

**Mesure du ^{137}Cs perturbé par du ^{60}Co
dans un détecteur fissile utilisé pour la
détermination de la fluence
neutronique des réacteurs REP-EDF**

Johann PLAGNARD

Novembre 2003

1. Introduction

1.1 Contexte

Ce travail est issu d'une demande d'expertise du CEA/Cadarache (DENCAD-DER-SPEX, H.Servière) confronté à un problème de mesure complexe en spectrométrie gamma.

Ce laboratoire utilise des capsules d'éléments fissiles appelées : "détecteurs fissiles" qui, utilisés dans des flux de neutron, permettent d'en caractériser la fluence. Lorsque l'activation neutronique de ces détecteurs est réalisée, la mesure par spectrométrie gamma des produits de fission permet de remonter aux valeurs de flux recherchés.

Les détecteurs fissiles (^{238}U et ^{237}Np) font partie du jeu de détecteurs utilisés pour la dosimétrie des capsules du **Programme de Surveillance des effets de l'Irradiation des cuves REP d'EDF**. Le calcul du flux neutronique reçu par ces capteurs couplés à des mesures de résistances mécaniques d'échantillons de matériaux constituant la cuve des réacteurs, et soumis au même débit neutronique, permet de contrôler l'état de vieillissement des structures des cuves. Ceci explique l'importance de l'utilisation de tel capteur ainsi que la précision de la mesure en spectrométrie gamma qui doit être faite.

L'intérêt majeur des détecteurs fissiles ^{238}U et ^{237}Np est double :

- le seuil effectif de la réponse énergétique au flux neutronique est bas : 0.6 MeV pour le ^{237}Np , 1,5 MeV pour ^{238}U .
- l'utilisation du produit de fission ^{137}Cs permet de bénéficier d'une période longue (30 ans) qui, compte tenu de la forte durée d'irradiation (jusqu'à 20 ans), permet de limiter les effets de décroissance radioactive.

Pour éviter la contamination, ces détecteurs sont conditionnés de manière étanche dans un boîtier métallique. Pour certain palier d'irradiation, cette capsule est réalisée en acier inoxydable ou en nickel. Ces matériaux contiennent des impuretés en cobalt qui après irradiation conduisent à l'apparition de ^{60}Co . L'origine du problème du SPEX vient de la raie de simple échappement du 1173,2 keV dont l'énergie à 662,2 keV (1173,2 keV – 511 keV) vient perturber de manière importante la mesure du ^{137}Cs . Il s'agit donc de déterminer la surface de la raie à 611,7 keV du ^{137}Cs dans un spectre de ^{60}Co d'activité importante.

Le LNHB se propose de déterminer un facteur correctif à appliquer à la surface globale de la région centrée autour de 662 keV pour remonter à la surface vraie du ^{137}Cs corrigée de l'influence de la raie de simple échappement du pic à 1173,2 keV du ^{60}Co .

1.2 Méthode d'analyse utilisée

L'objectif initial est de déterminer la proportion de la raie de simple échappement à 662,2 keV par rapport à la raie principale à 1173,2 keV à l'aide des spectres mis à notre disposition.

Nous disposons des spectres suivants :

- 1 spectre de ^{152}Eu réalisé à bas taux de comptage (Eu152.asc, taux = 890 s^{-1})
- 2 spectres de ^{60}Co correspondants à la mesure de sources ponctuelles (Co_SEUL.asc, taux = $2\,500\text{ s}^{-1}$ et Co7_SANS.asc, taux = $7\,800\text{ s}^{-1}$)
- 2 spectres de ^{60}Co correspondants à la mesure de sources conditionnées dans une capsule en inox (CO_ACIER.asc, taux = $2\,550\text{ s}^{-1}$ et CO7_AVEC.asc, taux = $8\,100\text{ s}^{-1}$)
- 3 spectres correspondant à la mesure d'échantillons contenant du ^{137}Cs et du ^{60}Co (CR4Y_U.asc, taux = $17\,700\text{ s}^{-1}$, CR2Y_U.asc, taux = $16\,300\text{ s}^{-1}$ et U_V6.asc, taux = nc).

A partir de ces données d'entrée, deux approches différentes ont été mises en œuvre pour déterminer la proportion recherchée. Une approche directe avec l'utilisation des spectres de ^{60}Co purs. Une approche "de terrain" avec l'utilisation des spectres échantillons. L'utilisation de ces deux configurations de mesure a permis de vérifier l'indépendance des résultats face aux effets de matrices liés au conditionnement des échantillons.

Dans tous les cas de figure, l'utilisation d'un logiciel de déconvolution performant a été nécessaire pour obtenir des surfaces reproductibles et représentatives de chaque pic. Le logiciel COLEGRAM¹ développé par le LNHB a donc été utilisé afin de déconvoluer au mieux chaque région des spectres en respectant à la fois les largeurs de chaque pic et leur position en énergie.

Avec les spectres de ^{60}Co purs, la détermination de la proportion est relativement simple. Elle est obtenue directement par comparaison des surfaces de chaque raie.

Avec les spectres échantillons, cette détermination est plus complexe. Il s'agit de déterminer la surface de la raie de simple échappement noyé dans la partie droite de la raie à $661,7\text{ keV}$ (figure 1). Elle peut être obtenue par déconvolution en imposant la largeur de la raie principale ($661,7\text{ keV}$). Il est important que cette largeur soit fixée car dans le cas contraire, les résultats sont fortement divergents. En effet, suivant la statistique contenue dans les spectres, il se produit un effet de "vase communicant" entre les deux pics : un élargissement de la raie à $662,2\text{ keV}$ génère une sous-estimation de la surface de la raie à $661,6\text{ keV}$ et inversement. Il est donc important de déterminer la largeur du pic principale. Le spectre de ^{152}Eu a donc été utilisé pour déterminer la courbe d'évolution de la largeur des pics en fonction de l'énergie.

Concernant la seconde raie, sa largeur est plus importante du fait de son origine physique. En effet, la raie à $661,7\text{ keV}$ est une raie gamma pure issue de la désintégration du ^{137}Cs , la seconde est liée au processus de détection des photons de $1173,2\text{ keV}$ dans le détecteur. Leur énergie étant suffisante pour déclencher le phénomène de création de paires, il arrive parfois que certain photon de 511 keV , produit lors de l'annihilation des positons, s'échappe du détecteur. L'énergie alors détectée correspond à l'énergie incidente ($1173,2\text{ keV}$) moins l'énergie du photon échappé (511 keV). Or la largeur naturelle de cette raie est plus importante que celle d'une raie gamma naturelle. Le pic alors obtenu à $662,2\text{ keV}$ est plus large. La déconvolution de la région autour de cette énergie s'est donc effectué en appliquant deux gaussiennes de largeurs différentes.

¹ H.Ruellan, M.C.Lépy, M.Etcheverry, J.Plagnard, J.Morel, A new spectra processing code applied to the analysis of ^{235}U and ^{238}U in the 60 to 200 keV energy range. Nucl. Instr. And Meth. A 369 (1996) 651.

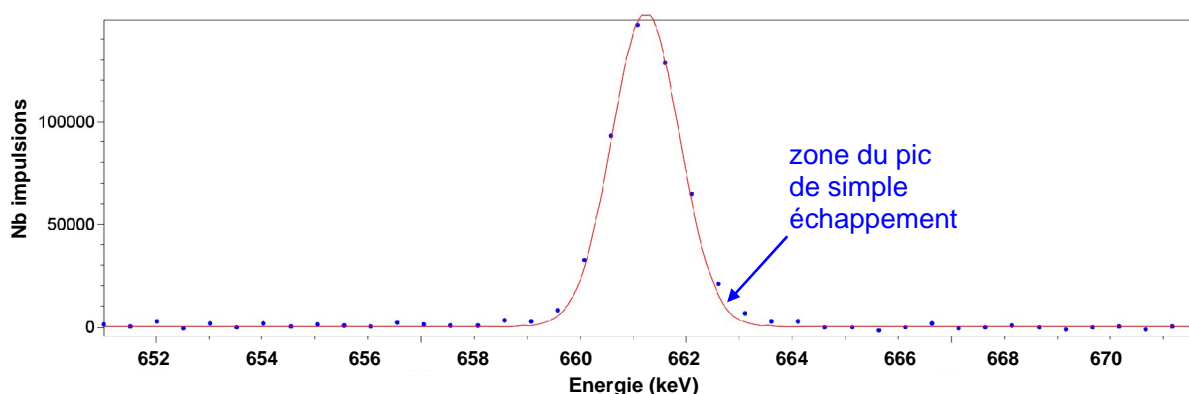


Figure 1 : Région centrée autour de 662 keV d'un spectre d'échantillon

A l'issue de ces travaux de déconvolution, la proportion entre la raie de simple échappement à 662,2 keV et la raie principale à 1173,2 keV a pu être obtenue. Elle a permis de déterminer un coefficient de correction à appliquer à la surface globale de la région d'intérêt centrée autour de 662 keV pour obtenir la surface "vraie" du pic du ^{137}Cs .

2. Etude des spectres purs de ^{60}Co

2.1 ^{60}Co sans encapsulage inox

Les spectres obtenus dans cette configuration sont :
CO_SEUL.asc et CO7_SANS.asc

Les résultats après déconvolution figurent dans le tableau 1. Dans ce cas très simple, les paramètres d'ajustement n'ont pas été figés.

Paramètres déconvolués	CO_SEUL.asc	CO7_SANS.asc
Surface 1173,2 keV	2,31473e7	5,656151e7
Sigma 1173,2 keV (libre)	0,742	0,746
Surface 662,2 keV	15307	37006
Sigma 662,2 keV (libre)	1,079	1,161
Proportion S662,2/S1173,2	0,066 %	0,065 %

Tableau 1 : Résultats sur les spectres ^{60}Co purs sans encapsulage

Un exemple de spectre déconvolué est représenté sur la figure 2.

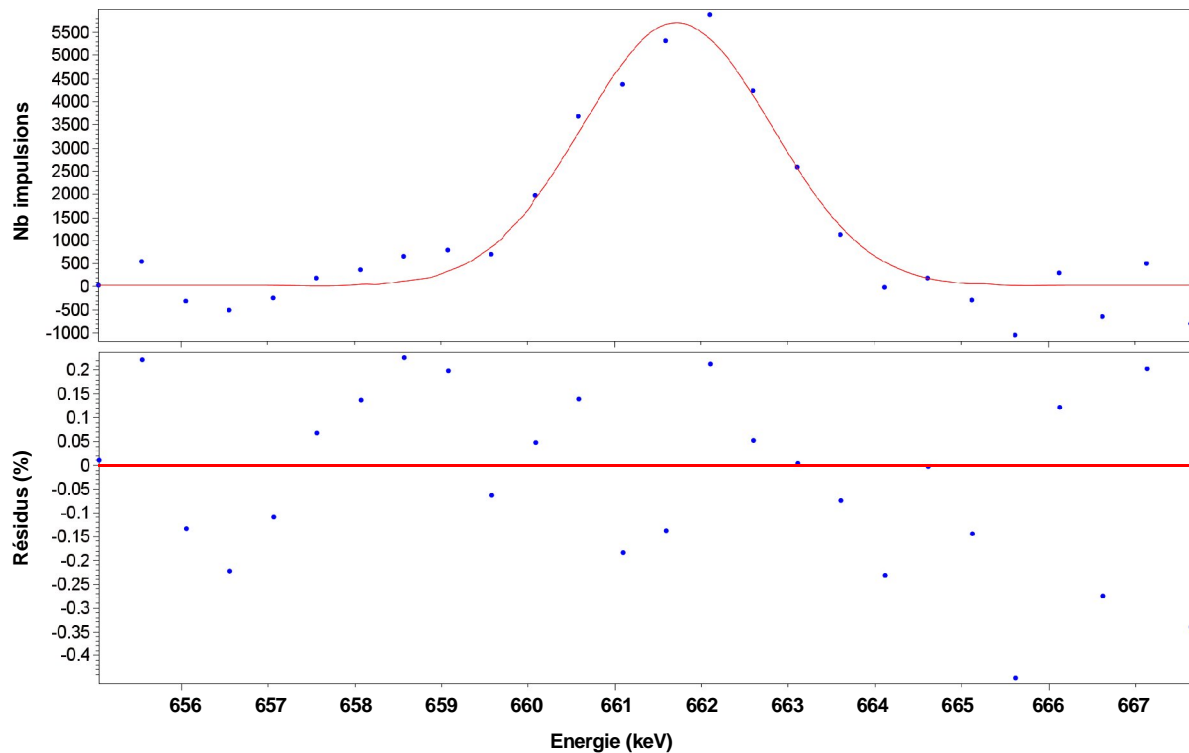


Figure 2 : Exemple de déconvolution du spectre CO_SEUL.asc

2.2 ^{60}Co avec encapsulage inox

Les spectres obtenues dans cette configuration sont :
CO_ACIER.asc et CO7_AVEC.asc

Les résultats après déconvolution figurent dans le tableau 2. De la même manière que précédemment, les paramètres d'ajustement n'ont pas été figés.

Paramètres déconvolués	CO_ACIER.asc	CO7_AVEC.asc
Surface 1173,2 keV	1,95211e7	5,63901e7
Sigma 1173,2 keV (libre)	0,742 keV	0,750 keV
Surface 662,2 keV	11582	40901
Sigma 662,2 keV (libre)	1,036 keV	1,246 keV
Proportion S662,2/S1173,2	0,059 %	0,072 %

Tableau 2 : Résultats sur les spectres de ^{60}Co pures avec encapsulage

3. Etude des spectres échantillons

Analyse de l'évolution de la résolution en fonction de l'énergie

Le spectre permettant cette analyse correspond au fichier : Eu152.asc

Les résultats obtenus après déconvolution de chaque région figurent sur le tableau 3.

Energie (keV)	Sigma (keV)	Energie (keV)	Sigma (keV)
121,8	0,459	778,9	0,649
244,7	0,500	867,4	0,673
344,3	0,528	964,1	0,699
444,0	0,559	1112,0	0,733
586,3	0,594	1299,1	0,774
688,6	0,621	1408,0	0,799

Tableau 3 : Résultats de mesures des largeurs en fonction de l'énergie

La courbe de la figure 3 représente l'évolution de ces largeurs en fonction de l'énergie ainsi que l'ajustement réalisé. Un lissage polynomial de degré 2 a été appliqué à ces points et a permis d'obtenir l'équation suivante :

$$\text{Sigma} = -3,750 \cdot 10^{-8} \times E^2 + 3,208 \cdot 10^{-4} \times E + 4,217 \cdot 10^{-1}$$

avec sigma en keV et E en keV

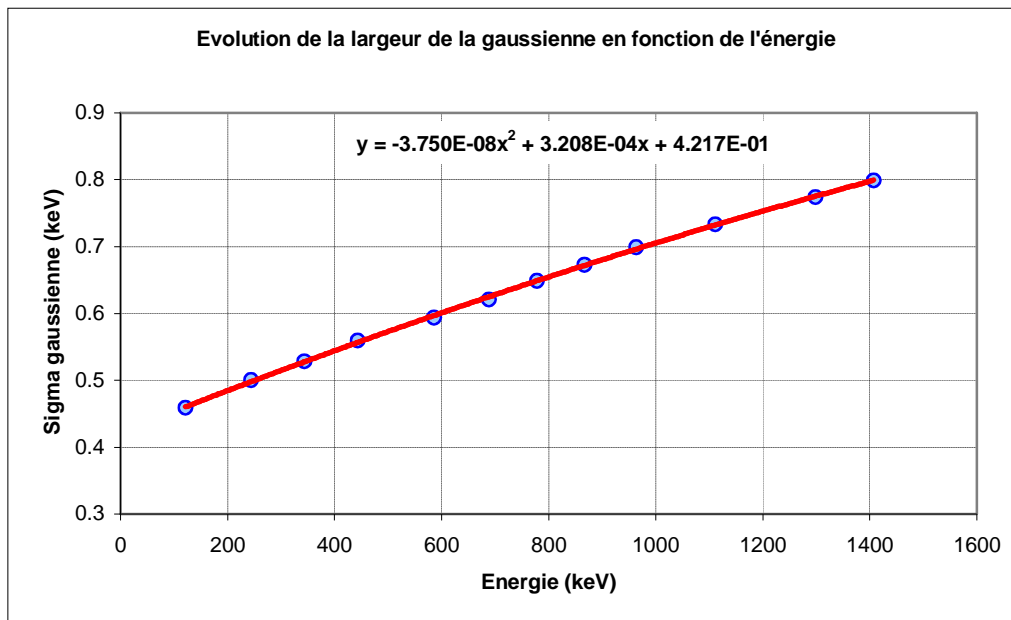


Figure 3 : Evolution des largeurs en fonction de l'énergie

A l'aide de cet ajustement, la largeur de la raie à 661,7 keV calculée est de 0,618 keV. Cette largeur a été utilisée pour déconvoluer finement les spectres d'échantillons. Une première

gaussienne de largeur imposée égale à 0,618 keV est placée autour de 661,7 keV. Une seconde est placée à droite de ce pic avant le lancement du processus de déconvolution. De plus, si on calcule la largeur à 1173,2 keV, elle est égale à 0,746 keV ce qui correspond bien aux valeurs trouvées sur les spectres de ^{60}Co purs.

Traitement des spectres échantillons

Les spectres échantillons correspondent aux fichiers suivants :

CR4Y_U.asc, CR2Y_U.asc et U_V6.asc

Les résultats obtenus après déconvolution figurent sur le tableau 4.

Paramètres déconvolués	CR4Y_U.asc	CR2Y_U.asc	U_V6.asc*
Surface 1173,2 keV	4,93711e7	2,23662e7	563745
Sigma 1173,2 keV (libre)	0,764	0,764	0,764
Surface 662,2 keV	48138	24518	497
Sigma 662,2 keV (libre)	1,096	1,13	0,943
Surface 661,7 keV	206833	102508	2493
Sigma 661,7 keV (fixé)	0,618	0,618	0,618
Proportion S661,7/S1173,2	0,419 %	0,458 %	0,442 %
Proportion S662,2/S1173,2	0,098 %	0,110 %	0,088 %

* peu de statistique dans ce spectre

Tableau 4 : Résultats des mesures sur les spectres échantillons

Un exemple de spectre déconvolué est représenté sur la figure 4.

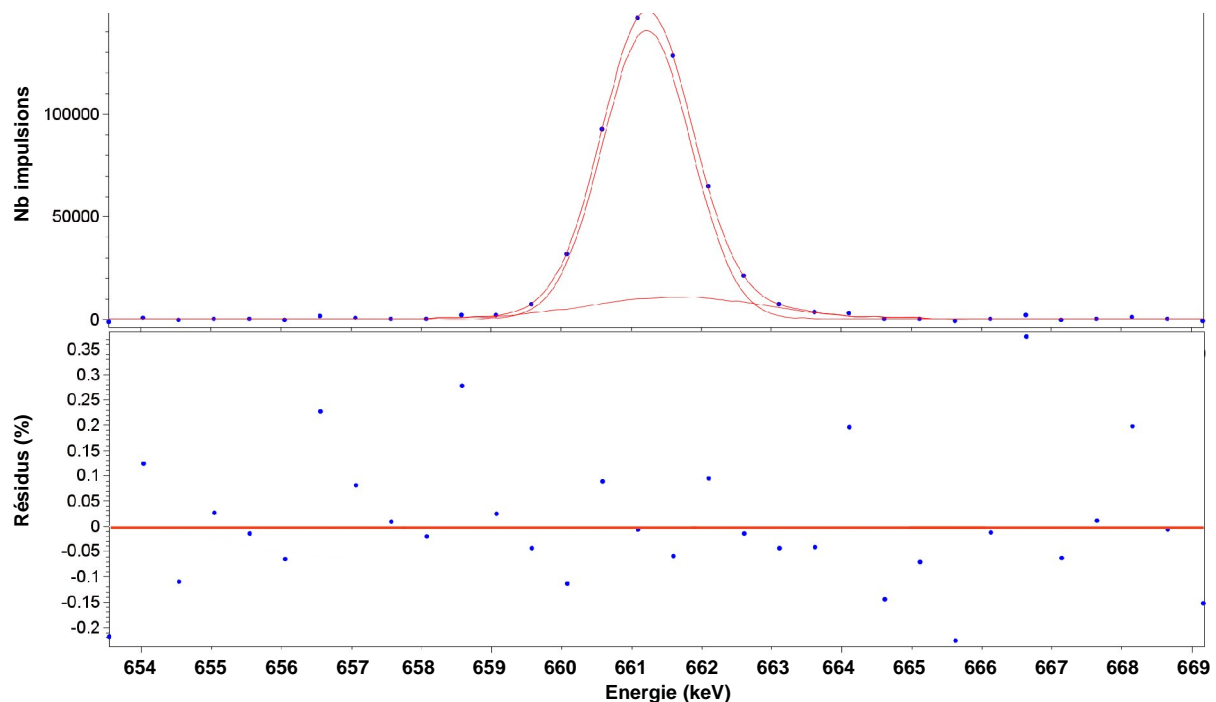


Figure 4 : Déconvolution du spectre échantillon CR4Y_U.asc

4. Conclusion sur les résultats des mesures

Les deux familles de résultats mettent en évidence une incompatibilité entre les deux séries de valeurs. Sur les spectres échantillons, les proportions trouvées sont plus importantes que celles obtenues sur les spectres de ^{60}Co purs. L'origine de cette différence provient de la variation de résolution entre les deux familles de spectres. Sur les spectres CR4Y_U.asc, CR2Y_U.asc et U_V6.asc, le taux de comptage plus important que sur les spectres de ^{60}Co purs a nécessité l'utilisation de réglages électroniques différents. La conséquence de ces nouveaux réglages est un élargissement des pics de chaque spectre.

De faite, la largeur (sigma) de 0,618 keV imposée lors de la déconvolution du pic du césium est sous-estimé. Comme nous l'avons déjà évoqué, c'est au bénéfice de la raie de simple échappement car le logiciel de déconvolution fait en sorte d'ajuster au mieux la région d'intérêt en augmentant l'amplitude du deuxième pic pour compenser le défaut de largeur du premier. Le rapport $S_{662,2}/S_{1173,2}$ se trouve donc modifier.

Pour corriger les déconvolutions des spectres échantillons, il faudrait exploiter un spectre de ^{152}Eu obtenus avec des réglages électroniques similaires à ceux utilisées lors de l'acquisition des spectres échantillons. N'ayant pas ce type de spectre dans notre jeu de données initiales, il est toute fois possible d'évaluer la largeur que nous aurions dû utiliser pour les spectres échantillons. En effet, la largeur trouvée sur le pic à 1173,2 keV à partir des mesures réalisées sur le spectre Eu152.asc est de 0,746 keV. Or, sur les spectres échantillons, la largeur trouvée est de 0,764 keV. La dégradation de résolution liée au changement de réglage électronique est de 2,41 %.

Appliquons cette dégradation à la valeur de largeur figée lors des déconvolutions des spectres échantillons. La nouvelle valeur à imposer devient :

$$0,618 \times 1,0241 = 0,633 \text{ keV au lieu de } 0,618 \text{ keV}$$

Les résultats alors obtenus sur les régions à 662 keV sont plus cohérents et figurent sur le tableau 5.

Paramètres déconvolués	CR4Y_U.asc	CR2Y_U.asc
Surface 1173,2 keV	4,93711e7	2,23662e7
Sigma 1173,2 keV (libre)	0,764	0,764
Surface 662,2 keV	33654	17547
Sigma 662,2 keV (libre)	1,256	1,308
Surface 661,7 keV	222239	110020
Sigma 661,7 keV (fixé)	0,633	0,633
Proportion $S_{661,7}/S_{1173,2}$	0,450 %	0,492 %
Proportion $S_{662,2}/S_{1173,2}$	0,068 %	0,078 %

Tableau 5 : Résultats des nouvelles déconvolution avec une largeur figée plus importante

Compte tenu de sa trop faible statistique, le spectre U_V6.asc n'a pas été exploité.

L'utilisation de cette largeur mieux estimée permet de retrouver des valeurs similaires à celles obtenues à partir des spectres de ^{60}Co purs.

Le tableau 6 établi un récapitulatif des différents résultats obtenus :

Spectres	Proportion 662,2/1173,2
CO_SEUL.asc	0,066 %
CO7_SANS.asc	0,065 %
CO_ACIER.asc	0,059 %
CO7_AVEC.asc	0,072 %
CR4Y_U.asc	0,068 %
CR2Y_U.asc	0,078 %

Tableau 6 : Récapitulatif des valeurs de proportions S662,2/S1173,2

La moyenne et l'écart type de ces valeurs nous donnent :

Proportion moyenne = 0,068 %

Ecart type relatif = 9,5 %

La proportion du pic de simple échappement par rapport à la raie principale à 1173,2 keV est de 0,068% à 9,5 % près (k=1).

5. Méthode d'exploitation des spectres échantillons

Pour une utilisation pratique des spectres échantillons, la détermination de la surface du pic à 661,7 keV du ^{137}Cs perturbée par la présence du pic à 662,2 keV pourra être réalisée de la manière suivante. Il faudra estimer la surface totale de la région d'intérêt (S_{ROI}) centrée autour de l'énergie à 662 keV à l'aide d'un logiciel standard du commerce (extrapolation du fond par n'importe quelle méthode) ou bien par l'utilisation d'un logiciel de déconvolution. Dans ce dernier cas, deux gaussiennes devront être imposées dans cette région et l'utilisateur devra faire en sorte que l'ajustement de ces deux pics permet de minimiser les résidus d'ajustement. La surface du 661,7 keV corrigée du pic à 662,2 keV peut être calculée à l'aide de l'équation suivante :

$$S_{661,7} = S_{ROI} - S_{662,2}$$

$$S_{661,7} = S_{ROI} - \frac{0,068}{100} \times S_{1173,2}$$

Le calcul de l'incertitude peut s'évaluer de la manière suivante :

L'incertitude $U_{S_{1173,2}}$ est totalement négligeable devant celle du facteur 0,068%. Donc l'incertitude relative $U_{S_{662,2}/S_{662,2}}$ est égale à celle du facteur 0,068% c'est à dire 9,5 %.

L'incertitude absolue $U_{S_{662,2}}$ s'écrit donc :

$$\frac{9,5}{100} \times \left(\frac{0,068}{100} \times S_{1173,2} \right)$$

L'expression générale est :

$$U_{S_{661,7}} = \sqrt{(U_{S_{ROI}})^2 + \left[\frac{9,5}{100} \times \left(\frac{0,068}{100} \times S_{1173,2} \right) \right]^2}$$

Prenons l'exemple du spectre CR4Y_U.asc. Si deux gaussiennes de largeurs identiques (méthode similaire à celle utilisée dans les logiciels commerciaux) sont imposées dans la région d'intérêt centrée autour de l'énergie 662 keV, la surface totale obtenue est :

$$S_{\text{ROI}} = 255590 \pm 505 \text{ (somme des deux gaussiennes de largeur identique).}$$

Le calcul de la surface du 661,7 keV nous conduit à la valeur suivante :

$$S_{661,7} = 255590 - \frac{0,068}{100} \times 4,93711 \cdot 10^7 = 222018$$

La déconvolution fine nous fournissait une valeur égale à : 222239. L'écart observé est de l'ordre de 1 pour mille !

Le calcul de l'incertitude s'écrit :

$$U_{S_{661,7}} = \sqrt{(505)^2 + \left[\frac{9,5}{100} \times \left(\frac{0,068}{100} \times 4,93711 \cdot 10^7 \right) \right]^2} = 3229$$

Le résultat final est : 222018 ± 3229 (k=1)