



NOTE TECHNIQUE



LNE-LNHB

Référence de la note

LNHB 2008/05

TITRE : La spectrométrie de photons au LNHB : Principes et applications

RESUME : La présente note rappelle le principe de la spectrométrie gamma et analyse les principales causes d'incertitude ; un tableau résume les caractéristiques des installations utilisées au LNHB.

A	08/01/2008	Emission initiale (refonte NT LNHB 065/2006)		
IND.	DATE	OBJET		
	Auteur	Vérificateurs	Chef de laboratoire	Chef du Service
Noms	Marie-Christine Lépy	Johann Plagnard Muriel Moune	Eric Verdeau	François Damoy
Dates	08/01/2008	23/01/2008	21/1/2008	29-1-08
Signatures				

SOMMAIRE

1 PRINCIPE	3
1.1 Etalonnage en rendement	3
1.2 Mesure d'activité	4
1.3 Mesure d'intensité d'émission photonique	5
1.4 Limite de détection	5
2 INCERTITUDES	6
2.1 Bilan- type d'incertitude	6
2.2 Exemple : étalonnage d'une source ponctuelle de ^{137}Cs d'activité 10^4 Bq	8
3 VALIDATIONS, COMPARAISONS	9

1 Principe

L'interaction des photons avec le détecteur à semi-conducteur conduit à une impulsion électrique d'amplitude proportionnelle à l'énergie des photons incidents. L'enregistrement de l'ensemble de ces impulsions fournit un spectre en énergie avec des pics aux énergies caractérisant les radionucléides. Cette méthode permet donc d'identifier un radionucléide et d'en déterminer l'activité.

Les principales utilisations de la spectrométrie de photons au LNHB sont les suivantes :

- contrôle de pureté radioactive,
- mesure d'activité, pour des prestations externes ou des comparaisons nationales ou internationales,
- mesure d'intensités d'émission photonique.

1.1 *Étalonnage en rendement*

Pour cela, le détecteur et sa chaîne électronique associée sont étalonnés au moyen de sources étalons caractérisées soit en activité (Bq), soit en flux de photons (s^{-1}). Ces étalons sont généralement des radionucléides émetteurs multigammas (^{133}Ba , ^{152}Eu) ou un mélange de radionucléides n'émettant chacun qu'un nombre limité d'énergies (^{137}Cs , ^{54}Mn , ^{60}Co ...). Le nombre d'impulsions recueillies dans un pic (dit "d'absorption totale"), correspondant à une énergie E , est proportionnel au nombre de photons d'énergie E émis par la source et au rendement d'absorption totale du détecteur pour l'énergie E :

$$N_{\text{net}}(E) = A \cdot I(E) \cdot t \cdot R_p(E) \cdot \prod C_i \quad [1]$$

N_{net} Comptage net enregistré sous le pic correspondant à la transition d'énergie E , (surface considérée après soustraction du mouvement propre et du fond) (s^{-1}),

A Activité du radionucléide étalon (exprimée en becquerels),

$I(E)$ Intensité d'émission de la raie d'énergie E ,

t Durée d'acquisition (temps actif en secondes),

$R_p(E)$ Rendement d'absorption totale à l'énergie E considérée,

$\prod C_i$ Produit de facteur correctifs inhérents aux conditions de mesure :

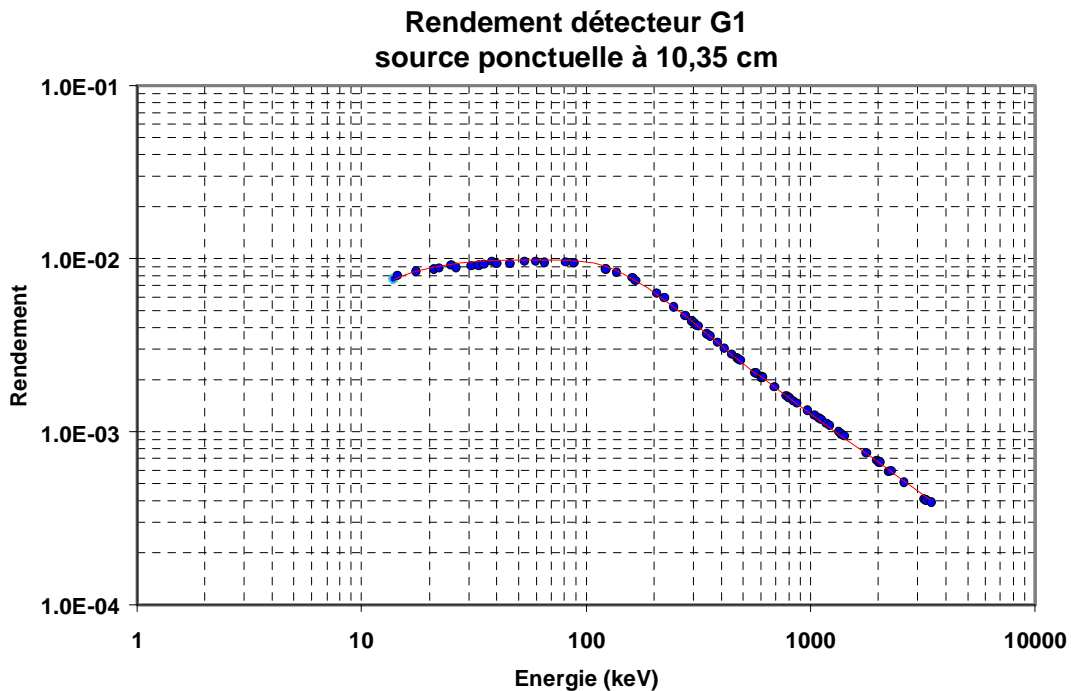
- correction de décroissance,
- pertes de comptage par coïncidences,
- correction d'atténuation et d'auto-absorption,

- correction de pertes de comptage par effets d'empilement et de temps mort,
- correction de géométrie.

Le rendement d'absorption totale, $R_p(E)$ est déterminé en inversant la relation [1] :

$$R_p(E) = \frac{N_{\text{net}}}{A \cdot I(E) \cdot t} \cdot \prod C_i \quad [2]$$

En utilisant différents radionucléides, on obtient, pour une géométrie donnée, des points d'étalonnage donnant le rendement d'absorption totale de l'installation en fonction de l'énergie de chaque raie gamma (ou X) considérée (voir exemple ci-dessous). Une courbe générale est obtenue par l'ajustement d'une expression polynomiale (par exemple) aux valeurs expérimentales obtenues au moyen des étalons.



Cette courbe étant établie, il suffit d'effectuer des contrôles d'étalonnages périodiques en quelques points judicieusement choisis sur la courbe. Ce contrôle s'effectue avec des sources étalons de ^{60}Co , de ^{152}Eu ou de ^{241}Am généralement caractérisées par des méthodes directes.

1.2 Mesure d'activité

L'activité A en becquerels d'un radionucléide se calcule en inversant à nouveau la formule [1] :

$$A = \frac{N_{\text{net}}}{I(E) \cdot t \cdot R_p(E)} \cdot \prod C_i \quad [3]$$

1.3 Mesure d'intensité d'émission photonique

Lorsque l'on souhaite déterminer l'intensité d'émission photonique caractérisant une raie d'énergie E , pour un radionucléide d'activité connue, il suffit de reprendre la formule [1] sous la forme :

$$I(E) = \frac{N_{\text{net}}}{A \cdot t \cdot R_p(E)} \cdot \prod C_i \quad [4]$$

1.4 Limite de détection

Dans le cas où un radionucléide n'est pas décelé dans un spectre, une information intéressante est la limite de détection associée. Selon la norme ISO 11929-3:2000 de Juillet 2000, la limite de détection spécifie la contribution minimale de l'échantillon pouvant être détectée, avec une probabilité d'erreur donnée. Cette valeur est directement liée aux conditions de mesures (comptage dans la région d'intérêt, durée de la mesure) et doit être établie pour chaque spectre.

La formule ci-dessous correspond à la limite de détection exprimée en impulsions par seconde dans le spectre (s^{-1}).

$$LD = \frac{8,76}{t} \sqrt{B * FWHM} \quad [4]$$

Où t est la durée de la mesure (temps actif en secondes),

B est le contenu moyen d'un canal de la région correspondant à l'énergie E (à estimer en prenant une région de 10 canaux),

et $FWHM$ est la résolution (en canaux), valeur spécifique à chaque détecteur et dépendant de l'énergie.

Si l'on souhaite remonter à un nombre de photons émis par la source, par seconde (s^{-1}), il convient d'inclure le rendement du détecteur, qui dépend également de l'énergie.

La limite de détection « pratique » est alors :

$$LD = \frac{8,76}{t \cdot R_p(E)} \sqrt{B * FWHM} \quad [5]$$

où $R_p(E)$ est le rendement d'absorption totale pour l'énergie considérée.

Enfin, si l'on s'intéresse à un radionucléide particulier, la limite de détection correspondante peut s'exprimer directement en becquerels, il convient alors de prendre en compte la zone d'énergie correspondant à l'intensité d'émission la plus importante du radionucléide considéré, et de diviser la limite de détection en coups par seconde par l'intensité d'émission, $I_{\gamma}(E)$.

$$LD = \frac{8,76}{t \cdot R^P(E) \cdot I_{\gamma}(E)} \sqrt{B * FWHM} \quad [6]$$

Ceci est la limite de détection en activité (donc exprimée en becquerels) dans l'échantillon et doit être calculée pour chaque radionucléide susceptible d'être présent dans l'échantillon.

2 Incertitudes

2.1 Bilan- type d'incertitude

Le tableau ci-dessous analyse les diverses causes d'incertitude inhérentes à un mesurage au moyen d'une installation de spectrométrie gamma :

Grandeur	Analyse de l'incertitude
Comptage	L'incertitude est déterminée au moyen d'une méthode de type B (loi de Poisson)
Surface du pic	Elle dépend principalement de la forme du fond sous le pic (droite ou fonction "esse"), des bornes adoptées pour définir les pics, des fronts Compton des différents pics, de la présence d'interférences.
Intensité d'émission photonique	La donnée de base pour ce calcul est l'incertitude extraite de la bibliothèque de données nucléaires NUCLEIDE.
Rendement d'absorption totale	La courbe de rendement d'absorption totale en fonction de l'énergie est obtenue selon la méthode d'ajustement par les moindres carrés. Le code de calcul EFFIGIE interpole la valeur du rendement à l'énergie du pic considéré et calcule l'incertitude associée.
Activité	L'incertitude de l'étalon de référence ou de travail utilisé est fournie avec sa valeur d'activité, et dépend de la méthode directe utilisée pour le caractériser.

Grandeur	Analyse de l'incertitude
Correction de décroissance	<p>La correction de décroissance entre la date de référence de l'activité et la date de mesure s'exprime :</p> $C_T = \exp\left(-\ln(2) \cdot \frac{t}{T}\right)$ <p>où t est temps écoulé entre la date de référence et la date de mesure, et T est la période du radionucléide.</p> <p>Incertitude relative : $\frac{\Delta C_T}{C_T} = \frac{\ln(2) \cdot t}{T} \frac{\Delta T}{T}$</p> <p>Dans le cas d'un radionucléide de période T courte devant la durée de mesure, il est nécessaire de corriger la surface nette mesurée pendant la durée d'acquisition t_m, par le facteur correctif C_{dec} pour tenir compte de la décroissance pendant la mesure :</p> $C_{dec} = \frac{\ln(2) \cdot \frac{t_m}{T}}{1 - \exp\left(-\ln(2) \cdot \frac{t_m}{T}\right)}$ <p>Il est généralement possible d'éviter ce facteur correctif en prenant comme date de mesure la date correspondant à la moitié de la durée de l'acquisition.</p> <p>Les incertitudes associées à ces deux corrections sont généralement négligeables devant les autres incertitudes.</p>
Correction de coïncidences γ - γ , γ -X et X-X	<p>Elle dépend du schéma de désintégration et des rendements totaux et d'absorption totale (c'est-à-dire, de la géométrie).</p> <p>Les corrections de coïncidences $\gamma\gamma$, $X\gamma$, et XX sont déterminées par calcul en faisant appel au logiciel ETNA. Ce calcul implique un étalonnage en rendement total et en rendement d'absorption totale.</p> <p>Dans le cas général, les conditions de mesures sont telles que la correction de coïncidences est inférieure à 2 %. Dans les autres cas, l'incertitude de la correction due à la méconnaissance des corrélations angulaires est d'environ 10 % du terme correctif.</p>
Correction d'atténuation	<p>La correction d'atténuation des photons à travers un écran d'épaisseur x est issue de la loi de Beer-Lambert :</p> $C_{att} = e^{-\mu x}$ <p>où μ est le coefficient d'atténuation linéique (cm^{-1}) de l'élément absorbant.</p>

Grandeur	Analyse de l'incertitude
Correction d'autoabsorption	<p>La correction d'auto-absorption dans un échantillon d'épaisseur x est donnée par l'expression :</p> $C_{aut} = \frac{1 - e^{-\mu x}}{\mu x}$ <p>où μ représente le coefficient d'atténuation linéique de l'échantillon. Ces termes correctifs dépendent de la nature et de l'épaisseur de l'échantillon et des écrans situés entre l'échantillon et le détecteur ; les valeurs μ sont obtenues à partir de tables (table des coefficients d'atténuation XCOM). On minimise ces termes correctifs, et par conséquent l'incertitude correspondante, en se plaçant dans des conditions de mesure proches des conditions d'étalonnage.</p>
Correction d'empilement et de temps mort	<p>On peut apprécier l'importance de cette correction en étudiant l'influence d'un taux d'impulsions sur le comptage d'un pic de référence en fonction du temps mort. L'écart observé entre les résultats à taux de comptage élevé et faible est représentatif de la correction à apporter.</p>
Correction de géométrie	<p>Le facteur de géométrie se détermine au moyen de plusieurs paramètres ; dans le cas où la distance source-détecteur est parfaitement maîtrisée, l'excentricité et le diamètre du dépôt jouent un rôle non négligeable.</p> <p>La correction peut être appréciée au moyen d'un calcul analytique faisant intervenir comme données de départ les valeurs des rendements en source ponctuelle (ETNA).</p> <p>Elle peut aussi être appréciée expérimentalement en plaçant une source ponctuelle aux distances maximales admissibles par rapport à l'axe du détecteur.</p>

2.2 Exemple : étalonnage d'une source ponctuelle de ^{137}Cs d'activité 10^4 Bq

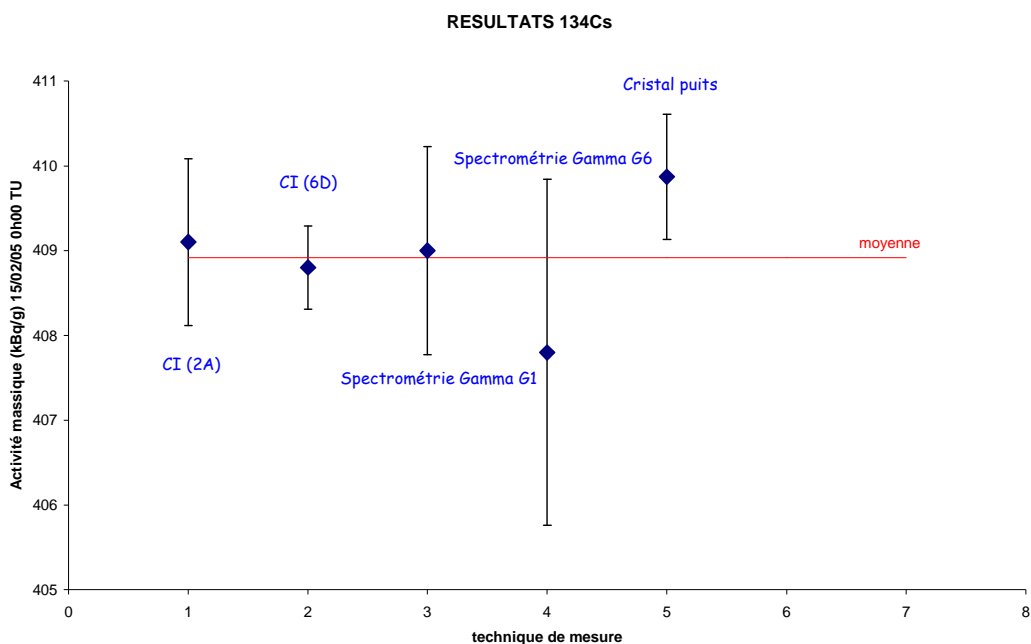
Instrument et références utilisés : spectromètre gamma G1 (détecteur Ge-HP coaxial 120 cm^3 + analyseur) étalonné en rendement en fonction de l'énergie avec des sources étalons multigammas de ^{133}Ba , ^{152}Eu et autres émetteurs γ placées à une distance déterminée du détecteur.

Grandeur	Incertitude type relative
Surface du pic	0,1 %
Intensité d'émission γ	0,3 %
Rendement d'absorption totale	0,4 %
Correction de coïncidences $\gamma - \gamma$	sans objet
Correction d'atténuation	négligeable
Corrections d'empilement et de temps mort	négligeable
Correction de géométrie	0,1 %
Correction de décroissance	négligeable

Incertitude composée relative : $u_c(A) / A = 0,5 \%$

3 Validations, comparaisons

La méthode de spectrométrie de photons étant utilisée pour de nombreuses applications métrologiques, (mesure de paramètres de schéma, analyse de pureté, mesurage d'activité, en particulier pour des comparaisons internationales), elle se trouve en permanence comparée à d'autres méthodes (notamment absolues), ce qui assure sa validité. Ceci est illustré dans les deux figures ci-dessous où les résultats de mesure d'activité massique de ^{134}Cs et ^{111}In obtenus par spectrométrie gamma sont comparés aux résultats obtenus par d'autres méthodes de mesure.



Résultats In-111

