

ORIGINAL ARTICLE

Optimisation des Méthodes de Spectrométrie Gamma : Développement et validation d'un Protocole Analytique Adéquat

Optimization of Gamma-Ray Spectrometry Methods: Development and Validation of a Comprehensive Analytical Protocol

| Liantsoa Ratovonjanahary ^{1*} | Haingo Laza Andriamparivo ² | Frank Elliot Saho ¹ | R. Radomanana Rakotonarivo ¹ | et | A. Justinien Franck Ratovonjanahary ¹ |

¹ Parcours de Physique Nucléaire Appliquée et Environnement | Université d'Antananarivo | Madagascar |

² Parcours de Techniques Non Destructives | Université d'Antananarivo | Madagascar |



DOI: <https://doi.org/10.5281/zenodo.14193361> | Received October 31, 2024 | Accepted November 12, 2024 | Published November 20, 2024 | ID Article | Liantsoa-Ref2-5-19ajira311024

RESUME

Objectif : L'objectif de ce travail est de contribuer à la mise en place et au suivi du Laboratoire de Physique Nucléaire et Physique de l'Environnement (LPNPE). Ce laboratoire accueille les étudiants en Master et Doctorat du parcours Physique Nucléaire Appliquée et Environnement de la Mention Physique et Applications de la Faculté des Sciences de l'Université d'Antananarivo. **Méthodes** : La méthodologie repose sur l'identification des radionucléides et la détermination de leur activité par spectrométrie gamma. Afin d'adopter une méthode de travail fiable et précise en spectrométrie gamma, certains paramètres clés doivent être maîtrisés, tels que le gain du détecteur, sa résolution et son rendement. Des méthodes d'étalonnage en énergie et en rendement ainsi que la validation des méthodes selon des normes (évaluation de la répétabilité et de la reproductibilité) sont également décrites. **Résultats et conclusion** : Cette étude a permis de fournir au laboratoire LPNPE un document de référence pour l'utilisation et la combinaison optimale des paramètres de la spectrométrie gamma. Les résultats présentés ne sont pas exhaustifs mais représentatifs des paramètres optimaux pour l'utilisation de cette technique. Ces résultats serviront également de guide pour le choix du détecteur en fonction de l'ordre de grandeur de l'activité des échantillons à mesurer. Pour les échantillons à très basse activité, comme la plupart des échantillons environnementaux, l'utilisation d'un détecteur NaI(Tl) est recommandée en raison de sa haute sensibilité.

Mots clés : spectrométrie gamma, détecteur, contribution, optimisation, laboratoire.

ABSTRACT

Objective: The objective of this work is to contribute to the establishment and monitoring of the Laboratory of Nuclear Physics and Environmental Physics (LPNPE). This laboratory hosts master's and doctoral students in the Applied Nuclear Physics and Environment track of the Physics and Applications program at the Faculty of Science, University of Antananarivo. **Methods**: The methodology is based on the identification of radionuclides and the determination of their activity by gamma-ray spectrometry. In order to adopt a reliable and accurate method in gamma-ray spectrometry, certain key parameters must be mastered, such as the detector gain, its resolution and its efficiency. Calibration methods in energy and efficiency as well as the validation of methods according to standards (evaluation of repeatability and reproducibility) are also described. **Results and Conclusion**: This study was able to provide the LPNPE laboratory with a reference document for the optimal use and combination of gamma-ray spectrometry parameters. The results presented are not exhaustive but representative of the optimal parameters for the use of this technique. These results will also serve as a guide for the choice of detector depending on the order of magnitude of the activity of the samples to be measured. For samples with very low activity, such as most environmental samples, the use of a NaI(Tl) detector is recommended due to its high sensitivity.

Keywords: gamma-ray spectrometry, detector, contribution, optimization, laboratory.

1. INTRODUCTION

La spectrométrie gamma est une technique d'analyse nucléaire largement utilisée pour identifier et quantifier les radionucléides émetteurs gamma présents dans divers types d'échantillons. Cette méthode non-destructive ne nécessite pas de préparation spécifique des échantillons [1, 2]. Les laboratoires de recherche disposent généralement de spectromètres gamma utilisant des détecteurs à semi-conducteur ou des détecteurs à scintillation [3]. Dans le cadre du Laboratoire de Physique Nucléaire et Physique de l'Environnement (LPNPE), cette technique occupe une place centrale dans les activités de recherche et de formation. En effet, la majorité des travaux effectués au sein du LPNPE impliquent l'utilisation de la spectrométrie gamma. Cependant, la mise en place et l'optimisation des méthodes de travail avec cette chaîne d'instrumentation représentent un défi majeur pour garantir la fiabilité et la précision des résultats [4]. Ce travail vise donc à contribuer à l'établissement et au suivi de la chaîne de spectrométrie gamma au sein du LPNPE. Il s'agit d'adopter une approche scientifique rigoureuse afin d'assurer la qualité des mesures effectuées. En effet, lors de la mise en œuvre de méthodes d'analyse, il est indispensable de pouvoir garantir que les résultats obtenus sont représentatifs de la réalité des échantillons [5, 6]. Cela passe notamment par le contrôle et l'optimisation des paramètres clés du

Le système de spectrométrie gamma, tels que le gain du détecteur, sa résolution et son rendement [7]. Le LPNPE dispose de deux types de détecteurs pour la spectrométrie gamma : le détecteur à CdZnTe (CZT) et le détecteur à NaI(Tl) [8, 9]. L'objectif de cette étude est donc de définir des méthodes de travail fiables et reproductibles pour l'utilisation optimale de ces détecteurs dans le cadre des activités de recherche et de formation du laboratoire.

2. MATERIEL ET METHODES

2.1. Matériels utilisés

2.1.1. Détecteurs

Tous les détecteurs du LPNPE ont été paramétrés : NaI(Tl) et CZT (du types CZT500s et SDP310/Z/60). Tous ces détecteurs sont utilisés pour la spectrométrie gamma, chacun étant adapté à une gamme d'énergie et/ou d'activité spécifiques.

2.1.1.1. Détecteur NaI(Tl)

Caractéristiques :

Haute tension de polarisation : -1000V

Dimension de la coque du scintillateur :

- Diamètre extérieur : 8,3cm

- Hauteur : 7,6cm

Dimension de la coque du tube photomultiplicateur :

- Diamètre extérieur : 8,9cm

- Hauteur : 10,5cm

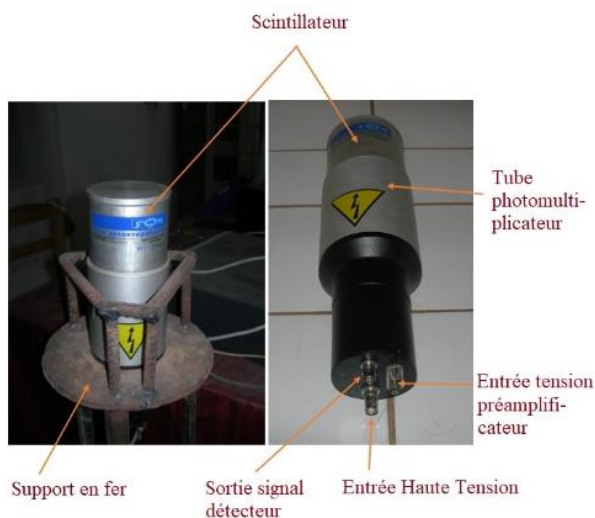


Figure 1. Détecteur NaI(Tl) du LPNPE

2.1.1.2. Détecteur CZT

Le laboratoire LPNPE dispose de deux différents types de détecteur CZT : le CZT 500s et le SDP 310/Z/60.

a) Caractéristiques du détecteur CZT 500s :

Haute tension de polarisation : +1100V

Dimension du détecteur :

- Diamètre extérieur : 23mm

- Hauteur sans connecteur : 33mm

b) Caractéristiques du détecteur SDP 310/Z/60 :

Haute tension de polarisation : +500V

Dimension du détecteur :

- Diamètre extérieur : 8mm

- Hauteur de la partie amovible : 82mm

Polarité du signal de sortie : négative

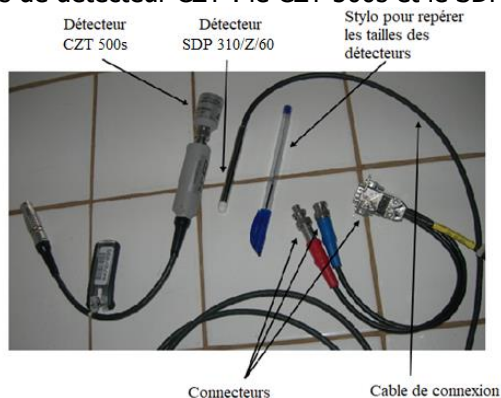


Figure 2 : Les deux types de détecteurs CZT du LPNPE

2.1.2. Analyseurs Multi-Canaux

Le LPNPE dispose de plusieurs Analyseurs Multi-Canaux du type MCA-166 (Figure 28).



Figure 3 : analyseur multicanaux MCA-166 pour classer les impulsions en fonction de leur amplitude.

Caractéristiques :

- Le MCA-166 est un analyseur multicanaux de spectrométrie Gamma complet : HT, ampli, codeur, mémoire.
- Portable, il fonctionne sur batterie interne rechargeable d'autonomie pouvant aller jusqu'à 16 heures en fonction du détecteur utilisé.
- Ses dimensions sont : 155 x 95 x 50 mm.
- Son poids est de 680 g + celui du chargeur de 320 g.
- Utilisation avec un ordinateur standard (PC de bureau ou portable). Configuration par ordinateur.
- Visualisation, contrôle des mesures et sauvegarde des données par l'intermédiaire du PC.
- Couplé au logiciel WinSpecInspector, il permet d'effectuer des mesures aussi bien en laboratoire que sur le terrain.
- Le MCA -166 accepte les détecteurs de spectrométrie Gamma *Ge*, *NaI* ou CZT.

2.1.3. Blindage en plomb

Il est bon en matière de spectrométrie gamma de s'affranchir au maximum du bruit de fond en utilisant un château de plomb servant de blindage contre les radiations extérieures.

Pour le blindage du détecteur et des échantillons, le LPNPE dispose des châteaux de plomb adaptés pour chaque type de détecteur.

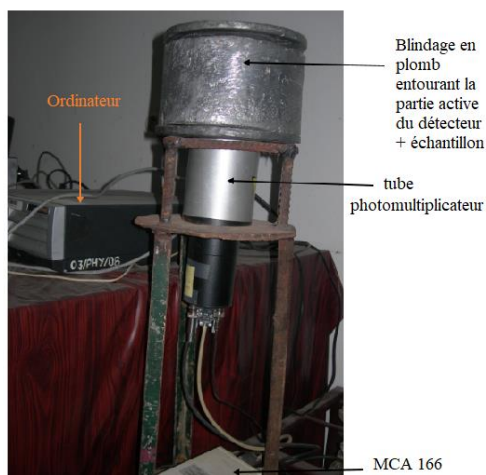


Figure 4 : Blindage en plomb du détecteur NaI(Tl). Le plomb entoure la partie active du détecteur. Le porte échantillon étant placé au-dessus du détecteur, tous deux à l'intérieur du plomb.

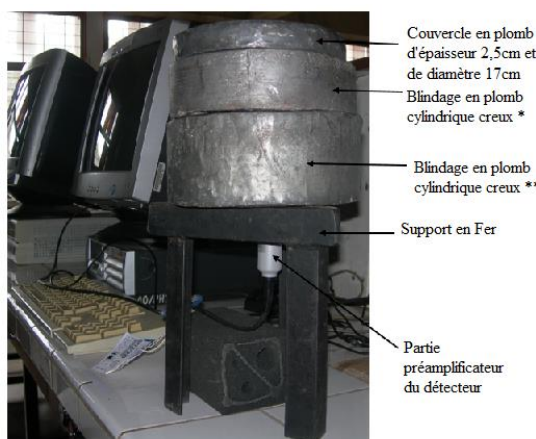


Figure 5 : Blindage en plomb du détecteur CZT 500s. Le plomb entoure la partie active du détecteur. Le porte échantillon étant placé au-dessus du détecteur à l'intérieur du plomb.

(*) : Premier blindage en plomb de 17,5cm de diamètre extérieur, 5cm de hauteur et 2cm d'épaisseur.

(**) : Deuxième blindage en plomb de 18cm de diamètre extérieur, 8cm de hauteur et 4cm d'épaisseur.

2.1.4. Sources de rayonnement gamma

Pour l'étalonnage en énergie, le LPNPE dispose d'une source ponctuelle de ¹³⁷Cs. Des sources de ¹³¹I sont également disponible périodiquement par le biais d'une collaboration avec le Laboratoire des RadioIsotopes (LRI). Il est à noter que l'iode a une période de 8,02j donc sa durée d'utilisation n'est que pour quelques semaines.

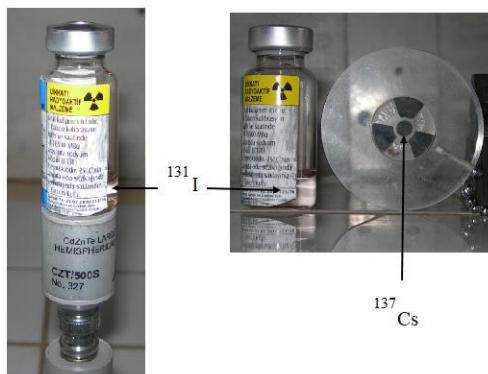


Figure 6 : Les sources de rayonnement gamma disponibles au LPNPE.

2.2. Adoption d'une méthode de travail scientifiquement fiable et précise en spectrométrie gamma au LPNPE.

La méthode qui permet d'identifier un radionucléide et d'en déterminer l'activité peut se résumer comme suit : le rayonnement réagit avec un scintillateur et produit une série d'éclairs d'intensité variable proportionnelle à l'énergie du rayonnement, ou bien, l'interaction des photons avec le détecteur à semi-conducteur conduit à une impulsion électrique d'amplitude proportionnelle à l'énergie des photons incidents. L'enregistrement de l'ensemble de ces données fournit un spectre en énergie avec des pics aux énergies caractérisant les radionucléides.

Cependant, cette méthode n'est pas aussi simple que ça ! Pour adopter une méthode de travail qui pourrait être qualifiée de fiable et précise en spectrométrie, il faut maîtriser certains paramètres, entre autres le gain du détecteur, sa résolution, son rendement ; et d'adopter des méthodes de mesure adéquates, à savoir les méthodes d'étalonnage en énergie et en rendement ; et enfin la validation de méthode suivant une norme, à savoir l'évaluation de la répétabilité et de la reproductibilité de mesure.

2.2.1. Gain d'un détecteur

Le gain d'un détecteur est défini par le rapport entre le signal de sortie de l'amplificateur et son signal d'entrée. Le gain de l'amplificateur est le produit du gain grossier par le gain fin [10]. Le gain grossier et le gain fin sont sélectionnés sur le menu du logiciel de commande du MCA et d'acquisition de données.

L'effet de gain grossier/fin est de savoir combien le signal d'origine (hauteur d'impulsion) est amplifié. Si on choisit un gain plus élevé, les signaux seront triés sur une gamme plus élevée de canaux du MCA, on obtiendra donc une résolution plus élevée. En revanche, si le gain qu'on choisit est trop élevé, la partie à haute énergie du spectre sera coupée.

En principe, on peut choisir n'importe quel gain qu'on veut, et ensuite faire un étalonnage en énergie (énergie/canal) en utilisant des sources étalons avec des énergies gamma connues.

Le gain d'un détecteur est obtenu à partir de l'équation suivante [10] :

$$G_d = \frac{R}{P} G_a \quad (2)$$

G_d : Gain du détecteur

G_a : Gain de l'amplificateur. On choisit une combinaison d'un gain grossier (GG) avec un gain fin (GF) et on obtient G_a en les multipliant :

$G_a = GG \times GF$

R : rapport énergie/canal. Ce rapport correspond à un emplacement d'une énergie à un canal correspondant aux GG et GF choisis. R est exprimé en keV/canal.

P : C'est le rapport entre la valeur de la plage d'énergie obtenue et le numéro du dernier canal dans le choix du nombre de canaux et c'est exprimé en keV/canal.

R et P sont obtenus après avoir fait l'étalonnage en énergie.

Cette première étape a donc permis au laboratoire de définir les gains de chaque détecteur utilisé en déterminant la combinaison des gains (grossier/fin).

2.2.2. Etalonnage en énergie [11]

Pour réaliser l'étalonnage en énergie d'un spectromètre gamma, on utilise un certain nombre de sources radioactives émettant des rayonnements gamma dont les énergies sont connues avec une grande précision. Sur chacun des spectres obtenus on relève les amplitudes des impulsions correspondant aux raies d'absorption totale. On peut également utiliser les raies de fuite si elles existent. Ensuite, on associe à chaque amplitude mesurée (ou au numéro du canal), l'énergie de référence correspondante. La courbe joignant les différents points (énergie de référence en fonction du numéro de canal) représente ce qu'on appelle courbe d'étalonnage en énergie ; pour un bon spectromètre celle-ci doit être une droite dans une large plage d'énergie.

2.2.3. Résolution en énergie d'un détecteur [11]

Prenons l'exemple d'un détecteur à scintillations (émission lumineuse, émission et multiplication électronique...), le caractère aléatoire des phénomènes utilisés entraîne une dispersion des amplitudes des impulsions recueillies, pour des énergies identiques cédées au scintillateur par les rayonnements incidents. Ce phénomène a pour conséquence de modifier l'allure des spectres, dans lesquels, en particulier, la raie d'absorption totale est remplacée par un pic d'absorption totale. La résolution d'un pic d'absorption totale mesure l'importance des fluctuations en amplitude des impulsions. Par définition :

$$R (\%) = 100 \times (\Delta E_y / E_y) \quad (3)$$

Avec :

ΔE_y largeur du pic à mi-hauteur,

E_y énergie de référence du pic,

3. RESULTATS ET DISCUSSION

3.1. Détermination des gains pour les trois types de détecteur du LPNPE

Rappelons que le gain d'un détecteur est défini par le rapport entre le signal de sortie de l'amplificateur et son signal d'entrée, tandis que le gain de l'amplificateur est le produit du gain grossier par le gain fin [10]. La première manipulation dans le cadre du paramétrage de la chaîne de spectrométrie gamma au sein du laboratoire LPNPE a été de déterminer les gains de chaque détecteur utilisé correspondant à des combinaisons de gains appropriés (grossier/fin).

Mode opératoire :

On a opéré de la même façon pour chaque type de détecteur et pour chaque série de mesures les démarches suivies sont indiquées comme suit :

- Pour le détecteur utilisé, le couple de gains (grossier/fin) est choisi et maintenu constante pour la série de mesure,
- le nombre de canaux est choisi dans le menu du MCA (2048 ou 4096) et maintenu constante pour la série de mesure,
- les régions d'intérêts sont déterminées pour chaque pic utilisé pour l'étalonnage en énergie. Pour ce faire, le canal numéro C_{max} correspondant à la hauteur maximale dans un pic est identifié puis la région d'intérêt est choisie comme étant la plage entre les deux valeurs suivantes : $C_{max} - 5$ et $C_{max} + 5$,
- le centroïde de ce canal va être automatiquement calculé par le logiciel du MCA et cette valeur va être considérée comme étant le numéro du canal correspondant au pic considéré.
- la courbe d'étalonnage en énergie est ensuite établie avec ces couples de valeurs (énergie/canal) en utilisant le logiciel Excel,
- la valeur de l'énergie correspondant au numéro du dernier canal dans le choix du nombre de canaux est obtenue en utilisant cette courbe d'étalonnage en énergie,
- le gain du détecteur G_d va être calculé à partir de toutes les valeurs considérées et obtenues ci-dessus en utilisant la formule $G_d = \frac{R}{P} G_a$ établie précédemment dans la partie méthodologie.

3.1.1. Détermination du gain du détecteur NaI(Tl)

Les conditions de mesure durant le paramétrage de ce détecteur ont été gardées constantes :

Source de rayon gamma : ^{131}I

Activité de la source à la date de mesure : 4,27mCi

Distance source- détecteur : 1m

Plusieurs combinaisons des gains ont été effectuées pour avoir une plage d'énergie voisine de 2000keV et ont abouti au choix des paramètres qui sont résumés ci-dessous :

Haute tension de polarisation : -1000V

Nombre de canaux : 2048

Temps d'acquisition : 100sec

Gain grossier : 200

Gain fin : 0,7

Résultat

Avec le paramétrage ci-dessus, on a effectué cinq mesures successives du spectre de l'iode ^{131}I . Les moyennes et écart-types des centroïdes de chaque pic du spectre sont calculés. A noter qu'étant une source émettrice de rayon gamma à spectre multi-pics, l'iode ^{131}I est ici utilisée pour l'étalonnage en énergie. La moyenne des écart-types en fonction de

l'énergie de l'iode ^{131}I est présentée dans le tableau1 suivant, ce qui conduit à la courbe d'étalonnage en énergie (Figure 7).

Tableau 1 : Centroïde en fonction de l'énergie pour 2048 canaux.

<u>Moyenne des centroïdes ± Ecart-type</u>	<u>Energie (keV)</u>
91,9 ± 0,6	80,186
288 ± 2	284,305
367,3 ± 1,8	364,489
632,8 ± 3,8	636,989
717 ± 3	722,911

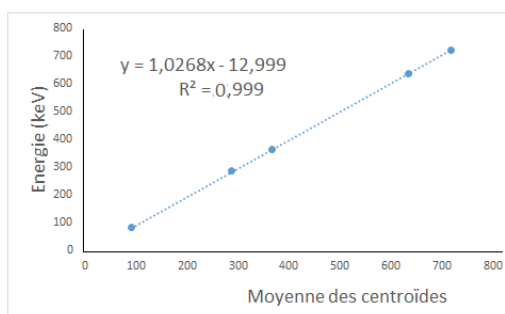


Figure 7 : Courbe d'étalonnage du détecteur NaI(Tl) à 2048 canaux.

En utilisant cette courbe d'étalonnage et les valeurs dans le tableau1, on obtient les résultats suivants :

$$E_{\max} = 2089,8874 \text{ keV}$$

$$P = 1,021 \text{ keV/canal}$$

$$R = (0,992 \pm 0,005) \text{ keV/canal}$$

$$G_a = 140$$

En utilisant la formule $G_d = \frac{R}{P} G_a$ on obtient la valeur du gain du détecteur pour une plage d'énergie d'environ 2090 keV

$$G_d = 136,1 \pm 0,7 \quad (4)$$

Interprétation

- Avec ce choix de paramètres on peut avoir une plage d'énergie d'environ 2000keV qui est adéquat pour la plupart des échantillons environnementaux.

- Dans les valeurs présentées au tableau1 ci-dessus, les écart-types sont tous assez serrés (de l'ordre de 0,5% par rapport aux valeurs des moyennes). Ce résultat s'annonce satisfaisant par rapport à la répétabilité des mesures effectuées avec le détecteur. Ce constat est aussi confirmé par le résultat du gain du détecteur avec son incertitude qui est de $G_d = 136,1 \pm 0,7$. En effet, la répétabilité est relative à l'étroitesse d'accord entre des résultats successifs obtenus avec la même méthode sur une matière identique soumise à l'essai dans les mêmes conditions (même opérateur, même appareil de mesure, même laboratoire, répétitions sur une courte durée) et dans le cas ici, s'exprime à l'aide des caractéristiques de dispersion des résultats qui est l'écart-type.

3.1.2. Combinaison des gains pour le détecteur CZT-500s

Les conditions de mesure durant le paramétrage de ce détecteur ont été gardées constantes :

Source de rayon gamma : ^{131}I

Activité de la source à la date de mesure : 4,27mCi

Distance source- détecteur : 1m

3.1.2.1. Calcul du gain du détecteur pour la plage de 2048 canaux

Plusieurs combinaisons des gains ont été effectuées et ont abouti au choix des paramètres adéquats qui sont résumés ci-dessous :

Haute tension de polarisation : +1100V

Nombre de canaux : 2048

Temps d'acquisition : 100sec

Gain grossier : 20

Gain fin : 1

Résultat

Le paramétrage de mesure indiqué ci-dessus a donné le résultat sur les positions des pics comme résumé dans le tableau 2 ci-dessous :

Tableau 2. Energie en fonction de la position du pic du ^{131}I dans la plage de 2048 canaux avec le détecteur CZT 500s.

Moyenne des centroïdes	Ecart-type	Ecart-type en % par rapport à la moyenne	Energie (keV)
80,6	0,6	0,79	80,186
286,7	2,9	1,02	284,305
367,3	3,8	1,02	364,489
641,6	6,6	1,02	636,989
727,6	6,1	0,83	722,911

Ce résultat de l'énergie en fonction de la position du pic du ^{131}I ci-dessus conduit à la courbe d'étalonnage en énergie du détecteur comme le montre la figure ci-après :

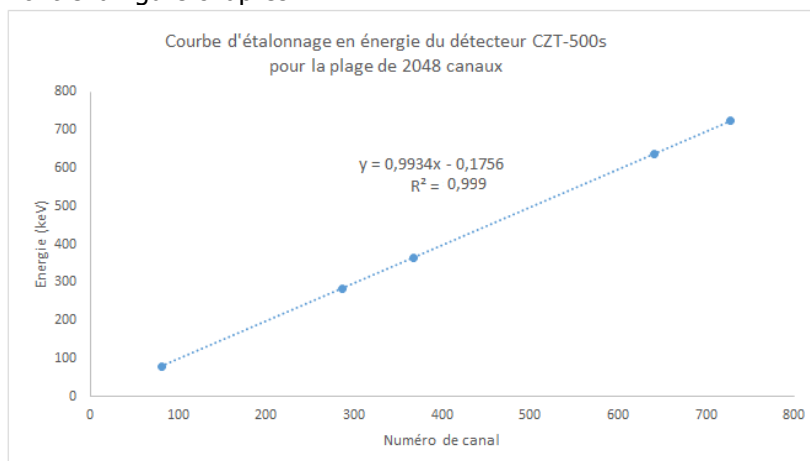


Figure 8 : Courbe d'étalonnage en énergie du détecteur CZT-500s pour la plage 2048 canaux en combinant GG=20 et GF=1.

En utilisant cette courbe d'étalonnage et les valeurs dans le tableau 2, on obtient les résultats suivants :

$$\begin{aligned}
 E_{\max} &= 2034,307 \text{ keV} \\
 P &= 0,993 \text{ keV/canal} \\
 R &= (0,99 \pm 0,01) \text{ keV/canal} \\
 G_a &= 20
 \end{aligned}$$

En utilisant la formule $G_d = \frac{R}{P} G_a$ on obtient la valeur du gain du détecteur pour une plage d'énergie d'environ 2034 keV

$$G_d = 19,9 \pm 0,2 \quad (5)$$

Interprétation

- Avec ce choix de paramètres on peut avoir une plage d'énergie d'environ 2000keV qui est adéquat pour la plupart des échantillons environnementaux.
- Par rapport au résultat avec le détecteur NaI(Tl), on remarque que le détecteur CZT 500s donne des pics plus serrés. Ceci est dû à la bonne résolution du détecteur à semi-conducteur CZT par rapport à celle d'un détecteur à scintillation NaI(Tl).
- Pour une même plage d'énergie (de 2000keV environ), les deux détecteurs ont des gains très différents : environ 140 pour NaI-Tl contre environ 20 pour CZT-500s.
- Par rapport à la répétabilité de mesure, le résultat sur les écart-types qui sont tous de l'ordre de 1% par rapport à la moyenne (tableau 2) montre l'étroitesse d'accord entre les résultats successifs obtenus avec la même méthode sur le même détecteur soumise à l'essai dans les mêmes conditions (même opérateur, même appareil de mesure, même laboratoire, répétitions sur une courte durée).

3.1.2.2. Réponses sur les positions du pic de 662keV du ¹³⁷Cs en variant les compositions des gains (GG*GF) pour le gain du détecteur calculé sur la plage de 2048 canaux

Cette expérience a pour but de vérifier la véracité de la valeur du gain du détecteur calculé précédemment avec l'¹³¹I. Pour cela, une source de ¹³⁷Cs a été utilisée. Ce choix a été pris du fait que le Césium 137 n'émet principalement qu'une raie à 662 keV. Des mesures ont été faites pour placer le pic de 662keV sur des canaux différents en gardant la plage d'énergie et le gain du détecteur constants.

Mode opératoire :

- Dans la formule $G_d = \frac{R}{P} G_a$ on garde constantes les valeurs de G_d et P obtenues avec l'¹³¹I,
 - On calcule R avec le nombre de canal où on veut placer la 662keV,
 - On tire la valeur de G_a avec ces valeurs,
 - Comme $G_a = GG*GF$, Une fois G_a obtenu, on cherche une combinaison de GG et GF correspondante.
- Le résultat de cette opération est rassemblé dans le tableau 3 ci-après.

Tableau 3 : Valeurs des GG et GF correspondantes aux emplacements voulus de 660keV.

canal	300	400	500	600	700	800	900
GG	10	10	10	20	20	20	20
GF	0,8994	1,1993	1,4991	0,8995	1,0494	1,1993	1,3492

Avec ces combinaisons de GG et GF, le résultat des spectres est rassemblé dans le tableau 4 suivant. Cinq mesures ont été prises pour chaque série de mesure relative à une position voulue du pic de 662keV et sont retenues les moyennes plus ou moins les écart-types.

Tableau 4 : Positions des centroïdes des pics de 662keV en fonction des positions voulues.

Position voulue du pic de 662keV	Position du centroïde du pic de 662keV	Ecart (%)
300	299,8 ± 0,2	0,07
400	390 ± 4	2,44
500	498,6 ± 0,7	0,27
600	585,9 ± 0,5	2,33
700	691 ± 4	1,25
800	779 ± 9	2,60
900	865 ± 14	3,92

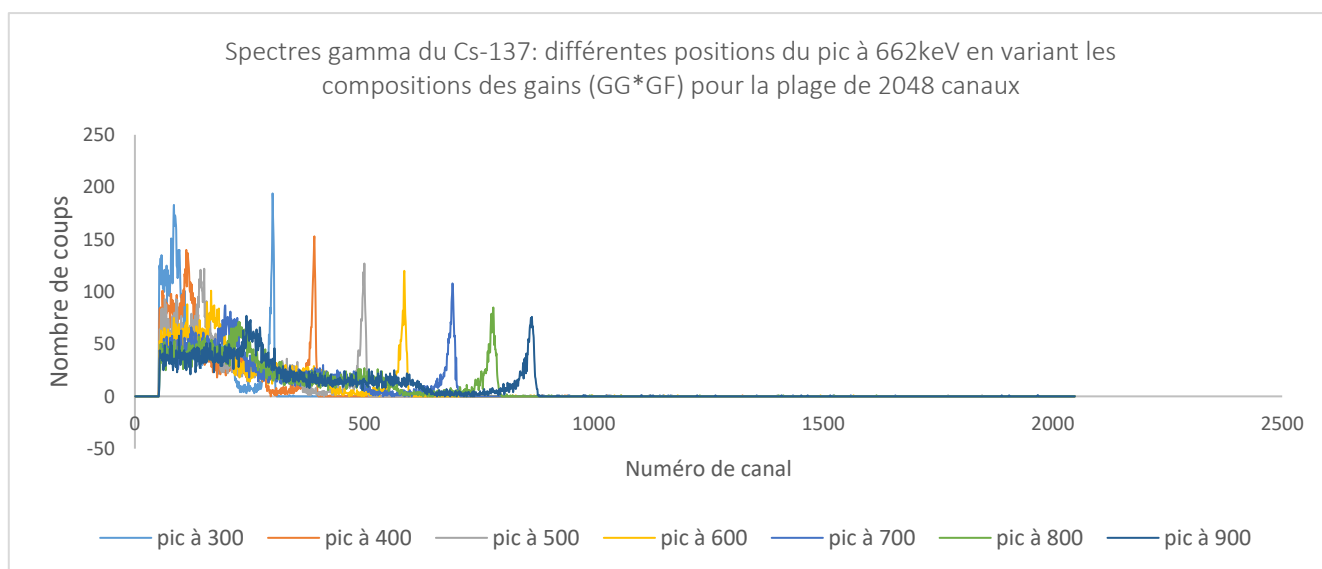


Figure 9 : Spectres gamma du ¹³⁷Cs utilisant le détecteur CZT-500s pour différentes positions du pic de 662keV.

Interprétation

- Le gain du détecteur a été calculé avec l'utilisation de l'iode ^{131}I . Ce gain a été ensuite utilisé pour placer le pic de 662keV du ^{137}Cs à des positions différentes tout en gardant la plage d'énergie à environ 2MeV. Le résultat s'annonce satisfaisant avec des écarts tous inférieurs à 4% par rapport aux positions voulues du pic (tableau 4). Cela montre une fiabilité satisfaisante sur le calcul du gain du détecteur.

- A première vue, on constate une diminution de l'efficacité contre une augmentation de la résolution en élevant la position du pic (figure 9).

3.1.3. Combinaison des gains pour le détecteur SDP 310/Z/60

Le détecteur SDP 310/Z/60 est un autre type de détecteur semi-conducteur à CZT qui existe au LPNPE. Les conditions de mesure durant le paramétrage de ce détecteur ont été gardées constantes :

Détecteur : SDP 310/Z/60

Source de rayon gamma : ^{131}I

Activité de la source à la date de mesure : 4,27mCi

Détecteur : tout près de la source

Plusieurs combinaisons des gains ont été effectuées et ont abouti au choix des paramètres adéquats qui sont résumés ci-après : GG=50 et GF=0,75

Résultat

Le paramétrage de mesure indiqué ci-dessus a donné le résultat sur les positions des pics dans la figure 10 ci-dessous :

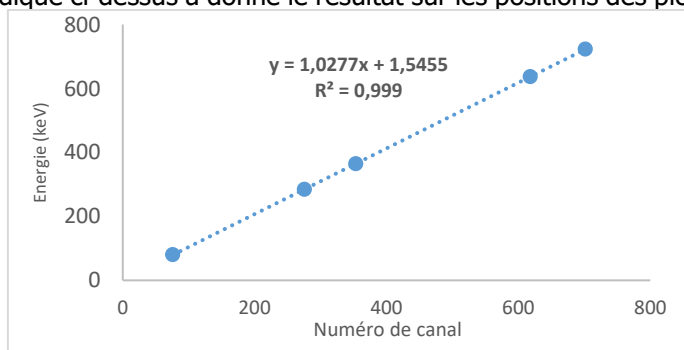


Figure 10. Courbe d'étalonnage en énergie du détecteur SDP 310/Z/60 pour la plage 2048 canaux en combinant GG=50 et GF=0,75.

En utilisant la courbe d'étalonnage on obtient les résultats suivants :

$$E_{\max} = 2106,2751 \text{ keV}$$

$$P = 1,0284 \text{ keV/canal}$$

$$R = 1,0308 \text{ keV/canal}$$

$$G_a = 37,5$$

En utilisant la formule $G_d = \frac{R}{P} G_a$ on obtient la valeur du gain du détecteur pour une plage d'énergie d'environ 2106 keV

$$G_d = 37,59 \pm 0,02 \quad (6)$$

Interprétation

- Par rapport au détecteur CZT 500s, le détecteur SDP 310/Z/60 présente un gain de même grandeur. Ce sont des résultats prévisibles car tous deux sont des détecteurs de même type : à semi-conducteur CdZnTe (Cadmium-Zinc-Tellure). Ces deux types de détecteurs devront donc avoir des résolutions peu différentes.

- Cette étude a pu fournir au laboratoire LPNPE d'un document à consulter pour les utilisations et combinaisons des gains pour une exploitation optimum de la spectrométrie gamma et selon le besoin. Les résultats présentés dans ce manuscrit n'est pas exhaustifs par rapport à toutes les gammes de mesures effectuées mais seulement représentatifs des paramètres optimum pour l'utilisation de la spectrométrie gamma.

3.2. Comparaison des 3 détecteurs en termes de rendement

Cette étude a pour but de mettre en évidence les différences entre les réponses des trois types de détecteurs en termes de rendement. Des mesures ont été effectuées avec les trois types de détecteurs dans les mêmes conditions de mesures qui suivent :

Détecteurs : SDP 310/Z/60 ; CZT 500s ; NaI(Tl),

Source de rayon gamma : ^{131}I ,

Activité de la source en date du 18-10-2021 : 0,26mCi,

Distance source- détecteur : 4cm,

Résultat

Avec les mêmes conditions de mesures citées ci-dessus, les trois détecteurs ont donné les spectres suivants :

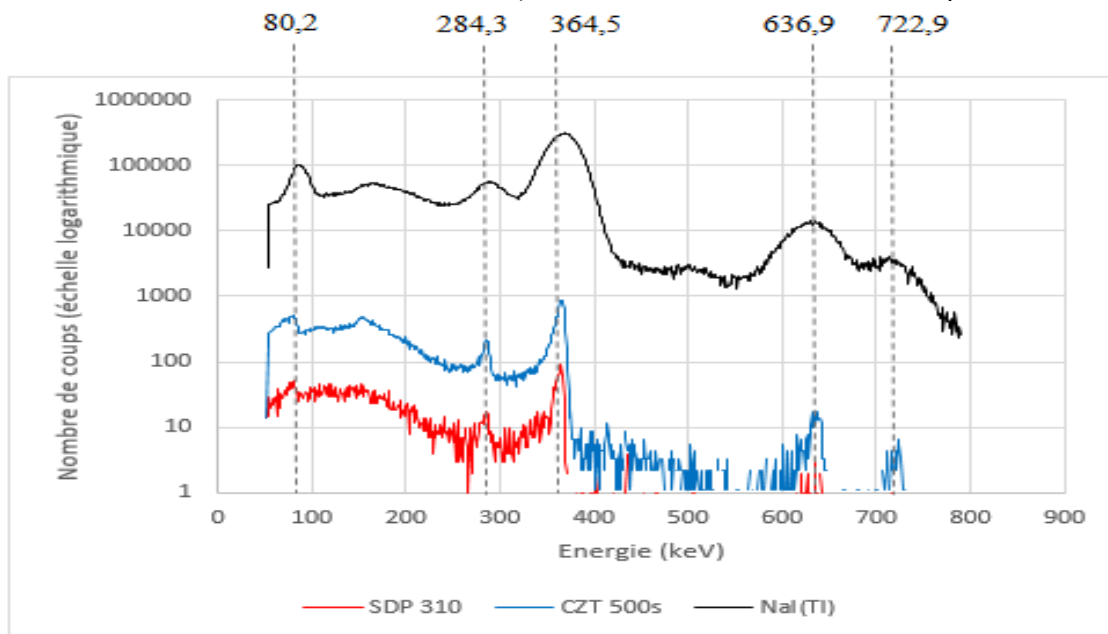


Figure 11. Comparaison des Spectres gamma du ^{131}I par les détecteurs SDP 310/Z/60, CZT 500s et NaI(Tl).

Interprétation

Rappelons que théoriquement le rendement d'un détecteur est proportionnel au nombre de coups enregistrés dans le pic d'absorption totale. Le résultat ci-dessus (figure 11) montre que les réponses de ces trois détecteurs en termes de rendement sont largement très différentes qu'on n'a même pas pu les présenter ensemble qu'à échelle logarithmique pour voir leurs différences. La réponse du détecteur CZT 500s est presque dix (10) fois plus grande que celle du détecteur SDP 310/Z/60. En outre, la réponse du détecteur NaI(Tl) est presque cinq cent (500) fois plus grande que celle du détecteur CZT 500s. Ce résultat est en concordance avec la littérature confirmant que le détecteur à scintillation NaI(Tl) est plus performant en rendement par rapport au détecteur à semi-conducteur CdZnTe.

En revanche, le détecteur NaI(Tl) a présenté un temps mort largement plus grande par rapport aux détecteurs CdZnTe. Le résultat de cette étude va servir d'indice pour le choix d'un détecteur suivant l'ordre de grandeur de l'activité de l'échantillon à mesurer. Pour un échantillon estimé à très basse activité, il est commode d'utiliser le détecteur NaI(Tl) à cause de sa haute sensibilité de réponse. C'est le cas de la plupart d'échantillons environnementaux (naturels et non contaminés).

3.3. Comparaison des 3 détecteurs en termes de résolution

3.3.1. Mise en évidence sur les spectres

Cette étude a pour but de mettre en évidence les différences entre les réponses des trois types de détecteurs en termes de résolution. Des mesures ont été effectuées avec les trois types de détecteurs avec les conditions de mesures suivantes :

Détecteurs : SDP 310/Z/60 ; CZT 500s ; NaI(Tl)

Source de rayon gamma : ^{131}I

Activité de la source en date du 18-10-2021 : 0,26mCi

Distances source- détecteur : variées par tâtonnement suivant le type de détecteur de façon à ce qu'on ait presque la même hauteur du pic à 364,5 keV.

Gains des détecteurs : ajustés pour chaque détecteur de façon à ce que chaque énergie se place au canal numéro X qui est un chiffre presque le même que la valeur de l'énergie en keV.

Plage de canaux : 2048

Avec ces conditions, les réponses des trois types de détecteurs en termes de résolution peuvent être mise en évidence dans la figure 12 suivante.

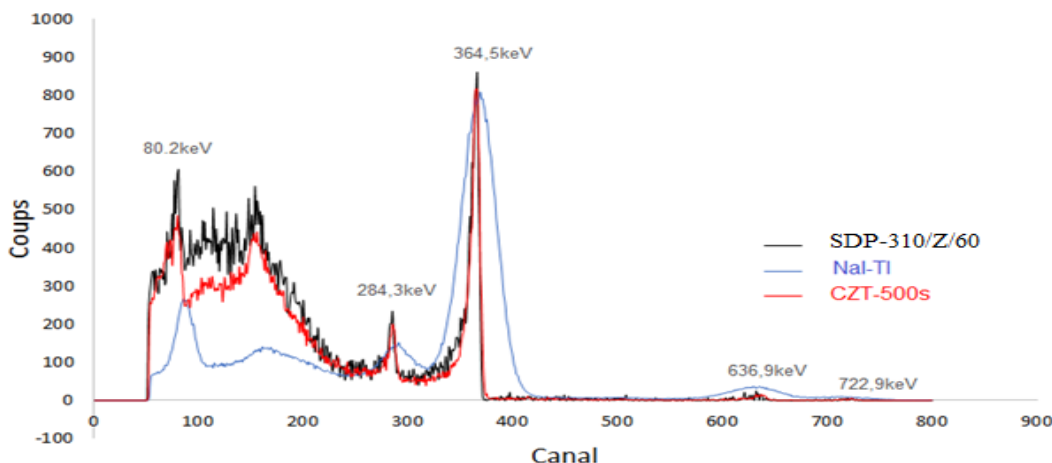


Figure 12. Mise en évidence de la différence de résolution des détecteurs SDP 310/Z/60, CZT 500s et NaI(Tl) à travers leurs spectres gamma du ¹³¹I.

Interprétation

Avec les conditions de mesures préalablement étudiées comme indiquées ci-dessus, une comparaison à première vue des spectres a pu être réalisée comme montrée dans la figure 12. On peut bien y voir que les pics du détecteur NaI-Tl sont plus larges par rapport à ceux des détecteurs CZT.

Remarque

Par la même occasion on peut aussi mettre en évidence le fait qu'à basse énergie (inférieure à 365 keV) les détecteurs CZT présentent une réponse plus importante par rapport à celle du NaI-Tl. Par contre, à haute énergie c'est le NaI-Tl qui l'emporte.

3.3.2. Calcul des résolutions de chaque détecteur à 662keV

On rappelle que la résolution d'un pic d'absorption totale mesure l'importance des fluctuations en amplitude des impulsions, et est définie par :

$$R (\%) = 100 \times (\Delta E\gamma / E\gamma) \tag{7}$$

Avec :

ΔEγ : largeur du pic à mi-hauteur,

Eγ : énergie de référence du pic,

Pour ce calcul de résolution, la source Cs-137 qui est mono-pic à 662keV est utilisée.

3.3.2.1. Comparaison des résolutions de chaque type de détecteur

Des mesures ont été effectuées pour chaque type de détecteur en variant autant que possible les paramètres de mesure (combinaison des gains grossier et gain fin GG*GF, nombre de canaux caractérisant la plage d'énergie, distance source-détecteur) et les résultats sont rassemblés dans le tableau 5 ci-après.

Tableau 5 : Moyenne des résolutions de chaque type de détecteur avec écart-type sur les nombres de mesures.

Type de détecteur	CZT-500s	SDP-310/Z/60	NaI-Tl
Résolution (%)	1,8 ± 0,2	0,9 ± 0,1	4,7 ± 0,3

3.3.2.2. Interprétation

- Pour chaque type de détecteur, la variation des paramètres de mesure affecte peu sur la valeur de la résolution. En effet, en variant les paramètres de mesure, les écart-types sont tous inférieurs à 10% par rapport aux moyennes.

- Pour les détecteurs CZT-500s et SDP-310/Z/60, les résolutions concordent bien avec les valeurs indiquées par le constructeur (document de la marque « Ritec ») qui indique que pour le CZT-500s la résolution en énergie à 662keV est inférieur ou égale à 2,5% tandis que pour le SDP-310 c'est inférieur ou égale à 2%.
- Pour le détecteur NaI-Tl qui est de fabrication Russe, le LPNPE ne détient pas de document sur ses caractéristiques et aucune donnée sur ce type de fabrication n'est accessible à internet mais d'après les résultats cités ci-dessus (tableau 5), on peut constater que sa résolution est plus que deux fois celle du détecteur CZT.

4. CONCLUSION

Le présent travail a présenté les résultats des recherches effectuées pour garantir la qualité des mesures en spectrométrie gamma dans le cadre de la mise en place et du suivi du laboratoire LPNPE. Les résultats exposés démontrent que le laboratoire développe et améliore continuellement ses méthodes de travail.

La spectrométrie gamma est désormais opérationnelle au laboratoire LPNPE. Néanmoins, il convient de rappeler que cette technique requiert deux types d'étalonnage essentiels : l'étalonnage en énergie et l'étalonnage en efficacité. Si le premier est pleinement fonctionnel, le second n'est que partiellement opérationnel en raison de l'absence de sources étalons adéquates. Par conséquent, la spectrométrie gamma du LPNPE permet actuellement d'effectuer des analyses qualitatives fiables, mais les mesures quantitatives demeurent limitées.

Bien que l'acquisition de sources étalons reste un défi pour le laboratoire, plusieurs solutions alternatives ont été développées et sont en cours de validation. Parmi celles-ci figure l'utilisation de sources naturelles, notamment la monazite d'activité connue, comme élément de référence en substitution des sources étalons conventionnelles. Les résultats préliminaires sont prometteurs, et cette approche est déjà largement mise en œuvre dans les pratiques du laboratoire. En parallèle, les doctorants du LPNPE développent d'autres méthodologies innovantes, telles que la simulation de sources étalons ponctuelles par la méthode Monte Carlo et la déconvolution des spectres gamma. Ces techniques visent à optimiser la détermination précise tant de la position des pics que de leur aire sous pic.

5. REFERENCES

- [1] Gilmore, G. R. (2008). Practical gamma-ray spectrometry (2nd ed.). John Wiley & Sons. ISBN: 978-0-470-86196-7
- [2] Knoll, G. F. (2010). Radiation detection and measurement (4th ed.). John Wiley & Sons. ISBN: 978-0-470-13148-0
- [3] L'Annunziata, M. F. (2012). Handbook of radioactivity analysis (3rd ed.). Academic Press. ISBN: 978-0-12-384873-4
- [4] Debertin, K., & Helmer, R. G. (1988). Gamma- and X-ray spectrometry with semiconductor detectors. North-Holland. ISBN: 978-0-444871077
- [5] IAEA. (2004). Quantifying uncertainty in nuclear analytical measurements (IAEA-TECDOC-1401). International Atomic Energy Agency.
- [6] Currie, L. A. (1968). Limits for qualitative detection and quantitative determination. Analytical Chemistry, 40(3), 586-593.
- [7] Canberra Industries. (2009). Genie 2000 spectroscopy software: Operations manual. Meriden, CT: Canberra Industries.
- [8] Zhang, F., He, Z., & Seifert, C. E. (2007). A detailed analysis of CdZnTe gamma-ray spectrometers for high-rate applications. IEEE Transactions on Nuclear Science, 54(4), 843-848.
- [9] Moszynski, M. (2003). Inorganic scintillation detectors in γ -ray spectrometry. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A, 505(1-2), 101-110.
- [10] P. Mortreau, R. Berndt, *EUR 19822 EN, Joint Research Centre, Ispra*, Handbook of Gamma Spectrometry Methods for Non-destructive Assay of Nuclear Material, first published April 2001, fourth revision June 2010.
- [11] M. Ammerich, *Le portail de la RP pratique et opérationnelle*, Approche générale de la spectrométrie des rayonnements électromagnétiques, 2018.



How to cite this article: Liantsoa Ratvonjanahary, Haingo Laza Andriampanarivo, Frank Elliot Saho, R. Radomanana Rakotonarivo et A. Justinien Franck Ratvonjanahary. Optimisation des Méthodes de Spectrométrie Gamma : Développement et validation d'un Protocole Analytique Adéquat. *Am. J. innov. res. appl. sci.* 2024; 19(5): 16-27. <https://doi.org/10.5281/zenodo.14193361>

This is an Open Access article distributed in accordance with the Creative Commons Attribution Non Commercial (CC BY-NC 4.0) license, which permits others to distribute, remix, adapt, build upon this work non-commercially, and license their derivative works on different terms, provided the original work is properly cited and the use is non-commercial. See: <http://creativecommons.org/licenses/by-nc/4.0/>