

Analyse des problèmes de diffusion du rayonnement X/gamma dans les supports de source

Johann Plagnard

Juillet 2004

Table des matières :

1	Problématique initiale	3
2	Mise en évidence des phénomènes de diffusion et conséquence sur les spectres.....	3
2.1	L'interaction rayonnement matière.....	3
2.1.1	Absorption photoélectrique	3
2.1.2	Diffusion Compton.....	4
2.2	Mise en évidence du phénomène – Conséquences sur les spectres	6
2.3	Autre exemple de spectre	9
3	Considérations métrologiques	10

1 Problématique initiale

Ce travail correspond à une demande du CEA Cadarache LPE – Laboratoire des Programmes Expérimentaux qui réalise des mesures par spectrométrie X et gamma de différents radionucléides issus d'échantillons métalliques irradiés dans des réacteurs nucléaires. Leur problématique initiale est de connaître l'influence de la diffusion du rayonnement X/gamma dans le support des sources lors d'une mesure d'activité.

Généralement constitué de film polymère comme le plexiglas ou le polyéthylène (matériaux à Z léger), ces supports constituent un site idéal pour la diffusion du rayonnement X/gamma. Cette diffusion se traduit au niveau des spectres par l'apparition de bosses à des énergies inférieures à celle du rayonnement initial pouvant gêner le surfaçage des pics et donc la mesure d'activité.

Il s'agit donc dans ce document de quantifier l'importance de ce phénomène avec quelques exemples pratiques et de dicter une conduite à tenir pour minimiser les problèmes de mesure.

2 Mise en évidence des phénomènes de diffusion et conséquence sur les spectres.

Avant d'aborder l'analyse des problèmes liés à la présence des bosses de diffusion dans les spectres, il convient de faire quelques rappels sur les modes d'interaction du rayonnement avec la matière et de définir les sites où se localisent ces diffusions.

2.1 L'interaction rayonnement matière

Généralement, lorsqu'on parle d'interaction rayonnement/matière, trois phénomènes sont à prendre en compte et dépendent de l'énergie initiale mise en jeu. Il s'agit de l'absorption photoélectrique, de la diffusion Compton et enfin de la création de paire si l'énergie de départ est suffisante (supérieure à deux fois 511 keV).

Dans le cas de cette étude, nous ne nous intéresserons pas au troisième type d'interaction compte tenu de l'énergie mise en jeu (inférieure à 50 keV).

2.1.1 Absorption photoélectrique

L'absorption photoélectrique se décompose en deux sous effets : l'**effet photoélectrique externe** et l'**effet photoélectrique interne**.

Le premier est issu de l'interaction des photons avec les électrons des couches électroniques externes d'un atome. Pour ce phénomène, les photons doivent comporter une énergie minimale $h\nu$ appelée énergie d'activation dépendant de la nature du milieu d'interaction. En effet, elle doit être au moins égale à l'énergie nécessaire pour rompre les liaisons de covalence du matériau. Si cette condition est remplie, un ou plusieurs électrons de la structure absorbent l'énergie du photon incident créant ainsi le phénomène d'absorption photoélectrique externe. Par exemple, dans le silicium et dans le germanium, cet effet se produit pour des photons dont

les énergies sont comprises entre l'infrarouge et le proche ultraviolet. Ce mode d'interaction est cité à titre indicatif car il n'intervient pas dans le cas présent compte tenu des énergies mises en jeu qui sont bien plus importantes que celles correspondant aux ultraviolets.

Lorsque l'énergie incidente est plus importante, l'effet photoélectrique externe laisse la place à l'effet photoélectrique interne. Il s'agit là d'une interaction plus profonde : le photon incident doté d'une énergie importante interagit au niveau des couches électroniques profondes de l'atome. Après interaction avec un des électrons du cœur, il disparaît totalement et cède son énergie à cet électron (photoélectron) qui est alors éjecté avec une énergie cinétique $E_c = h\nu - E$, E étant l'énergie de liaison entre l'électron et l'atome. Ce déséquilibre dans les couches électroniques profondes provoque leur réarrangement et se traduit soit par l'émission d'un rayonnement X caractéristique du matériau soit par l'émission d'un électron Auger (figure 1).

Les électrons ainsi produits lors de ce processus d'interaction sont appelés : "électrons chauds" ou "électrons primaires" car ils emportent une quantité importante d'énergie.

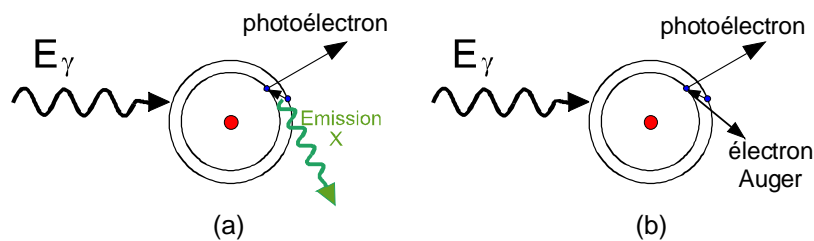


Figure 1 : (a) mécanisme d'émission d'un photoélectron et d'un rayonnement X.
(b) mécanisme d'émission d'un photoélectron et d'un électron Auger

2.1.2 Diffusion Compton

La diffusion Compton ou l'effet Compton correspond à l'interaction d'un photon incident avec un électron, considéré comme libre, d'un atome d'une structure. L'électron est alors éjecté avec une certaine vitesse et le photon incident est diffusé (figure 3).

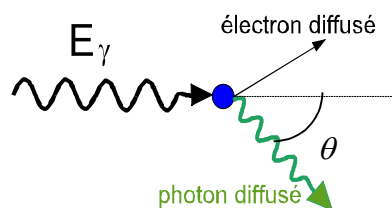


Figure 2 : Mécanisme de l'interaction Compton.

L'énergie emportée par le photon diffusé va dépendre de l'angle θ de diffusion. Elle peut s'exprimer suivant la relation (1).

$$E_{diffusée} = E_{initiale} \left[1 + \frac{E_{initiale}}{511} (1 - \cos \theta) \right]^{-1} \quad (1)$$

avec θ = angle de diffusion

Par exemple, pour une énergie initiale de 20 keV et en fonction de l'angle de diffusion, l'énergie du photon diffusé correspond aux valeurs suivantes :

Angle de diffusion	45°	90°	135°	180°
Energie diffusée	19,77 keV	19,25 keV	18,75 keV	18,55 keV

Par la suite, et en fonction de son énergie restante, le photon diffusé pourra à nouveau effectuer une diffusion Compton avec un autre électron ou bien subir une absorption photoélectrique.

Dans des matériaux à Z léger (comme c'est généralement le cas pour les supports de source), l'effet photoélectrique interne est prédominant pour des énergies comprises entre l'énergie de liaison de l'électron (quelques eV) et 20 keV environ. Lorsque l'énergie incidente du photon augmente, l'effet photoélectrique interne cède progressivement la place à l'effet Compton.

Ce phénomène est parfaitement illustré sur la figure 3 où les évolutions des coefficients d'atténuation massiques en fonction de l'énergie sont représentés pour chaque type d'interaction et pour deux matériaux classiquement utilisés dans la fabrication des supports de source : le Plexiglas et le Polyéthylène.

Ces courbes montrent qu'à 30 keV et dans les matériaux à Z léger environ 60% des photons interagissent par absorption photoélectrique, les 40% restant interagissent par effet Compton. Ce mécanisme d'absorption n'est donc plus négligeable pour des énergies supérieures à une dizaine de keV. Dans cette gamme d'énergie, et selon les matériaux, près d'un photon sur 10 interagit par diffusion Compton d'où la nécessité de bien prendre en compte ce phénomène d'absorption.

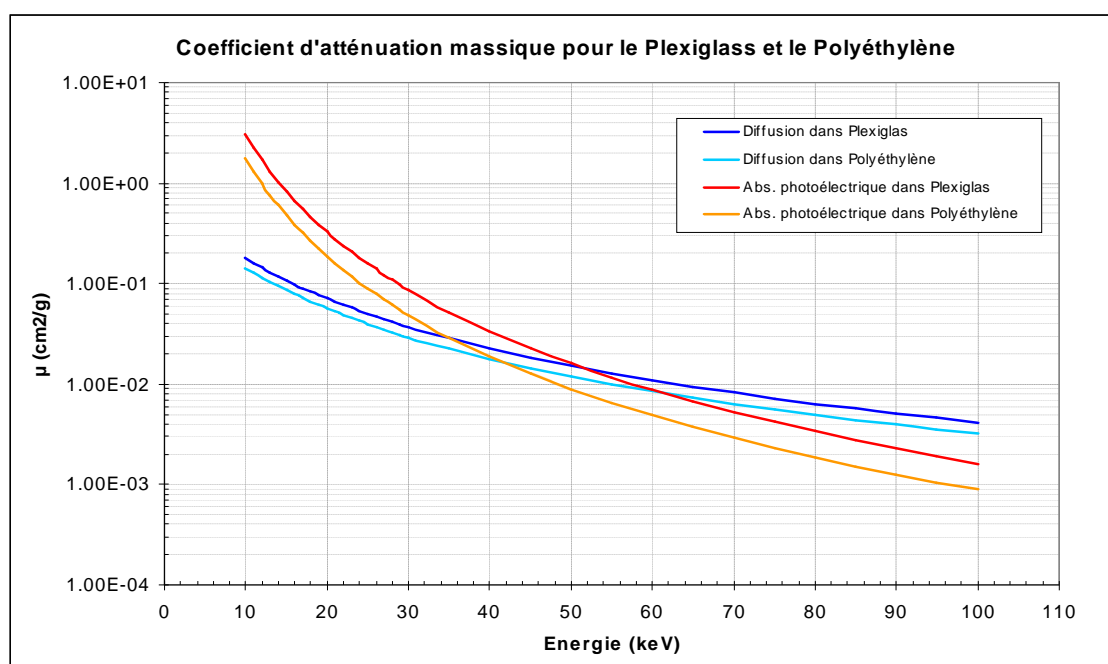


Figure 3 : Variation des coefficients d'atténuation massique pour le Plexiglas et le Polyéthylène

2.2 Mise en évidence du phénomène – Conséquences sur les spectres

Les photons émis par la source radioactive sont distribués dans tout l'espace et seule une petite partie peut être vue par le détecteur. On parle alors d'angle solide de détection.

Dans le cas de la diffusion Compton, certains photons émis dans une direction différente de celle du détecteur sont quand même détectés. En effet, lors du phénomène de diffusion, nous avons vu que les photons incidents subissaient un changement de direction ainsi qu'une perte d'énergie. Ils peuvent donc interagir avec les structures proches de la source (film du support ou structure de maintien) et être diffusés dans une direction comprise dans l'angle solide de détection.

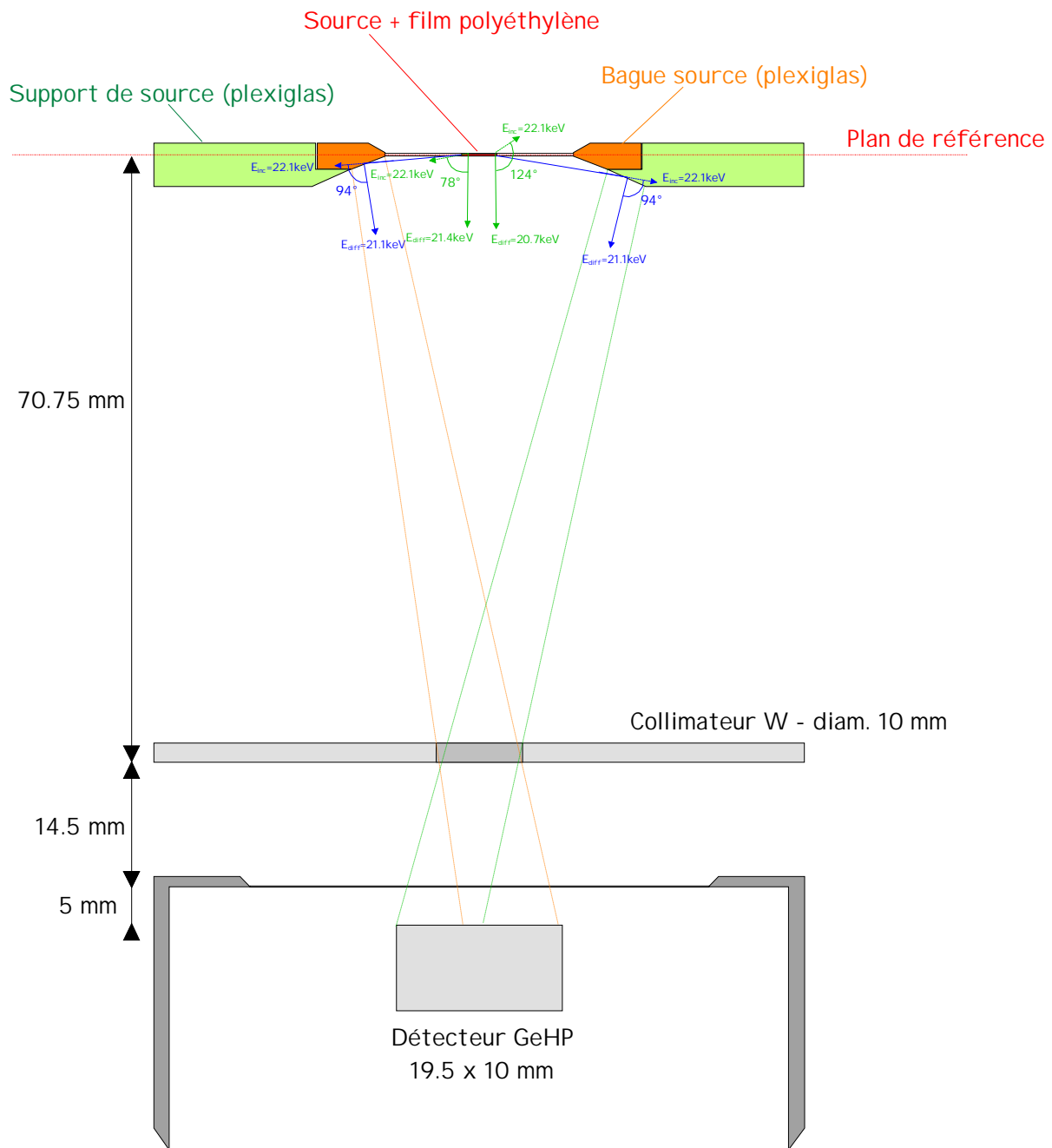


Figure 4 : Exemple de lieux de diffusion possibles sur les supports de source

Le schéma de la figure 4 donne un exemple des lieux de diffusion possibles des photons X/gamma dans les différents supports de sources pour le cas d'une géométrie simple. Compte tenu de l'angle solide de détection, certains photons diffusés peuvent être vus par le détecteur. On peut observer par exemple qu'une diffusion avec un angle voisin de 90° sur la bague de la source ou sur le support en plexiglas amène directement les photons diffusés dans la direction du détecteur. Ce phénomène est parfaitement visible sur les spectres. Un exemple en est donné sur la figure 5 où un spectre X consécutif à la désintégration du ^{109}Cd est montré (région X_k).

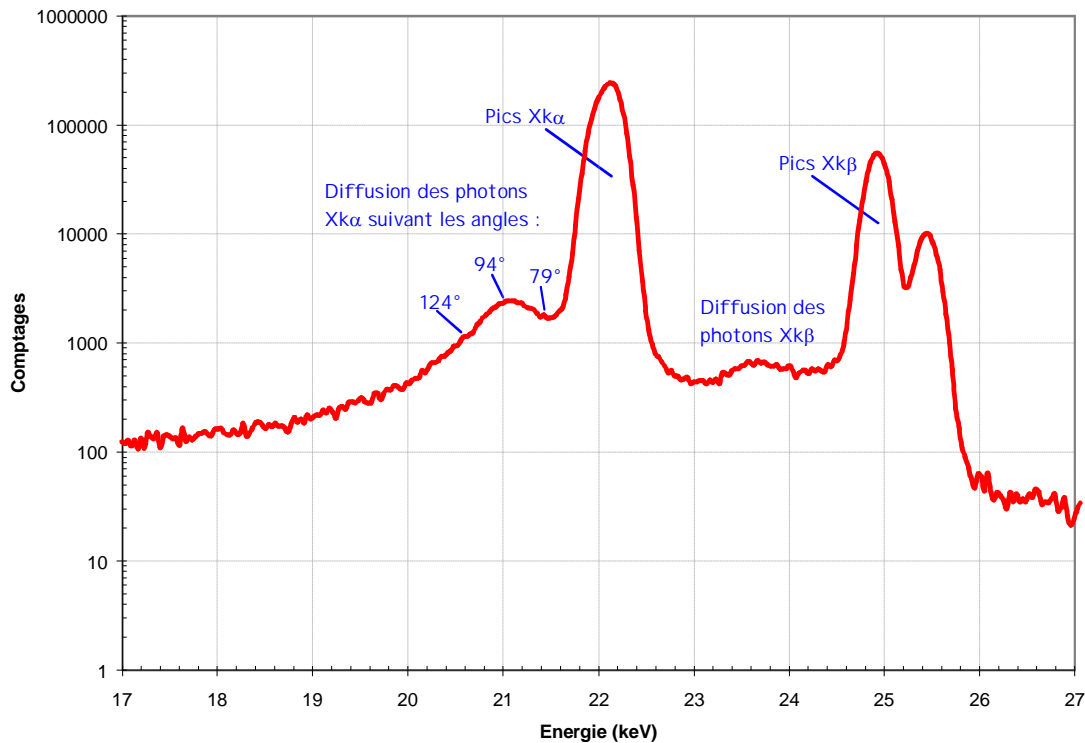


Figure 5 : Exemple d'un spectre de ^{109}Cd avec présence de bosses de diffusion

Afin de mettre en évidence ce phénomène de diffusion dans les supports, une série de mesures a été réalisée en retirant progressivement chaque support et en les remplaçant par de simples morceaux de fil pour maintenir en place la source et son film de polyéthylène. De cette manière, la quantité de matière entourant l'espace proche de la source se trouve considérablement réduit, ce qui limite les sites de diffusion.

Les spectres représentés sur la figure 6 illustrent les résultats obtenus.

Ces résultats montrent l'importance de la diffusion dans les supports. De plus, on aperçoit une différence significative entre les deux surfaces nettes obtenues avec et sans la bosse de diffusion. Pour cet exemple et ce mode de surfaçage (appelé méthode des trapèzes), la variation s'élève à 0,5 %.

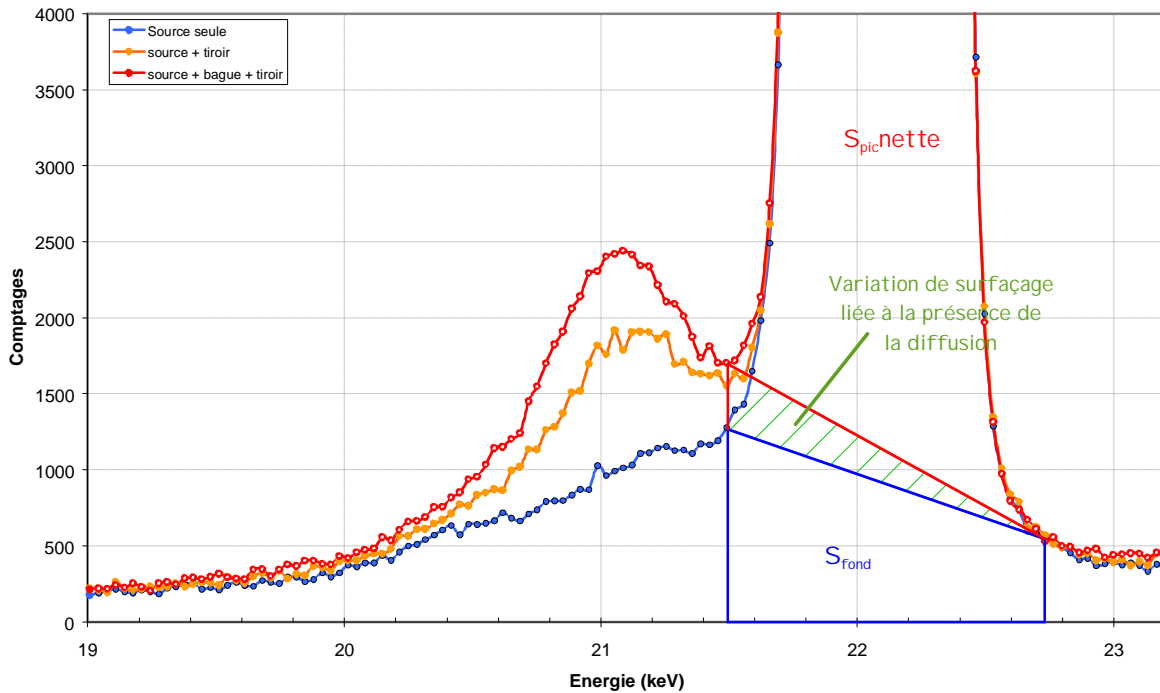


Figure 6 : Variation de la diffusion en fonction de la quantité de matière autour de la source

A partir de l'énergie moyenne incidente ($22,1 \text{ keV}$) des photons Xk_{α} et de la largeur de la bosse de diffusion, il est possible de calculer l'angle de diffusion préférentiel ainsi que les angles extrêmes à l'aide de l'équation (2) découlant directement de l'équation (1) :

$$\theta = \text{Ar cos} \left[1 - \frac{511}{E_{\text{initiale}}} \left(\frac{E_{\text{initiale}}}{E_{\text{diffusée}} - 1} \right) \right] \quad (2)$$

Cela conduit aux valeurs suivantes :

- Angles de diffusion préférentiels : 94° ($E_{\text{diffusée}} = 21,12 \text{ keV}$)
- Angles limites : 78° ($E_{\text{diffusée}} = 21,37 \text{ keV}$) et 124° ($E_{\text{diffusée}} = 20,71 \text{ keV}$)

Les spectres de la figure 6 montrent que la variation du nombre d'impulsions est moins importante aux angles extrêmes ($E=20,7$ et $21,4 \text{ keV}$) qu'à l'angle préférentiel ($E=21,1 \text{ keV}$) à mesure que les différents supports sont retirés. Il existe un rapport 2,4 à $21,1 \text{ keV}$ entre le spectre enregistré avec tous les supports (rouge) et celui réalisé avec la source et son film de polyéthylène (bleu). Ce rapport n'est plus que de 1,6 à $20,7 \text{ keV}$ et 1,3 à $21,4 \text{ keV}$. Cela traduit le fait que les photons diffusés aux angles extrêmes sont majoritairement issus d'une interaction dans le film de polyéthylène de la source plutôt que dans la bague ou le support en plexiglas. Pour réduire un peu plus le fond résiduel, il conviendrait donc de diminuer encore la quantité de matière entourant la source ce qui s'avère difficile.

2.3 Autre exemple de spectre

En utilisant l'équation (1), il est possible de connaître l'énergie des photons diffusés à 94° pour différentes énergies incidentes (voir tableau ci-dessous). Les valeurs obtenues montrent que plus l'énergie incidente diminue, plus la bosse de diffusion se rapproche du pic correspondant à l'énergie initiale.

Angle diff.(°) : 94		
Eincidente (keV)	Ediffusée (keV)	Ecart Einc-Ediff (keV)
10	9.79	0.21
15	14.54	0.46
20	19.20	0.80
25	23.76	1.24
30	28.23	1.77
35	32.61	2.39
40	36.91	3.09
45	41.13	3.87
50	45.26	4.74
55	49.32	5.68
60	53.30	6.70

Ceci a pour conséquence de rendre plus difficile la séparation entre la bosse de diffusion et le pic principal aux faibles énergies. Ce phénomène est parfaitement visible sur la figure 7 où un spectre de $^{93}\text{Nb}^m$ est représenté. L'énergie moyenne Xk_α du Nb à 16,6 keV est perturbée par la présence du pic de diffusion dont l'amplitude maximale est proche de 16 keV et dont la distribution en énergie est importante. En effet, en utilisant à nouveau l'équation (1), on peut calculer cette distribution correspondant aux angles limites de diffusion de 0° à 180°. Les valeurs obtenues montrent que le pic de diffusion se répartit entre 15,5 keV et 16,6 keV.

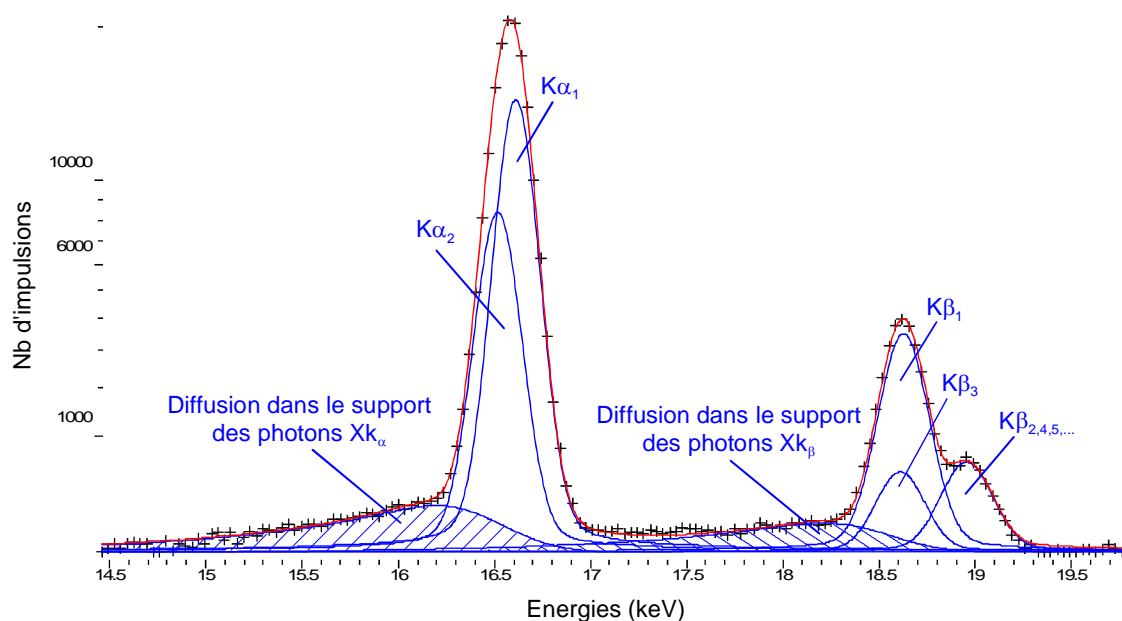


Figure 7 : Spectre de $^{93}\text{Nb}^m$

Lorsque l'énergie incidente augmente, la bosse de diffusion s'éloigne peu à peu du pic principale comme le montre l'exemple du spectre de ^{152}Eu de la figure 8.

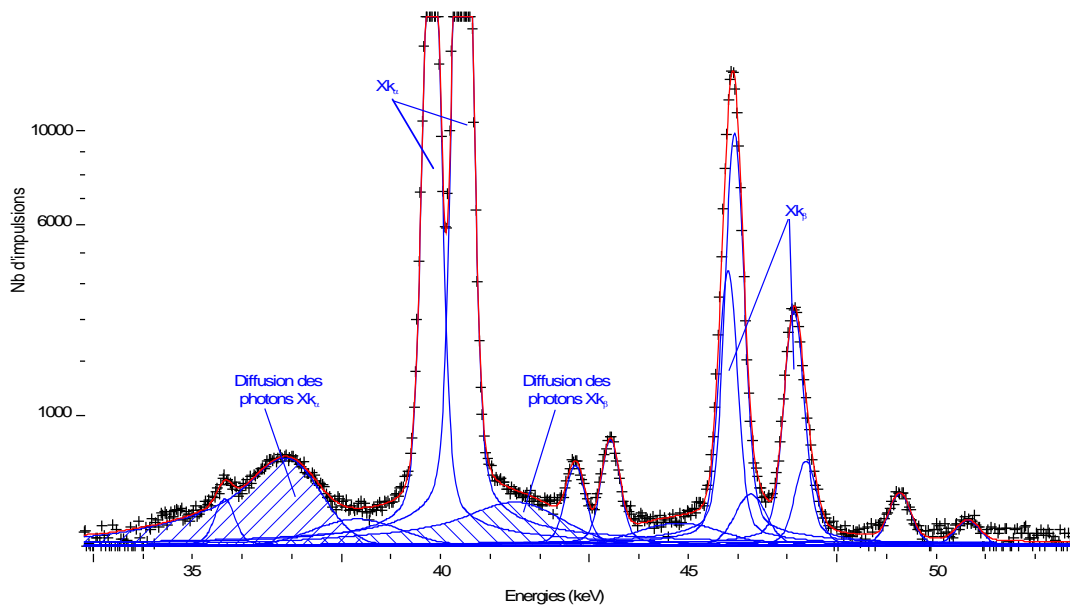


Figure 8 : Spectre de ^{152}Eu

3 Considérations métrologiques

Face à ce problème de diffusion, ce qui intéresse l'utilisateur, c'est la conséquence d'un tel phénomène sur la mesure de la surface des pics principaux. L'exemple de la figure 6 nous a permis de constater qu'une différence de près de 0,5 % pouvait se produire suivant le type de support de source utilisé. Cette valeur n'est qu'un exemple parmi tant d'autres mais il permet de voir qu'un changement de support peut induire des biais de mesure non négligeables.

Cela étant, il ne faut pas oublier que la mesure par spectrométrie X/gamma est une méthode dite "relative", c'est à dire que les résultats d'activités fournis suite à une mesure sont obtenus à l'aide d'un étalonnage précis. Celui-ci est réalisé dans des conditions de géométrie (source/support de source/détecteur) spécifiques et bien définies.

Afin de s'assurer de la reproductibilité des mesures entre des échantillons à caractériser et les sources étalons utilisées pour l'étalonnage en rendement, il convient de garder dans les deux cas la même géométrie et le même environnement de mesure. En respectant cette règle simple, la mesure d'un échantillon ne subira pas de biais causé par une éventuelle variation dans la géométrie des supports.

Toutefois, des précautions particulières sont nécessaires lors du surfacage des pics. Il faut veiller à utiliser une largeur de région d'intérêt similaire à celle utilisée lors de l'étalonnage ainsi que la même méthode d'extraction du fond (méthode des trapèzes ou fonction S par exemple). De plus, il est important de s'assurer que la résolution en énergie du détecteur n'a pas varié entre la mesure et l'étalonnage. Un élargissement excessif des pics modifierait l'empiètement entre la bosse de diffusion et le pic principal, ce qui aurait pour conséquence une variation de surfacage (prise en compte d'une partie plus importante de la bosse de diffusion).

Le problème est tout autre lors de l'étude du schéma de désintégration d'un radionucléide. Pour ce cas bien précis, il est nécessaire de séparer chaque composante afin d'en déterminer les caractéristiques (largeur des pics, amplitude, position). La présence des bosses de diffusion peut masquer des pics secondaires de faible amplitude ou bien encore interférer avec d'autres pics. C'est le cas par exemple de la diffusion des photons de la région Xk_{β} du ^{152}Eu qui se superpose avec la région Xk_{α} (figure 8). Dans de tel cas, l'exploitation précise de ces régions d'énergie reste très délicate et nécessite l'utilisation de logiciels de déconvolution très performants.