

Spectrométrie gamma

Dr. Nicolas DUFOUR

Commissariat à l'Énergie Atomique et aux Énergies Alternatives

11/01/2024 – 12/01/2024



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

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

Étalonnage de la chaîne

Sommaire du cours

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



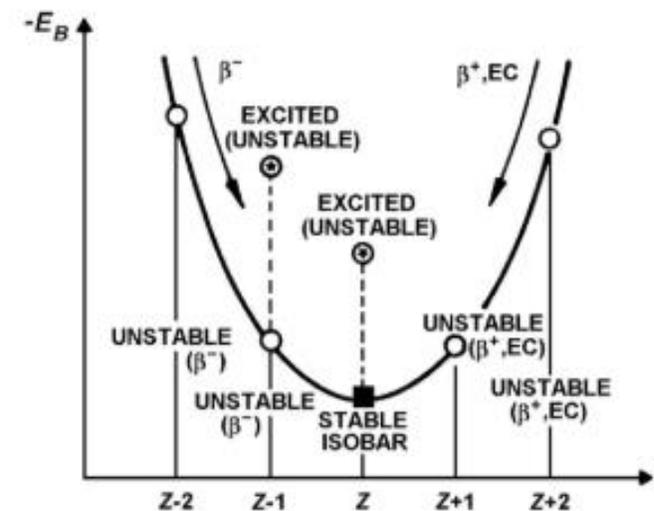
1. Origine des rayonnements gamma

Origine des rayonnements gamma

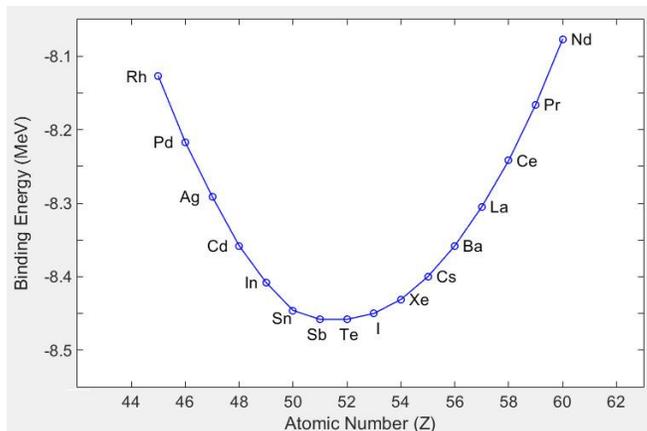
- ❑ Stabilité du noyau
 - ❑ Noyau stable = noyau dont l'énergie de liaison est suffisamment grande pour son nombre de nucléons
 - ❑ Énergie de liaison = énergie nécessaire à fournir au noyau pour le séparer en ses nucléons
- Un noyau instable cherche à maximiser son énergie de liaison par nucléon au travers de désintégrations
 - cf. Courbe d'Aston
- ❑ Atteindre la stabilité
 - ❑ Deux cas de figures :
 - 1) Il existe, **pour un nombre de nucléons donné**, un ou plusieurs noyaux stables
 - 2) Il n'existe pas, **pour un nombre de nucléons donné**, de noyaux stables
- Cas n°1 : On change la configuration neutrons/protons par désintégration β^- , β^+ ou capture électronique
- Cas n°2 : On réduit le nombre de nucléons par désintégration α ou fission spontanée

Origine des rayonnements gamma

□ Cas n°1

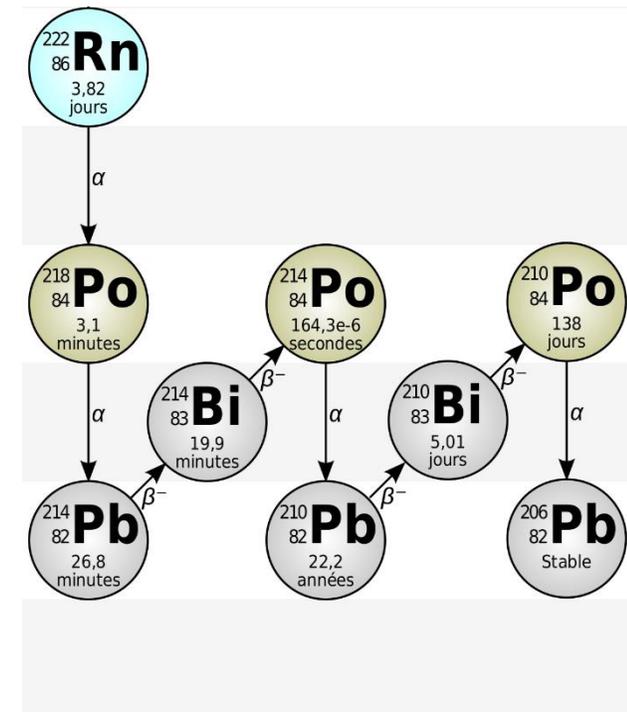
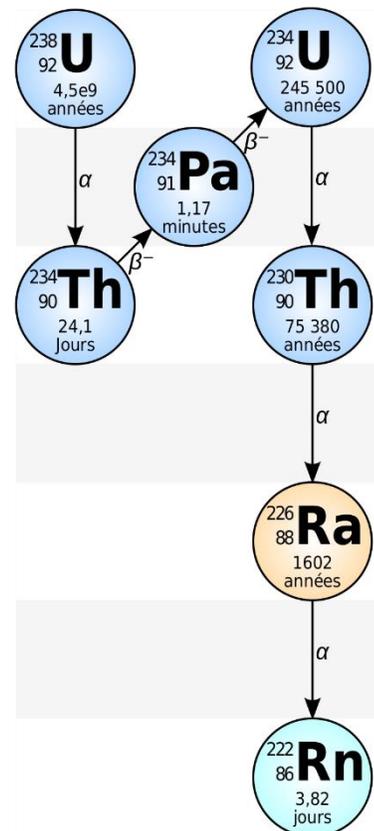


Opposée de l'énergie de liaison en fonction du numéro atomique pour un nombre de nucléons = A



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

□ Cas n°2



Chaîne de désintégration naturelle de l'uranium 238

G. Choppin et al., *Radiochemistry and Nuclear Chemistry*, 2013

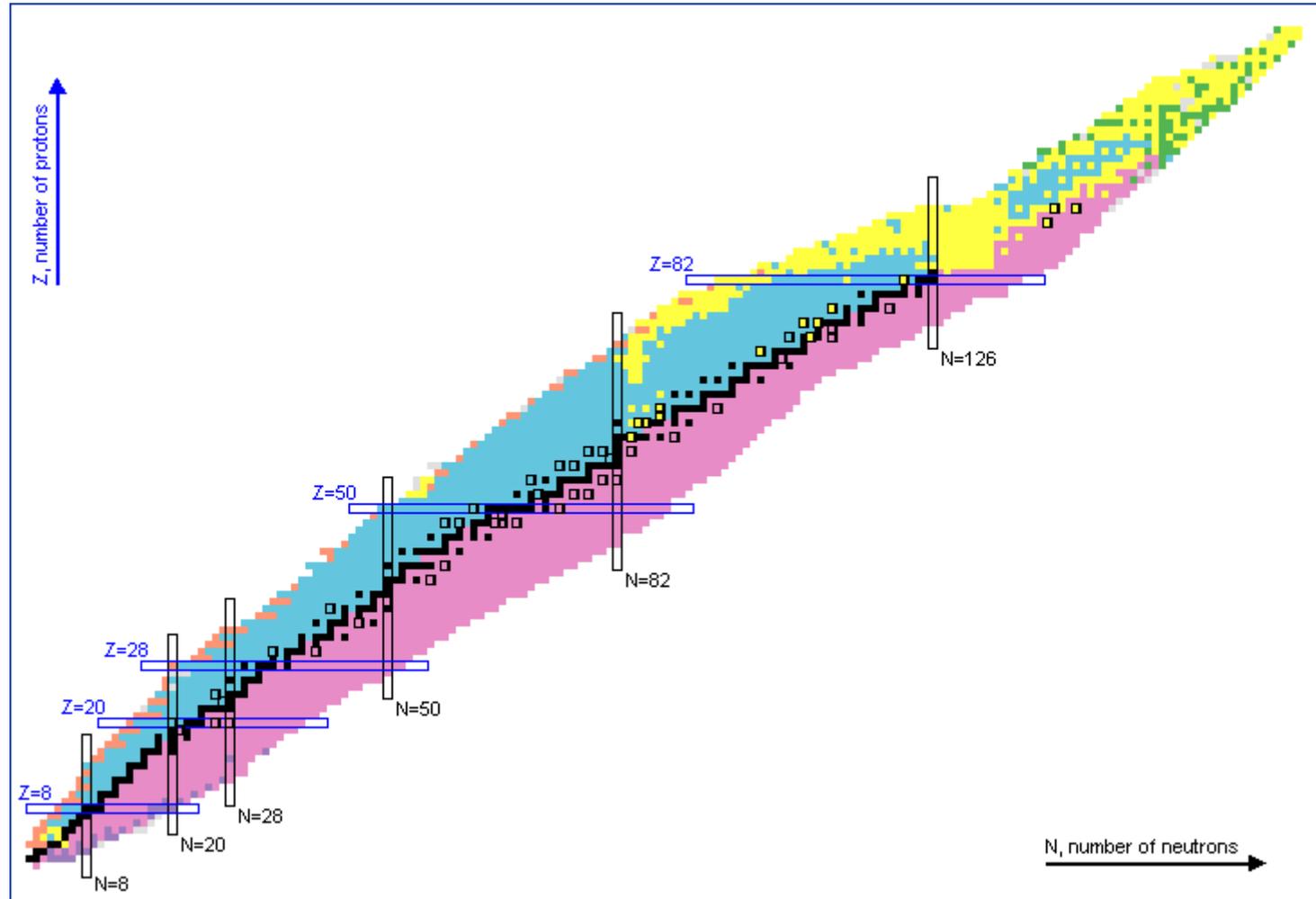
https://en.wikipedia.org/wiki/Valley_of_stability

https://fr.wikipedia.org/wiki/Uranium_238

Origine des rayonnements gamma

□ Vallée de la stabilité

Chart of Nuclides – NNDC – Brookhaven National Laboratory



- Bleu = bêta + / CE
- Rose = bêta -
- Jaune = alpha
- Vert = fission spontanée
- Orange = proton
- Violet = neutron
- Noir = stable

Origine des rayonnements gamma

- ❑ 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

Origine des rayonnements gamma

□ État excité

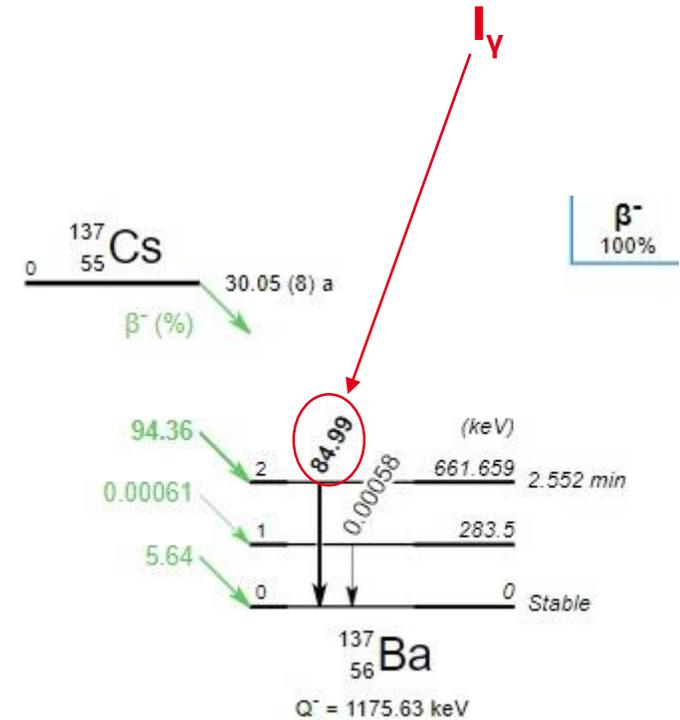
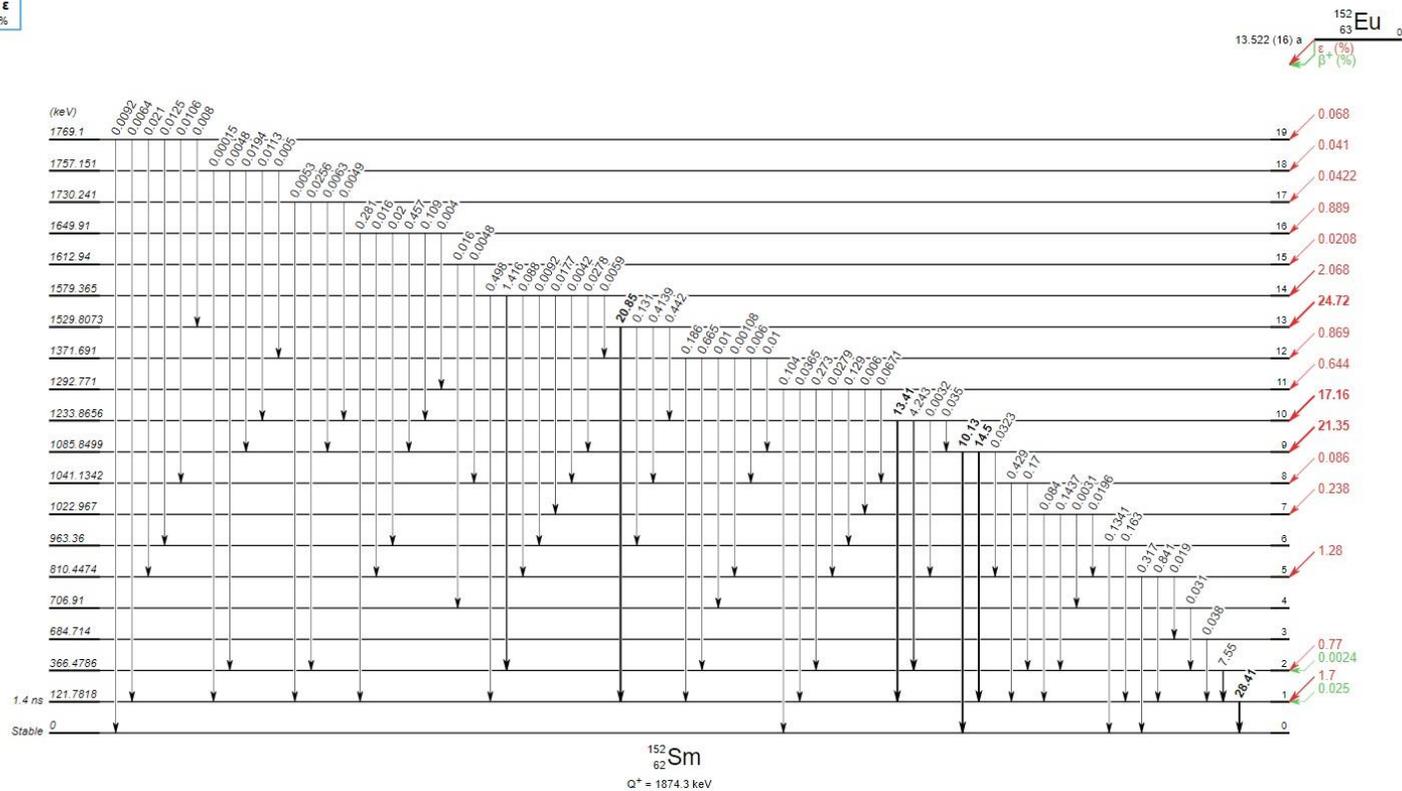
□ D'autres phénomènes conduisant à l'émission de rayonnements gamma existent :

- Interaction nucléaire : diffusion inélastique (n, n') ou $(n, n'\gamma)$, capture radiative (n, γ) , ...
- Excitation directe de l'état fondamental ou d'un état de moindre excitation

Origine des rayonnements gamma

Radioactivité gamma

β^+ , ϵ
72.1%



Spectres d'émissions de l'euprémium 152 (gauche) et du césium 137 (au-dessus), donnés par Nucleide-LARA

Origine des rayonnements gamma

- ❑ En résumé
 - ❑ Noyau fils d'une désintégration peut être dans un **état excité**
→ **Émission d'un rayonnement γ 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



2. Interaction rayonnement- matière

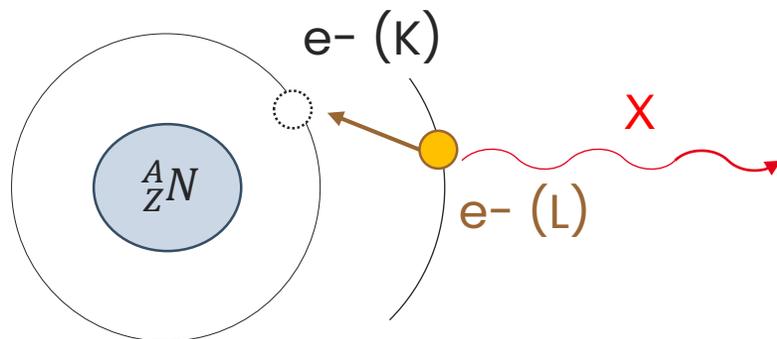
Interaction rayonnement-matière

- ❑ Interaction rayonnement-matière
 - ❑ Photon = particule **indirectement ionisante**
 - ❑ **3 effets** prédominants : effet photoélectrique, diffusion Compton et création de paires
- ❑ Effet photoélectrique (prédominant pour $E_\gamma < 150$ keV dans le germanium)
 - ❑ **Transmission de la totalité de l'énergie** d'un photon incident à un électron du milieu

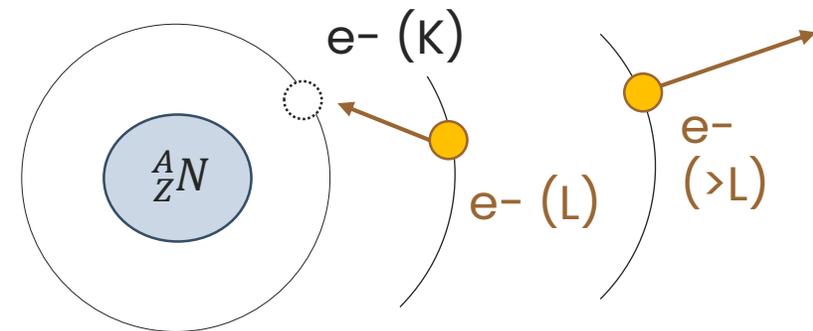
$$E_{e^-} = E_\gamma - E_{Liaison}$$



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



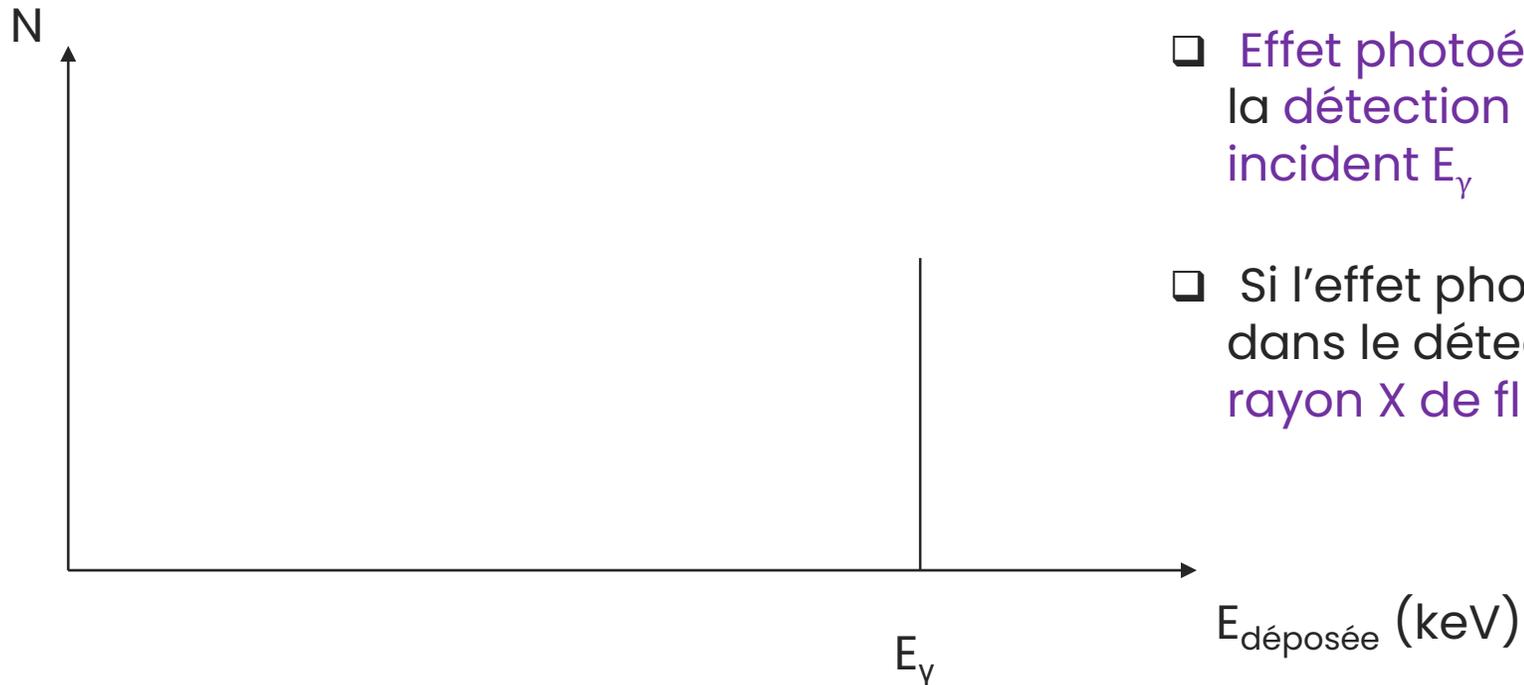
ou



Interaction rayonnement-matière



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



- Effet photoélectrique dans le détecteur induit la détection d'un coup à l'énergie du photon incident E_γ
- Si l'effet photoélectrique a lieu ailleurs que dans le détecteur, possibilité de détection du rayon X de fluorescence → X du plomb

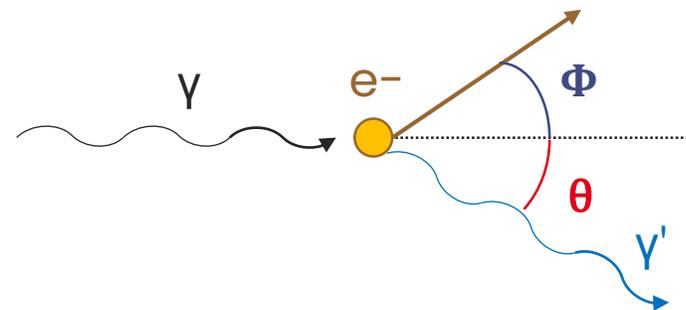
Interaction rayonnement-matière

- 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
 - Réémission du photon dans une direction différente (θ) que celle initiale

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

- Maximum

- $E_{e^-}(max)$ quand $\theta = 180^\circ$
→ Rétrodiffusion du photon



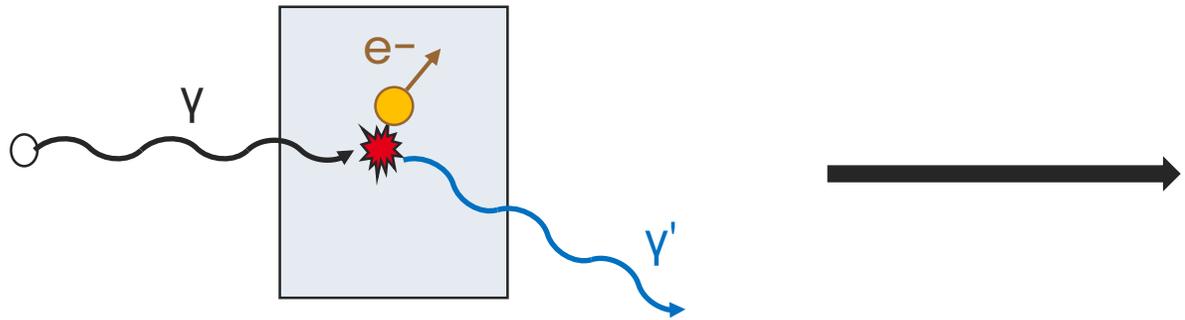
Φ , angle de recul

θ , angle de diffusion

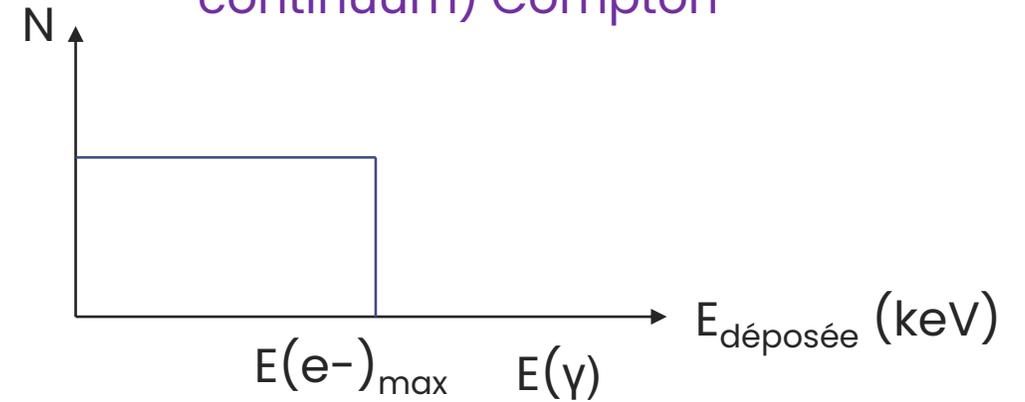
- Ici, $E_{Liaison}$ est négligée car les électrons concernés par la diffusion Compton sont ceux des couches les moins liées $\rightarrow E_{Liaison} \ll E_{e^-} \& E_\gamma$

Interaction rayonnement-matière

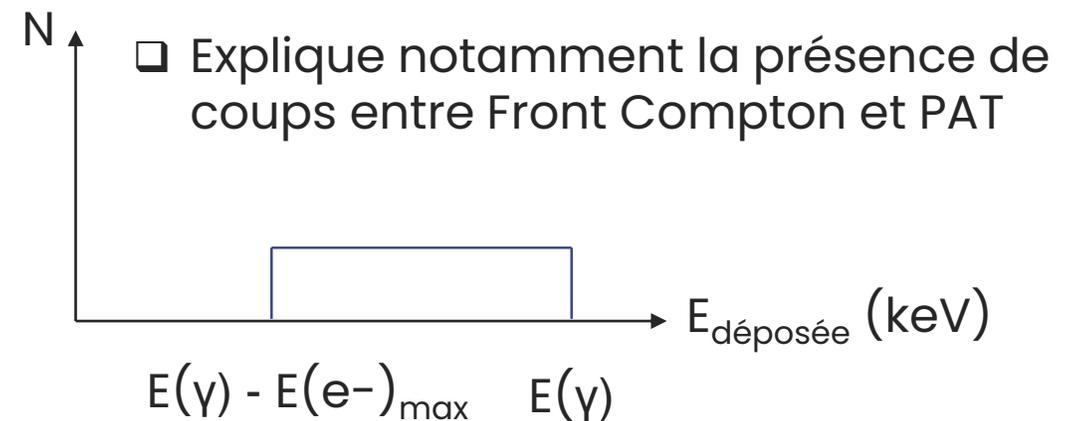
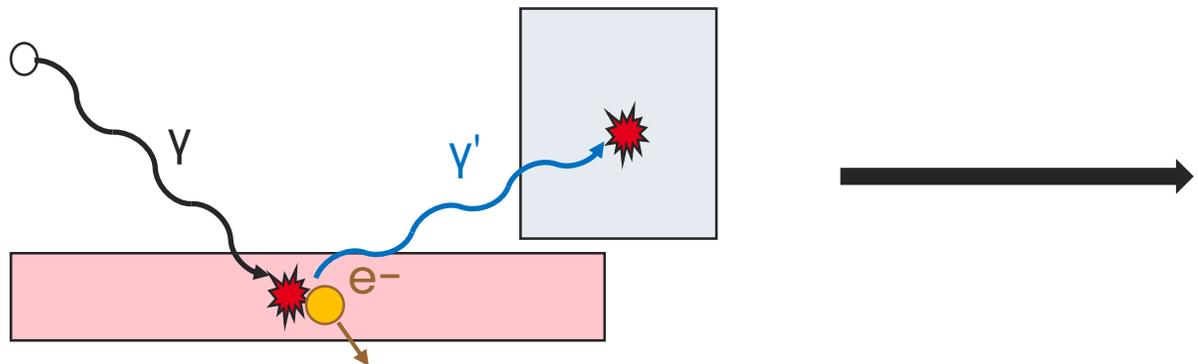
- Deux cas de figures
 - Effet Compton dans le détecteur



- Énergie maximale : **front Compton**
- Large gamme en énergie : **plateau (ou continuum) Compton**



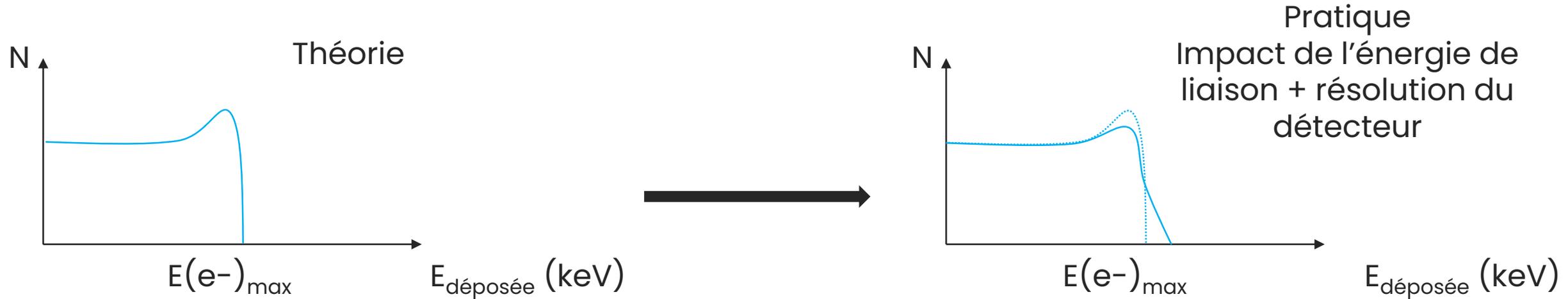
- Effet Compton dans l'environnement



- Explique notamment la présence de coups entre Front Compton et PAT

Interaction rayonnement-matière

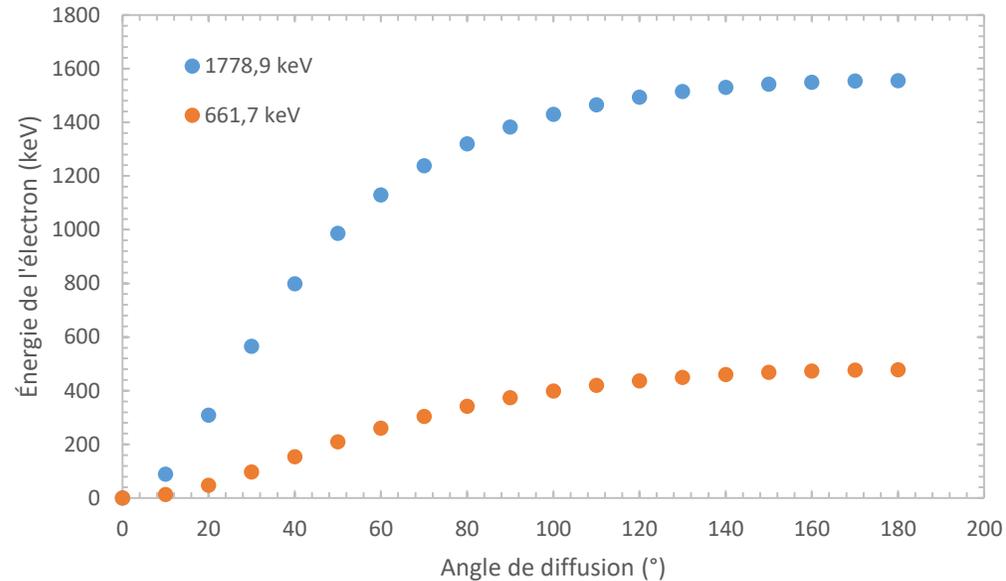
- Compton dans le détecteur avec échappement du photon diffusé



- 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

Interaction rayonnement-matière

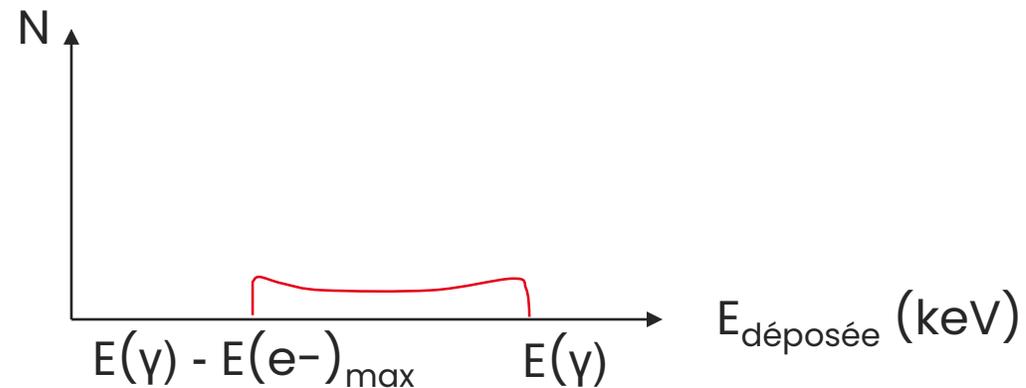


Énergie transmise à l'électron en fonction de l'angle de diffusion pour différentes énergies

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

Interaction rayonnement-matière

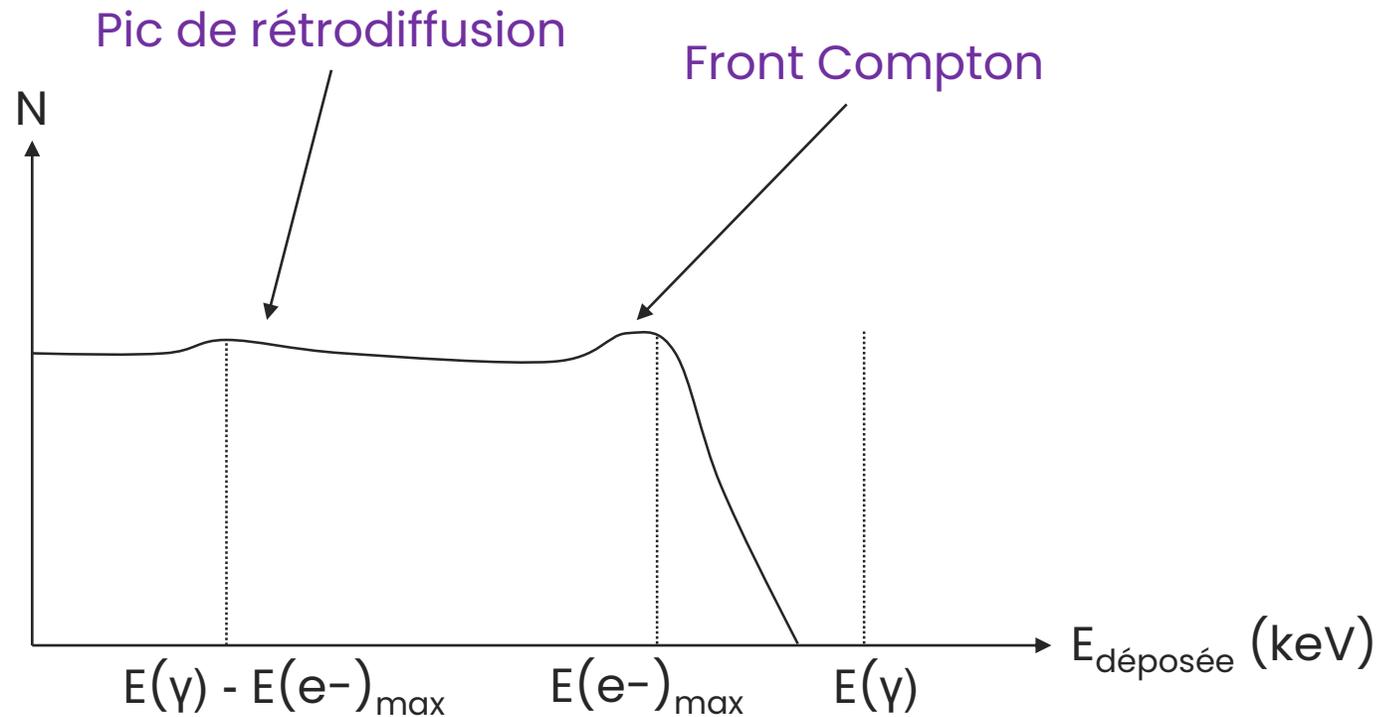
- ❑ Compton hors du détecteur avec capture du photon diffusé
 - ❑ Problématique similaire que pour Compton mais intérêt sur le photon diffusé et non l'électron



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

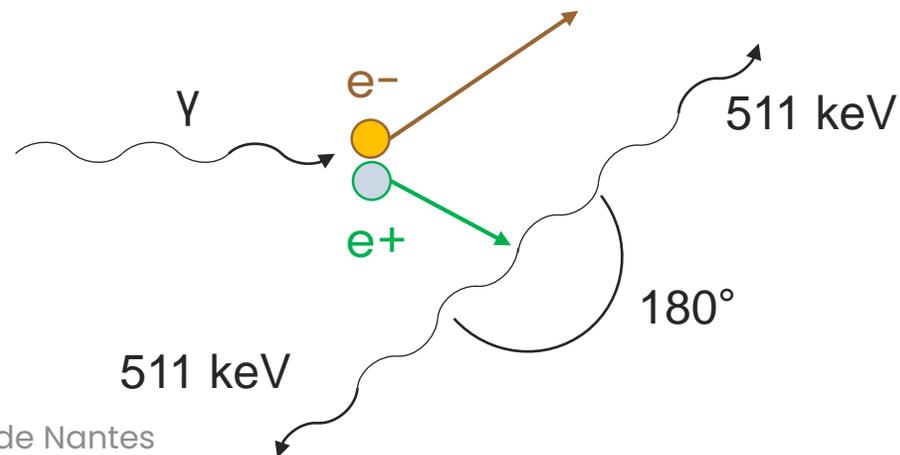
Interaction rayonnement-matière

- Combinaison Compton + rétrodiffusion



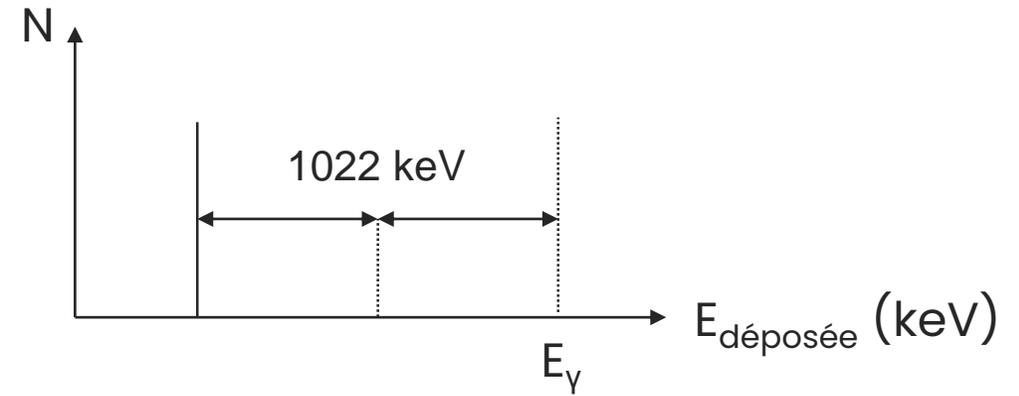
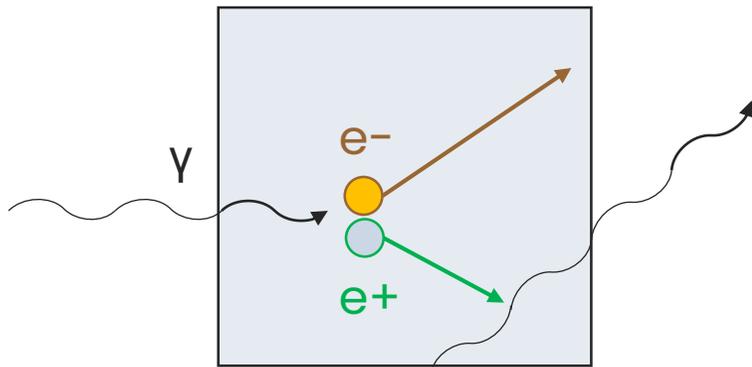
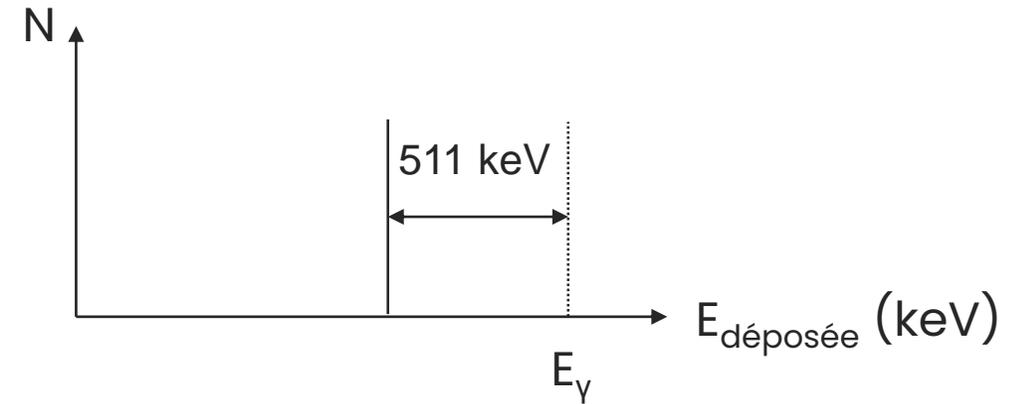
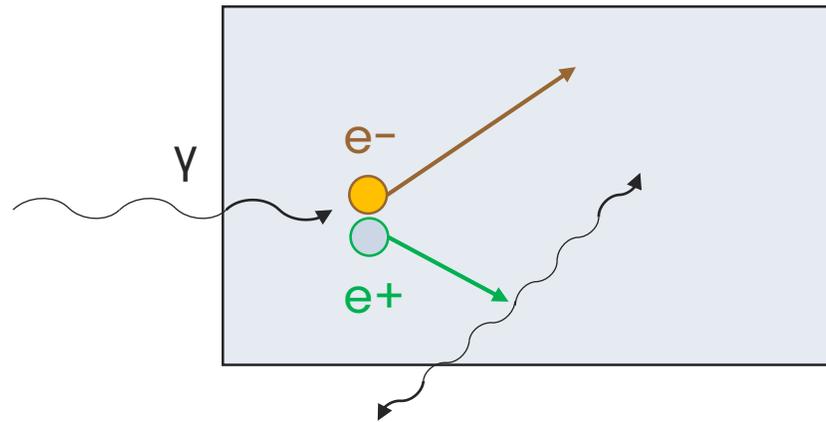
Interaction rayonnement-matière

- ❑ Création de paires ($E_\gamma > 1022 \text{ keV}$)
 - ❑ 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
 - ❑ Positron 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)



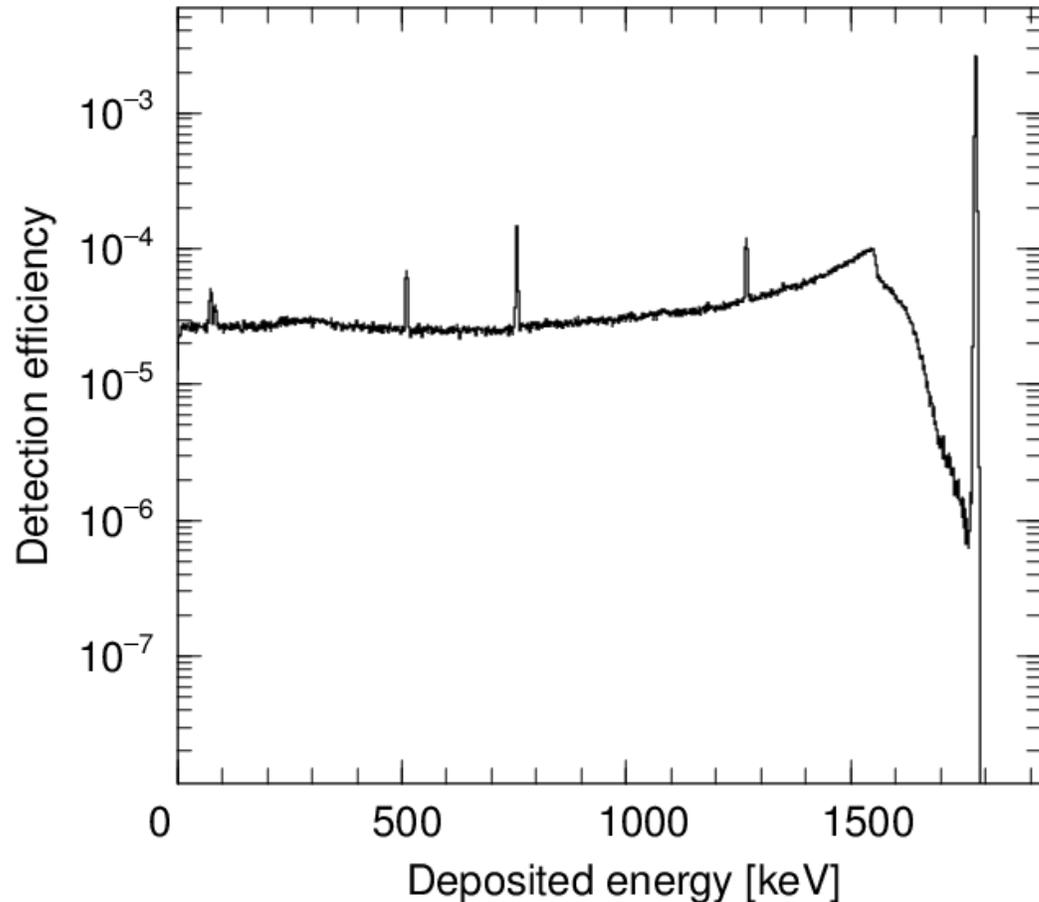
Interaction rayonnement-matière

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



Interaction rayonnement-matière

- Conséquence des 3 interactions sur le spectre mesuré



Efficacité de détection simulée d'un rayon γ de 1778,9 keV (^{28}Al)
avec un détecteur HPGe entouré de plomb

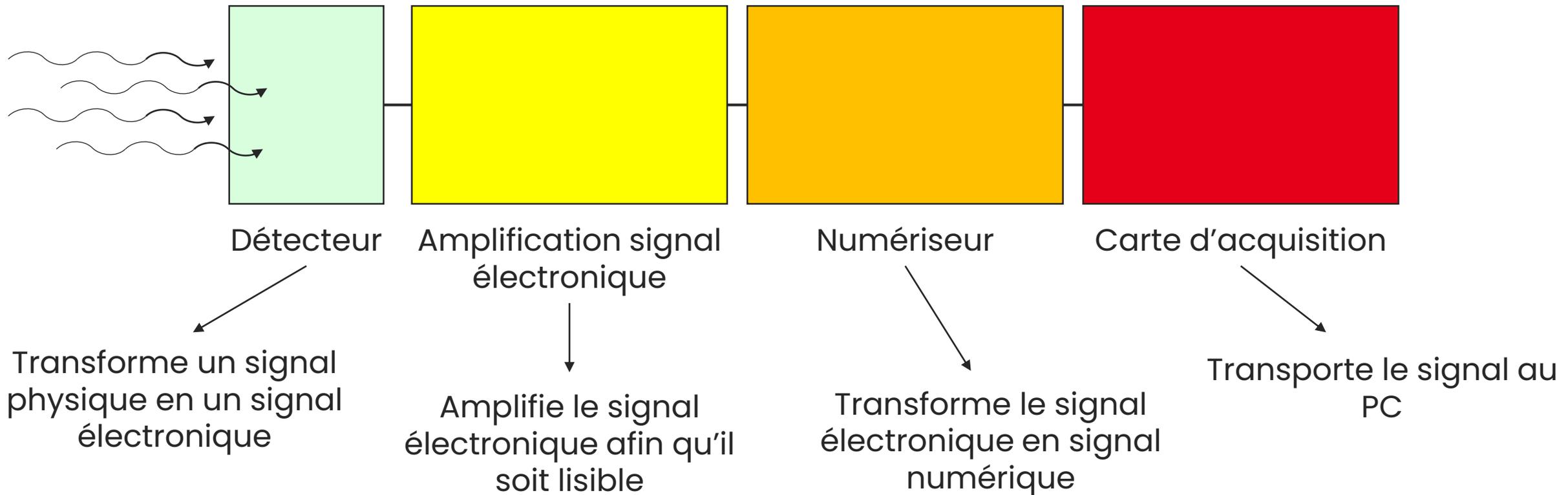
- Source
 - ^{28}Al , principal γ émis : 1778,9 keV
- Détecteur
 - HPGe entouré d'un blindage en plomb
- Caractéristiques du spectre
 - Pic d'absorption totale
 - Front Compton
 - Plateau Compton
 - Pic de simple échappement
 - Pic de double échappement
 - Rétrodiffusion ?
 - ... autres ?



3 ■ **Chaîne d'acquisition en spectrométrie gamma**

Chaîne d'acquisition en spectrométrie gamma

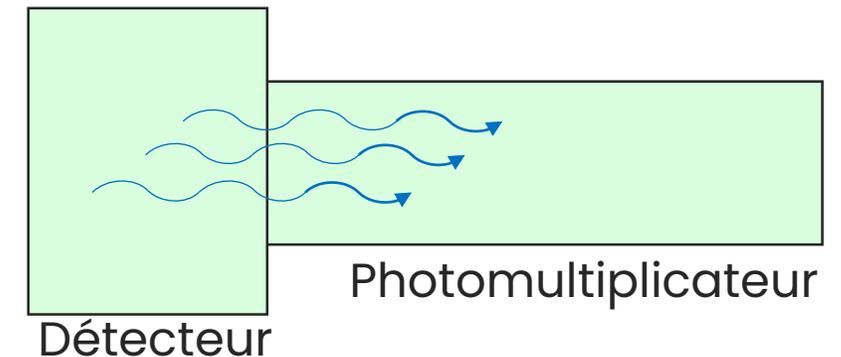
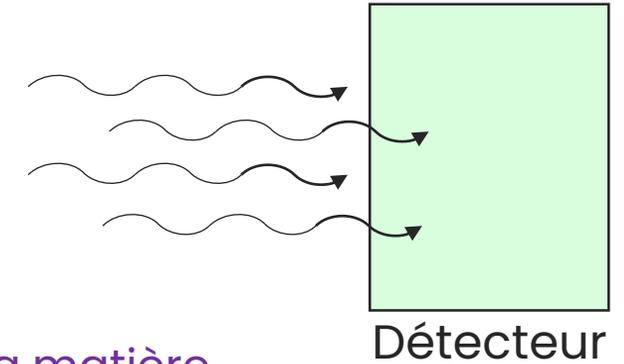
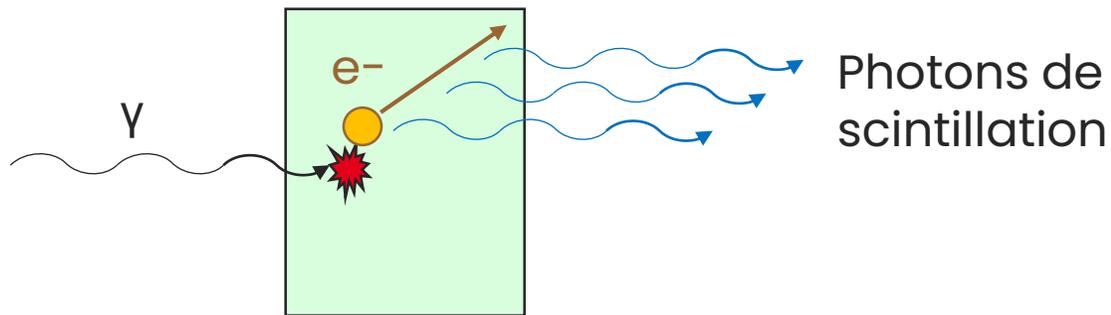
□ Chaîne générale d'acquisition en physique



Chaîne d'acquisition en spectrométrie gamma

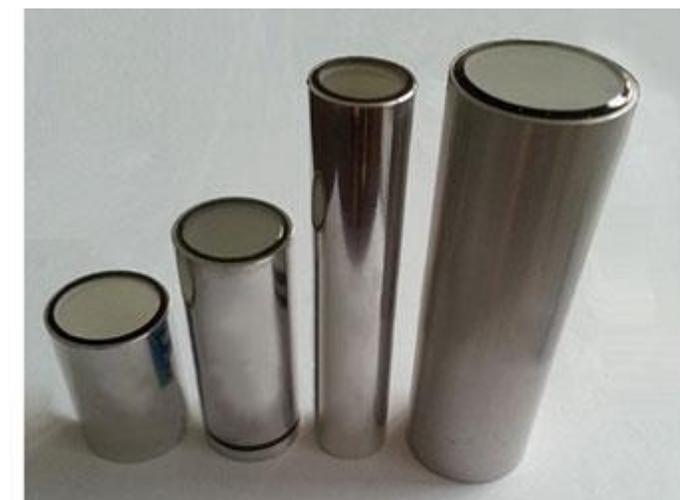
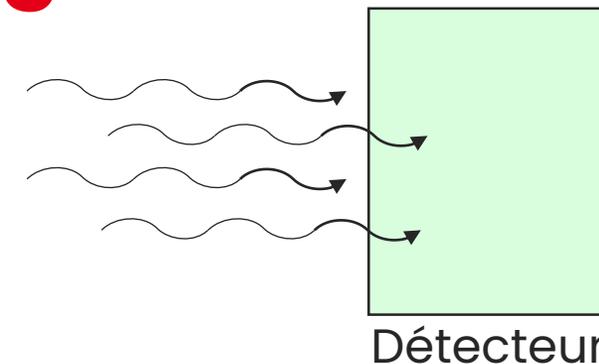
- ❑ Détecteurs classiques de spectrométrie γ
 - ❑ Deux types : scintillateurs et semi-conducteurs

- ❑ Scintillateurs
 - ❑ Porteur d'information = photons de scintillation
 - ❑ γ 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
 - \rightarrow Différence dans la génération des photons de scintillation
- ❑ Dans les deux cas, nécessité de convertir le signal lumineux en signal électrique

Chaîne d'acquisition en spectrométrie gamma



https://fr.wikipedia.org/wiki/Tube_photomultiplicateur

<https://en.wikipedia.org/wiki/Dynode>

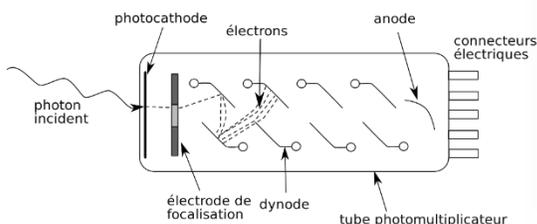
Photographies Laboratoire Capteurs et Architectures Electroniques (LCAE)

<http://www.shalomeo.com/product/scintillators/encapsulated-naif-scintillators>

<https://www.hamamatsu.com/jp/en/product/optical-sensors/pmt/index.html>

20/06/2023

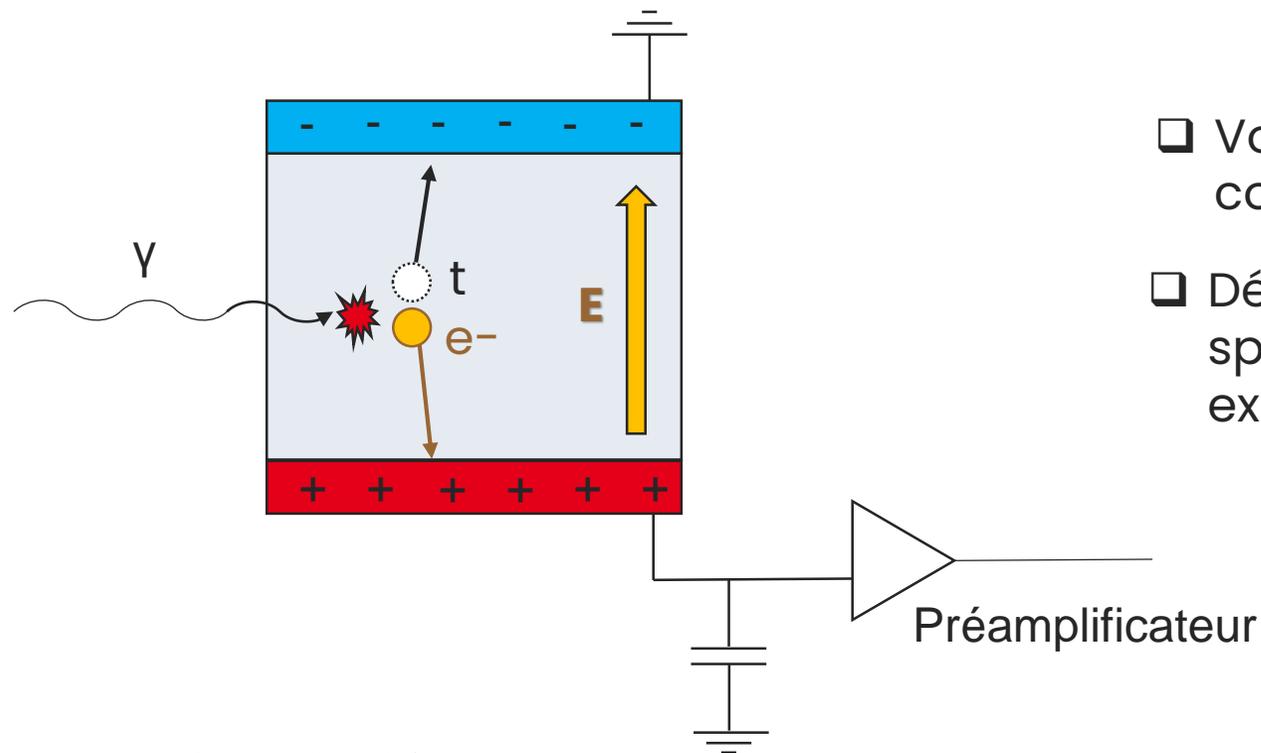
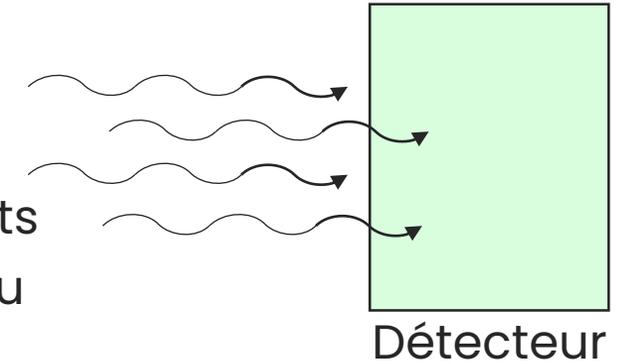
28



Chaîne d'acquisition en spectrométrie gamma

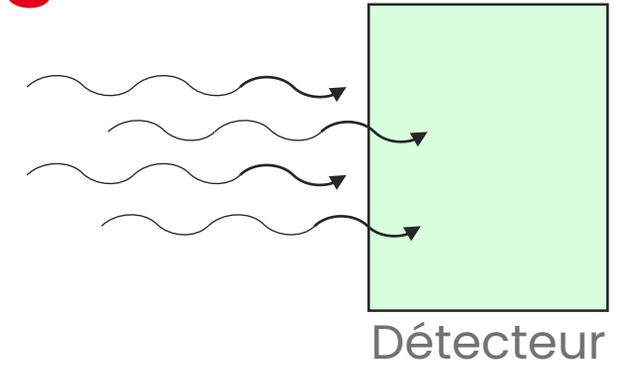
❑ Semi-conducteurs

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



- ❑ Voir physique des semi-conducteurs pour en savoir plus
- ❑ Détecteur le plus utilisé en spectrométrie gamma pour son excellente résolution

Chaîne d'acquisition en spectrométrie gamma

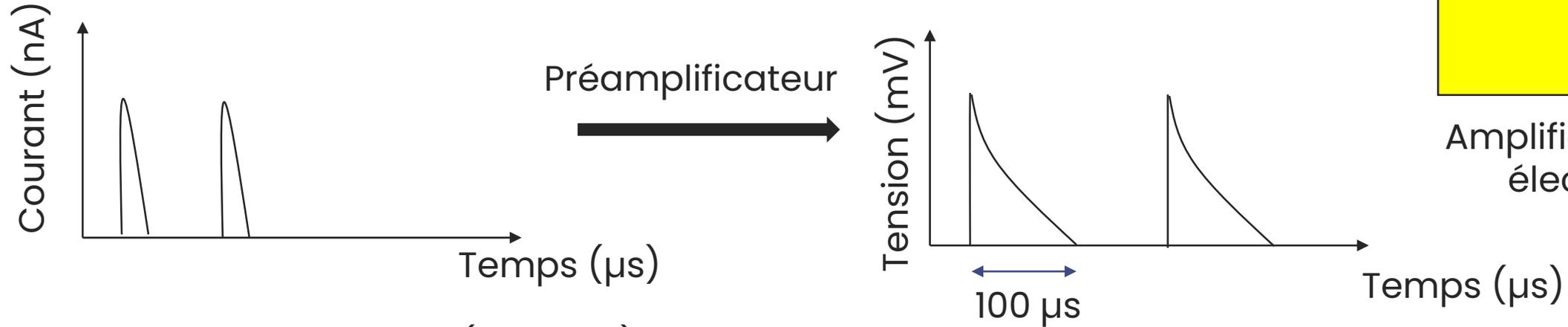


<http://www.innowtech.com/2019/06/03/les-detecteurs-cdte-et-cdznte/>

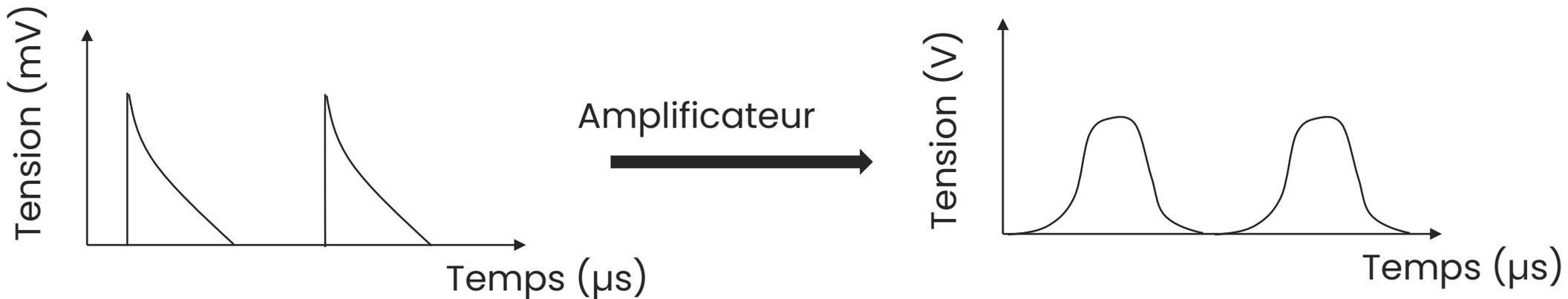
<https://www.ortec-online.com/products/radiation-detectors/germanium-hpge-radiation-detectors>

Chaîne d'acquisition en spectrométrie gamma

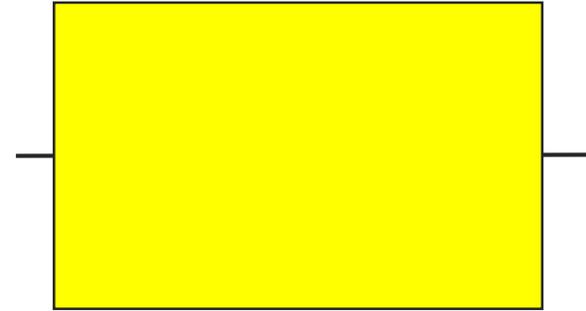
- Deux types d'amplifications (mode impulsion)
 - Transformer l'« information » courant en « information » tension



- Mettre en forme (*shaping*) le signal



Chaîne d'acquisition en spectrométrie gamma



Amplification signal électronique



<http://www.quantar.com/pages/FAST/nimbin.htm>

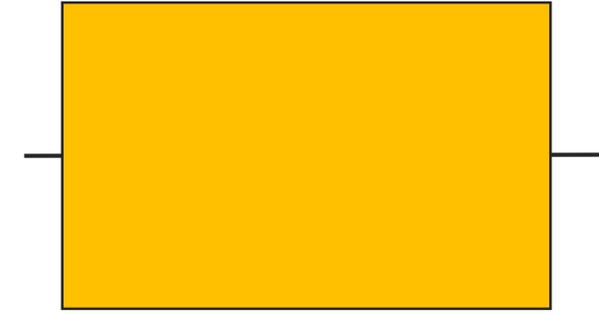
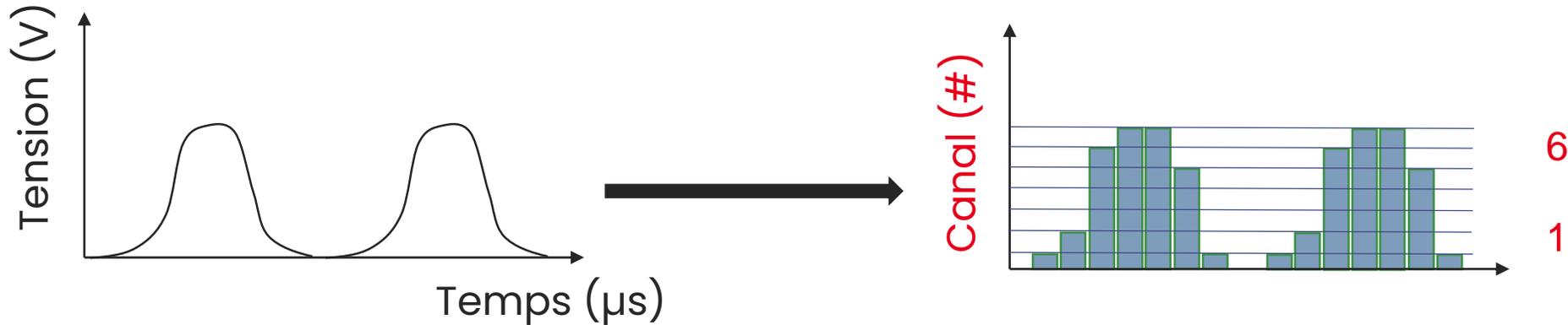
<https://www.ortec-online.com/products/electronics/amplifiers>

<https://prep.fnal.gov/Catalog.php>

<https://www.caen.it/products/hexagon/>

Chaîne d'acquisition en spectrométrie gamma

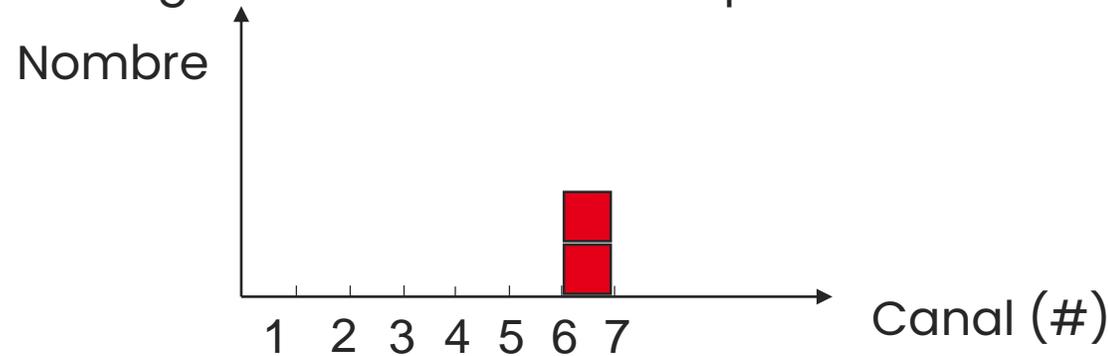
- ❑ Transformer le signal électronique en numérique
 - ❑ Utilisation pour la spectrométrie d'un Multi Channel Analyzer (MCA)



Numériseur

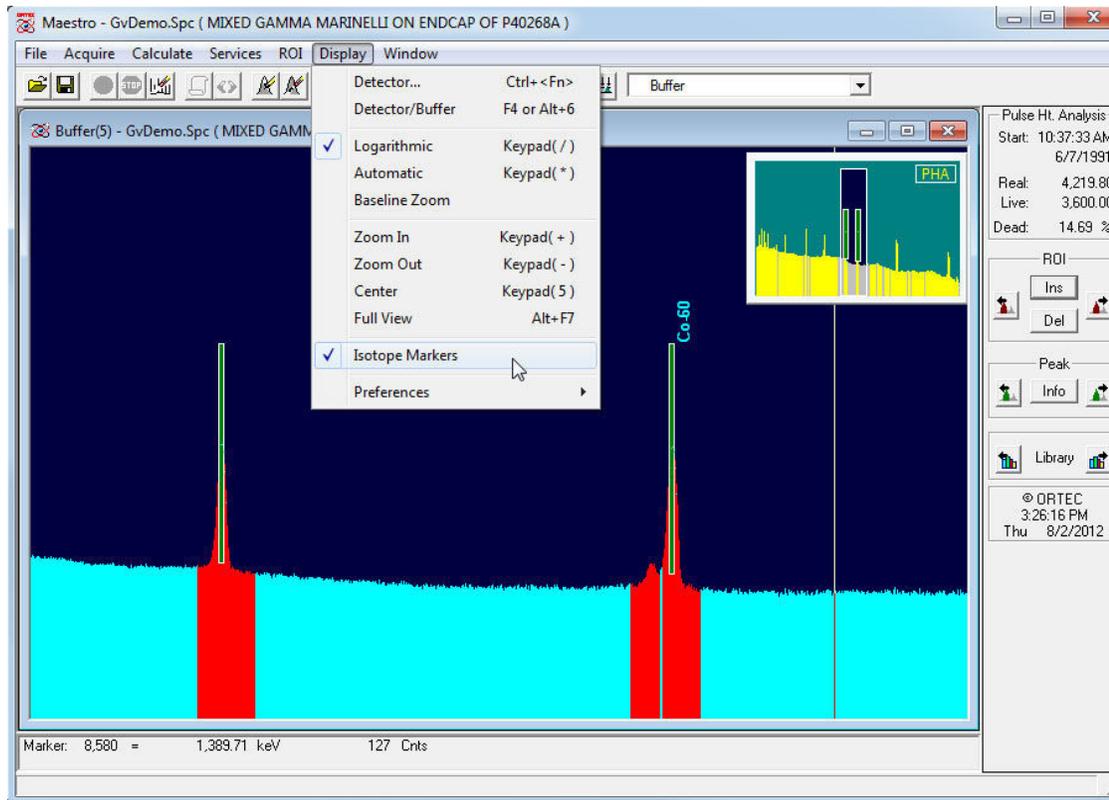
6
1

- ❑ Création de l'histogramme sur aire ou amplitude maximale



Chaîne d'acquisition en spectrométrie gamma

❑ Traitement informatique des données



Logiciel de traitement gamma : MAESTRO (ORTEC)



- ❑ Il existe aussi :
- VisuGamma (SafeTechnologies)
 - ProSpect (Canberra)
 - MC² Analyser et Quantus (CAEN)
 - ...



4. Étalonnage de la chaîne d'acquisition

- En énergie
- En résolution
- En rendement

Étalonnage de la chaîne d'acquisition – Énergie

- ❑ Détecteur utilisé : HPGe

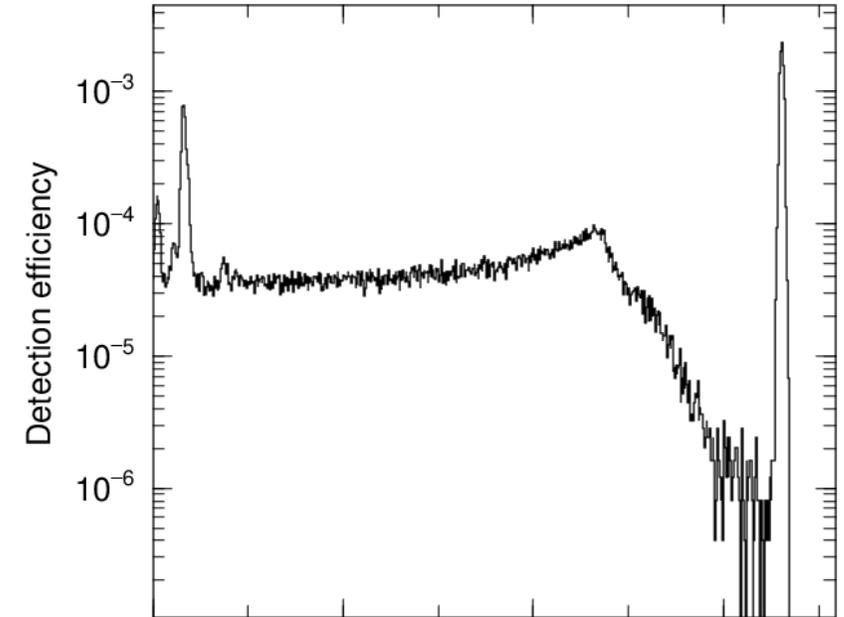
- ❑ Problématique du gain
 - ❑ Numériseur possède un **nombre de canaux limités**
 - ❑ Exemple : [0 – 3 MeV] numérisé sur 4096 canaux (ou 12 *bits* ; $2^{12} = 4096$)

- ❑ 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

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?



Efficacité de détection simulée d'un rayon γ de 661,7 keV (^{137}Cs) avec un détecteur HPGe

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

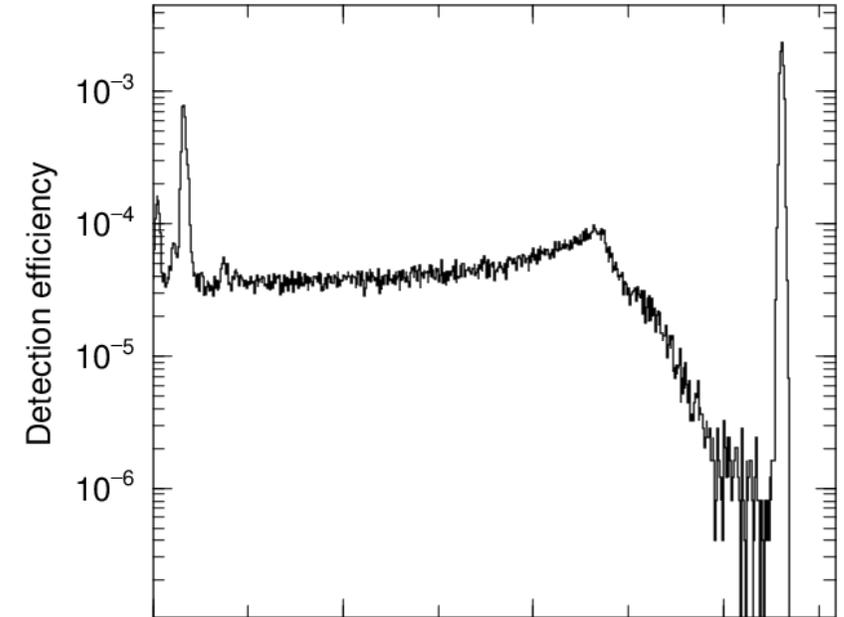
→ Quel est le canal correspondant à l'énergie du pic d'absorption totale?

On sait que :

Canal (#)	Énergie (keV)
0	0
4096	3000

$$\text{Donc : } Canal(\gamma_{661,7}) = \left\lfloor \frac{661,7 \cdot 4096}{3000} \right\rfloor = [903,44] = 903$$

Ajustement de la haute tension pour que le pic d'absorption totale du césium soit au canal n° 903



Efficacité de détection simulée d'un rayon γ de 661,7 keV (^{137}Cs) avec un détecteur HPGe

Étalonnage de la chaîne d'acquisition – Énergie

- ❑ Courbe d'étalonnage en énergie
 - ❑ Étalonnage sur plusieurs pics d'absorption totale
 - Utilisation de plusieurs sources radioactives ou d'une seule qui émet différents gamma (exemple : ^{152}Eu émet majoritairement une dizaine 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

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

- ❑ Hypothèse de linéarité insuffisante pour physique des hautes énergies

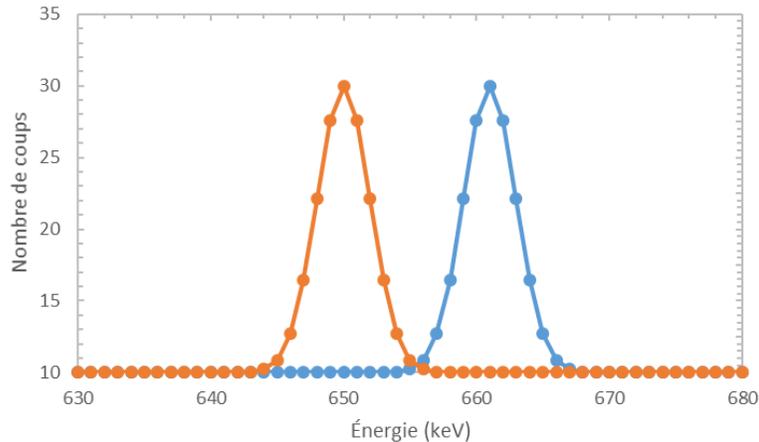
$$E(\text{keV}) = a \cdot C(\#)^2 + b \cdot C(\#) + c$$

- ❑ Vérifier en comparant les deux interpolations
 - **On sait à quelle énergie se trouvent les pics vus sur le spectre**

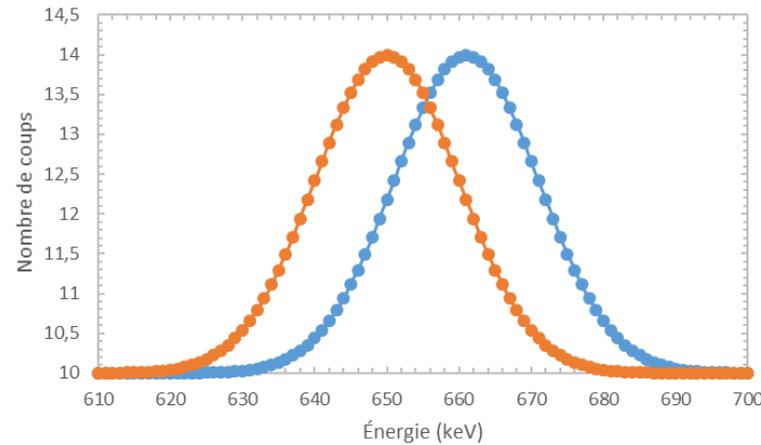
Étalonnage de la chaîne d'acquisition – Résolution

❑ Résolution

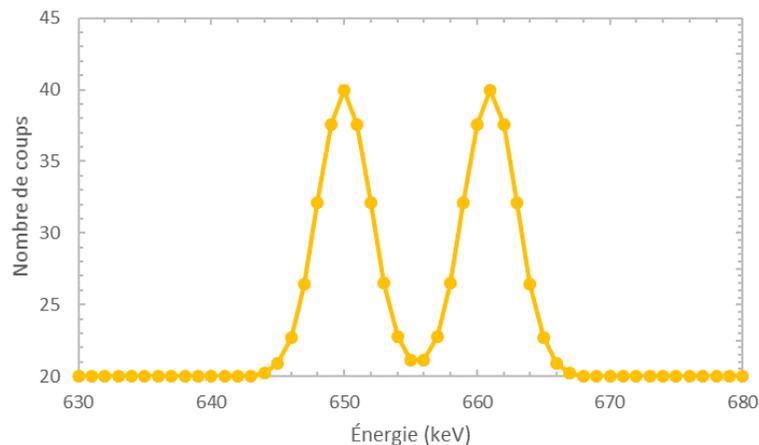
❑ Décrit la capacité de séparer deux pics proches



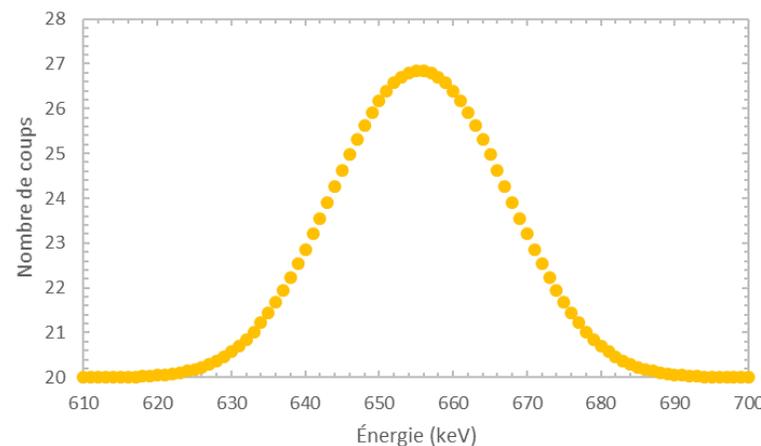
Deux distributions gaussiennes centrées sur 650 et 661 keV, d'écart-type 2 keV



Deux distributions gaussiennes centrées sur 650 et 661 keV, d'écart-type 10 keV



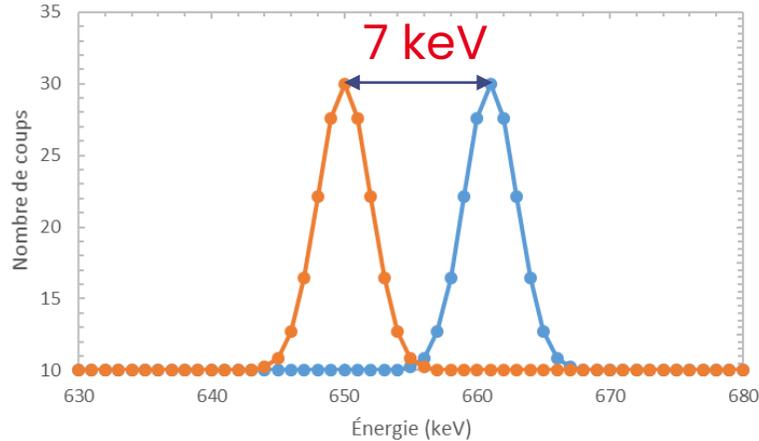
Somme de deux distributions gaussiennes centrées sur 650 et 661 keV, d'écart-type 2 keV



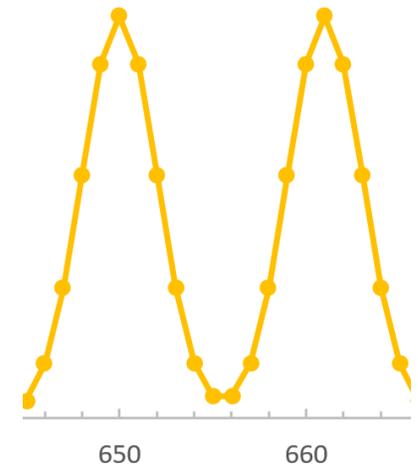
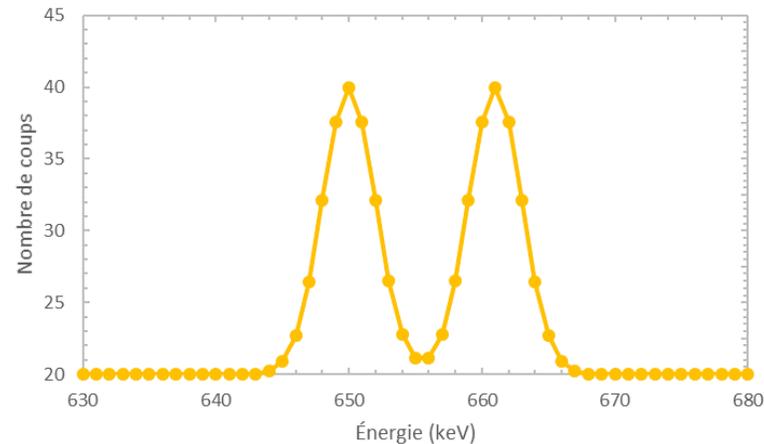
Somme de deux distributions gaussiennes centrées sur 650 et 661 keV, d'écart-type 10 keV

Étalonnage de la chaîne d'acquisition – Résolution

- ❑ Largeur totale à mi-hauteur (*Full Width at Half-Maximum*)
- ❑ Bonne séparation pour 3 FWHM d'écart entre les pics
- ❑ Pour une loi Normale : $FWHM = 2\sqrt{2 \cdot \ln 2} \cdot \sigma \approx 2,355 \cdot \sigma$

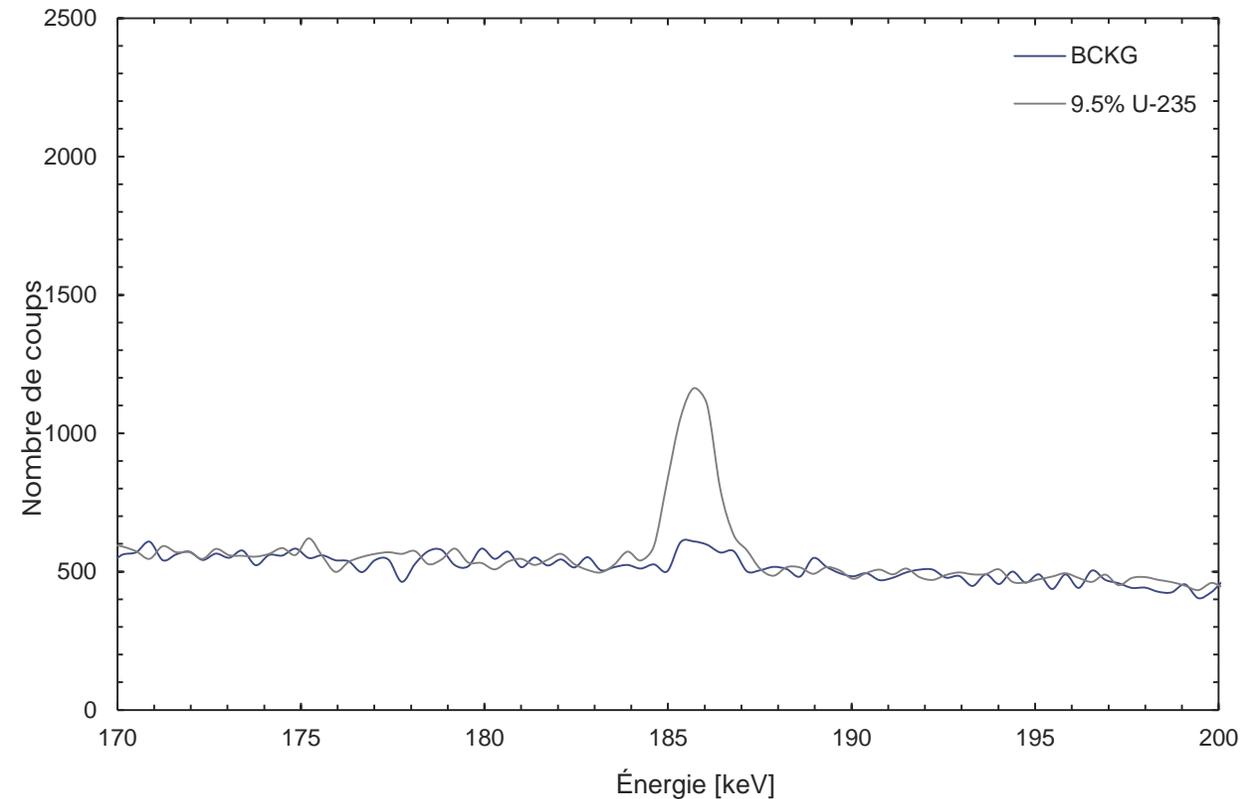
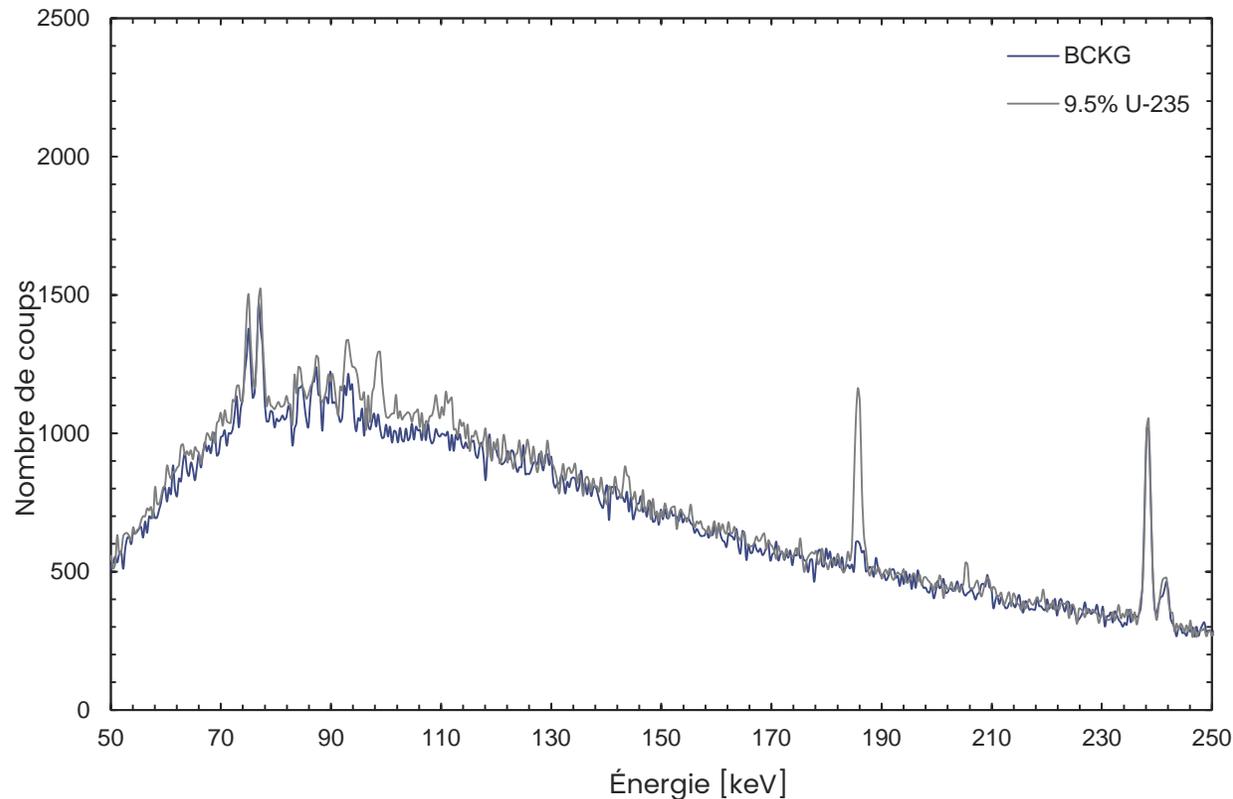


- ❑ Ici, $\sigma = 2 \Rightarrow FWHM \approx 4,7$ mais écart de 7 keV
→ Superposition des distributions (risque α)



Étalonnage de la chaîne d'acquisition – Résolution

□ Cas pratique



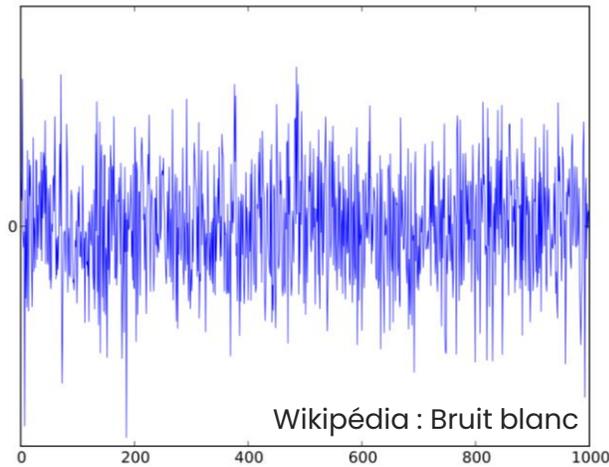
Mesure d'un échantillon d'uranium enrichi à 9,5% et bruit de fond associé, temps de mesure de 4500 secondes. Mesure réalisée dans une casemate en béton

Étalonnage de la chaîne d'acquisition – Résolution

- ❑ 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 »

Étalonnage de la chaîne d'acquisition – Résolution

- ❑ 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) :

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

- 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), voisine du double de l'énergie de première ionisation

Étalonnage de la chaîne d'acquisition – Résolution

- ❑ 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) :

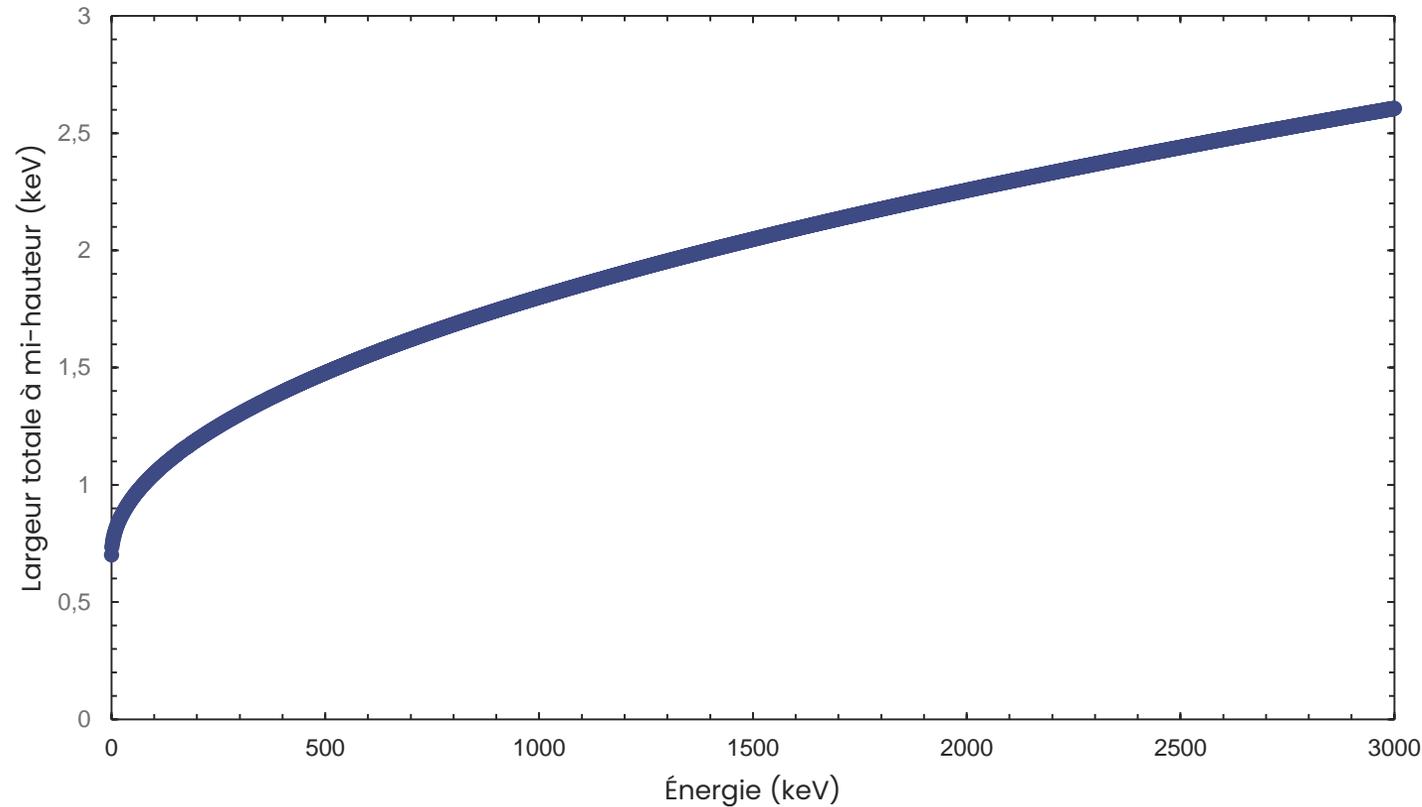
$$FWHM(E) = a + b\sqrt{E}$$

- ❑ 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

Étalonnage de la chaîne d'acquisition – Résolution



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

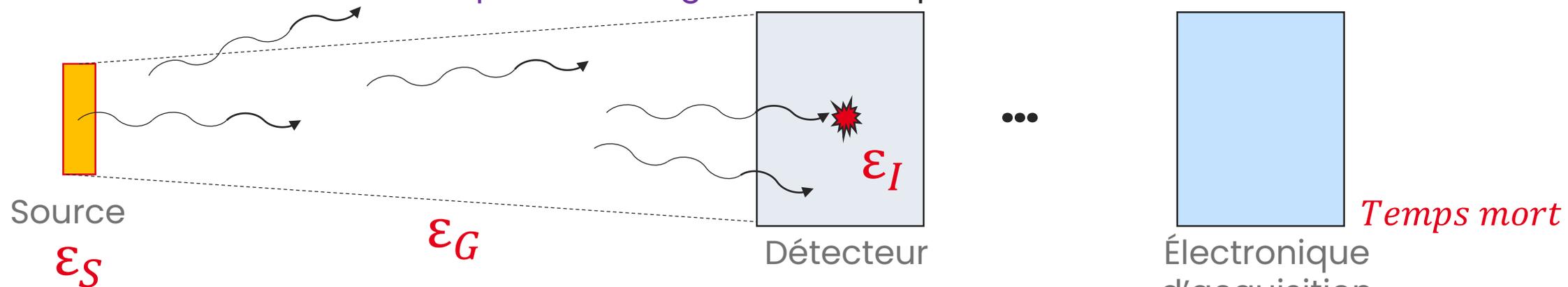
Étalonnage de la chaîne d'acquisition – Rendement

- ❑ Qu'est-ce qu'un nombre de coups ?
 - ❑ Nombre de fois où le détecteur a enregistré une impulsion
 - ❑ Problématique : nombre de coups enregistré \neq activité de la source

- ❑ Pourquoi inégalité entre activité et nombre de coups ?

- ❑ Rayons γ doivent sortir de la source \rightarrow Rendement de source : ϵ_S
- ❑ Rayons γ doivent atteindre le détecteur \rightarrow Rendement géométrique : ϵ_G
- ❑ Rayons γ doivent interagir avec le détecteur \rightarrow Rendement intrinsèque : ϵ_I
- ❑ Interaction doit mener à une impulsion enregistrée \rightarrow Temps mort

$$\epsilon = \epsilon_S \cdot \epsilon_G \cdot \epsilon_I$$

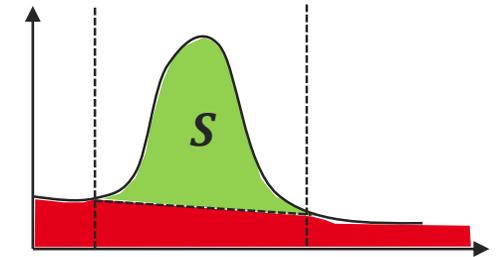


Étalonnage de la chaîne d'acquisition – Rendement

- ❑ Étalonnage en rendement
 - ❑ Relation entre l'activité de la source et le nombre de coups
 - ❑ Facteur appelé « **rendement extrinsèque** »
- ❑ Calcul du rendement extrinsèque d'absorption totale
 - ❑ Uniquement sur le **pic d'absorption totale** car propre à un radionucléide spécifique
 - ❑ **Rendement intrinsèque** (ϵ_I) est fonction de l'énergie déposée
 - Rendement d'absorption totale varie en fonction de l'énergie
- ❑ **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 : $A \cdot I_\gamma \cdot t$

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





5 ■ Statistique associée au comptage, incertitudes et intervalles de confiance

Statistique associée au comptage, incertitudes et intervalles de confiance

❑ 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)**
 - Constante de désintégration λ

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

❑ 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

Statistique associée au comptage, incertitudes et intervalles de confiance

❑ Caractéristiques d'une loi de Poisson

- ❑ Un seul paramètre : $\lambda_P = N \cdot p$
- ❑ Espérance : λ_P
- ❑ Variance : λ_P
- ❑ Écart-type : $\sigma = \sqrt{\text{Variance}} = \sqrt{\lambda_P}$

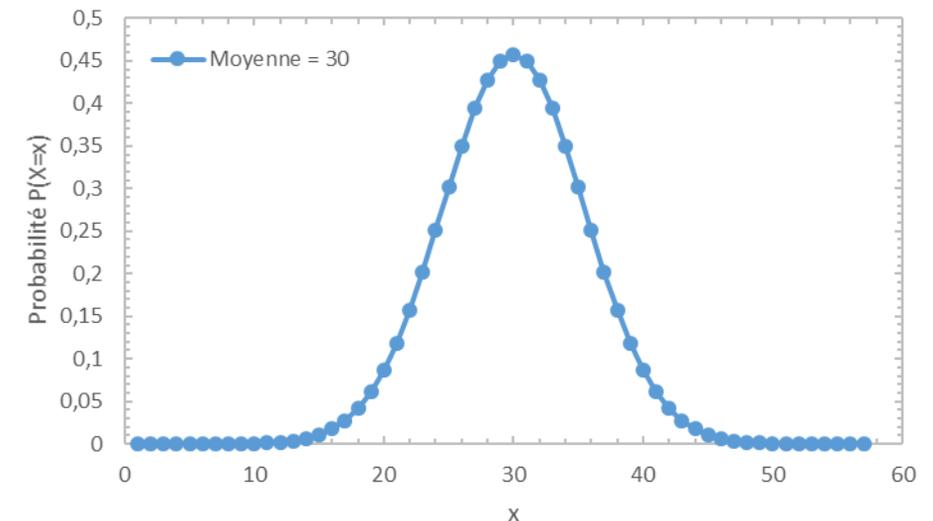
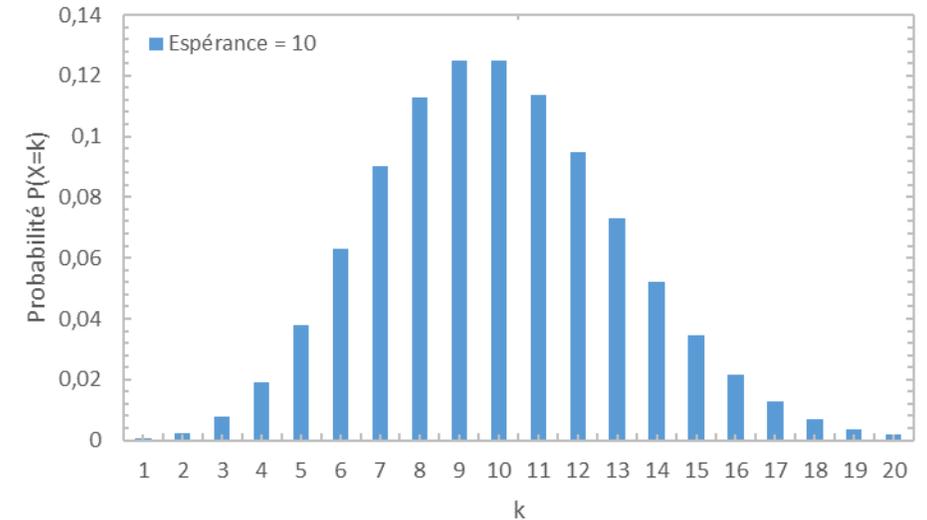
$$P(X = k) = \frac{\lambda_P^k}{k!} \cdot e^{-\lambda_P}$$

❑ 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



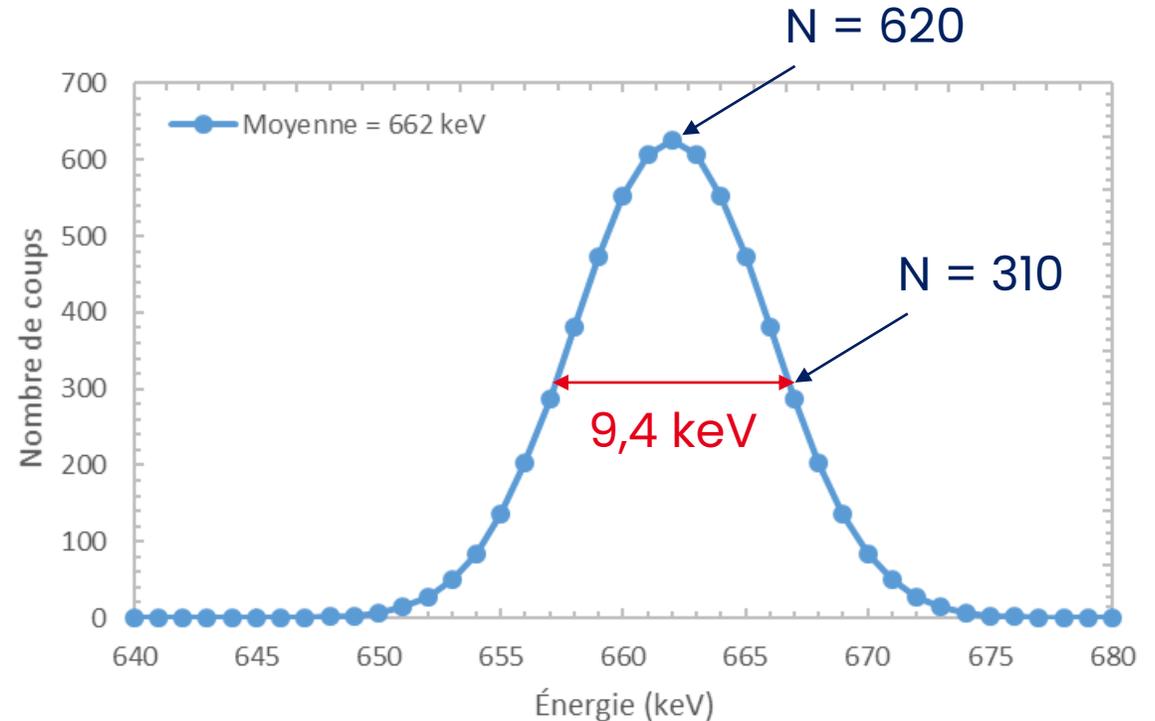
Statistique associée au comptage, incertitudes et intervalles de confiance

- ❑ Exemple de distribution gaussienne
 - ❑ Pic absorption totale
 - ❑ Comptage = tous les coups sous le pic
→ **Aire nette**

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

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

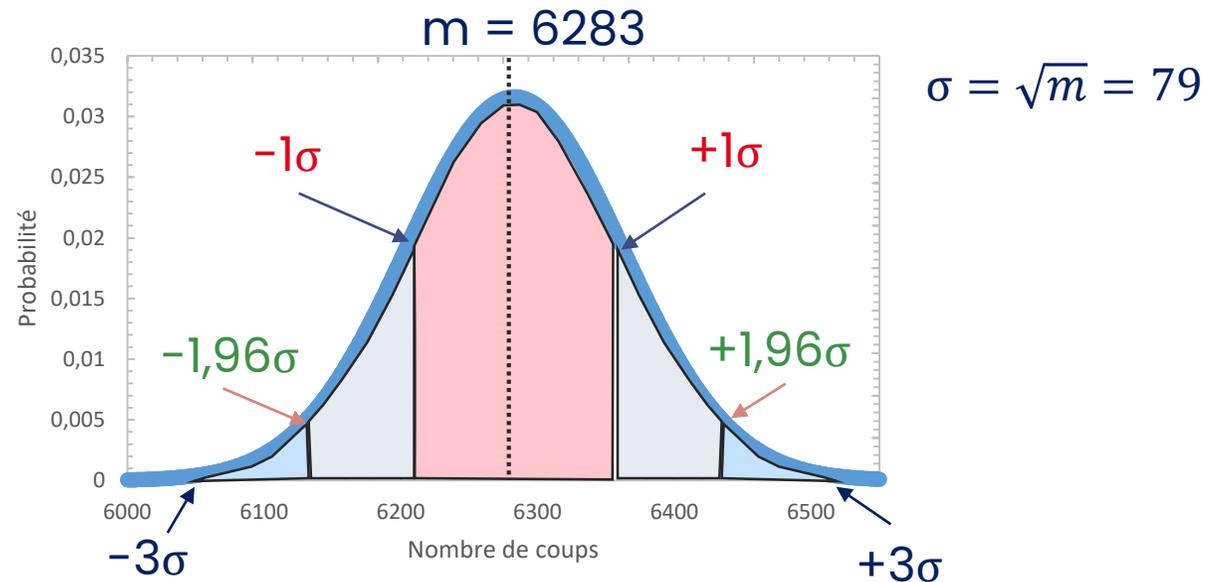
- ❑ Capacité de décrire l'élargissement :
→ $E_{mesurée} = 662 \pm 4 \text{ keV} (1 \sigma)$



Statistique associée au comptage, incertitudes et intervalles de confiance

□ Intervalle de confiance

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



- Addition des probabilités entre -1σ et $+1\sigma = 68,3\%$
- Addition des probabilités entre $-1,96\sigma$ et $+1,96\sigma = 95\%$
- Addition des probabilités entre -3σ et $+3\sigma = 99,9\%$

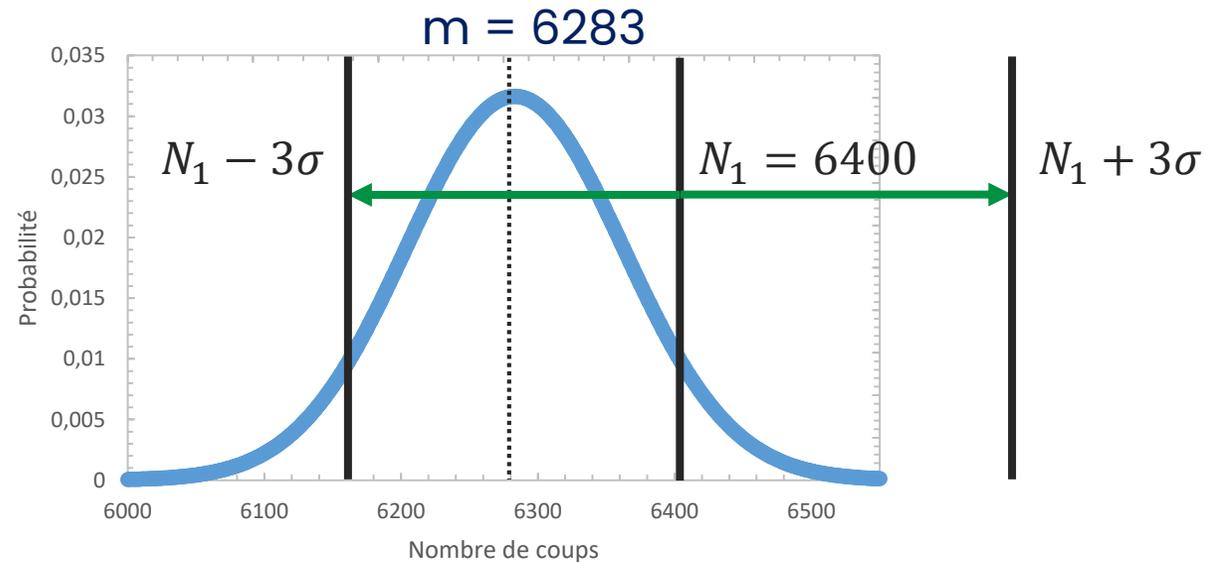
Statistique associée au comptage, incertitudes et intervalles de confiance

- Intervalle de confiance

- Comptage unique, supposons le comptage N_1

$$N_1 = 6400$$

- Intervalle de confiance autour de N_1 donne la probabilité d'avoir la valeur moyenne comprise



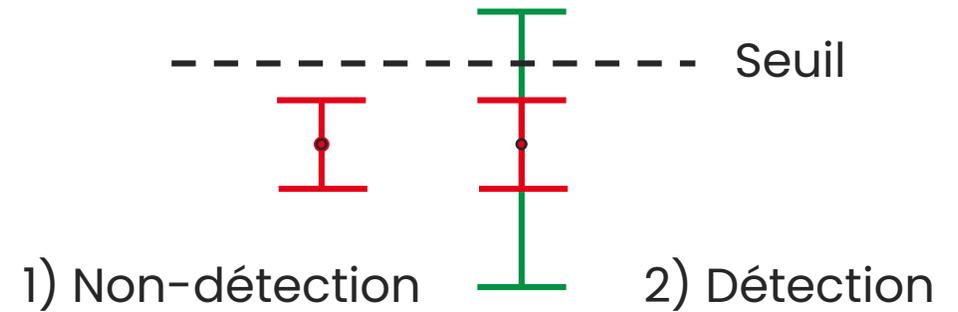
- Valeur moyenne de 6283 bien comprise dans l'intervalle de confiance

- Ici, intervalle de confiance à $k = 3$

Statistique associée au comptage, incertitudes et intervalles de confiance

❑ Pourquoi préciser l'intervalle de confiance ?

- ❑ $6283 \pm 79 (1\sigma) \neq 6283 \pm 79 (3\sigma)$
- ❑ 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)
 - Monter le seuil
 - Utile dans des fonctionnements critiques (comme sous-marin nucléaire) où l'arrêt doit être confirmé

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

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

Statistique associée au comptage, incertitudes et intervalles de confiance

❑ Calcul d'incertitude

- ❑ Exemple : nombre de coups net

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

- ❑ $\Delta S \neq \sqrt{S}$

→ 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
- ΔR , son incertitude absolue
- $X_{1,2,\dots,n}$ des grandeurs
- $\Delta X_{1,2,\dots,n}$ les incertitudes absolues associées

Statistique associée au comptage, incertitudes et intervalles de confiance

- Incertitude nombre de coups net

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

- Incertitude efficacité

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

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

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

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



6



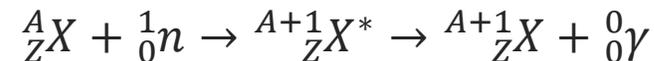
Cas d'applications de la spectrométrie gamma

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

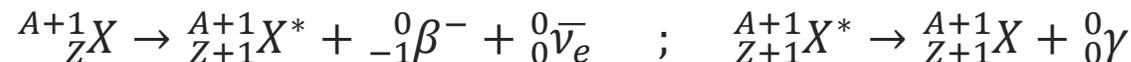
Cas d'applications de la spectrométrie gamma

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 :



- ❑ Les rayonnements gamma de cette réaction sont qualifiés de prompts peuvent être étudiés en spectrométrie gamma
- ❑ On utilise surtout le fait que le noyau ${}^{A+1}_ZX$ est instable et se désintègre en formant un nouvel élément excité, par exemple par désintégration bêta moins :



- ❑ 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 :

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

avec :

- $N_{AZ}X$ le nombre de noyaux de l'isotope initial avant activation neutronique (s.u.)
- $\sigma_{AZ(n,\gamma),th}$ la section efficace microscopique de capture radiative des neutrons thermiques par le noyau (en barns b, 1 b = 10^{-24} cm²)
- $\varphi_{n,th}$ le flux de neutrons thermiques incident sur l'échantillon analysé (en n.cm⁻².s⁻¹)
- $\lambda_{A+1Z}X$ la constante de désintégration du radio-isotope $A+1Z}X$ (en s⁻¹)

Cas d'applications de la spectrométrie gamma

Analyse par Activation Neutronique (AAN)

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

$$\mathcal{A}_{A+1Z X, \infty} = \lim_{t \rightarrow \infty} \mathcal{A}_{A+1Z X}(t) = \frac{N_{A+1Z X}^0 \sigma_{A+1Z X(n, \gamma)} \varphi_{n, th}}{\lambda_{A+1Z X}}$$

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

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

- Le temps de refroidissement, noté t_{ref} , représente la durée écoulée entre la fin de l'irradiation et la mesure instantanée

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

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

→ accès à la concentration de l'échantillon en noyaux de $A+1Z X$

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

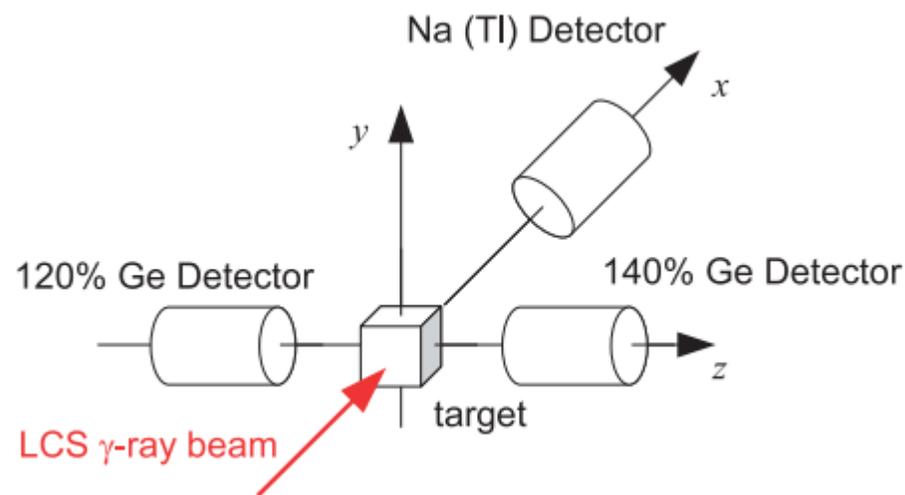


Schéma de principe d'un dispositif de mesure par FRN

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.

- ❑ **Noyau se retrouve dans l'état excité** correspondant au gamma incident
- ❑ **Désexcitation et réémission isotropique**

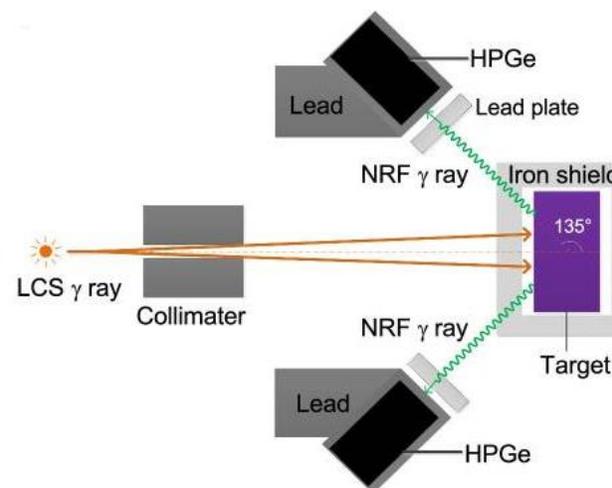


Schéma de principe d'un dispositif de mesure par FRN

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

Fluorescence par résonance nucléaire



- ❑ Par **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

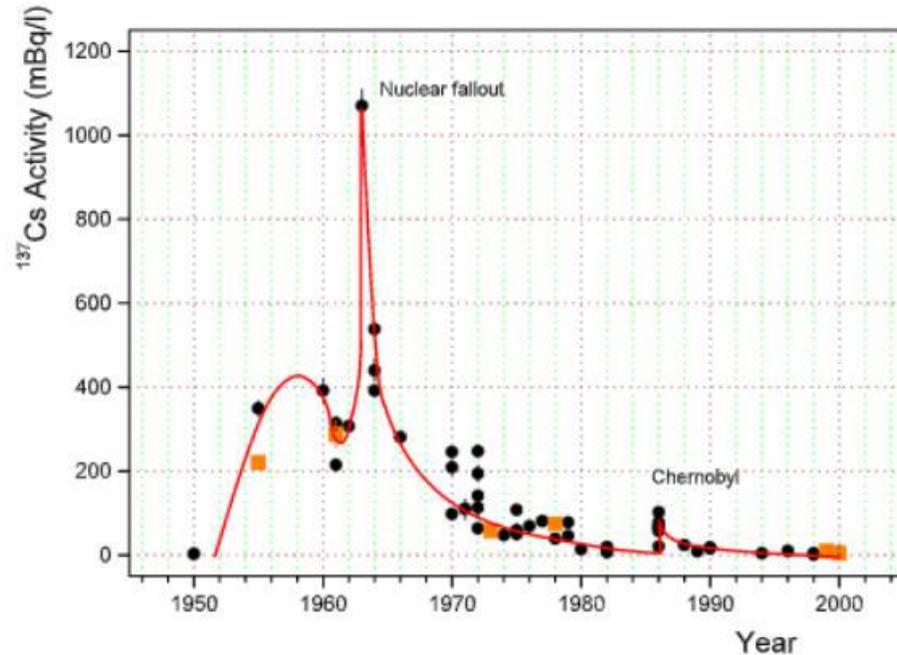


- ❑ Mesure de faibles activités
 - ❑ Conditions de bas bruit de fond (blindage anti rayonnements cosmiques, plomb archéologique, blindage actif par suppression Compton, ...)
 - ❑ Mesure de la radioactivité naturelle ou artificielle de faible activité

- ❑ 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)

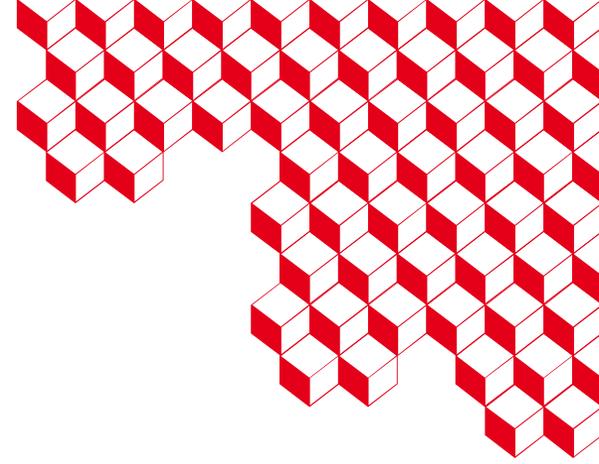
Mesures de faibles activités

- 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

Références

- 1. V. K. Mittal, R. C. Verma, S. C. Gupta, *Introduction to nuclear and particle physics*, 4th Ed., PHI Learning Private Limited, Rimjhim House, Delhi (2018)**
- 2. C. Le Sech, C. Ngô, *Physique nucléaire, Des quarks aux applications*, Dunod, Paris (2010)**
- 3. M. K. MITTAL, R. C. VERMA, *et al.*, *Introduction to Nuclear and Particle Physics*, 4^{ème} édition, 2018.**
- 4. G. GILMORE, *Practical gamma-ray spectrometry*, 2^{ème} édition, 2008**
- 5. G. F. KNOLL, *Radiation detection and measurement*, 4^{ème} édition, 2010**