

Rapport d'essais

sur les irradiations auprès de

CROCUS

Mars 2022

M. Ramdhane, M. Heusch et O. Méplan

4 mars 2022

1. Présentation

Le Laboratoire de mesures de Basse Activité, service du Laboratoire de Physique Subatomique et de Cosmologie (LPSC), fait partie du Réseau Becquerel, plateforme nationale d'analyse alternative de la radioactivité de l'Institut national de physique nucléaire et de physique des particules (IN2P3) du CNRS. Le laboratoire possède 2 détecteurs germanium hyper pur (HPGe) bas bruit.

Le laboratoire est placé au sous-sol du bâtiment 1 du LPSC (~5m équivalent eau) afin de diminuer le bruit lié au rayonnement cosmique (suppression des p, e-, atténuation des muons et neutrons).

Les détecteurs sont entourés de vétos (scintillateur liquide) à l'exception de « la porte » d'accès aux détecteurs qui est composée d'un scintillateur plastique (fragilité des enveloppes contenant le scintillateur liquide) interdisant le comptage lors du passage d'un muon cosmique. Ces vétos forment un cube dont chaque surface fait environ 2m².

Pour limiter l'accumulation du radon, l'air de la pièce est pompé directement sur le toit du bâtiment (h ~9m), filtré sur des filtres anti-poussières puis des filtres haute efficacité à charbon actif. L'air est alors injecté dans la salle de mesure.

De plus, l'accès à la salle de mesure et d'analyse se fait en mettant des sur bottes pour limiter l'apport de poussière contenant potentiellement de petites quantités d'uranium naturel source de radon.

1.1. Chaînes de mesure

Les détecteurs HPGe utilisés ont les caractéristiques suivantes :

- 1 détecteur dénommé « BEGe » Canberra HPGe BE3830 de « type p » (efficacité relative 32%, rapport pic/Compton ~ 57, résolution à 1332 keV = 1.83 keV). Ce détecteur est un « Broad Energy Germanium » (diamètre 70 mm, hauteur 30 mm, 115 cm³) alimenté par une HT=+5000 V (module Eurisys Mesure). Ce détecteur a une fenêtre en carbone (carbone époxy) de 0.6 mm d'épaisseur.
- 1 détecteur dénommé « Gamma » Canberra EGC-20-R, coaxial (diamètre 50 mm, hauteur 50 mm, 100 cm³) de « type n » (efficacité relative 20%, rapport pic/Compton ~50, résolution à 1332 keV = 2.06 keV), alimenté par une HT= -4000V (module Eurisys Mesure). Ce détecteur a une fenêtre en aluminium de 1 mm d'épaisseur.

Ils sont protégés par des cylindres de plomb archéologique (provenant d'un navire ayant coulé au large de la Bretagne vers 400 ans après JC) de 2 cm d'épaisseur sur une hauteur de 20 cm. Ces cylindres sont eux-mêmes contenus dans 2 châteaux (épaisseur 15 cm) de plomb ayant subi trois cycles de purifications par fusion suivie d'écémage.

Le signal issu du pré-amplificateur, après amplification (Amplificateur InterTechnique 7243), est converti dans un analyseur multi-canal (QuadADC, ITECH Instruments). Chaque spectre est alors analysé par InterWinner 7.0 (ITECH Instruments) sur un PC dans la salle d'acquisition voisine (Windows 7).

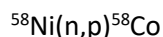
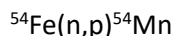
Dans le cadre d'une démarche qualité, le Manuel Qualité du LBA contient l'ensemble des informations détaillées sur les installations du LBA. Cette démarche, s'inscrit dans le cadre d'une demande d'agrément auprès de l'ASN. Les méthodes utilisées au LBA s'appuient sur la norme NF ISO 17025.

2. Echantillons mesurés

Deux types d'échantillons (sous forme de disque) ont été mesurés :

- Dosimètre de 0.5 mm d'épaisseur et de diamètre 29.5 mm en fer
- Dosimètre de 0.5 mm d'épaisseur et de diamètre 29.5 mm en nickel

Les réactions considérées étaient



2.1. Données nucléaires

Les données nucléaires utilisées proviennent de la bibliothèque LARA mise à jour depuis le site du LNHB (cf. Tableau 1).

Tableau 1 : Données nucléaires pour les 2 isotopes mesurés

Isotope	Période [j]	Energie γ [keV]	I_γ [%]
^{54}Mn	312.19	834.85	99.9752(5)
^{58}Co	70.85	810.76	99.44 (2)
		863.96	0.700(22)
		1674.71	0.528 (13)

Dans le cas des pastilles de nickel, la raie à 810.76 keV donne la contribution majoritaire à l'activité mesurée (l'impact des autres raies est inférieur à 0.1%) ; ces deux raies très peu intenses servent plus de vérification. Notons qu'il y a également la détection d'un gamma de 511 keV ($I_{511} = 29.88\%$) qui n'est pas utilisé mais regardé toujours à titre de vérification.

2.2. Positionnement des dosimètres

Les modes opératoires MO 05 et MO 06 annexe au manuel qualité du LBA décrivent les différentes étapes de la mesure pour des dosimètres. Nous en donnons ici un rapide aperçu.

Les mesures sont réalisées au « contact » du détecteur. Tous les dosimètres portaient une référence inscrite sur une face ; lors des mesures, cette face a toujours été placée vers le haut (i.e. la face non gravée au « contact » du capot du détecteur). Les mesures ont été réalisés en 2 séries : une première concernait les dosimètres Ni et une seconde concernait les dosimètres Fe.

Pour le détecteur « BEGe », un film plastique ($\epsilon = 0.04 \text{ mm}$), une feuille de zirconium très pure ($\epsilon = 1.1 \text{ mm}$) puis une feuille de papier servant de gabarit de centrage ($\epsilon = 0.1 \text{ mm}$) sont placés sur le capot en carbone-epoxy (l'erreur de positionnement du gabarit est estimée à moins de 1 mm sur 90 mm de diamètre grâce à son maintien par un support en polyéthylène). Le but de la feuille de Zr est d'arrêter les rayons X qui arrivent en coïncidence (empilements) avec les gammas de l'échantillon. Le dosimètre est sur la feuille de Zr. Notons que la feuille de Zr est solidaire du gabarit de centrage et le dosimètre est fixé par un scotch sur le gabarit (positionnement à mieux que 1 mm).

Pour le détecteur « Gamma », tout est identique au détecteur « BEGe » sauf que la fenêtre d'entrée de celui-ci étant en aluminium, la feuille de Zr est inutile : l'échantillon est donc fixé sur le gabarit de centrage qui est directement posé sur le film plastique.

2.3. Bruit de fond et calibration

Un bruit de fond pour d'une durée de 3 semaines a été réalisé dans les conditions de mesure (film plastique, gabarit et plaque de Zr pour le « BEGe » et film plastique, gabarit pour le « Gamma »). Les structures (pics) de ce bruit sont marqué afin d'être soustrait au spectre lors de la mesure. Pour toutes les énergies d'intérêt ici, seule une raie à 511 keV est présente dans le bruit de fond.

Une calibration en énergie et en efficacité est réalisée en utilisant des sources quasi-ponctuelles certifiées à 2% (2σ) (Cerca-Lea, sources de ^{137}Cs , ^{65}Zn , ^{54}Mn , ^{88}Y et ^{60}Co). Le positionnement des sources est réalisé avec des gabarits de centrage et dans les mêmes conditions que pour la mesure (source sur le film plastique pour le Gamma ou sur la feuille de Zr pour le BEGe). Le temps mort a été monitoré par l'acquisition simultanée du signal d'un générateur d'impulsions.

La calibration en efficacité pour les sources ponctuelles est réalisée ; puis une simulation Monte-Carlo (GEANT-4 du CERN) des deux détecteurs est effectuée pour les dosimètres de Fe et de Ni : les caractéristiques des détecteurs simulés ont été optimisées pour reproduire au mieux les mesures faites avec différentes géométries au contact (source ponctuelles, source étendues, matériaux de références de l'AIEA). L'incertitudes sur les efficacités simulées est d'environ 3% pour les énergies considérées ici. Les valeurs exactes sont présentées dans les Tableau 2 et Tableau 3.

Tableau 2 : Efficacité de détection (Epsilon %) pour les différentes énergies associées aux raies mesurées pour le détecteur « BEGe »

Détecteur 1 « BEGe »		
E [keV]	Epsilon [%]	$\frac{d\epsilon}{\epsilon}$ [%]
511	8,254%	3,0%
810,76	5,407%	2,8%
863,96	5,113%	2,8%
1674,7	2,850%	3,0%
834.85	5.285	3.1%

Tableau 3 : Efficacité de détection (Epsilon %) pour les différentes énergies associées aux raies mesurées pour le détecteur « Gamma »

Détecteur 2 « Gamma »		
E [keV]	Epsilon [%]	$\frac{d\epsilon}{\epsilon}$ [%]
511	5,440%	3,0%
810,76	3,423%	2,8%
863,96	3,221%	2,8%
1674,7	2,080%	3,0%
834.85	3.335%	3,0%

2.4. Correction de somme

Lors d'une désexcitation, si plusieurs gammas sont émis, il est possible de détecter simultanément 2 gammas d'énergies différentes ce qui produit un signal à la somme des 2 énergies. Dans le cas du ^{58}Co , cela correspond au cas où le gamma de 863.96 keV est détecté en même temps que le gamma de 810.76 keV produisant un signal à 1674.72 keV. Ceci provoque donc un déficit de comptage pour les 2 gammas en coïncidence et un excès de comptage pour le gamma de 1674.71 keV (cf. Figure 2.1).

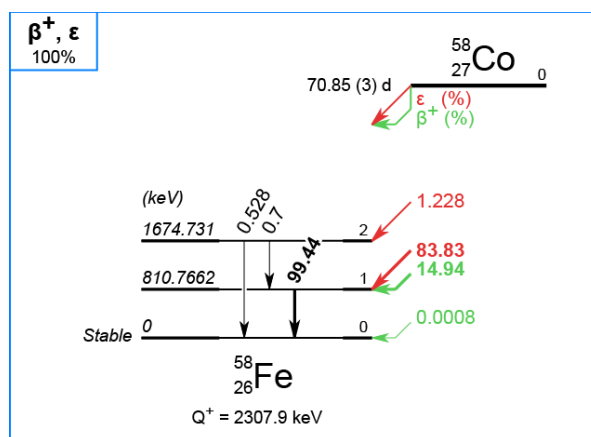


Figure 2.1 : Schéma de désintégration du ^{58}Co

Cet effet, dépendant des schémas de niveau, doit être corrigé pour les calculs d'activité. Cette correction est faite via le facteur correctif F associé à chaque raie qui modifie, lors de l'analyse, l'intensité de la raie comme suit $I'_\gamma = I_\gamma^{ND} \times F$ où I_γ^{ND} est l'intensité du gamma issue des données nucléaires (LNHB).

La détermination de ce facteur F est obtenue par simulation en utilisant le logiciel TrueCoinc (c.f. Specialized software utilities for gamma ray spectrometry, IAEA-TECDOC-1275 (2000), http://www-pub.iaea.org/MTCD/publications/PDF/te_1275_prn.pdf) ou plus exactement une version reprogrammée de ce dernier. Ce logiciel utilise les données des schémas de niveaux (au format ENSDF en provenance du LNHB) ainsi que les efficacités totales et pic de pleine énergie pour chaque gamma (celles-ci sont obtenues via les simulations GEANT-4 pour chaque géométrie). Nous pouvons également

calculer directement via GEANT-4 ce facteur en simulant d'une part les gammas « individuels » ou directement la source (ici le ^{58}Co). Le rapport des 2 simulations donne accès à ce facteur. Cette seconde méthode donne des incertitudes statistiques souvent assez grandes (2 à 5%) et il n'est pas possible de vérifier les schémas de désintégrations ; par contre elle permet d'évaluer les coïncidences avec les gammas de 511 keV. Les Tableau 4 et Tableau 5 donnent les facteurs de sommes pour les deux détecteurs, calculés par les 2 méthodes ainsi que la valeur réellement utilisée pour chaque gamma (moyenne des 2 valeurs).

Tableau 4 : Facteurs de somme F calculés par TrueCoinc et GEANT4 pour le détecteur « BEGe ». La 2eme colonne correspond aux valeurs réellement utilisées (moyenne des 2 calculs).

Détecteur 1 « BEGe »				
E [keV]	Facteur F	F (TrueCoinc)	F (G4)	Écart
511	0,747	-	0,747	
810,76	0,937	0,952	0,921	-3,26%
863,96	0,758	0,762	0,753	-1,18%
1674,7	1,136	1,129	1,143	1,24%

Tableau 5 : Facteurs de somme F calculés par TrueCoinc et GEANT4 pour le détecteur « Gamma ». La 2eme colonne correspond aux valeurs réellement utilisées (moyenne des 2 calculs).

Détecteur 2 « Gamma »				
E [keV]	Facteur F	F (TrueCoinc)	F (G4)	Écart
511	0,814		0,814	
810,76	0,953	0,965	0,940	-2,59%
863,96	0,822	0,833	0,811	-2,64%
1674,7	1,094	1,085	1,103	1,66%

3. Résultats des mesures

Les Tableau 6 et Tableau 7 donnent l'ensemble des résultats. Les activités sont calculées au 9/11/2020 à 12h. Dans ces tableaux, le nombre de coups net du pic N_{net} est obtenu comme

$$N_{\text{net}} = N_{\text{brut}} - N_{\text{fond}} - N_{\text{bdf}}$$

où N_{brut} est le nombre de coups brut dans le pic, N_{fond} est le nombre de coups du fond continu sous le pic et N_{bdf} est le nombre de coups du bruit de fond dans le pic (i.e. sans échantillon, uniquement pour la raie à 511 keV, voir §2.3). Dans les cas présentés, seules les raies intenses sont données.

L'erreur statistique quant à elle est obtenue par

$$\sigma_{\text{net}} = \sqrt{\sigma_{\text{brut}}^2 + \sigma_{\text{fond}}^2 + \sigma_{\text{bdf}}^2}$$

Le temps mort est de l'ordre de 8% ; cette valeur élevée est due au fait qu'à chaque fois que les véto entourant les détecteurs sont déclenchés par une particule cosmique, l'acquisition est bloquée ; cette valeur est identique à celle du bruit de fond.

Les masses utilisées pour la mesure sont celles fournies avec les échantillons (une erreur de 0.01% sur ces valeurs a été utilisée ; cette erreur contribue à l'incertitude donnée pour les activités).

Tableau 6 : Dosimètres Nickel – Activités et statistiques (sur la raie à 810.76 keV) sur les 2 détecteurs.

date des activités : 9/11/20		Détecteur 1 : « BEGe »							Détecteur 2 : « Gamma »					
Réf.	Masse [g]	A [Bq/g]	dA/A [%]	N (810.8)	Stat (810.8)	temps	tps mort	Ecart D1/D2	A [Bq/g]	dA/A [%]	N (810.8)	Stat (810.8)	temps	tps mort
Ni_P_41	3,02253								70,21	2,8%	162833,4	0,25%	155095,3	8,39%
Ni_P_42	3,11767	43,5	2,8%	134383,7	0,27%	148875,9	7,81%		43,25	2,8%	185866,2	0,23%	286339,7	8,30%
Ni_P_43	3,13396							0,58%	27,29	2,9%	40537,4	0,50%	100863,1	8,44%
Ni_P_44	3,11123								17,33	2,9%	33937	0,55%	136103	8,22%
Ni_P_45	3,12424	11,42	2,8%	50790,1	0,45%	202342,4	7,95%							
Ni_P_46	3,11058	7,655	2,9%	22618,9	0,67%	136951,7	7,93%		7,620	2,9%	13588,1	0,87%	136615,8	8,24%
Ni_P_47	3,13988	4,858	3,0%	12053,5	0,92%	108206,1	8,14%	0,46%						
Ni_P_48	3,14514	3,226	2,9%	21807,6	0,68%	287293	8,00%							
Ni_P_49	3,11332	2,078	3,0%	12181,7	0,91%	243657,2	8,09%							
Ni_P_50	3,08904								596,3	2,8%	806821,8	0,11%	87215,84	8,43%

Tableau 7: Dosimètres Fer – Activités et statistiques (sur la raie à 834.85 keV) sur les 2 détecteurs

date des activités : 9/11/20		Détecteur 1 : « BEGe »								Détecteur 2 : « Gamma »					
Réf.	Masse [g]	A [Bq/g]	dA/A [%]	N (834.9)	Stat (834.9)	temps	tps mort	Ecart D1/D2	A [Bq/g]	dA/A [%]	N (834.9)	Stat (834.9)	temps	tps mort	
Fe_P_21	2,67892								1,058	3,1%	11995,4	0,93%	245607,0	7,99%	
Fe_P_22	2,67823								0,6502	3,1%	11592,1	0,96%	389948,5	7,90%	
Fe_P_23	2,68862	0,4094	3,2%	12871,8	0,90%	465455,7	8,05%	0,56%	0,4071	3,1%	11346,0	0,98%	615751,0	7,80%	
Fe_P_24	2,67897								0,2518	3,1%	10770,0	1,04%	1015032,4	8,45%	
Fe_P_25	2,68456								0,1668	3,2%	10823,2	1,10%	1598236,3	8,53%	
Fe_P_26	2,6555	0,1109	3,3%	8384,5	1,16%	1194666,9	8,33%								
Fe_P_27	2,66946	0,07083	3,4%	5612,4	1,39%	1204361,3	8,09%								
Fe_P_28	2,70868	0,04746	3,6%	3732,4	1,78%	1105785,5	7,66%								
Fe_P_29	2,65974	0,02998	3,9%	2395,5	2,34%	1108873,0	7,61%								
Fe_P_30	2,67111	9,408	3.1%	267157.4	0.19%	456528.2	8.47%	1.23%	9.294	3.0%	68987.9	0.38%	160432.9	8.01%	

Dans chacun des cas, 2 mesures ont été intercomparé entre les 2 détecteurs.