
PREMIER MINISTRE

COMMISSARIAT A L'ENERGIE ATOMIQUE

8.2

SPECTROMETRIE γ A HAUTE PERFORMANCE
A L'AIDE DE DETECTEURS GE - LI

par

Jean - Pierre BRETHON, Gérard LIBS, Guy DETOURNE

Jean LEGRAND, Jean - Pierre BOULANGER

Centre d'Etudes Nucléaires de Saclay

Rapport CEA - R - 3405

1968

Ba

SERVICE CENTRAL DE DOCUMENTATION DU C.E.A

C.E.N. - SACLAY B.P. n°2, 91 - GIF-sur-YVETTE - France

CEA-R 3405 - BRETHON Jean-Pierre, LIBS Gérard,
DETOURNE Guy, LEGRAND Jean,
BOULANGER Jean-Pierre

SPECTROMETRIE γ A HAUTE PERFORMANCE A L'HAIDE
DE DETECTEURS Ge-Li

Sommaire. - Ce travail décrit une chaîne de spectrométrie gamma de haute résolution, utilisant des détecteurs Ge-Li, un préamplificateur à transistor à effet de champ refroidi, et un stabilisateur de spectre. La résolution obtenue sur le pic de 122 keV du ^{57}Co est de 0,96 keV et des spectres de ^{239}Pu , ^{233}Pa et ^{95}Zr et ^{95}Nb sont montrés à titre d'exemple.

1968

14 p.

Commissariat à l'Energie Atomique - France

CEA-R 3405 - BRETHON Jean-Pierre, LIBS Gérard,
DETOURNE Guy, LEGRAND Jean,
BOULANGER Pierre

HIGH PERFORMANCE γ SPECTROMETRY USING Ge-Li
DETECTORS

Summary. - This report describes a high resolution gamma spectrometer design which use Ge-Li detectors, a cooled field effect transistor preamplifier, and a spectrum stabiliser. The obtained resolution on the 122 keV gamma ray of the ^{57}Co is 0.96 keV, and ^{239}Pu , ^{233}Pa and $^{95}\text{Zr} + ^{95}\text{Nb}$ spectra are shown for the example.

1968

14 p.

Commissariat à l'Energie Atomique - France

A partir de 1968, les rapports CEA sont classés selon les catégories qui figurent dans le plan de classification ci-dessous et peuvent être obtenus soit en collections complètes, soit en collections partielles d'après ces catégories.

Ceux de nos correspondants qui reçoivent systématiquement nos rapports à titre d'échange, et qui sont intéressés par cette diffusion sélective, sont priés de se reporter à la lettre circulaire CENS/DOC/67/4690 du 20 décembre 1967 que nous leur avons adressée, et qui précise les conditions de diffusion.

A cette occasion nous rappelons que les rapports CEA sont également vendus au numéro par la Direction de la Documentation Française, 31, quai Voltaire, Paris 7^e.

PLAN DE CLASSIFICATION

- | | |
|---|---|
| 1. APPLICATIONS INDUSTRIELLES DES ISOTOPES ET DES RAYONNEMENTS | 8. PHYSIQUE |
| | 8.1 Accélérateurs |
| | 8.2 Electricité, électronique, détection des rayonnements |
| | 8.3 Physique des plasmas |
| | 8.4 Physique des états condensés de la matière |
| | 8.5 Physique corpusculaire à haute énergie |
| | 8.6 Physique nucléaire |
| | 8.7 Electronique quantique, lasers |
| 2. BIOLOGIE ET MEDECINE | 9. PHYSIQUE THEORIQUE ET MATHEMATIQUES |
| 2.1 Biologie générale | |
| 2.2 Indicateurs nucléaires en biologie | |
| 2.3 Médecine du travail | |
| 2.4 Radiobiologie et Radioagronomie | |
| 2.5 Utilisation des techniques nucléaires en médecine | |
| 3. CHIMIE | 10. PROTECTION ET CONTROLE DES RAYONNEMENTS. TRAITEMENT DES EFFLUENTS |
| 3.1 Chimie générale | |
| 3.2 Chimie analytique | |
| 3.3 Procédés de séparation | |
| 3.4 Radiochimie | |
| 4. ETUDES DU DOMAINE DE L'ESPACE | 10.1 Protection sanitaire |
| | 10.2 Contrôle des rayonnements |
| | 10.3 Traitement des effluents |
| 5. GEOPHYSIQUE, GEOLOGIE, MINERALOGIE ET METEOROLOGIE | 11. SEPARATION DES ISOTOPES |
| 6. METAUX, CERAMIQUES ET AUTRES MATERIAUX | 12. TECHNIQUES |
| 6.1 Fabrication, propriétés et structure des matériaux | 12.1 Mécanique des fluides - Techniques du vide |
| 6.2 Effets des rayonnements sur les matériaux | 12.2 Techniques des températures extrêmes |
| 6.3 Corrosion | 12.3 Mécanique et outillage |
| 7. NEUTRONIQUE, PHYSIQUE ET TECHNOLOGIE DES REACTEURS | 13. UTILISATION ET DEVELOPPEMENT DE L'ENERGIE ATOMIQUE |
| 7.1 Neutronique et physique des réacteurs | 13.1 Centres d'études nucléaires, laboratoires et usines |
| 7.2 Refroidissement, protection, contrôle et sécurité | 13.2 Etudes économiques, programme |
| 7.3 Matériaux de structure et éléments classiques des réacteurs | 13.3 Divers (documentation, administration, législation, etc...) |

Les rapports du COMMISSARIAT A L'ENERGIE ATOMIQUE sont, à partir du n° 2200, en vente à la Documentation Française, Secrétariat Général du Gouvernement, Direction de la Documentation, 31, quai Voltaire, PARIS VIIème.

The C.E.A. reports starting with n° 2200 are available at the Documentation Française, Secrétariat Général du Gouvernement, Direction de la Documentation, 31, quai Voltaire, PARIS VIIème.

- Rapport CEA-R 3405 -

Centre d'Etudes Nucléaires de Saclay
Département d'Electronique Générale
Laboratoire de Métrologie de la Radioactivité

SPECTROMETRIE γ A HAUTE PERFORMANCE A L'AIDE DE DETECTEURS GE-LI

par

Jean-Pierre BRETHON, Gérard LIBS, Guy DETOURNE
Jean LEGRAND, Jean-Pierre BOULANGER

- Janvier 1968 -

SPECTROMETRIE γ A HAUTE PERFORMANCE A L'AIDE DE DETECTEURS GE-LI

Les avantages de la spectrométrie γ à l'aide de détecteurs semi-conducteurs au germanium ne sont plus à démontrer. Les progrès réalisés dans la fabrication de ces détecteurs ainsi que dans la mise en oeuvre de l'électronique associée en ont fait un outil irremplaçable en particulier pour l'analyse des mélanges de radionucléides et l'étude des schémas de désintégration complexes. L'objet de ce travail est de présenter un ensemble de spectrométrie γ dont les performances sont excellentes aussi bien du point de vue de la résolution en énergie (< 1 keV pour 100 keV) que de la stabilité. Cet ensemble nous a permis de déterminer les énergies de nombreuses transitions γ et de préciser le schéma de désintégration de quelques radionucléides (^{134}Cs , $^{110\text{m}}\text{Ag}$ ) en traitant les spectres par des méthodes de calcul appropriées [1] [2].

I.1. LES DETECTEURS.

Plusieurs modèles sont utilisés. Les uns se présentent sous forme de pastilles de germanium (1 cm^2 et 2 à 5 mm d'épaisseur), les autres sont encapsulés. Ces derniers servent essentiellement aux analyses courantes, la résolution obtenue est de l'ordre de 2 keV. Bien que délicats à manipuler, les premiers permettent des montages spéciaux pour les études où un pouvoir de résolution élevé est nécessaire.

Les détecteurs sont placés dans une enceinte où règne un vide de 10^{-6} torr environ, afin qu'à la température de fonctionnement ($\sim 77\text{ °K}$) il n'y ait pas de condensation. Si la température remonte accidentellement au-dessus de -40 °C , il est nécessaire de régénérer le détecteur en y faisant passer un courant de 5 à 6 mA à température ambiante pendant 15 à 30 minutes selon l'histoire du détecteur. Si le détecteur est nu, la manipulation est identique, mais doit se faire à l'abri de l'air pour éviter toute pollution. Si, pour une raison quelconque le détecteur a été pollué, il faut lui faire subir une attaque chimique à l'aide d'un mélange d'acides :

HNO ₃ à	65 %	: 50 %
HF à	38 - 40 %	: 25 %
CH ₃ COOH à	99 - 100 %	: 25 %

Au cours de cette opération, les contacts ohmiques sont protégés. Le rinçage doit être fait soigneusement sans que la diode ne soit mise en contact avec l'air.

Ces deux traitements permettent de restituer aux détecteurs Ge-Li toutes leurs caractéristiques dans la plupart des cas.

Remarque :

Les détecteurs utilisés dans ce travail ont un petit volume (quelques cm³), leur capacité est donc faible (quelques PF) ce qui permet d'obtenir un bon pouvoir de résolution, mais leur rendement est médiocre. Il est possible de remédier à cet inconvénient en utilisant des détecteurs plus volumineux (du type coaxial par exemple), mais au détriment du pouvoir de résolution.

I. 2. ENSEMBLE CRYOSTATIQUE.

Les détecteurs Ge-Li fonctionnent à 77 °K et conservent leurs caractéristiques sans traitement spécial jusqu'à 220 °K. Le détecteur est disposé dans une tête cryostatique où circule de l'azote liquide par intermittence (fig. n° 1). Lorsqu'il n'est pas en service, la température est régulée à - 70 °C environ par un groupe à fréon et la tension de polarisation est chutée à 10 volts avec une constante de temps de 10 secondes pour ne pas détériorer les transistors à effet de champ (CASC, Ets. LEMER).

I. 3. ELECTRONIQUE ASSOCIEE.

I. 3. 1. Le préamplificateur de charges :

La figure n° 2 montre le schéma de principe du préamplificateur qui est industrialisé sous le sigle PSC - 20 (SAIP). Les caractéristiques sont les suivantes :

- Résolution électronique équivalente : $< 0,6$ keV (Ge) - (étage d'entrée refroidi)
- Sensibilité : environ 80 mV/MeV
- Linéarité : 10^{-3} pour 8 volts sur n
- Temps de montée minimal : 20 ns
- Temps de descente avec couplage continu : 10^{-2} s
- Impédance minimale de charge : 100 Ω
- Tension de sortie maximale : ± 10 volts sur 100 Ω
- Alimentation ± 24 volts (± 20 %).

Afin d'améliorer la résolution, l'étage d'entrée du préamplificateur est placé dans le cryostat. Le bruit du transistor à effet de champ est ainsi diminué [3], ainsi que les capacités parasites entre le détecteur et le préamplificateur. La partie de l'étage d'entrée qui est placée dans le cryostat, est encadrée de traits discontinus sur la figure n° 2.

La qualité des détecteurs utilisés a permis de simplifier l'étage d'entrée (fig. n° 3) ainsi que le préconisent certains auteurs [4]. Les capacités parasites et les courants de fuite sont ainsi réduits. Le courant drain du transistor à effet de champ est tributaire du courant de fuite du détecteur. La valeur de ce dernier doit donc être très faible pour ne pas éloigner le point de fonctionnement du transistor ; sinon, le pouvoir de résolution serait détérioré. Le détecteur est isolé électriquement de la masse du cryostat. Le transistor à effet de champ est logé dans un support en téflon (fig. n° 4), il est à une température voisine de - 130 °C.

I. 3. 2. L'amplificateur de mise en forme :

Nous avons utilisé le T C 200 Tennelec qui comprend deux circuits intégrateurs (filtres actifs) et deux circuits différentiateurs classiques. La meilleure solution est obtenue avec une seule différentiation pour les taux de comptage faibles. La constante de temps affichée à ces circuits de mise en forme est de 1,6 μ s. La double intégration permet d'améliorer la résolution de 15 % par rapport à un amplificateur à mise en forme classique (RC - CR) Type M A P 11 du standard Renatran par exemple.

I. 3. 3. La chaîne d'analyse :

Afin de bénéficier au maximum du pouvoir de résolution, il est nécessaire que la chaîne d'analyse possède un nombre suffisant de canaux pour que les pics photoélectriques soient bien définis. Nous utilisons un convertisseur du type C A 13 associé à un bloc mémoire à 4 096 canaux (Intertechnique). Les caractéristiques du premier sont les suivantes :

- Fréquence de conversion : 20 MHz
- Nombre de canaux : 4 096
- Erreur de linéarité intégrale : 0,1 %
- Erreur de linéarité différentielle : 1 %
- Stabilité en température : 0,03 % / °C
- Précision du signal origine du temps : 20 μ s.

I.3.4. Le stabilisateur de gain et d'origine :

Il est nécessaire de stabiliser l'ensemble de la chaîne d'analyse pour tirer un maximum de profit de la bonne définition des pics photoélectriques.

Deux points de la courbe de réponse en énergie du spectromètre sont fixés, l'un à basse énergie et l'autre, à haute énergie. Le stabilisateur détecte toute dérive de ces pics, grâce à des fenêtres découpées symétriquement sur leurs flancs. Les variations des comptages observés dans ces fenêtres sont alors transformés en signaux analogiques, propres à réagir sur la chaîne d'analyse.

La stabilisation complète se divise en deux parties ; la première modifie le gain de la chaîne selon les dérives du pic à haute énergie, la seconde réagit sur l'origine, en fonction des dérives du second pic de référence.

Un stabilisateur agit par action directe quand il modifie l'une des caractéristiques pour toute impulsion classée dans l'une des quatre fenêtres. Les fluctuations des comptages dans ces fenêtres entraînent donc des changements incessants du gain et de l'origine, pour des pics d'origine radioactive. La stabilisation entraîne un élargissement des pics.

Une étude théorique donne le déplacement x d'un pic et sa résolution σ sous l'action d'une dérive de vitesse constante α avec stabilisation. On obtient :

$$x = \alpha A \quad \text{et} \quad \sigma^2 = \sigma_0^2 + \frac{A}{2} - \alpha^2 A$$

ou
$$A = \frac{2b - 2d - m}{2}$$

- avec :
- 2 b : largeur à la base du pic
 - 2 d : distance entre fenêtres (symétriques)
 - m : largeur d'une fenêtre
 - σ_0 : résolution sans dérive et sans stabilisation
 - α : dérive ramenée au niveau du pic, en canaux par intervalle de temps moyen séparant l'arrivée de deux impulsions dans les fenêtres.

Le stabilisateur utilisé "Spectrostab" [5] est à action directe, il réagit sur le gain par l'intermédiaire d'un amplificateur qui peut compenser des dérives de $\pm 20\%$. L'appareil comprend de plus, un simulateur destiné à fournir un pic de référence aux basses énergies. La réalisation du spectrostab en circuits intégrés lui confère une excellente sécurité de fonctionnement.

Le tableau I montre les résultats obtenus en stabilisant à l'aide du pic de 59 keV du ^{241}Am aux basses énergies et de celui de 1,33 MeV du ^{60}Co . L'erreur sur le calcul de l'abscisse est de 0,15 canal pour le pic à 59 keV et de 0,02 canal pour les pics à 1,17 et 1,33 MeV. Les résultats portent sur une série de 8 mesures de 2 heures, le contenu des canaux les plus chargés était de 80.000 impulsions environ.

II. PERFORMANCE DU SPECTROMETRE.

Afin d'illustrer les possibilités du spectromètre, nous avons rassemblé quelques spectres typiques.

La figure n° 5 montre le spectre d'une source de ^{57}Co , la résolution obtenue sur le pic photoélectrique de 122 keV est de 0,96 keV et de 0,76 keV sur un pic obtenu au moyen d'un générateur.

Le spectre de la filiation $^{95}\text{Zr} + ^{95}\text{Nb}$ (fig. n° 6) fait apparaître nettement les pics de 724 et 757 keV du ^{95}Zr ainsi que celui de 765 keV du ^{95}Nb . Dans ces conditions, il apparaît que le dosage de ce dernier est aisé.

Enfin, les figures 7 et 8 montrent respectivement les spectres du ^{239}Pu et du ^{233}Pa pour lesquels le nombre de pics (une quarantaine pour le premier) fait apparaître les avantages de la spectrométrie γ à l'aide de détecteurs Ge-Li.

Les résultats précédents mettent bien en évidence l'intérêt présenté par les spectromètres γ à semi-conducteurs. Cependant, et bien que les principaux éléments de la chaîne spectrométrique soient commercialisés (détecteur, cryostat, préamplificateur, amplificateur, analyseur, etc...), il faut observer que l'obtention de performances optimales implique de nombreuses précautions. Enfin, bien que la mise en oeuvre des détecteurs Ge-Li soit encore aujourd'hui très délicate, il n'est pas interdit de penser que les spectromètres à semi-conducteur deviendront aussi fiables et d'un emploi aussi aisé que les compteurs à scintillation.

- TABLEAU I -

$^{241}\text{Am} : 59 \text{ keV}$		$^{60}\text{Co} : 1,17 \text{ MeV}$		$^{60}\text{Co} : 1,33 \text{ MeV}$	
Abscisses (canal)	Résolutions (canal)	Abscisses (canal)	Résolutions (canal)	Abscisses (canal)	Résolutions (canal)
70,55	3,60	1 776,39	4,16	2 019,50	4,23
70,69	3,70	1 776,35	4,09	2 019,45	4,10
70,57	3,36	1 776,39	3,93	2 019,51	3,98
70,53	3,36	1 776,39	3,94	2 019,54	4,01
70,36	4,37	1 776,33	4,26	2 019,45	4,30
70,40	4,40	1 776,49	4,57	2 019,50	4,62
70,57	4,51	1 776,47	4,30	2 019,56	4,32
70,57	4,09	1 776,51	4,36	2 019,56	4,34

FIG 3

Etage du préamplificateur d'entrée

soumis au refroidissement

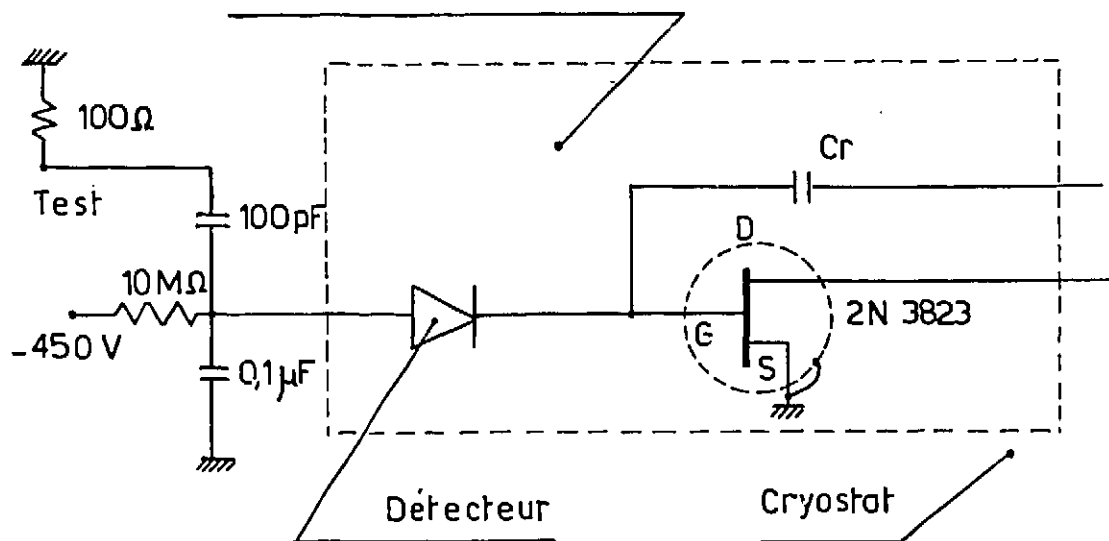
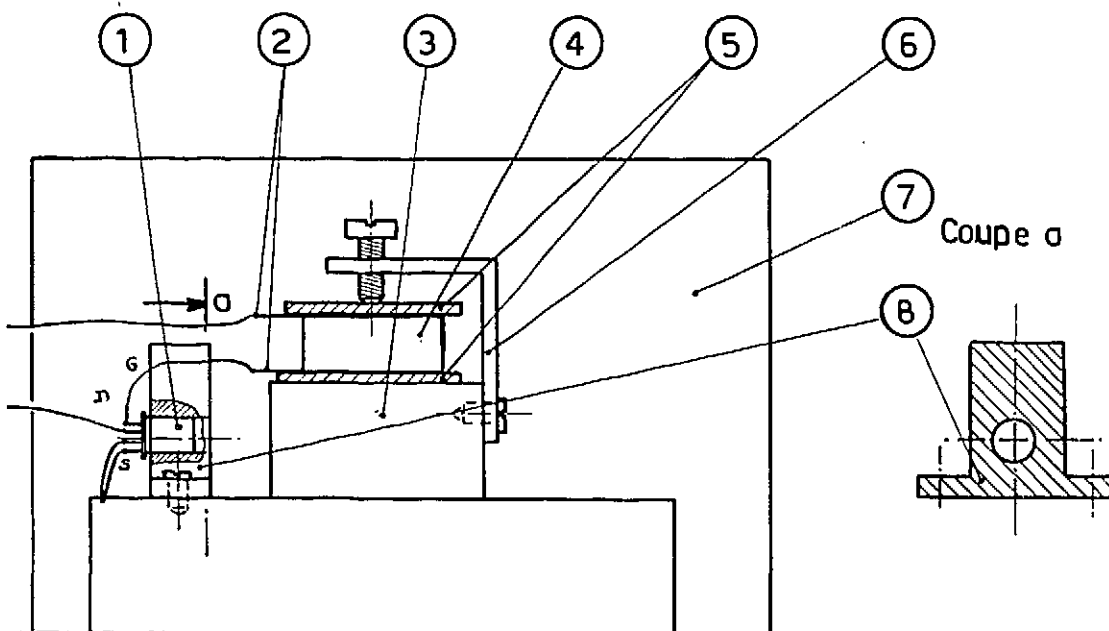
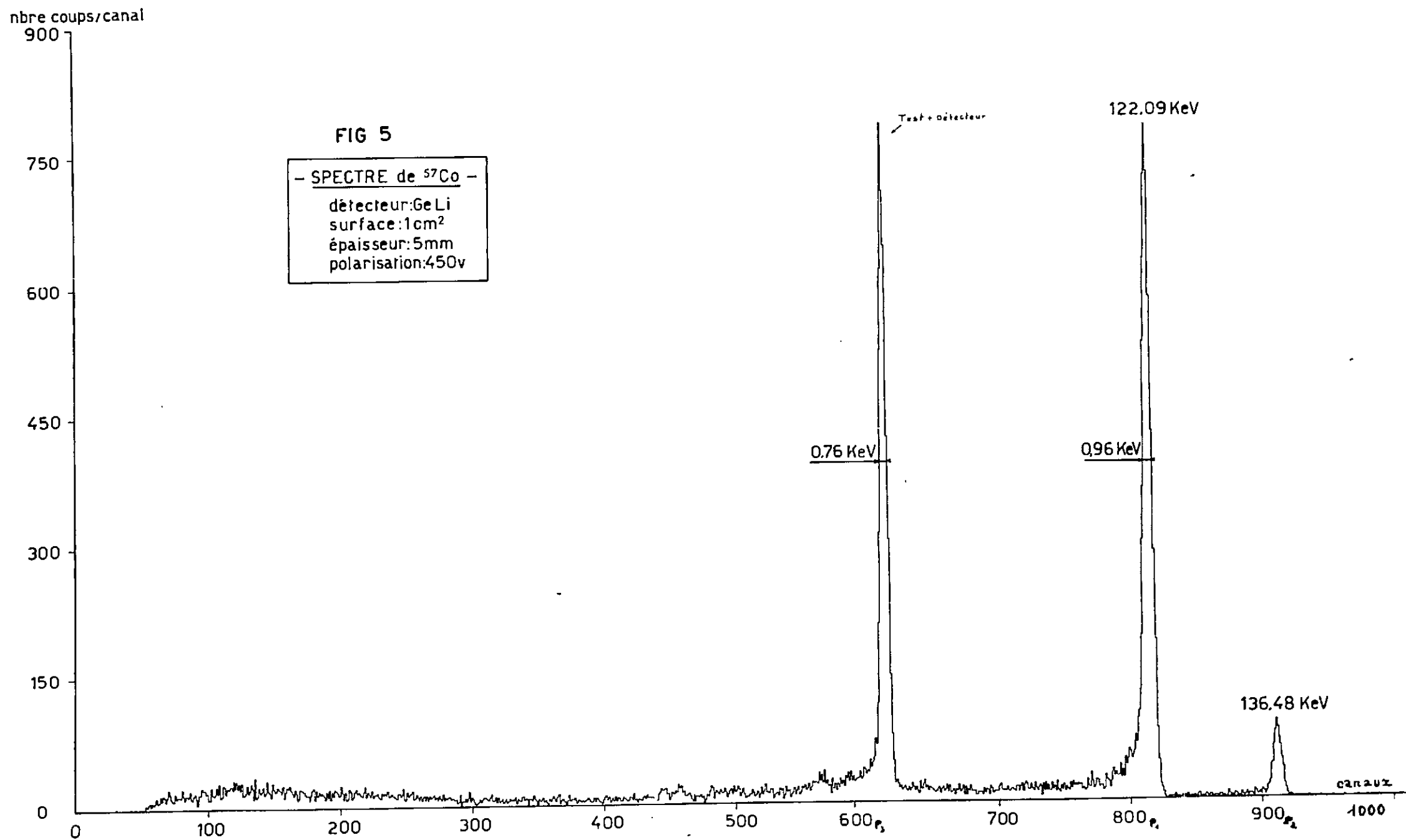


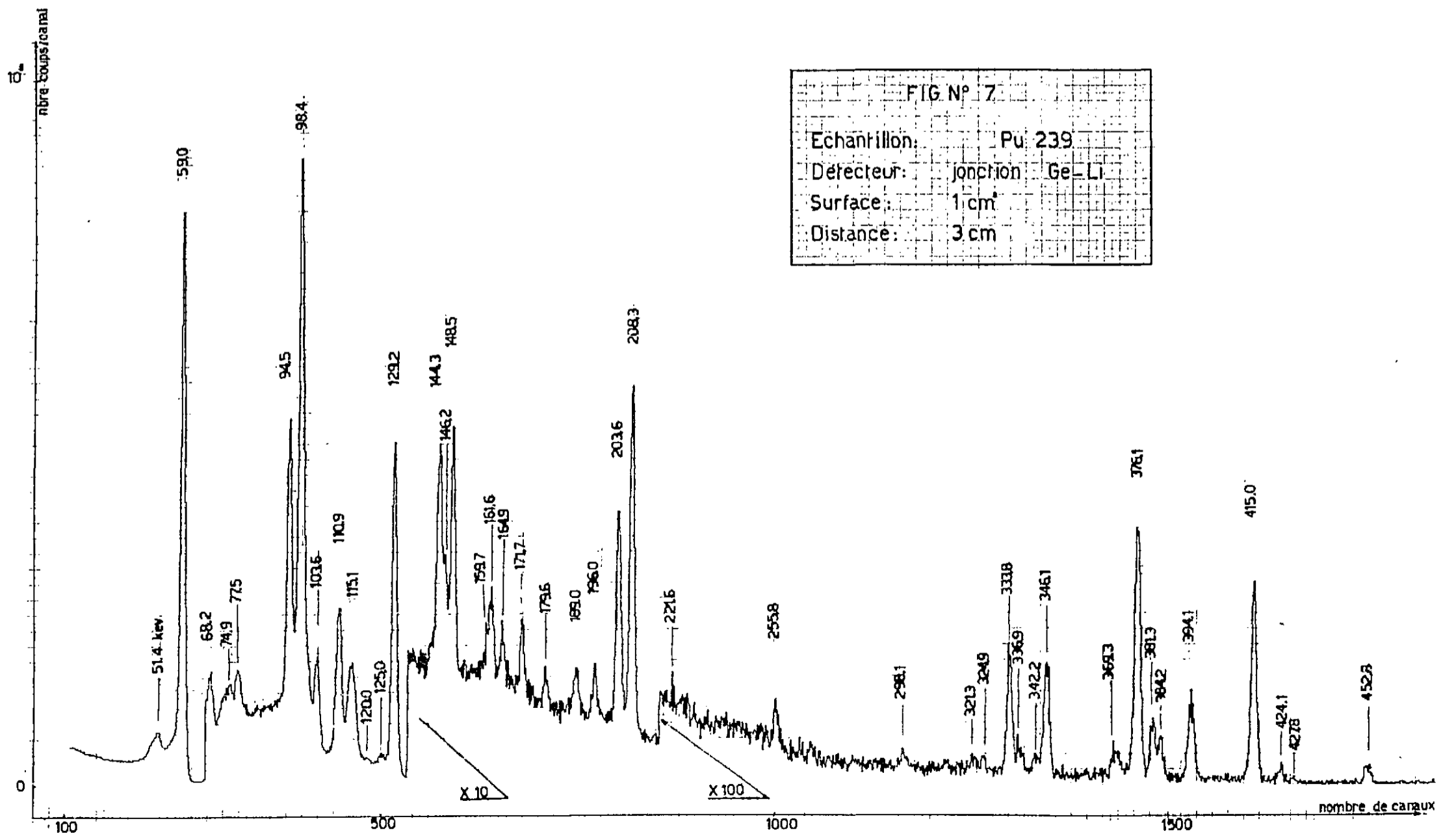
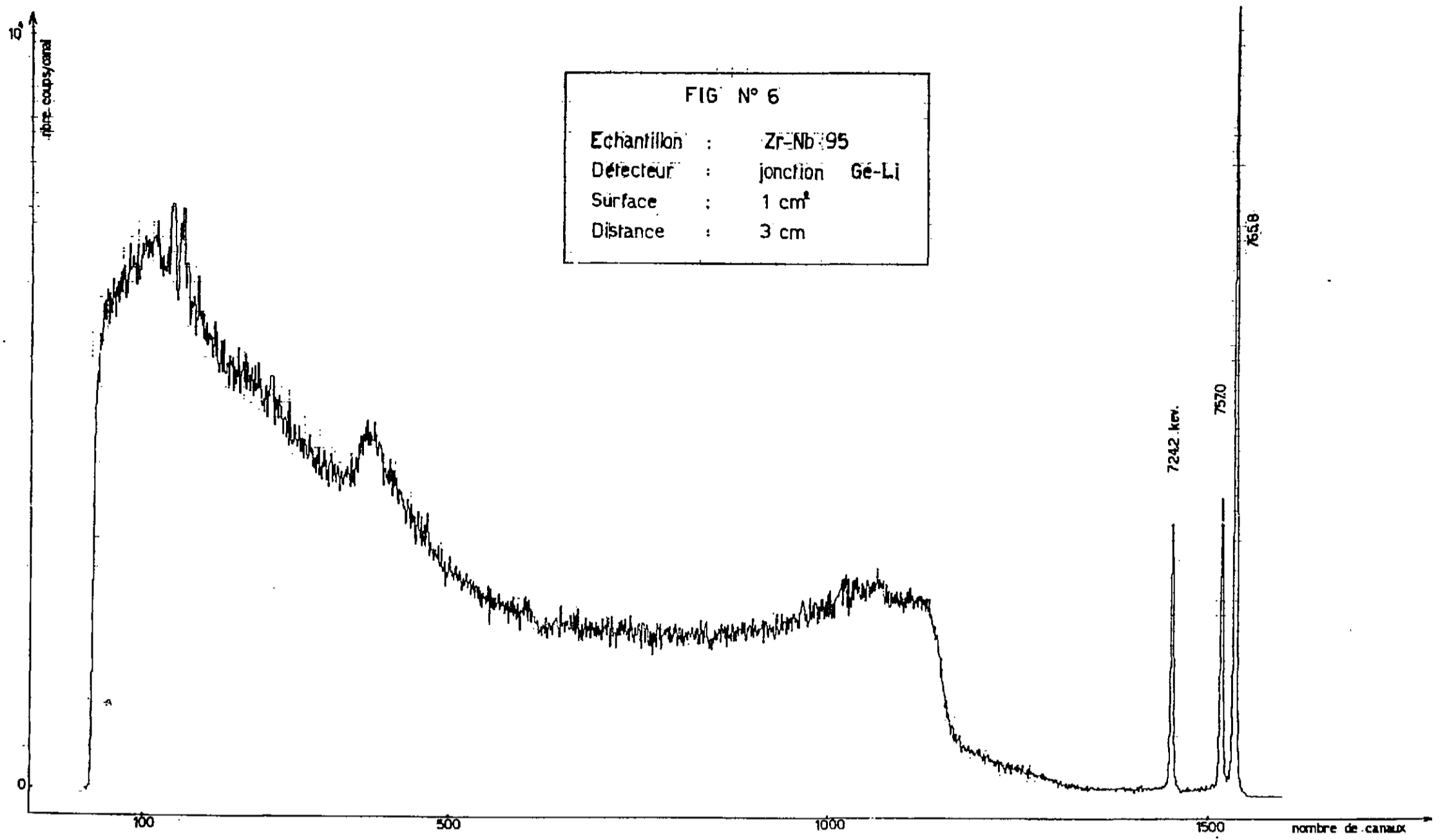
FIG 4

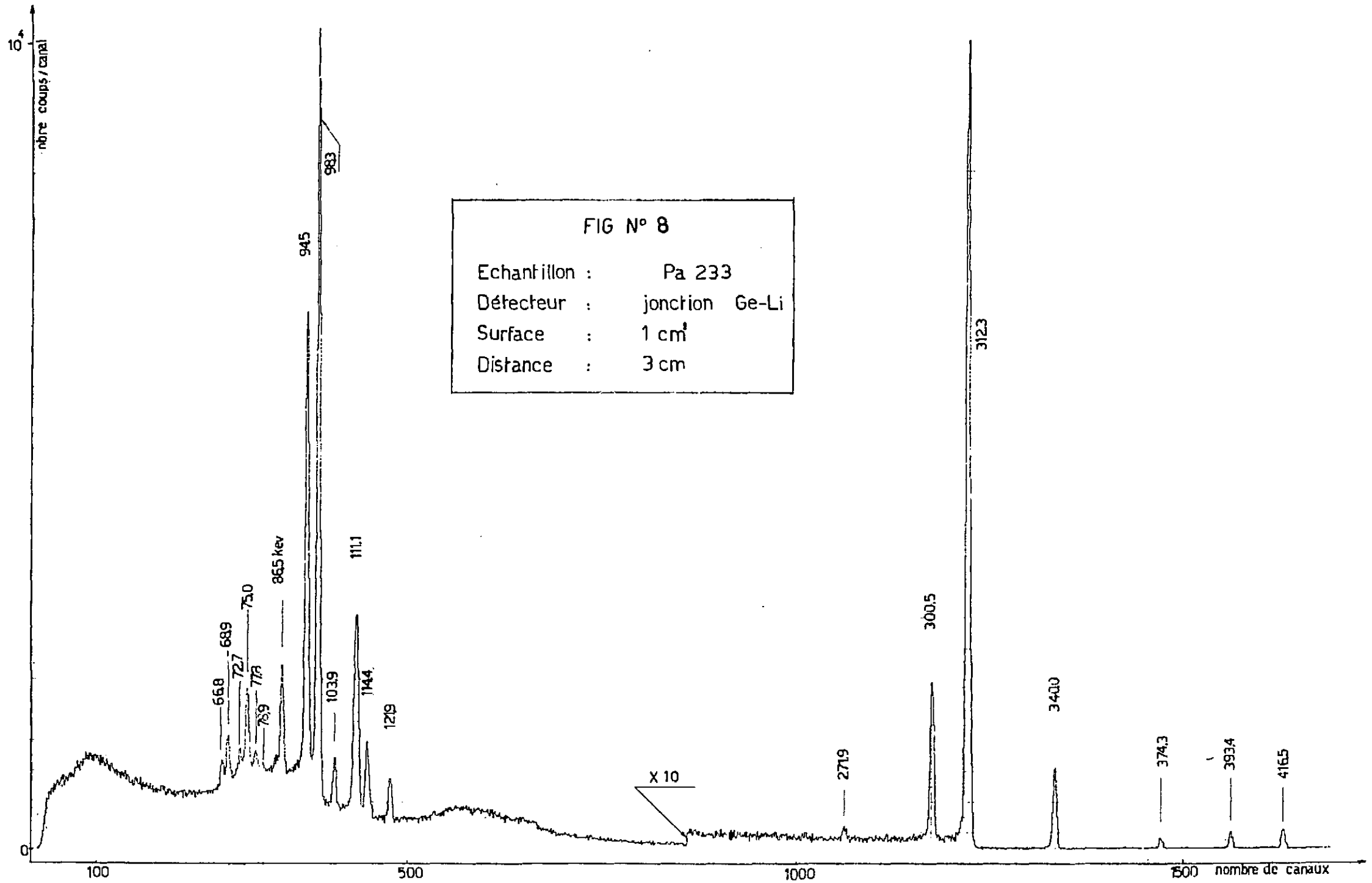
MONTAGE DU DETECTEUR ET DU T.E.C.(2N 3823)



- ① TEC 2N 3823
- ② 2 Contacts par feuilles d'or
- ③ Pièce de Cu (-180°)
- ④ Décteur
- ⑤ Rondelles de téflon (ep=1mm)
- ⑥ Support métallique
- ⑦ Enceinte sous vide
- ⑧ Support du TEC







FIN