

Interaction des photons avec la matière et forme des spectres en spectrométrie de photons X et γ

1. Interaction des photons avec la matière

Les photons peuvent parcourir d'importantes distances en fonction de leur énergie entre chaque interaction et perdent de l'énergie au cours de leur parcours. Les interactions correspondent à tous les processus qui modifient l'énergie et/ou la direction du photon. L'atténuation d'un flux de photon collimaté arrivant sous incidence normale sur un matériau d'épaisseur x suit une loi exponentielle :

$$I = I_0 e^{-\mu x}$$

I_0 et I représentent respectivement les flux de photons incidents et transmis, x l'épaisseur du matériau traversé en cm et μ le coefficient d'atténuation linéique qui traduit la probabilité d'interaction d'un photon par unité de longueur, exprimé en cm^{-1} . Ce coefficient d'atténuation linéique est lié à la section efficace d'interaction (grandeur microscopique) et dépend du milieu et de l'énergie du rayonnement. Il est possible d'obtenir les valeurs des coefficients d'atténuation à l'aide de tables telles que XCOM du NIST (M.J. Berger, 2010). Pour des mélanges plus complexes ou de composition inconnue ou par souci de précision, une installation dédiée a été mise en place au LNHB afin de mesurer directement le coefficient d'atténuation linéique d'un matériau (cf. § 5). Les principaux processus d'interaction des photons avec la matière sont les suivants :

- L'effet photoélectrique ;
- La diffusion Compton ;
- La création de paires ;
- La diffusion élastique (Rayleigh).

L'occurrence de ces trois types d'interactions dépend du numéro atomique de l'élément et de l'énergie du photon incident (cf. Figure 1).

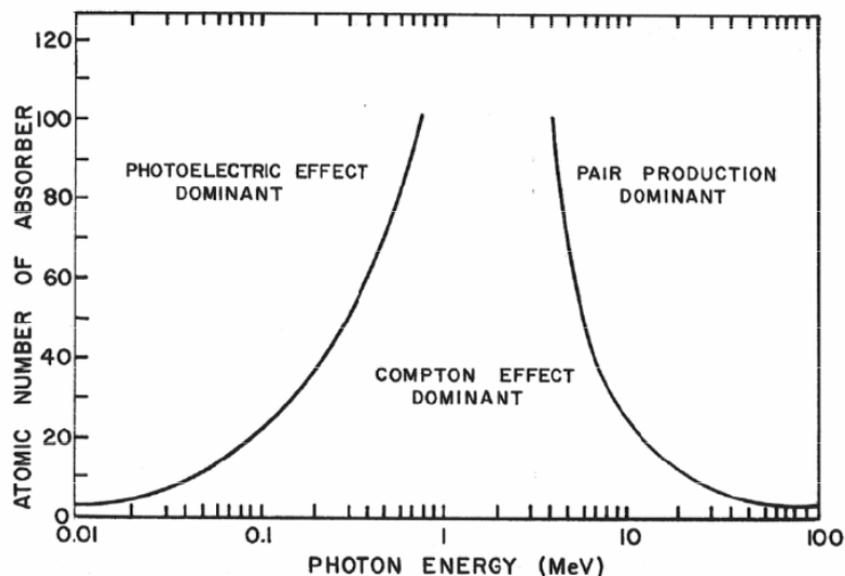


Figure 1 : Prédominance des processus d'interaction des photons avec la matière en fonction de leur énergie et du milieu traversé (Evans, 1955)

1.1. L'effet photoélectrique

Ce processus est le plus intéressant pour la spectrométrie γ , il correspond au transfert intégral de l'énergie du photon incident ($E = h\nu_0$) à un électron d'une couche interne du cortège électronique (cf. Figure 2). L'énergie du photon incident est totalement absorbée par un électron qui est alors éjecté (photoélectron) avec une énergie cinétique T dépendant de l'énergie du photon incident et de de l'énergie de liaison de cet électron.

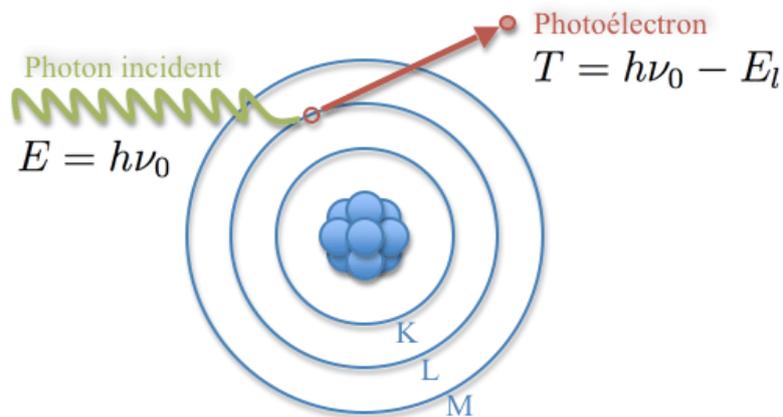


Figure 2 : Schéma de l'effet photoélectrique
(Images de Stan Nicol - Internet)

Ce phénomène dépend de l'atome cible et sa section efficace présente une forte dépendance avec le numéro atomique de l'élément, variant en Z^5 . À basse énergie, la section efficace de l'effet photoélectrique présente des discontinuités (cf. Figure 3) correspondant aux énergies de liaison des diverses couches électroniques.

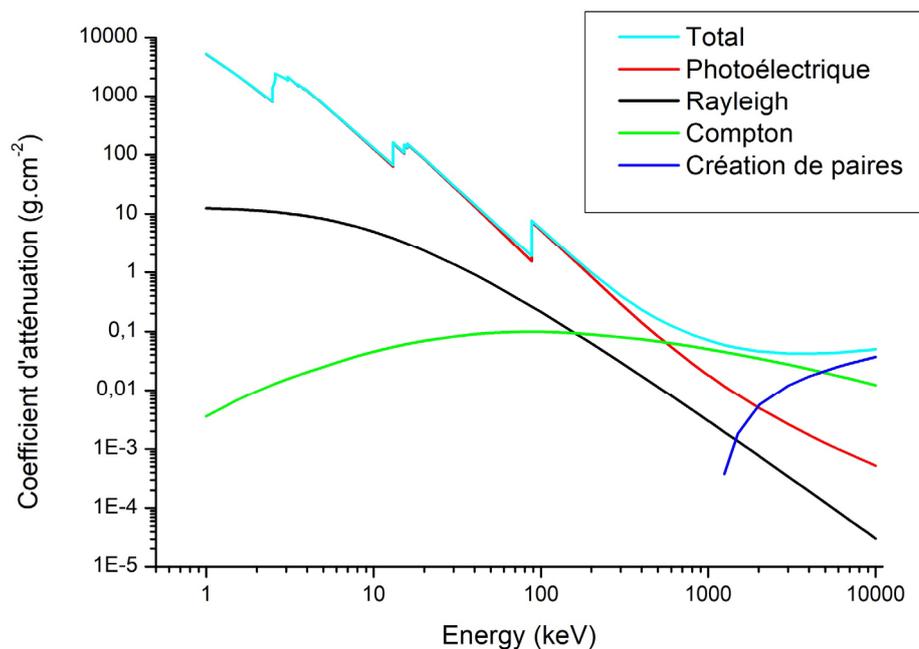


Figure 3 : Coefficients d'atténuation en fonction de l'énergie pour le plomb (XCOM)

Tous les phénomènes extrayant un électron d'une couche atomique sont suivis du réarrangement électronique de l'atome, comblant la lacune. Il y aura alors l'émission de photons X de fluorescence ou bien d'électrons Auger dont l'énergie est caractéristique de l'élément.

1.2. La diffusion Compton

Ce processus correspond à la diffusion inélastique d'un photon sur un électron d'un atome. Il s'agit d'un des phénomènes perturbateurs pour la spectrométrie γ car il induit un fond important dans le spectre (cf. § 2). Au cours de cette interaction, le photon incident est diffusé selon un angle θ par rapport à sa direction originelle et cède une partie de son énergie à l'électron. Ce dernier est alors éjecté de l'atome avec une énergie cinétique T , selon un angle ϕ par rapport à la direction incidente (cf. Figure 4). Ce type d'interaction est peu dépendant du milieu, et évolue en Z/A .

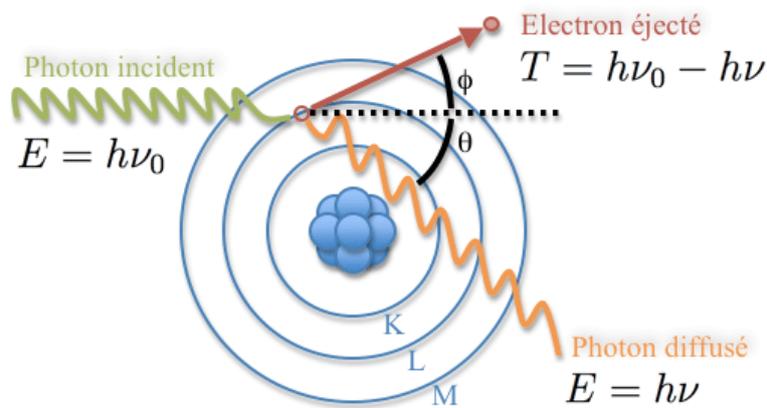


Figure 4 : Schéma de la diffusion Compton
(Images de Stan Nicol - Internet)

1.3. La création de paires

Ce processus consiste en la conversion de l'énergie d'un photon en une paire positon-électron sous l'action de l'intense champ coulombien qui entoure le noyau de l'atome (cf. Figure 5). Ce processus n'est énergétiquement possible que si l'énergie incidente est supérieure à la somme des masses de l'électron et du positon, soit $E_{seuil} = 2m_e c^2 = 1,022 \text{ MeV}$.

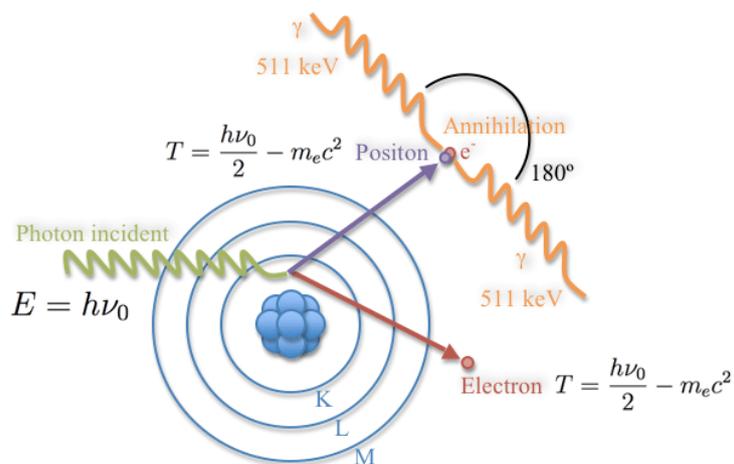


Figure 5 : Schéma de la création de paires suivie de l'annihilation
(Images de Stan Nicol - Internet)

Le positon émis au cours de ce processus va rapidement interagir avec le milieu et s'annihiler avec un électron, en produisant deux photons de 511 keV émis à 180° l'un de l'autre. La probabilité de production de paires est d'autant plus importante que le numéro atomique du milieu est élevé, proportionnel à Z^2 , et que l'énergie des photons est grande ($E > E_{seuil}$). Ce phénomène reste gênant pour la spectrométrie γ , mais est utilisé dans d'autres domaines spécifiques (Imagerie TEP).

1.4. La diffusion élastique (Rayleigh)

La diffusion élastique transfère une énergie négligeable à l'atome, le photon est dévié de sa trajectoire initiale sans perdre d'énergie.

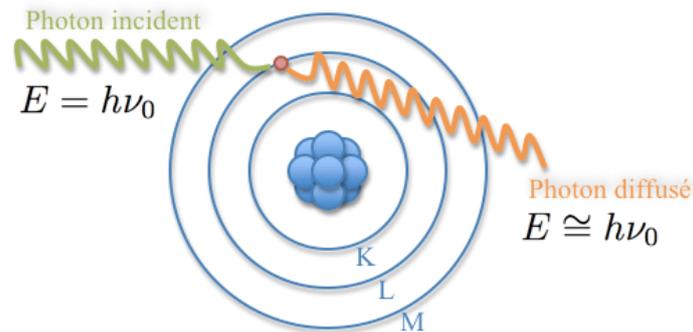


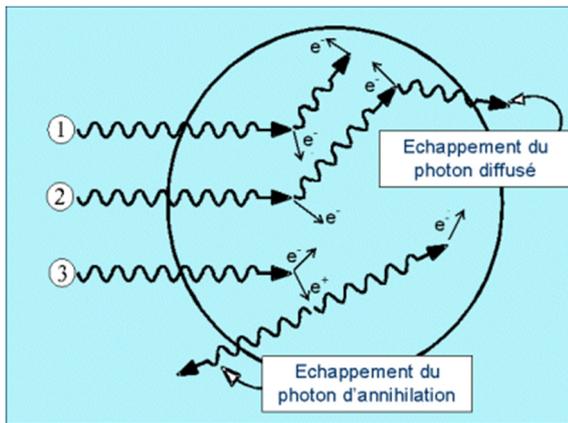
Figure 6 : Schéma de la diffusion de Rayleigh
(Images de Stan Nicol - Internet)

Ce type d'interaction dépend du numéro atomique (fonction en Z^2) ; elle n'a pas de répercussion sur les spectres.

2. Mesure en spectrométrie gamma, la forme des spectres.

Quel que soit le processus initial, l'énergie incidente est transmise totalement ou partiellement à un électron du matériau du détecteur. Les interactions successives de ce dernier créent dans le semi-conducteur un nombre de paires électron-trou proportionnel à l'énergie initialement transférée.

La collection de ces charges aux bornes du détecteur génère des impulsions électriques d'amplitude proportionnelle à l'énergie des électrons primaires mis en mouvement : l'ensemble de ces informations constitue le spectre en énergie qui se caractérise en particulier par les pics d'absorption totale (position = énergie, surface = activité) correspondant à l'absorption de toute l'énergie incidente, par un seul effet photoélectrique ou par une succession d'effets.



1. Absorption totale : contribue au pic d'absorption totale,
2. Diffusion Compton et échappement du photon diffusé : contribue au fond continu,
3. Effet de matérialisation + échappement d'un photon de 511 keV : contribue au pic de simple échappement

Figure 7 : Exemples d'interactions d'un photon dans un détecteur

Outre le pic d'absorption totale, les spectres comportent d'autres pics identifiés et numérotés en Figure 8 comme suit :

- Un pic dû à l'échappement des X_K du Ge de 9,9 keV (1) ;
- Des pics correspondant aux photons X provenant de la fluorescence des matériaux présents autour du détecteur (le plus souvent les X du plomb) (2 mais peu visible dû aux X du Bi-207).
- Un fond continu correspondant à des transferts partiels de l'énergie des photons incidents avec la possibilité de voir le front Compton (4) ainsi que la composante de rétrodiffusion (3) ;
- Un pic à 511 keV (5) provenant de la détection de photons produits suite à la création de paires et l'annihilation ;
- Des pics sommes dépendant de l'activité de la source et de la géométrie de détection (coïncidences ou empilements) (6) ;
- Éventuellement un fond continu lié à la détection des électrons de la source (7) (possible si la fenêtre du détecteur est fine) ;
- Des pics de simple (8) et double (9) échappement consécutifs à l'effet de création de paires, si l'énergie est supérieure à 1022 keV ;

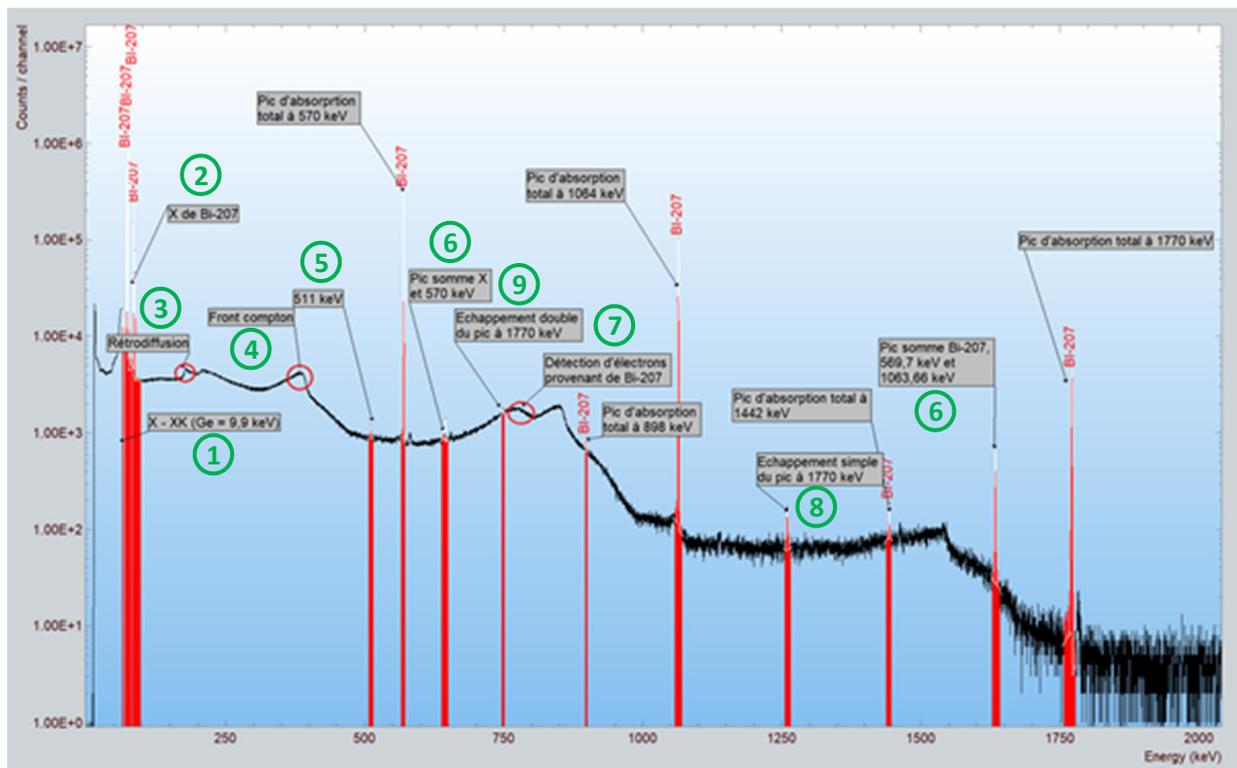


Figure 8 : Spectre d'une source de Bi-207, les différentes interactions possibles sont représentées.

L'intensité relative des différents composants du spectre dépend du volume de détection et de l'environnement du détecteur.

3. Résolution en énergie des spectres

Le nombre de paires électron-trou (porteurs de charge) créés obéit à une loi statistique qui contribue à un élargissement gaussien des pics d'absorption totale. Outre cette composante statistique, des effets dus à l'électronique et à la collection des charges induisent une variation de l'amplitude des impulsions enregistrées et entraînent également un étalement des pics.

La performance d'un détecteur se caractérise en particulier par sa résolution énergétique, ΔE , ou largeur à mi-hauteur des pics (FWHM = full width at half maximum) qui influe sur le pouvoir séparateur et les limites de détection. La résolution dépend de l'énergie des photons incidents et du matériau du détecteur. Le pouvoir de résolution du détecteur est le rapport $\Delta E/E(\%)$. Les détecteurs sont étalonnés en énergie à l'aide d'une ou plusieurs sources dont les radionucléides émettent à des énergies connues.

4. Étalonnage du détecteur

L'étalonnage des détecteurs est classiquement réalisé avec des sources radioactives dont l'activité est connue.

4.1. Rendement d'absorption totale

Le rendement d'absorption totale, $R_P(E)$, est le rapport du nombre d'événements enregistrés dans le pic d'absorption totale au nombre de photons émis par la source (cf. Figure 9). $R_P(E)$ dépend de la géométrie de détection et de l'énergie.

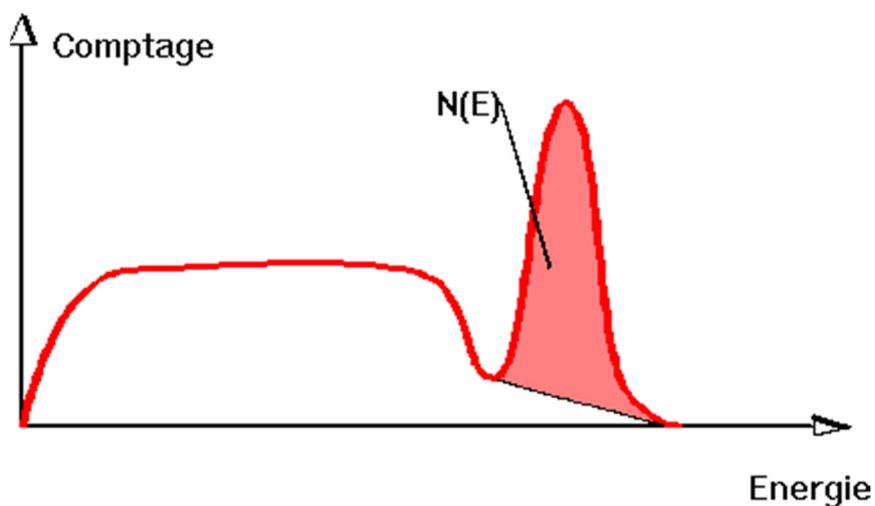


Figure 9 : Représentation de la surface du pic permettant d'évaluer le rendement d'absorption totale

$$R_P(E) = \frac{N(E)}{F(E)}$$

Avec $F(E)$ = nombre de photons d'énergie E émis par la source.

4.2. Rendement total

Le rendement total, $R_T(E)$, est défini pour un radionucléide émetteur mono-énergétique (E) : c'est le rapport du nombre d'événements enregistrés dans l'ensemble du spectre (Figure 10) au nombre de photons émis par la source. Le rendement dépend de la **géométrie** de détection **et de l'énergie** du rayonnement. $R_P(E)$ est utilisé pour l'analyse quantitative, $R_T(E)$ est nécessaire pour le calcul des corrections de coïncidences.

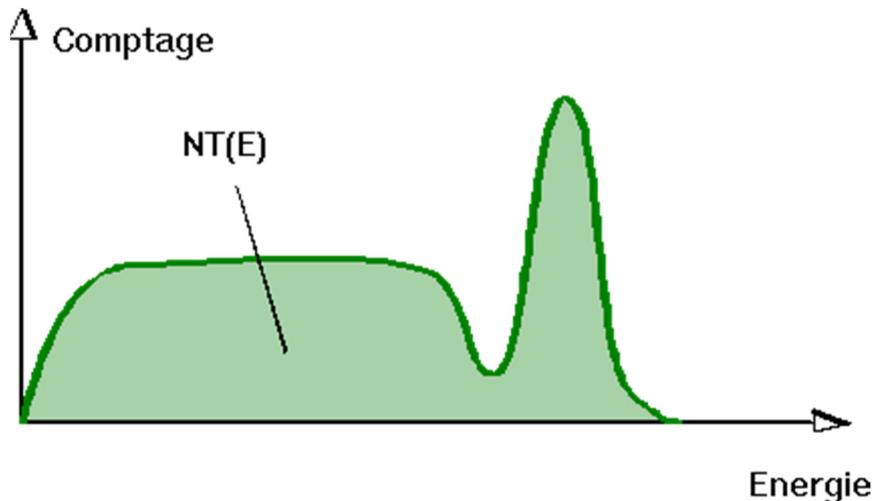


Figure 10 : Représentation de la surface permettant d'évaluer le rendement total

$$R_P(E) = \frac{N_T(E)}{F(E)}$$

Avec $F(E)$ = nombre de photons d'énergie E émis par la source.

4.3. Rendement géométrique et rendement intrinsèque

Le rendement d'absorption totale est composé d'un facteur géométrique (géométrie source-détecteur) et d'une composante intrinsèque dépendant de l'énergie du rayonnement incident :

$$R_P(E) = R_G \times R_I(E)$$

Le rendement géométrique, indépendant de l'énergie, R_G est le rapport du nombre de photons émis dans la direction du détecteur, au nombre de photons émis dans 4π :

$$R_G = \frac{\Omega}{4\pi}$$

Ω est l'angle solide sous-tendu par la source et la surface de la zone active du détecteur ; pour une source ponctuelle située à une distance d du détecteur de rayon r :

$$\Omega = 2\pi \left(1 - \frac{d}{\sqrt{d^2 + r^2}} \right)$$

Le rendement intrinsèque $R_I(E)$ dépend de l'énergie : c'est le rapport du nombre d'événements détectés sous le pic d'absorption totale d'énergie E , au nombre de photons arrivant sur la surface du détecteur.

4.4. Détermination du rendement

Détermination expérimentale : elle nécessite l'utilisation d'une source étalon, constituée d'un ou plusieurs radionucléides, placée à une distance d du cristal de détection (distance de référence) (cf. Figure 11) : on enregistre un spectre pendant une durée d'acquisition t .

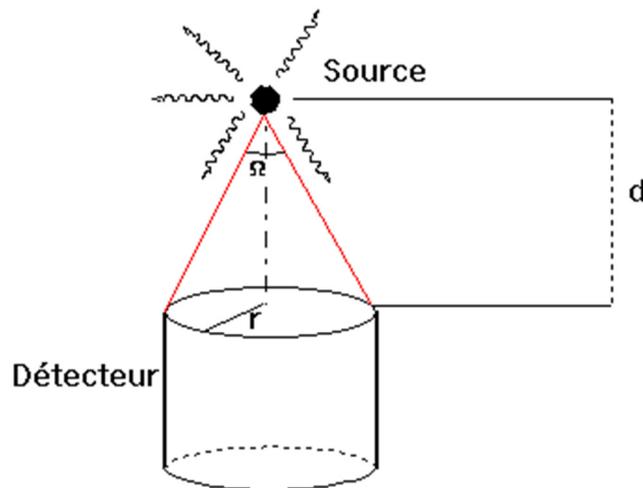


Figure 11 : Représentation de la géométrie d'étalonnage

Pour chaque énergie E émise par la source, on observe dans le spectre un pic dont la surface $N(E)$ est proportionnelle au nombre de photons émis par la source et au rendement du détecteur pour l'énergie considérée.

Le rendement d'absorption totale, $R_P(E)$ est déterminé selon :

$$R_P(E) = \frac{N(E)}{A \times I(E) \times t}$$

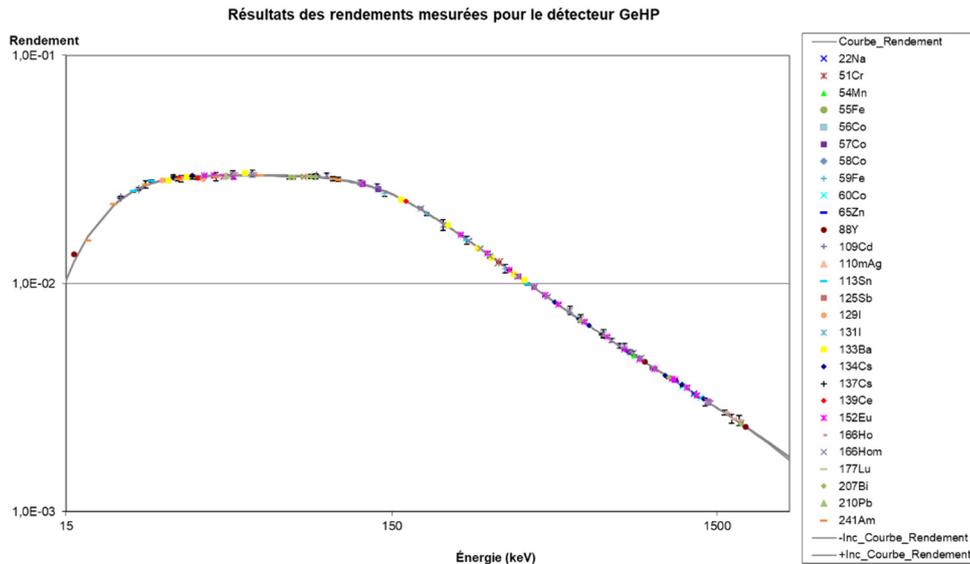
- $N(E)$: nombre de coups enregistrés dans le pic d'absorption totale ;
- A : activité de la source au moment de la mesure (Bq) ;
- $I(E)$: intensité d'émission de la raie d'énergie E ;
- t : durée de la mesure (temps actif) ;
- $R_P(E)$: rendement pour l'énergie E et les conditions géométriques source-détecteur de la mesure.

Selon les cas, le nombre de coups dans le pic d'absorption totale doit être corrigé de différents facteurs :

- Décroissance pendant la durée de l'acquisition (périodes courtes) ;
- Empilements (taux de comptage élevés) ;
- Coïncidences (schémas de désintégration complexes) ...

Le rendement doit être déterminé avec une géométrie d'étalonnage similaire à la géométrie de mesure. Dans le cas où l'on ne dispose pas d'étalons correspondant à la géométrie de mesure, il faut effectuer un transfert de rendement.

En utilisant différents radionucléides, on obtient, **pour une géométrie donnée**, des points d'étalonnage donnant le rendement d'absorption totale en fonction de l'énergie de chaque émission gamma (ou X) considérée (cf. Figure 12). Une courbe générale est obtenue par l'ajustement d'une expression polynomiale (par exemple) aux valeurs expérimentales obtenues au moyen des étalons.



5. Mesure des coefficients d'atténuation

Dans le cas de la mesure d'échantillons volumiques, les échantillons à mesurer sont généralement dans un milieu différent de celui qui est utilisé pour l'étalonnage de référence. Il faut donc prendre en compte l'auto-atténuation de chaque matériau, elle-même dépendant des coefficients d'atténuation. Lorsque la composition du milieu est bien connue, il est possible d'utiliser des tables ou logiciels, comme le logiciel XCOM du NIST, qui permettent de calculer les coefficients d'atténuation pour un mélange de composés.

Cependant ceci n'est pas applicable pour un échantillon provenant de l'environnement dont la composition est inconnue. Une fois les problèmes d'homogénéité de l'échantillon écartés, il est possible de mesurer directement l'atténuation de ce matériau en appliquant la loi de Beer-Lambert en considérant un faisceau de photon monochromatique (cf. Figure 13) :

$$I(x) = I_0 \times e^{-\mu x} = I_0 \times e^{-\mu \rho x},$$

où :

- ρ ($\text{g} \cdot \text{cm}^{-3}$) est la densité du matériau ;
- μ (cm^{-1}) est le coefficient d'atténuation total d'un matériau pour une énergie E ;
- x est l'épaisseur de matériau traversé par le faisceau ;
- $\mu \rho$ ($\text{g}^{-1} \cdot \text{cm}^{-2}$) est le coefficient d'atténuation massique total du matériau pour une énergie E.

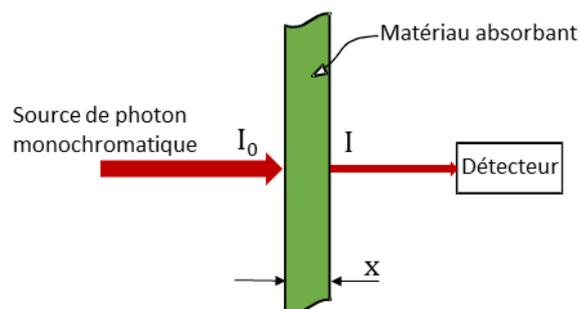


Figure 13 : Représentation des conditions expérimentales de la loi de Beer-Lambert

Le coefficient d'atténuation d'un matériau dépend de l'énergie du rayonnement et du numéro atomique (Z) du milieu. Il est conseillé de mesurer directement l'atténuation du matériau en utilisant un montage comme présenté en Figure 14.

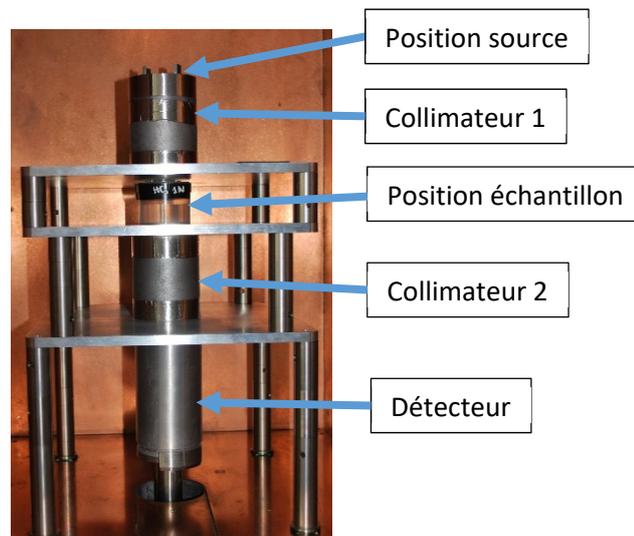


Figure 14 : Mesure d'atténuation d'un matériau à l'aide d'une source et d'un détecteur GeHP

Dans le cas présent, les rayonnements émis par une source ponctuelle, constituée de ^{152}Eu et de ^{133}Ba , sont transformés en un faisceau quasi-parallèle par un collimateur de 15 cm d'épaisseur de plomb.

Il faut effectuer deux mesures successives : l'une avec un conteneur vide, l'autre avec le même conteneur rempli avec une épaisseur x connue du matériau à caractériser

$$\mu(E) = \frac{-\ln\left(\frac{N_{\text{échantillon}}}{N_{\text{vide}}}\right)}{x},$$

où :

- $\mu(E)$: coefficient d'atténuation linéique du matériau à l'énergie E ;
- $N_{\text{échantillon}}$: taux de comptage du pic à l'énergie E corrigé de la décroissance pendant la mesure et corrigé à une date de référence choisie lorsque l'échantillon est mis en place ;
- N_{vide} : taux de comptage du pic à l'énergie E corrigé de la décroissance pendant la mesure et corrigé à une date de référence choisie lorsque le flacon vide est mis en place ;
- x : épaisseur de l'échantillon traversé.

Lorsque c'est possible, il est préférable de faire ceci directement sur l'échantillon de mesure afin d'éviter tout problème de changement de densité de milieu (problème de remplissage dans le contenant suivant le milieu à mesurer).

La Figure 15 présente un résultat obtenu avec cette installation pour un échantillon de résine époxy fabriqué en laboratoire.

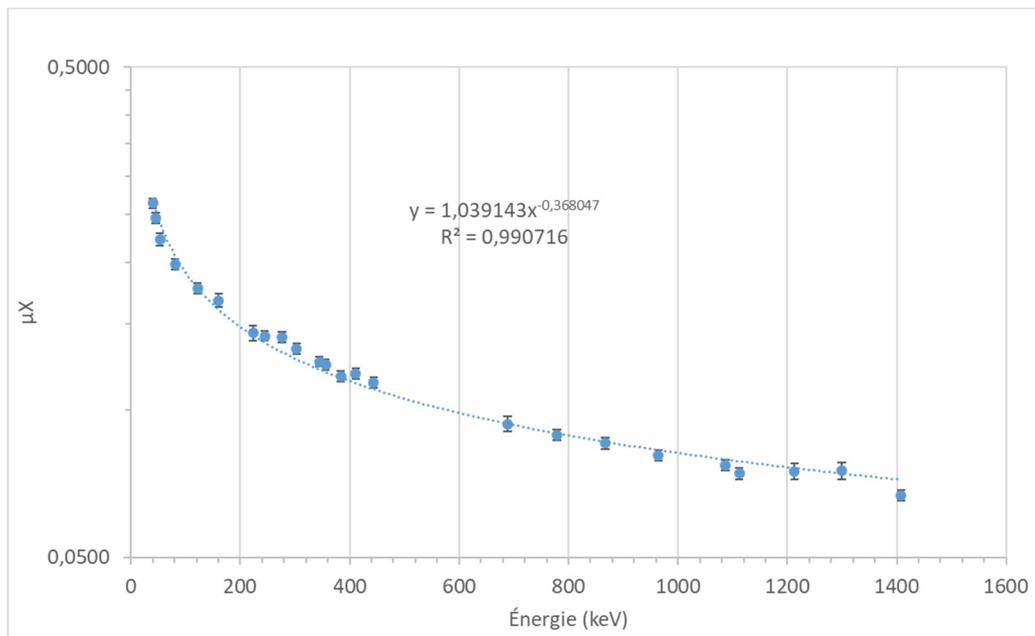


Figure 15 : Coefficient d'atténuation expérimental d'une résine époxy

L'inconvénient de cette méthode est qu'elle nécessite deux acquisitions longues (de plusieurs jours, même avec des sources contenant 1 MBq d'activité, comme dans le cas présent). Une autre solution, pour les plus basses énergies, est d'utiliser un générateur X qui permet d'obtenir différentes raies d'énergie avec un flux de photons important.