

Energy (keV)

Dr. Nicolas DUFOUR

Commissariat à l'Énergie Atomique et aux Énergies Alternatives

14/01/2025

## Spectrométrie gamma - Introduction

Spectrométrie = « Mesure de rayonnements électromagnétiques dans le but d'obtenir des informations sur le système étudié »

- 1997 IUPAC, Compendium of Chemical Terminology

- → Système étudié : source radioactive
- → Mesure : Chaîne d'acquisition
- → Informations : sur la source radioactive
- Spectrométrie gamma
  - Émission de rayonnements gamma par la source radioactive
  - Rayonnement gamma : rayonnement électromagnétique trouvant son origine dans une désexcitation du noyau d'un atome



Dans ce cours (et en physique nucléaire de manière générale), on désigne par gamma et X l'origine du rayonnement et non son énergie

#### **Spectrométrie gamma - Introduction**

#### Chaîne d'acquisition

- Détecteur, électronique associée et PC (hardware)
- Logiciel de traitement et étalonnages (software)
- Informations sur la source radioactive
  - Identifier : quels sont les radionucléides présents ?
  - Quantifier : quelles sont leurs activités respectives ?

Chaîne de mesure HPGe (source : CEA/LNHB)

Source scellée de Strontium-Yttrium 90







Étalonnage de la chaîne

→ Comment savoir si la chaîne d'acquisition transcrit de manière précise ces informations ?

#### Sommaire du cours

- 1) Origine des rayonnements gamma
- 2) Interaction rayonnement-matière
- 3) Du spectre d'interaction au spectre de détection
- 4) Chaîne d'acquisition en spectrométrie gamma
- 5) Étalonnage de la chaîne d'acquisition
  - En énergie
  - En résolution
  - En rendement
- 6) Statistique associée au comptage, incertitudes et intervalles de confiance

#### 7) Cas d'applications de la spectrométrie gamma



- Stabilité du noyau
  - Noyau stable = noyau dont l'énergie de liaison est suffisamment grande pour son nombre de nucléons
  - □ Énergie de liaison = énergie nécessaire à fournir au noyau pour le séparer en ses nucléons
- → Un noyau instable « cherche » à maximiser son énergie de liaison par nucléon au travers de désintégrations
   → cf. Courbe d'Aston
- Atteindre la stabilité
  - Deux cas de figures :

Il existe, pour un nombre de nucléons donné, un ou plusieurs noyaux stables
 Il n'existe pas, pour un nombre de nucléons donné, de noyaux stables

- → Cas n°1 : On change la configuration neutrons/protons par désintégration  $\beta$ -,  $\beta$ + ou capture électronique
- → Cas nº2 : On réduit le nombre de nucléons par désintégration a ou fission spontanée









Opposée de l'énergie de liaison en fonction du numéro atomique pour un nombre de nucléons = 125 Cas nº2



G. Choppin *et al., Radiochemistry and Nuclear Chemistry*, 2013 https://en.wikipedia.org/wiki/Valley\_of\_stability https://fr.wikipedia.org/wiki/Uranium\_238

Chaîne de désintégration naturelle de l'uranium 238



#### Vallée de la stabilité

Chart of Nuclides - NNDC - Brookhaven National Laboratory





#### État excité

- Après une désintégration, le noyau fils peut se retrouver dans un état excité
- □ Hypothèse : modèle du noyau en couche

→ Nucléons se trouvent sur des couches d'énergies discrètes
 → État excité = nucléons sur des niveaux d'énergie supérieurs au niveau le plus énergétiquement faible atteignable

- → Un des mécanismes du retour du noyau à l'état fondamental est l'émission d'un (ou plusieurs) rayonnement γ d'énergie discrète
- Unicité du rayonnement émis
  - □ Chaque combinaison de nucléons est propre à un élément → Chaque état excité aussi

#### → Chaque rayonnement gamma émis est caractéristique du noyau qui l'a émis

Proportionnalité entre activité du père et activité gamma du fils
 Intensité d'émission

État excité

D'autres phénomènes conduisant à l'émission de rayonnements gamma existent :

- Interaction nucléaire : diffusion inélastique (n, n') ou  $(n, n'\gamma)$ , capture radiative  $(n, \gamma)$ , ...
- Excitation directe de l'état fondamental ou d'un état de moindre excitation
- Ces états conduisent aussi à des énergies discrètes, permettant l'identification du radionucléide émetteur





(keV)

283.5

0

<sup>137</sup><sub>56</sub>Ba

661.659 2.552 min

0 Stable

β-

100%



En résumé

Noyau fils d'une désintégration peut être dans un état excité

 $\rightarrow$  Émission d'un rayonnement  $\gamma$  d'énergie donnée

Chaque rayonnement γ émis par un noyau radioactif lui est propre
 → Identification possible grâce à la spectrométrie gamma

- La quantité de rayonnements γ émis est proportionnelle à l'activité de la source radioactive
  - -> Quantification possible grâce à la spectrométrie gamma



Émission d'un rayonnement gamma

□ Spectre d'émission gamma est dit discret (ou spectre de raies)



Interaction rayonnement-matière

- □ Photon = particule indirectement ionisante
- □ 3 effets prédominants : effet photoélectrique, diffusion Compton et création de paires



Coefficients d'atténuation gamma dans le germanium en fonction de l'énergie. Source données : XCOM NIST. Trait vertical = 150 keV.

Spectrométrie gamma - L3P MCN - Université de Nantes

Effet photoélectrique (prédominant pour Eγ < 150 keV dans le germanium)</p>

Transmission de la totalité de l'énergie d'un photon incident à un électron du milieu

$$E_{e-} = E_{\gamma} - E_{Liaison}$$

Que devient l'énergie de liaison ? Fluorescence X ou émission électron Auger successives





Impact sur le spectre de détection attendu : effet photo-électrique





- Diffusion Compton (Prédominant pour  $E_{\gamma} > 150$  keV dans le germanium)
  - Transmission d'une partie de l'énergie du photon incident à un électron du milieu
  - **\Box** Réémission du photon dans une direction différente ( $\theta$ ) que celle initiale

$$E_{e-} = E_{\gamma} - \frac{E_{\gamma}}{1 + \frac{E_{\gamma}}{m_{e^{-}} \cdot c^{2}} (1 - \cos \theta)}$$

$$P_{e-} = E_{\gamma} - \frac{E_{\gamma}}{1 + \frac{E_{\gamma}}{m_{e^{-}} \cdot c^{2}} (1 - \cos \theta)}$$

$$\Phi, \text{ angle de recul}$$

$$\theta, \text{ angle de diffusion}$$

□ Ici,  $E_{Liaison}$  est négligée car les électrons concernés par la diffusion Compton sont ceux des couches les moins liées  $\rightarrow E_{Liaison} \ll E_{e-} \& E_{\gamma}$ 



$$E_{e-} = E_{\gamma} - \frac{E_{\gamma}}{1 + \frac{E_{\gamma}}{m_{e^{-}} c^2} (1 - \cos \theta)}$$

$$E_{e-} = 661,7 - \frac{661,7}{1 + \frac{661,7}{511}(1 - \cos\theta)}$$

 $\Box$  1 seule variable : angle  $\theta$ 

□ Fonction cosinus bornée entre -1 et 1 pour des angles de 180° et 0°



$$E_{e-} = E_{\gamma} - \frac{E_{\gamma}}{1 + \frac{E_{\gamma}}{m_{e-} \cdot c^2} (1 - \cos \theta)}$$

$$E_{e-} = 661,7 - \frac{661,7}{1 + \frac{661,7}{511}(1 - \cos\theta)}$$

$$\begin{aligned} \theta &= 180^{\circ} \to \cos \theta = -1 & \Rightarrow \quad E_{e^-} &= 661,7 - \frac{661,7}{1 + \frac{661,7}{511}(1 - -1)} = 661,7 - \frac{661,7}{1 + 2\frac{661,7}{511}} = 477 \text{ keV} \\ \theta &= 0^{\circ} \to \cos \theta = 1 & \Rightarrow \quad E_{e^-} = 661,7 - \frac{661,7}{1 + \frac{661,7}{511}(1 - 1)} = 0 \text{ keV} \end{aligned}$$

Spectrométrie gamma - L3P MCN - Université de Nantes





□ Énergie maximale : front Compton

Large gamme en énergie : plateau (ou continuum) Compton

→ Théoriquement, il ne devrait y avoir de détections entre  $E(e^{-})_{max}$  et  $E(\gamma)$  ...





 $\Box \text{ Énergie du photon diffusé : } E_{e-} = E_{\gamma} - E_{\gamma'} \rightarrow E_{\gamma'} = E_{\gamma} - E_{e-}$ 

□ Application numérique avec gamma de 661,7 keV :  $E_{\gamma\gamma} = 661,7 - 0 = 661,7 \text{ keV}$ 

$$E_{\gamma\gamma} = 661,7 - 477 = 185 \text{ keV}$$

Effet Compton dans l'environnement



 $\Box \text{ Énergie du photon diffusé : } E_{e-} = E_{\gamma} - E_{\gamma'} \rightarrow E_{\gamma'} = E_{\gamma} - E_{e-}$ 

□ Application numérique avec gamma de 661,7 keV :  $E_{\gamma\gamma} = 661,7 - 0 = 661,7 \text{ keV}$ 

 $E_{\gamma \prime} = 661,7 - 477 = 185 \text{ keV}$ 

Spectre d'interaction avec prise en compte de l'effet Photoélectrique + Compton dans le détecteur + Compton dans l'environnement



- Création de paires (Εγ > 1022 keV)
  - Interaction d'un photon d'énergie supérieure à 1022 keV avec le champ coulombien d'un noyau
  - Matérialisation d'une paire électron/positron à partir du photon
- Annihilation du positronium
  - Desitron possède un parcours similaire à celui des électrons dans la matière
  - Collision avec un électron du milieu
  - Annihilation de la paire électron/positron : forme deux photons de 511 keV émis à 180°
    - → Principe utilisé dans les tomographies à émission de positrons (mesure en coïncidence)



- Impact sur le spectre mesuré
  - □ Notion de pic d'échappement : simple ou double



Création de paires : trois scénarios possibles :

- Dépôt total d'énergie dans le détecteur
- □ Pic de simple échappement
- Pic de double échappement



Spectre d'interaction avec prise en compte de l'effet Photoélectrique + Compton dans le détecteur + Compton dans l'environnement + Création de paires



En résumé

- Trois phénomènes d'interaction rayonnement gamma matière
   > Effet photoélectrique, diffusion Compton, création de paires
- □ Chaque interaction a un effet différent sur le spectre d'interaction/détection
  - → Effet photoélectrique = dépôt total d'énergie
  - → Diffusion Compton = dépôt partiel d'énergie et apparition du front Compton et du continuum
  - → Création de paires = interaction à seuil énergétique (E > 1022 keV) et apparition des pics d'échappement

Y Y Y

Comparaison spectre interaction attendu et spectre détection



Efficacité de détection simulée d'un rayon γ de 1778,9 keV (<sup>28</sup>Al) avec un détecteur HPGe entouré de plomb

Comparaison spectre interaction attendu et spectre détection



Efficacité de détection simulée d'un rayon γ de 1778,9 keV (<sup>28</sup>AI) avec un détecteur HPGe entouré de plomb

- Différences notables avec le spectre d'interaction attendu : résolution
  - → Élargissement des pics en forme de cloche
- Pic X à basse énergie
- Présence de tous les phénomènes gamma décrits

Conséquence des 3 interactions sur le spectre mesuré



Source

- <sup>28</sup>Al, principal γ émis : 1778,9 keV
- Détecteur
  - □ HPGe entouré d'un blindage en plomb
- Caractéristiques du spectre
  - Pic d'absorption totale
  - Front Compton
  - Plateau Compton
  - □ Pic de simple échappement
  - Pic de double échappement
  - Rétrodiffusion ?
  - □ ... autres ?

#### Point spécifique sur le pic d'absorption totale



Coefficients d'atténuation gamma dans le germanium en fonction de l'énergie. Source données : XCOM NIST. Traits verticaux : 662 et 1779 keV. Pour E > 150 keV, Compton majoritaire

□ Interaction Compton = dépôt d'énergie partiel

Comment expliquer le pic d'absorption total pour des gamma d'énergie 1278 keV ?

#### Pic d'absorption total = cascades d'évènements Compton puis par un effet photoélectrique

Tous ces évènements se déroulant dans le détecteur, toute l'énergie est collectée

Point spécifique sur la forme et la position du front Compton



#### □ Énergie de l'électron de la diffusion

Front Compton : au-delà d'un angle de 120°, l'énergie transférée est la même

→ Grands angles de diffusion = Grande énergie transférée à l'électron

Point spécifique sur la forme et la position du front Compton



Spectre d'acquisition d'une source de <sup>137</sup>Cs avec un HPGe. Trait rouge = 477 keV = énergie du front Compton.
### Point spécifique sur la forme et la position du front Compton



Énergie transmise à l'électron en fonction de l'angle de diffusion pour différentes énergies

- → A partir d'un certain angle de diffusion, énergie transmise à l'électron est la même ( $\approx E_{e-}(max)$ )
- $\rightarrow$  Front Compton

Compton hors du détecteur avec capture du photon diffusé

Problématique similaire que pour Compton mais intérêt sur le photon diffusé et non l'électron



□ Ici, énergie du photon diffusé dont capture dans le détecteur supposée



Pic de rétrodiffusion parfois peu marqué

→ Dépend du détecteur (puits, coaxial, plan, ...) et de l'environnement

- Point spécifique sur le bruit de fond radiologique
  - Qualifié de bruit de fond car ne correspond pas au signal d'intérêt
  - Cependant, il correspond à des rayonnements gamma de radionucléides
    - → Radionucléides cosmogéniques
    - → Radionucléides telluriques (++)
    - $\rightarrow$  Potassium 40 (++)

Point spécifique sur le bruit de fond radiologique







Point spécifique sur le bruit de fond radiologique



En résumé

La chaîne d'acquisition entraîne des problématiques de résolution :
 Élargissement des pics en distributions en cloche
 Front Compton ne correspond pas au canal maximal

Addition de toutes les composantes d'un même pic, et de tous les émetteurs présents

□ Bruit de fond présent (<sup>40</sup>K, chaînes naturelles du <sup>235</sup>U, <sup>238</sup>U, <sup>232</sup>Th)

Chaîne générale d'acquisition en physique



- Détecteurs classiques de spectrométrie γ
  - Deux types : scintillateurs et semi-conducteurs
- Scintillateurs
  - Porteur d'information = photons de scintillation
  - $\Box$   $\gamma$  incidents déposent de l'énergie dans le scintillateur  $\rightarrow$  excitation de la matière
  - Désexcitation en émettant des photons de scintillation (UV-Visible)





Deux types de scintillateurs : organiques et inorganiques
 Différence dans la génération des photons de scintillation

Dans les deux cas, nécessité de convertir le signal lumineux en signal électrique

Détecteur









48



https://fr.wikipedia.org/wiki/Tube\_photomultiplicateur https://en.wikipedia.org/wiki/Dynode

Photographies Laboratoire Capteurs et Architectures Electroniques (LCAE)

http://www.shalomeo.com/product/scintillators/encapsulated-naitlscintillators

> https://www.hamamatsu.com/jp/en/product/opticalsensors/pmt/index.html





cea

- Semi-conducteurs
  - Porteur d'information = paires électron/trou
  - Interaction avec des atomes du détecteur par les rayons y incidents
  - Porteurs collectés sur anode (électrons) / cathode (trous) grâce au champ électrique



Détecteur





http://www.innowtech.com/2019/06/03/les-detecteurs-cdte-et-cdznte/ https://www.ortec-online.com/products/radiation-detectors/germanium-hpge-radiation-detectors

Détecteur











Amplification signal électronique





http://www.quantar.com/pages/FAST/nimbin.htm https://www.ortec-online.com/products/electronics/amplifiers https://prep.fnal.gov/Catalog.php https://www.caen.it/products/hexagon/



6 7

3

4 5

Canal (#)

□ Transformer le signal électronique en numérique

### Traitement informatique des données



Logiciel de traitement gamma : MAESTRO (ORTEC) 🛛 II existe aussi :

...

- VisuGamma (SafeTechnologies)
- ProSpect (Canberra)
- MC<sup>2</sup> Analyser et Quantus (CAEN)
- MAESTRO (ORTEC)

PC / Carte d'acquisition

# **5** Étalonnage de la chaîne d'acquisition

- En énergie
- En résolution
- En rendement

### Étalonnage de la chaîne d'acquisition

Informations en sortie de chaîne non étalonnée

- Spectre de détection sous la forme d'un histogramme
- Unités sont le numéro de canal (abscisse) et le coup (ordonnée)
- □ Forme du spectre

Rappel des missions de la spectrométrie gamma

□ Identifier des radionucléides par l'énergie des rayonnements gamma
 → Impossible car unité ≠ énergie

- Quantifier la source radioactive
  - → Impossible car pas encore de relation entre le nombre de coups et l'activité

# Étalonnage de la chaîne d'acquisition

Chaîne d'acquisition

Partie matérielle (ou hardware)
 Partie logicielle (ou software) comprenant les étalonnages et l'analyse

Étalonnages

□ En énergie = donner une relation entre le numéro de canal et l'énergie

□ En résolution = caractériser la capacité de la chaîne à séparer des pics proches

□ En rendement = donner une relation entre le nombre de coups et l'activité

Détecteur utilisé : HPGe

Problématique du gain

Numériseur possède un nombre de canaux limités

□ Exemple : [0 – 3 MeV] numérisé sur 4096 canaux (ou 12 *bits* ; 2<sup>12</sup> = 4096)

- Réglage du gain
  - Gain sur l'amplificateur
    - → Plus l'impulsion est amplifiée, plus son canal associé sera grand

Utilisation d'une source radioactive gamma connue pour un premier réglage

#### Spectrométrie gamma - L3P MCN - Université de Nantes

59

### Étalonnage de la chaîne d'acquisition - Énergie

- Exemple : Réglage du gain
   Encoder [0 3 MeV] sur 4096 canaux
   Utilisation d'une source de Césium 137 : 661,7 keV
  - → Quel est le canal correspondant à l'énergie du pic d'absorption totale?



Spectre d'acquisition d'une source de <sup>137</sup>Cs avec un HPGe.

Énergie (keV)

0

3000

 $10^{4}$ 

10<sup>3</sup>

Exemple : Réglage du gain
 Encoder [0 – 3 MeV] sur 4096 canaux
 Utilisation d'une source de Césium 137 : 661,7 keV

Quel est le canal correspondant à l'énergie du pic d'absorption totale?

Canal (#)

0

4096

On sait que :

Donc: 
$$Canal(\gamma_{661,7}) = \left\lfloor \frac{661,7.4096}{3000} \right\rfloor = \lfloor 903,44 \rfloor = 903$$

Ajustement de la haute tension pour que le pic d'absorption totale du césium soit au canal nº 903



Spectre expérimental de 137Cs - HPGe

Spectre d'acquisition d'une source de <sup>137</sup>Cs avec un HPGe.

### Réglage gain

- Dermet de s'assurer que la dynamique en énergie recherchée est compatible
- □ N'est pas un étalonnage en énergie
- Courbe d'étalonnage en énergie
  - □ Étalonnage sur plusieurs pics d'absorption totale



### Courbe d'étalonnage en énergie

- Utilisation de plusieurs sources radioactives ou d'une seule qui émet différents gamma (exemple : <sup>152</sup>Eu émet majoritairement une 15<sup>aine</sup> de photons d'énergie allant de 40 à 1400 keV)
- Loi d'ajustement
  - Obtention d'un tableau contenant les relations canal-énergie
  - □ Relation de proportionnalité entre l'énergie déposée et l'impulsion : relation affine
    - → Hypothèse de linéarité des composants électroniques suffisante en instrumentation nucléaire

 $E(keV) = b \cdot C(\#) + c$ 

Hypothèse de linéarité insuffisante pour physique des hautes énergies

 $E(keV) = a \cdot C(\#)^2 + b \cdot C(\#) + c$ 

□ Vérifier en comparant les deux interpolations

### → On sait à quelle énergie se trouvent les pics vus sur le spectre

### Résolution

Décrit la capacité de séparer deux pics proches

Exprimée par la Largeur à Mi-Hauteur (LMH ou Full Width at Half-Maximum)



LMH privilégiée car :

- → Facilité de compréhension
- Ne nécessite pas d'hypothèse de distribution
- → 1 FWHM séparant deux pics est jugé suffisant pour identifier deux pics proches

Distribution normale centrée sur 662 keV et d'écart-type 2. Visualisation des bornes de la LMH en pointillées rouge et de la LMH par une double flèche

#### Spectrométrie gamma - L3P MCN - Université de Nantes

64

Étalonnage de la chaîne d'acquisition - Résolution

Largeur à mi-hauteur (ou Full Width at Half-Maximum)
 Bonne séparation pour 3 LMH d'écart entre les pics

□ Extraction directe des aires nettes de chaque pic



□ Pour une loi Normale :  $FWHM = 2\sqrt{2 \cdot \ln 2}$  .  $\sigma \approx 2,355$  .  $\sigma$ □ lci,  $\sigma = 2 \Rightarrow FWHM \approx 4,7$  et écart de 14 keV

→ Superposition des distributions minime

➔ 0,047 % de surface sous courbes convoluée

- Largeur totale à mi-hauteur (Full Width at Half-Maximum)
  - Séparation minimum pour 1 FWHM d'écart entre les pics
  - Nécessité d'utiliser des algorithmes de déconvolution (ajustements)



□ Pour une loi Normale :  $FWHM = 2\sqrt{2 \cdot \ln 2} \cdot \sigma \approx 2,355 \cdot \sigma$ □ lci,  $\sigma = 2 \Rightarrow FWHM \approx 4,7$  et écart de 4,7 keV

- → Superposition des distributions importante
- → 21,13 % de surface sous courbes convoluée

□ Spectre sommé (pointillés noir), maxima visibles

→ Application d'un algorithme de déconvolution





Mesure d'un échantillon d'uranium enrichi à 9,5% et bruit de fond associé, temps de mesure de 4500 secondes. Mesure réalisée dans une casemate en béton

Spectrométrie gamma - L3P MCN - Université de Nantes

Évolution de la résolution en fonction de l'énergie

- □ Résolution n'est pas constante selon l'énergie incidente détectée
- □ Formule d'ajustement pour un HPGe (ou tout autre semi-conducteur) :

FWHM(E) = a

 a, paramètre associé au bruit électronique, indépendant de l'énergie déposée car lié à la chaîne d'acquisition



Bruit électronique lié à l'agitation thermique des porteurs de charge (électrons) dans la chaîne d'acquisition

Aussi appelé « Bruit de Johnson-Nyquist »

Évolution de la résolution en fonction de l'énergie

- Résolution n'est pas constante selon l'énergie incidente détectée
- □ Formule d'ajustement pour un HPGe (ou tout autre semi-conducteur) :

$$FWHM(E) = 2\sqrt{2 \cdot \ln 2} \cdot \sqrt{F \cdot W} \cdot \sqrt{E}$$

$$b \cdot \sqrt{E}$$

- F, le facteur de Fano : facteur correctif, typiquement 0,13 pour HPGe et 0,14 pour Si
- W, transfert d'énergie **moyen** pour créer une paire électron/trou (eV), environ 2,98 eV

Évolution de la résolution en fonction de l'énergie

- Résolution n'est pas constante selon l'énergie incidente détectée
- □ Formule d'ajustement pour un HPGe (ou tout autre semi-conducteur) :

$$FWHM(E) = \underbrace{2\sqrt{2} \cdot \ln 2}_{b} \cdot \sqrt{F} \cdot W \cdot \sqrt{E}$$

- F, le facteur de Fano : facteur correctif, typiquement 0,13 pour HPGe et 0,14 pour Si
- W, transfert d'énergie **moyen** pour créer une paire électron/trou (eV), environ 2,98 eV
- Nombre de paires électrons/trous = nombre aléatoire centrés autour d'une valeur moyenne
  - → Impulsion électrique résultante est plus ou moins grande → élargissement des pics

Évolution de la résolution en fonction de l'énergie



Évolution de la résolution en fonction de l'énergie

- □ Résolution n'est pas constante selon l'énergie incidente détectée
- □ Formule d'ajustement pour un HPGe (ou tout autre semi-conducteur) :

 $FWHM(E) = a + b\sqrt{E}$ 

□ Empiriquement, on peut trouver  $FWHM(E) = a + b\sqrt{E + cE^2}$ , il faut évaluer les deux fonctions

→ Évaluation empirique nécessaire pour prendre en compte la véritable résolution de la chaîne de mesure

### → On connaît, pour tout pic d'absorption totale, l'incertitude sur l'énergie mesurée



Largeur totale à mi-hauteur (LTMH) en fonction de l'énergie calculée à partir de la fonction  $a + b\sqrt{E}$ .

Valeurs des paramètres *a* et *b* tirées de N. DUFOUR *et al., Measurement of low-activity uranium contamination by* gamma-ray spectrometry for nuclear decommissioning. NIM A, 2020
□ Établir une relation entre le nombre de coups et l'activité → Quantifier

Source radioactive émet un nombre de rayonnements proportionnel à son activité
Exemple d'une source de <sup>137</sup>Cs d'activité 100 kBq que l'on mesure pendant 100 secondes



85 émissions de rayonnements gamma d'énergie 661,7 keV pour 100 désintégrations

 $A I_{\gamma} = 100\ 000 \times 0.85 = 85\ 000$  gamma émis par la source par seconde

□ Mesure pendant 100 secondes

 $A I_{\gamma} t = 100\ 000 \times 0.85 \times 100 = 8.5\ 10^6$  gamma émis par la source

Schéma de désintégration du <sup>137</sup>Cs

□ Établir une relation entre le nombre de coups et l'activité → Quantifier

Source radioactive émet un nombre de rayonnements proportionnel à son activité
Exemple d'une source de <sup>137</sup>Cs d'activité 100 kBq que l'on mesure pendant 100 secondes



85 émissions de rayonnements gamma d'énergie 661,7 keV pour 100 désintégrations

 $A I_{\gamma} = 100\ 000 \times 0.85 = 85\ 000$  gamma émis par la source par seconde

□ Mesure pendant 100 secondes

 $A I_{\gamma} t = 100\ 000 \times 0.85 \times 100 = 8.5\ 10^6$  gamma émis par la source

Schéma de désintégration du <sup>137</sup>Cs Me

Mesure-t-on l'ensemble de ces gamma ?

La réponse est **NON** 

Ils peuvent être absorbés par la source elle-même



Proche de l pour des sources étalons de laboratoire

La réponse est NON

Ils peuvent ne pas être émis en direction du détecteur

 $\Box$  On définit alors le rendement géométrique comme :  $\varepsilon_{\Omega} =$ 





Détecteur

Nombre de gamma émis vers le détecteur

Nombre de gamma sortant de la source

 $\Box$  Assimilable à la fraction d'une sphère de  $4\pi$  stéradians, correspondant à l'émission isotrope, correspondant aux émissions vers le détecteur





On définit alors le rendement intrinsèque comme :

 $\epsilon_{int} = \frac{Nombre \ de \ gamma \ ayant \ interagi \ dans \ le \ détecteur}{Nombre \ de \ gamma \ émis \ vers \ le \ détecteur}$ 

La réponse est NON

#### Notion de coup (ou détection)

Si un gamma a atteint le détecteur et interagi avec, une impulsion est générée
Si l'impulsion franchit le seuil de détection, alors on enregistre un coup

Rendement absolu de détection

La prise en compte des trois efficacités donne l'efficacité absolue totale

 $\varepsilon_{AT} = \varepsilon_{S} \cdot \varepsilon_{\Omega} \cdot \varepsilon_{int} = \frac{Nombre \ de \ gamma \ ayant \ interagi \ dans \ le \ détecteur}{Nombre \ de \ gamma \ émis \ par \ la \ source}$ 

#### □ Nombre gamma émis par la source = $A I_{\gamma} t$

Lien entre nombre de coups et activité de la source

- Expérimentalement, on obtient un nombre de coups dans tout le spectre
- □ Nombre de gamma émis par la source =  $A I_{\gamma} t$

$$\varepsilon_{AT} = \frac{Nombre \ de \ coups \ dans \ tout \ le \ spectre}{A \ I_{\gamma} \ t}$$

→ A priori lien entre activité de la source et nombre de coups

Représentativité du nombre total de coups ?

- Présence de bruit de fond
- □ Si plusieurs sources présentes ?

→ Quel nombre de coups choisir pour calculer l'activité d'un radionucléide spécifique ?

Rendement représentatif d'un radionucléide spécifique

- Identification par énergie du gamma émis
- Énergie émise totalement déposée = pic d'absorption totale

### Si l'on soustrait le bruit de fond au pic d'absorption total, le nombre de coups net ne provient que de la source que l'on étudie

→ Définition d'un rendement absolu d'absorption totale ( $\varepsilon_{AAT}$  ou  $R_{AAT}$ )

 $\varepsilon_{AAT} = \frac{Nombre \ de \ coups \ net \ dans \ le \ pic \ d'absorption \ totale}{Nombre \ de \ gamma \ émis}$ 

Rapport entre

- Nombre de coups net dans le pic d'absorption totale
- Nombre de gamma émis par la source

Nombre de coups net (S) : Nombre de coups total moins le bruit de fond
Nombre de gamma émis : A . I<sub>γ</sub> . t

On calcule ce rendement à l'aide de sources étalons pour établir l'étalonnage
On applique ensuite l'étalonnage à toute source non quantifiée



$$\varepsilon_{AT} = \frac{S}{A \cdot I_{\gamma} \cdot t}$$

Courbe d'étalonnage en rendement absolu d'absorption total d'un HPGe



Capot du détecteur bloque les basses énergies

→ Croissance de 0 au maximum du rendement

Plus l'énergie augmente, plus la section efficace d'interaction diminue

→ Décroissance après le maximum

Maximum = compromis entre atténuation du capot et probabilité d'interaction dans le détecteur

C. Nair et al., Dipole strength in <sup>144</sup>Sm studied via  $(\gamma, n)$ ,  $(\gamma, p)$ , and  $(\gamma, a)$  reactions , Phys. Rev. C., vol. 81, 2010 Spectrométrie gamma – L3P MCN – Université de Nantes



Courbe d'étalonnage en rendement absolu d'absorption total d'un HPGe

C. Nair et al., Dipole strength in <sup>144</sup>Sm studied via  $(\gamma, n)$ ,  $(\gamma, p)$ , and  $(\gamma, \alpha)$  reactions, Phys. Rev. C., vol. 81, 2010

Spectrométrie gamma - L3P MCN - Université de Nantes

- Désintégration
  - Processus aléatoire : impossible d'anticiper le temps avant désintégration d'un noyau donné
  - Pour une population de noyaux : proportionnalité entre l'activité (A) et la population de noyaux (N)
    - $\rightarrow$  Constante de désintégration  $\lambda$

$$\lambda = \frac{A}{N}$$

- Distribution du comptage première approche
  - Deux états possibles pour le noyau : désintégré ou non
  - Probabilité d'une désintégration ne dépend que du temps passé et non de l'origine de l'observation
  - La désintégration d'un noyau est un phénomène indépendant des autres désintégrations
    - Distribution binomiale
- Approximation loi de Poisson
  - Probabilité de désintégration est très faible
  - Nombre de noyaux présents très grand
    - → Approximation par loi de Poisson possible

- Caractéristiques d'une loi de Poisson
  - **Un seul paramètre :**  $\lambda_P = N.p$
  - **D** Espérance :  $\lambda_P$
  - **D** Variance :  $\lambda_P$
  - $\Box \quad \text{Écart-type} : \sigma = \sqrt{Variance} = \sqrt{\lambda_P}$

$$P(X=k) = \frac{\lambda_P^k}{k!} \cdot e^{-\lambda_F}$$

- Loi de Gauss (loi Normale)
  - Vrai pour valeur moyenne suffisamment grande (> 30)
  - Distribution continue similaire en forme à la loi de Poisson

$$f(x) = \frac{1}{\sigma \cdot \sqrt{2\pi}} \cdot e^{-\frac{1}{2}\left(\frac{x-\mu}{\sigma}\right)^2}$$

Deux paramètres : μ valeur moyenne et σ écart-type
Permet le calcul d'intervalles de confiance





Exemple de distribution gaussienne
Pic absorption totale
Comptage = tous les coups sous le pic

 $\rightarrow$  Aire nette

Incertitude sur l'énergie lue
Pic suit une loi Gaussienne :

$$\rightarrow \sigma(E) = \frac{FWHM}{2,355} = 4,0 \text{ keV}$$

□ Capacité de décrire l'élargissement : →  $E_{mesurée} = 662 \pm 4 \text{ keV} (1 \sigma)$ 



Intervalle de confiance

□ Répétons un comptage un nombre infini de fois et calculons la probabilité associée :



□ Addition des probabilités entre  $-1\sigma$  et  $+1\sigma$  = 68,3 %

- □ Addition des probabilités entre -1,96  $\sigma$  et +1,96  $\sigma$  = 95 %
- □ Addition des probabilités entre  $-3 \sigma$  et  $+3 \sigma$  = 99,9 %

Intervalle de confiance

 $\Box$  Comptage unique, supposons le comptage  $N_1$ 

 $N_1 = 6400$ 

□ Intervalle de confiance autour de *N*<sub>1</sub> donne la probabilité d'avoir la valeur moyenne comprise



Valeur moyenne de 6283 bien comprise dans l'intervalle de confiance

 $\Box$  Ici, intervalle de confiance à k = 3

□ Pourquoi préciser l'intervalle de confiance ?
□ 6283 ± 79 (1σ) ≠ 6283 ± 79 (3σ)
□ Pour connaître la précision de la mesure
→ Métrologie

Utile dans le réglage d'alarmes, de seuil, ...

Pour aller plus loin : faux positif et faux négatif
Éviter les faux positifs (déclencher l'alarme à tort)

 $\rightarrow$  Monter le seuil

→ Utile dans des fonctionnements critiques où l'arrêt doit être confirmé

Éviter les faux négatifs (ne pas déclencher l'alarme à tort)

 $\rightarrow$  Baisser le seuil

→ Utile dans le démantèlement où on l'oublie pas de contamination à retirer (mieux vaut trop en retirer que pas assez)



- Calcul d'incertitude
  - □ Exemple : nombre de coups net

 $\rightarrow S = m_{Total} - m_{BdF}$ 

 $\Box \quad \Delta S \neq \sqrt{S}$ 

→ Où est prise en compte l'incertitude de  $m_{Total}$  et de  $m_{BdF}$  ?

Propagation des incertitudes

$$(\Delta R)^2 = \sum_{i=1}^n \left(\frac{\partial R}{\partial X_i} \cdot \Delta X_i\right)^2$$

- Avec *R*, la grandeur étudiée
- $\Delta R$ , son incertitude absolue
- $X_{1, 2, \dots, n}$  des grandeurs
- $\Delta X_{1, 2, ..., n}$  les incertitudes absolues associées

Incertitude nombre de coups net

 $\Box \Delta S = \sqrt{m_{Total} + m_{BdF}}$ 

Incertitude efficacité

 $\Box \varepsilon = \frac{S}{A \cdot I_{\gamma} \cdot t}$ 

$$\rightarrow \left(\frac{\Delta\varepsilon}{\varepsilon}\right)^2 = \left(\frac{\Delta S}{S}\right)^2 + \left(\frac{\Delta A}{A}\right)^2 + \left(\frac{\Delta I}{I}\right)^2 + \left(\frac{\Delta t}{t}\right)^2$$

Formule généralisable à toute grandeur estimée uniquement à partir de multiplications et/ou de divisions

$$\left(\frac{\Delta R}{R}\right)^2 = \left(\frac{\Delta X_1}{X_1}\right)^2 + \left(\frac{\Delta X_2}{X_2}\right)^2 + \dots + \left(\frac{\Delta X_n}{X_n}\right)^2$$

# **7** Cas d'applications de la spectrométrie gamma

- Analyse par Activation Neutronique (AAN)
- Fluorescence par résonance nucléaire (FRN)
- Mesure de faible activités

#### Cas d'applications de la spectrométrie gamma Analyse par Activation Neutronique (AAN)

- Analyse par activation neutronique (AAN)
  - **Exposition** d'un échantillon à caractériser à un flux neutronique pendant un temps  $t_{irr}$
  - Certains noyaux subissent une capture radiative, c'est-à-dire qu'ils absorbent le neutron incident
  - Les noyaux ainsi formés sont des isotopes formés généralement à l'état excité :

 ${}^{A}_{Z}X + {}^{1}_{0}n \rightarrow {}^{A+1}_{Z}X^{*} \rightarrow {}^{A+1}_{Z}X + {}^{0}_{0}\gamma$ 

- Les rayonnements gamma de cette réaction sont qualifiés de prompts peuvent être étudiés en spectrométrie gamma
- On utilise surtout le fait que le noyau <sup>A+1</sup><sub>Z</sub>X est instable et se désintègre en formant un nouvel élément excité, par exemple par désintégration bêta moins :

$${}^{A+1}_{Z}X \to {}^{A+1}_{Z+1}X^* + {}^{0}_{-1}\beta^- + {}^{0}_{0}\overline{\nu_e} \quad ; \quad {}^{A+1}_{Z+1}X^* \to {}^{A+1}_{Z+1}X + {}^{0}_{0}\gamma$$

Le rayonnement gamma est ici différé et on peut donc le mesurer par spectrométrie gamma car la durée de vie du noyau instable est généralement suffisante

#### Cas d'applications de la spectrométrie gamma Analyse par Activation Neutronique (AAN)

L'activité des noyaux produits par activation neutronique est donnée par :

$$\forall t \in [0; t_{irr}], \ \mathcal{A}_{A+\frac{1}{Z}X}(t) = \frac{N_{AX} \sigma_{AX(n,\gamma)} \varphi_{n,th}}{\lambda_{A+\frac{1}{Z}X}} \left(1 - e^{-\lambda_{A+\frac{1}{Z}X} t}\right)$$

avec:

- $N_{\frac{A}{ZX}}$  le nombre de noyaux de l'isotope initial avant activation neutronique (s.u.)
- $\sigma_{A_{ZX(n,\gamma),th}}$  la section efficace microscopique de capture radiative des neutrons thermiques par le noyau (en barns b, 1 b = 10<sup>-24</sup> cm<sup>2</sup>)
- $\varphi_{n,th}$  le flux de neutrons thermiques incident sur l'échantillon analysé (en n.cm<sup>-2</sup>.s<sup>-1</sup>)
- $\lambda_{A+\frac{1}{2}X}$  la constante de désintégration du radio-isotope  $A+\frac{1}{2}X$  (en s<sup>-1</sup>)

#### Cas d'applications de la spectrométrie gamma Analyse par Activation Neutronique (AAN)

 $\Box$  L'activité à saturation, notée  $\mathcal{A}_{A+\frac{1}{7}X,\infty}$ , est définie telle que

$$\mathcal{A}_{A+\frac{1}{Z}X,\infty} = \lim_{t\to\infty} \mathcal{A}_{A+\frac{1}{Z}X}(t) = \frac{N_{A_{X}} \sigma_{A_{X}(n,\gamma)} \varphi_{n,th}}{\lambda_{A+\frac{1}{Z}X}}$$

□ En choisissant  $t_{irr} = 10 T_{1/2,A+\frac{1}{2}X}$  où  $T_{1/2,A+\frac{1}{2}X}$  est la demi-vie du produit d'activation, on a :

$$\mathcal{A}_{A+\frac{1}{Z}X}(t_{irr}) = 0,999 \mathcal{A}_{A+\frac{1}{Z}X,\infty} \sim \mathcal{A}_{A+\frac{1}{Z}X,\infty}$$

Le temps de refroidissement, noté t<sub>ref</sub>, représente la durée écoulée entre la fin de l'irradiation et la mesure instantanée

$$\forall t \in [t_{irr}; t_{ref}], \mathcal{A}_{A+\frac{1}{ZX}}(t) = \mathcal{A}_{A+\frac{1}{ZX}}(t_{irr}) e^{-\lambda_{A+\frac{1}{ZX}}t}$$

□ Or la quantification de l'émission gamma associée ( $\gamma$ .s<sup>-1</sup>), réalisée au moyen d'une mesure spectrométrique, donne un résultat proportionnel à  $\mathcal{A}_{A+\frac{1}{Z}X}(t_{ref})$  (via l'intensité d'émission  $I_{\gamma,A+\frac{1}{Z}X}$ )

 $\rightarrow$  accès à la concentration de l'échantillon en noyaux de  $^{A+1}_{Z}X$ 

### Fluorescence par résonance nucléaire

□ Fluorescence par résonance nucléaire (FRN) ou réaction du type  $X(\gamma, \gamma')X$ 

- Émission de rayonnements gamma d'énergie égale à un état excité d'un élément recherché
- □ Section efficace de capture est importante à une énergie égale à l'état excité = résonance



Schéma de principe d'un dispositif de mesure par FRN

Extrait de N. Kikuzawa, Nondestructive Detection of Heavily Shielded Materials by Using Nuclear Resonance

Fluorescence with a Laser-Compton Scattering γ-ray Source, Appl. Phys. Express, 2009.

Spectrométrie gamma - L3P MCN - Université de Nantes

Noyau se retrouve dans l'état excité correspondant au gamma incident

Désexcitation et réémission isotropique



Schéma de principe d'un dispositif de mesure par FRN

Extrait de H. Lan, Nuclear resonance fluorescence drug inspection, Scientific Reports, 2021.

### Fluorescence par résonance nucléaire

Der spectrométrie gamma, isotopie du matériau est disponible

- Apparition de pics de résonance correspondant à un isotope d'un élément donné
- Applications
  - □ Analyse non destructive : recherche d'éléments particuliers
  - □ Exemples
    - Drogues illicites contiennent significativement plus de chlore que des éléments organiques licites
    - Recherche de matériaux spécifiques comme de l'uranium
    - ...

### Mesures de faibles activités



#### Mesure de faibles activités

- Conditions de bas bruit de fond (blindage anti rayonnements cosmiques, plomb archéologique, blindage actif par suppression Compton, ...)
- Mesure de la radioactivité naturelle ou artificielle de faible activité

#### **Exemples**

- Caractérisation d'échantillons naturels de sols contenant les chaînes naturelles de l'uranium 235/238 et du thorium 232
- Caractérisation de la radioactivité présente dans la nourriture des suites de l'accident de Fukushima
- Mesure de la présence de radio-isotopes dans l'air caractéristiques d'incidents ou d'essais d'armes nucléaires (exemple : ruthénium-106 dans l'air en France en 2007)

#### Mesures de faibles activités

Application en France : mesure du césium-137 dans le vin



Évolution temporelle de l'activité de césium-137 dans les bouteilles de vin Bordeaux. Activité donnée en milli becquerel par litre. Source : Philippe HUBERT, CENBG, 2009.

- Présence de césium-137 uniquement après 1950 car c'est un radio-isotope artificiel
- Si présence dans un vin daté d'avant 1950, alors il y a fraude
- Si activité mesurée différente par rapport à activité attendue, alors suspicion de fraude
- Collaboration entre Centre d'Études Nucléaires de Bordeaux-Gradignan (CENBG) et le Laboratoire Interrégional de Bordeaux de la Direction Générale de la Concurrence, de la Consommation et de la Répression des Fraudes (DGCCRF)







### Merci de votre attention



- C. Le Sech, C. Ngô, Physique nucléaire, Des quarks aux applications, Dunod, Paris (2010)
- M. K. MITTAL, R. C. VERMA, *et al.*, Introduction to Nuclear and Particle Physics, 4<sup>ème</sup> édition, 2018.
- **3.** G. GILMORE, Practical gamma-ray spectrometry, 2<sup>ème</sup> edition, 2008
- 4. G.F. KNOLL, Radiation detection and measurement, 4<sup>ème</sup> édition, 2010