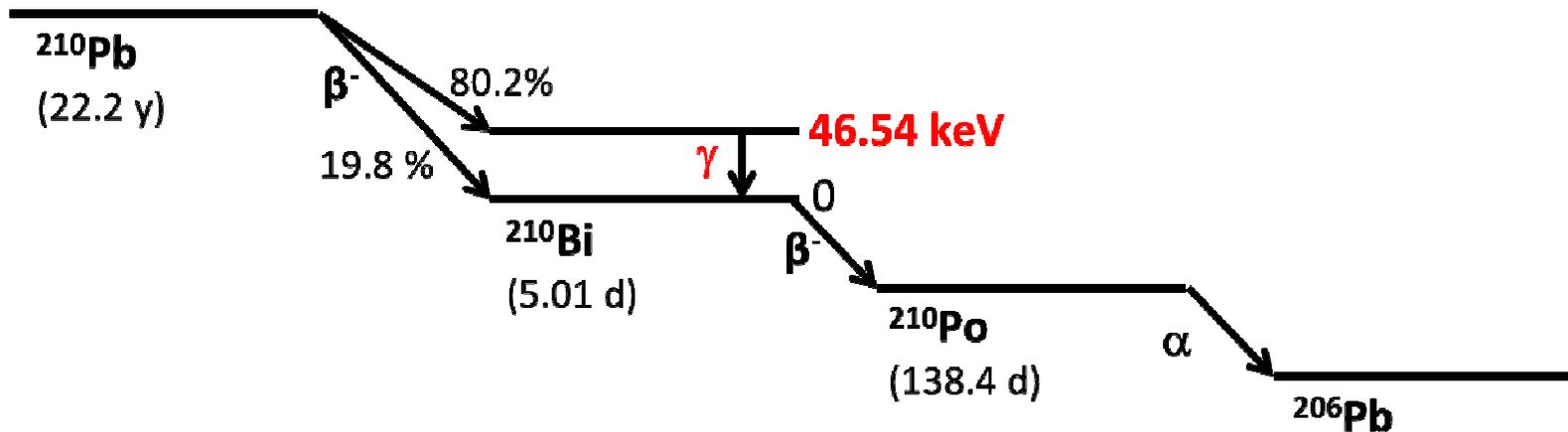


DÉTERMINATION DES INTENSITÉS D'ÉMISSION DU PB-210

Journée des utilisateurs | RODRIGUES Matias

INTÉRÊT DES INTENSITÉS D'ÉMISSION PHOTONIQUES DU PB-210

- Pb-210 radionucléide de la chaîne naturelle U-238 (Rn-222):
 - Matériau radioactive naturellement présents (NORM, environnement)
 - Technologies concentrent les matériaux radioactive naturellement présents (TENORM, industrie minière et d'extraction)



- Pb-210 un possible étalon pour:
 - Étalonnage des contrôleurs d'I-129 (Hino, 1990)
 - Rendement des spectromètres γ à basse énergie.
- Pb-210 pour la détermination de paramètres fondamentaux (FPs):
 - Rayons XL intenses entre 9-17 keV (Campbell 2003, Menesguen 2015)
 - Schéma de décroissance simple



MÉTHODES UTILISÉES

Combinaison de 3 techniques

Scintillation Liquide
Ultimagold AB
Hionic Fluor
Wallac 1414

Activité massique A

Spectromètre semiconducteur X et γ

HPGe1 Rendement total étalonné avec des sources primaires	HPGe2 Rendement intrinsèque étalonné avec la source de photons monochromatiques SOLEX
---	---

Détecteurs cryogéniques
Calorimètre SMX3 haute résolution
Rendement intrinsèque simulé par Monte Carlo

Intensités absolues γ et X $L\gamma$

Intensités X $L\alpha, \beta, \gamma, \eta$

Intensités individuelles $Li-Yj$

Mesure détaillée et complète des intensités d'émission du Pb-210

PRÉPARATION DES SOURCES

Solution mère

- Achetée dans les années 80 → $A_{\text{Pb-210}} \approx A_{\text{Bi-210}} \approx A_{\text{Po-210}}$
- Activité massique en Pb-210 ~ 0,8 MBq/g
- Entraîneurs :
 - $\text{Bi}(\text{NO}_3)_3 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$ avec 20 µg/g de Bi
 - $\text{Pb}(\text{NO}_3)_2$ avec 20 µg/g de Pb
- Solvant 1N HNO_3

Sources scintillation liquide

Sources de qq kBq dans 20 mL ampoules sablées

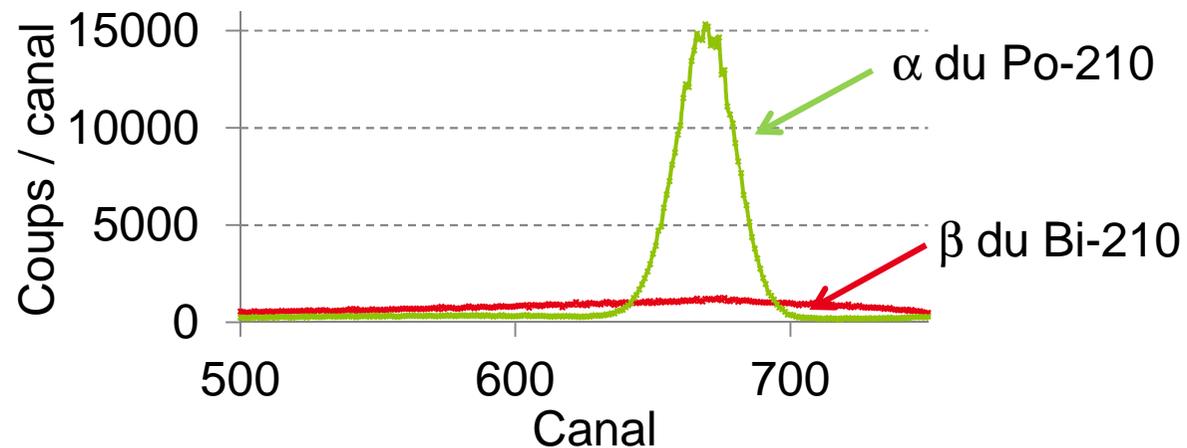
- 5 sources avec Ultimagold AB
- 5 sources avec Hionic Fluor

Sources spectrométrie de photons

- 5 sources ponctuelles sur 18 µm Mylar® foil
- $34,8 \text{ kBq} < A < 71,4 \text{ kBq}$
- Homogénéité vérifiée par spectrométrie
- Radiographie de l'activité surfacique

MESURE DE L'ACTIVITÉ MASSIQUE DE LA SOLUTION MÈRE

- Mesure basée sur la discrimination α/β (descente des impulsions $\alpha >$ impulsions β)
- Hionic Fluor donne la meilleure discrimination
- Incertitude due au fond provoqué par la diaphonie en voies $\alpha - \beta$



Equ. de Bateman :

$$\frac{A_X}{A_{\text{Pb-210}}} = k_X = k_{X-1} \left(\frac{T_{1/2}(\text{Pb-210})}{T_{1/2}(\text{Pb-210}) - T_{1/2}(X)} \right)$$

$$\rightarrow k_{\text{Bi-210}} = \frac{A_{\text{Bi-210}}}{A_{\text{Pb-210}}} = 1.0006$$

$$\rightarrow k_{\text{Po-210}} \frac{A_{\text{Po-210}}}{A_{\text{Pb-210}}} = 1.0179$$

$$\rightarrow A_{\text{Pb-210}} = 839,8 (76) \text{ kBq/g}$$

26/02/2015, 12h00 UTC

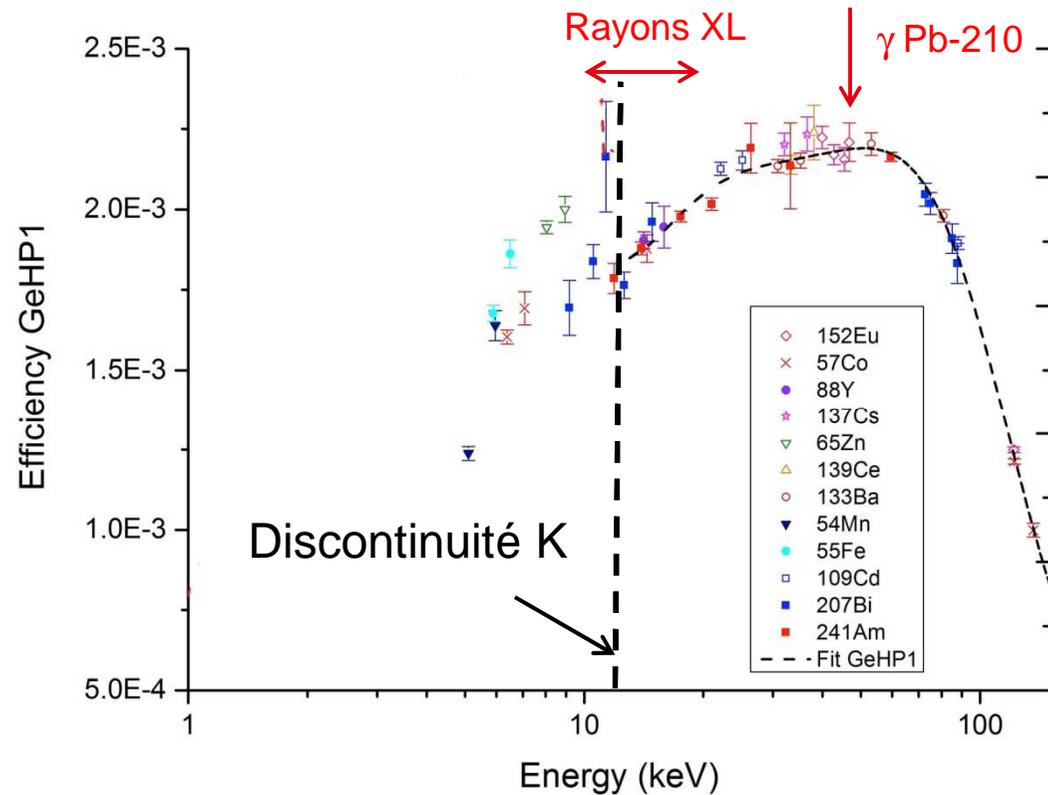
MESURE DE L'INTENSITÉ ABSOLUE DU GAMMA DE 46,5 KEV

HPGe1
 $\phi = 16 \text{ mm}, e = 10 \text{ mm}, \Delta E_{FWHM} = 370 \text{ eV @ } 59,54 \text{ keV}$

• $j^{\text{ème}}$ intensité:
$$I_j(E) = \frac{n_j(E) \cdot C_T}{\varepsilon_{\text{abs}}(E) \cdot A}$$

n : coups dans le PAT
 C_T : facteurs correctifs
 A : activité de la source
 ε_{abs} : rendement absolu

- Rendement total ε_i étalonné avec des sources étalons entre 6 and 136 keV
- discontinuité à 11 keV est problématiques pour les XL
 → Seulement les intensités XL γ et γ déterminés précisément



$I_{\gamma} = 4,23 (5) \text{ per } 100 \text{ dés.}$
 $I_{XL\gamma} = 2,320 (35) \text{ per } 100 \text{ dés.}$

INTENSITÉ D'ÉMISSION GAMMA DE 46,54 KEV

Budget d'incertitude (%)	
Activité	1,0 %
Rendement	0,9 %
Comptage	0,3-0,5 %
Facteurs correctifs	0,01 %
Déconvolution	0,4 %
Total	1,2 %

Auteur	Intensité pour 100 dés.
Cette étude	4,23 (5)
Fink (1957)	4,5 (4)
Ya Gromov et al. (1969)	4,8 (6)
Hino and Kawada (1990)	4,26 (7)
Schötzig (1990)	4,24 (5)
Evaluated value, Chisté and Bé (2007)	4,252 (40)

MESURE DES INTENSITÉS ABSOLUES DES GROUPES XL

HPGe2

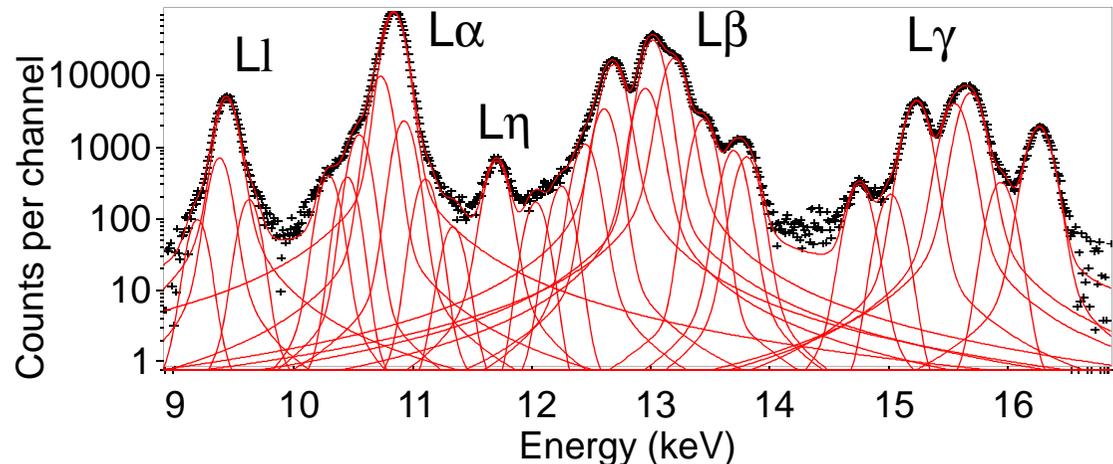
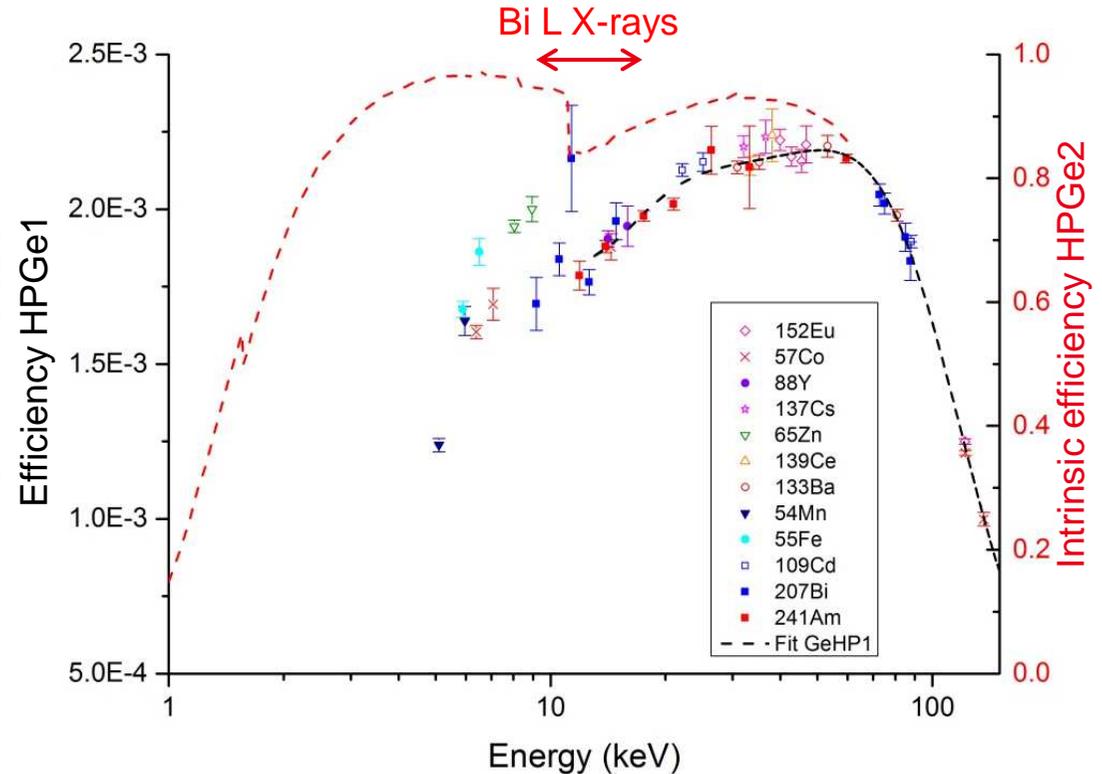
$\phi = 16 \text{ mm}, e = 10 \text{ mm}$

$\Delta E_{FWHM} = 320 \text{ eV @ } 59,54 \text{ keV}$

- Rendement intrinsèque ε_{int} étalonné avec SOLEX
- Intensité $I_{L\gamma}$ utilisée comme raie de référence pour $L\iota, L\alpha, L\eta,$ and $L\beta$

- j^{th} Intensité:
$$I_j = \frac{n_j}{n_{L\gamma}} \cdot \frac{\varepsilon_{int,L\gamma}}{\varepsilon_{int}} \cdot I_{L\gamma}$$

 n coups dans le PAT
 ε_{int} rendement intrinsèque



COMPARAISON DES INTENSITÉS D'ÉMISSION DES GROUPES LX

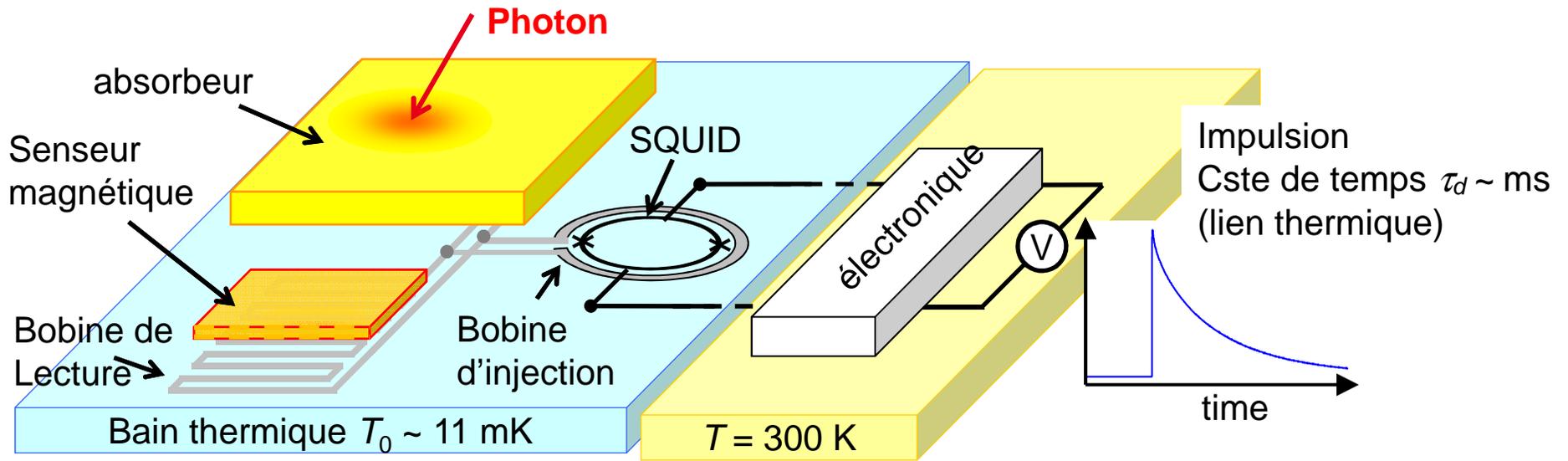
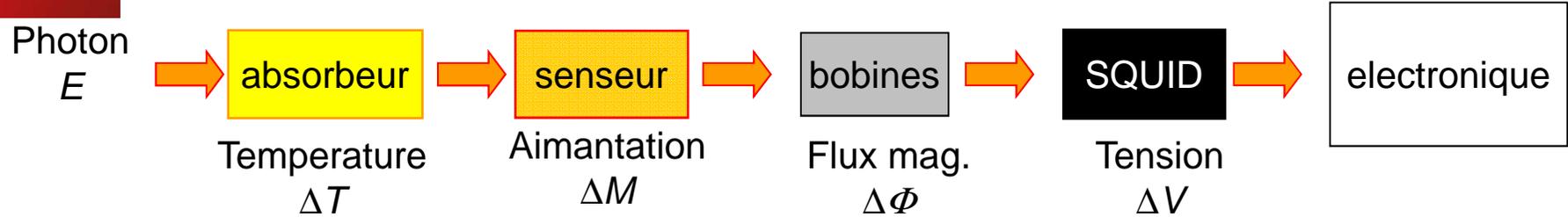
Raie Ou groupe	Energies (keV)	Ce travail (HPGe)*	Calcul Bé, 2008	Mehta, 1987 Bé, 2008	Schötzig, 1990
Li	9,42	0,518 (10)	0,552 (17)	0,584 (18)	0,55 (3)
Ls	9,72	-	-	-	-
Lt	10,24	-	-	-	-
L α	10,83	9,49 (19)	10,3 (3)	10,27 (32)	9,48 (17)
L η	11,71	0,087 (2)	0,075 (2)	0,074 (4)	0,075 (4)
L β	13,01	10,52 (21)	9,05 (13)	11,6 (4)	10,9 (4)
L γ	15,32	2,320 (35)	1,97 (3)	2,64 (8)	2,36 (5)
Total		23,01 (44)	22,0 (5)	25,2 (3)	23,4 (4)

*Normalisées par rapport à $I_{L\gamma}$ obtenue avec HPGe1

Intensités publiées en accord avec Intensités mesurées par HPGe2

Intensités publiées en désaccord avec Intensités mesurées par HPGe2

PRINCIPE DES CALORIMÈTRES MAGNÉTIQUES



Signal

$$\Delta V \propto \Delta T = \frac{E}{C(T_0^n)}$$

$$n \geq 1$$

Bruit

$$\sigma_{\text{SFN}} \propto \sqrt{F \epsilon E}, \quad \epsilon = k_B T_0$$

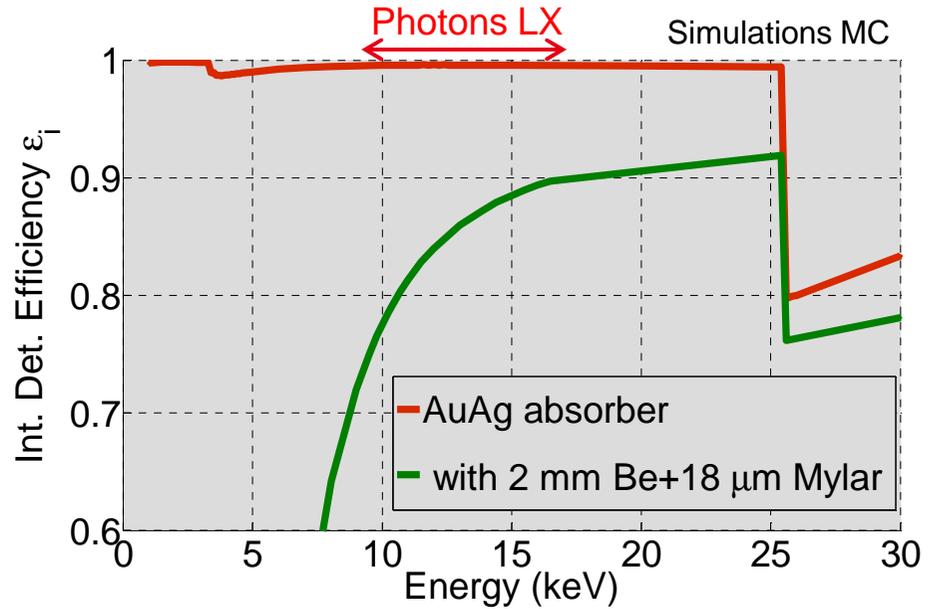
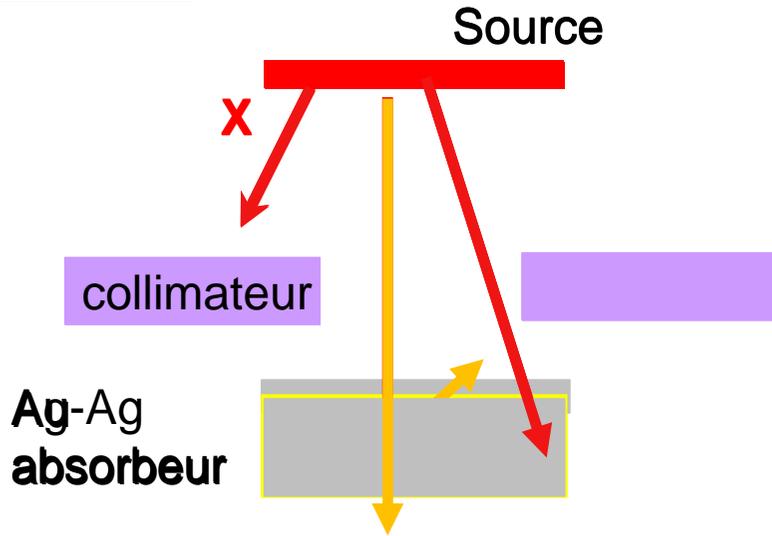
$$\sigma_{\text{TFN}} \propto \sqrt{4k_B \cdot T_0^2 \cdot C(T_0)}$$

$$\sigma_{\text{SQUID}} \propto \sqrt{T_0}$$

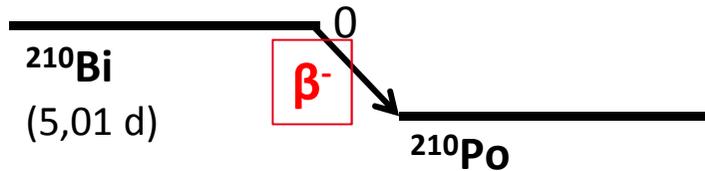
Signal/bruit augmente quand T_0 diminue

→ Basse température nécessaire pour haute résolution en énergie

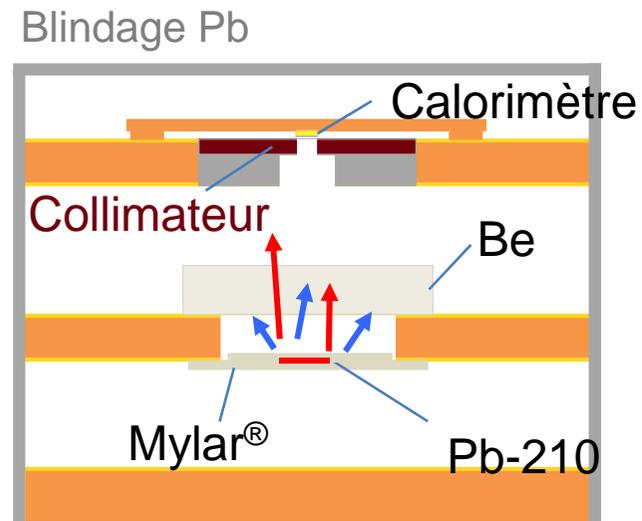
CONCEPTION DU CALORIMÈTRE SMX3



→ Rendement constant en dessous 25 keV

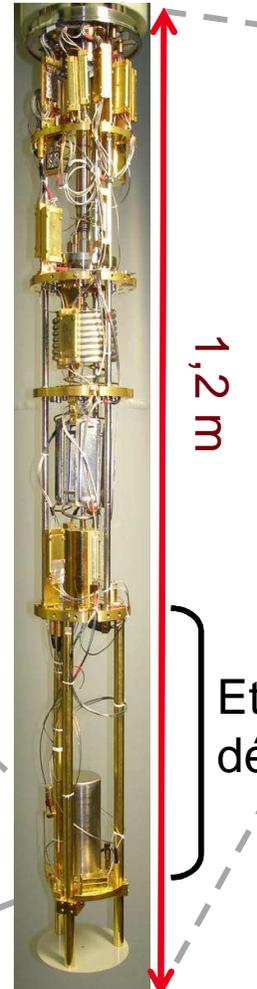
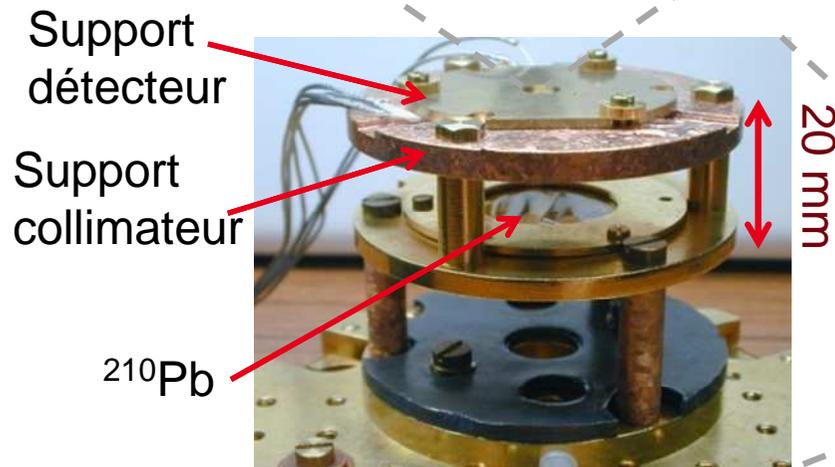
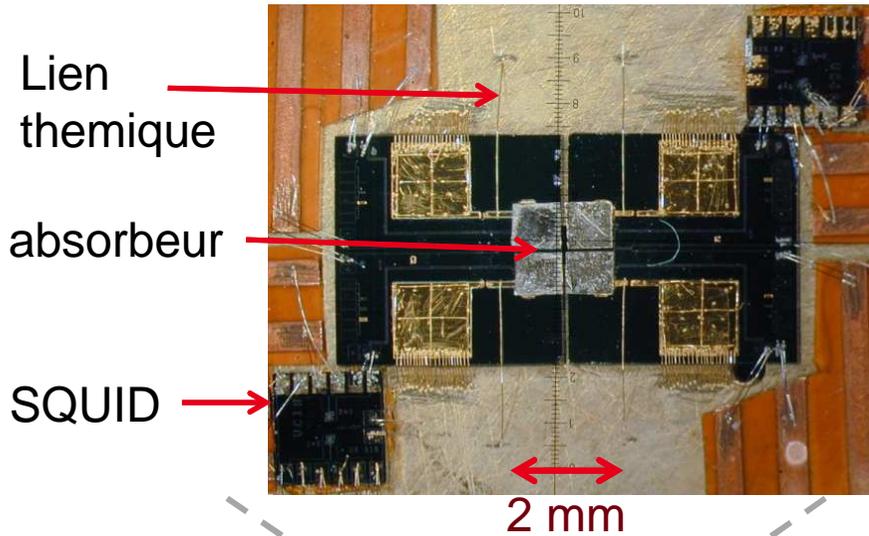


β⁻ jusqu'à 1,2 MeV sature le calorimètre
→ Absorbeur Be de 2 mm

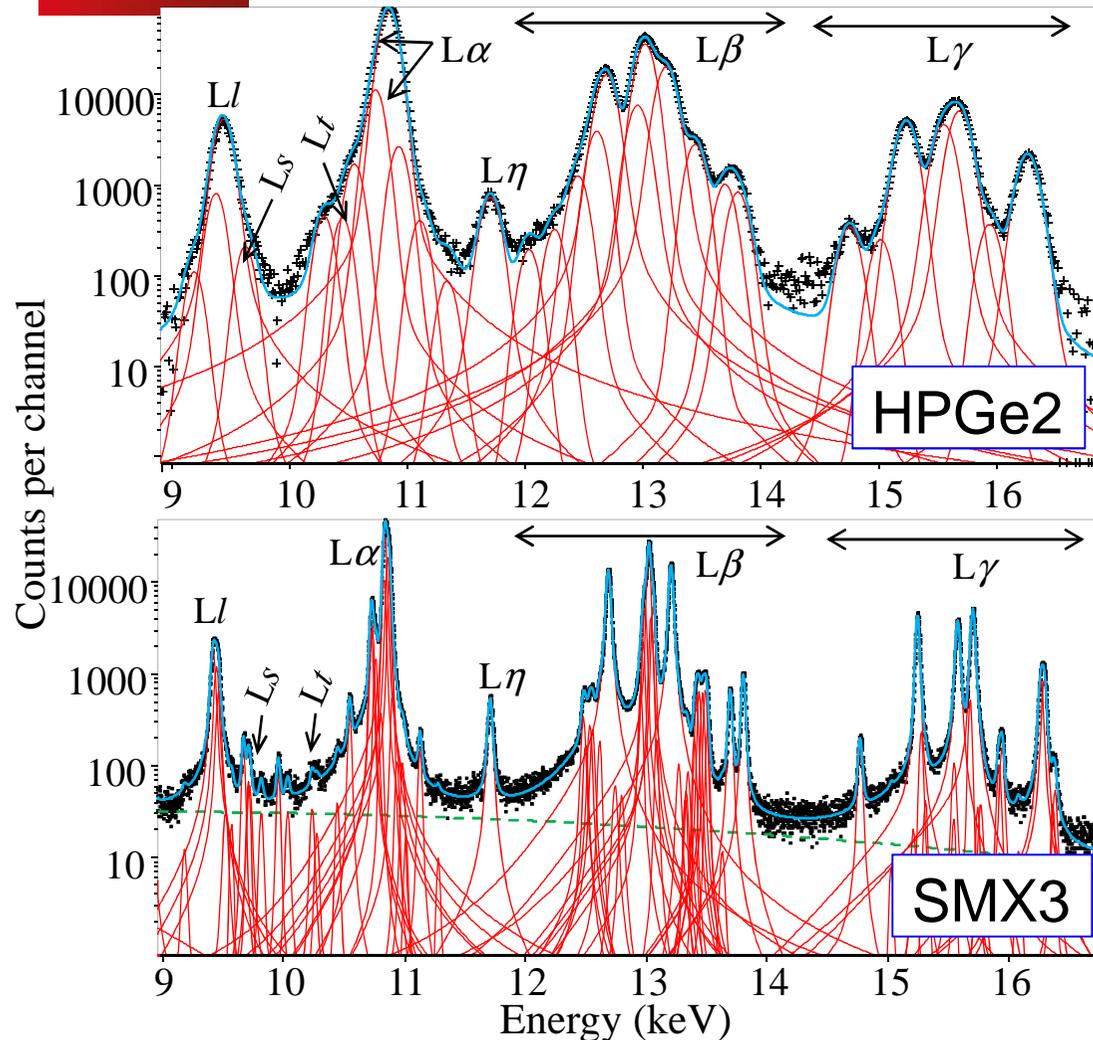


DISPOSITIF EXPÉRIMENTAL

SMX3 avec 4 pixels



DÉCONVOLUTION DU SPECTRE (1/2)



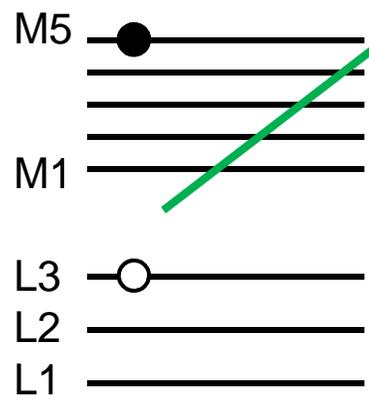
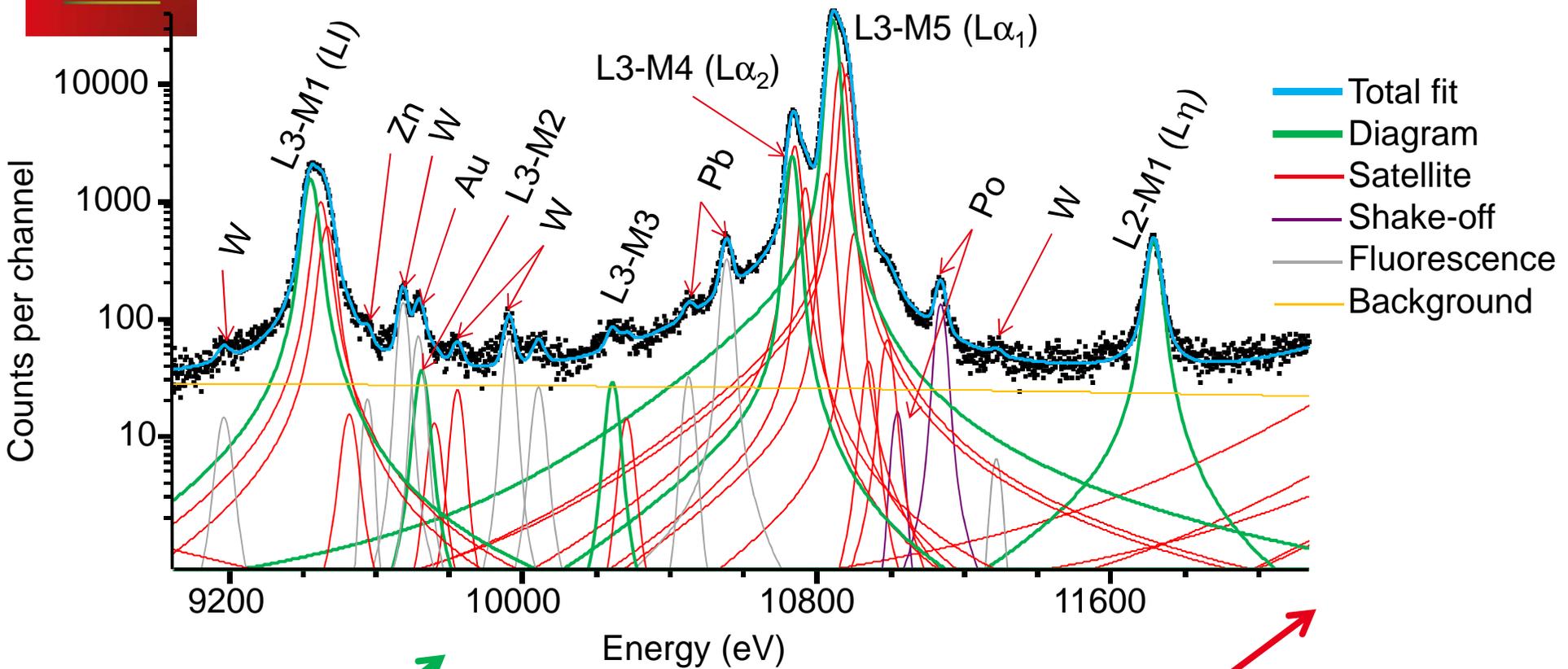
Pour le spectre XL avec SMX3 :

- Fonctions de Voigt avec traîne à gauche
→ Traîne due à la diffusion Compton dans le Be.
- Largeur instrumentale à mi-hauteur constante de 25,9 eV
- Largeur naturelle des raies X fixée (Campbell and Papp 2001)
- Pics déconvolués :
 - Raies diagrammes et satellites du Bi,
 - Raies X shake-off du Po et Pb,
 - Fluorescence du W et Pb

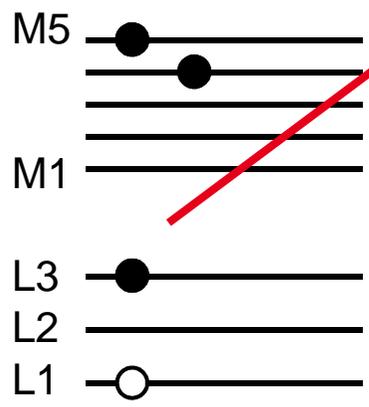
→ avec une haute résolution, ce n'est pas plus simple mais plus juste...



DÉCONVOLUTION DU SPECTRE (2/2)



transition X diagram
 $E(L3-M5) = 10,839 \text{ eV}$



Transition X satellite
 $E'(L3-M5) > E(L3-M5)$

Coster Kronig transition L3L1M4



INTENSITÉS D'ÉMISSION INDIVIDUELLES

$$I_j = \frac{n_j}{n_{L\gamma}} \cdot \frac{\varepsilon_{\text{int},L\gamma}}{\varepsilon_{\text{int}}} \cdot I_{L\gamma}$$

- Rendement intrinsèque ε_{int} déterminé par Monte Carlo
- Intensité $I_{L\gamma}$ utilisée pour normaliser les intensités individuelles LX

X-ray line (IUPAC)	Measured	Intensity relative to $I_{\text{Total-LX}}$ (%)	Intensity relative to $I_{L\gamma}$ (%)	Group (Siegbahn)	Intensity relative to $I_{L\gamma}$ (%)
L3-M1	9438.2	2.609 (20)	0.595 (9)	<i>Ll</i>	0.595 (10)
L3-M2	9723.0	0.0356 (11)	0.00811 (22)	<i>Ls</i>	0.00811 (26)
L3-M3	10254.6	0.0320 (8)	0.00730 (17)	<i>Lt</i>	0.00730 (24)
L3-M4	10744.3	4.203 (18)	0.958 (15)	} <i>Lα</i>	9.43 (14)
L3-M5	10853.7	37.13 (18)	8.47 (13)		
L2-M1	11713.4	0.3573 (29)	0.0815 (13)	<i>Lη</i>	0.0815 (14)
L3-N1	12519.3	0.6332 (46)	0.1444 (24)	} <i>Lβ</i>	10.37 (16)
L1-M2	12692.3	9.894 (25)	2.256 (34)		
L3-N4.5	13022.5	9.514 (24)	2.170 (33)		
L2-M4	13024.7	12.315 (30)	2.808 (43)		
L1-M3	13210.6	10.670 (25)	2.433 (37)		
L3-N6.7.	13344.4	0.0905 (14)	0.02065 (42)		
L3-O1					
L3-O4					
L3-P1	13458.6	1.428 (7)	0.326 (5)		

- Mesure possible des intensités de 26 raies X
- Pour les plus intenses, source d'incertitude intensité de $I_{L\gamma}$ et de l'atténuation du Be

COMPARAISON AVEC LES DONNÉES PUBLIÉES

Raie Ou groupe	Energie (keV)	Ce travail (SMX3)*	Ce travail (HPGe)*	Calcul Bé, 2008	Mehta, 1987 Bé, 2008	Schötzig, 1990
Li	9,42	0,595 (11)	0,518 (10)	0,552 (17)	0,584 (18)	0,55 (3)
Ls	9,72	0,00811 (26)	-	-	-	-
Lt	10,24	0,00730 (24)	-	-	-	-
L α	10,83	9,42 (24)	9,49 (19)	10,3 (3)	10,27 (32)	9,48 (17)
L η	11,71	0,0815 (14)	0,087 (2)	0,075 (2)	0,074 (4)	0,075 (4)
L β	13,01	10,37 (16)	10,52 (21)	9,05 (13)	11,6 (4)	10,9 (4)
L γ	15,32	2,320 (35)	2,320 (35)	1,97 (3)	2,64 (8)	2,36 (5)
Total		22,80 (35)	23,01 (44)	22,0 (5)	25,2 (3)	23,4 (4)

*la raie L γ obtenue avec HPGe1 est utilisé comme référence pour normaliser

Intensités en accord avec les mesures de SMX3

Intensités en désaccord avec les mesures de SMX3

→ Bon accord → Valide l'utilisation de calorimètre magnétique

Grâce à la combinaison de différentes techniques du LNHB

- **Scintillation liquide + spectromètre γ HPGe1**
 - mesure de l'intensité d'émission absolue du γ 46.5-keV
 $I_\gamma = 4.23$ (5) pour 100 désintégrations
en accord avec les mesures les plus récentes
- **Spectromètre HPGe2 + calorimètre magnétique SMX3**
 - mesure des intensités des groupes des groupes LX
 - valide le développement et l'utilisation de calorimètre
- **Calorimètre magnétique SMX3**
 - premières mesure détaillées des intensités d'émission de 26 raies individuelles LX du Pb-210

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