



list

Licence professionnelle: Métrologie chimique & nucléaire

Métrologie nucléaire

28 – 29 février 2024

Mark A. KELLETT



mark.kellett@cea.fr



- ❑ Introduction à la métrologie
- ❑ Définitions et traçabilité
- ❑ Organisation de la métrologie
- ❑ Radioactivité (historique, applications, chaînes de mesures et incertitudes,...)
- ❑ Descriptif méthode primaire dans le cas des RI
- ❑ Descriptif méthode secondaire dans le cas des RI
- ❑ Tests interlaboratoires

INTRODUCTION A LA METROLOGIE

2 équipes de développement utilisant des systèmes d'unités différents

- Unité impériale : livre-force
- Unité SI : newton

Erreur d'échelle:

Une livre-force équivaut à 4,48 newtons

→ Destruction de la sonde de la NASA

Coût : US\$ 125 M



1983, Air Canada Confusion litre/gallon

Sous estimation de la quantité de carburant

Panne à 12 000 m d'altitude

Vol plané et atterrissage d'urgence

Pas de victime



1999, Cargo Korean Air

Confusion d'altitude

Tour de contrôle parle en mètre

Le pilote parle en pieds

8 morts, 37 blessés

En 1775 : plus de 700 unités différentes

Masse	
Livre poids de marc Aix	408,51 g
Livre poids de marc Calais	509,53 g
Livre de Charlemagne	367,128 g
Livre de Paris	489,505 85 g

Longueur	
Pied-de-roi Rouen	270,7 mm
Pied-de-roi Calais	341,8 mm
Pied de Paris	324,839 416 7 mm
Canne de Provence	2 005,2 mm
Canne de Troyes	792 mm

**Nécessité d'uniformisation
essentiellement pour
les échanges commerciaux**



Le **kilo étalon** conservé au BIPM depuis 1889
Était le dernier étalon physique
Remplacé par : balance du Watt
Base = constante de Planck
Mise en place en 2018 (accord du CGPM)

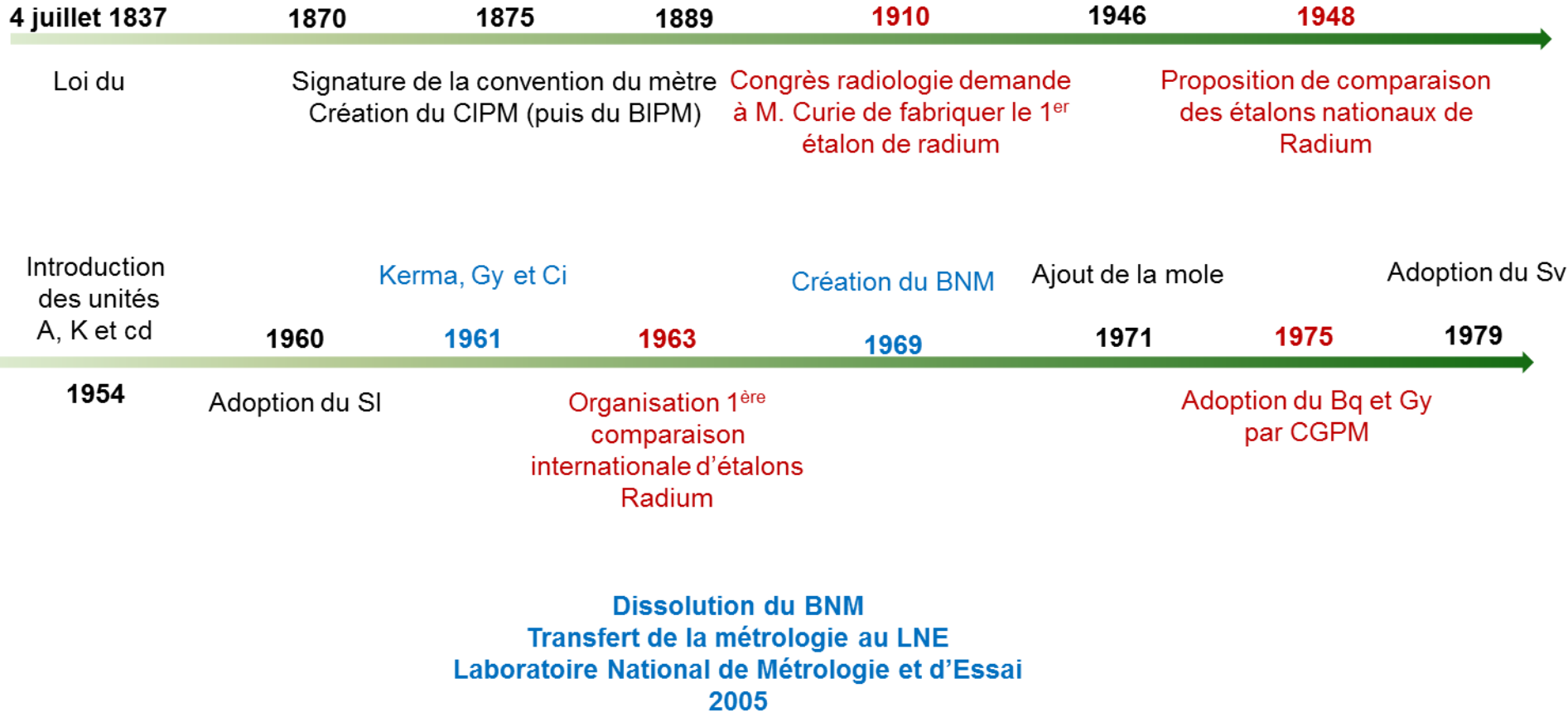
Le **mètre étalon** n'est plus physique depuis 1983.
La longueur du trajet parcouru dans le vide par la
lumière pendant une durée de $1/299\,792\,458^{\text{ème}}$
de seconde

1^{er} août 1793
Convention nationale
Adopte le mètre et le grave

Adoption du système
 quadridimensionnel
 MKSA

1^{ère} CGPM

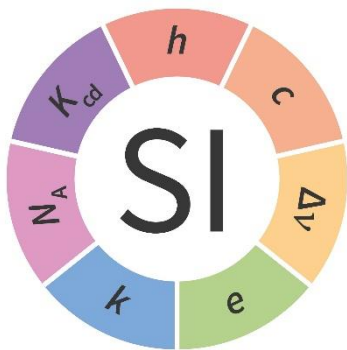
Commission international du mètre 3 unités de base m, K, s



LA MÉTROLOGIE : SCIENCE DE LA MESURE ASSOCIÉE À L'ÉVALUATION DE SON INCERTITUDE

- Au XVIIIème siècle, il existe plus de 700 unités de mesure, source de difficultés pour les échanges commerciaux
- 26 Mars 1791 : naissance du mètre (10 millionième du quart du méridien)
- 1799 : réalisation du mètre de platine
- 20 Mai 1875 : création du BIPM à Sèvres Bureau International des Poids et Mesures
- 1895 : découverte des Rayons X par Roentgen
- 1896 : découverte de la radioactivité par Henri Becquerel
- 1960 : naissance du SI : Système International d'unités qui comprend 7 grandeurs : longueur (m), masse (kg), temps (s), courant électrique (A), température thermodynamique (K), quantité de matière (mol), intensité lumineuse (cd).

Bureau
International des
Poids et
Mesures



seconde, s : La seconde est la durée de 9 192 631 770 périodes de la radiation correspondant à la transition entre les deux niveaux hyperfins de l'état fondamental de l'atome de césium 133.

Il en résulte que la fréquence de la transition hyperfine de l'état fondamental de l'atome de césium 133, $\nu(\text{hfs Cs})$, est égale à 9 192 631 770 Hz exactement.

Définitions et traçabilité

- ✿ **Traçabilité métrologique** : propriété d'un résultat de mesure selon laquelle ce résultat peut être relié à une référence par l'intermédiaire d'une chaîne ininterrompue et documentée d'étalonnages dont chacun contribue à l'incertitude de mesure
- ✿ **Procédure de mesure de référence** : procédure de mesure considérée comme fournissant des résultats de mesure adaptés à leur usage prévu pour l'évaluation de la justesse de valeurs mesurées obtenues à partir d'autres procédures de mesure pour des grandeurs de même nature, pour un étalonnage ou pour la caractérisation de matériaux de référence
- ✿ **Procédure de mesure primaire** : procédure de mesure de référence utilisée pour obtenir un résultat de mesure sans relation avec un étalon d'une grandeur de même nature

Mesurer c'est comparer 1 grandeur inconnue
à une grandeur de même nature prise comme référence

Il faut disposer d'une **référence** commune ou de références comparables (c'est-à-dire de référence liées à une référence commune) : un **étalon maintenu par le laboratoire national de métrologie** d'un pays.

Une référence métrologique doit être : commune, stable et facilement accessible

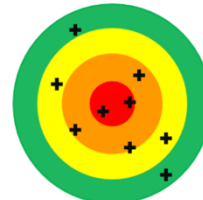
Objectif de tout laboratoire de mesure : fidélité ET justesse



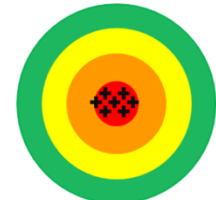
Fidèle mais
Pas juste



Ni fidèle
Ni juste



Pas fidèle
Mais juste



Fidèle ET juste

✿ Mesurer c'est comparer

une grandeur inconnue à une référence dont la traçabilité est établie dans le cadre du Système International d'unités ou d'une procédure

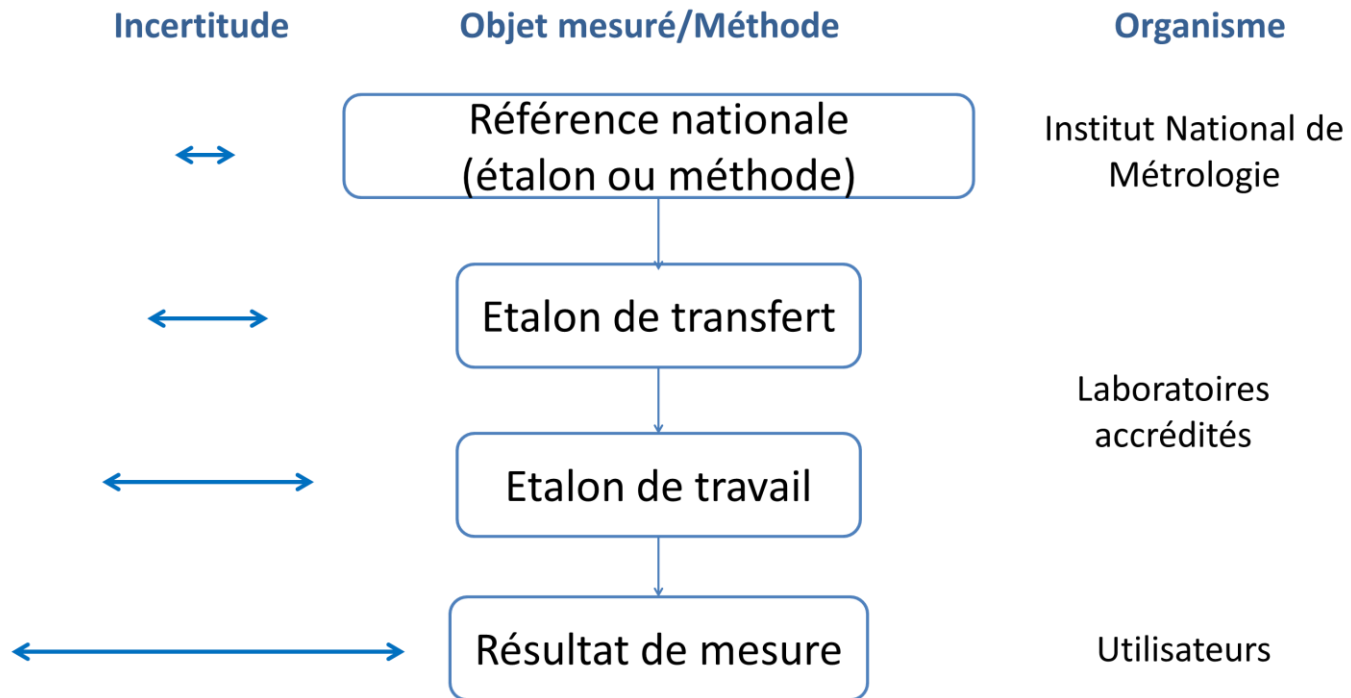
✿ La référence peut être :

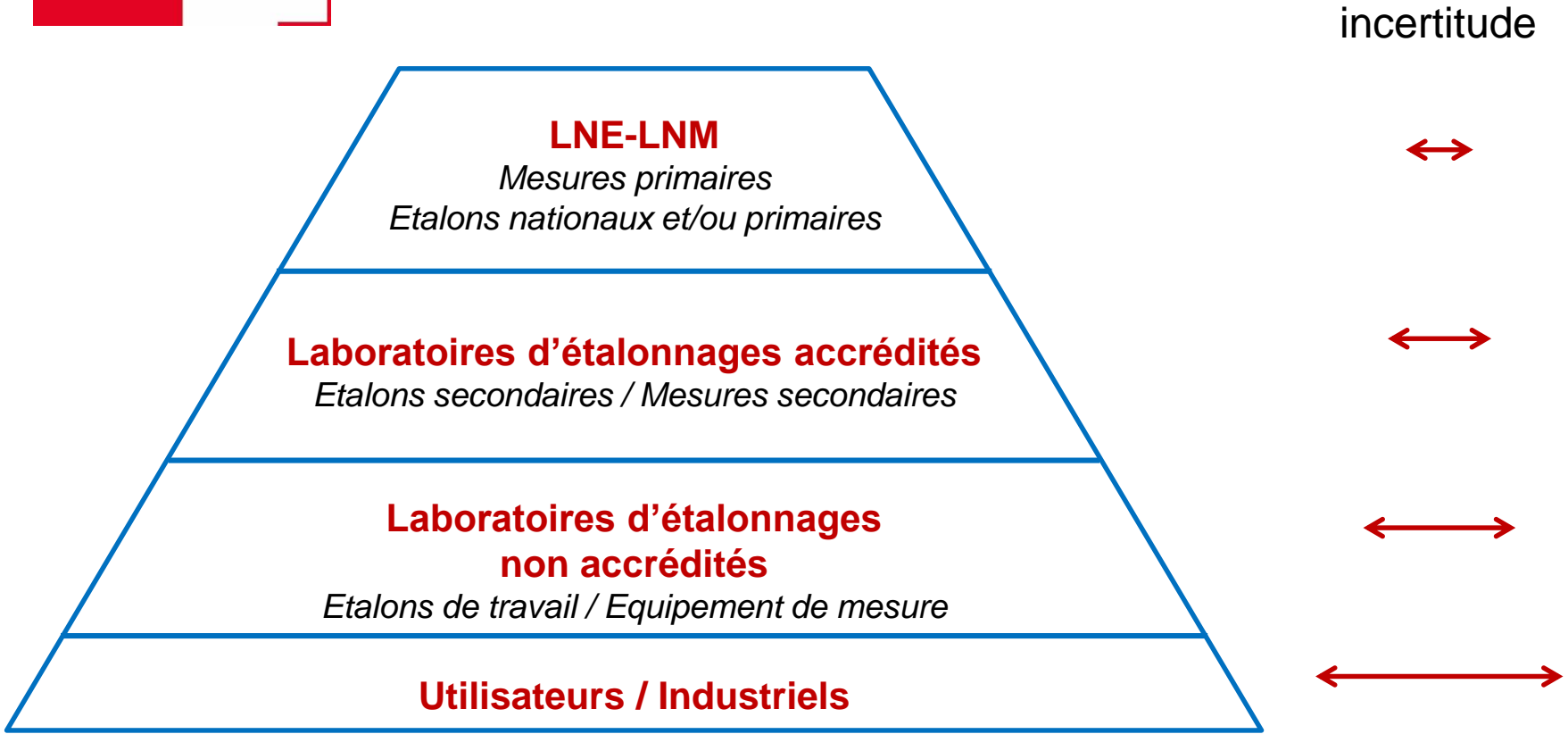
- ✿ une unité
- ✿ une procédure de mesure
- ✿ un matériau de référence
- ✿ un étalon

- ✿ **Etalon** : réalisation de la définition d'une grandeur donnée, avec une valeur déterminée et une incertitude de mesure associée, utilisée comme référence
- ✿ **Etalon international** : étalon reconnu par les signataires d'un accord international pour une utilisation mondiale
- ✿ **Etalon national** : étalon reconnu par une autorité nationale pour servir, dans un état ou une économie, comme base à l'attribution de valeurs à d'autres étalons de grandeur de la même nature
- ✿ **Etalon primaire** : étalon établi à l'aide d'une procédure de mesure primaire ou créé comme objet choisi par convention
- ✿ **Etalon de référence** : étalon conçu pour l'étalonnage d'autres étalons de grandeur de même nature dans une organisation donnée ou en un lieu donné

La **traçabilité** d'un résultat de mesure assure qu'il peut-être relié à une référence par l'intermédiaire d'une chaîne ininterrompue et documentée d'étalonnages dont chacun contribue à l'incertitude de mesure.

Chaîne de raccordement nationale





Référentiel Qualité : ISO 17025
Accréditation COFRAC Etalonnage

Organisation de la métrologie

✿ **Instituts Nationaux de Métrologie (INM ou LNM)**

✿ **Regional Metrology Organisations (RMO)**

✿ **Comité International des Poids et Mesures (CIPM)**

✿ MRA (Mutual Recognition Agreement) 93 laboratoires de 52 états membres, 37 états associés et 4 organisations internationales

✿ BIPM

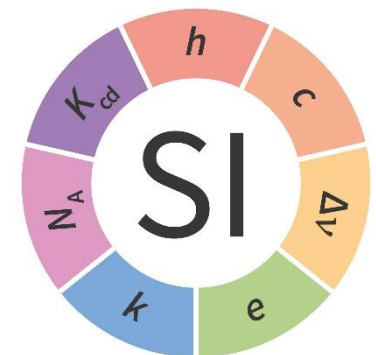
✿ 10 Comités Consultatifs (CCRI)

✿ Conférence Générale des Poids et Mesures (CGPM)

✿ Base de Données des Comparaisons clés (KCDB)

✿ Calibration Measurement Capabilities (CMCs)

Nom	Symbole
mètre	m
kilogramme	kg
seconde	s
Ampère	A
Kelvin	K
mole	mol
candela	cd



Bureau
International des
Poids et
Mesures



list

LA MÉTROLOGIE : UN ENJEU INTERNATIONAL



Comités Consultatifs
(Rayonnements Ionisants, ...)

- **Mutual Recognition Arrangement** (MRA, 1999) :
une reconnaissance internationale soumise à des exigences (52 états) :

. système qualité (ISO 17025 : laboratoires
d'étalonnages et d'essais)

. participation aux comparaisons clés

. possibilités de mesures et d'étalonnages

soumises à l'approbation des pairs

. transparence : infos sur le site web du BIPM



Organisation européenne de la métrologie :

. un contexte concurrentiel

BIPM / CCRI

VNIIM
Russie

NAC
Afrique
du Sud

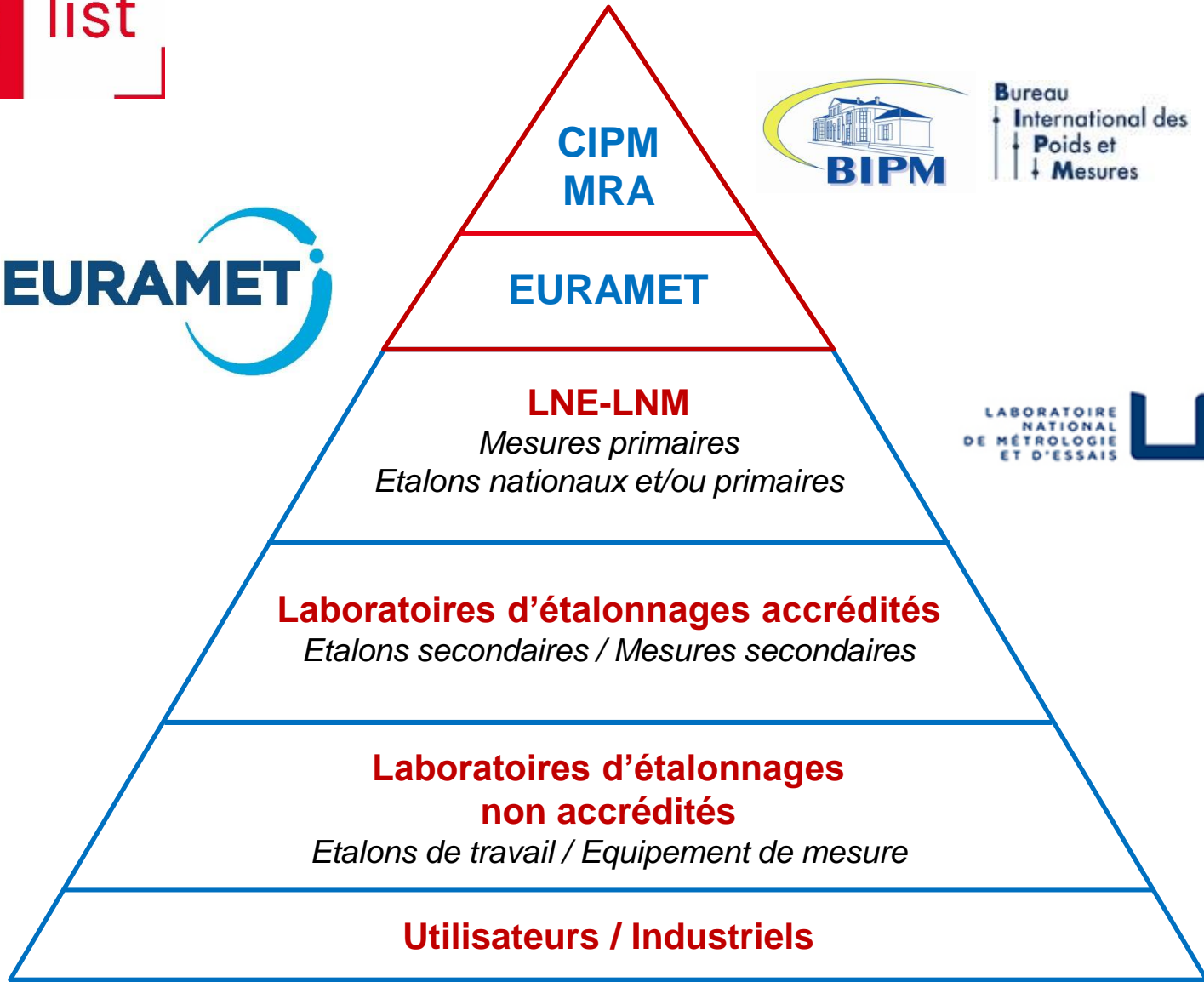
NIST
Etats-Unis

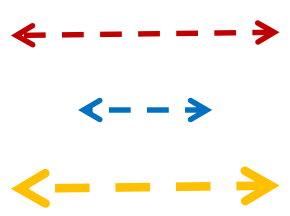
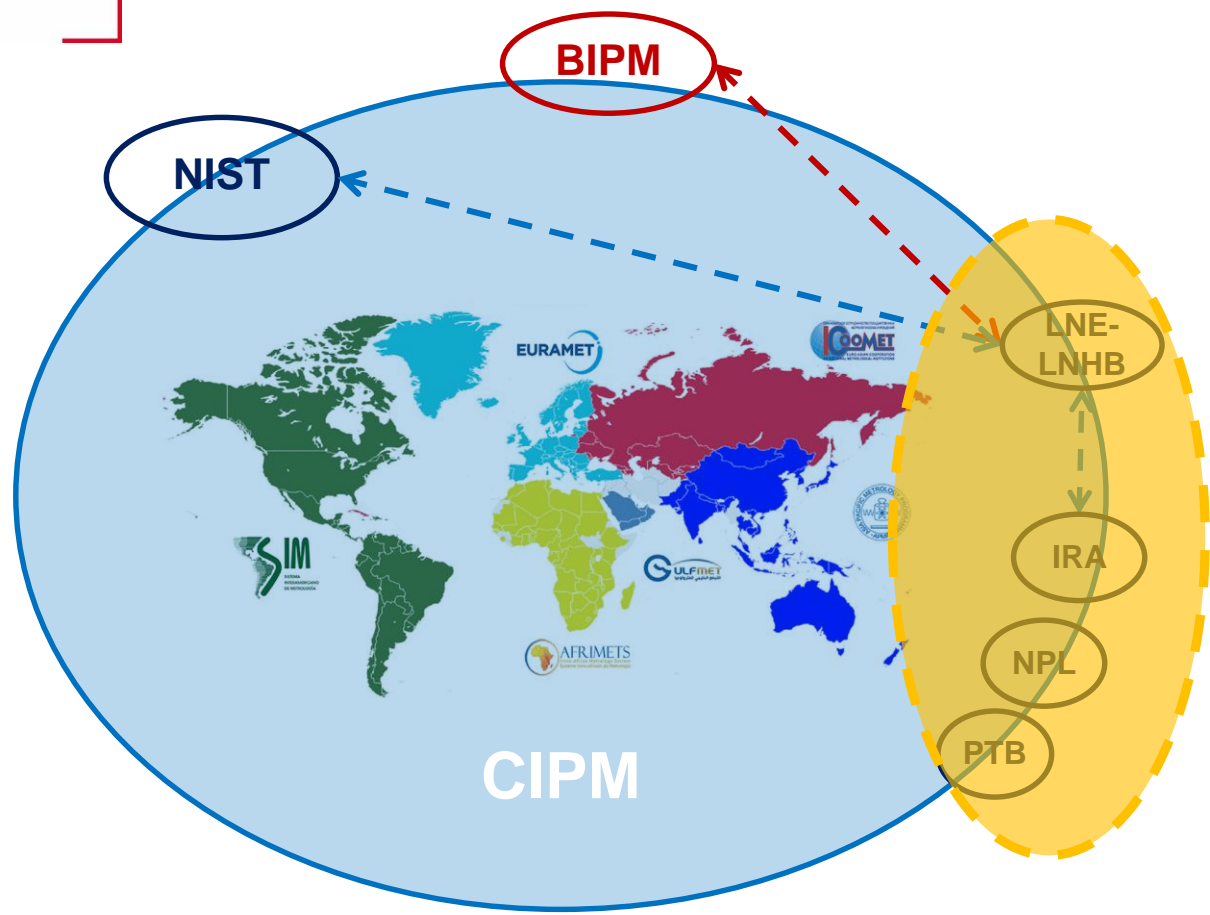
EURAMET

LNE	PTB Allemagne	NPL RU	...
-----	------------------	-----------	-----

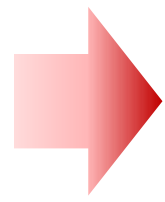


Bureau
International des
Poids et
Mesures





← - - - - - → Système International de Référence
← - - - - - → Comparaisons Bilatérales
← - - - - - → Comparaisons intra-RMO



CMCs



LISTA MÉTROLOGIE FRANÇAISE : UNE ORGANISATION EN RÉSEAU

LNE : institut national de métrologie français

4 laboratoires nationaux de métrologie (+ 6 laboratoires associés)



LNE-DMSI

LNE-LCM



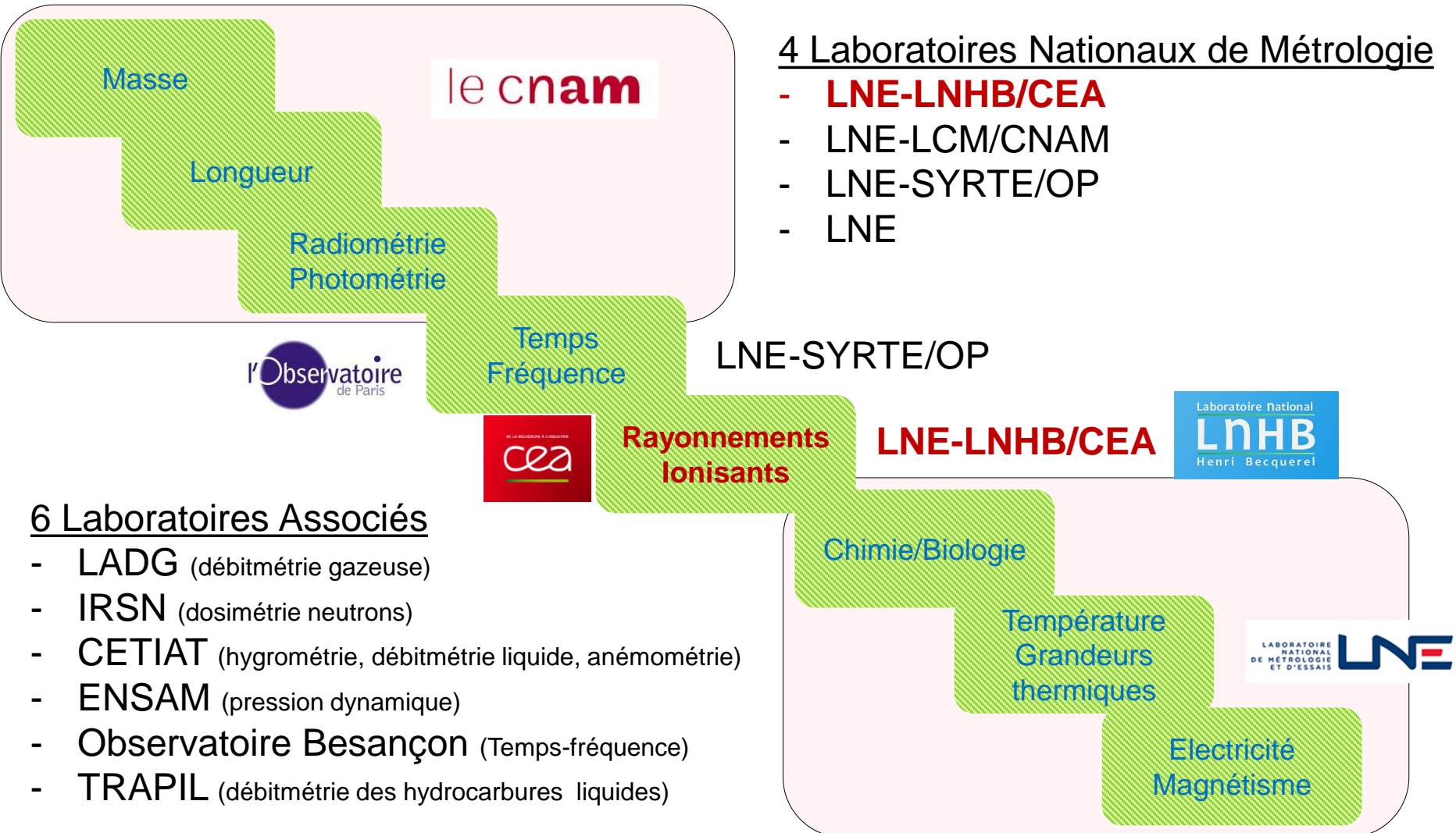
LNE-SYRTE

LNHB laboratoire national de métrologie pour les rayonnements ionisants depuis le début de l'organisation de la métrologie française (1970)



Un atout : la double appartenance du LNHB au réseau de la métrologie française et au CEA LIST

- R&D commune de la métrologie : nanométrie, incertitudes...
- R&D commune du CEA LIST : instrumentation, information, santé...
- R&D CEA : industrie nucléaire, radioprotection, radiobiologie...



4 Laboratoires Nationaux de Métrologie

- **LNE-LNHB/CEA**
- LNE-LCM/CNAM
- LNE-SYRTE/OP
- LNE

6 Laboratoires Associés

- LADG (débitmétrie gazeuse)
- IRSN (dosimétrie neutrons)
- CETIAT (hygrométrie, débitmétrie liquide, anémométrie)
- ENSAM (pression dynamique)
- Observatoire Besançon (Temps-fréquence)
- TRAPIL (débitmétrie des hydrocarbures liquides)



La métrologie regroupe l'ensemble des techniques permettant d'effectuer des mesures, de garantir leur exactitude et de les interpréter.

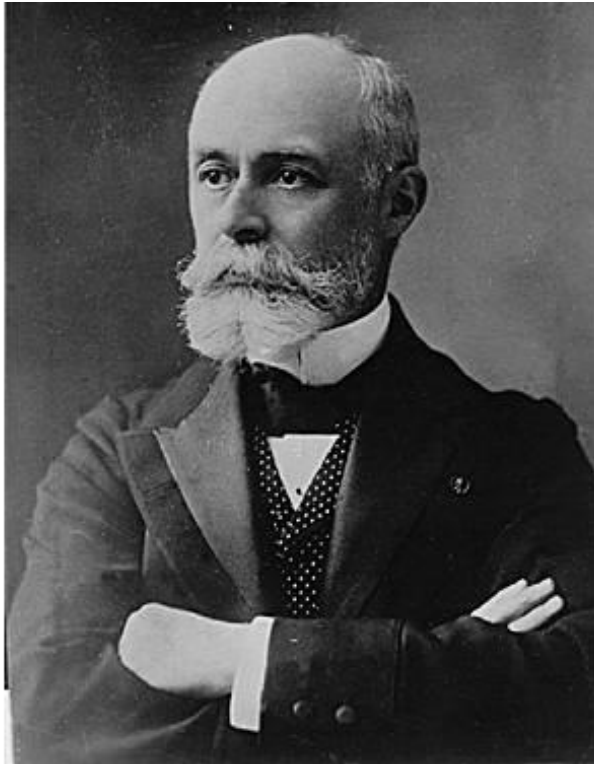
Pour les industriels, assurer la traçabilité et la fiabilité de leurs mesures est essentiel pour maîtriser leurs procédés de fabrication et veiller à la qualité de leurs produits.

La métrologie peut donc apporter une contribution majeure à la compétitivité des entreprises.

Radioactivité

Quelques étoiles historiques

Henri Poincaré
(1854-1912)



Henri Becquerel
(1852-1908)



Wilhelm Conrad Röntgen
(1845-1923)



Pierre (1859-1906) et
Marie (1867-1934) Curie





Wilhelm Conrad Röntgen
(1845-1923)



« Je travaillais (le 8 novembre 1895) au soir avec un tube de Hittorf-Crookes, lequel était entièrement entouré de papier noir. Un morceau de papier au platinocyanure de baryum (écran luminescent) se trouvait à côté sur la table. J'envoyais un courant à travers le tube et remarquais, en travers du papier, une ligne noire, particulière. Il était exclu que la lumière puisse venir du tube car il était entièrement recouvert du papier, et ce dernier ne laissait passer aucune lumière... Je pensais qu'il s'agissait de quelque chose de nouveau, mais encore inconnu ».

« Afin d'être bref, j'utiliserai le terme 'rayons', et pour les distinguer d'autres du même nom, je les appellerai 'rayons X' ».



Henri Poincaré
(1854-1912)

À la suite de la découverte en 1895 des rayons X par Wilhelm Röntgen dans un article de *Henri Poincaré* paru le 30 janvier 1896 dans la Revue générale des Sciences, on lit :

« Ainsi c'est le verre qui émet les rayons Röntgen et il les émet en devenant fluorescent. Ne peut-on alors se demander si tous les corps dont la fluorescence est suffisamment intense n'émettent pas, outre les rayons lumineux, des rayons X de Röntgen, quelle que soit la cause de leur fluorescence ? ».

Henri Becquerel étudie, à la demande d'Henri Poincaré, le rapport entre la phosphorescence et les rayons X.



Henri Becquerel
(1852-1908)

Antoine Henri Becquerel est le 3^{ème} des 4 Becquerel qui ont occupé la chaire de physique du Muséum d'Histoire Naturelle.

Son grand-père et son père travaillaient déjà sur les phénomènes de phosphorescence et de fluorescence.

Edmond Becquerel (le père), référence mondiale dans le domaine a mis au point le phosphoroscope qui permet de mesurer la durée de la phosphorescence induite.

Il a pu classer par ordre d'intensité les effets lumineux induits dans diverses substances.

Les sels d'urane sont en tête de liste (20 fois plus intense que le sulfure de calcium, second).



Pierre (1859-1906) et
Marie (1867-1934) Curie

À partir de 1898, Pierre et Marie Curie s'intéressent à leur tour au phénomène et découvrent puis isolent le polonium et le radium, dont les rayonnements sont un million de fois plus intenses que ceux de l'uranium.

Henri Becquerel se lie aux Curie. Il les aide, présente leurs communications à l'Académie des sciences, leur apporte son appui. Pierre et Marie Curie lui prêtent du radium, avec lequel il fait de nouvelles expériences.

Le premier prix Nobel de Physique (1901) a été attribué à **Röntgen** pour sa découverte des rayons X.

Il est attribué en 1903 à :

- **Henri Becquerel** pour sa découverte de la « *radioactivité spontanée* » **et**
- **Pierre et Marie Curie** pour leurs recherches sur le rayonnement découvert par **Becquerel**

*Bien que le terme de **radioactivité** ait été introduit par Marie Curie pour la première fois après la séparation du radium et du polonium avec Pierre Curie.*



LA RADIOACTIVITÉ ARTIFICIELLE





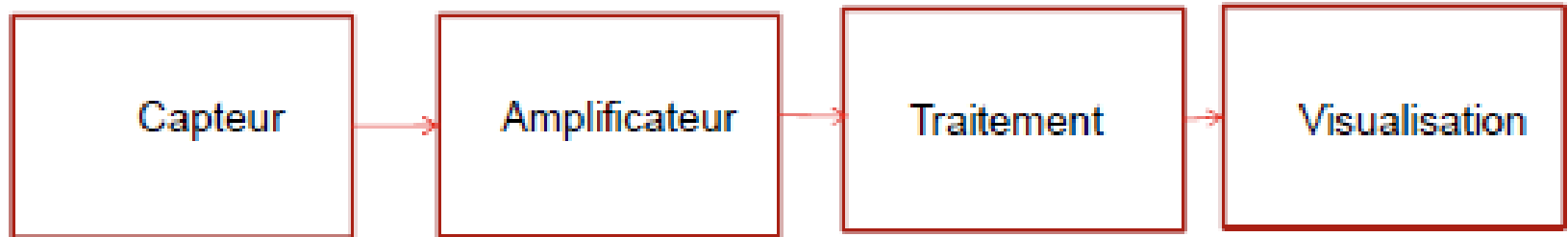
Frédéric Joliot (1900-1958)
Irène Curie (1897-1956)

A sa sortie de l'Ecole de physique et chimie, Frédéric Joliot est adressé par son maître Paul Langevin à Marie Curie et devient son assistant à l'Institut du radium à Paris. Irène est la fille de Marie et Pierre Curie.

Ils se lancent dans [l'étude des noyaux atomiques](#)

LA MESURE ET L'EXPRESSION DU RÉSULTAT

LA CHAÎNE DE MESURE

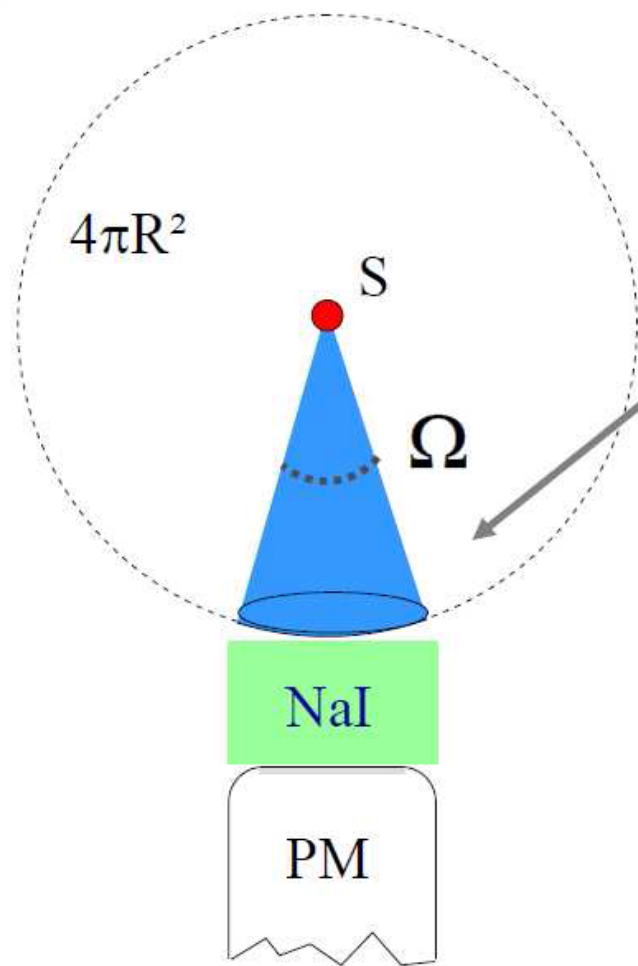


On va mesurer :

- Le nombre d'émissions de particules ou de photons
- L'énergie perdue par les particules ou des photons dans le milieu détecteur

Les performances de la chaîne de mesure vont dépendre entre autres :

- Géométrie de mesure
- Efficacité de détection du détecteur
- Bruit de fond
- Temps mort
- ...



Compteur sonde à scintillation :

Seule la fraction $\Omega/ 4\pi R^2$ est comptée

Compteur – puit :

La quasi totalité de la source est comptée



Le rendement de détection est compris entre 0 et 1 et dépend de la nature du rayonnement et de son énergie.

On distingue :

- Rendement intrinsèque

Nombre de particules détectées/ nombre de particules ayant traversé le détecteur

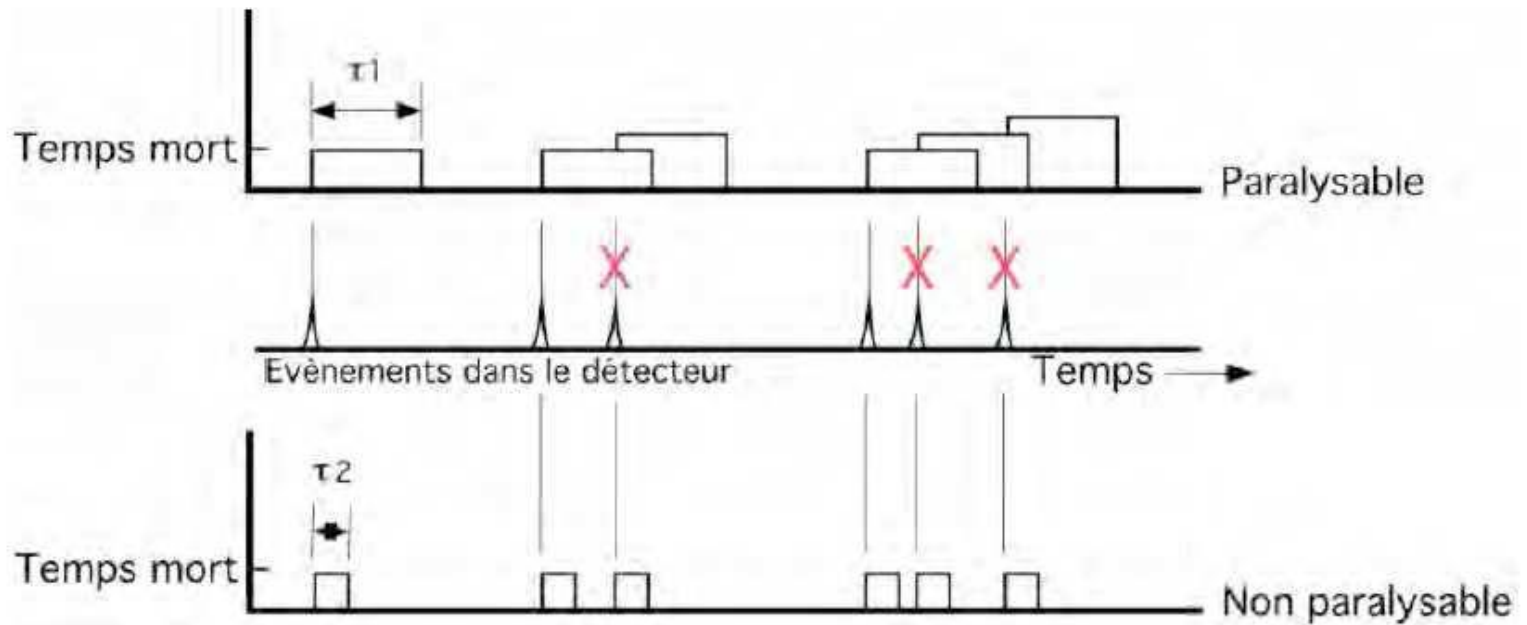
- Rendement extrinsèque

Nombre de particules détectées/ nombre de particules émises par la source

Temps mort : intervalle de temps qui sépare deux détections

Dépend du détecteur et de l'électronique

$$N \text{ mesuré} = N \text{ réel} (1 - \tau)$$



Mouvement propre : Taux de comptage sans source

Causes

- Rayonnement tellurique
- Rayonnement cosmique
- Radioactivité intrinsèque des matériaux du détecteur
- Impulsions parasites de l'électronique

Réduction possible

- Blindage de l'enceinte mesure
- Veto cosmiques
- ...

L'EXPRESSION D'UN RÉSULTAT

CALCUL D'INCERTITUDE

Le *Guide pour l'expression de l'incertitude de mesure* (GUM) constitue le document de référence fondamental.



The series consists of the following parts:

- JCGM 100** – Evaluation of measurement data – Guide to the expression of uncertainty in measurement (ISO/IEC Guide 98-3)
- JCGM 101** – Evaluation of measurement data – Supplement 1 to the "*Guide to the expression of uncertainty in measurement*" – Propagation of distributions using a Monte Carlo method (ISO/IEC Guide 98-3-1)
- JCGM 104** – Evaluation of measurement data – An introduction to the "*Guide to the expression of uncertainty in measurement*" (ISO/IEC Guide 98-1)

Incertitude

Paramètre associé au résultat de mesure qui caractérise la dispersion des valeurs qui pourraient raisonnablement être attribuées au mesurande.

L'incertitude c'est le doute sur la représentativité du résultat.

Dans le GUM, le calcul d'incertitude est fondé sur le fait que tout résultat de mesure (et pas seulement les résultats de mesure que l'on peut répéter) est une variable aléatoire.

Cette variable aléatoire est basée sur une distribution de probabilité dont il faut déterminer 2 principaux paramètres : **moyenne et écart-type**.

On distingue :

- **Incertitude de type A** : obtenue à partir d'une fréquence de distribution observée.
- **Incertitude de type B** : obtenue à partir d'une fréquence de distribution supposée

Modélisation du Mesurage

En règle générale le mesurande Y est exprimé à partir de N autres grandeurs $X_1, X_2, X_3, \dots, X_n$.

Soit :

$$Y = f(X_1, X_2, X_3, \dots, X_n)$$

Règle de combinaison des variances

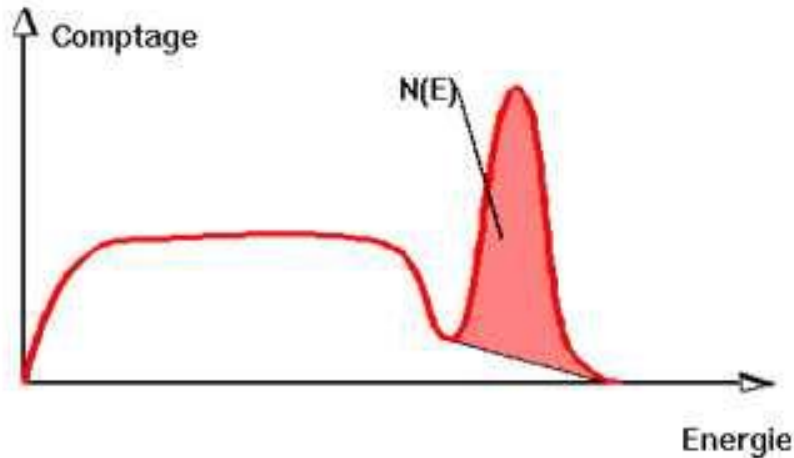
$$u_c(y) = \sqrt{\sum_{i=1}^n \left[\frac{\delta f}{\delta x_i} \right]^2 \times u^2(x_i)}$$

Attention : Valable seulement si les x_i sont indépendants

Incertitude élargie

$$U = k \times u_c$$

Exemple d'une mesure par spectrométrie gamma



$$A = \frac{N - B}{P(E_i) \times R(E_i) \times t} \times \prod C_i \times \frac{1}{m}$$

A : activité massique de l'échantillon (Bq/kg)

N : comptage brut sous le pic d'absorption totale

B : bruit de fond sous le même pic (mesuré pendant le même durée)

P : probabilité d'émission de la raie choisie

R : rendement d'absorption totale à l'énergie E_i

t : durée de la mesure en seconde

$\prod C_i$: divers facteurs de correction appliqués (décroissance, pertes de comptage, absorption,...)

m : masse de l'échantillon (kg)

Sources d'incertitude

N : comptage brut sous le pic d'absorption totale, \sqrt{N}

B : bruit de fond sous le même pic (mesuré pendant la même durée), \sqrt{B}

P : probabilité d'émission de la raie choisie, donnée par les tables de données nucléaires

R : rendement d'absorption totale à l'énergie E_i , donné par la courbe d'étalonnage

t : durée de la mesure en seconde, en principe négligeable

f_{Ci} : divers facteurs de correction appliqués (décroissance, pertes de comptage, absorption,...), à calculer

m : masse de l'échantillon (kg), en principe négligeable (balance d'analyse classique) devant les autres causes d'incertitude;

$$N \pm \sqrt{N}$$

Incertitude statistique de comptage	Nombre d'impulsions à dénombrer
10 %	100
1 %	10 000
0,1 %	1 000 000

Accepter d'augmenter l'incertitude statistique d'un facteur 10 permet de réduire le temps de comptage d'un facteur 100

$$A = \frac{N - B}{P(E_i) \times R(E_i) \times t} \times \prod C_i \times \frac{1}{m}$$

$$A = \frac{N_{net}}{P(E_i) \times R(E_i) \times t} \times \prod C_i \times \frac{1}{m}$$

$$\frac{uc(A)}{A} = \sqrt{\frac{u^2_c(N_{net})}{N_{net}^2} + \frac{u^2(P(E_i))}{P^2(E_i)} + \frac{u^2(R(E_i))}{R^2(E_i)} + \frac{u^2(t)}{t^2} + \frac{u^2(m)}{m}}$$

Cas courants de propagation des variances

$$y = x_1 \pm x_2 \pm x_3$$

$$u^2_c(y) = u^2(x_1) + u^2(x_2) + u^2(x_3)$$

$$y = \frac{x_1 \times x_2}{x_3}$$

$$\frac{u^2_c(y)}{y^2} = \frac{u^2(x_1)}{x_1^2} + \frac{u^2(x_2)}{x_2^2} + \frac{u^2(x_3)}{x_3^2}$$

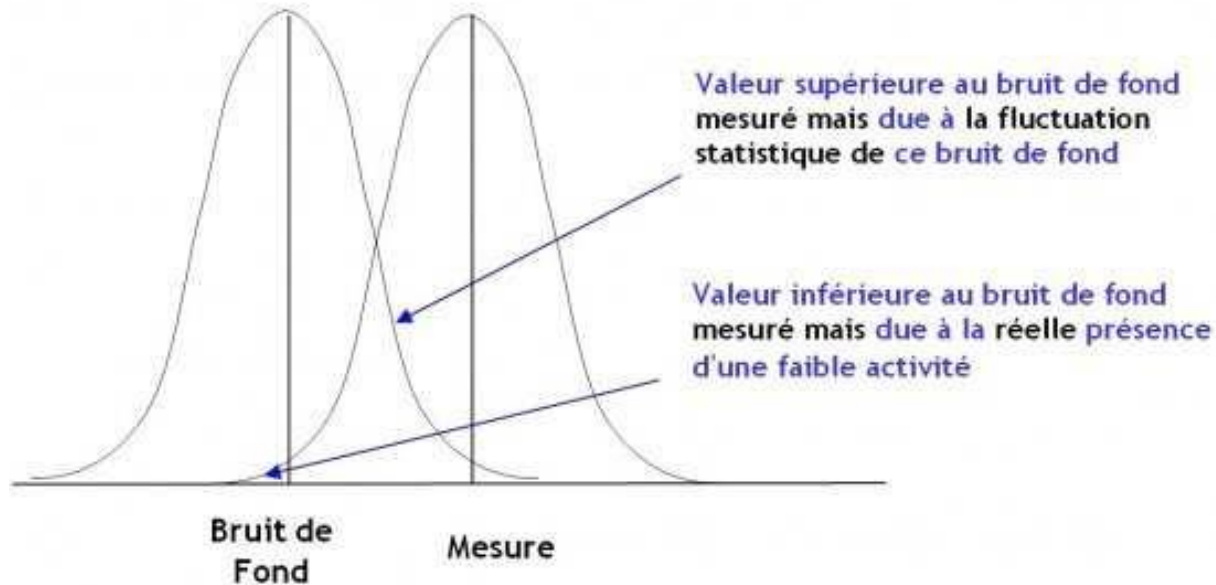
SEUIL ET LIMITE DE DÉTECTION

La plus petite valeur d'activité détectable lors d'une mesure dépend :

- du temps accordé à la mesure donc du nombre de désintégrations détectées ;
- du bruit de fond de l'installation de comptage.

Cette valeur est déterminée par rapport à une valeur dite « **seuil de décision** » (SD).

Dans le cas de la recherche de très faibles activités, la mesure d'un échantillon peut donner un résultat très proche de celui du bruit de fond de l'installation de mesure.



Compte tenu du caractère aléatoire du processus de désintégration radioactive, un résultat très supérieur au bruit mesuré ne donne pas l'assurance totale d'une **présence de radioactivité**.

Pas plus qu'un résultat très légèrement inférieur ne garantit **l'absence de radioactivité**.

Pour se prononcer l'analyste fait appel aux notions de **seuil de décision** et de **limite de détection**.

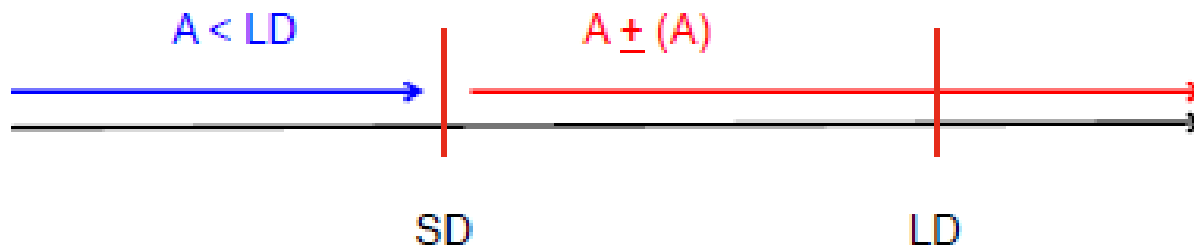
Le seuil de décision (SD) correspond à une valeur de comptage, pour laquelle on estime que, compte tenu des fluctuations statistiques du bruit de fond, on peut affirmer avec une probabilité suffisamment élevée de ne pas se tromper, **qu'un comptage supérieur à cette valeur SD révèle effectivement la présence de radioactivité dans l'échantillon mesuré.**

L'activité de l'échantillon et son incertitude peuvent alors être calculées.

Si par contre la mesure de l'échantillon donne un **comptage inférieur à la valeur SD** :

On peut seulement affirmer, également avec une probabilité quantifiée de ne pas se tromper, que **même si une radioactivité est présente, bien que n'ayant pas été détectée, elle est en tous cas inférieure à une valeur appelée Limite de Détection (LD)**.

Selon les techniques de mesure, la limite de détection est approximativement égale à 2 fois la valeur du seuil de décision.



En première approximation la valeur de SD correspond en fait à **une mesure dont la seule incertitude statistique de comptage est égale à 100%**.

Dans certains cas, quand on ajoute les autres composantes d'incertitude (étalonnage, rendement chimique...) on peut obtenir une incertitude globale sur la valeur exprimée supérieur à 100% par exemple :

$$A = (50 \pm 53) \text{ Bq}$$

Ce qui peut être troublant pour le destinataire du résultat !

La norme de référence pour le calcul des SD et LD est l'ISO 11929

ISO 11929:2010

Détermination des limites caractéristiques (seuil de décision, limite de détection et extrémités de l'intervalle de confiance) pour mesurages de rayonnements ionisants -- Principes fondamentaux et applications

EXEMPLES D'APPLICATION DES RAYONNEMENTS IONISANTS

Au delà de la production d'énergie électrique d'origine nucléaire, on retrouve des utilisation de radionucléides et de rayonnements dans :

- Les services de médecine nucléaire
- Les laboratoires de recherche
- Les installation industrielles

Quelques radionucléides naturels sont utilisés directement (^{14}C)

La majorité des radionucléides utilisés sont des radionucléides artificiels spécialement générés et conditionnés pour ces applications.

Ils sont produits par :

- Irradiation neutronique d'isotopes stables (^{60}Co , ^{192}Ir) ;
- Séparation chimique de produits de fission nucléaire (^{137}Cs , ^{90}Sr , ^{85}Kr , ^{131}I) ;
- Irradiation d'isotopes stables par des particules chargées d'énergie élevée (alpha, deutons, protons, ions lourds, etc.) ^{11}C , ^{15}O , ^{18}F , ^{13}N .

Une centaine de radionucléides sont utilisés dont une trentaine en grandes quantités.

L'intérêt des radionucléides repose sur :

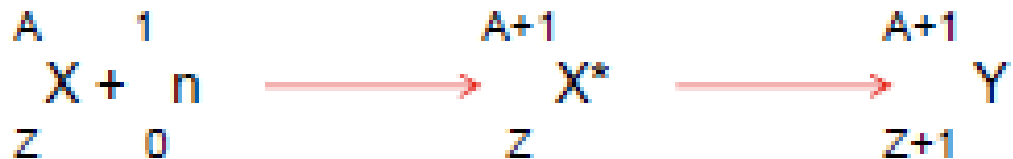
Leur capacité à émettre des radiations capables d'induire des transformations de la matière

- l'identification et la mesure apportera des informations sur les caractéristiques de cette matière.

L'identité chimique des radionucléides avec des isotopes stables et la possibilité de détecter leurs rayonnements avec une grande sensibilité

- Utilisations de radio traceurs en médecine nucléaire ou dans l'industrie

Activation neutronique

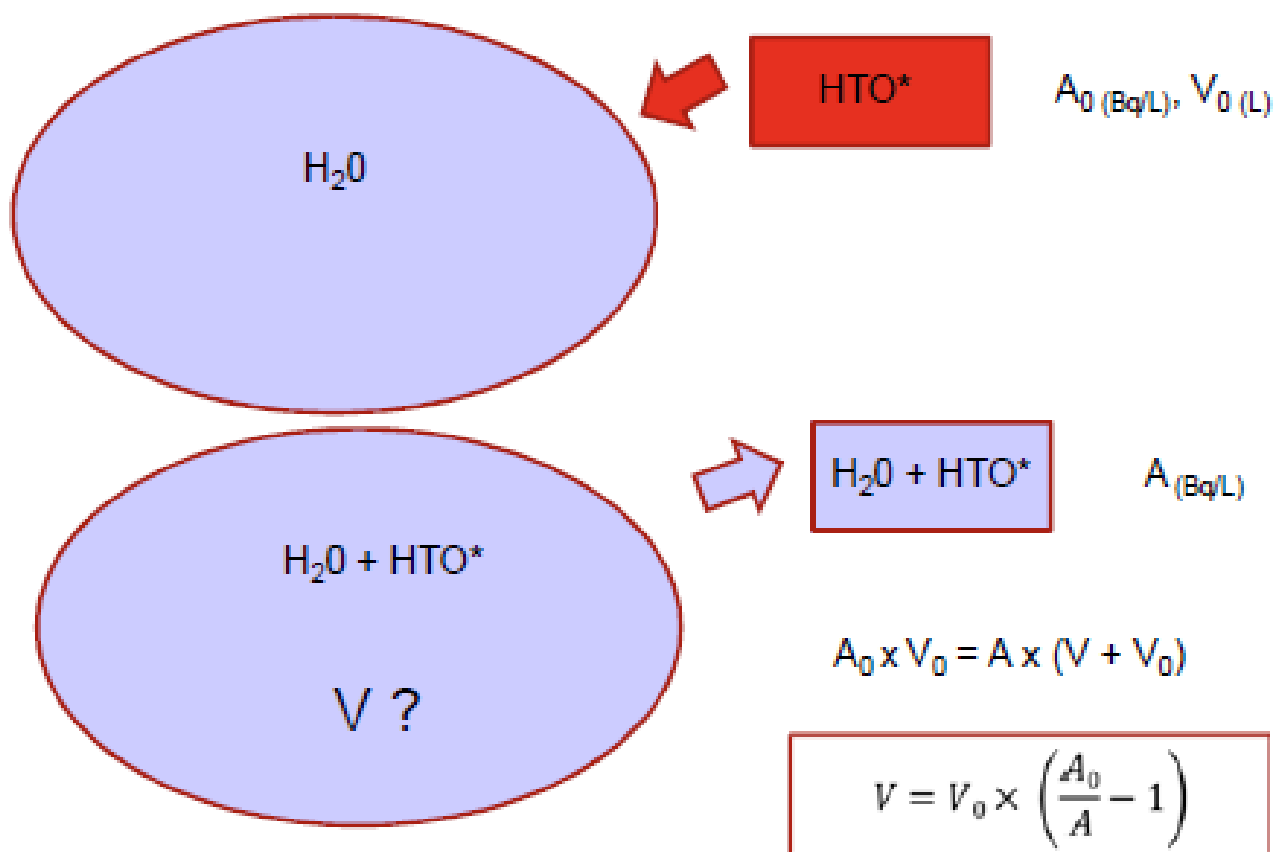


L'identification de X* ou de Y permet d'identifier et/ou de doser X

- Recherche d'impuretés dans des composés que l'on veut très purs
- Caractérisation d'alliages spéciaux en métallurgie
- Dosages d'oligo éléments en biologie
- Etc.

Analyses par traceurs radioactifs

Dilution radio-isotopique : exemple détermination du volume d'une poche d'eau



Utilisations médicales

Thérapeutiques

- **Radiothérapie** : Irradiation par une source de rayonnement placée à distance du patient
- **Curiethérapie** : Irradiation par une source de rayonnement implantée à l'intérieur ou au voisinage de l'organe à traiter

Diagnostiques

- **In vivo** : fixation par l'organisme de molécules marquées au moyen de radioisotopes + imagerie par détection des rayonnements émis.
- **In vitro** : suivi des combinaisons antigènes/anticorps

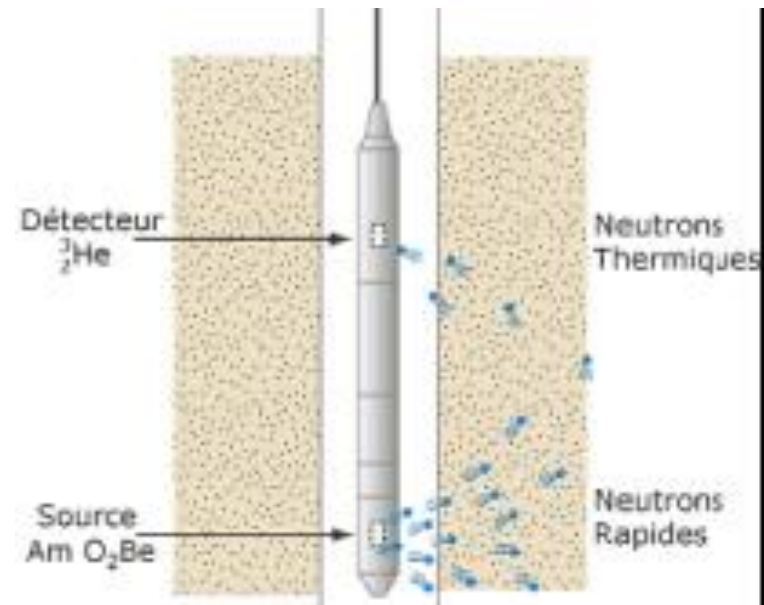
Sciences de la terre

Datation

- ^{14}C ($T_{1/2} = 5730$ ans) : âges compris entre 25 000 et 40 000 ans
- ^{232}Th : âges compris entre 150 000 ans et quelques millions d'années
- $^{40}\text{K}/^{40}\text{Ar}$: âges compris quelques centaines de millions et 1 milliard d'années

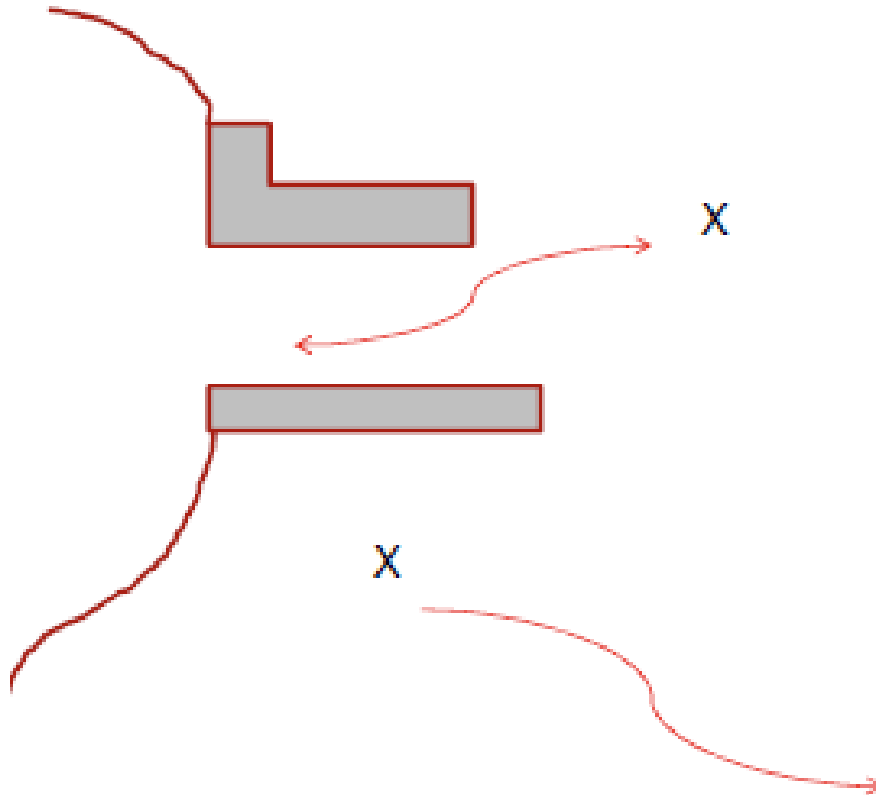
Diagraphie nucléaire en prospection minière

- Caractérisation des sous-sols



Sédimentologie dynamique

- Choix du point de rejet des produits de dragage d'un port



Applications industrielles

Contrôle non destructif

- Gammagraphie
 - Génie civil
 - Chaudronnerie
- Jauges radiométriques de mesure
 - Niveau
 - Epaisseur
 - Densité
- Traceurs industriels
 - Recherches de fuites

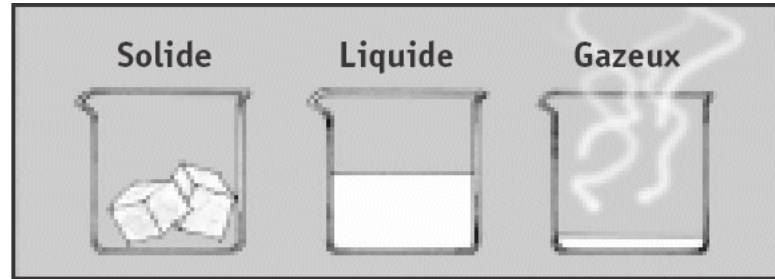
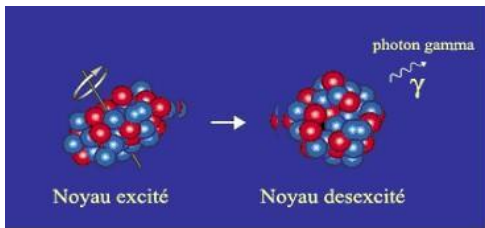
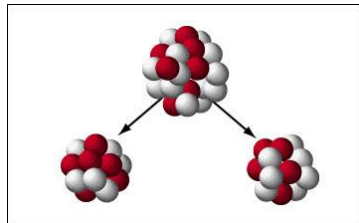
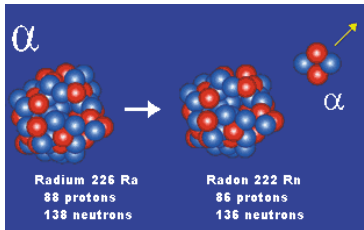
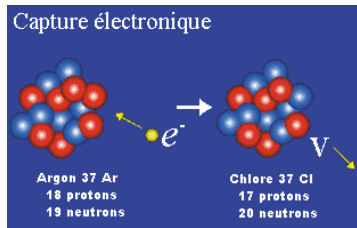
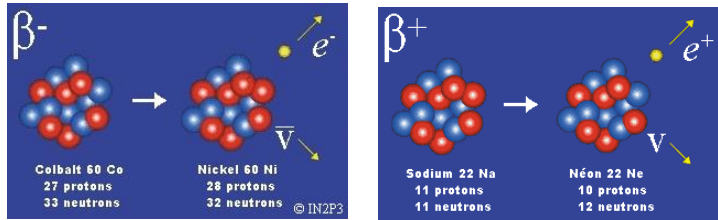
- Irradiation de denrées alimentaires à des fins de stérilisation
- Préservation de biens culturels (Ramsès II)
- Durcissement de matériaux
- Coloration de matériaux (verres, topazes)
- Radio traitements chimiques
 - Textiles
 - Matières plastiques
 - Biomatériaux à usage médical
- ETC...

MÉTROLOGIE DES RAYONNEMENTS IONISANTS

Moyens disponibles au LNHB
(Laboratoire National Henri Becquerel)

MÉTROLOGIE DE L'ACTIVITÉ

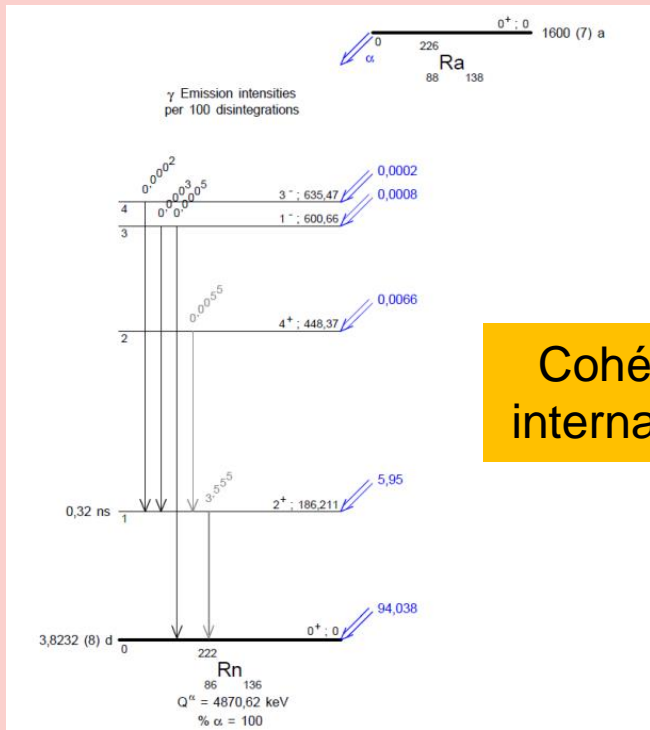
L'activité (Bq) et de flux (s⁻¹)



Radionucléide	Période radioactive
Carbone 11	20,4 minutes
Fluor 18	1,83 heure
Radon 222	3,82 jours
Iode 131	8,05 jours
Carbone 14	5 730 années
Plutonium 239	24 100 années
Uranium 238	4,47 milliards d'années

ÉVALUATION DE DONNÉES NUCLÉAIRES ET ATOMIQUES DE DÉSINTÉGRATION

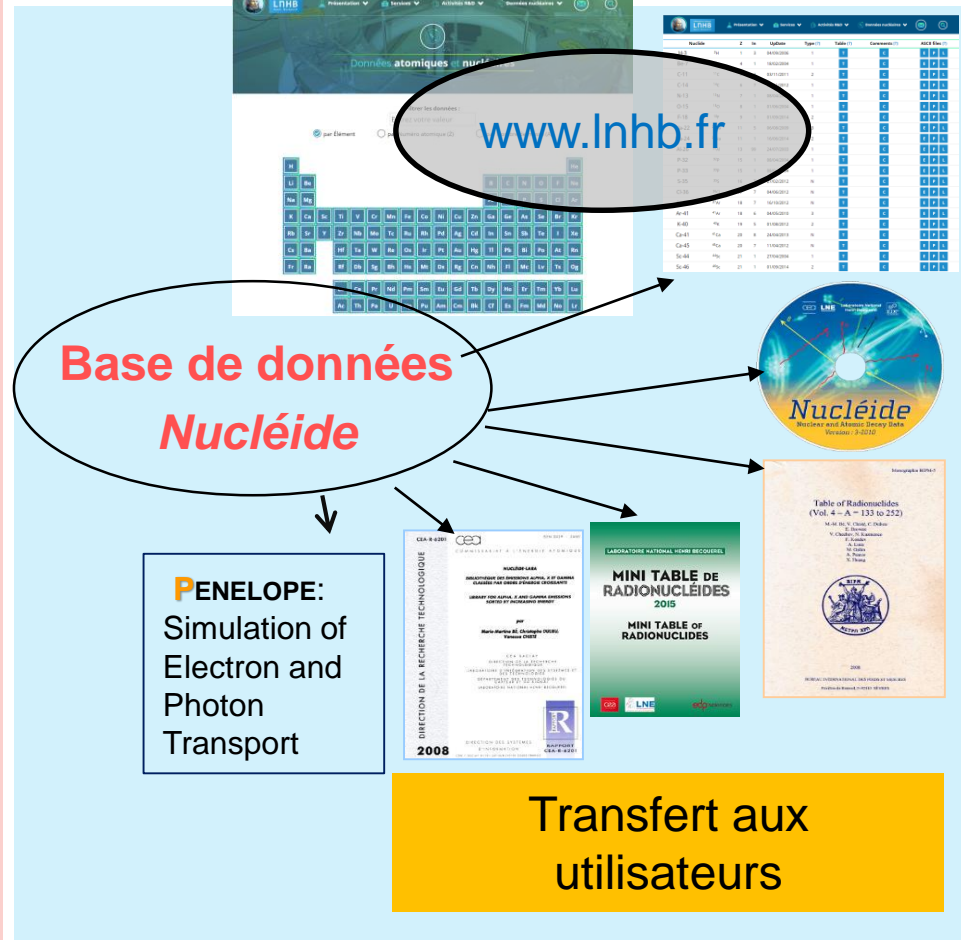
1995 : création du *Decay Data Evaluation Project (DDEP)* initié et coordonné par le LNHB



Cohérence internationale

À partir des données publiées et de leur analyse, établissement de valeurs recommandées pour les schémas de désintégration des radionucléides.

Édition et publication sous forme de *Monographie BIPM*, document de référence pour les comparaisons internationales (décision du CCRI-(II)).



Transfert aux utilisateurs

<http://www.lnhb.fr/donnees-nucleaires/donnees-nucleaires-tableau/>



Filterer les données :

Entrez votre valeur














par Élément

par Numéro atomique (Z)

par Nombre de masse (A)

H																						He
Li	Be											B	C	N	O	F						Ne
Na	Mg											Al	Si	P	S	Cl						Ar
K	Ca	Sc	Ti	V	Cr	Mn	Fe	Co	Ni	Cu	Zn	Ga	Ge	As	Se	Br						Kr
Rb	Sr	Y	Zr	Nb	Mo	Tc	Ru	Rh	Pd	Ag	Cd	In	Sn	Sb	Te	I						Xe
Cs	Ba		Hf	Ta	W	Re	Os	Ir	Pt	Au	Hg	Tl	Pb	Bi	Po	At						Rn
Fr	Ra		Rf	Db	Sg	Bh	Hs	Mt	Ds	Rg	Cn	Nh	Fl	Mc	Lv	Ts						Og
	La	Ce	Pr	Nd	Pm	Sm	Eu	Gd	Tb	Dy	Ho	Er	Tm	Yb	Lu							
	Ac	Th	Pa	U	Np	Pu	Am	Cm	Bk	Cf	Es	Fm	Md	No	Lr							

<http://www.lnhb.fr/donnees-nucleaires/donnees-nucleaires-tableau/>

 Laboratoire National LNHB <small>Henri Becquerel</small> <td colspan="2">  Présentation ▾ </td> <td colspan="2">  Services ▾ </td> <td colspan="2">  Activités R&D ▾ </td> <td colspan="2">  Données nucléaires ▾ </td> <td colspan="2">   </td>										 Présentation ▾		 Services ▾		 Activités R&D ▾		 Données nucléaires ▾		 	
Nuclide	Z	In	UpDate	Type (?)	Table (?)	Comments (?)	ASCII files (?)												
H-3	³ H	1	3	04/09/2006	1	T	C	E	P	L									
Be-7	⁷ Be	4	1	18/02/2004	1	T	C	E	P	L									
C-11	¹¹ C	6	1	03/11/2011	2	T	C	E	P	L									
C-14	¹⁴ C	6	7	22/11/2012	1	T	C	E	P	L									
N-13	¹³ N	7	1	08/04/2004	1	T	C	E	P	L									
O-15	¹⁵ O	8	1	01/06/2004	1	T	C	E	P	L									
F-18	¹⁸ F	9	1	01/09/2014	2	T	C	E	P	L									
Na-22	²² Na	11	5	06/08/2009	3	T	C	E	P	L									
Na-24	²⁴ Na	11	1	16/06/2014	2	T	C	E	P	L									
Al-26	²⁶ Al	13	99	24/07/2003	1	T	C	E	P	L									
P-32	³² P	15	1	08/04/2004	1	T	C	E	P	L									
P-33	³³ P	15	1	08/04/2004	1	T	C	E	P	L									
S-35	³⁵ S	16	7	27/02/2012	N	T	C	E	P	L									
Cl-36	³⁶ Cl	17	7	04/06/2012	N	T	C	E	P	L									
Ar-37	³⁷ Ar	18	7	16/10/2012	N	T	C	E	P	L									
Ar-41	⁴¹ Ar	18	6	04/05/2010	3	T	C	E	P	L									
K-40	⁴⁰ K	19	5	01/08/2012	2	T	C	E	P	L									
Ca-41	⁴¹ Ca	20	8	24/04/2013	N	T	C	E	P	L									
Ca-45	⁴⁵ Ca	20	7	11/04/2012	N	T	C	E	P	L									
Sc-44	⁴⁴ Sc	21	1	27/04/2004	1	T	C	E	P	L									
Sc-46	⁴⁶ Sc	21	1	01/09/2014	2	T	C	E	P	L									



Pesées de solutions radioactives



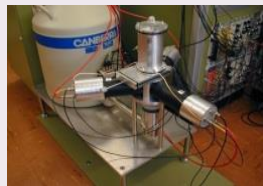
Manipulations en cellules blindées et en boîtes à gants



Géométries de mesure



Scintillation liquide TDCR

Coïncidences $4\pi\beta\text{-}\gamma$  $4\pi\gamma$ cristal puits

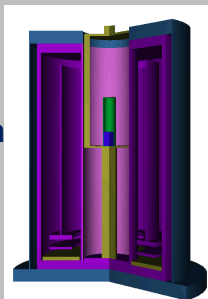
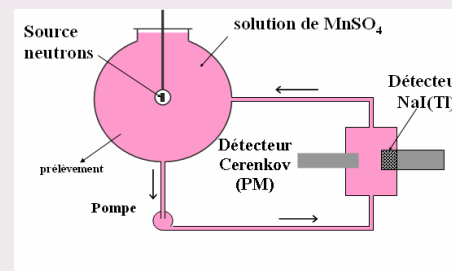
ASD (alpha)



CP triple

méthodes primaires

méthodes secondaires

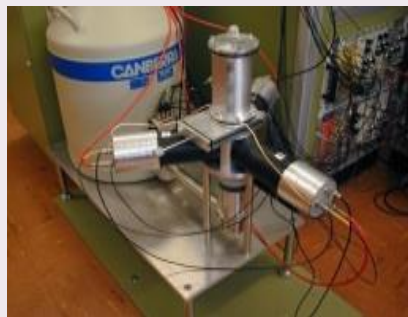
Chambre
d'ionisation
à puitsScintillation
liquideSpectrométrie
X et γ 

Neutron : bain de manganèse

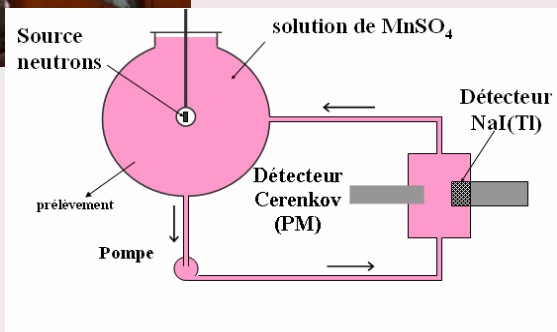
Méthodes primaires



Scintillation liquide RCTD

coïncidences $4\pi\beta\text{-}\gamma$ 

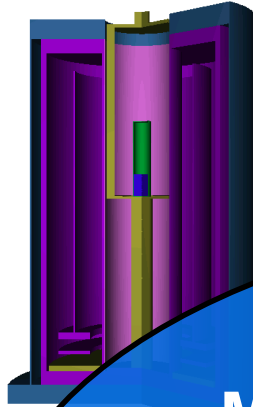
Cristal-puits

Angle Solide Défini
ASD (alpha)

Neutron : bain manganèse

Compteurs
Proportionnels triples

Chambre d'ionisation
(activimètres)



Multiplicité des méthodes de mesure

Scintillation
liquide

Spectrométrie
X et γ



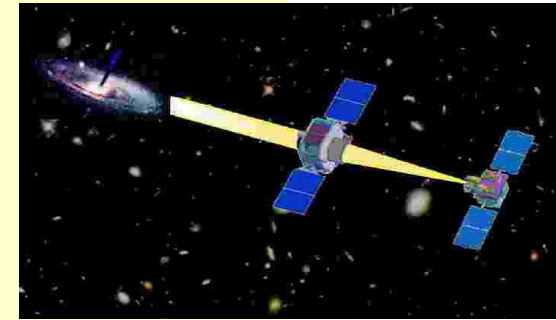
Redondance métrologique



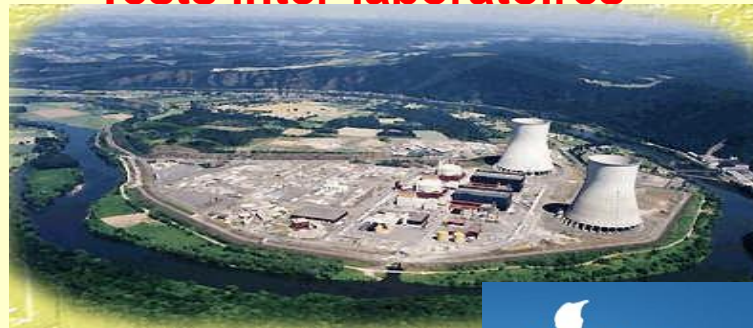


Raccordements et étalonnages

- Radiothérapie
- Médecine nucléaire
- Diagnostic
- Radioprotection
- Industrie nucléaire
- Environnement
- Défense
- Recherche



Tests inter-laboratoires



LEA



INSTITUT
CARNOT
CEA LIST

université
PARIS-SACLAY

□ Etalonnage d'activimètres neufs



□ Etalonnage de sources en terme d'activité, et activité massique (émetteurs alpha, gamma, bêta)



□ Etalonnage de gaz radioactifs (Rn-222, H-3, Kr-85, Xe-133, Xe-127, ...)



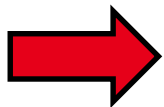
□ Etalonnage de sources neutroniques



□ Réalisation de tests interlaboratoires



- Prestations dans le domaine médical et en particulier en Radiothérapie et médecine nucléaire
- 330 Certificats d'étalonnage émis en 2022



Risque élevé : 1 étalonnage ~ 1000 à 3000 patients

- Nécessite d'une organisation assurant une traçabilité irréprochable (ISO 17025)
- Grand soin apporté aux activités du LNHB

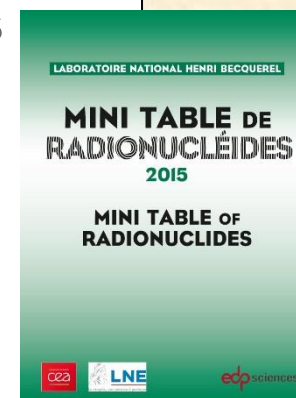
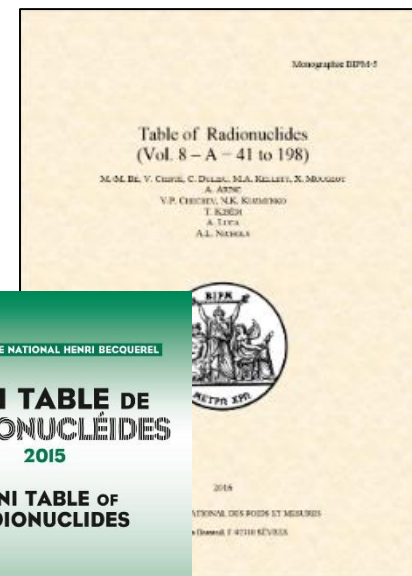
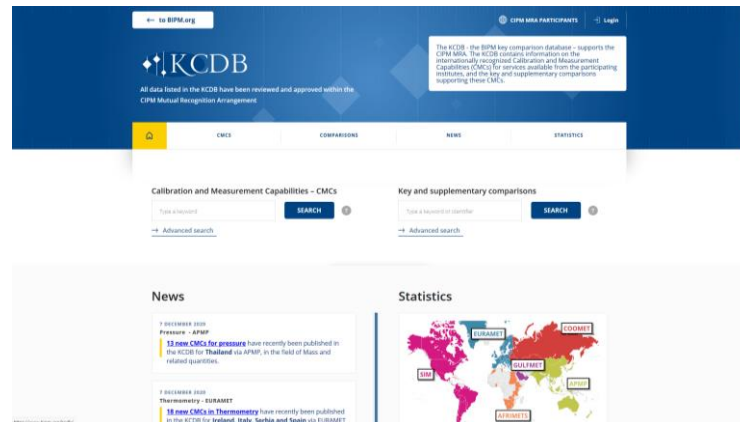
- Nombre de comparaisons clés internationales soumises :
 - 1^{er} rang en radioactivité
 - 3^{ème} rang en dosimétrie

- Projets européens EPM :
 - 7 projets en cours dont 1 coordonné par le LNHB

- ICRM-2019 : 15 % communications orales
30 % auteurs + coauteurs

- Monographie BIPM n°5 « Table of radionuclides » (v8 2016) : ouvrage de référence pour les données

- Le Mini Table of Radionuclides (2015)



Permettre l'accès des **utilisateurs**
aux **références métrologiques** dont ils ont **besoin**
dans le cadre d'une **traçabilité** rigoureusement établie



EXEMPLE DE TRAÇABILITÉ

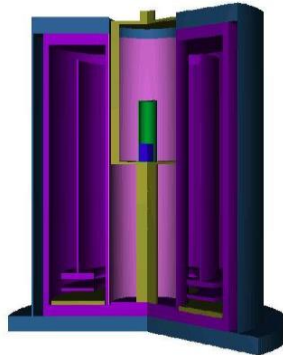


Transfert aux utilisateurs

Méthode primaire LNHB :
scintillation liquide

Méthode de transfert LNHB :
chambre d'ionisation à puits

Instrument de mesure utilisé dans
les SMN : activimètre



(kBq)

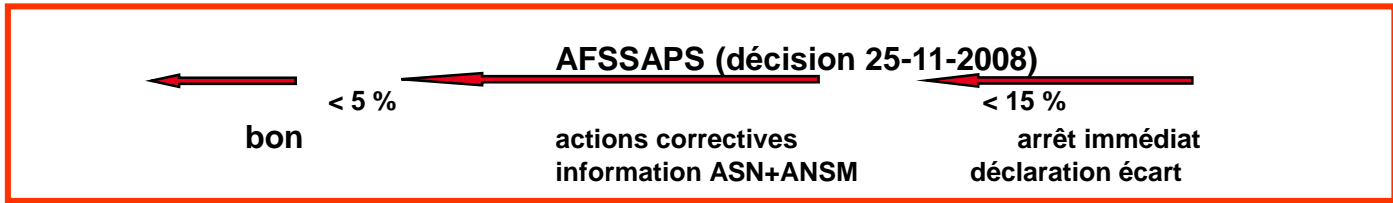
(MBq)

(10 MBq-GBq)

1 %

1,5 %

3 à 4 %



Méthode primaire : procédure de mesure de référence utilisée pour obtenir un résultat de mesure sans relation avec un étalon

Méthode primaire

$$A = \frac{N}{\varepsilon}$$

ε : rendement global source/détecteur

ε est *a priori* inconnu

Il peut être :

- mesuré
- calculé
- extrapolé à 1

Méthode secondaire : procédure de mesure relative basée sur l'utilisation d'un étalon de référence

Méthode secondaire

$$A = A_0 \frac{N}{N_0}$$

A : activité inconnue de la source (Bq)

A_0 : activité de l'étalon

N : taux de comptage de la source (s^{-1})

N_0 : taux de comptage de l'étalon

Méthodes primaires

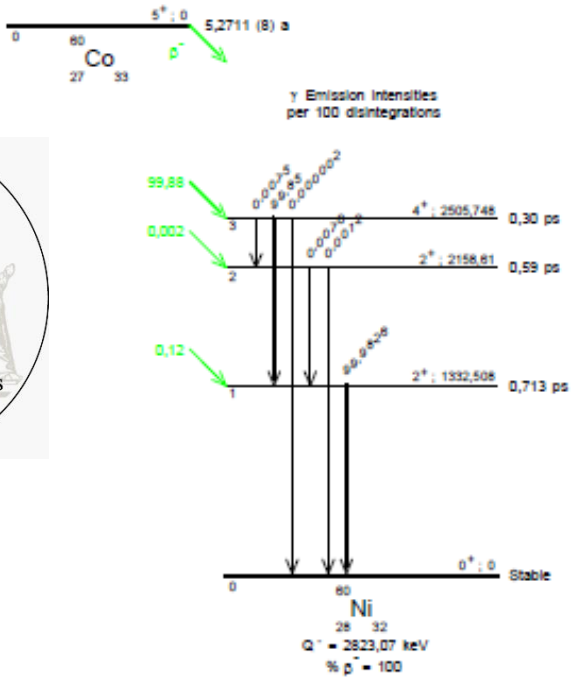
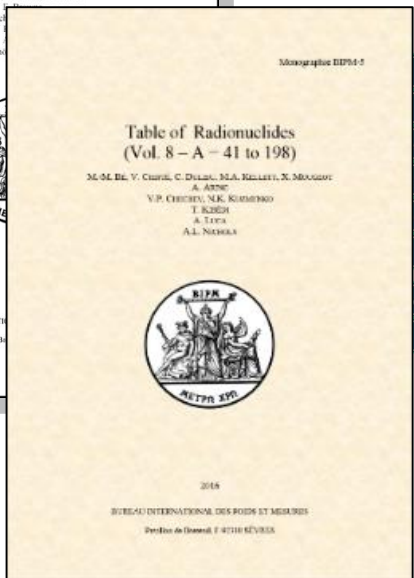
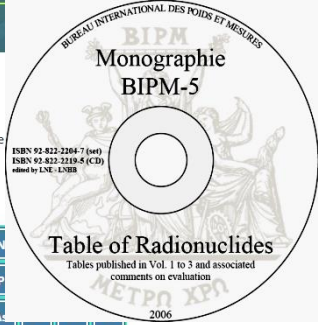
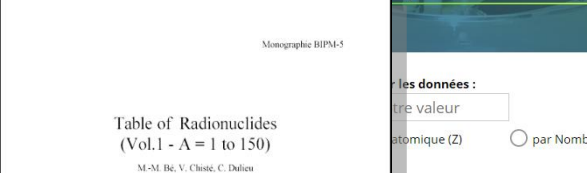
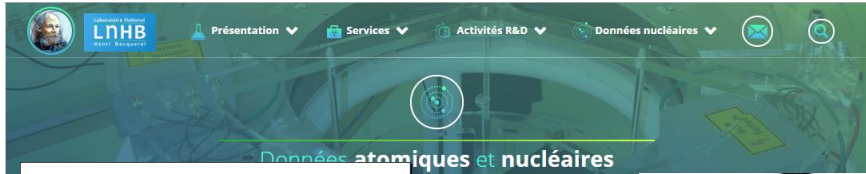
- **Quelques généralités**
- **Méthodes de mesures primaires utilisées au LNHB**
 - Comptages γ
 - Scintillation liquide
 - Coïncidences $4\pi\beta-\gamma$
- **Quelques exemples**
 - Mesure, raccordement, intercomparaison

list → Réalisation de la mesure primaire d'activité d'un radionucléide :

Étape 1

Schéma de désintégration du radionucléide
types de désintégrations (α , β , γ , e- e+) / énergies / probabilités

Evaluation des données de désintégrations et édition de tables

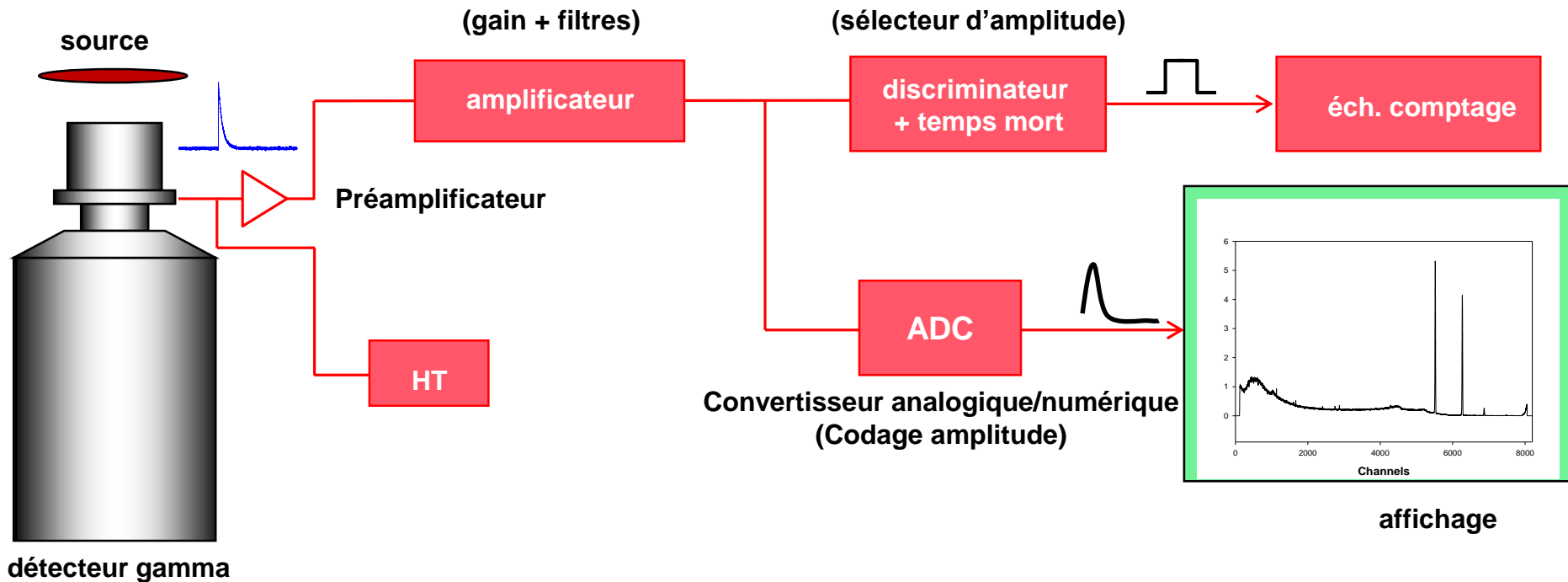


→ Choix de la méthode et du détecteur

→ Réglages de la chaîne de mesure

→ Calcul du rendement

Exemple de système de mesure simple 'classique'

Réglages

- **résolution** (déformation du spectre en spectrométrie gamma)
- **empilements** (déformation du spectre + perte de comptage)
- **correction des pertes de comptage** (temps morts)

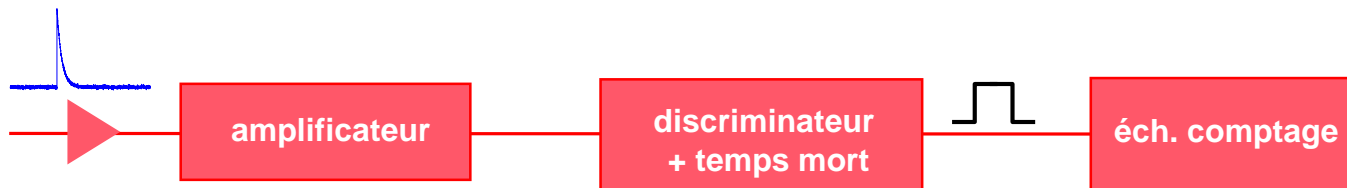
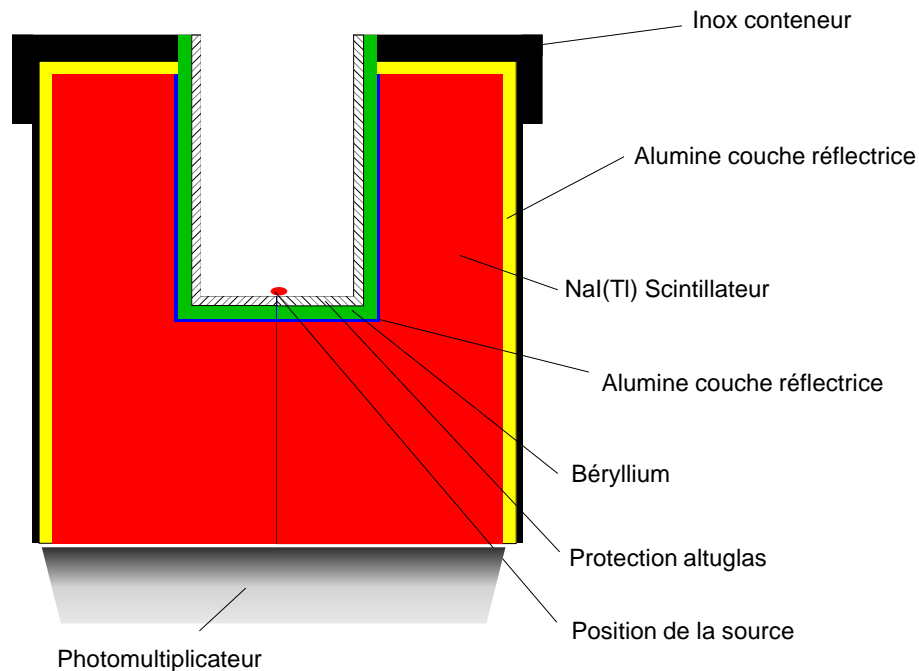
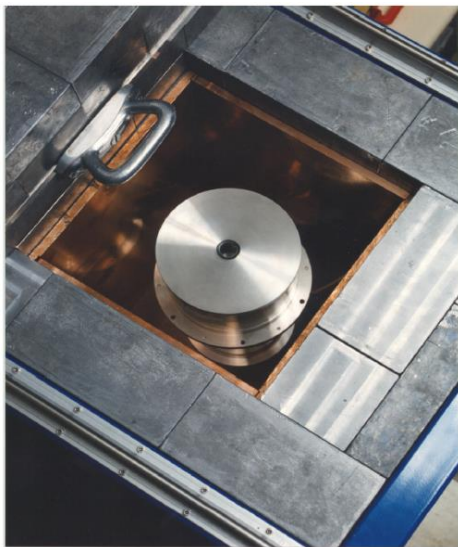
Acquisitions et traitements des données
(échantillons, programmes, corrections, estimation de l'activité...)
Résultat / certificat d'étalonnage

Bilan des incertitudes 'classique'

- **fluctuations statistiques dans le comptage, (écart-type expérimental)**
- **pesée des échantillons mesurés, donnée dans la fiche de pesées pour chaque échantillon**
- **temps mort, technique du temps actif (échantillonnage des impulsions, horloge)**
- **décroissance radioactive, calcul**
- **période radioactive, données nucléaires**
- **mouvement propre, taux de comptage enregistré en absence de source rayonnante**
- **rendement de détection, calcul**
- **impuretés, contributions obtenues par spectrométrie**

Méthode du cristal-puits NaI(Tl)

→ Basée sur l'utilisation d'un cristal NaI(Tl), de gros volume muni d'un puits au fond duquel l'échantillon à mesurer est placé (4π sr)



$$A = \frac{N}{\varepsilon}$$

→ Radionucléides à schéma de désintégration complexe, plusieurs γ en cascade

$$R_{\text{global}} = 1 - \prod(1 - R_i)$$

R_i : rendement de détection de la transition i

Radionucléide père

β



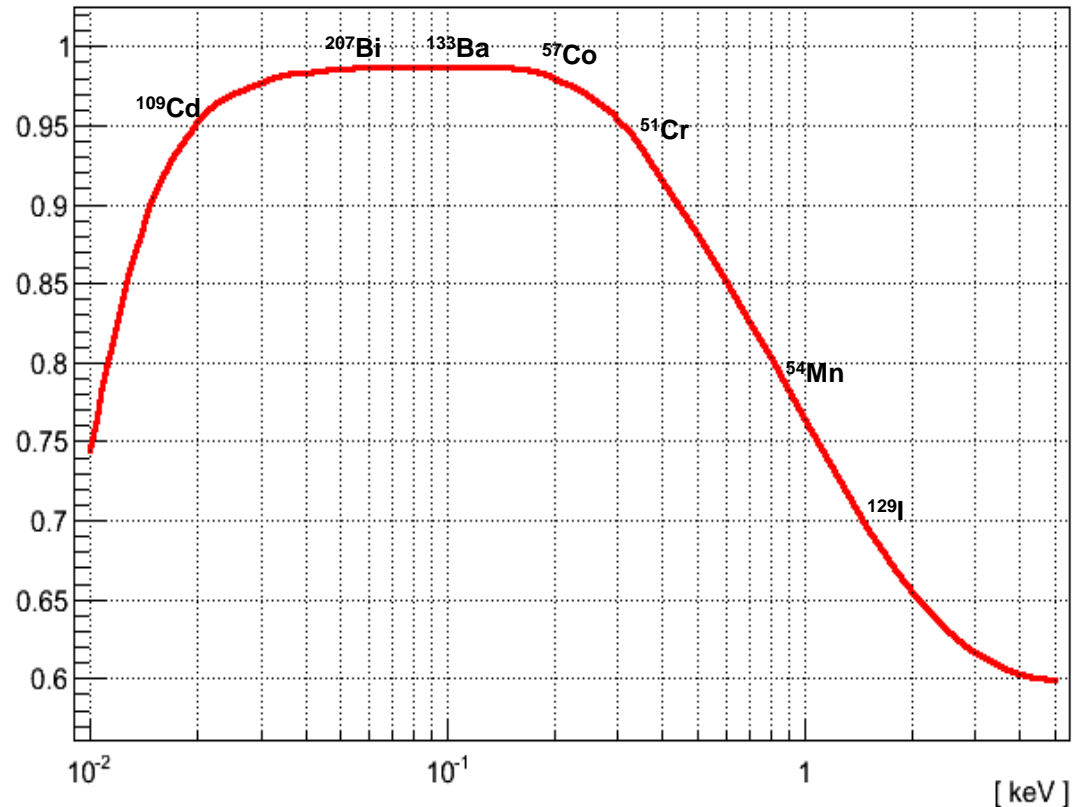
γ_1



Si $R(\gamma_1) = R(\gamma_2) = R(\gamma_3) = 0,80$ (2)

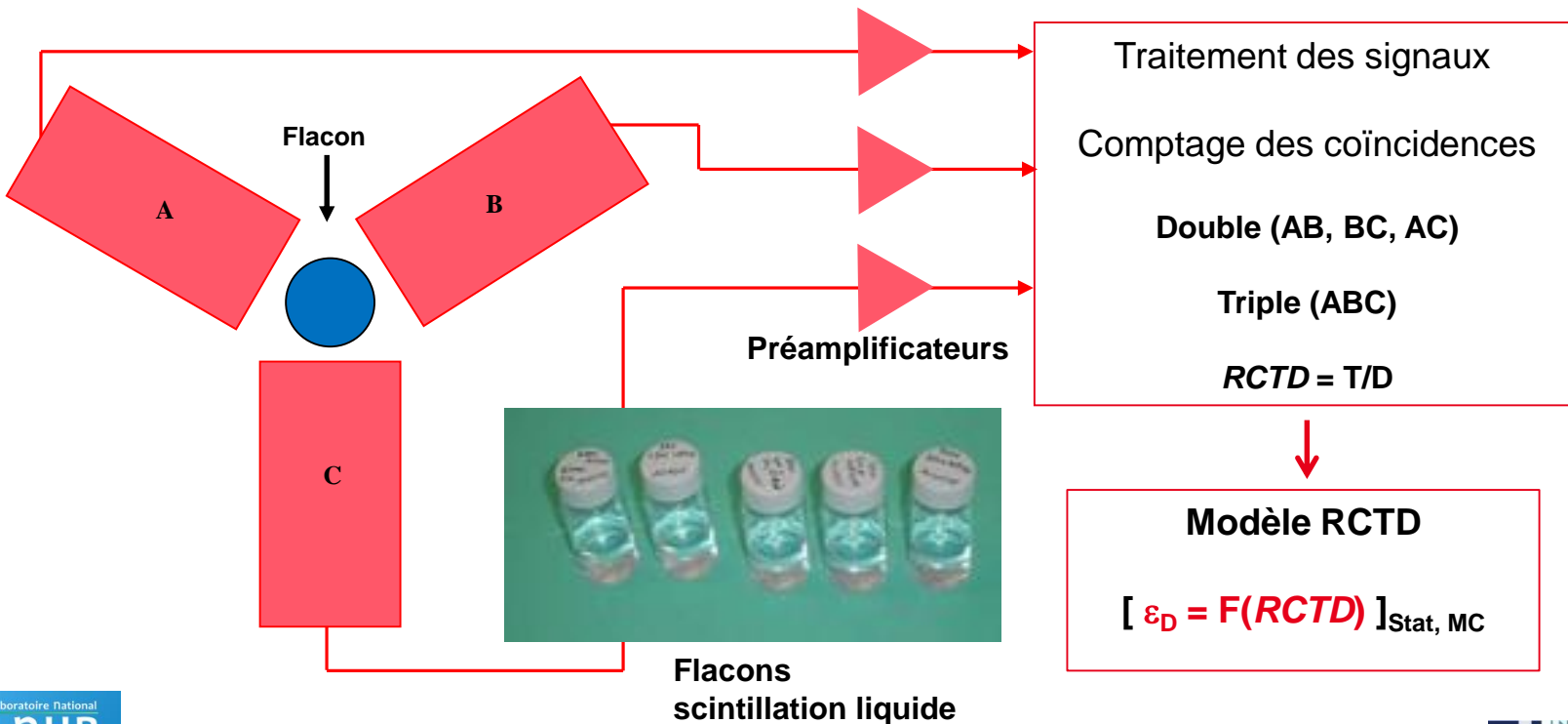
alors $R_{\text{global}} = 0,992$ (3)

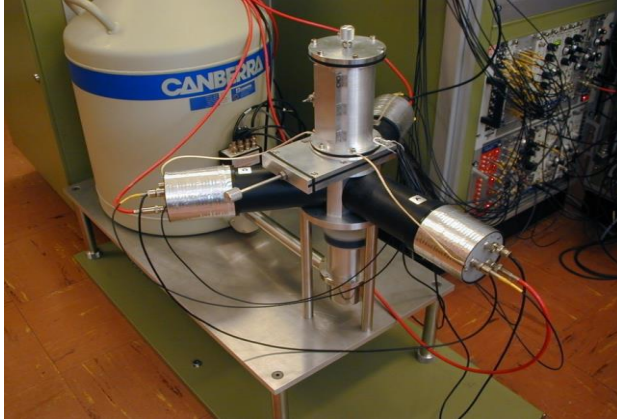
→ Courbe de rendement de détection de photons γ en fonction de leur énergie (calcul Monte Carlo)



→ **RCTD = Rapport des Coïncidences Triple à Double**, basée sur la scintillation liquide

- mesure d'activité de radionucléides émetteurs β ou par **capture électronique**
- système de détection à trois photomultiplicateurs (PMT)
- flacon : solution radioactive + un scintillateur (UltimaGold, Hionic fluor...)
- utilisation d'un modèle statistique du nombre de photoélectrons créés dans le compteur RCTD





Modèle statistique

→ Le nombre de photons émis suite à un dépôt d'énergie E dans le scintillateur suit une distribution de Poisson avec une moyenne $m(E)$:

$$m(E) = \int_0^E \frac{A dE}{1 + kB (dE / dl)}$$

dE/dl : pouvoir d'arrêt des électrons dans le scintillateur
 kB : paramètre de quenching ionisation (constante de Birks)
 A : photons/MeV

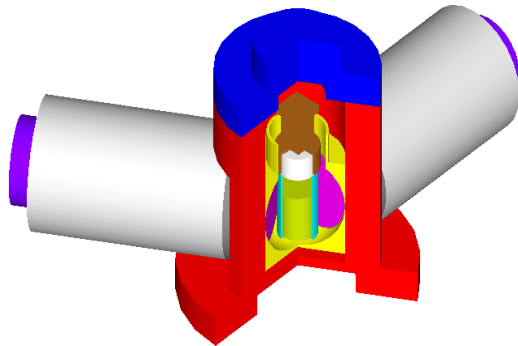
→ Probabilité de compter au moins 1 photoélectron dans un PM :

$$P(E) = 1 - \exp(-m(E).n / 3)$$

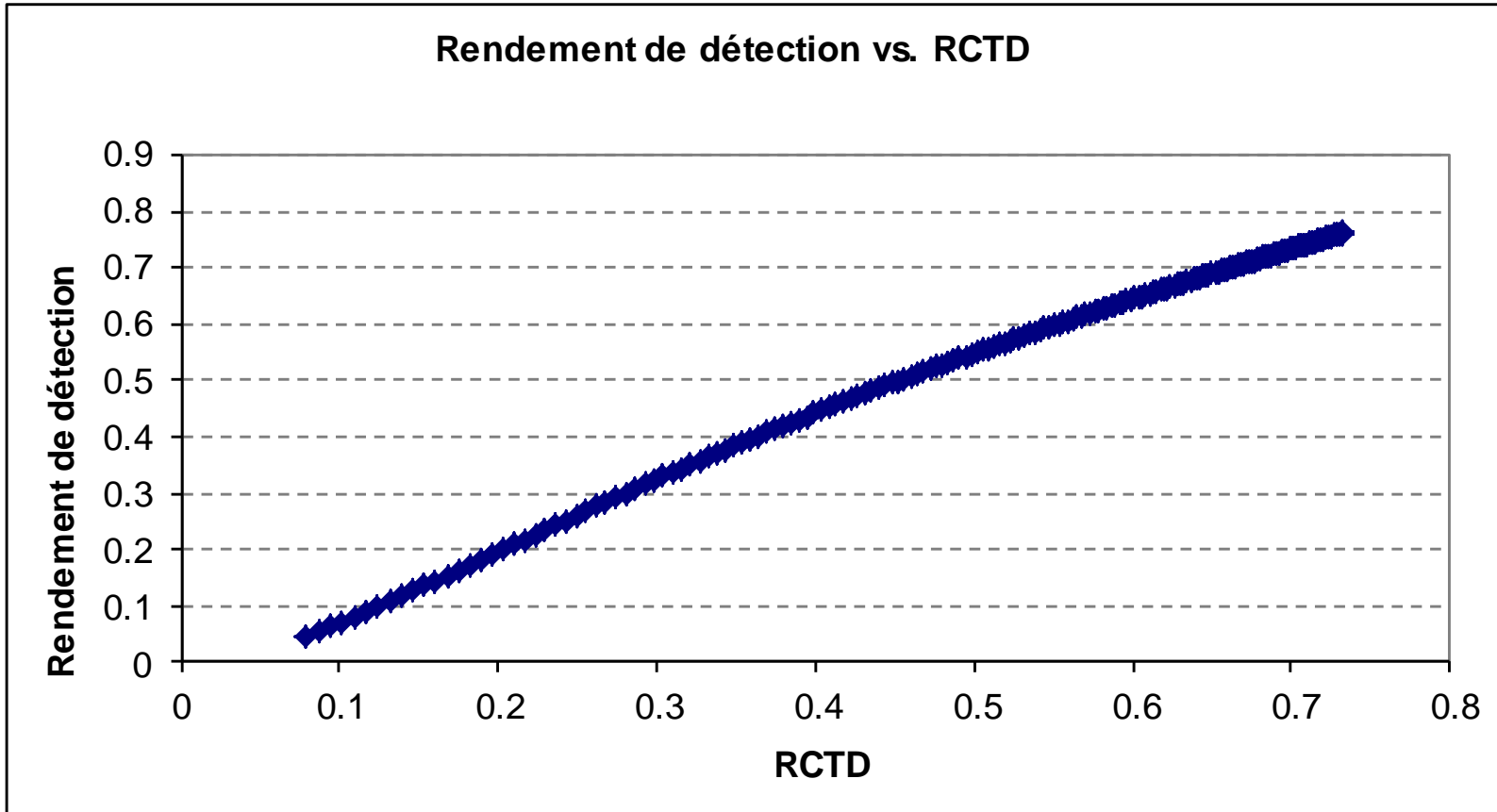
n , efficacité quantique du PM

→ Activité

$$A = \frac{N}{\varepsilon}$$



Exemple de calcul de rendement : cas simple H-3 (spectre β^-)



→ RCTD = Rapport des Coïncidences Triple à Double, utilisation de l'effet Cerenkov

→ **Intérêt de la technique RCTD-Cerenkov**

Mesure directe en solution aqueuse (pas de liquide scintillant)

- préparation des sources simplifiée (mesure rapide)
- réduction de possibles instabilités chimiques en scintillation liquide

Propriété discriminante de l'effet de seuil Cerenkov (~ 260 keV en solution aqueuse)

Mesure ^{11}C

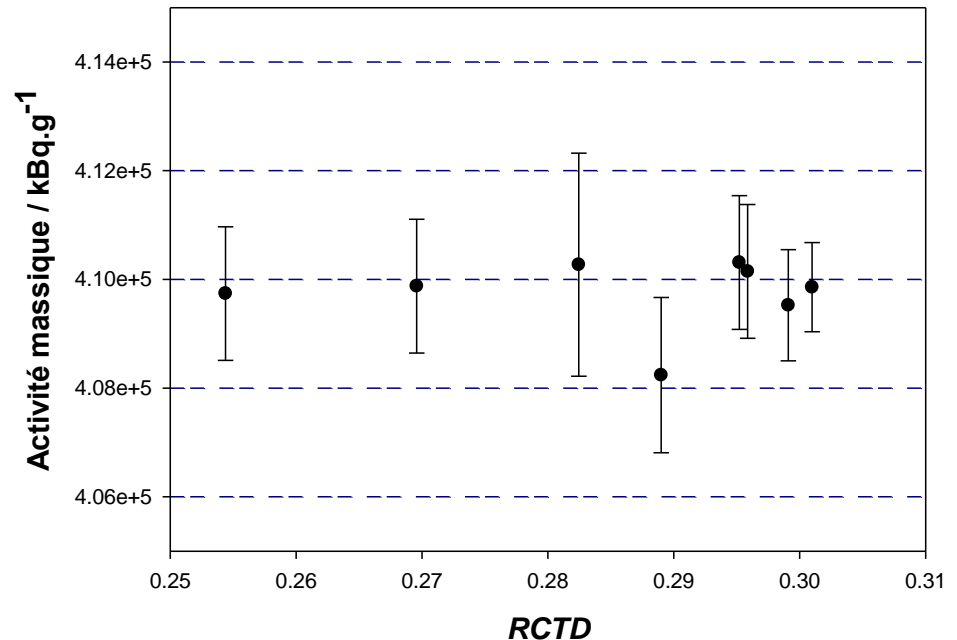
- radiopharmaceutique ($T_{1/2} \sim 20$ min)
- émetteur β^+ (E max. 960 keV)

$\varepsilon_D = F(RCTD)$ établit par modélisation (Geant4)

→ Validation par comparaison à la méthode des coïncidences $4\pi\beta-\gamma$

RCTD-Cerenkov : 410,0 (35) kBq.g $^{-1}$

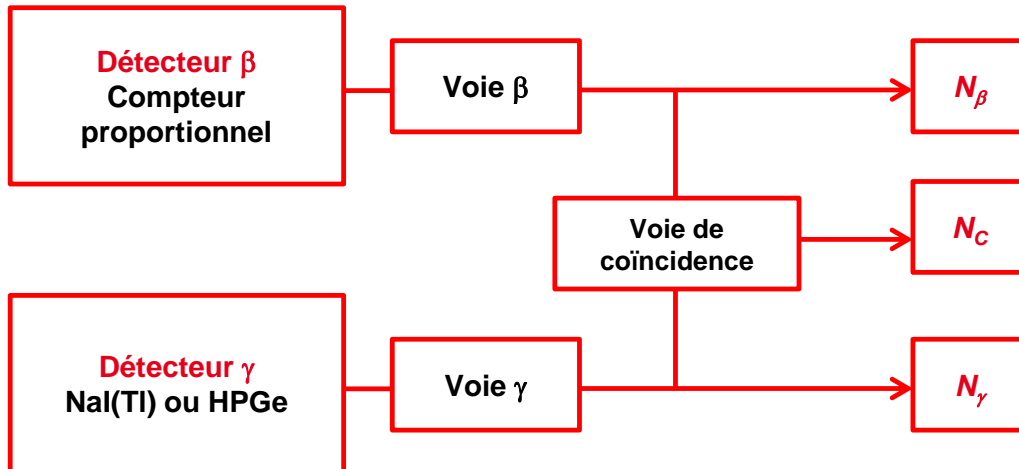
Méthode $4\pi\beta-\gamma$: 411 (2) kBq.g $^{-1}$



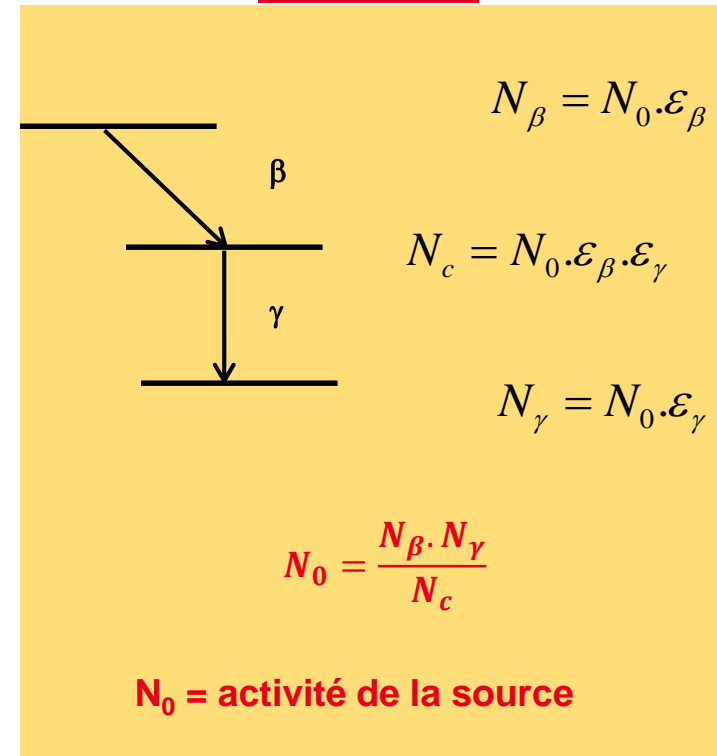
RCTD

→ Mesure primaire de radionucléides émetteurs de type $\beta\gamma$

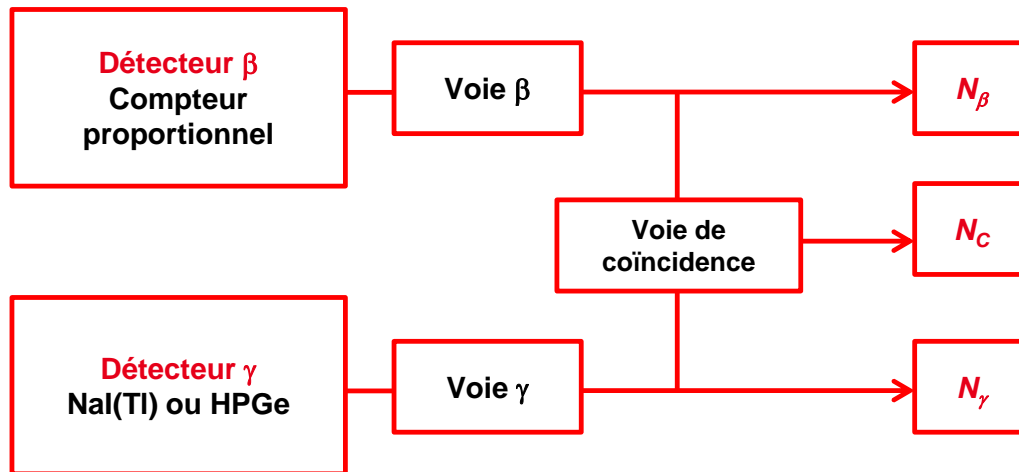
- association de deux systèmes de détection
- troisième voie : coïncidences



1. Cas idéal



2. Cas réel



→ prise en compte de la sensibilité de la voie β aux émissions de la transition γ

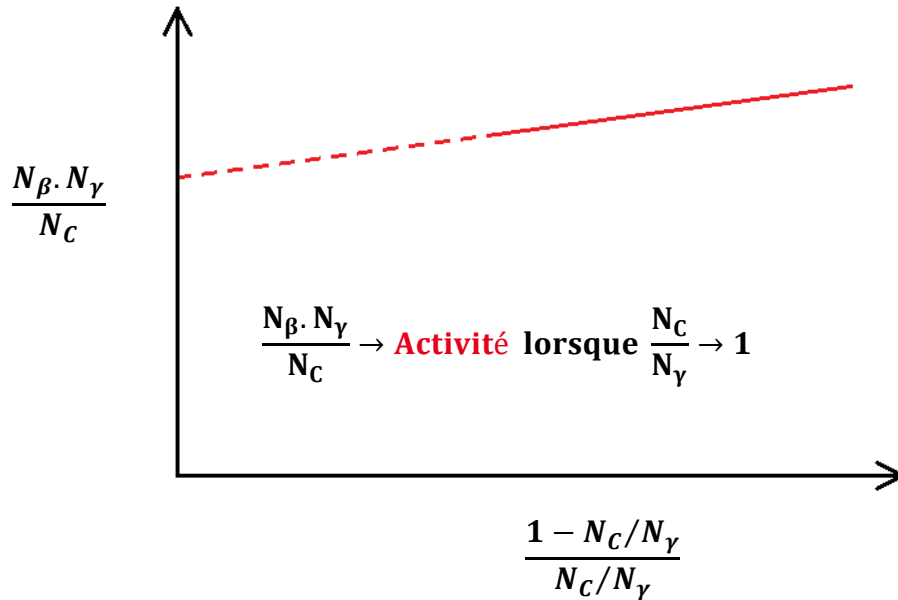
$$N_\beta = N_0 \cdot \left[\varepsilon_\beta + (1 - \varepsilon_\beta) \cdot \frac{\alpha_T \cdot \varepsilon_{CI} + \varepsilon_{\beta\gamma}}{1 + \alpha_T} \right]$$

$$N_c = N_0 \cdot \left[\frac{\varepsilon_\beta \cdot \varepsilon_\gamma}{1 + \alpha_T} + (1 - \varepsilon_\beta) \cdot \varepsilon_c \right]$$

$$N_\gamma = N_0 \cdot \left[\frac{\varepsilon_\gamma}{1 + \alpha_T} \right]$$

$$N_\beta = N_0 \cdot \left[1 - \left(1 - \frac{N_c}{N_\gamma} \right) \cdot K \right] = N_0 \cdot F \left(1 - \frac{N_c}{N_\gamma} \right)$$

→ Application de la technique d'extrapolation



2. Cas réel

→ prise en compte de la sensibilité de la voie β aux émissions de la transition γ

$$N_\beta = N_0 \cdot \left[\varepsilon_\beta + (1 - \varepsilon_\beta) \cdot \frac{\alpha_T \cdot \varepsilon_{CI} + \varepsilon_{\beta\gamma}}{1 + \alpha_T} \right]$$

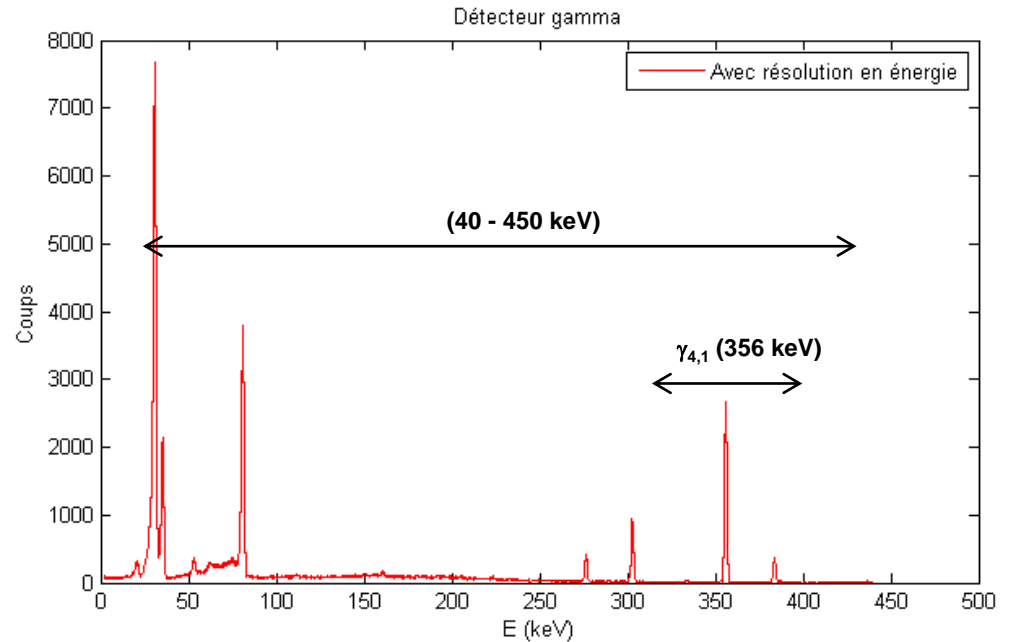
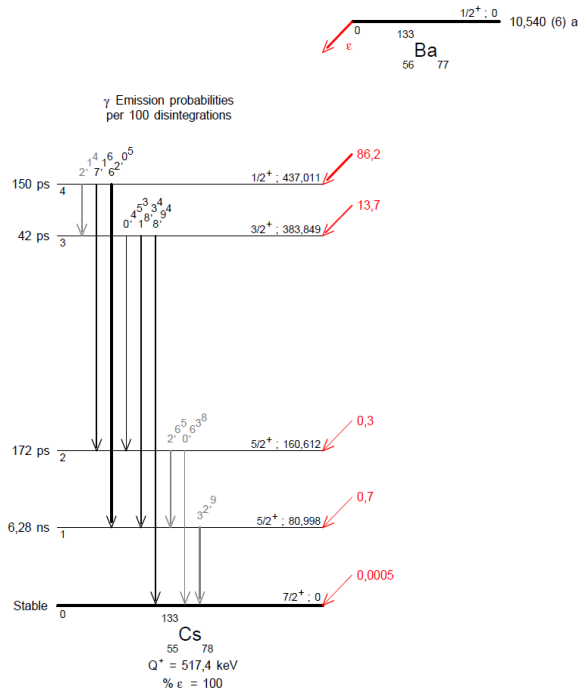
$$N_C = N_0 \cdot \left[\frac{\varepsilon_\beta \cdot \varepsilon_\gamma}{1 + \alpha_T} + (1 - \varepsilon_\beta) \cdot \varepsilon_C \right]$$

$$N_\gamma = N_0 \cdot \left[\frac{\varepsilon_\gamma}{1 + \alpha_T} \right]$$

$$N_\beta = N_0 \cdot \left[1 - \left(1 - \frac{N_C}{N_\gamma} \right) \cdot K \right] = N_0 \cdot F \left(1 - \frac{N_C}{N_\gamma} \right)$$

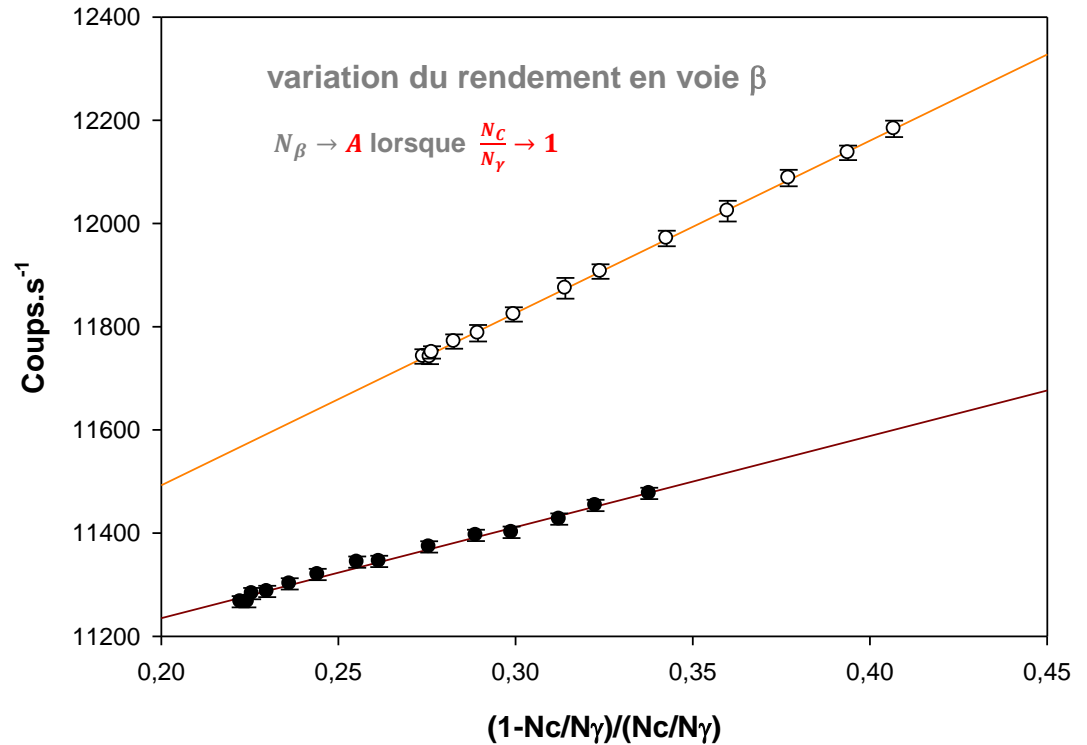
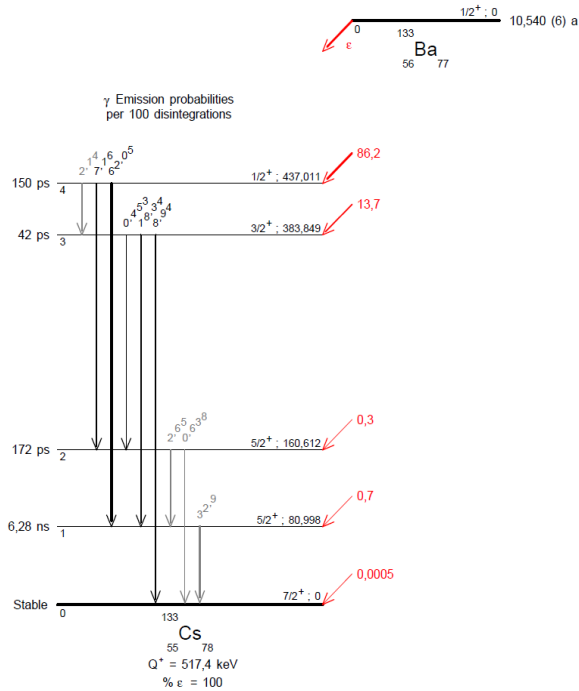
→ Exemple de mesure : ^{133}Ba

- association compteur RCTD (voie β) , détecteur HPGe (voie γ)
- voie β sensible aux émissions de la transition γ



→ Exemple de mesure : ^{133}Ba

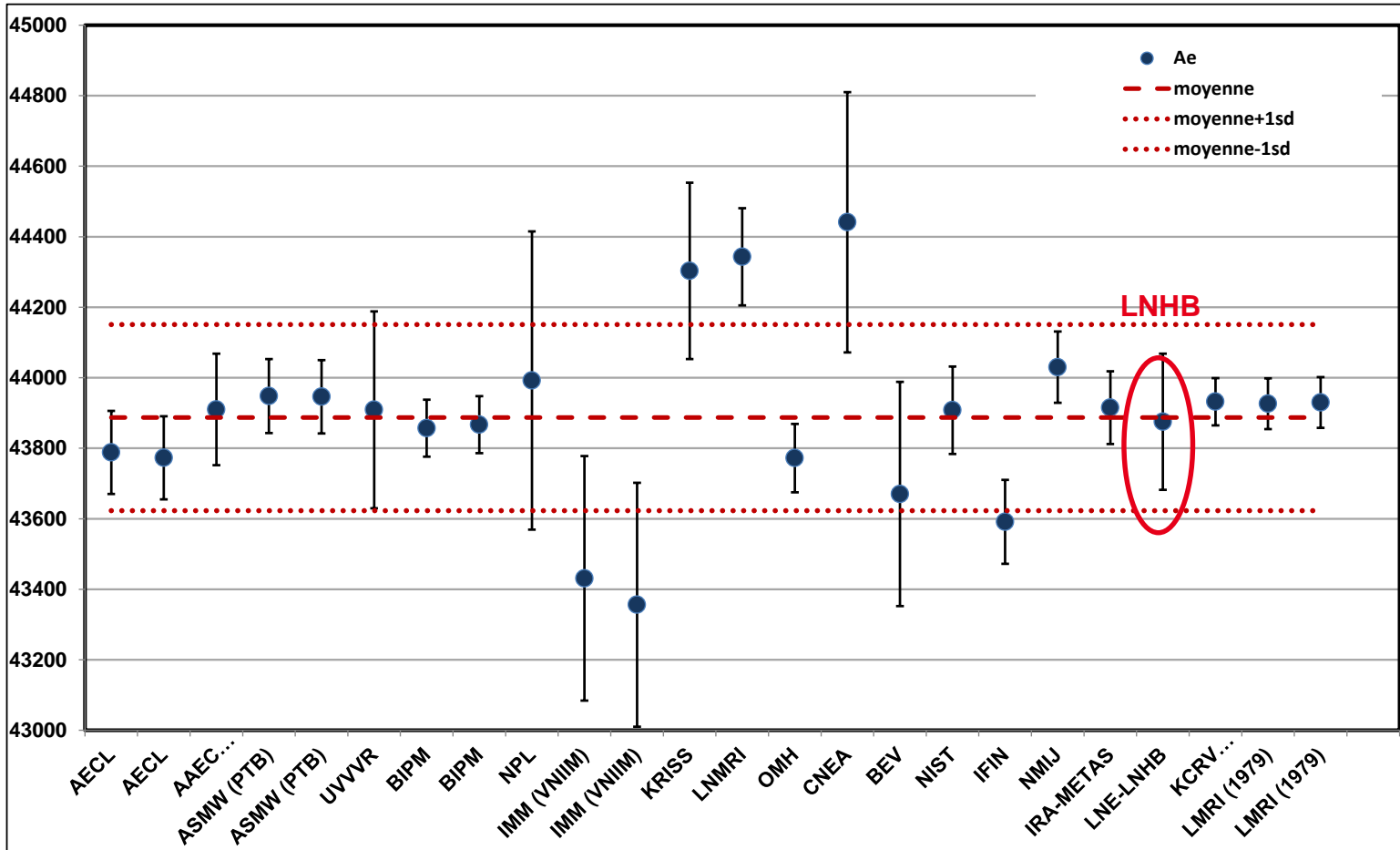
- association compteur RCTD (voie β) , détecteur HPGe (voie γ)
- voie β sensible aux émissions de la transition γ



→ Exemple de mesure : ^{133}Ba

- participation au Système International de Référence (SIR), BIPM

^{133}Ba : comparaison internationale SIR-2011



Application aux rayonnements peu diffusés (α ou X) émis par des sources solides

Angle solide de détection doit être faible ($\approx 1\%$) afin de détecter uniquement le rayonnement normal à la source

Pour une source ponctuelle et un collimateur circulaire

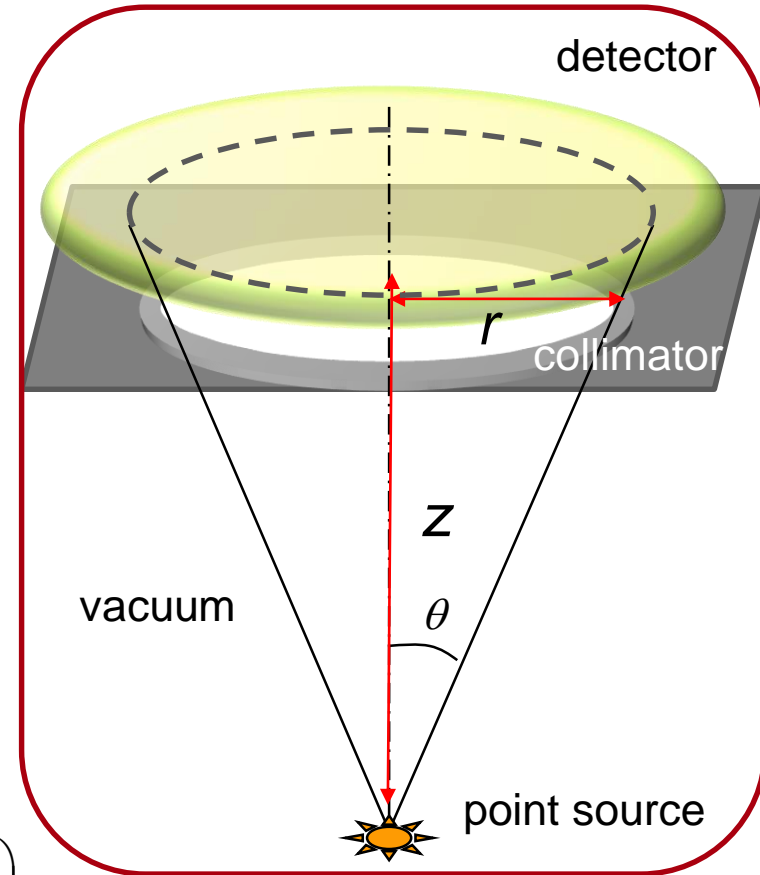
$$A = N / G$$

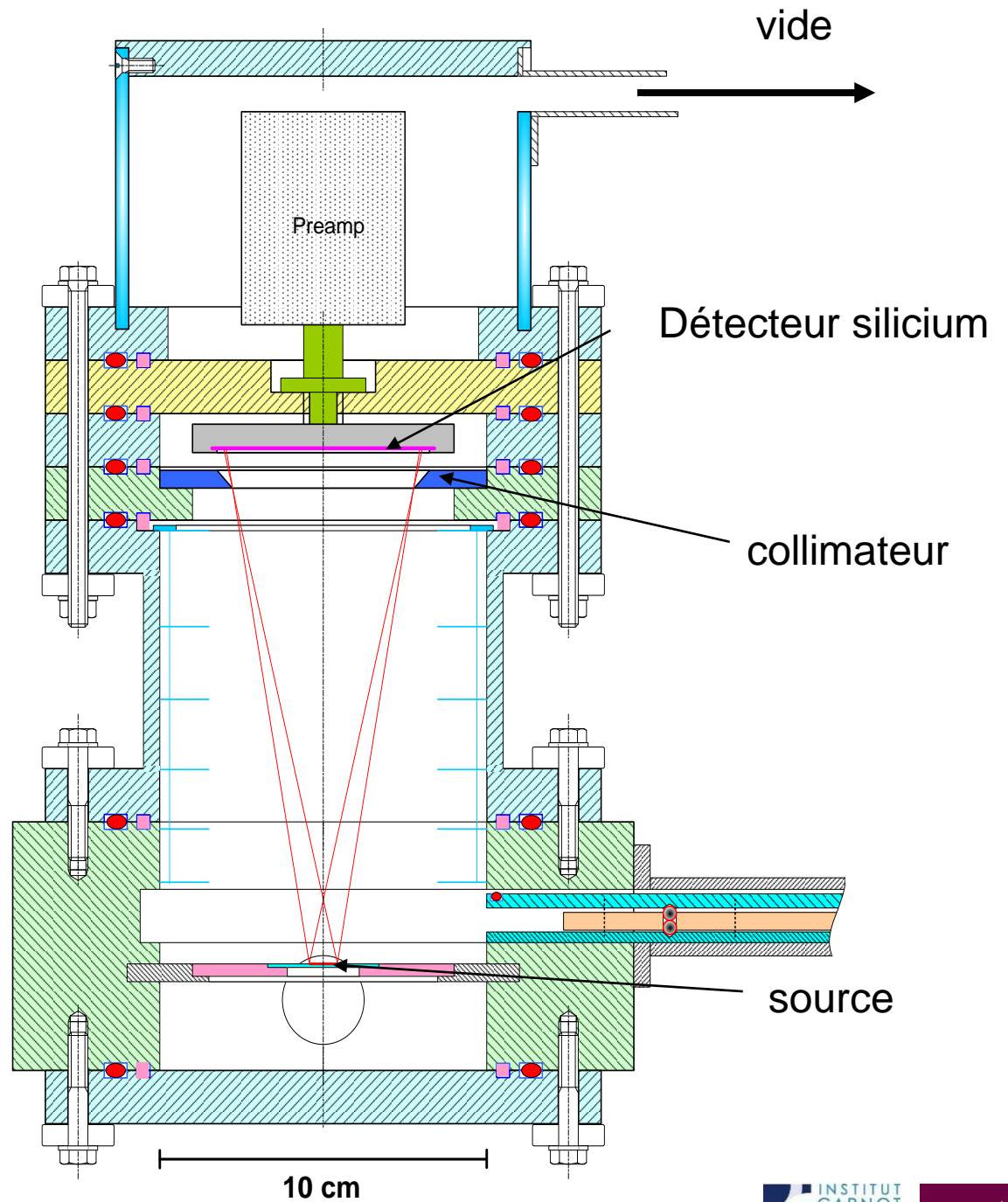
avec

N , nombre de coups corrigé

G , angle solide de détection

$$G = \frac{1}{2} \left(1 - \frac{z}{\sqrt{z^2 + r^2}} \right)$$

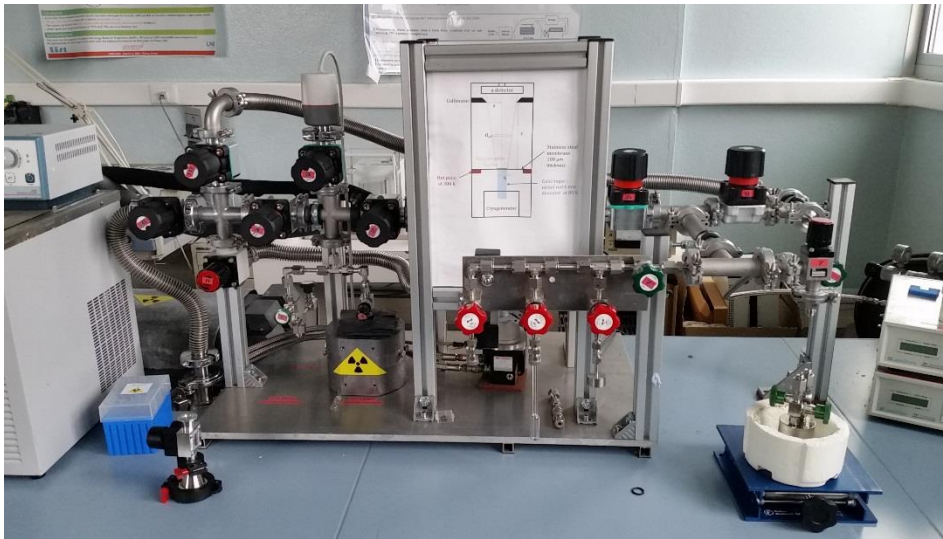




Corrections à appliquer :

- Position de la source
- Largeur de la source
- Auto-absorption dans la source
- Interaction possible des particules dans le collimateur
- Temps mort
- Décroissance
- Bruit de fond
- Impuretés radioactives

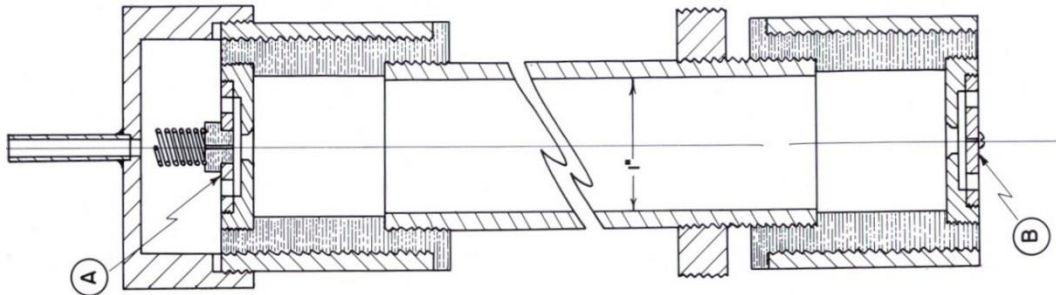
- Mesure de source alpha
- Radon-222 mesure par point froid



Application aux radionucléides gazeux émetteurs beta et électrons (tritium, krypton-85, xenon-127, xenon-131, xenon-133)

- Compteurs proportionnels internes cylindriques (3), strictement identiques à part leur longueur
- Définition d'un compteur « parfait » virtuel obtenu par soustraction 2 à 2 des compteurs avec des volumes effectifs parfaitement définis

➔ Elimination des effets de bord (inhomogénéité du champ électrique aux extrémités du compteur)



NIST counter



- Gaz radioactive mélangé avec gaz de détection (methane, argon-methane, propane)
- Volumes parfaitement connus
- Quantités de gaz parfaitement connues (température et pression mesurées)

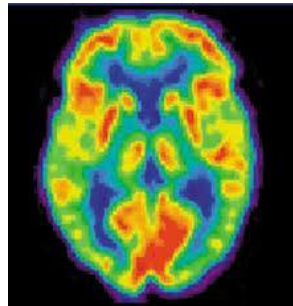
Corrections pour :

- Effet de bord (calcul, extrapolation)
- Temps mort
- Décroissance
- Bruit de fond
- Impuretés radioactives



→ Radiopharmaceutiques : ^{99m}Tc , ^{18}F , ^{11}C , ^{111}In ...

- médecine nucléaire : diagnostics par scintigraphie et imagerie TEP, traitements
- mesure d'activité injectée aux patients par un activimètre (chambre d'ionisation à électromètre)



→ Étalonnage des activimètres nécessaire, pour chaque radiopharmaceutique, chaque conditionnement et volume



→ Radiopharmaceutiques : ^{99m}Tc , ^{18}F , ^{11}C , ^{111}In ...

- médecine nucléaire : diagnostics par scintigraphie et imagerie TEP, traitements
- mesure d'activité injectée aux patients par un activimètre (chambre d'ionisation à électromètre)

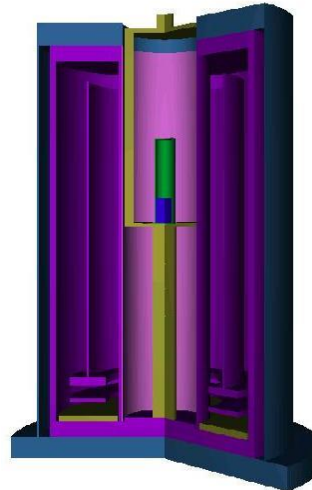
Méthode primaire LNHB



Niveau d'activité : ~ kBq

Incertitude: 0,2 - 1 %

Méthode de transfert LNHB : chambre d'ionisation à puits



Niveau d'activité : ~ MBq

Incertitude : 0,7 - 1,5 %

Instrument des hôpitaux : activimètre



Niveau d'activité : ~ 10 MBq – GBq

Incertitude: 1,5 - 3 %

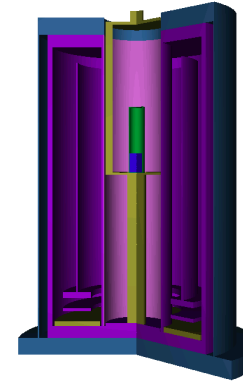
- Méthodes primaires mesures : **principalement basées sur le comptage de transitions nucléaires** grâce à la détection des rayonnements émis
- Différentes combinaisons des types de désintégrations et énergies constituent un défi majeur dans la réalisation des mesures : radionucléide présentant un état métastable
- **Redondance des méthodes**: utile et souvent indispensable pour explorer les forces et les faiblesses des approches
 - meilleure confiance dans l'exactitude et la précision d'une valeur
- **R & D pour maintenir et améliorer les méthodes existantes**, développer de nouvelles techniques
 - radiopharmaceutiques (périodes courtes)
 - mesures précises des radionucléides émettant de faible énergies (restent difficiles)
- **Nouveaux outils** : simulations Monte Carlo, traitement numérique du signal, détecteurs cryogéniques

Metrologia vol. 44(4) August 2007 / Special Issue: Radionuclide Metrology

Méthodes secondaires

Chambre d'ionisation à puits :

- Mesure d'activité de sources volumiques



Spectrométrie de photons :

- Mesure des impuretés dans les solutions radioactives
- Mesures indirectes d'activité
- Détermination des intensités d'émission photoniques



Exemple de détecteur germanium hyper pur



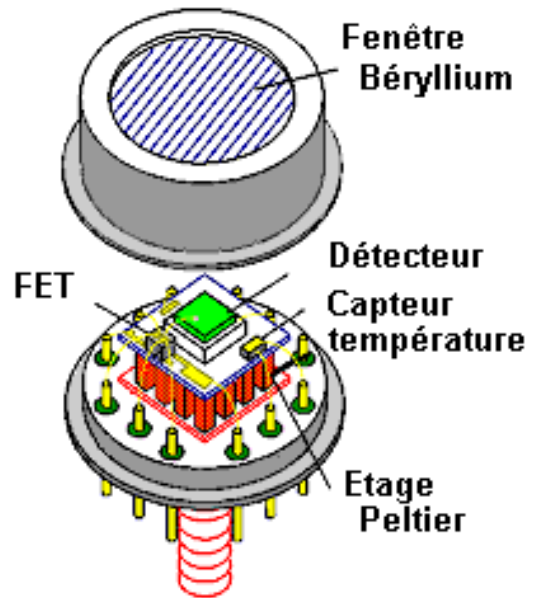
Pb

Cu

Détecteur

Dewar à
Azote liquide
(77 K)

Exemple de détecteur miniature (Si ou CdTe)




Exemple de traçabilité dans le cas des rayonnements ionisants



Étalon « primaire »

=

Instrument de mesure
+
méthodes associées




Étalon « de transfert »

=

Source de rayonnement
caractérisée



Instruments de mesure
étalons secondaires



Sources étalons
secondaires

en dosimétrie :

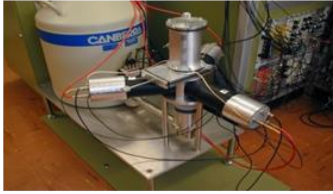
- dose absorbée
- kerma
- (unité : gray)
- équivalent de dose
- (unité : sievert)

en radioactivité :

- activité
- (unité : becquerel)
- flux d'émission
- (unité : s^{-1})

Méthode primaire

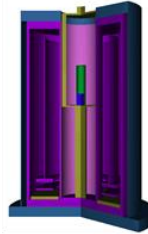
Coincidences



$A = (1-100 \text{ kBq})$
 $u = 0,5\% (k=1)$

Méthode secondaire

Chambres d'ionisation



$A = (50-100 \text{ MBq})$
 $u = 1\% (k=1)$

Transfert aux utilisateurs

Activimètres



$A = (50-100 \text{ MBq})$
 $u = 2-3\% (k=1)$

Certificat
d'étalonnage



BIPM, F-92310 SEVRES

Sheet no. 2

International Reference System for the Activity Measurement of Gamma-Ray Emitting Nuclides (SIR)

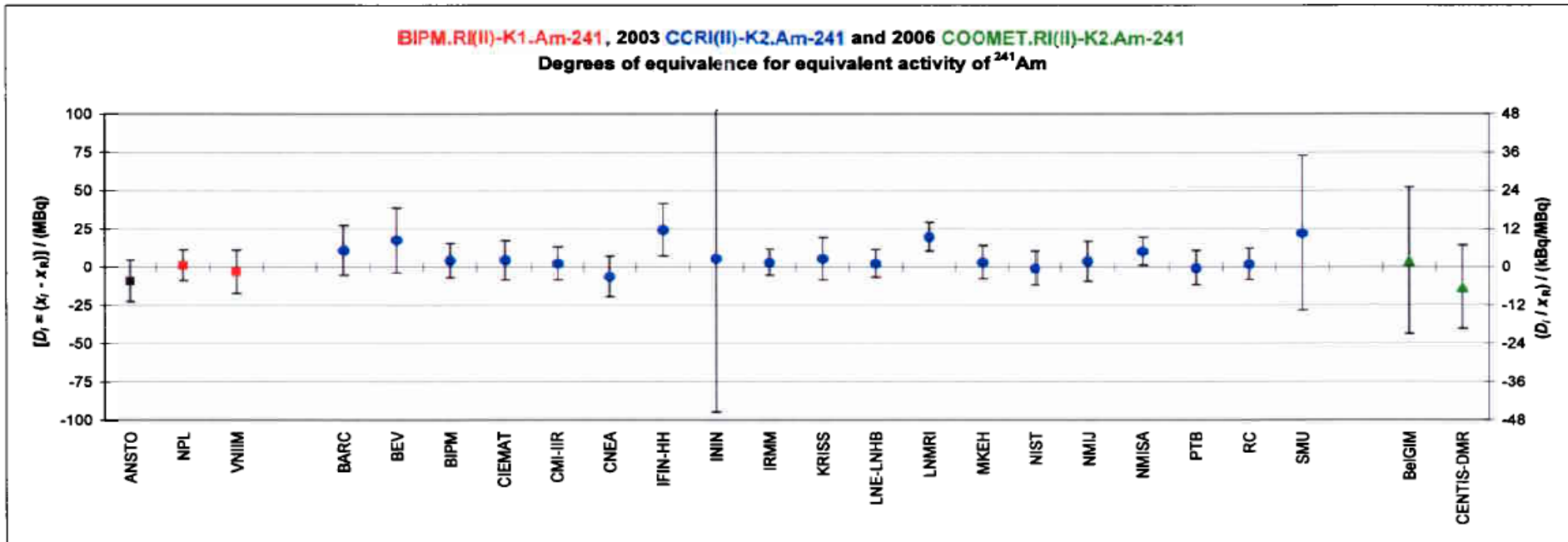
Radionuclide: ^{67}Ga

Total number of withdrawn results:

Half life adopted: $T_{1/2} = (78.26 \pm 0.07) \text{ h}$

Laboratory	Ampoule number	Method of standardization	Reference date	Data reported by laboratory			Ionization-chamber measurements carried out at BIPM			
				Activity at ref. date (kBq)	Rel. uncert. Category A B ($r_1, \%$) ($r_2, \%$)		Date	Relative uncertainty ($r_3, \%$)	Activity A_e which would produce the same ion current as the Ra source A_e (kBq)	Combined uncert. of A_e $A_e(r_1^2 + r_2^2 + r_3^2)^{1/2}$ (kBq)
NMIJ/AIST	Ga67/AIST0201	4π ioniz. chamber, calibrated with AIST st. antioinc. counting	2002-05-15	36 646	0.06	0.36	2002-05-17	0.093	115 191	434
CIEMAT	BIPM 301	$4\pi(\text{PPC})\beta\text{-}\gamma$ coincidence	2003-03-12	7916	0.70	0.52	2003-03-19	0.188	117 937	1052
LNE/LNHB	Tb/10/051	$4\pi(\text{LS})_{x,e_A}$ -NaI(Tl)- γ antioinc. counting	2005-10-18	3269	0.25	0.076	2005-10-20	0.116	113 948	326
	Tb/10/052	4P-LS-MX-NA-GR-AC	2005-10-18	3253	0.25	0.076	2005-10-20	0.115	113 688	325

Figure 1. Graph of degrees of equivalence with the KCRV for ²⁴¹Am (as it appears in Appendix B of the MRA)



N.B. The right hand scale is indicative only.

Table 5. Table of degrees of equivalence and introductory text for $^{110}\text{Ag}^m$

Key comparison BIPM.RI(II)-K1.Ag-110m

MEASURAND : Equivalent activity of $^{110}\text{Ag}^m$

Key comparison reference value: the SIR reference value for this radionuclide x_R is 5.984 MBq, with a standard uncertainty u_R of 0.008 MBq.

x_R is computed from the mean of the participant results not including the IFIN result.

The degree of equivalence of each laboratory with respect to the reference value is given by a pair of terms:

$D_i = (x_i - x_R)$ and U_i , its expanded uncertainty ($k = 2$), both expressed in MBq, with n the number of laboratories, $U_i = 2[(1 - 2/n)u_i^2 + (1/n^2)\sum u_j^2]^{1/2}$ when each laboratory has contributed to the computation of x_R .

The degree of equivalence between two laboratories is given by a pair of terms:

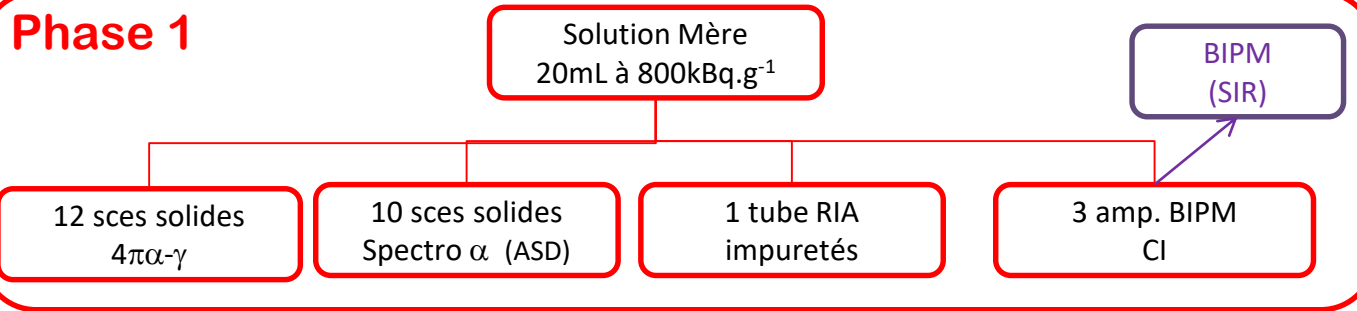
$D_{ij} = D_i - D_j = (x_i - x_j)$ and U_{ij} , its expanded uncertainty ($k = 2$), both expressed in MBq.

The approximation $U_{ij} \sim 2(u_i^2 + u_j^2)^{1/2}$ is used in the following table.

Lab <i>i</i>			Lab <i>j</i> →									
	D_i / MBq	U_i / MBq	IFIN		NIST		NPL		OMH		BNM-LNHB	
			D_{ij} / MBq	U_{ij} / MBq	D_{ij} / MBq	U_{ij} / MBq	D_{ij} / MBq	U_{ij} / MBq	D_{ij} / MBq	U_{ij} / MBq	D_{ij} / MBq	U_{ij} / MBq
IFIN	0.40	0.12			0.41	0.15	0.37	0.17	0.41	0.15	0.39	0.14
NIST	-0.01	0.05	-0.41	0.15			-0.03	0.11	0.00	0.06	-0.01	0.05
NPL	0.02	0.08	-0.37	0.17	0.03	0.11			0.03	0.10	0.02	0.10
OMH	-0.01	0.04	-0.41	0.15	0.00	0.06	-0.03	0.10			-0.01	0.04
BNM-LNHB	0.00	0.04	-0.39	0.14	0.01	0.05	-0.02	0.10	0.01	0.04		

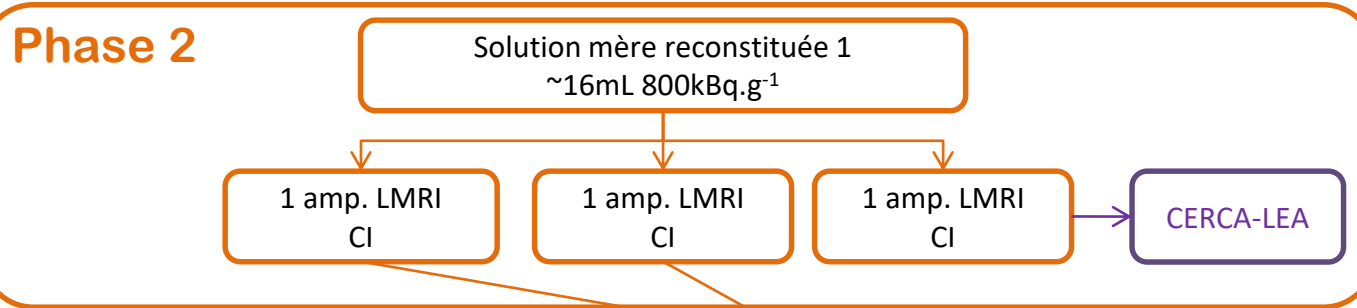
Exemple de raccordement ^{241}Am

Phase 1



Date démarrage :
09/03/2011

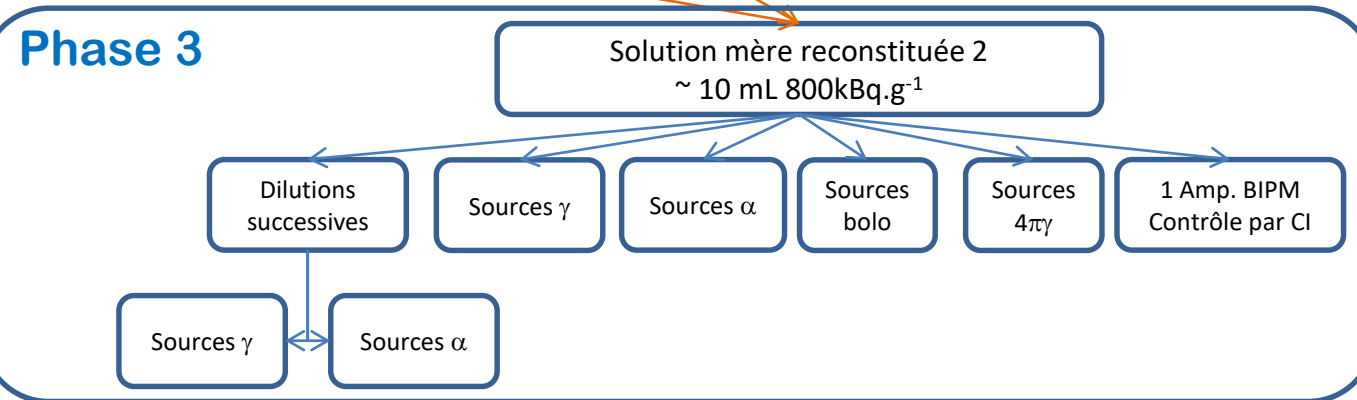
Phase 2



Date envoi au SIR :
10/05/2011

Date soumission :
07/06/2011

Phase 3



Date retour BIPM :
11/01/2012

Date clôture :
19/01/2012

Exemple de raccordement ^{241}Am

Phase 1 : mesures primaires et raccordement au système international

Solution Mère
20mL à 800kBq.g^{-1}

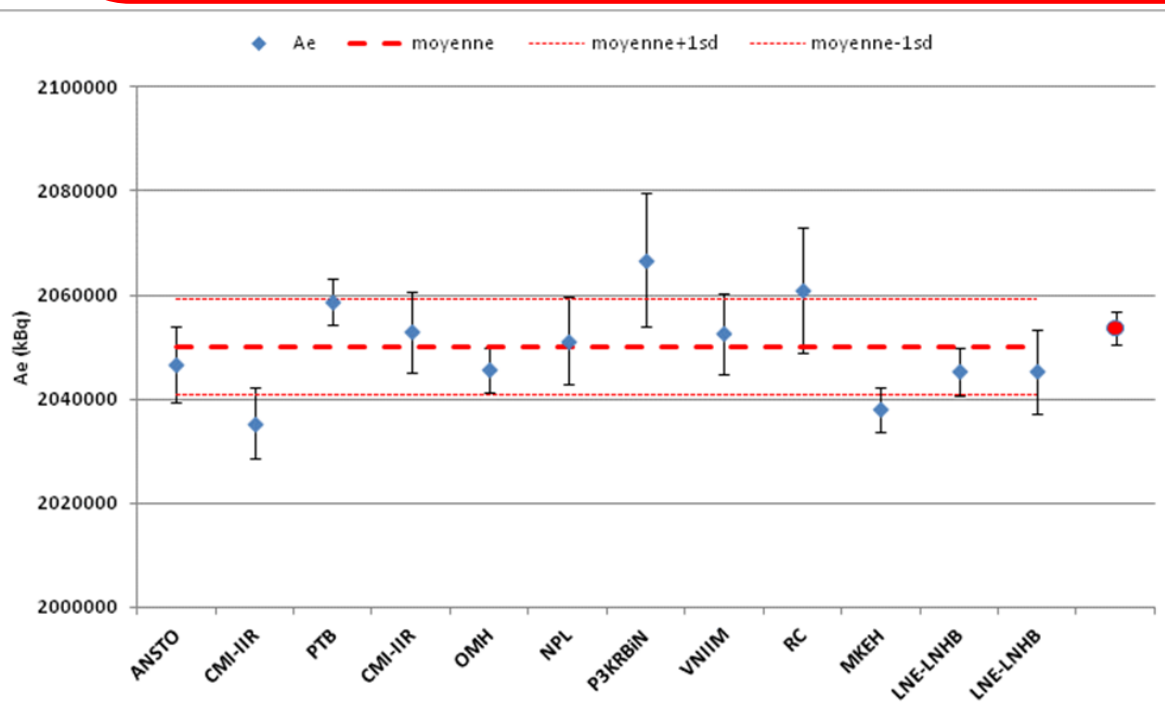
12 sces solides
 $4\pi\alpha\text{-}\gamma$
0,3%

10 sces solides
Spectro α (ASD)
1%

1 tube RIA
impuretés

3 amp. BIPM
CI pour
homogénéité

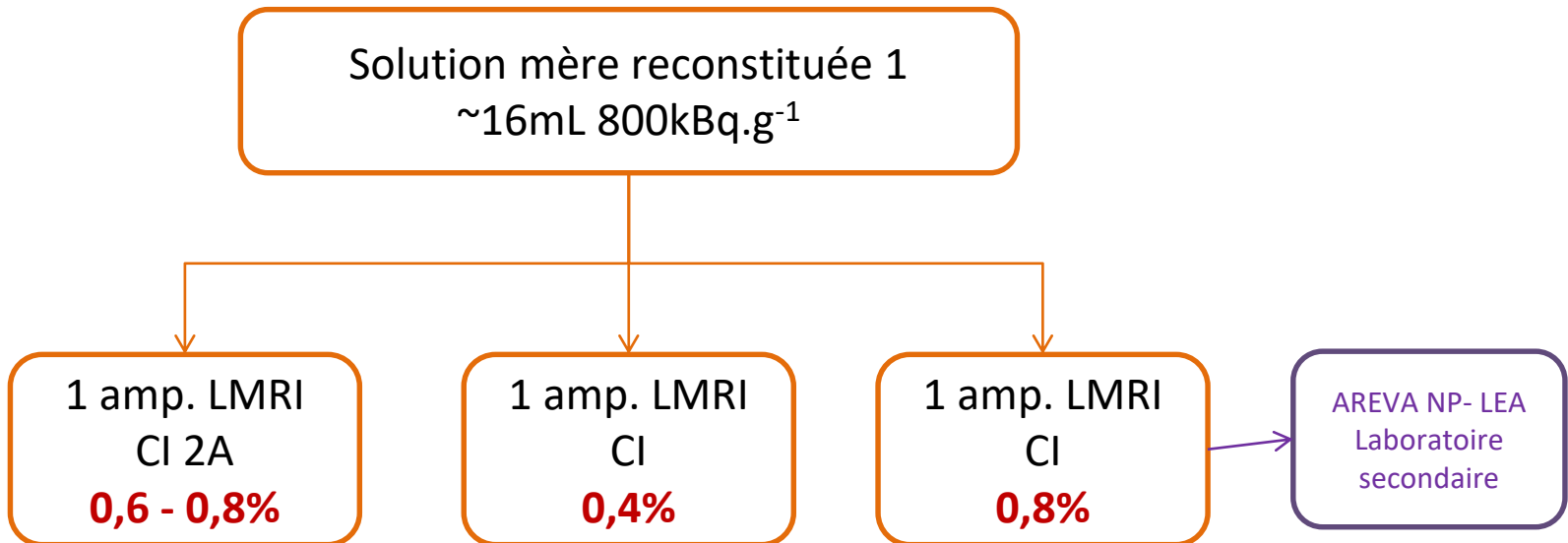
Soumission
SIR
BIPM



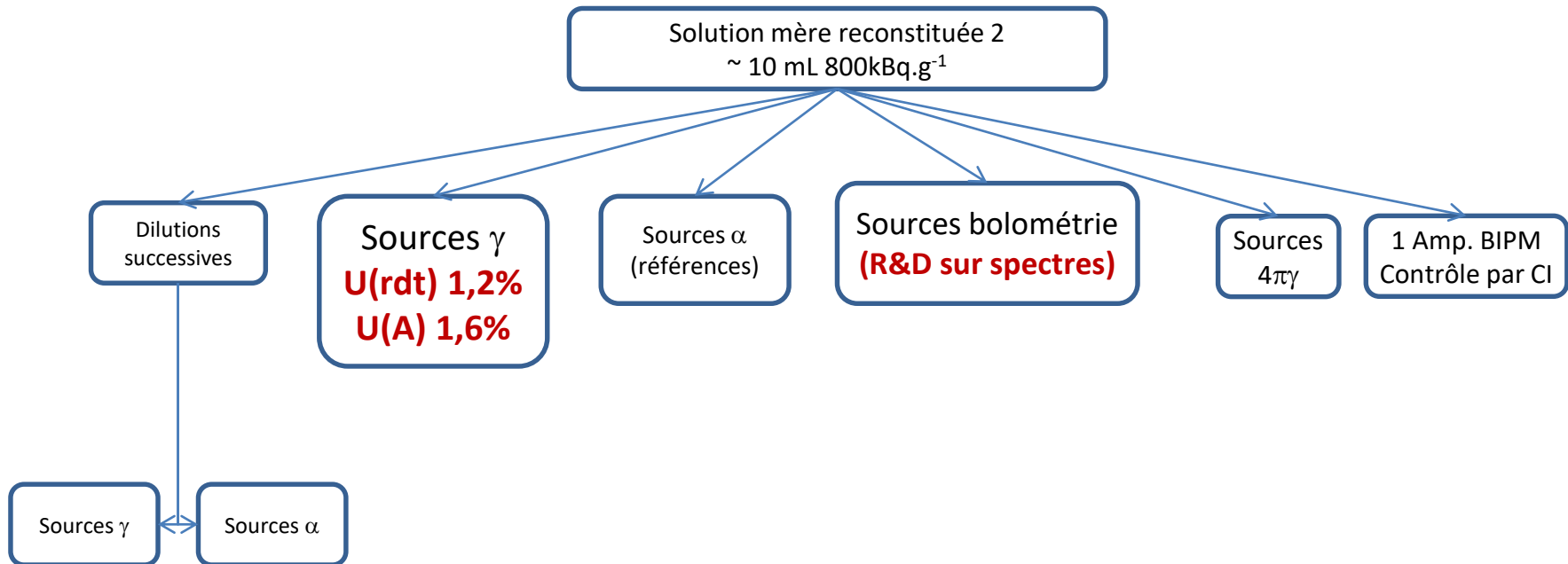
KCRV actuelle : 2007

Calcul de la nouvelle KCRV
Validation de la KCRV (CCRI)

Phase 2 : raccordement interne des chambres d'ionisation et fourniture d'une solution étalonée à CERCA-LEA



Phase 3 : raccordements internes des méthodes de mesures secondaires du laboratoire et contrôle de stabilité



Prestations : exemple de raccordements externes pour des utilisateurs

Méthode	Type	Incertitude (% k=2)	Grandeur
SL + spec α	Solution	0,8	70 Bq/g
CO + spec α	Electrodépôt	0,5	2800 Bq
Spectro γ, X	Electrodépôt	2,2 1,6	1400 s ⁻¹ 3600 Bq
Spectro γ, X	Electrodépôt	1,0	40 kBq

✿ Résultats :

- ✿ Raccordement du LNHB au système international CMCs (pour 2 méthodes primaires)
- ✿ Raccordements internes des méthodes du LNHB (amélioration de la connaissance des incertitudes et des courbes d'efficacité pour la spectro gamma)
- ✿ Fabrication d'une solution étalonnée par une méthode primaire pour un laboratoire secondaire
- ✿ Fabrication d'étalons de référence internes de haute qualité métrologique

✿ Perspectives :

Possibilité de raccorder les utilisateurs nationaux dans le respect des règles de traçabilité

! Exercice à recommencer dans 10 ans

! Vrai pour tous les radionucléides

Tests interlaboratoires

Les tests interlaboratoires du LNHB

- Transfert des références aux utilisateurs / dissémination du Bq
- Depuis plus de 40 ans, plus de 200 tests

Préparation des échantillons

- Choix du milieu / stabilité
- Précautions de préparation

Valeurs de référence

- Traçabilité
- Homogénéité / stabilité

Traitement des résultats

- Critères statistiques
- Classement des résultats

- ^3H , émetteurs β , avec ou sans interférent (une année sur deux)
- Mélanges multigamma à différents niveaux (tous les ans)



■ Année n-1 :

- Novembre : sondage
- Décembre : édition programme des tests & diffusion

■ Déroulement d'un test :



- Inscriptions
- Fabrication de N **échantillons homogènes**
- Détermination des **valeurs de référence par le LNHB**
- – 2/3 semaines : Préavis d'expédition
- **Expédition** (numéros de code)
- **Mesures** dans les laboratoires (**mesure de suivi** au LNHB)
- Envoi des **résultats** au LNHB
- **Traitement des résultats**
- Dernière **mesure de suivi** au LNHB
- Envoi d'un **rapport de synthèse** et d'une **attestation** de participation
- Communication pour **conseils** aux laboratoires

Préparation des échantillons (1/2)

Choix du milieu chimique / stabilité

- Exemple : 1 kBq/g de ^{137}Cs dans HCl 0,1 mol/L, dans un SG15 :
 - Pour les physiciens..... $2,0 \cdot 10^{13}$ atomes de ^{137}Cs
 - Pour les chimistes..... $2,2 \cdot 10^{-9}$ mole/L de ^{137}Cs
 - ~ 4 atomes d'intérêt.....200 000 000 molécules de solvant

Nb atomes	6	6×10^{15}	6×10^{18}	6×10^{20}	6×10^{23}
[Atomes] en mol/L	10^{-23}	10^{-8}	10^{-5}	10^{-3}	1
Echelle	« indicateurs »		μ-traces	Traces	Chimie « classique »

55 <u>Cs</u> 132.9	56 <u>Ba</u> 137. 3	57 <u>La</u> 138. 9
--------------------------	------------------------------	------------------------------

Cas du ^{137}Cs

62 <u>Sm</u> 150.4	63 <u>Eu</u> 152.0	64 <u>Gd</u> 157.3
94 <u>Pu</u> (242)	95 <u>Am</u> (243)	96 <u>Cm</u> (247)

Cas du ^{241}Am

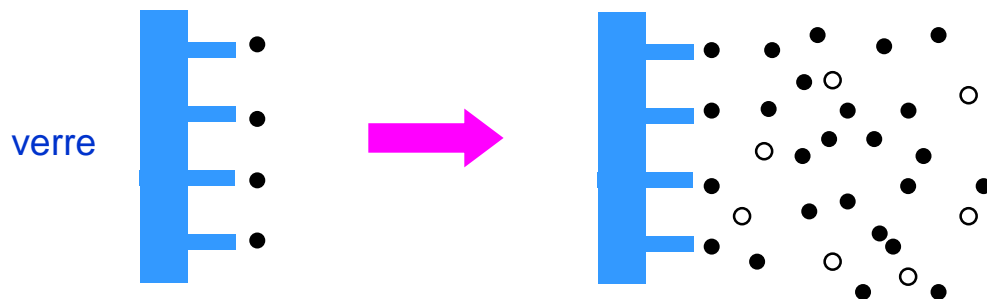
- [entraîneur] entre 10^{-4} et 10^{-5} mol/L (excès)

- Ex : 1 kBq/g de ^{137}Cs , dans CsCl à 10 μg/g en Cs
 - 1 atome de ^{137}Cs pour 33 000 atomes de Cs stable

Préparation des échantillons (2/2)

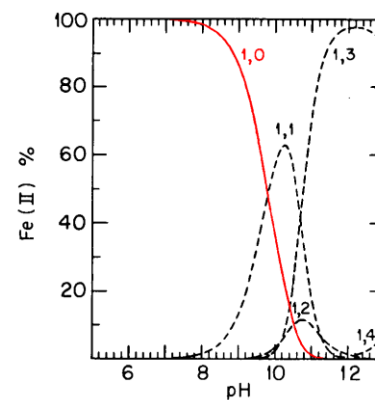
Traitement de la verrerie / Milieu de dilution

- Traitement :
 - radionucléide
 - entraîneur



- Pour la stabilité de nombreux RN :

- Travail en milieu acide, $\text{pH} < 1$ (éviter hydrolyse)
- Ajout d'un complexant (Zr^{IV})
- Ajout d'un réducteur (I)

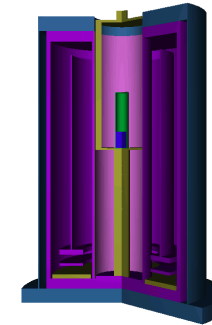


- Ex: Multigamma SG500, 20 participants
- RN : 7 mesures en CI
7 mesures en spectrométrie γ



- 30 échantillons préparés
- 150 opérations de pesée
- Plusieurs semaines de mesure

Solutions mères
(monoélémentaires)



0,5 % - 1,5 %

Mélange + dilution
Conditionnement en
flacons



0,001 % (RN)

Valeurs de référence
« mesurées »

< 2,5 %

Valeurs de référence
« calculées » pour
vérifier compatibilité

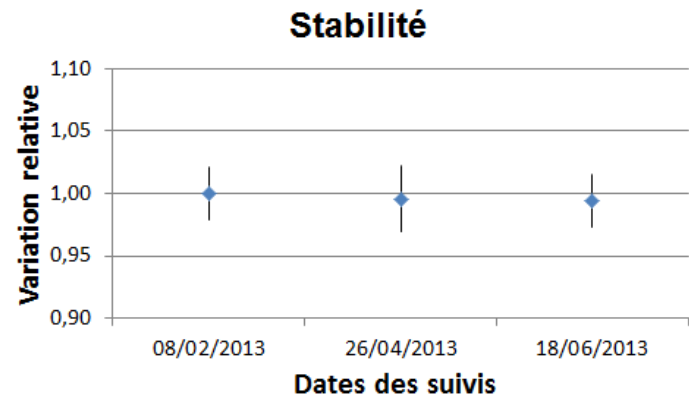
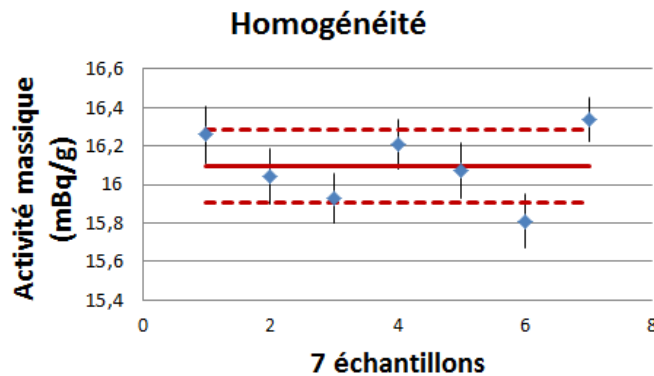
0,5 % - 1,5 %



< 2,5 % (k=1)

■ Homogénéité :

- Mesure d'*a minima* \sqrt{N} échantillons (ex : 7 écht. sur 30)
- Dispersion incluse dans les valeurs de référence (ex : 1,2 % cf. graphe, $u_{k=1}$)



■ Suivi de la stabilité :

- Lot homogène
- Conservation de plusieurs échantillons pour suivi
 - Mesures avant envoi (valeurs de référence)
 - Pendant les mesures des participants
 - Après réception des résultats (ex : ^3H)

Traitement des résultats (1/2)

- Identification des valeurs aberrantes (test de Grubbs, NF ISO 5725-2)
- Traitement des résultats selon les critères des tests réglementaires de l'IRSN :

- Ecart relatif entre A_p et A_r : $|e_p| = \frac{|A_p - A_r|}{A_r}$

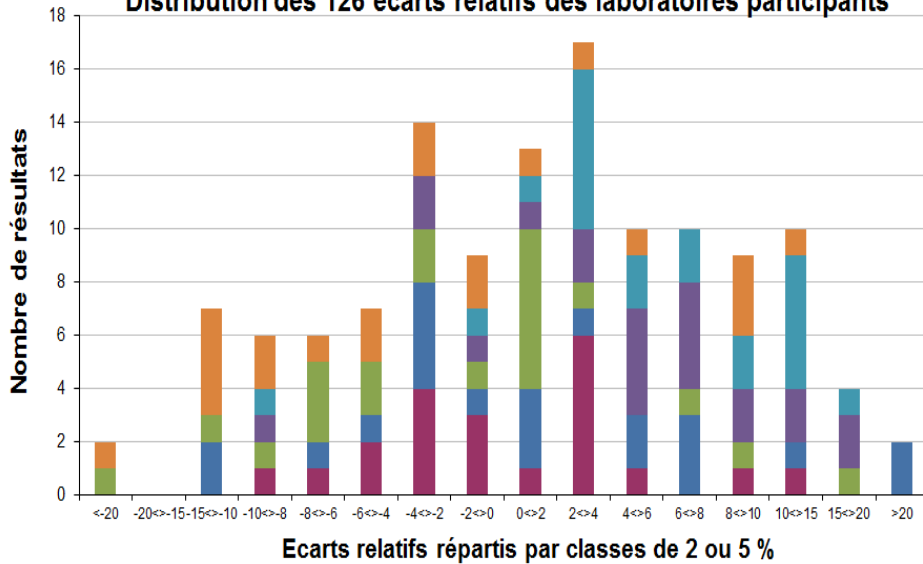
- Ecart normalisé E_n (incertitudes de mesure élargies (k=2)) : $E_n = \frac{|A_p - A_r|}{\sqrt{U_p^2 + U_r^2}}$

- Score z (dont écart-type interlaboratoire σ_{lab}) : (tolérance sur l'écart par rapport à σ_{lab}) $z = \frac{|A_p - A_r|}{\sigma_{lab}}$

- Classification des résultats :

Classification	Satisfaisant	Discutable	Non Satisfaisant
$ e_p $	< 15%	15%-20%	> 20%
E_n	≤ 1	1 - 1,3	$\geq 1,3$
Score z	≤ 2	2 - 3	≥ 3

Distribution des 126 écarts relatifs des laboratoires participants



■ Valeur moyenne de tous les écarts relatifs

■ Valeurs moyennes des écarts relatifs par RN

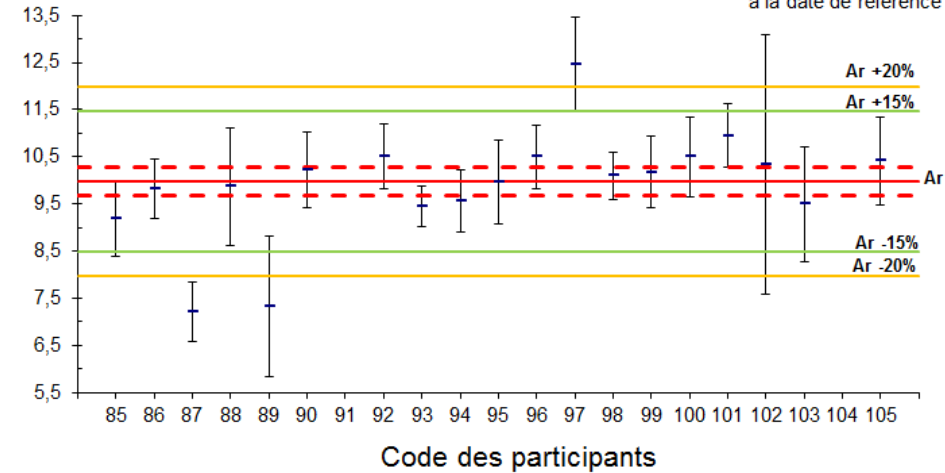
■ Dispersion des écarts par RN

■ Commentaires au cas par cas dans les attestations (y compris bilan des incertitudes)

Activité
massique
(kBq/g)

REPARTITION DES RESULTATS

Valeur de référence :
 $A_r = 9,98 \text{ kBq/g}$
 $U_r = 3,0 \%$
 à la date de référence



Préparation de matrices marquées



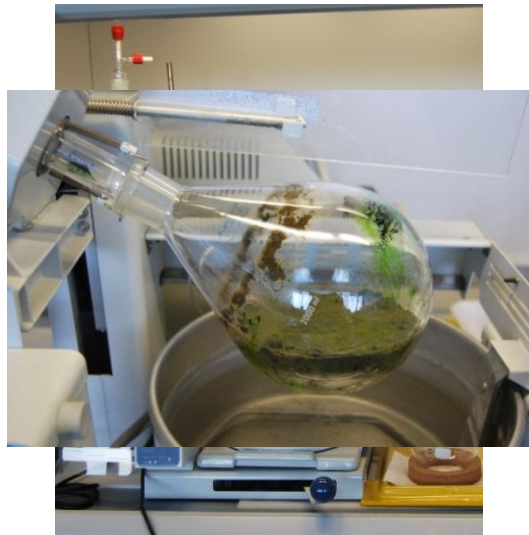
Séchage



Matrice avant tamisage



Tamisage



Marquage



Conditionnement

Conclusions d'un test interlaboratoire

- Bilan des résultats
- Evolution des pratiques
 - Incertitudes
 - Sur-estimation (20 %)

Classification	Satisfaisant	Discutable	Non Satisfaisant
$ e_p $	96 %	2 %	2 %
E_n	76 %	8 %	16 %
Score z	90 %	9 %	1 %

- ❑ Introduction à la métrologie
- ❑ Définitions et traçabilité
- ❑ Organisation de la métrologie
- ❑ Radioactivité (historique, applications, chaînes de mesures et incertitudes,...)
- ❑ Descriptif méthode primaire dans le cas des RI
- ❑ Descriptif méthode secondaire dans le cas des RI
- ❑ Tests interlaboratoires

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