

FR8303463

Alpha-particle spectrometry and low-level measurement.

Harwell (U.K.)
1983, 10-13 May.
CEA-CONF-- 6775

DETERMINATION DU RAPPORT ISOTOPIQUE $^{239}\text{Pu}/^{240}\text{Pu}$

6775

PAR SPECTROMETRIE ALPHA A HAUTE RESOLUTION

F. AMOUDRY * - P. BURGER **

* C.E.A. - BP 511 - 75752 PARIS CEDEX 15 (France)

** ENERTEC - 1, Parc des Tanneries - LINGOLSHEIM (67380) (France)

RESUME

L'amélioration progressive de la résolution des spectres alpha, liée au développement de détecteurs silicium à jonction passivée implantée et à la réalisation de sources très minces, permet de séparer des énergies qui étaient jusqu'alors confondues. Nous avons exploité ces progrès technologiques en déterminant le rapport $^{239}\text{Pu}/^{240}\text{Pu}$ d'un mélange de ces 2 isotopes au moyen de notre code de déconvolution de spectrométrie alpha DEMO.

1. Introduction

La mesure des rapports isotopiques $^{239}\text{Pu}/^{240}\text{Pu}$, $^{241}\text{Am}/^{238}\text{Pu}$, $^{234}\text{U}/^{233}\text{U}$ par spectrométrie alpha nécessite de séparer des énergies dont la différence est de 10 KeV. Les résolutions obtenues jusqu'alors, au mieux de 12 KeV, ne le permettaient pas.

Deux faits nouveaux nous ont incité à traiter ce problème : d'une part les performances de certains semi-conducteurs à jonctions implantées et passivées qui se sont grandement améliorées et permettent d'obtenir avec des sources électro-déposées des résolutions comprises entre 9 et 11 KeV, d'autre part les bons résultats obtenus avec notre nouveau code de déconvolution DEMO qui a été spécialement étudié pour reconstituer des pics relativement confondus.

Après avoir décrit le dispositif de détection, le mode opératoire et le code de déconvolution DEMO, nous déterminons à titre d'exemple la grandeur du rapport $^{239}\text{Pu}/^{240}\text{Pu}$ sur des spectres comportant un mélange de ces isotopes dans des proportions couramment rencontrées.

2. Le détecteur

La nouvelle technique de fabrication des jonctions implantées passivées présente deux avantages particulièrement intéressants : elle permet d'une part d'obtenir des courants inverses très faibles (de l'ordre de $1 \text{ nA/cm}^2/100\mu$ de déplétion) et d'autre part de réduire, par une implantation à basse énergie, la fenêtre d'entrée à une épaisseur de l'ordre de (800 à 1 000) Å. [1]

Cette méthode de fabrication utilise des plaquettes de silicium polies de type N de 2" ou 3" de côté et 280 à 300 μ d'épaisseur. L'orientation du crystal est $\langle 111 \rangle$, sa résistivité est comprise entre 1 et 3 K Ω cm et la durée de vie des porteurs varie de 1 à 3 ms.

Une première étape d'oxydation, effectuée à 1030° sous atmosphère contrôlée d'oxygène et de chlorure d'hydrogène permet de constituer une couche d'oxyde d'environ 2 000 Å. (fig.1)

Après avoir défini la fenêtre d'entrée du détecteur, par l'insolation U V d'une résine à travers un masque, on dope la jonction P par l'implantation d'une dose de 5.10¹⁴ ions/cm² de ¹¹B accélérés à une énergie de 7,5 KeV; un recuit à 600°C sous atmosphère d'azote supprime les défauts créés par l'implantation ionique dans le réseau cristallin. On réalise les deux électrodes d'aluminium par métallisation des deux faces, puis on découpe sur l'une d'elle la fenêtre d'entrée par photogravure, en ne laissant subsister qu'un anneau de garde de collection des charges. La dernière opération consiste à découper ces éléments à la scie diamantée avant de les monter dans des boîtiers standards.(fig.2)

La figure 3 montre que le courant inverse d'un détecteur à jonction implantée de 20 mm² - 300 μ se situe au niveau de 3 n A à la tension de déplétion ; il est environ 100 fois plus faible que celui d'un détecteur à barrière de surface.

3. Le dispositif expérimental

Le dispositif expérimental comprend un semi-conducteur à jonction implantée et passivée, utilisé à température ambiante dans un vide de 10⁻³ torr. La surface de la partie active est de 25 mm², diaphragmé à 20 mm² par le boîtier lui-même, ce qui correspond à un diamètre utile de 4,5 mm. Le support de source en acier inoxydable plaqué or, dont le diamètre est de 30 mm, se trouve situé à une distance de 3 à 6 cm du détecteur. L'électronique associée a été sélectionnée pour ses performances en stabilité et en particulier le préamplificateur a été spécialement étudié en fonction de la capacité et du courant du semi-conducteur. Précisons enfin que l'expérience est installée dans un laboratoire dont la climatisation assure une stabilisation de la température de $\pm 1^\circ\text{C}$.

4. Performances en résolution

Il semble qu'à ce niveau de séparation des pics, le critère de résolution à mi-hauteur ne soit pas suffisant et qu'il faille lui adjoindre un paramètre de mesure d'asymétrie, par exemple la largeur du pic à 1/10 de la hauteur. Nos résultats montrent que cette dernière valeur, qui varie sensiblement avec le dépôt, est au mieux de 20 KeV alors que la résolution à mi-hauteur se situe vers 9,2 KeV pour des constantes de temps de 1 μ s. Notons que seules quelques sources de qualité exceptionnelle nous ont permis d'obtenir ces résultats ; la figure 4 donne en exemple un spectre d'²⁴¹Am ayant ces propriétés.

La résolution des spectres sur lesquels a été effectuée la mesure du ²³⁹Pu et ²⁴⁰Pu est de l'ordre de 11 KeV ; les dépôts ont été préparés par électrodéposition en milieu chlorhydrique 4 N à partir de solutions de grande pureté chimique [2]. La figure 5 montre à titre d'exemple la superposition des deux spectres purs du ²³⁹Pu et ²⁴⁰Pu et d'un troisième représentant le mélange de ces deux isotopes en quantités égales.

5. Le code de calcul

Le code DEMO a été étudié pour déconvoluer les spectres comportant des mélanges d'émetteurs alpha dont les énergies sont trop voisines pour être séparées par des méthodes plus simples [2]. Ce code comporte un sous programme spécialement étudié pour la déconvolution des isotopes ²³⁹Pu et ²⁴⁰Pu.

Le principe du calcul consiste à reconstituer un pic modèle, avec sa traîne, à partir du pic principal appartenant au groupe de plus grande énergie. Ce modèle est ensuite superposé à chaque pic du spectre, soit par homothétie, soit en appliquant le coefficient d'intensité relative convenable du fichier d'énergie (tableau 1). En général seul le pic de plus grande intensité de chaque groupe est ajusté par homothétie.

L'imbrication des différents pics du ²³⁹Pu et ²⁴⁰Pu nécessite une déconvolution itérative centrée sur le pic principal du ²⁴⁰Pu. Ce calcul se termine par une comparaison du spectre obtenu par addition de tous les pics reconstitués et du spectre réel d'origine. Au cas où la similitude de ces deux spectres est mauvaise,

l'expérimentateur ajuste la forme de la traîne jusqu'à ce que les deux spectres soient semblables.

Nous allons décrire sommairement les deux phases du calcul, tout d'abord l'élaboration du pic modèle puis la déconvolution du spectre de ^{239}Pu et ^{240}Pu . Le détail des différentes étapes de ce calcul se trouve dans l'ordinogramme (annexe II).

5.1. Calcul du pic modèle

Le calcul du pic modèle, dans le cas d'un spectre de ^{239}Pu et ^{240}Pu , ne peut se faire en prenant pour référence ces isotopes dont les énergies sont bien trop confondues ; on est amené à introduire sur la source un autre isotope d'énergie supérieure : par exemple ^{238}Pu ou ^{241}Am . Nous avons, pour notre part, utilisé ^{241}Am (descendant du ^{241}Pu) qui est de ce fait présent dans l'une des solutions de plutonium.

Considérons le spectre (fig. 6) sur lequel on a porté le pic modèle calculé à partir du pic le plus intense du groupe ^{241}Am . La traîne de ce pic modèle est composée de quatre parties, l'une est le spectre lui-même et les trois autres sont la représentation de fonctions mathématiques. Elles se répartissent de la façon suivante : de N0 à N3 une exponentielle, de N3 à N7 une fonction homographique, dans l'intervalle N7 N9 le spectre réel corrigé de la contribution du flanc de plus grande énergie du pic {2} et enfin de N9 à N11 une fonction gaussienne [4] [5]. L'expression mathématique de ces formes ainsi que les critères de paramétrage, se trouvent dans l'annexe II. Le choix des différentes fonctions est justifié dans l'annexe I.

Les ajustements sont faits exclusivement par la méthode des moindres carrés, qui donne en général des résultats très satisfaisants, en particulier quand les traînes sont définies par peu de coups.

En pratique, après avoir obtenu un premier calcul de ce pic modèle, on reconstitue intégralement l' ^{241}Am en prenant en compte toutes les énergies qui le composent.

On peut déduire de la comparaison de ce spectre reconstitué et du spectre initial la justesse de la construction du pic modèle notamment dans l'intervalle N5 N9. En fonction du résultat obtenu on change la position des paramètres N3 N4 jusqu'à l'obtention d'une parfaite similitude entre les 2 spectres.

5.2. Déconvolution du ^{239}Pu et ^{240}Pu

Le pic modèle bâti sur ^{241}Am étant jugé satisfaisant, on corrige, par soustraction, le groupe $^{239}\text{Pu} + ^{240}\text{Pu}$ de la contribution du groupe ^{241}Am .

La déconvolution du ^{239}Pu et ^{240}Pu se fait en positionnant le pic modèle à l'énergie exacte de chacun des pics du mélange (fig. 6) ce qui nécessite un étalonnage rigoureux et une très bonne connaissance des énergies et intensités d'émission des deux isotopes. Cette opération met également en oeuvre le fichier des énergies (tableau 1) limité actuellement à quelques isotopes.

Le principe de cette déconvolution prend pour référence le pic principal de ^{240}Pu qui, à ce niveau de résolution, se détache assez bien du mélange ; il est cependant très fortement influencé par le ^{239}Pu . Le premier calcul consiste donc à estimer ce dernier isotope au moyen d'une homothétie à l'emplacement du pic principal de ^{239}Pu , ceci compte tenu de la structure fine la plus proche de ce pic. Après avoir soustrait du mélange le ^{239}Pu reconstitué, on obtient une première valeur du ^{240}Pu qui constitue le point de départ d'un nouveau calcul du ^{239}Pu , la suite du calcul consiste à affiner ces estimations par une série d'itérations qui convergent très rapidement.

6. Résultats

Nous avons rassemblé un certain nombre de résultats (tableaux 2 et 3) qui montrent les limites d'utilisation de la méthode ainsi que la précision qu'il est possible d'atteindre en fonction du rapport isotopique mesuré. Il s'agit de mélanges contenant des rapports variables de ^{239}Pu et ^{240}Pu et d'un pic plus ou moins important d' ^{241}Am , nécessaire à la construction du pic modèle. Ces mélanges sont obtenus en combinant, dans des proportions variables, des spectres de ^{239}Pu pur et ($^{240}\text{Pu} + ^{241}\text{Am}$).

Les sources employées pour réaliser ces mélanges synthétiques ont été choisies de telle façon que les deux spectres à composer présentent un même rapport pic / traîne.

Nous avons fréquemment utilisé ce mode de combinaison physique qui, en général, donne satisfaction ; cependant, il nous est apparu intéressant de confirmer nos résultats en déconvoluant également quelques spectres de mélanges réels dont les rapports de référence : $^{239}\text{Pu}/^{240}\text{Pu}$ ont été déterminés par spectrométrie de masse (tableau 3).

On peut remarquer (tableau 2) que malgré les imperfections de la méthode, pour des rapports $^{239}\text{Pu}/^{240}\text{Pu}$ compris entre 0,5 et 2, les écarts par rapport aux valeurs réelles ne dépassent pas 2 %, ceci dans le cas de spectres dont la résolution est de l'ordre de 11 KeV.

Cette précision peut être améliorée en traitant des spectres de meilleure résolution ; ce qui est possible puisque nous avons obtenu par ailleurs 9,5 KeV avec des sources plus minces.

7. Conclusion

La mise au point de détecteurs à jonction implantée et passivée, liée à l'utilisation de sources très minces, permet d'obtenir des résolutions à mi-hauteur de l'ordre de 9,5 KeV mesurées sur le pic principal d' ^{241}Am .

Ce progrès s'étant accompagné d'une amélioration de la performance des codes de déconvolution, il en résulte la possibilité de mesurer des isotopes dont les énergies α étaient trop voisines pour permettre la détermination des rapports isotopiques, c'est en particulier le cas du mélange ^{239}Pu et ^{240}Pu .

Nous avons décrit le code DEMO mis au point spécialement pour séparer des pics très mélangés à la base. Un de ses sousprogrammes, qui s'applique parfaitement au cas du ^{239}Pu et ^{240}Pu , nous a permis d'obtenir des précisions de l'ordre de 2 % sur la mesure de rapports d'activités $^{239}\text{Pu}/^{240}\text{Pu}$ compris entre 0,5 et 2.

- 7 -

Notons enfin que la déconvolution du ^{239}Pu , ^{240}Pu a été présentée à titre d'exemple et qu'il est possible de traiter, suivant la même méthode, tous les cas semblables rencontrés en spectrométrie alpha, en particulier les mélanges d'isotopes : ^{233}U , ^{234}U et ^{237}Np ou ^{238}Pu et ^{241}Am .

B I B L I O G R A P H I E

- [1] J. KEMMER - 1980
Fabrication of low noise silicon radiation detectors by the planar process
NIM 169 (1980) 499-502
- [2] S. GUSMINI - 1980
Séparation des actinides dans une solution renfermant des éléments naturels et des produits de fission
Journal of Radioanalytical chemistry Vol.55 n° 2 (1980) 253-260
- [3] F. AMOUDRY - M. SILLY - 1983
Method for alpha spectrum evaluation adapted to the measurement of plutonium, americium and curium by isotopic dilution
A paraître I J A R I
- [4] J. TANGUY - 1968
Détection des particules alpha par semi-conducteurs. Applications sur contrôle de l'extraction du plutonium
C.E.A. - R - 3442
- [5] F. AMOUDRY - M. SILLY - 1983
S M M A - Code de décomposition du spectre alpha
Rapport technique CEA à paraître

ANNEXE I

Choix de la fonction homographique

Le spectre d'un isotope émettant une raie alpha monoénergétique tel que ^{210}Po montre que les énergies des événements enregistrés ne sont pas centrées sur l'énergie théorique d'émission, mais bien au contraire se répartissent d'une façon continue, non reproductible d'un dépôt à l'autre, jusqu'à l'énergie zéro en constituant une traîne. Ainsi un spectre comportant plusieurs isotopes émetteurs alpha d'énergies différentes apparaîtra comme un mélange de traînes et de pics.

Les figures 7a et 7b montrent un même spectre de ^{210}Po représenté suivant différents axes de coordonnées.

On constate que la bande d'énergie allant de N0 à N5 peut être décomposée en 3 parties, chacune d'elles ayant des propriétés particulières :

N0 N1 est proche d'une exponentielle de la forme $\frac{dN}{dE} = e^{C_1 E + C_2}$ (fig. 7a)

N1 N2 est une fonction homographique de la forme $\frac{dN}{dE} = C_7 + \frac{C_3}{(C_4 + C_5 E)^{C_6}}$

Ce fait expérimental est en accord avec l'évaluation théorique du spectre obtenu au moyen d'une source épaisse [3].

ANNEXE II

Paramétrage des différentes fonctions

Partie de traîne considérée	Forme de la fonction utilisée	Intervalle de paramétrage
N_0 N_3	$\frac{dN}{dE} = e^{C_1 E + C_2}$	N_1 N_2
N_3 N_7	$\frac{dN}{dE} = \frac{C_3}{(C_4 + C_5 E)^{C_6}} + C_7$	N_3 N_4 et N_6 N_8
N_7 N_9	Spectre réel corrigé de la contribution du flanc droit du pic 2	
N_9 N_{11}	$\frac{dN}{dE} = C_8 e^{\left(\frac{E - m}{2\sigma}\right)^2}$	N_9 N_{10}

Choix des paramètres

N_1 N_2 est un intervalle de 100 CX environ situé sur la partie linéaire de la traîne (en semi log) à l'avant du premier groupe de pics. Chaque canal de cet intervalle est partagé proportionnellement au rapport R tel que

$$R = \frac{S_2}{S_1} \quad S_1 = \frac{\sum_{N_5}^{N_1} N_i}{2N_5 - N_{11}} \quad S_2 = K \cdot \frac{\sum_{N_5}^{N_{11}} N_i}{N_5}$$

avec $K = \frac{I_1}{I_1 + I_2 + I_3} = 0,86$ dans le cas de ^{241}Am

K est calculé automatiquement au moyen du tableau 1

I_i étant l'intensité du pic considéré.

$N_6 N_8$ est choisi sur le spectre après avoir déduit du pic (1) le flanc droit du pic (2). Dans ce calcul on prend en compte l'intensité relative du pic (2) par rapport au pic (1).

$N_3 N_4$ se trouve à l'avant du premier groupe de pics ($^{239}\text{Pu} + ^{240}\text{Pu}$), à la cassure du spectre. Cet intervalle peut être translaté au moment de l'ajustement final.

$N_9 N_{10}$ N_9 est le sommet du pic (1) N_{10} est le canal de plus grande énergie du pic (1) marqué bien avant les structures fines d'énergie supérieure afin d'être peu influencé par celles-ci.

ANNEXE III

Ordinogramme

1°) - Construction du pic modèle

- 1 Choix de $N_1, N_2, N_3, N_4, N_9, N_{10}$
- 2 Calcul des surfaces $S_2 = \sum_{N_5}^{N_{11}} N_i$ et $S_1 = \frac{N_5}{2N_5 - N_{11}} \sum_{N_{11}} N_i$
- 3 Calcul du rapport $R = \frac{S_2}{S_1}$
- 4 Reconstitution de la traîne de la forme $\frac{dN}{dE} = e^{(C_1 E + C_2)}$
en tenant compte de R
- 5 Reconstitution de la traîne $\frac{dN}{dE} = C_8 e^{-\left(\frac{E-m}{\sigma}\right)^2}$
1/ pour le flanc droit du pic (1)
2/ pour le flanc gauche du pic (2)
(ce dernier est lu dans le fichier correspondant au tableau 1)
- 6 Pic (1) moins flanc droit du pic (2)
- 7 Définition de l'intervalle N_7, N_8
- 8 Interpolation de la traîne de forme $\frac{dN}{dE} = \frac{C_3}{(C_4 + C_5 E)^n} + C_7$
entre les intervalles N_3, N_4 et N_7, N_8
- 9 Reconstitution du groupe ^{241}Am
- 10 Comparaison Groupe ^{241}Am reconstitué et réel
Jugement de l'opérateur :

Si reconstitution mauvaise	G 0 7
Si reconstitution bonne	G 0 11
- 11 Conservation sur disque du pic modèle.

.. / ..

2°) - à un programme déterminant la M. relative du ^{239}Pu / ^{240}Pu sur le pic modèle.

Soit PM le pic modèle.

- 1 Homothétie de PM sur le canal de 5,157 MeV du spectre réel
- 2 Calcul du pic de 5,145 MeV (fichier des Intensités)
- 3 Spectre réel moins structure fine 5,148 MeV
- 4 Nouvelle homothétie de PM sur canal 5,157 MeV
(on obtient ainsi une première estimation partielle du ^{239}Pu qui sera utilisée pour corriger ^{240}Pu de l'influence des flancs droits des pics d'énergie 5,148 et 5,157 MeV)
- 5 Spectre réel moins première estimation de ^{239}Pu calculée en 4
- 6 Homothétie de PM sur le canal correspondant à 5,162 MeV
- 7 Construction de la première estimation du ^{240}Pu (fichier des Intensités)
- 8 Spectre réel moins première estimation du ^{240}Pu calculée en 7
- 9 Homothétie de PM sur canal correspondant à 5,157 MeV compte tenu de la raie de 5,148 MeV
- 10 Construction de la deuxième estimation du ^{239}Pu
- 11 Edition du premier rapport $^{239}\text{Pu}/^{240}\text{Pu}$
- 12 La deuxième estimation du ^{239}Pu remplace la première en 5
- 13 Edition des nouveaux rapports $^{239}\text{Pu}/^{240}\text{Pu}$

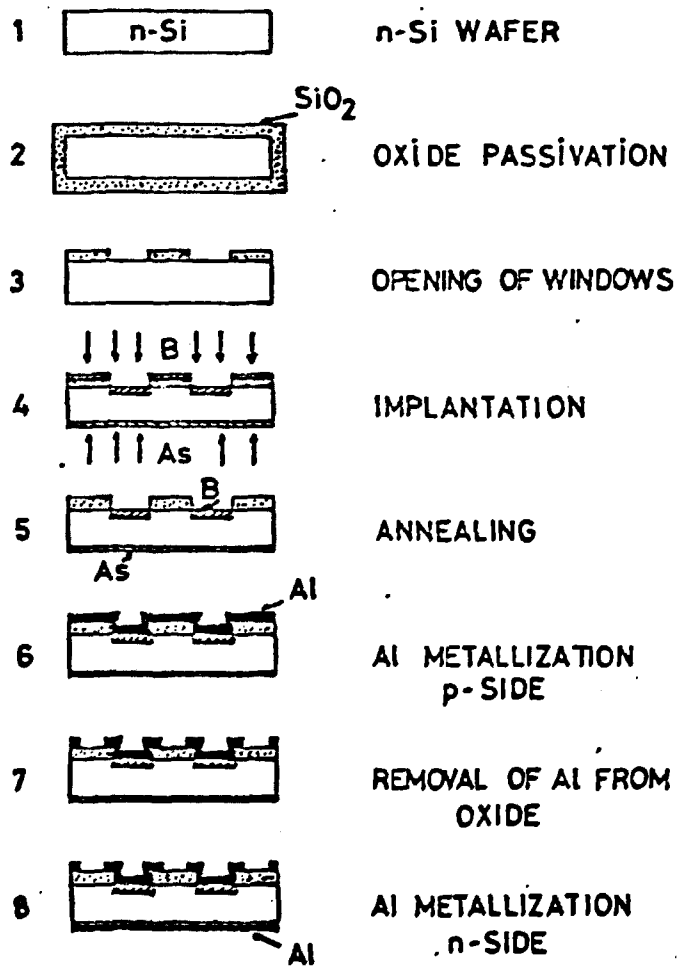


Fig. 1 : Successive steps of the manufacturing process of passivated ion-implanted silicon detectors.

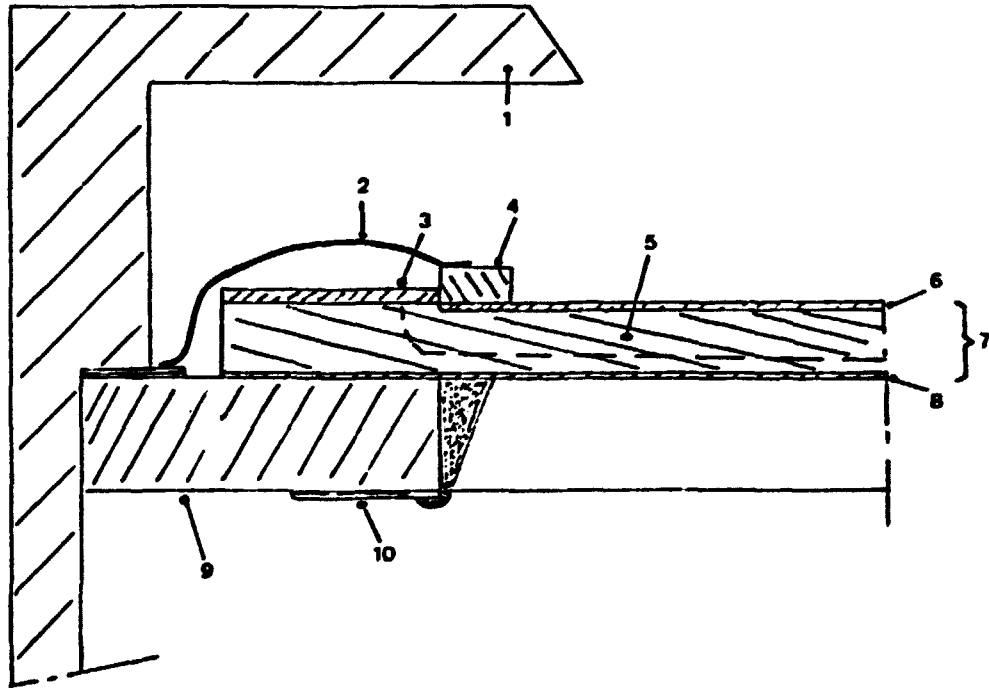


FIG. 2

- 1 - Case
- 2 - Contact wire
- 3 - Si O₂
- 4 - Aluminium collection ring
- 5 - Depleted region
- 6 - P. junction
- 7 - N⁺ silicium
- 8 - Electrode N⁺
- 9 - Epoxy resin
- 10 - Electric contact

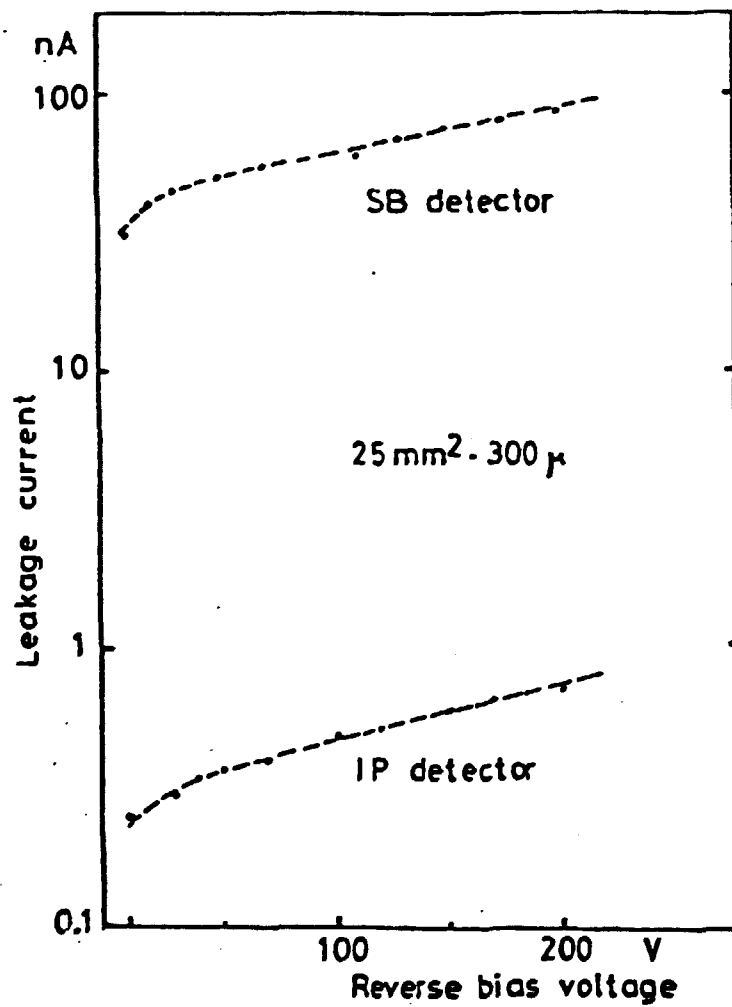
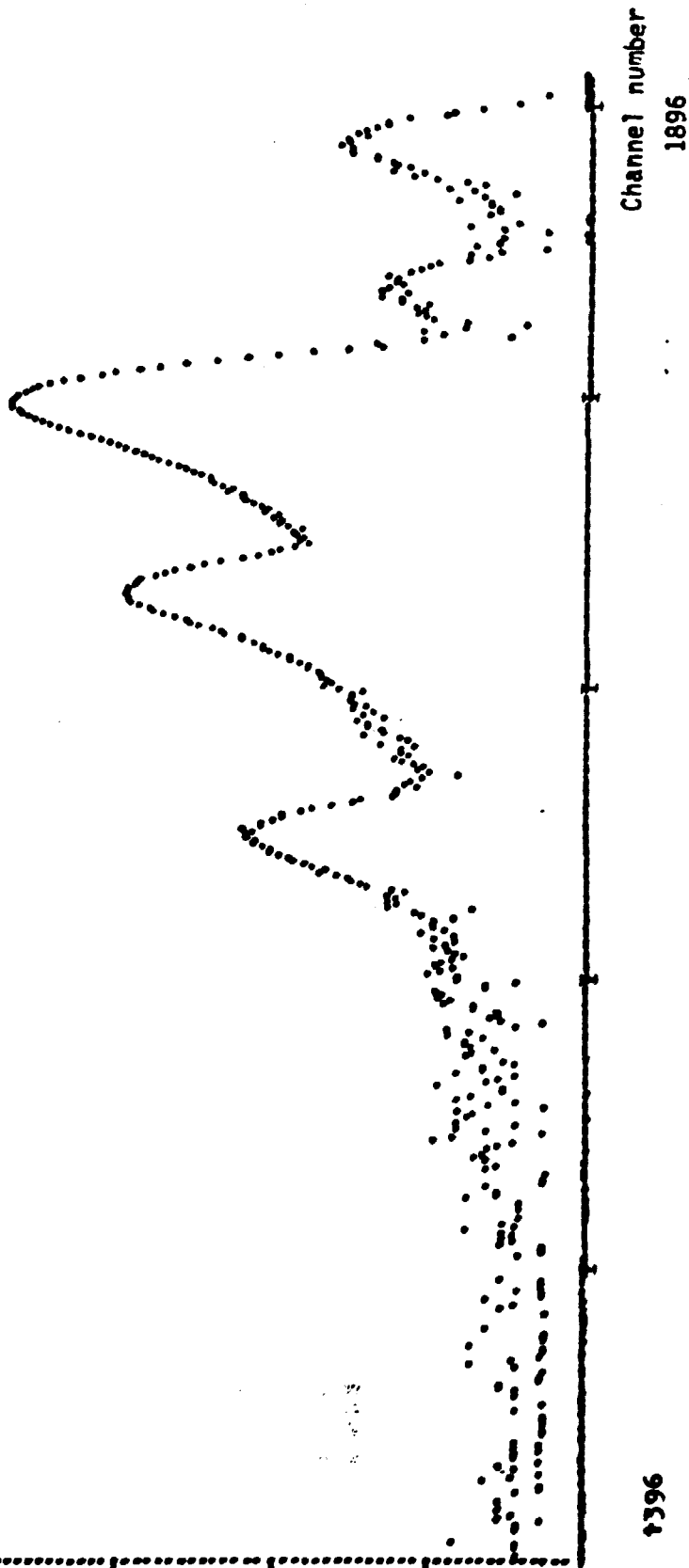


Fig. 2 : Comparison between reverse currents of a surface barrier and a passivated ion-implanted silicon detector of the same size (25 mm² area, 300 μm thickness).

Y: LOG

Counts per
channel



1396

FIG. 4

Y: LOG

Counts per channel

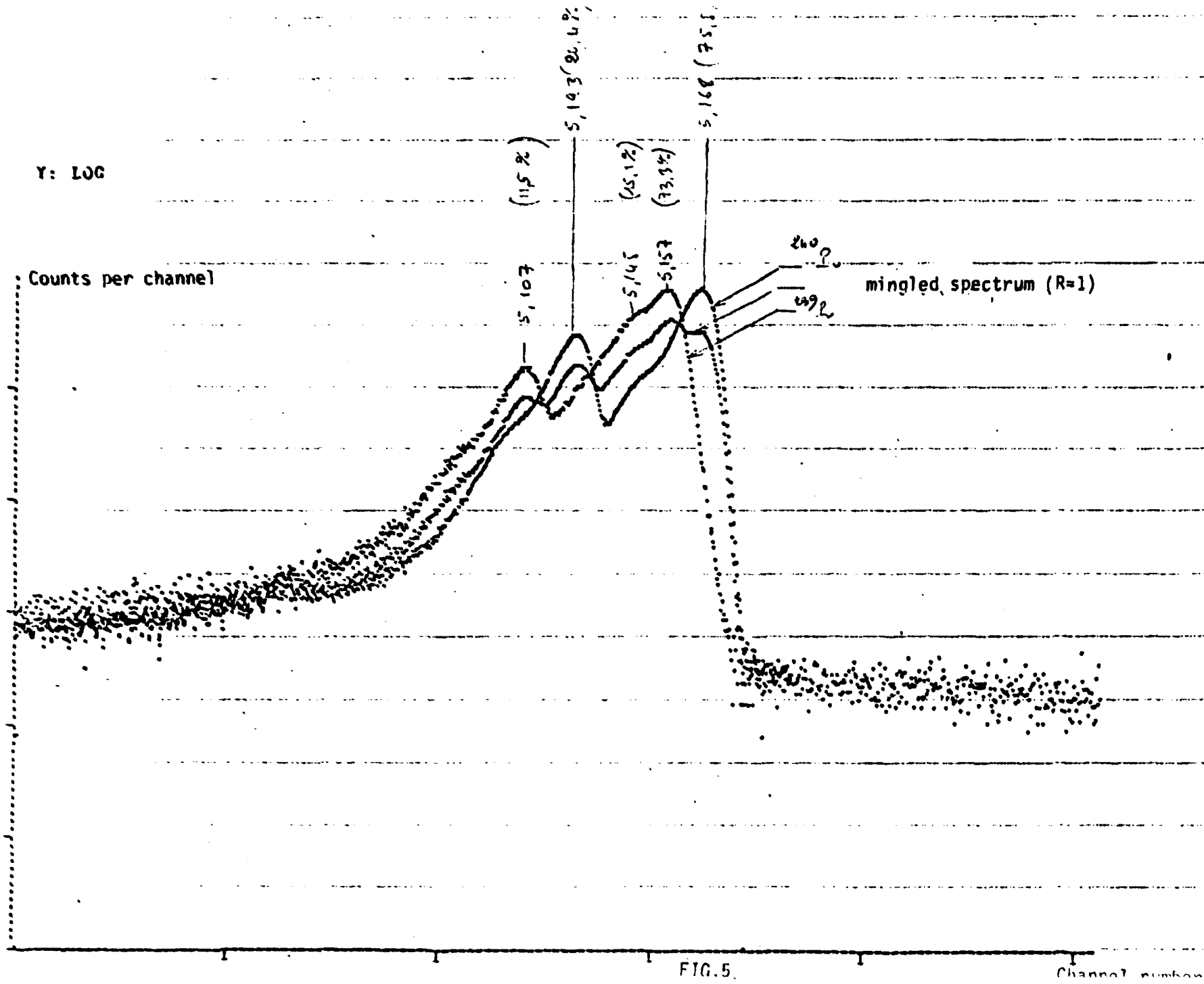


FIG. 5.

Channel number

Y: LOG

Counts per channel

$^{239}\text{Pu} + ^{240}\text{Pu}$

^{241}Am (1)

(2)

(3)

No N_1 N_2 N_3 N_4

N_5

N_6 N_7 N_8 N_9 N_{10}

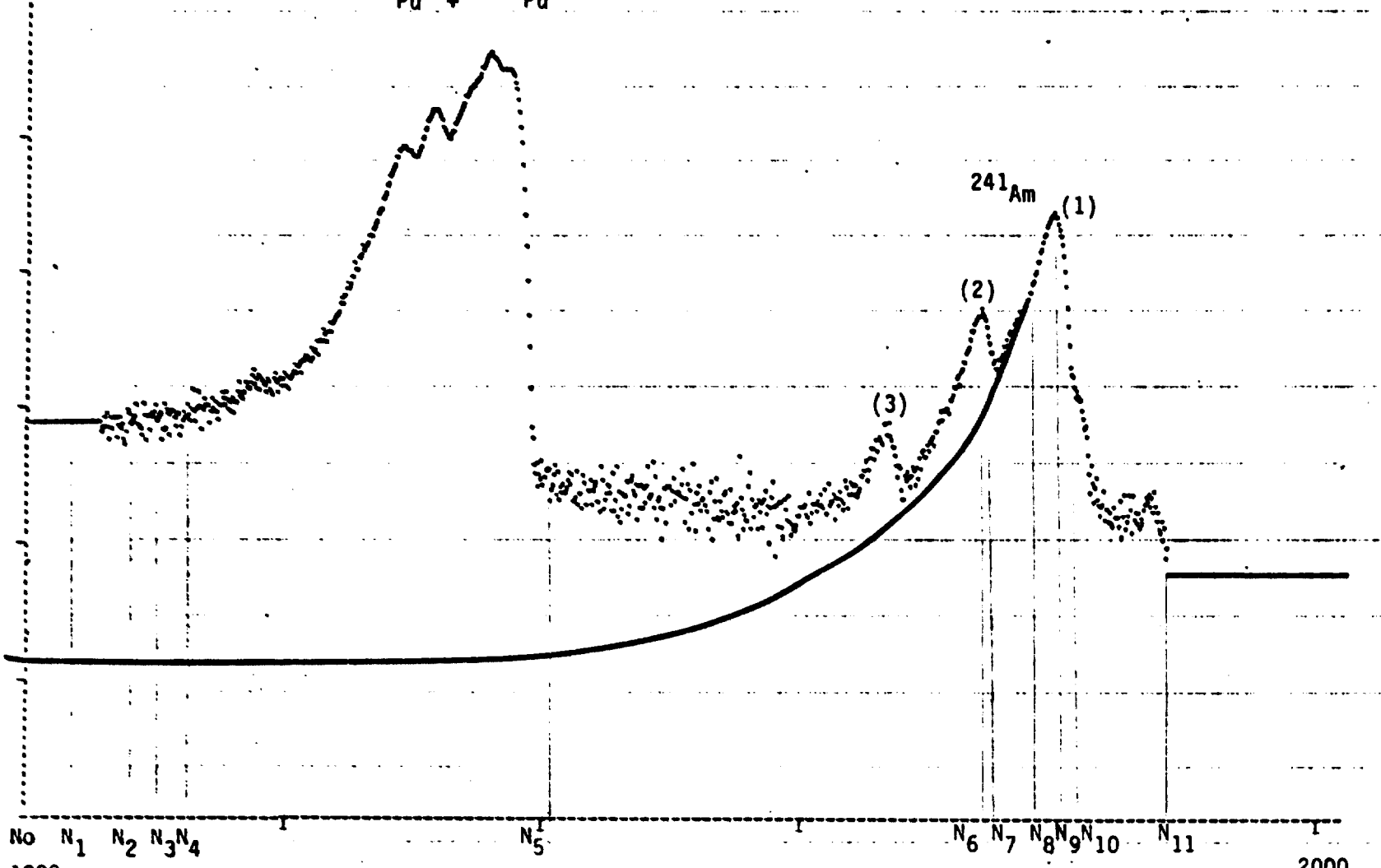
N_{11}

1000

2000

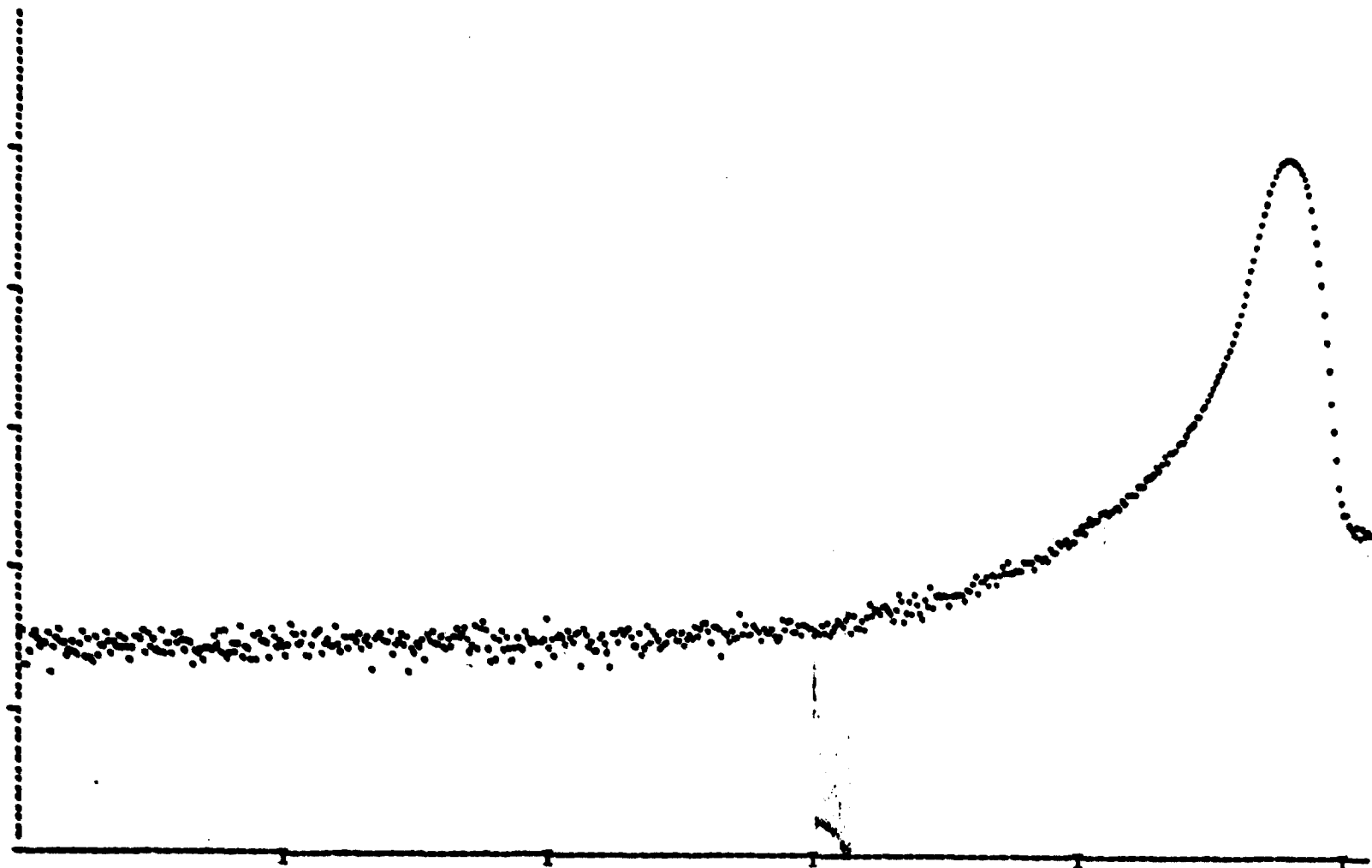
Channel number

FIG.6



Y: LOG

Counts per channel



899

FIG.7a

1399
Channel number

Counts per channel
log scale

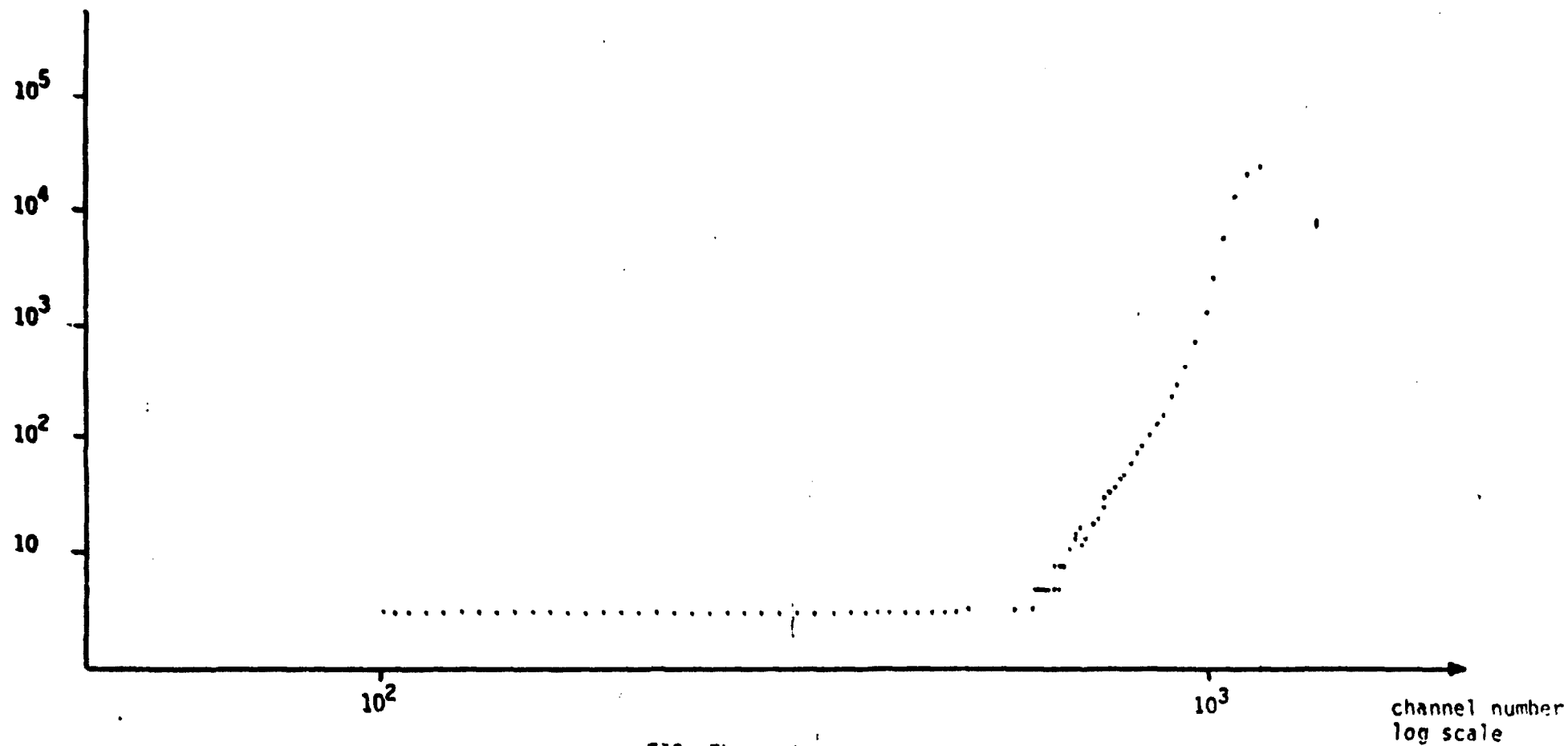


FIG. 7b

NO ENREGISTREMENT:	1	NO ELEMENT:	242	NON:CM	ENERGIE:	6.1480	NPIC:	2			
		NO PIC:	1	ENERGIE:	6.1130	% ELEMENT:	74.0000	% PIC	PRINCIPAL:	0.0000	
		NO PIC:	2	ENERGIE:	6.0690	% ELEMENT:	26.0000	% PIC	PRINCIPAL:	35.0000	
NO ENREGISTREMENT:	2	NO ELEMENT:	244	NON:CM	ENERGIE:	5.8400	NPIC:	2			
		NO PIC:	1	ENERGIE:	5.8060	% ELEMENT:	76.7000	% PIC	PRINCIPAL:	0.0000	
		NO PIC:	2	ENERGIE:	5.7640	% ELEMENT:	23.3000	% PIC	PRINCIPAL:	30.0000	
NO ENREGISTREMENT:	3	NO ELEMENT:	241	NON:AM	ENERGIE:	5.5860	NPIC:	5			
		NO PIC:	1	ENERGIE:	5.5450	% ELEMENT:	0.2500	% PIC	PRINCIPAL:	0.3000	
		NO PIC:	2	ENERGIE:	5.5130	% ELEMENT:	0.1200	% PIC	PRINCIPAL:	0.1400	
		NO PIC:	3	ENERGIE:	5.4860	% ELEMENT:	86.0000	% PIC	PRINCIPAL:	0.0000	
		NO PIC:	4	ENERGIE:	5.4430	% ELEMENT:	12.7000	% PIC	PRINCIPAL:	14.7000	
		NO PIC:	5	ENERGIE:	5.3890	% ELEMENT:	1.3000	% PIC	PRINCIPAL:	1.5000	
NO ENREGISTREMENT:	4	NO ELEMENT:	238	NON:PU	ENERGIE:	5.5320	NPIC:	3			
		NO PIC:	1	ENERGIE:	5.4980	% ELEMENT:	71.1000	% PIC	PRINCIPAL:	0.0000	
		NO PIC:	2	ENERGIE:	5.4540	% ELEMENT:	28.7000	% PIC	PRINCIPAL:	40.3000	
		NO PIC:	3	ENERGIE:	5.3590	% ELEMENT:	0.1300	% PIC	PRINCIPAL:	0.1800	
NO ENREGISTREMENT:	5	NO ELEMENT:	243	NON:AM	ENERGIE:	5.3620	NPIC:	5			
		NO PIC:	1	ENERGIE:	5.3500	% ELEMENT:	0.1600	% PIC	PRINCIPAL:	0.1800	
		NO PIC:	2	ENERGIE:	5.3210	% ELEMENT:	0.1200	% PIC	PRINCIPAL:	0.1400	
		NO PIC:	3	ENERGIE:	5.2760	% ELEMENT:	87.9000	% PIC	PRINCIPAL:	0.0000	
		NO PIC:	4	ENERGIE:	5.2340	% ELEMENT:	10.6000	% PIC	PRINCIPAL:	12.0000	
		NO PIC:	5	ENERGIE:	5.1810	% ELEMENT:	1.1000	% PIC	PRINCIPAL:	1.2000	
NO ENREGISTREMENT:	6	NO ELEMENT:	239	NON:PU	ENERGIE:	5.1900	NPIC:	3			
		NO PIC:	1	ENERGIE:	5.1570	% ELEMENT:	73.3000	% PIC	PRINCIPAL:	0.0000	
		NO PIC:	2	ENERGIE:	5.1450	% ELEMENT:	15.1000	% PIC	PRINCIPAL:	20.6000	
		NO PIC:	3	ENERGIE:	5.1070	% ELEMENT:	11.5000	% PIC	PRINCIPAL:	15.6000	
NO ENREGISTREMENT:	7	NO ELEMENT:	240	NON:PU	ENERGIE:	0.0000	NPIC:	3			
		NO PIC:	1	ENERGIE:	5.1680	% ELEMENT:	75.5000	% PIC	PRINCIPAL:	0.0000	
		NO PIC:	2	ENERGIE:	5.1230	% ELEMENT:	24.4000	% PIC	PRINCIPAL:	32.3000	
		NO PIC:	3	ENERGIE:	5.0200	% ELEMENT:	0.0900	% PIC	PRINCIPAL:	0.0040	
NO ENREGISTREMENT:	8	NO ELEMENT:	999	NON:	ENERGIE:	0.0000	NPIC:	0			

INTENSITIES AND ENERGIES ALPHA EMISSION

ACTIVITY MEASUREMENT OF RATIO : $^{239}\text{Pu} / ^{240}\text{Pu}$		
Sample number	Theoretical Ratio	Measured Ratio
P U 2 K 8	2,029	2,01
P U 1.2 K	1,270	1,260
P U 1 K 8	1,015	1,02
P U 0 8 K 8	0,8129	0,789
P U 0 5 K 8	0,507	0,491

TABLE 2

ACTIVITY MEASUREMENT OF RATIO $^{239}\text{Pu} / ^{240}\text{Pu}$

Sample number	Ratio determined by Mass spectrometry	Standard Deviation 2σ	Ratio determined by alpha spectrometry	Standard Deviation 2σ
4410 K 8	0,3219	0,5 %	0,3259	2 %

TABLE 3