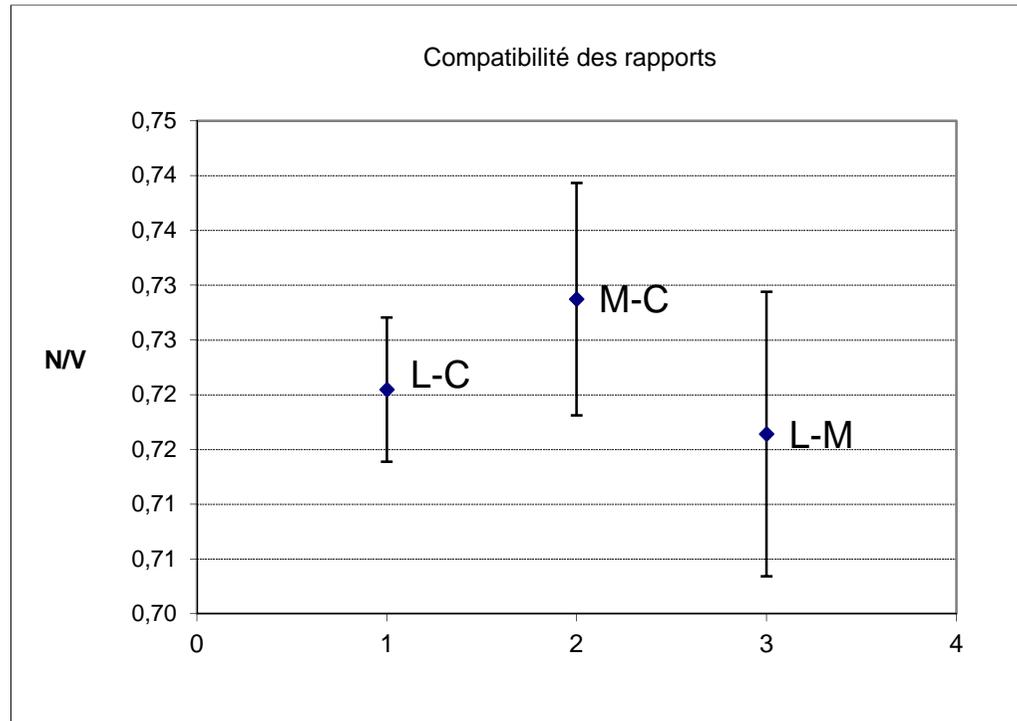
- 3 compteurs identiques de longueurs différentes: long, moyen et court
- Les comptages  $N$  sont soustraits deux à deux:  $N_{\text{long-court}}$ ,  $N_{\text{moyen-court}}$  et  $N_{\text{long-moyen}}$   
→ comptage indépendant des effets de bord

$$\frac{N}{V} = \frac{N_{\text{long} - \text{court}}}{V_{\text{long} - \text{court}}} = \frac{N_{\text{long} - \text{moyen}}}{V_{\text{long} - \text{moyen}}} = \frac{N_{\text{moyen} - \text{court}}}{V_{\text{moyen} - \text{court}}}$$

$$A_V = \frac{N}{V} \times \frac{V_{\text{tot}}}{V_{\text{ech.}} \cdot P_{\text{ech.}}} \times \frac{1013,25 \times (T_{\text{ech.}} + 273,15)}{273,15}$$

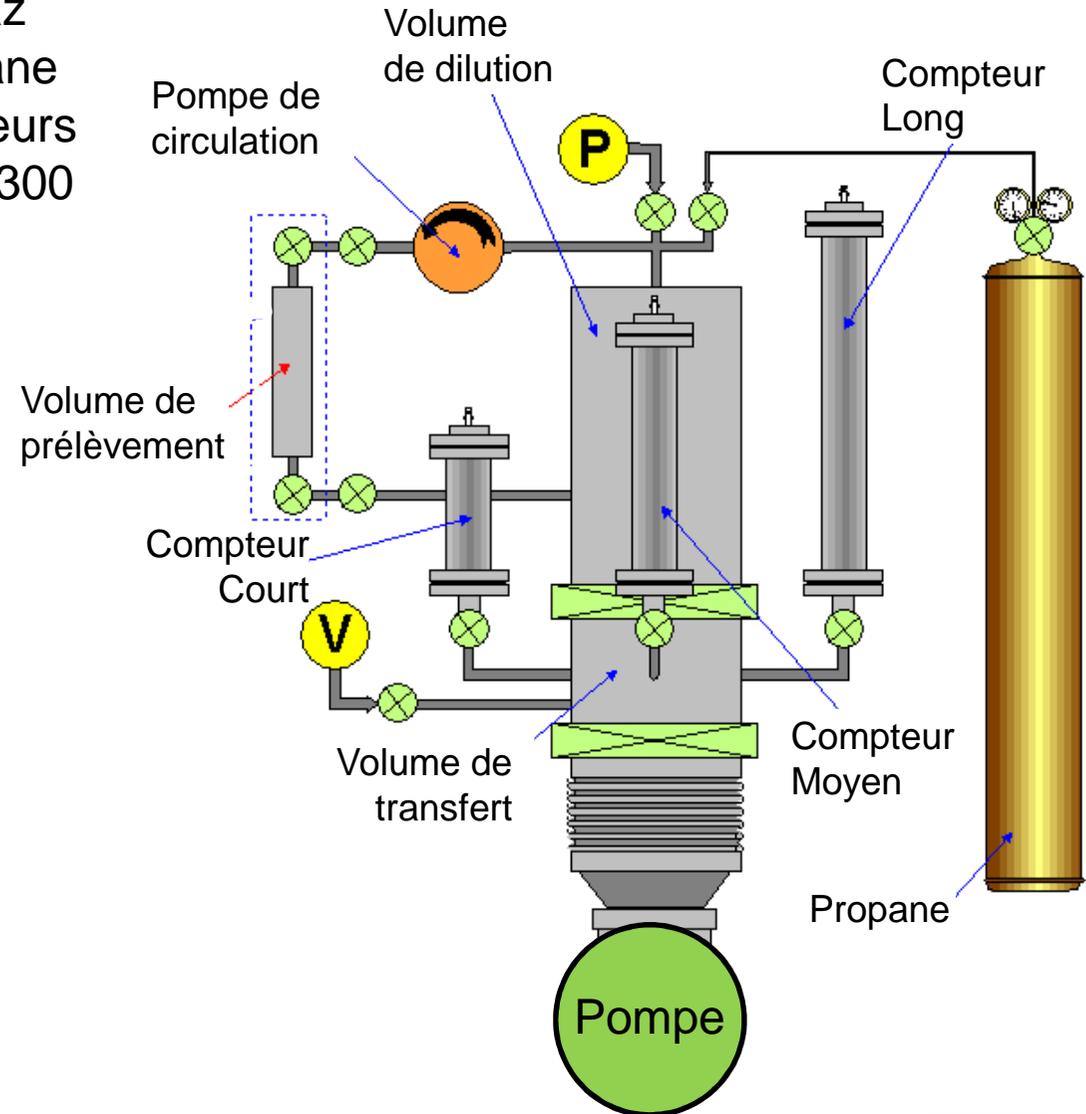
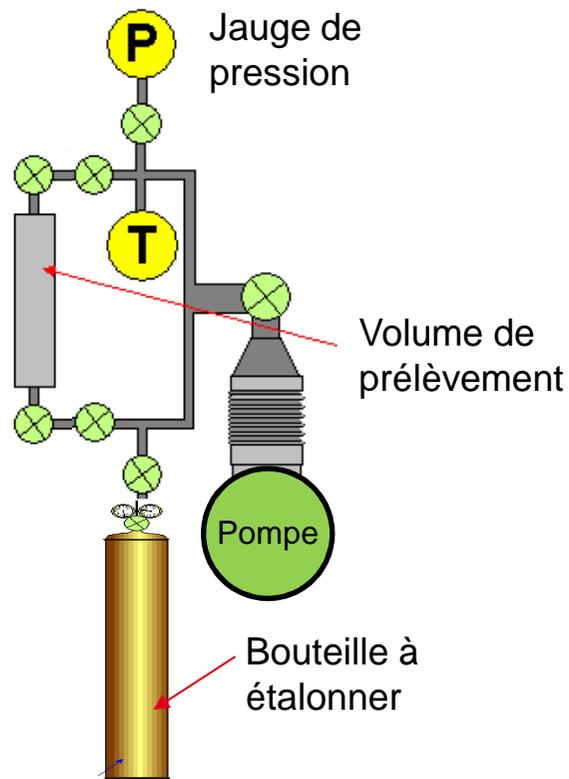
## COMPATIBILITÉ DES RAPPORTS N/V

$$\frac{N}{V} = \frac{N_{long - court}}{V_{long - court}} = \frac{N_{long - moyen}}{V_{long - moyen}} = \frac{N_{moyen - court}}{V_{moyen - court}}$$



## SYNOPTIQUE DU BANC

- Prélèvement d'un échantillon du gaz
- Mélange du gaz radioactif au propane  
→ 300 mbar dans les compteurs
- Polarisation des compteurs entre 1300 et 2000 V



# LA MÉTHODE DES COMPTEURS PROPORTIONNELS DIFFÉRENTIELS TRIPLES

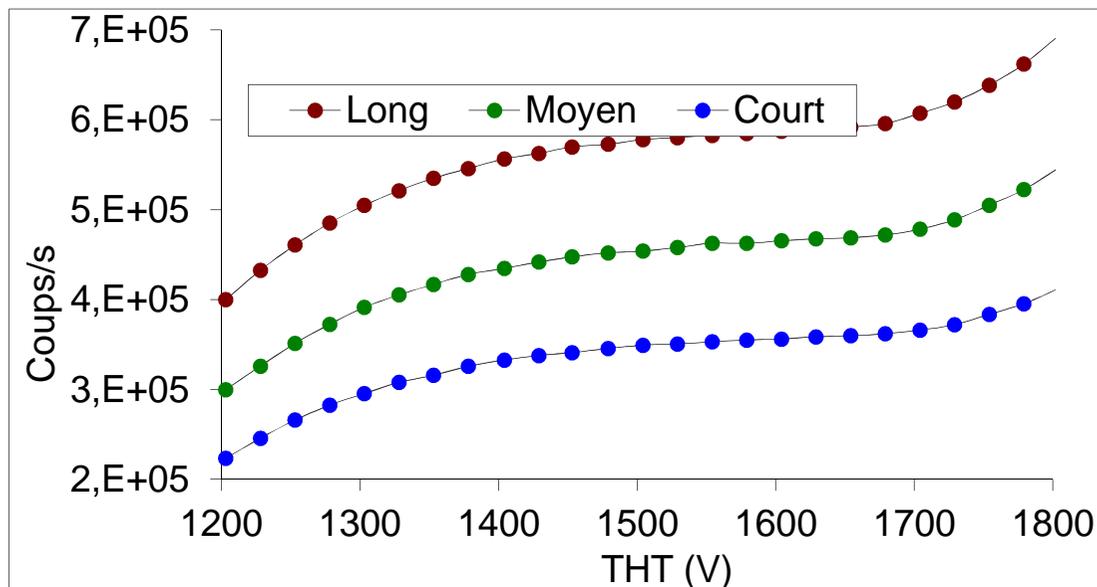
- **Méthode primaire**  
→ ne nécessite pas d'étalonnage avec des sources étalons
- **Mesurande: activité volumique dans les conditions TPN**  
température et pression normales (273,15 K et 1013,25 hPa)

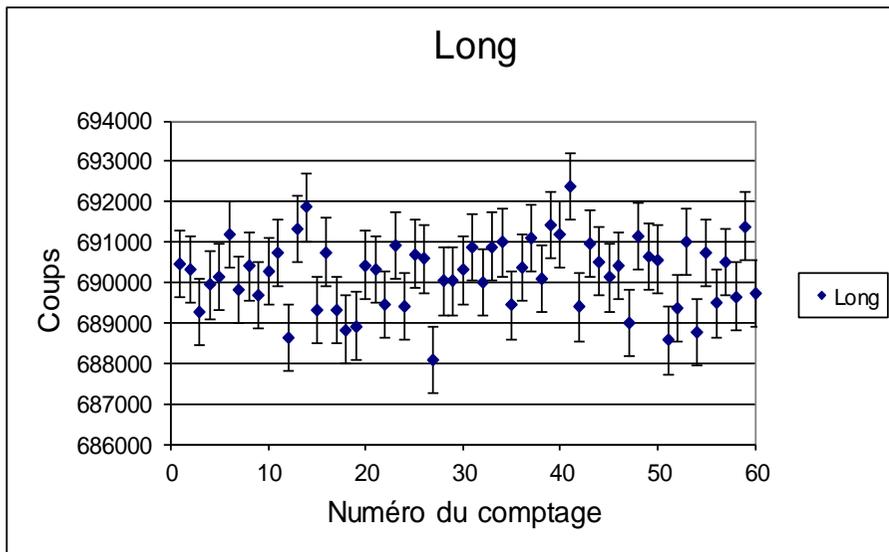
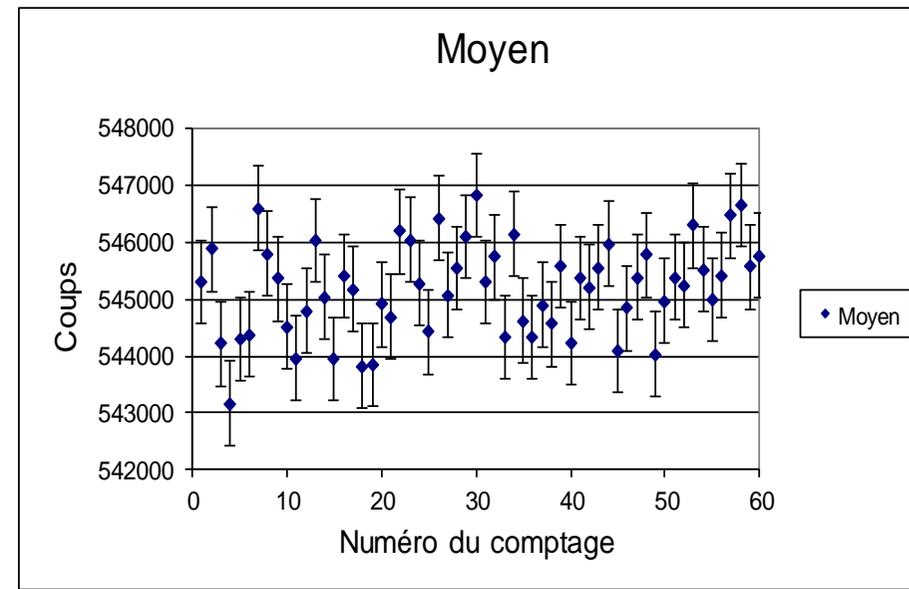
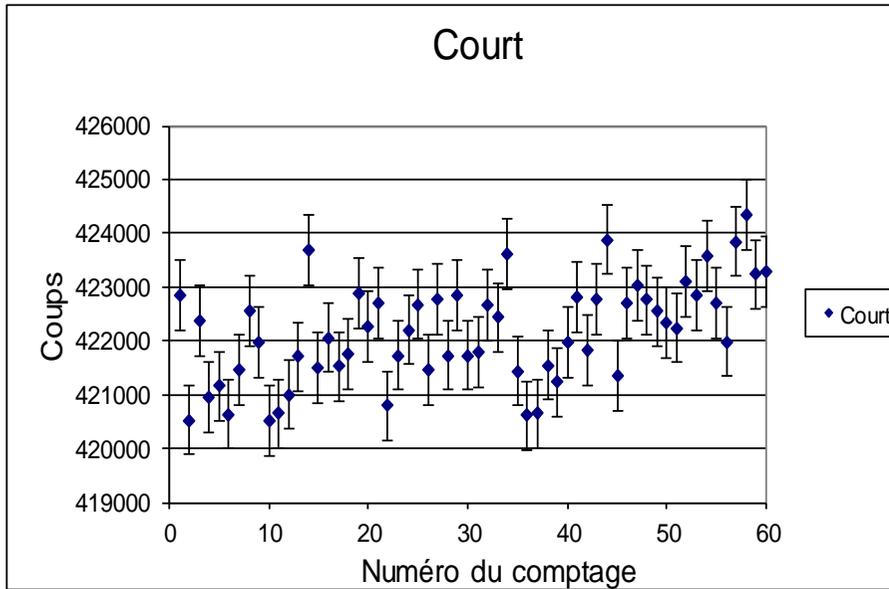
- **Gaz étalonnés:**

Radionucléide	Désintégration	Période	Energie max
Kr-85	$\beta^-$	10,8 ans	687 keV
H-3	$\beta^-$	12,3 ans	18,6 keV
Xe-133	$\beta^-$	5,25 j	346 keV
Xe-127	CE	36,4 j	57,6 keV

- **Accrédité COFRAC avec une portée détaillée de 2,7 Bq/cm<sup>3</sup> à 15,5 kBq/cm<sup>3</sup>**
- **Incertitude relative minimale de 1,2 % à k = 2**

- **Mesure du mouvement propre permet :**
  - de contrôler une éventuelle contamination en eau tritiée
  - vérifier le bruit électronique et le seuil de déclenchement (trigger)
  - de soustraire le mouvement propre au comptage
- **Mesure des paliers de haute tension:**
  - Contrôle l'état du fil d'anode
  - Le seuil de déclenchement

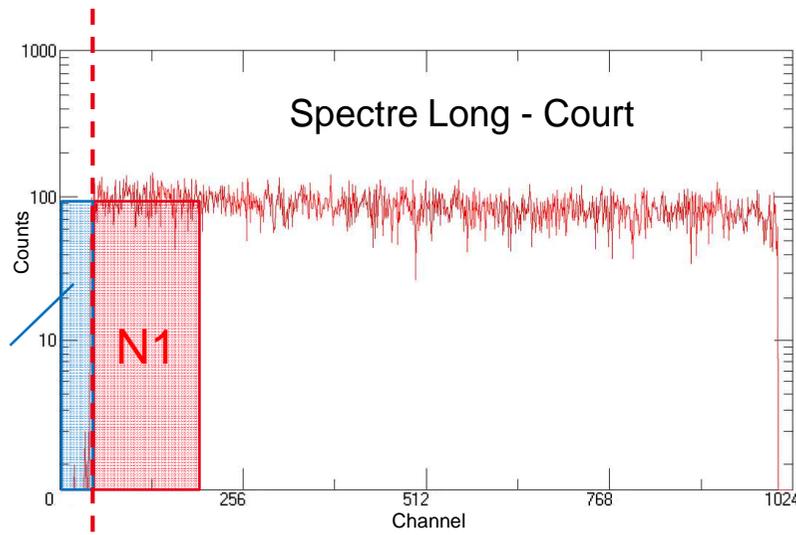
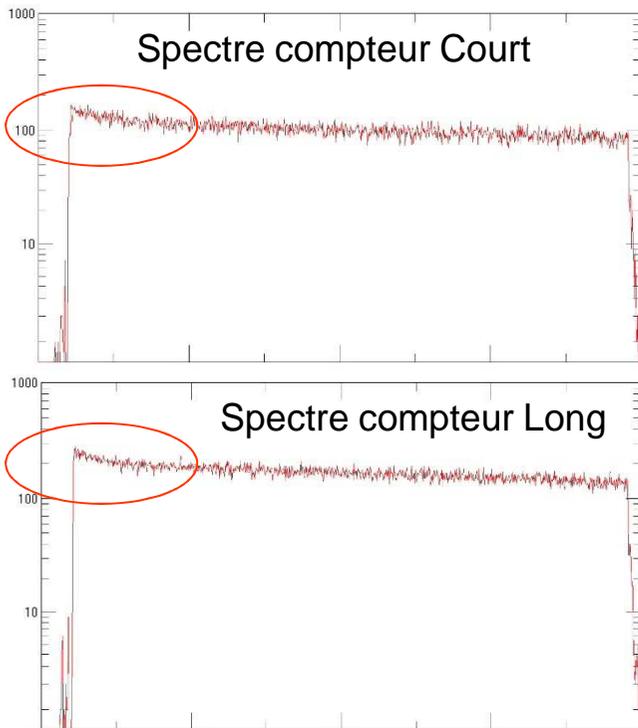
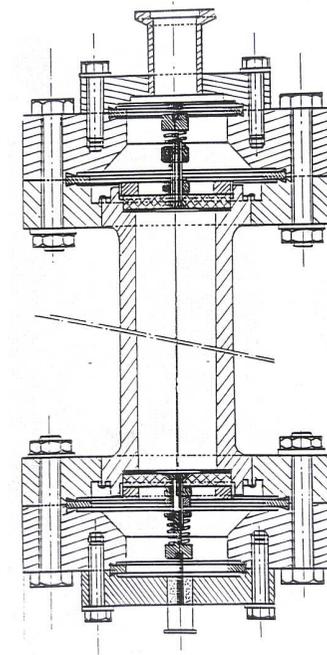




- 60 points de comptages
- 600 secondes par point
- environ 11 heures d'acquisition
  - vérifier la stabilité du comptage
  - déduire un écart-type

# FACTEURS CORRECTIFS DU RENDEMENT

- Particules beta de faibles énergies non détectées  
→ Extrapolation à zéro
- Particules beta émises à proximité de la cathode sans ioniser le gaz → Formule analytique



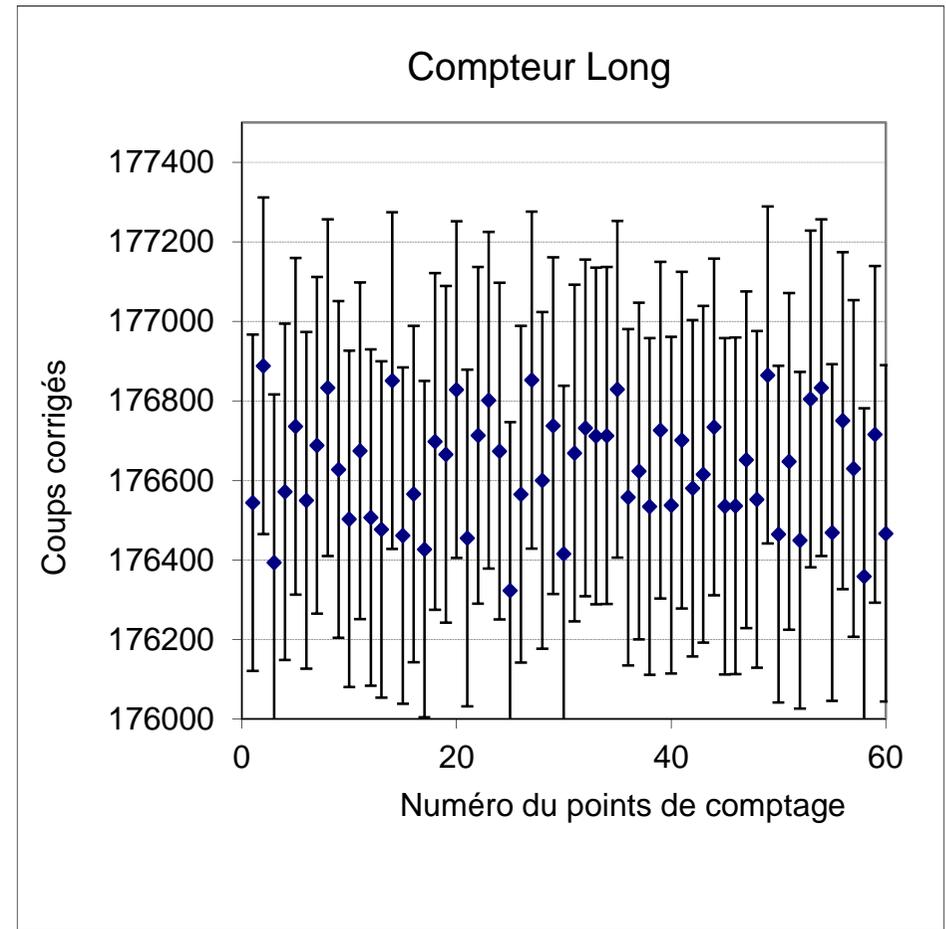
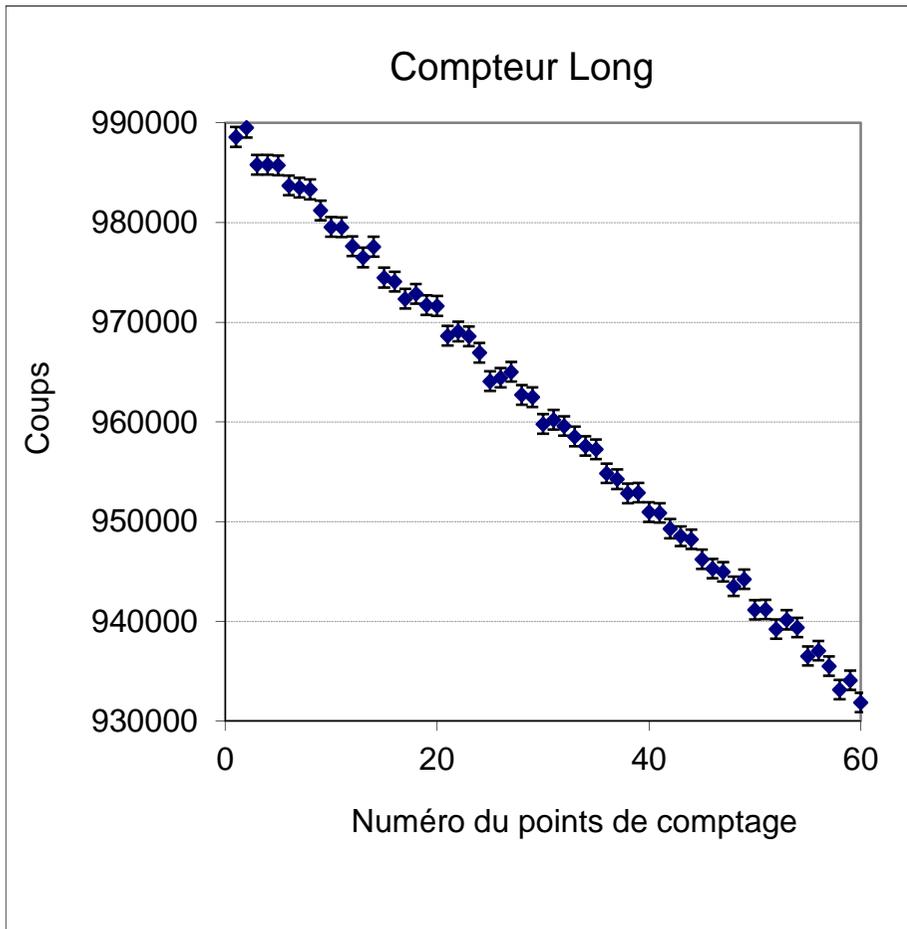
Seuil de déclenchement

## INCERTITUDES SUR L'ACTIVITÉ VOLUMIQUE, CAS DU KR-85

Grandeur	Contribution relative
Période radioactive	0,07%
Mouvement propre	0,088%
Différence entre comptages	<b>0,26%</b>
Volume total	0,13%
Volume Long-Court	<b>0,20%</b>
Correction TPN	0,16%
Volume de prélèvement	0,16%
Correction beta non détectés	0,15%
Correction beta non ionisés	0,054%

**Activité volumique au mieux à 0,5% près (k = 1)**

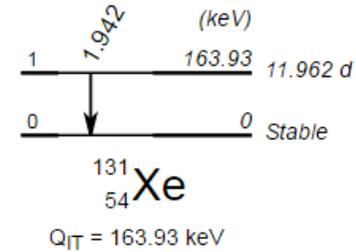
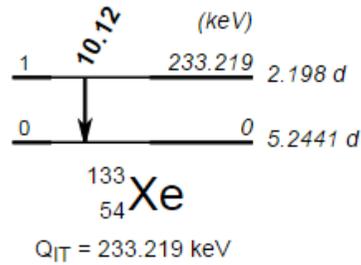
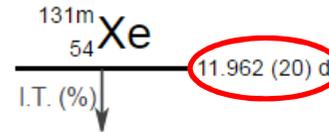
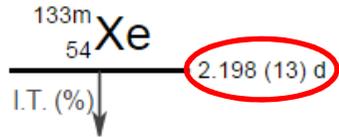
Période courte de 5,25 j → correction de décroissance



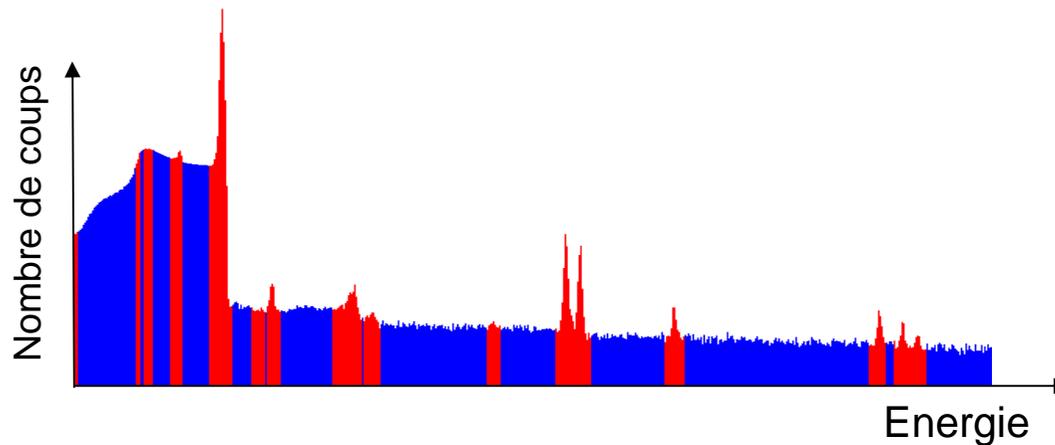


# IMPURETES DE Xe-131m et Xe-133m

Rapport d'impuretés mesurés par spectrométrie gamma



Les pics du  $^{131m}\text{Xe}$  et du  $^{133m}\text{Xe}$  sont identifiés respectivement à 163 et 223 keV.

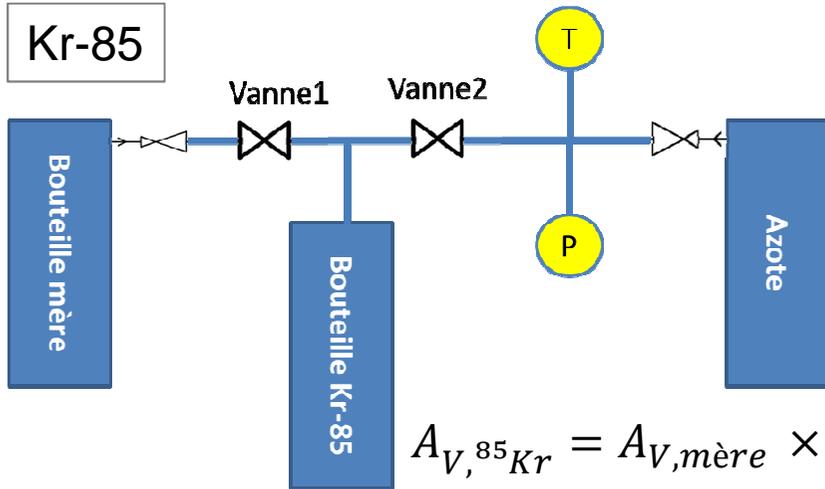




# TEST INTERLABORATOIRE ÉCHANTILLONS GAZEUX

# PRÉPARATION DES BOUTEILLES MÈRES KR-85 ET XE-133

Kr-85

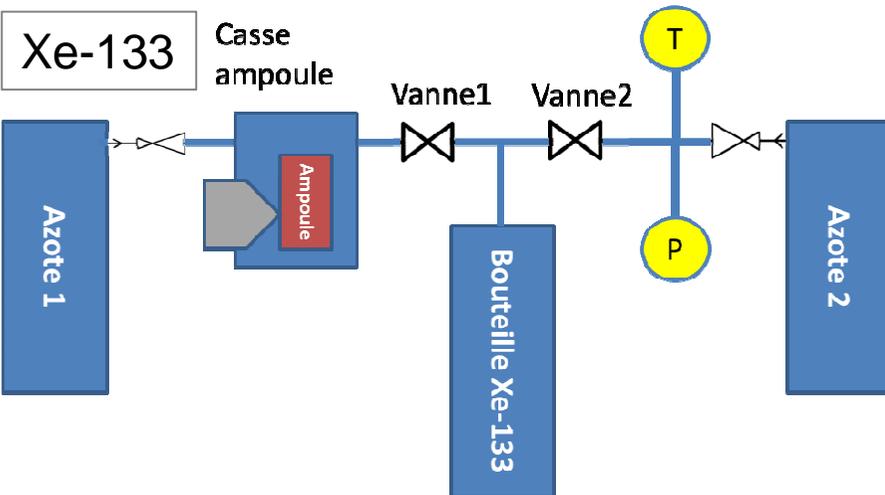


$$A_{V,85Kr} = A_{V,mère} \times \frac{P_{prélevée}}{P_{azote}}, \quad T \approx cste$$

Banc de préparation des bouteilles



Xe-133



Mesure des bouteilles sur le banc primaire:  
 $A_{Kr-85} = 43,27 \text{ (43) Bq/cm}^3$   
 $A_{Xe-133} = 126,2 \text{ (9) Bq/cm}^3$   
 (30/09/15 12 U.T.C)

$$A_{V,133Xe} = \frac{A_{amp.}}{P_{azote} \times V_{bout.}} \frac{1013,25 \times (T + 273,15)}{273,15}$$

## RACCORDEMENT DE LA SPECTROMÉTRIE GAMMA

Préparation d'étalons 3 SG500G en Kr-85 et 12 SG500G en Xe-133



Etalonnage à deux distances

- à 10 cm → contrôle d'homogénéité sur le Xe-133, fortes activités initiales
- Au contact → suivi des échantillons en Kr-85, faibles activités et faible intensité gamma

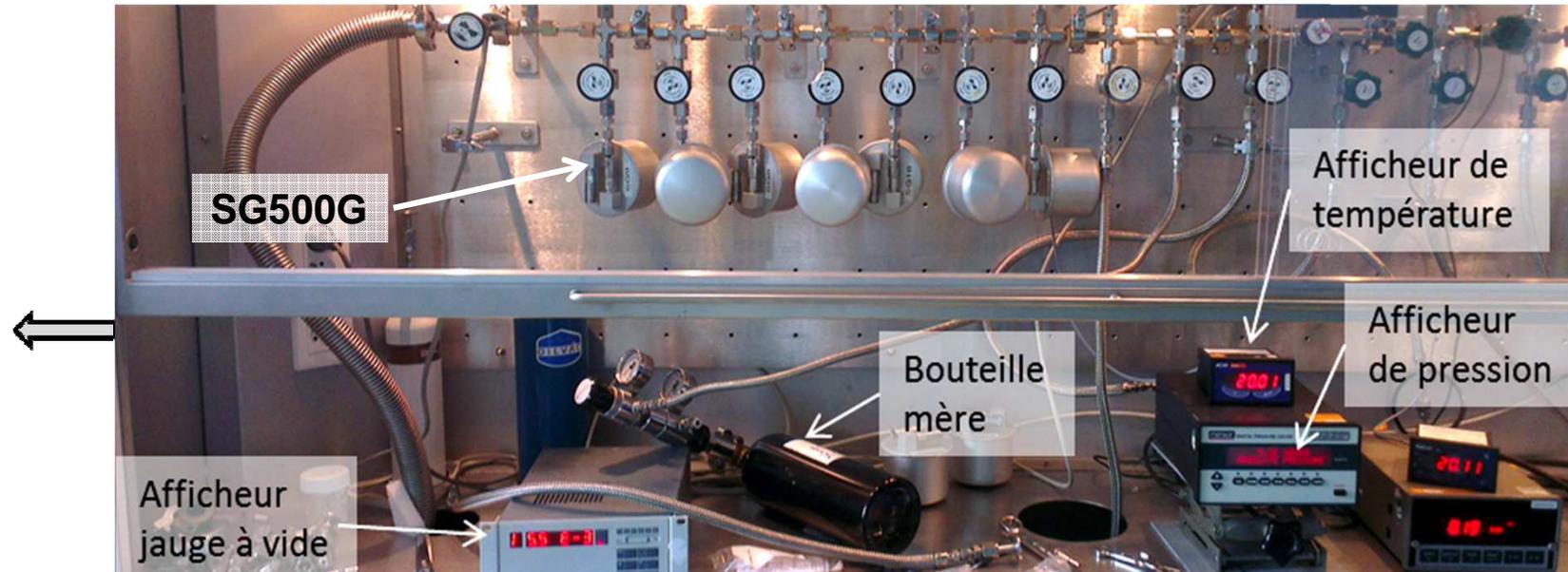


SG500 au contact du détecteur germanium

Rapport entre le rendement obtenu à partir des étalons et le rendement donné par le logiciel ETNA:

Radionucléide	Détecteur	Contact	8 cm
Kr-85	G8	0,947	0,989
	G9	0,964	0,984
Xe-133	G8	0,937	0,976
	G9	0,979	0,992

## CONTRÔLE DES SG500G

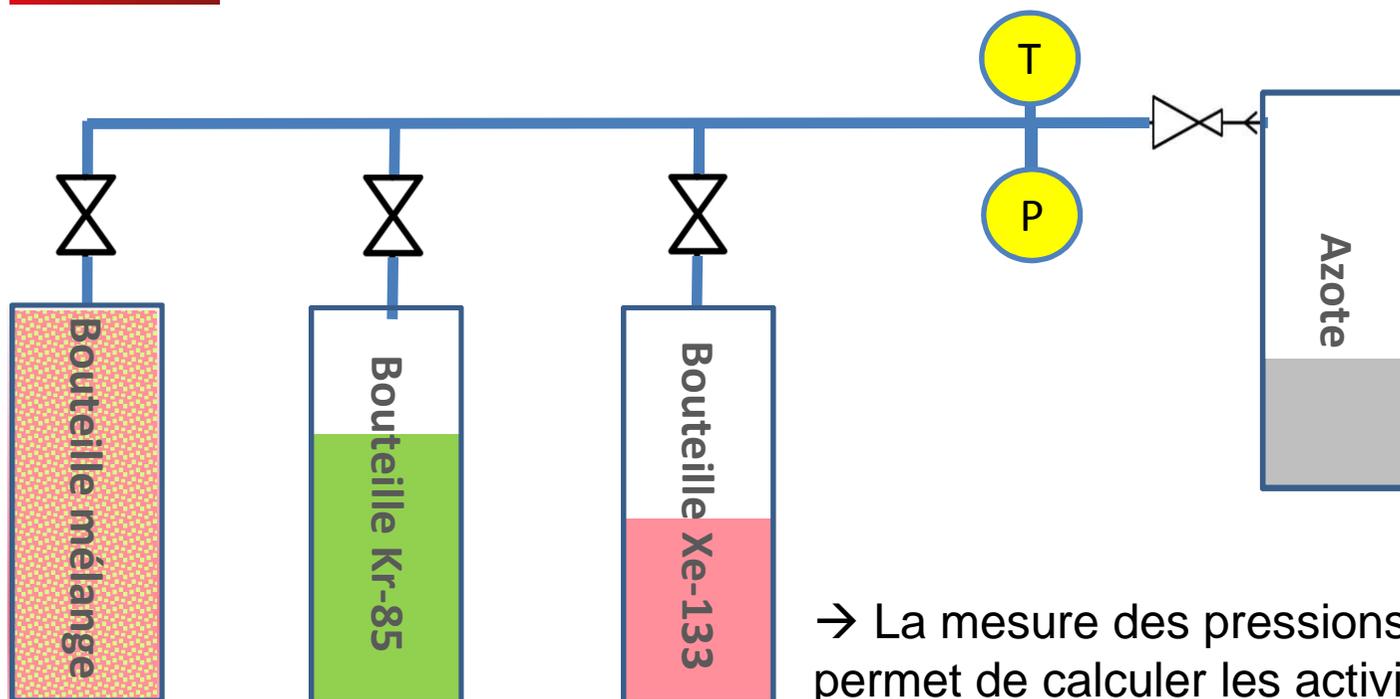


- Vérification du remplissage
- Vérification de l'étanchéité
- Pesage
- Etalonnage des volumes

$$V_{inconnu} = \frac{P_2 \times V_{référence}}{P_1}$$

$$\bar{V}_{SG500G} = 461,9 (31) \text{ cm}^3$$

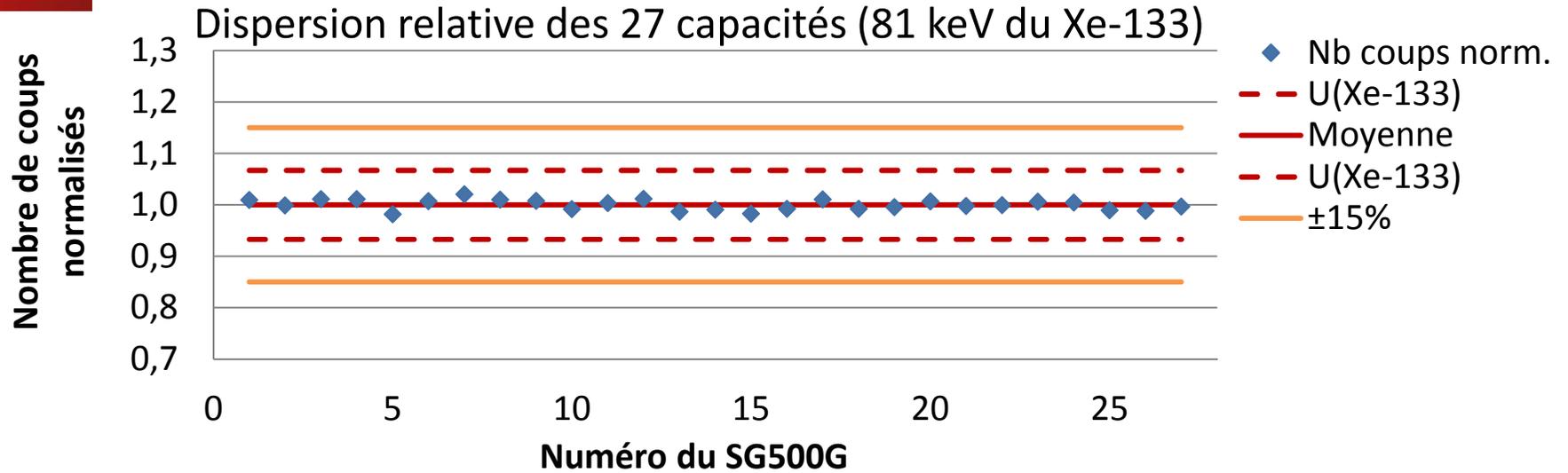
## PRÉPARATION DU MÉLANGE ET REMPLISSAGE DES SG500G



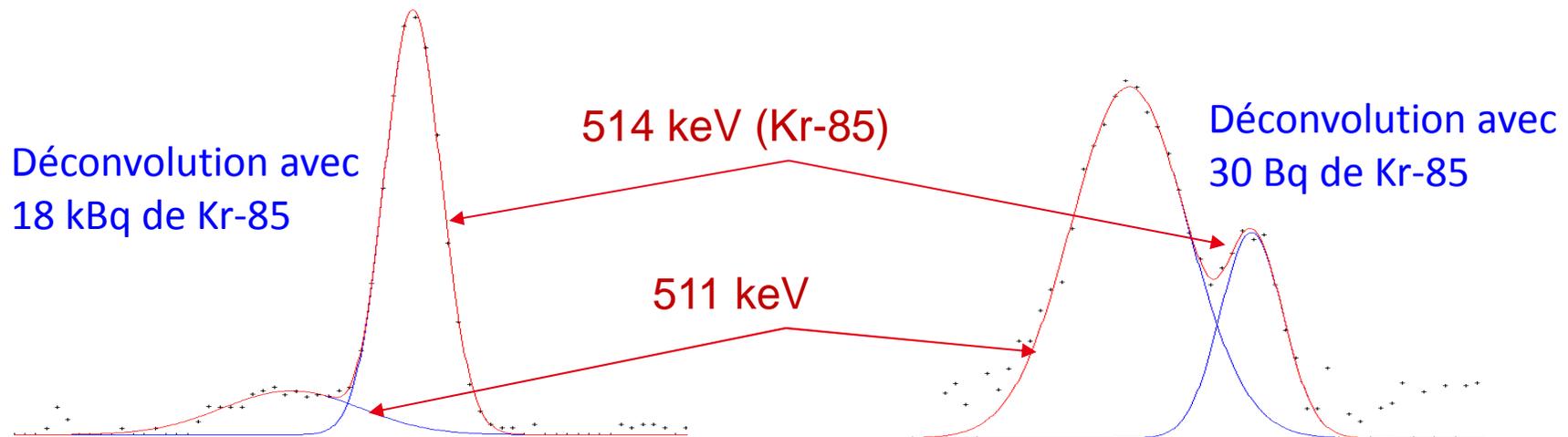
Remplissage de 27 SG500G en 3 séries et en légère dépression:

Série	$A^{85}\text{Kr}$ (Bq) 30/09/15	$u$ ( $k=2$ )	$A^{133}\text{Xe}$ (Bq) 30/09/15	$u$ ( $k=2$ )	$A^{133}\text{Xe}$ (Bq) 25/11/15	$A^{131\text{m}}\text{Xe}$ (Bq) 25/11/15	$u$ ( $k=2$ )
1	30,8	7 %	52200	6 %	32,0 à 6 %	23,2	17 %
2	30,2	7 %	51200	6 %	31,4 à 6 %	22,7	17 %
3	30,1	7 %	51000	6 %	31,3 à 6 %	22,7	17 %

# HOMOGÉNÉITÉ ET SUIVI DES ÉCHANTILLONS



Suivi sur le Kr-85 difficile à cause de la faible activité et de la faible intensité du  $\gamma$  :



## CONCLUSIONS

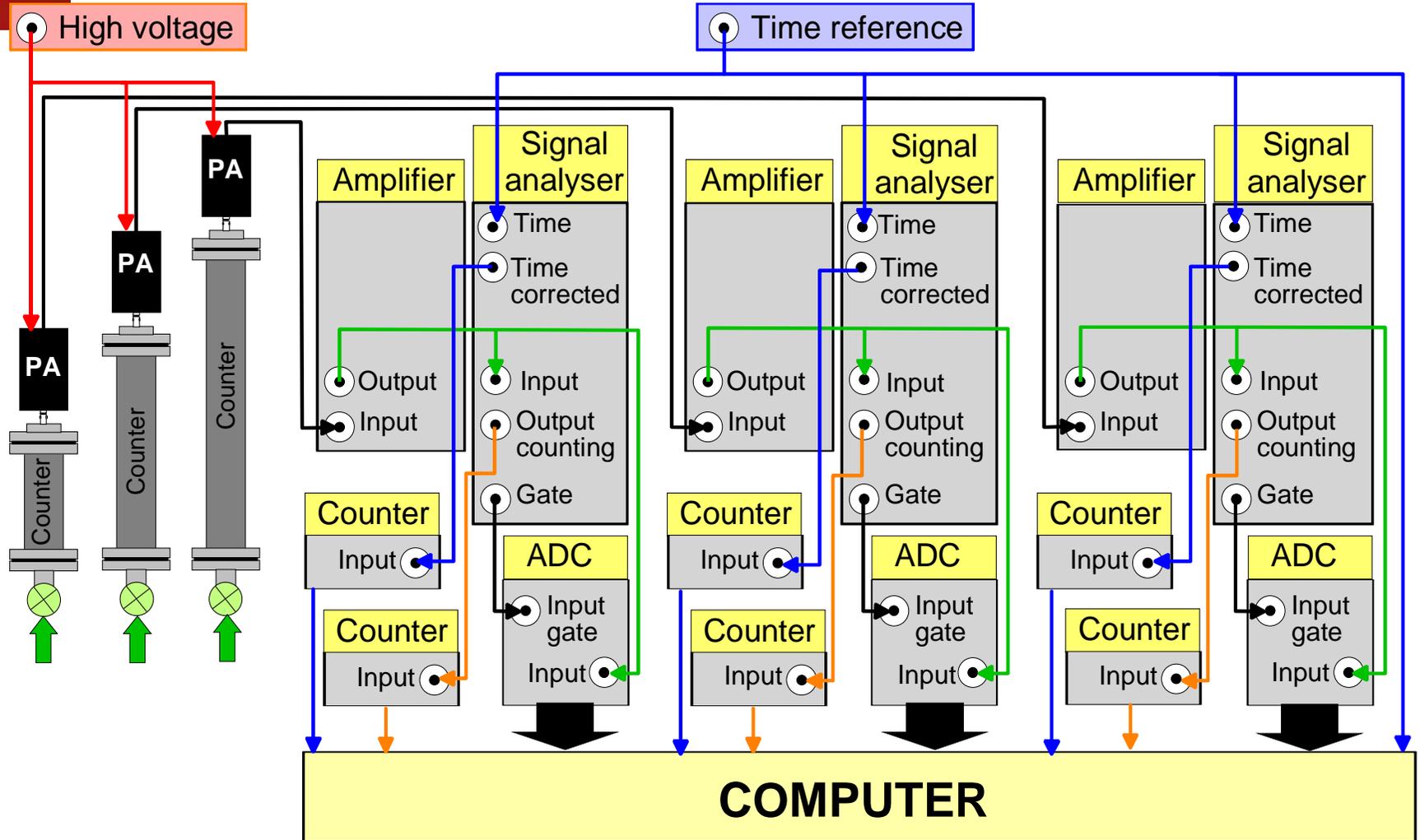
- **Le LNHB dispose d'une méthode primaire d'étalonnage d'activité volumique gaz**
- **Réalisation du 1<sup>er</sup> PTI gaz avec succès**
  - Raccorder la spectrométrie  $\gamma$  du LNHB pour les géométrie SG500G en Kr-85 et Xe-133
    - Suivi problématique sur le Kr-85
- **Suite à ce PTI, fourniture de SG500G étalons en Kr-85, Xe-133, Xe-131m et Xe-127 pour étalonner les participants.**
- **A ce jour, il n'y a plus de fournisseur de Xe-133...**

# 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](http://www-list.cea.fr)

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



Radionucléide (période)	Energie (keV)	Intensité (%)	Activité volumique Bq.m <sup>-3</sup> 25/11/15 12 h UTC	Incertitude relative (k=2)
<sup>85</sup> Kr (10,752 y)	513,997	0,435 ± 0,010	65 300	6,7 %
<sup>131m</sup> Xe (11,962 d)	163,930	1,942 ± 0,026	49 700	17 %
<sup>133</sup> Xe (5,2474 d)	80,9979	37,0 ± 0,3	68 600	6,0 %
	79,6142	0,28 ± 0,03		