

Titre du document : Approche générale de la spectrométrie des rayonnements électromagnétiques

Version : 06/07/2018

N° chrono : DOC-FO-13_2

Auteur : M. Ammerich

Résumé : Approche pour permettre de comprendre la lecture d'un spectre de raies issu de la mesure de rayonnements électromagnétiques.

APPROCHE GENERALE DE LA SPECTROMETRIE DES RAYONNEMENTS ELECTROMAGNETIQUES

A. La spectrométrie des rayonnements électromagnétiques

1 Généralités

Les rayonnements électromagnétiques sont indirectement ionisants; toute spectrométrie effectuée en utilisant comme détecteur un scintillateur (ou un semi-conducteur), fournit le spectre en énergie des électrons déplacés ou créés par les rayons gamma ou X incidents à l'intérieur du milieu détecteur.

L'interprétation de ce spectre, connaissant les différents modes d'interactions primaires (effets photoélectrique, Compton et de création de paires) permet d'obtenir des informations quantitatives sur l'énergie, le taux d'émission des rayonnements incidents, moyennant un étalonnage préalable.

Tous les phénomènes qui contribuent à la formation d'une impulsion ont un caractère aléatoire. Pour simplifier, cet aspect ne sera traité que dans le paragraphe sur la résolution.

2 Cas d'un rayonnement électromagnétique de basse énergie ($E_\gamma \leq 1.02 \text{ MeV}$)

Considérons un spectromètre équipé d'un cristal d'iodure de sodium (NaI) activé au thallium. On pourrait prendre également le cas des détecteurs à semi-conducteurs et en particulier les détecteurs au germanium (on appelle ces détecteurs des jonctions hyperpures). Certaines particularités seront données en remarques.

Le NaI, comme tout détecteur à scintillations conçu pour la spectrométrie, va délivrer des impulsions dont les amplitudes sont rigoureusement proportionnelles à la quantité de lumière. Celle-ci est aussi proportionnelle à l'énergie des électrons mis en mouvement par le rayonnement incident. Si l'énergie de ce rayonnement est inférieure à 1.02 MeV, seuls les effets photoélectrique et Compton peuvent avoir lieu.

2.1 Analyse des interactions dans le scintillateur

2.1.1 Effet photoélectrique

Un photoélectron est mis en mouvement suite à l'interaction du γ incident. Son énergie la plus probable est :

$$E_{ph} = E_\gamma - E_{K_i}$$

E_{ph} : énergie du photoélectron

E_{K_i} : énergie de l'électron de la couche K de l'atome d'iode

L'énergie de ce photoélectron est entièrement cédée au scintillateur par collision avec ses électrons. Le cortège de l'atome d'iode se réorganise, ce qui conduit à l'émission de rayonnements électroniques (Auger) ou électromagnétiques (X).

Ces rayonnements ayant de basses énergies, ils ont une grande probabilité d'interaction dans le scintillateur. Celui-ci récupère alors la somme de leurs énergies soit E_{Ki} .

Tous ces phénomènes ne peuvent être distingués par le détecteur; seule l'énergie totale est prise en compte.

$$E = (E\gamma - E_{Ki}) + E_{Ki} = E\gamma$$

avec

$(E\gamma - E_{Ki})$: énergie du photoélectron

E_{Ki} : énergie récupérée lors du réarrangement

$E\gamma$: énergie du rayonnement incident

Il est possible que le rayonnement X de réarrangement le plus énergétique,

$E_{X_{Ki}} = (E_K - E_L)_i$, s'échappe du détecteur sans subir d'interaction. L'énergie récupérée alors par le scintillateur est égale à :

$$E' = E\gamma - (E_K - E_L)_i$$

Suite aux interactions photoélectriques deux groupes d'impulsions sont délivrés:

- celles dont l'amplitude maximale est proportionnelle à $E\gamma$:

$$V_{\max} = k \cdot E\gamma$$

- celles dont l'amplitude maximale est proportionnelle à $E' = E\gamma - (E_K - E_L)_i$:

$$V'_{\max} = k \cdot [E\gamma - (E_K - E_L)_i]$$

En général le deuxième groupe est quantitativement beaucoup moins important que le premier. Si $E\gamma \gg E_{X_{Ki}}$, les amplitudes sont très voisines.

2.1.2 Effet Compton

Un électron Compton est mis en mouvement avec une énergie égale à :

$$E_c = E\gamma - E\gamma'$$

Celle-ci est transférée au scintillateur. Plus l'énergie du rayonnement diffusé $E\gamma'$ est importante, plus la probabilité qu'il a de s'échapper du détecteur, sans interagir, est grande. S'il interagit, il peut le faire soit par effet photoélectrique, soit par effet Compton.

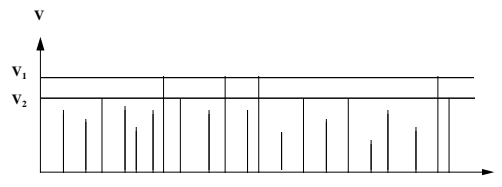
Le détecteur ne pouvant distinguer les phénomènes en cascades, en raison de leur quasi-simultanéité, deux groupes d'impulsions sont distingués:

- celles dont les amplitudes sont variables depuis 0 jusqu'à une certaine valeur maximale; elles correspondent à des interactions Compton initiales suivies ou non d'une absorption partielle de l'énergie des rayonnements diffusés produits.

- celles dont les amplitudes sont identiques et proportionnelles à $E\gamma$; elles correspondent à des interactions Compton initiales suivies de l'absorption totale de l'énergie des rayonnements diffusés produits, $V_{\max} = k \cdot E\gamma$

2.2 Spectre des amplitudes des impulsions obtenues

La figure suivante montre les impulsions que l'on peut observer après amplification, pendant un intervalle de temps très grand devant la durée de l'impulsion (son image étant alors réduite à un trait vertical de hauteur V_{max}).



L'interprétation est la suivante :

- Les impulsions les plus grandes, dont les amplitudes sont identiques correspondent à tous les processus qui ont abouti à une absorption totale de l'énergie des rayonnements incidents.

$$V_1 = k \cdot E_\gamma$$

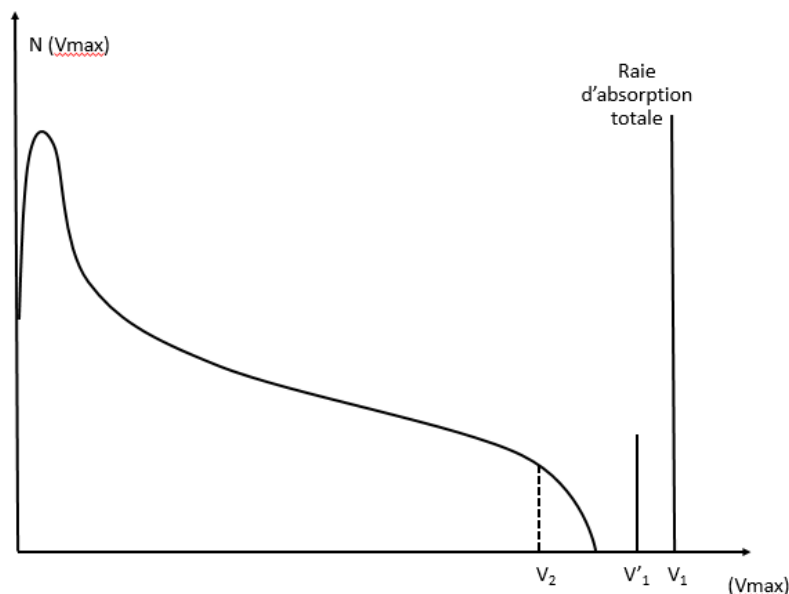
- Les impulsions dont les amplitudes sont distribuées entre 0 et V_2 correspondent aux processus qui n'ont conduit qu'à une absorption partielle de l'énergie des rayonnements incidents.

Comme la probabilité d'une seule interaction Compton est très supérieure à la probabilité de plusieurs interactions en cascade, la distribution des amplitudes des impulsions correspond essentiellement à la distribution des énergies, des électrons issus des interactions Compton primaires.

$$V_2 = k \cdot EC_{max} = k \cdot (E_\gamma - E_\gamma'_{min}) = k \cdot [E_\gamma - E_\gamma / (1 + 3,92 \cdot E_\gamma)]$$

avec E_γ en MeV

Le spectre des amplitudes maximales $n(V_{max}) = f(V_{max})$, des impulsions, obtenu grâce à un analyseur, à l'allure suivante :



$n(V_{max})$ est le nombre d'impulsions d'amplitude V_{max} comptées par unité de temps.

$$V1 = k \cdot E_{\gamma}$$

$$V'1 = k \cdot (E_{\gamma} - E_{XKi})$$

$$V2 = k \cdot (E_{\gamma} - E_{\gamma}'_{min})$$

3 Cas d'un rayonnement électromagnétique de haute énergie ($E_{\gamma} > 1.02 \text{ MeV}$)

3.1 Analyse des interactions dans le scintillateur

Au-dessus de 1.02 MeV, l'effet de matérialisation peut avoir lieu; en pratique pour qu'il soit décelé dans un cristal d'iodure de sodium, il faut une énergie incidente au moins égale à 2 MeV.

Cet effet se traduit par la création d'un électron et d'un positon dont la somme des énergies cinétiques ($E_c \text{ (MeV)} - 1.02$) est cédée au scintillateur par collisions. Les deux rayonnements X issus de la dématérialisation du positon après son ralentissement peuvent ou non interagir avec le détecteur. Plusieurs cas sont à envisager :

- Les deux rayonnements X sortent du scintillateur sans interagir; l'énergie récupérée est égale à :

$$E'' = E_{\gamma} \text{ (MeV)} - 1.02$$

- L'un des rayonnements X s'absorbe totalement, l'autre sort du scintillateur sans interagir; l'énergie récupérée est égale à :

$$E' = (E_{\gamma} \text{ (MeV)} - 1.02) + 0.51 = E_{\gamma} \text{ (MeV)} - 0.51$$

- Les deux rayonnements X s'absorbent totalement; l'énergie récupérée est égale à :

$$E = (E_{\gamma} \text{ (MeV)} - 1.02) + 1.02 = E_{\gamma} \text{ (MeV)}$$

- L'un ou les deux rayonnements X cèdent seulement une partie de leurs énergies au scintillateur; l'énergie récupérée est alors comprise entre les deux valeurs :

$$E_{\gamma} \text{ (MeV)} - 1.02 < E''' < (E_{\gamma} \text{ (MeV)} - 1.02) + 0.68$$

0.68 correspond à deux fois la valeur de l'énergie maximale d'un électron Compton déplacé par un rayonnement électromagnétique de 0.51 MeV

$$E_{C \text{ max}} = E_{\gamma} - E_{\gamma} / (1+3,92 \cdot E_{\gamma})$$

Ces groupes d'impulsions ayant pour origine des créations de paires, se superposent à ceux vus dans le paragraphe précédent

- Celles dont l'amplitude est proportionnelle à E''

$$V''_{max} = k \cdot (E_{\gamma} - 1.02)$$

- Celles dont l'amplitude est proportionnelle à E'

$$V'_{max} = k \cdot (E_{\gamma} - 0.51)$$

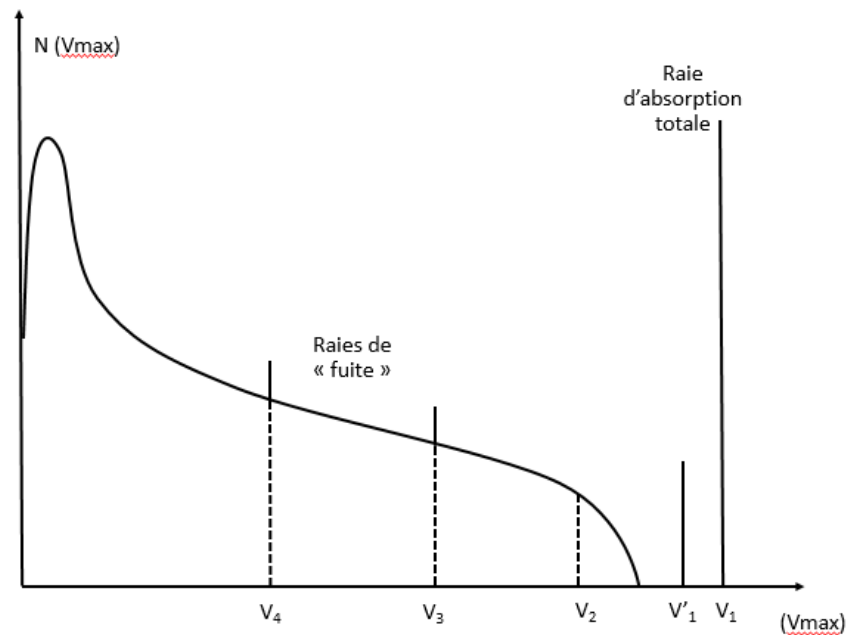
- Celles dont l'amplitude est proportionnelle à E_{γ}

$$V_{max} = k \cdot E_{\gamma}$$

- Celles dont les amplitudes sont variables depuis V''_{max} jusqu'à une valeur $V''_{max} + 0.68$

3.2 Spectre des amplitudes des impulsions obtenues

Le spectre des amplitudes maximales des impulsions que l'on peut obtenir avec un analyseur est plus complexe que dans le cas précédent. En reprenant l'allure de la courbe obtenue dans le paragraphe précédent et en superposant les effets on obtient :



$n(V_{max})$ est le nombre d'impulsions d'amplitude V_{max} comptées par unité de temps.

$$V_1 = k \cdot E_\gamma$$

$$V'_1 = k \cdot (E_\gamma - E_{X_{Ki}})$$

$$V_2 = k \cdot (E_\gamma - E_{\gamma'_{min}})$$

$$V_3 = k \cdot (E_\gamma - 0,51)$$

$$V_4 = k \cdot (E_\gamma - 1,02)$$

Les hauteurs relatives des raies de fuite et d'absorption totale dépendent des dimensions et de la forme du scintillateur; plus il est volumineux plus la raie d'absorption est importante.

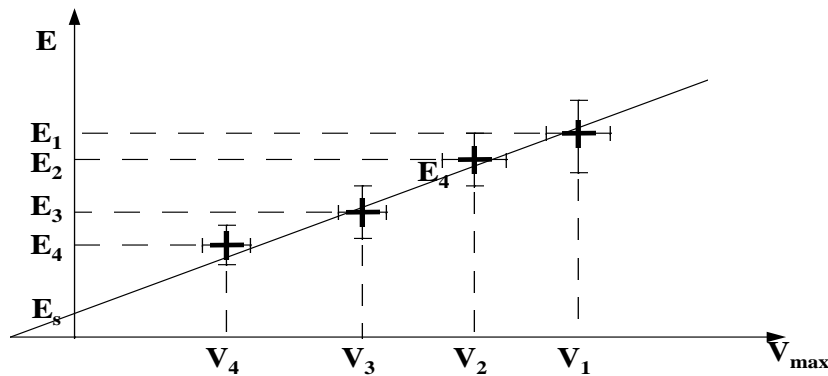
4 Etalonnage, résolution en énergie

4.1 Etalonnage en énergie

Pour réaliser l'étalonnage en énergie d'un spectromètre gamma, on utilise un certain nombre de sources radioactives émettant des rayonnements gamma dont les énergies sont connues avec une grande précision. Sur chacun des spectres obtenus on relève les amplitudes des impulsions, correspondant aux raies d'absorption totale. On peut également utiliser les raies de fuite si elles existent.

On reporte ensuite les résultats obtenus sur un papier graphique en associant à chaque amplitude mesurée (ou au numéro du canal), l'énergie de référence correspondante. On

trace la courbe joignant les différents points; pour un bon spectromètre celle-ci doit être une droite dans une large plage d'énergie.



On en déduit :

- L'énergie seuil E_s qui est la plus petite énergie que le spectromètre peut analyser en raison de l'existence d'un seuil d'entrée nécessaire pour éliminer le bruit de fond produit par les différentes unités électroniques (préamplificateur, amplificateur, analyseur).
- La pente k de la droite d'étalonnage exprimée en keV/mV ou keV/canal par exemple.

Après repérage des raies d'absorption totale d'une source inconnue et détermination de leur position V , on peut déduire les énergies des rayonnements électromagnétiques émis en utilisant la relation:

$$E = k.V + E_s$$

Ensuite la recherche de l'énergie dans les tables donnant les diverses émissions gamma permettra éventuellement d'identifier l'émetteur. Si l'on se réfère au cours de radioactivité, la présence d'une raie d'absorption totale d'un rayonnement X dans un spectre gamma peut être une indication supplémentaire précieuse car elle permet de déterminer l'élément descendant de l'émetteur.

Remarques :

1) En principe lorsqu'on fixe les réglages d'un spectromètre (tension d'alimentation du détecteur, valeur du gain de l'amplificateur) aucun autre paramètre ne devrait influencer la position d'une raie. En réalité on peut observer une différence si on compare les résultats obtenus à fort et à faible taux de comptage.

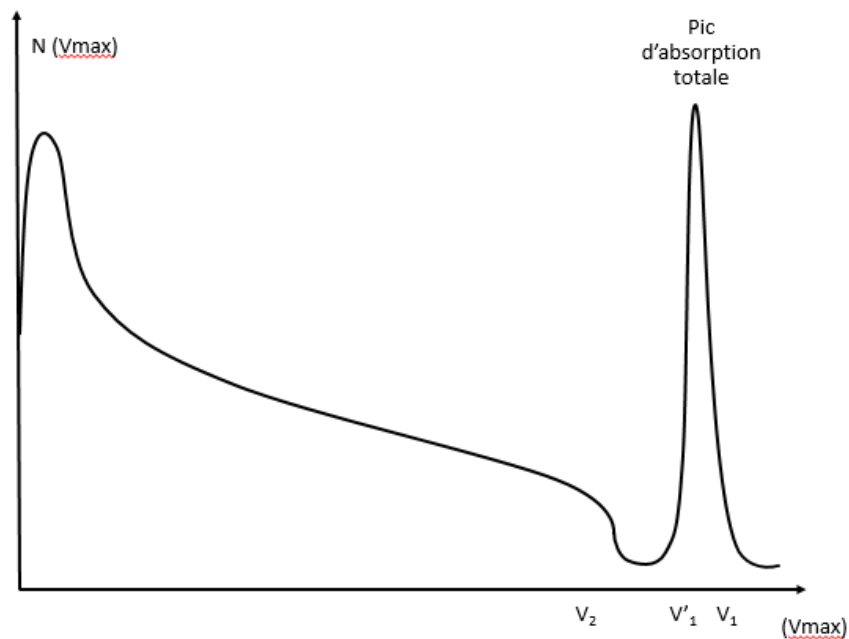
A fort taux de comptage, au niveau du photomultiplicateur, le courant moyen de détection i n'est plus négligeable devant le courant de polarisation I , ce qui modifie les tensions aux bornes des dynodes donc le coefficient de multiplication électronique du photomultiplicateur. Il est donc recommandé de travailler avec un taux de comptage faible, ou si cela s'avère impossible, de s'assurer que les divers spectres sont obtenus à des taux de comptage globaux sensiblement identiques.

2) Il est également possible d'étalonner un spectromètre pour déterminer l'activité d'une source à partir du taux de comptage correspondant à une raie d'absorption totale. Cet

étalonnage est beaucoup plus difficile à réaliser que l'étalonnage en énergie. Il nécessite un positionnement rigoureux des sources radioactives qui doivent par ailleurs avoir une présentation identique. Ce type d'étalonnage sort du cadre de ce cours.

4.2 Résolution en énergie

Le caractère aléatoire des phénomènes utilisés dans un détecteur à scintillations (émission lumineuse, émission et multiplication électronique...), entraîne une dispersion des amplitudes des impulsions recueillies, pour des énergies identiques cédées au scintillateur par les rayonnements incidents. Ce phénomène a pour conséquence de modifier l'allure des spectres, dans lesquels, en particulier, la raie d'absorption totale est remplacée par un pic d'absorption totale.



$$V1 = k \cdot E\gamma$$

$$V2 = k \cdot (E\gamma - E\gamma' \text{ min})$$

La résolution d'un pic d'absorption totale mesure l'importance des fluctuations en amplitude des impulsions. Par définition :

$$R (\%) = 100 \times (\Delta E\gamma / E\gamma)$$

avec :

$\Delta E\gamma$ largeur du pic à mi-hauteur

$E\gamma$ énergie de référence du pic

La résolution est variable en fonction de l'énergie; elle obéit à une relation de la forme :

$$R = [A + (B / E\gamma (\text{MeV}))]^{1/2}$$

Les valeurs des coefficients A et B dépendent beaucoup de la qualité de l'installation spectrométrique utilisée.

Exemple :

Pour une bonne installation A = 40 et B = 15

Si on prend une énergie incidente de 1 MeV on obtient :

$$R = [40 + (15/1)]^{1/2}, \text{ soit } R = 7.42 \%$$

$$\Delta E_{\gamma} = 7.42 \cdot 1/100 = 0.074 \text{ MeV} \quad \text{soit } \Delta E_{\gamma} = 74 \text{ keV}$$

Si en grossière approximation nous assimilons le pic d'absorption totale à un triangle isocèle, sa largeur à la base est égale à $2 \Delta E_{\gamma}$ soit environ 150 keV.

Ce qui signifie qu'un rayonnement d'énergie $1 - 0.15 = 0.85$ MeV donne un pic d'absorption totale distinct de celui correspondant au rayonnement de 1 MeV. Pour tout rayonnement d'énergie supérieure à 0.85 MeV les pics d'absorption totale se mélangent et deviennent totalement indistincts lorsque les énergies sont proches.

Ces considérations permettent de comprendre la raison pour laquelle le pic de fuite centré sur l'énergie $E_{\gamma} - E_{X_{K_i}}$ est noyé dans le pic d'absorption totale centré sur l'énergie E_c . Il faudrait une valeur de E_{γ} très petite pour le distinguer.

5 Application aux détecteurs à semi-conducteurs

A quelques détails près, **tout ce qui figure dans ce chapitre est valable dans le cas où le détecteur est un semi-conducteur** pourvu que l'on tienne compte du fait que ce type de détecteur a une résolution beaucoup plus fine que celle du détecteur à scintillations. L'une des raisons principales provient du nombre d'événements initiaux sur lesquels on travaille. Dans le cas d'un scintillateur il faut environ 30 électronvolts pour créer un photon lumineux, alors que dans le cas d'un semi-conducteur, **3 électronvolts suffisent** pour créer une paire électron-trou.

Pour une même énergie incidente cédée, le nombre d'événements initiaux est donc **10 fois** plus grand dans le cas d'un semi-conducteur. Si l'on admet que la même loi statistique, caractérisée par l'écart-type $\sigma = \sqrt{N}$ (N =nombre d'événements), est applicable dans les deux cas, la fluctuation relative du nombre d'événements initiaux sera $\sqrt{10}$ fois plus faible pour un semi-conducteur.

Le rendement global de détection d'un semi-conducteur au germanium étant nettement plus faible que celui d'un scintillateur NaI, il est utilisé dans le cas où la finesse de l'analyse en énergie est primordiale.

6 Interaction des rayonnements électromagnétiques à l'extérieur du détecteur

L'interaction des rayonnements électromagnétiques dans l'environnement du détecteur à scintillations peut être à l'origine de pics supplémentaires dans le spectre observé.

6.1 Analyse des interactions à l'extérieur et effets sur le scintillateur

Un rayonnement gamma provoque par effet photoélectrique sur les matériaux entourant le détecteur, l'émission de rayonnements X caractéristiques des produits utilisés.

Exemple : rayonnements X du plomb

$$E_{XK\alpha} = (E_K - E_L)_{\text{plomb}} \quad E_{XK\alpha} = 74 \text{ keV}$$

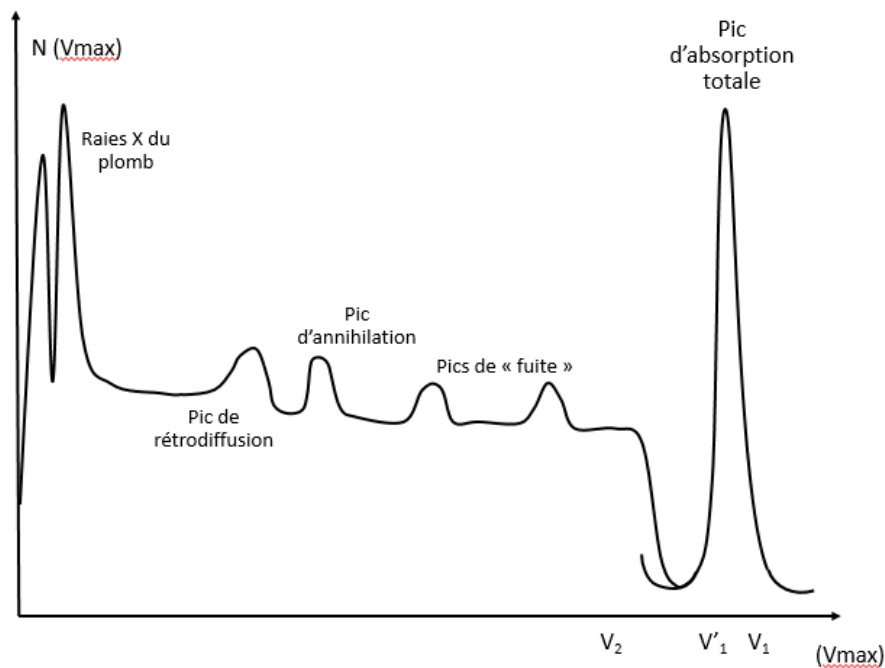
$$E_{XK\beta} = (E_K - E_M)_{\text{plomb}} \quad E_{XK\beta} = 85 \text{ keV}$$

Un rayonnement gamma provoque, par effet Compton sur les matériaux entourant le détecteur, l'émission de rayonnements gamma diffusés. Ils produisent un pic de rétro diffusion assez large, ceci étant dû à la dispersion en énergie, conséquence de la distribution angulaire. L'énergie du rayonnement diffusé s'obtient par la relation :

$$E_{\gamma'} = E_{\gamma} / [1 + (2 E_c / 0,511)] \quad (\text{avec } E_{\gamma} \text{ en MeV})$$

Chaque matérialisation d'un rayonnement gamma sur les matériaux entourant le détecteur, conduit à l'émission de deux rayonnements X d'annihilation (énergie 0.511 MeV); étant émis en opposition un seul peut être détecté. On obtiendra un pic parasite dit "pic d'annihilation".

6.2 Spectre obtenu avec les différents effets



7 Matériels

Voici quelques appareils pouvant faire de la spectrométrie.

Il y a des appareils portables dotés de NaI, voire de semi-conducteurs.

Pour les appareils de laboratoire, il y a des semi-conducteurs.



Fieldspec (photo Aries)

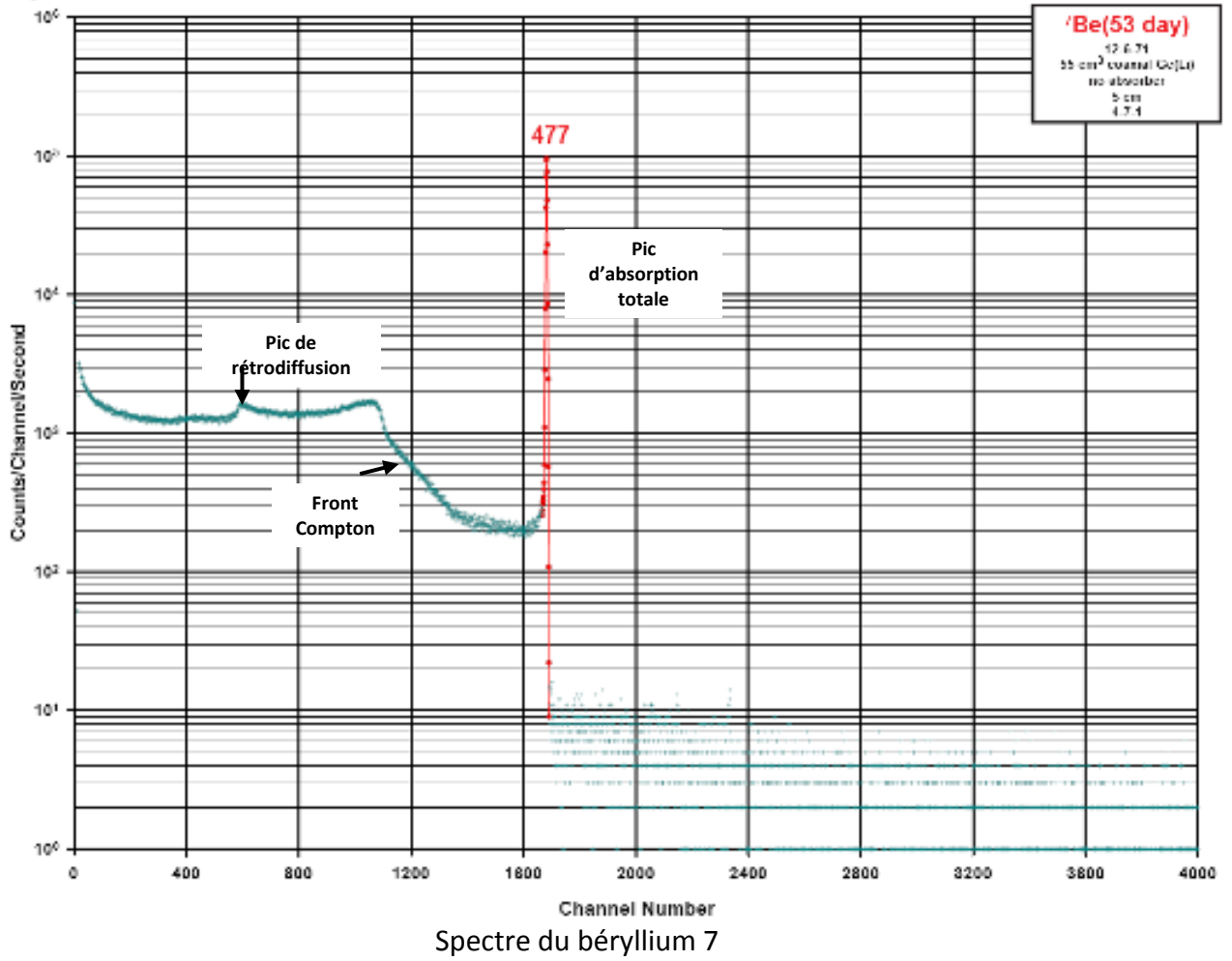


Inspector 1000 (photo Canberra)

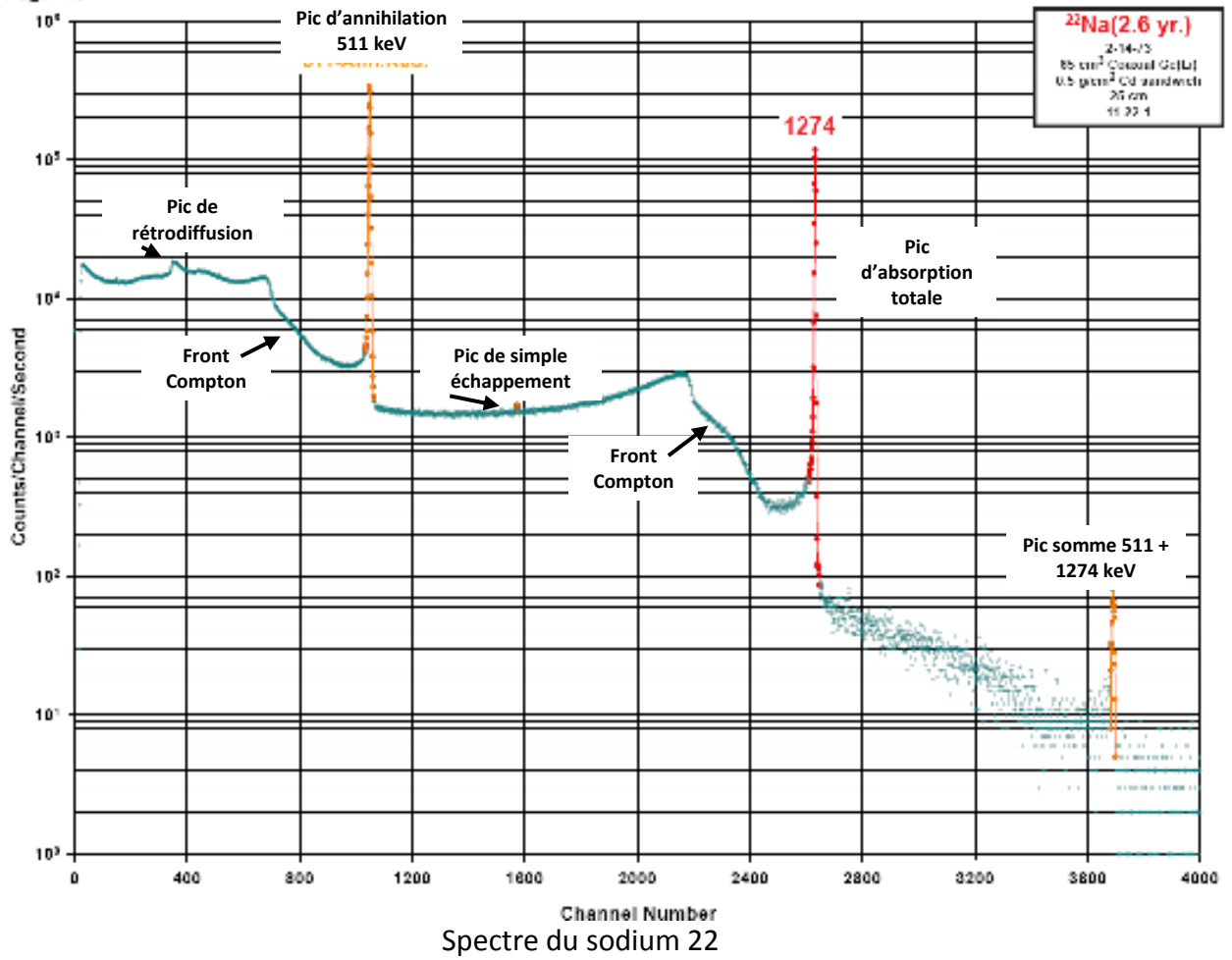
8 Illustrations

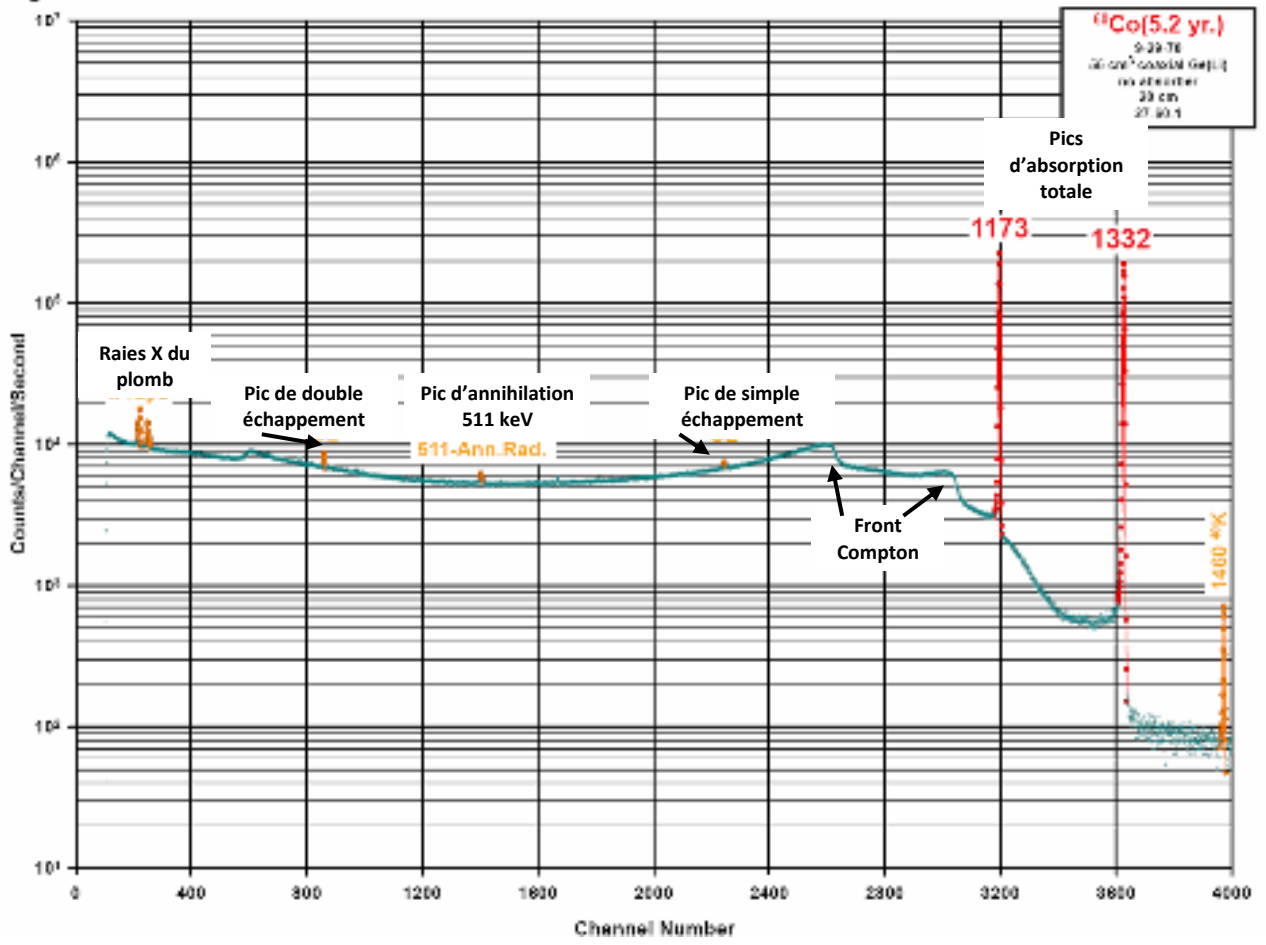
Voici quelques exemples de spectres obtenus avec des détecteurs à semi-conducteurs. Ces spectres sont issus du catalogue que vous pouvez consulter en ligne du Idaho National Laboratory

Il existe le catalogue de spectres avec un scintillateur NaI et avec les détecteurs à semi-conducteurs.

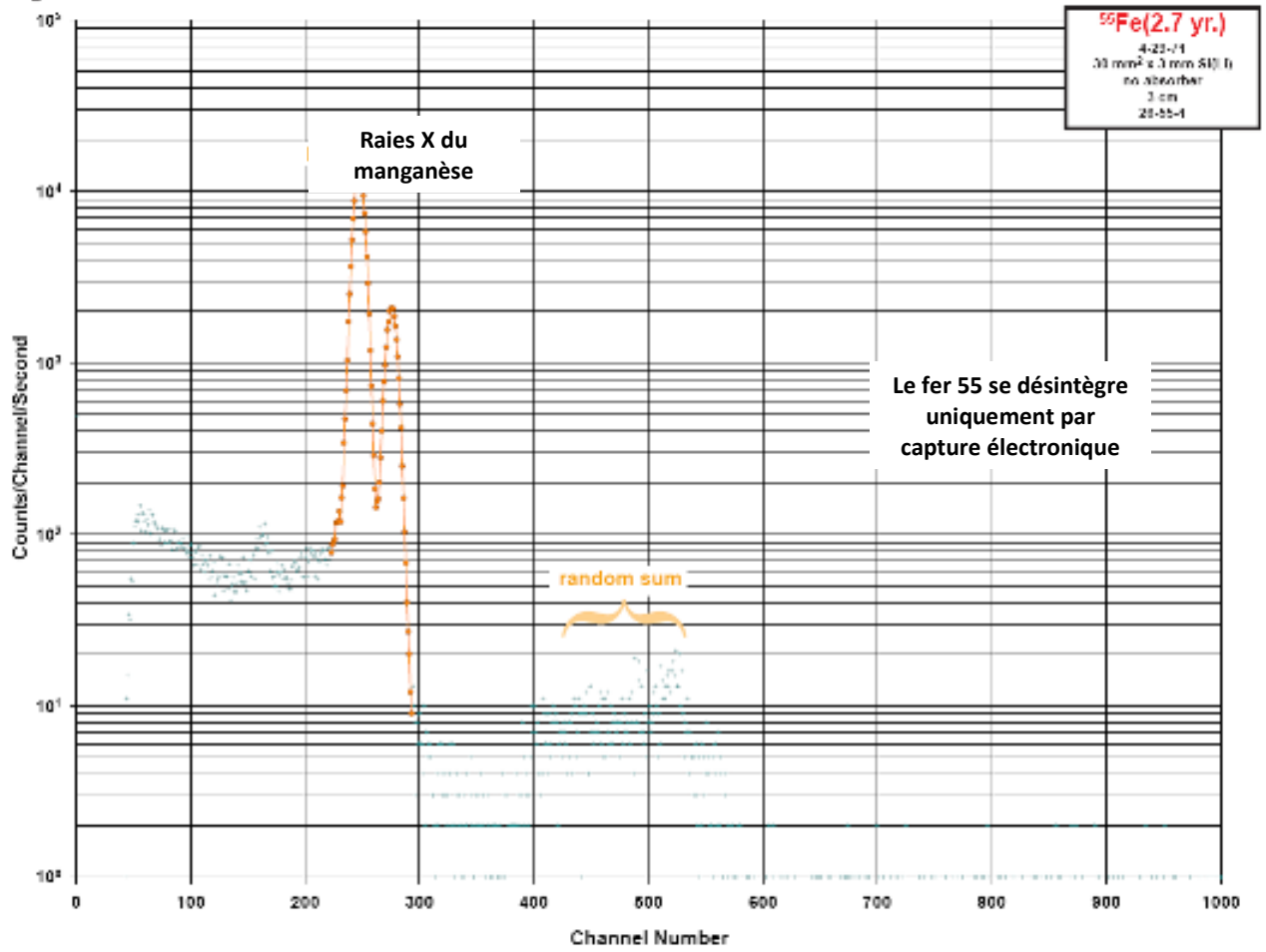


Page -43-





Spectre du cobalt 60



Spectre du fer 55