

République Algérienne Démocratique et Populaire

Ministère de l'Enseignement Supérieur et de la Recherche Scientifique

Université SAAD DAHLAB DE BLIDA

Faculté des Sciences

Département de Physique



MEMOIRE

De fin d'étude en vue de l'obtention du diplôme de Master en physique

Spécialité : Physique des rayonnements

Présenté par :

MANSOURI RANIA et ZAIDA MALAK

THEME

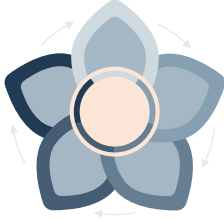
**Analyse par Activation Neutronique Instrumentale
des échantillons de phosphates : utilisation des voies
de moyennes et longues périodes**

Soutenue publiquement, le 18/07/3023 devant le jury composé de :

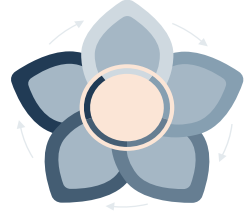
Mr. MOUZALI Aziz	MCB	USDB	Président
Mr. CHIKIRIN Maamoun	MCB	USDB	Examineur
Mr. AZABOUCHE Ahmed	Chercheur Senior	CRNA	Encadreur
Mme. BENAROUS Samiha	chercheur principal	CRNA	Co-encadreur

Remercîments

Tout d'abord, nous remercions Dieu de nous permettre de faire ce travail merci, Ce travail a été réalisé au sein du Laboratoire des techniques nucléaires du Centre de Recherche Nucléaire d'Alger CRNA. Nous remercions en premier lieu la direction de CRNA, de nous avoir permis de réaliser au sein du centre. Nous voulons aussi remercier notre encadreur, Docteur AZBOUCHE Ahmed du CRNA pour tous les efforts qu'il a consentis tout au long de l'élaboration de ce travail pour les informations et l'encouragement et son soutien pendant la préparation de ce mémoire. Merci. Egalement, nous remercions beaucoup notre cher Co-encadreur Madame BENAROUS Samiha. Pour sa rigueur et ses exigences d'un travail bien fait également pour ses encouragements, ses précieux conseils et la confiance qu'elle nous toujours témoignées m'ont été d'une grande aide. Nous remercions très sincèrement Mr Mouzali Aziz de l'Université de Blida1 pour l'honneur qu'il nous fait en acceptant la présidence de ce jury. Nous remercions également Mr CHEKIRINE mamoun de l'université de Blida1 pour l'honneur qu'il nous fait en acceptant de juger ce travail, qu'elle trouve ici l'expression de notre profond respect. Pour leur compétence et leur grande gentillesse, nous remercions tous ceux qui ont contribué d'une façon ou d'une autre à la réussite de ce travail : les chercheurs permanents et ingénieurs du laboratoire de recherche CRNA Nous remercions aussi tous les enseignants religieux qui nous ont enseigné tout au long de notre carrière universitaire. Merci.



Malak



A mes très chère parents qui m'ont toujours soutenus et encourager

Merci pour votre patience, votre amour et vos sacrifices

Merci maman d'être derrière moi de puit le début,

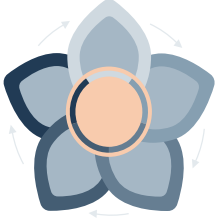
Merci papa pour votre soutien,

Merci mami et papi de votre douaa

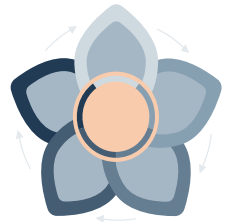
Merci A mon ami proche Aya

A mon binôme rania

A tous ceux qui me sont chères



Rania



A mes chères parentes

Mon père, ma mère merci pour votre encouragement et conseils,

Mes sœurs Cherine Nedjma et Kaouthar,

Mes frères Momo et Walid,

A mon binôme Malak pour la traverse de ce chemin ensemble

Table des matières

Introduction générale	15
Chapitre I : INTERACTION RAYONNEMENT MATIERE	
Interaction Rayonnement- matière	
I. Interaction du neutron avec la matière.....	19
I.1.Propriété du neutron.....	19
I.2. Sources de neutron.....	19
I.2.1. Les réacteurs nucléaires.....	20
I.2.2. Les accélérateurs de particules.....	20
I.2.3. Source radio-isotopique.....	21
I.3.Spectre de neutrons.....	20
I.3.1. Neutron thermique	21
I.3.2.Les neutrons épi thermiques	22
I.3.3.Les neutrons rapides	22
I.4.Interaction des neutrons avec la matière.....	22
I.4.1.Diffusion élastique – (n, n)	23
I.4.2.Diffusion inélastique (n, n')	24
I.4.3.Capture radiative	25
I.4.4.Les réactions de capture (n, α) et (n, p)	26
I.4.5.Fission.....	26
I.5.La section efficace	27
Interaction des rayonnements gamma avec la matière.....	29
II. Interaction gamma avec la matière.....	30
II.1.Effet photoélectrique.....	30
II.2. Effet Compton.....	31
II.3.Création des paires	32
Chapitre II : Technique d'analyse par activation neutronique instrumentale (INAA)	
II.1. Principe de la technique INAA.....	36
II.2. Equation fondamentale de la méthode INAA	37
II.3.Analyse qualitative.....	39
II.3.1.Interférence du premier ordre.....	39

II.3.2. Interférence du second ordre	40
II.4. Analyse quantitative	40
II.4.1 Méthode absolue.....	41
II.4.2 Méthode relative (comparative)	41
II.4.3 Méthode semi relative.....	42
II.5. Limite de la technique.....	43
II.6. Domaines d'application de la technique NAA	43
II.7. Caractéristiques de la INAA	44
II.8. Sources d'erreur.....	44
Chapitre III : Matériels et méthodes	
III.1. Gisements de phosphate de Djebel-Onk.....	46
III.1.1. Situation géographique du secteur d'étude.....	46
III.1.2. Djebel-Onk.....	46
III.2. techniques d'échantillonnage.....	47
III.2.1. Échantillonnage.....	47
III.2.2. Préparation et conditionnement des échantillons.....	47
III.2.3. Irradiation.....	49
III.3. Analyse par spectrométrie Gamma.....	50
III.3.1. Instrumentation.....	50
III.3.2. Etalonnage de la chaîne de détection.....	51
III.3.2.1. Etalonnage en énergie.....	51
III.3.2.2 Etalonnage en efficacité.....	51
III.4. Analyse qualitative.....	54
III.5 Analyse quantitative.....	57
III.5.1 La méthode absolue.....	57
III.5.2 La méthode relative.....	57
III.7 Conclusion.....	58
Chapitre IV Résultats et discussion	
Introduction.....	61
IV.1. Analyse des échantillons par INNA..... ;;	61
IV.1.1 Utilisation de la méthode absolue.....	61

Table des matières

IV.1.2. Dosage par la méthode relative.....	63
IV.2.Etude comparative entre la méthode relative est absolue.....	63
IV.3.Distribution des éléments de traces.....	64
Conclusions générale.....	66
Références.....	67

Liste des Figures

FIGURE I.1: REPRESENTATION SCHEMATIQUE DU FLUX DE NEUTRONS RELATIF EN FONCTION DE L'ENERGIE DES NEUTRONS DANS UN REACTEUR NUCLEAIRE.	16
FIGURE I.1: TYPE INTERACTION NEUTRON MATIERE.	18
FIGURE I. 2 : SCHEMA QUI REPRESENTE LA DIFFUSION ELASTIQUE.	20
FIGURE I.4: SCHEMA QUI REPRESENTE LA DIFFUSION INELASTIQUE.	20
FIGURE I.5: SCHEMA QUI REPRESENTE LA CAPTURE RADIATIVE DE DEUTERIUM	21
FIGURE I.6 : SCHEMA QUI REPRESENTE LA CAPTURE RADIATIVE DE TRITIUM	21
FIGURE I.7 : SCHEMA QUI REPRESENTE LA CAPTURE RADIATIVE DE TRITIUM	22
FIGURE I.8: SCHEMA QUI REPRESENTE LA CAPTURE DE BORE 10.	22
FIGURE I.9: schéma qui représenté la fission del'uranium235	23
FIGURE I.10: VARIATION DE LA SECTION EFFICACE D'INTERACTION EN FONCTION DE L'ENERGIE INCIDENTE DU NEUTRONS	23
FIGURE I.11: EFFET PHOTOELECTRIQUE	26
FIGURE I.12: EFFET COMPTON	27
FIGURE I.13: CREATION DE PAIRES	28
Figure I.14: TYPE D'INTERACTION EN FONCTION D'ENERGIE DE PHOTON ET LE NOMBRE Z ATOMIQUE DU MATERIAU TRAVERSE	29
FIGURE II.1 : SCHEMA QUI REPRESENTE LE PRINCIPE DE LA TECHNIQUE INAA	32
FIGURE II.2: ACCROISSEMENT DE LA RADIOACTIVITE D'UN ELEMENT AU COURS DE L'IRRADIATION.	35
FIGURE III.1 : CADRE GEOLOGIQUE DE LA MINE A CIEL OUVERTE DE BALADE EL HADBA	42
FIGURE III.2 : MACHINE DE CONCASSAGE, BROYAGE ET TAMISAGE AU NIVEAU DE L'ATELIER	43
FIGURE III.3 : LE MATERIEL UTILISE DANS LA PREPARATION	44

Figure III.4 : REMPLISSAGE d'échantillon dans enveloppe en Aluminium après en capsule.....	44
Figure III.5 : Chaîne de spectrométrie gamma avec le détecteur à semi-conducteur Ge (HP).	45
FIGURE III.6 : DROITE D'ETALONNAGE DE LA SOURCE D'EUROPIUM-152	47
FIGURE III.7 LA COURBE D'EFFICACITE A UNE DISTANCE SOURCE-DETECTEUR 8.5CM	49
FIGURE III.8 : LA COURBE D'EFFICACITE A UNE DISTANCE SOURCE-DETECTEUR DE 17CM	50
FIGURE III.9: SPECTRE INAA D'UN ECHANTILLON DU PHOSPHATE MESURE DURANT 5000 SECONDES APRES 30 JOURS DE DECROISSANCE POUR LE DOSAGE DES ELEMENTS DE LONGUES PERIODES	51
FIGURE III.10 : SPECTRE INAA D'UN ECHANTILLON DU PHOSPHATE MESURE APRES 8 JOURS DE DECROISSANCE.	51
FIGURE IV.1 : ETUDE COMPARATIVE ENTRE LA METHODE RELATIVE ET ABSOLUE POUR LA COUCHE PRINCIPALE BEH04.	58
FIGURE IV.2: DISTRIBUTION DES ELEMENTS DE TRACES DANS LES TROIS COUCHES.	59

Liste des Tableaux

TABLEAU II.1	Réaction de fission interférentes pour lors du dosage des REEs	36
TABLEAU III.1	Flux neutronique de l'irradiation de la capsule	45
TABLEAU III. 2	Les valeurs des énergies et des canaux d'Europium-152	46
TABLEAU III.3	L'efficacité du détecteur pour une distance source-détecteur pour 17 cm et 8,5 cm	49
Tableau III.4	caractéristiques des éléments de moyenne et de longues périodes.	52
TABLEAU IV.1	Concentration des éléments présents dans les trois échantillons de phosphate par la méthode absolue pour les longues périodes	56
TABLEAU IV.2	Concentration des éléments présents dans les trois échantillons de phosphate par la méthode absolue pour les moyennes périodes	57
TABLEAU IV.3	Concentration des éléments présents dans les trois échantillons de phosphates par la méthode relative	58

Liste des abréviations

CRNA : Centre de Recherche Nucléaire d'Alger.

BEH: Bled El Hadba

Ech: Echantillon

St : standard

INAA : Analyse par activation neutronique

MP : Moyenne période

LP : Longue période

KES : Kef Essnoun

Ge(Hp) : détecteur Germanium heperpure

ADC : convertisseur analogique-numérique

MCA : analyseur multicanaux

Résumé

L'objectif de ce travail est de déterminer les concentrations des éléments mineurs et de traces dans les phosphates par la technique d'analyse par activation neutronique instrumentale en utilisant les voies des moyennes et des longues périodes pour étudier la distribution dans le gisement phosphaté de Djebel Onk.

Dans ce travail, la technique d'Analyse par Activation Neutronique Instrumentale (INAA) a été utilisée pour mesurer les éléments mineurs et de traces dans des échantillons de phosphates, que nous avons irradié avec le flux neutronique du réacteur Draria après préparation et conditionnement pour obtenir une représentation de la distribution de ces éléments à l'étude. Le rayonnement gamma émis par les éléments de l'échantillon est mesuré à l'aide d'une chaîne de spectrométrie gamma munie d'un détecteur Ge(HP), Calibrée à l'aide d'une source ^{152}Eu .

Les deux méthodes sont appliquées pour la détermination des éléments mineurs et de traces. Le dosage des éléments de moyennes et longues périodes par la méthode relative est effectuée en utilisant un standard de référence de même matrice. Pour les éléments non présents dans le standard, nous avons appliqué la méthode absolue. L'utilisation de cette voie d'analyse nécessite la connaissance des paramètres d'irradiation (flux de neutrons, section efficace de capture radiative, temps d'irradiation, etc.) et les paramètres de mesures (efficacité du détecteur, temps de mesures, etc.)

La présence d'éléments traces dans les phosphates provient généralement d'altérations des éléments de la roche mère, ou éventuellement de la présence d'éléments traces comme d'uranium et les terres rares.

Mots clés : INAA, Flux neutronique, Moyennes et longues périodes, éléments mineurs et de traces, Phosphates.

Abstract

The objective of this work is to determine the concentrations of minor and trace elements in phosphates by the technique of analysis by instrumental neutron activation using the voices of the medium periods and long periods to study the distribution in the phosphate deposit of Djebel Onk.

In this work, the Instrumental Neutron Activation Analysis (INAA) technique was used to measure minor and trace elements in phosphate samples, which we irradiated with neutron flux from the Draria reactor after preparation and conditioning to obtain a representation of the distribution of these elements under study place. The gamma radiation emitted by the elements of the sample is measured using a gamma spectrometry chain fitted with a Ge(HP) detector, calibrated using a ^{152}Eu source.

Both methods are applied for the determination of minor and trace elements. The dosage of medium and long period elements by the relative method is carried out using a reference standard of the same matrix. For elements not present in the standard, we applied the absolute method. The use of this analysis route requires knowledge of the irradiation parameters (neutron flux, radiative capture cross section, irradiation time, etc.) and the measurement parameters (detector efficiency, measurement time, etc.)

The presence of trace elements in phosphates generally comes from alterations of the elements of the source rock, or possibly from the presence of trace elements such as uranium and rare earths.

Keywords: INAA, neutron flux, medium and long periods, minor and trace elements, phosphates.

ملخص

الهدف من هذا العمل هو تحديد تركيزات العناصر الصغرى والنادرة في الفوسفات بتقنية التحليل عن طريق التنشيط الالى للنيوترونات باستخدام أصوات الفترات المتوسطة والفترات الطويلة لدراسة التوزيع في ترسب الفوسفات في جبل أونك.

لقياس العناصر الصغيرة والنادرة في عينات (INAA) في هذا العمل، تم استخدام تقنية تحليل التنشيط النيوتروني الالى بعد التحضير والتكليف للحصول على تمثيل لتوزيع Draria الفوسفات، والتي قمنا بتشجيعها بتدفق النيوترونات من مفاعل هذه العناصر تحت مكان الدراسة. يتم قياس إشعاع غاما المنبعث من عناصر العينة باستخدام سلسلة قياس طيف غاما Eu، والمعيرة باستخدام مصدر 152 Ge (HP) المزودة بكاشف.

يتم تطبيق كلتا الطريقتين لتحديد العناصر الثانوية والتتبع. يتم تنفيذ جرعة العناصر ذات الفترة المتوسطة والطويلة بالطريقة النسبية باستخدام معيار مرجعي لنفس المصفوفة. بالنسبة للعناصر غير الموجودة في المعيار، طبقنا الطريقة المطلقة. يتطلب استخدام مسار التحليل هذا معرفة معلمات التشعيع (تدفق النيوترون، المقطع العرضي للالتقاط الإشعاعي، وقت التشعيع، إلخ) ومعلمات القياس (كفاءة الكاشف، وقت القياس، إلخ).

يأتي وجود العناصر النزررة في الفوسفات عمومًا من تغيرات في عناصر صخور المصدر، أو ربما من وجود العناصر النزررة مثل اليورانيوم والأثرية النادرة.

، تدفق النيوترونات، الفترات المتوسطة والطويلة، العناصر الصغرى والنادرة، الفوسفات INAA: الكلمات المفتاحية

Introduction générale

Introduction générale

L'Algérie est un pays riche en diverses substances utiles dont la majorité n'est pas encore mise en valeur. Les phosphates naturels Algériens ; situés précisément à Djebel Onk dans la région de Tébessa, constituent une source de matière première absolument importante pour l'économie nationale. Cette ressource naturelle est associée à d'autres éléments mineurs et de traces dont l'analyse nécessite l'utilisation des techniques nucléaire puissantes et sensibles tel que la PIXE (Particle Induced X-ray Emission), XRF (X-ray Fluorescence) et INAA (Instrumental Neutron Activation Analysis).

L'objectif de ce travail est l'étude la distribution des gisements de phosphate du Djebel Onk en déterminant les concentrations d'éléments de traces et mineurs dans le phosphate par la technique instrumentale d'analyse par activation neutronique à l'aide de moyennes et longue période.

La technique instrumentale d'analyse par activation neutronique est basée sur les rayons gamma émis par des réactions de capture radiative (n, γ), qui peuvent être détectés et utilisés pour identifier les éléments présents dans un échantillon.

Le choix de la technique d'analyse par activation neutronique instrumentale INAA est très important. Afin d'évaluer la composition des échantillons de phosphate, grâce à la mesure de l'énergie et de l'intensité des rayons gamma qui caractérisent les éléments radioactifs émetteurs, cette technique offre la possibilité de quantifier les éléments traces avec une grande précision et rapidité. [1]

l'autre raison de choisir cette technique est la présence de l'uranium, thorium et d'autres éléments de REE qui ont une section efficace d'absorption importante

Elle est employée dans de nombreux domaines, notamment en sciences de l'environnement, en géologie et en médecine légale.

Nous citons quelques récentes applications de la méthode dans les différents domaines : l'utilisation de la technique INAA pour le contrôle de la pollution de l'air d'Alger,[2]la détermination des éléments de terre-rare (REEs) dans les sols pour étude de l'érosion des sols et de la sédimentation [3]et la détermination de la concentration du Zinc dans les cheveux des femme atteintes du cancer du sein. [4]

Le travail engagé dans ce mémoire consiste à l'analyse des échantillons du phosphate Bled El Hadba basés sur l'analyse par activation neutronique instrumentale (INAA). Il s'agit d'appliquer cette technique pour inciter la composition élémentaire des échantillons.

Introduction générale

La méthodologie suivie dans ce travail, est focalisée en termes de quatre chapitres sur les formes suivants :

Le premier chapitre est consacré à la généralité de l'interaction des rayonnements avec la matière, nous présenterons brièvement les bases théoriques du mécanisme de l'interaction des neutrons-la matière en localisant les différentes sources de neutrons, les classifications des neutrons et les principales réactions neutroniques, ainsi que l'interaction des rayonnements gamma avec la matière.

Le deuxième chapitre présente la technique d'analyse par activation neutronique instrumentale, le concept théorique de base de la technique, ses avantages, ses limites et ses applications dans divers domaines.

Le derniers chapitres sont consacrés aux méthodes de préparation des échantillons, aux manipulations analytiques et au traitement de la spectroscopie gamma (identification et quantification des radionucléides dans les différentes couches d'échantillons). En ce qui concerne les radionucléides dans les échantillons étudiés. Les résultats obtenus et leur interprétation.

Nous concluons ce manuscrit en rassemblant les conclusions générales pour la suite.

Chapitre I : INTERACTION RAYONNEMENT MATIERE

Interaction Rayonnement- matière

I. Interaction du neutron avec la matière

Introduction

Dans ce chapitre, nous nous intéresserons à l'interaction de rayonnements avec la matière pour passer brièvement en revue les propriétés, la production et la classification des neutrons. Cela devrait permettre l'étude des interactions générées par les neutrons et les photons dans la deuxième partie du chapitre.

I.1. Propriété du neutron

Le neutron est une particule non chargée de spin $\frac{1}{2}$, qui a un moment magnétique dipolaire négatif, [5]. Le neutron n'interagit pas avec les électrons de cortège. La seule forme d'interaction importante est celle de neutron avec les noyaux. Les neutrons sont des particules instables qui se transforment spontanément en des protons par désintégration β^- selon la réaction suivante :



I.2. Sources de neutrons

Il existe une variété de sources radioactives qui doivent être produites artificiellement. On se trouve plusieurs sources de neutrons disponibles pour différentes applications de neutrons. [6] Les trois types de source sont utilisés :

- Les réacteurs nucléaires
- Les accélérateurs de particules (réaction produit avec de neutron)
- Les sources isotopiques

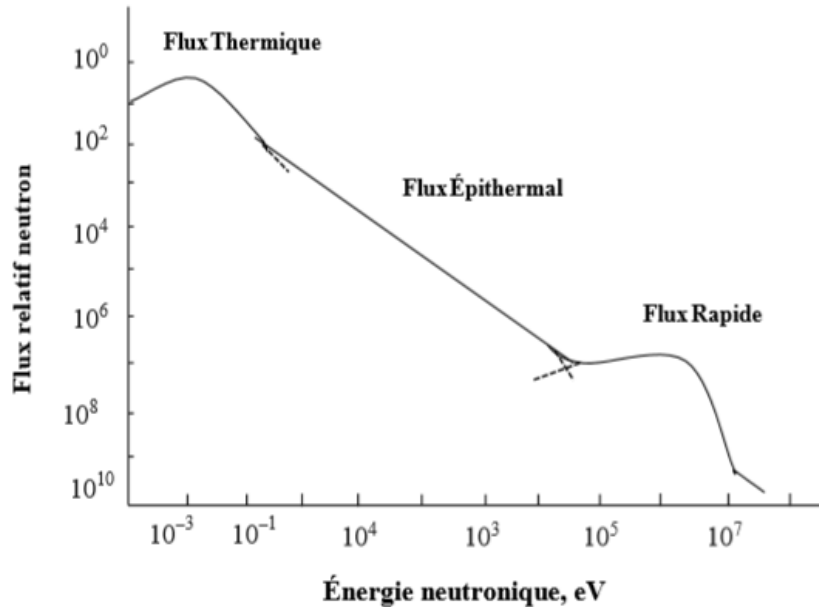


FIGURE I.1: REPRESENTATION SCHEMATIQUE DU FLUX DE NEUTRONS RELATIF EN FONCTION DE L'ENERGIE DES NEUTRONS DANS UN REACTEUR NUCLEAIRE [12]

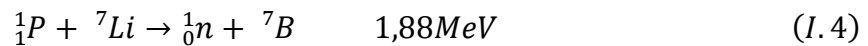
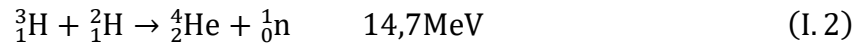
I.2.1. Les réacteurs nucléaires

Un réacteur est une installation nucléaire dans laquelle une réaction en chaîne est créée et maintenue pour obtenir un flux de neutrons à des fins expérimentales, ou production de l'électricité. [7]. Ces neutrons issus de la fission de plutonium 239. [8]

Un flux de neutrons dans un réacteur nucléaire est constitué des neutrons thermiques, des neutrons épi thermiques et des neutrons rapides. Dans ce cas, il doit être thermalité avec un modérateur. Les modérateurs sont des éléments légers caractérisés par de grandes sections efficaces de diffusion.

I.2.2. Les accélérateurs de particules

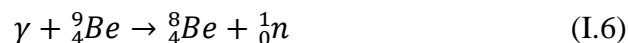
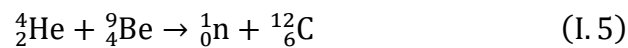
Ce sont de petits accélérateurs qui produisent des neutrons en utilisant des réactions nucléaires de types deutérium-tritium D-T ou deutérium-deutérium D-D. Le bombardement de cibles appropriées avec de l'hydrogène ou des isotopes de particules alpha présente un intérêt particulier en raison du bon bilan énergétique de la réaction. Les réactions T (d, n) et D (d, n) sont actuellement les plus brillantes au monde et plus utilisées pour production de neutrons au moyen de générateurs de neutrons Les tensions d'accélération varient généralement de 150 kV à 750 kV, selon la nature de la cible. Les cibles peuvent être fines ou épaisses. [9]



I.2.3. Source radio-isotopique

Ils incluent généralement des sources basées sur des réactions (α , n), (γ , n) et la fission spontanée (par ex : Cf.) Tout issu de mélanges de béryllium avec certains radionucléides émetteurs alpha tels que Ra (Be), Pu (Be), Am (Be) Ces sources conviennent également à une utilisation industrielle en analyse par activation neutronique (NAA) détermination rapide des éléments. [10],[11]

Exemples :



I.3.Spectre de neutrons

Les neutrons sont classés en fonction de leur énergie cinétique et son section efficace en trois grandes catégories.

I.3.1.NEUTRONS THERMIQUES

Ce sont les neutrons dont l'énergie cinétique est moyenne est inférieure à 0.5 eV, qui sont en équilibre thermique avec le milieu environnant de température 290K. Les neutrons thermiques ont une section efficace d'absorption des neutrons différente et souvent beaucoup plus grande (fission ou capture radiative) pour un nucléide donné que les neutrons rapides.

A la température ambiante le spectre des neutrons thermiques est décrit par une distribution de Maxwell-Boltzmann avec une énergie moyenne de 0.025 eV qui correspond à une vitesse plus probable de 2200 m²s⁻¹ ; il est donné par l'expression suivante : [13]

$$\phi_{\text{th}}(E) = \frac{E}{E_0^2} \exp\left(-\frac{E}{KT}\right) \quad (\text{I.7})$$

Avec :

$$E_0 = KT_0 = \frac{3}{2}KT \tag{I.8}$$

Où :

T : la température ;

E : l'énergie des neutrons ;

K : la constant de Boltzmann.

I.3.2. Les neutrons épi thermiques

Ce sont les neutrons dont l'énergie cinétique est comprise entre (0.5 eV et 10 keV) qui sont partiellement modérés [14], Le terme épi thermique rappelle la structure du spectre des neutrons du réacteur quittent la colonne de graphite autour du cœur. Une énergie de 0,5 eV correspond à une "coupure cadmium". Les neutrons d'énergie inférieure à 0,5 eV sont absorbés par capture radiative (n, γ) [11].

I.3.3. Les neutrons rapides

Les neutrons rapides ont des énergies supérieures à 100 keV (~ 15 000 km/ s) et sont également appelés neutrons de fission. Ces neutrons sont produits par des processus nucléaires tels que la fission nucléaire ou des réactions (α, n). [15]

I.4. Interaction des neutrons avec la matière

Dans cette partie, nous présentons les cinq réactions possibles entre un neutron et un noyau :

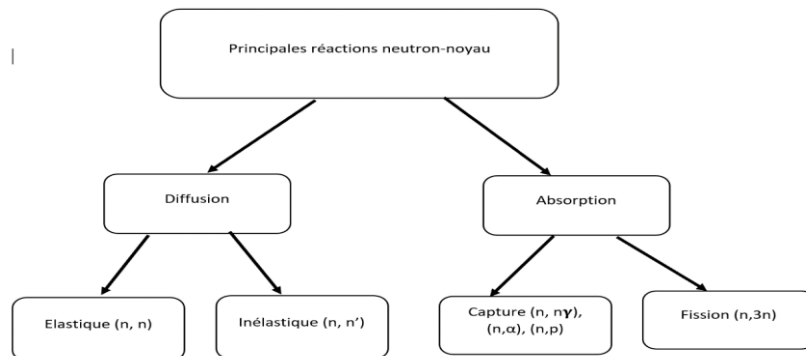


FIGURE I.1: TYPE INTERACTION NEUTRON MATIERE

I.4.1. Diffusion élastique – (n, n)

Le neutron pénètre dans le noyau ; un neutron est réémis avec une énergie cinétique égale à l'énergie cinétique du neutron incident dans une certaine direction. Cette réaction est notée (n, n).

Le noyau cible de masse m_2 initialement au repos reçoit du neutron (masse m_n et énergie cinétique E) une énergie cinétique E comprise entre 0 et E_{max} :

$$E_{max} = \frac{(4m_n m_2)}{(m_n + m_2)^2} E \quad (I.9)$$

Qui se note généralement :

$$E_r = \frac{4A}{(A+1)^2} E \cos^2 \theta_r \quad (I.10)$$

Avec $A = m_2 / m_n$

E_r : *Energie du noyau de recul*

E : Energie du neutron incident

A : Nombre de masse du noyau de recul

θ_r : *Angle entre la direction du neutron incident et le noyau de recul*

La diffusion élastique est un processus très efficace pour ralentir les neutrons. [16]

Caractéristiques : [17]

- Absorption totale
- Entre deux corps ou plus
- L'énergie cinétique totale est conservée
- Transfert de l'énergie cinétique du neutron sous forme d'énergie de recul
- Le noyau n'est pas dans un état excité.

La figure suivante représente le principe de la diffusion élastique :

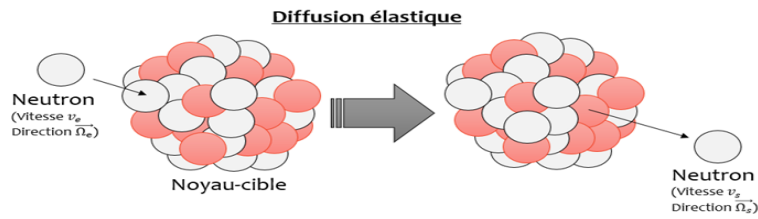
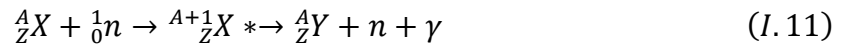


FIGURE I. 2 : SCHEMA QUI REPRESENTE LA DIFFUSION ELASTIQUE. [18]

I.4.2. Diffusion inélastique (n, n')

Durant une diffusion inélastique, les neutrons restituent une partie de leur énergie aux noyaux du milieu, les laissant dans un état excité.



$$E_{seuil} = \frac{A + 1}{A} E_{exc} \tag{I.12}$$

Caractérisé

- Absorption partielle de l'énergie du neutron par le noyau
- Le noyau dans un état excité
- L'énergie d'excitation de noyau "E seuil" > 1MeV
- Retour au fondamental du noyau par émission gamma [19]

La figure suivante représente le principe de la diffusion inélastique :

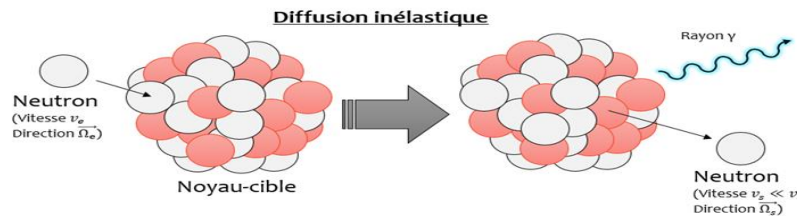


FIGURE I.4: SCHEMA QUI REPRESENTE LA DIFFUSION INELASTIQUE. [20]

I.4.3.Capture radiative

Dans cette réaction notée (n, γ) , le neutron est absorbé par le noyau cible pour former un noyau composé fortement excité qui émet un ou plusieurs photons γ . Le noyau produit est un isotope de noyau cible. [21]

Caractéristique

- La capture radiative dominée surtout par les neutrons thermiques.
- La section efficace d'une capture radiative présente des résonances à certaines valeurs d'énergies.

Schéma

L'exemple de deutérium :

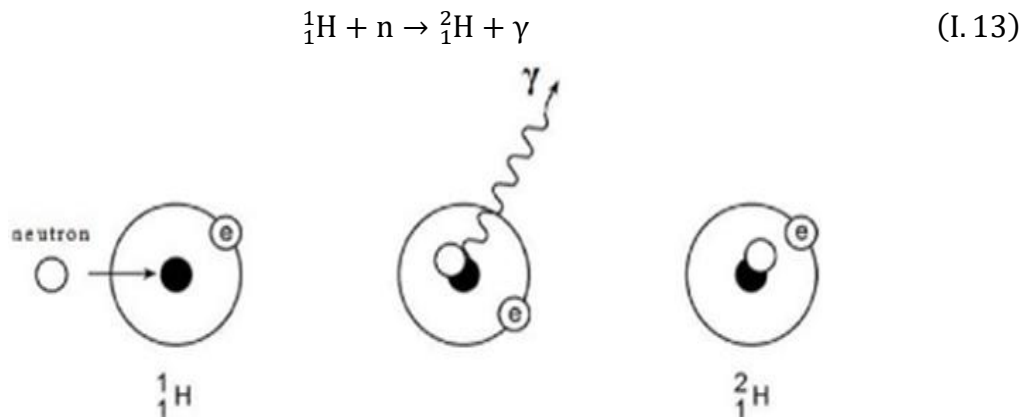


FIGURE I.5: SCHEMA REPRESENTE LA CAPTURE RADIATIVE DE DEUTERIUM. [22]

L'exemple de tritium :

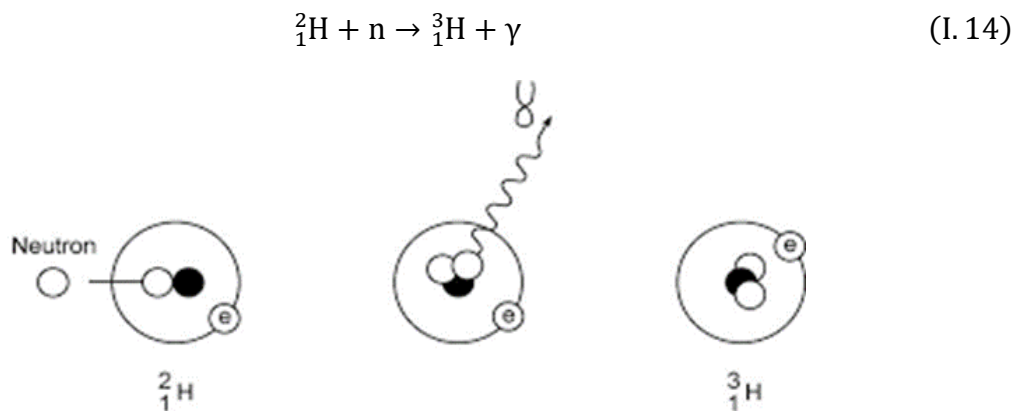


FIGURE I.6 : SCHEMA QUI REPRESENTE LA CAPTURE RADIATIVE DE TRITIUM. [22]

I.4.4. Les réactions de capture (n, α) et (n, p)

Un noyau peut absorber un neutron pour former un noyau composé qui se désexcitera en émettant une particule chargée : un proton ou une particule alpha. [21]

Caractéristique

- Particule incident ≠ particule produite
- σ Peut montrer une résonance
- Réaction a seuil

Exemple (n, p) :

L'oxygène 16 capture un neutron et émet un proton pour former L'azote 16 est radioactif.

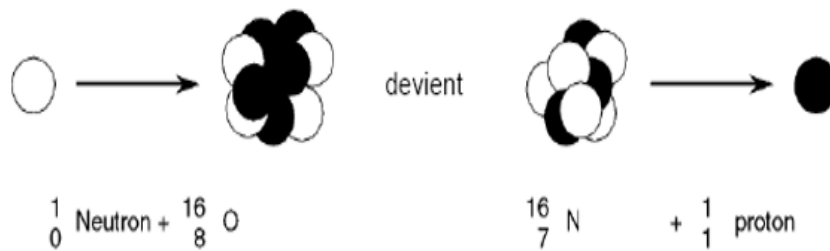


FIGURE I.7 : SCHEMA QUI REPRESENTE LA CAPTURE RADIATIVE DE TRITIUM. [22]

Dans la réaction suivante, nous donnons un d'une réaction de capture (n, α) :

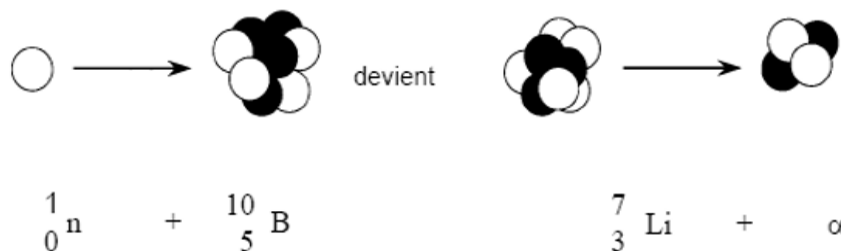


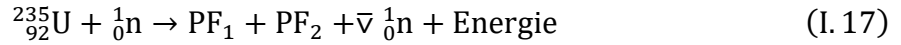
FIGURE I.8 : SCHEMA QUI REPRESENTE LA CAPTURE DE BORE 10. [22]

I.4.5. Fission

Les réactions de fission se produisent dans les matériaux à Z élevé tels que l'uranium ou le thorium. La capture de neutrons provoque la division des noyaux et produit des fragments

lourds et des noyaux à haute énergie cinétique, plus 2 à 3 neutrons, des particules provenant de la désintégration radioactive des fragments de fission et des photons.

La réaction couramment utilisée dans les réacteurs est :



Où : PF1 et PF2 sont des fragments de fission, l'énergie libérée durant une réaction de fission est de l'ordre 200 MeV.

Schéma :

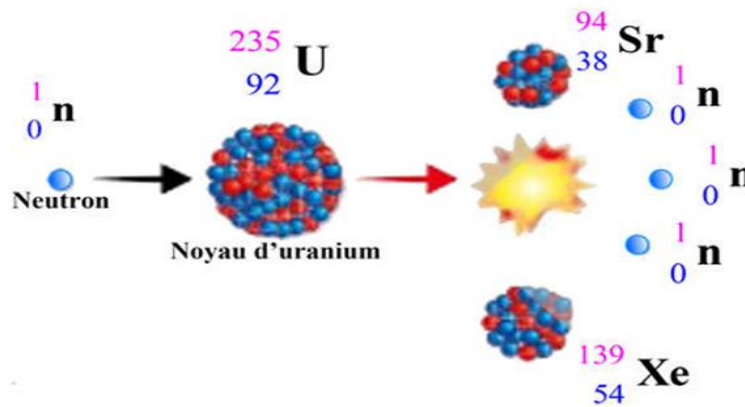
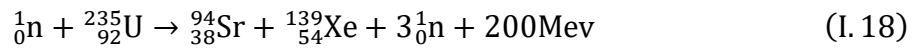


FIGURE I.9: schéma qui représenté la fission de l'uranium 235. [23]

I.5. La section efficace

La section efficace représente la probabilité d'interaction des neutrons avec les différents noyaux, notée σ . Elle s'exprime en unité de surface (cm^2) ou plus couramment en barn avec $1\text{bar} = 10^{-24} cm^2$. [14]

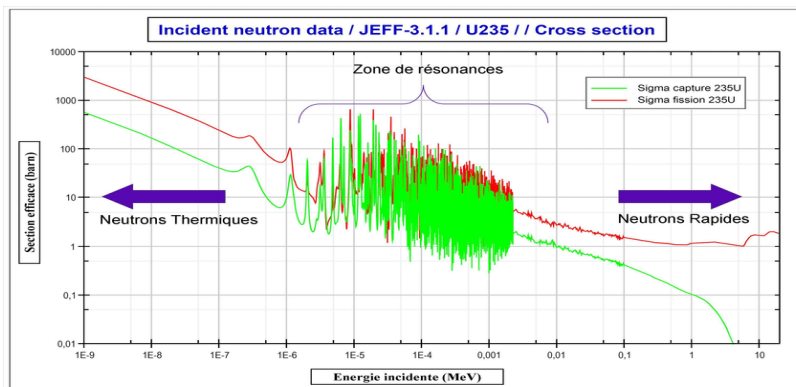


FIGURE I.11: VARIATION DE LA SECTION EFFICACE D'INTERACTION DIFFUSION ET DE CAPTURE EN FONCTION DE L'ENERGIE INCIDENTE DU NEUTRONS. [24]

Les sections efficaces de la capture radiative sont, en règle générale, d'autant plus grandes que les neutrons sont moins rapides et d'ordre de grandeur très variable selon les nucléides.

On pourra observer un comportement que l'on retrouve de façon plus ou moins systématique pour toutes les courbes de sections efficaces de capture radiative

1/ un comportement général dit en " $1/v$ ", c'est-à-dire inversement proportionnel à la vitesse des neutrons ; cette loi est le plus souvent bien suivie par les sections efficaces de capture radiative dans le domaine des neutrons thermiques, c'est-à-dire en dessous de l'électron volt ;

2/ un comportement complexe avec une courbe présentant de nombreux "pics" passablement irréguliers dans le domaine épi thermique, typiquement entre quelques eV et quelques keV ; ces pics sont appelés "résonances" de la section efficace.

Interaction des rayonnements gamma avec la matière

II. Interaction gamma avec la matière

Lorsque les rayons γ traversent la matière, ils peuvent subir différents types d'interactions en fonction de leur énergie et du milieu traversé, où le nombre de processus. Trois mécanismes jouent le rôle le plus important dans les interactions possibles des rayons gamma avec la matière, à savoir l'effet photoélectrique, la diffusion Compton et la création de paires. [25]

II.1.Effet photoélectrique

C'est l'interaction du photon incident sur les électrons liés de la cible qui transfère toute l'énergie à la cible. Par conséquent, le photon incident est complètement absorbé. [26]

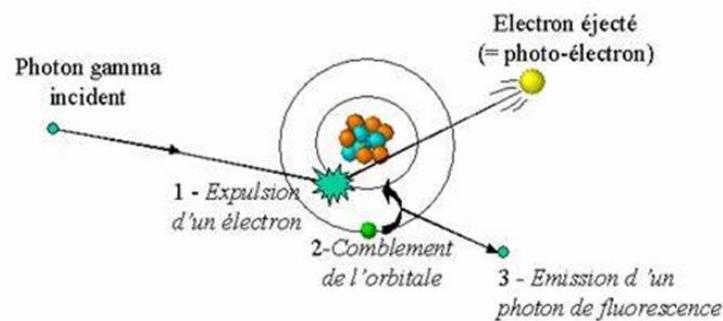


FIGURE I.11: EFFET PHOTOELECTRIQUE.

Ses caractéristiques : [27]

- $E = T_e$
- Couche K
- Z élevé
- E faible

La conservation de l'énergie totale s'écrit :

$$h\nu = T_e + T_r + E_l \quad (\text{I.19})$$

Or T_r est faible \approx qq 10 eV

Energie de l'électron émis

$$T_e = h\nu - E_l \quad (\text{I.20})$$

E_γ : Énergie du photon incident

E_l : Énergie de liaison de l'e- sur sa couche : pour la couche K,

$$E_l = E_k = 13,6. (Z-1)^2 \text{ eV}$$

T_e : Énergie cinétique de l'électron éjecté

T_r : Énergie de recul de l'ion formé

II.2. Effet Compton

L'effet Compton est principalement utilisé pour les photons d'énergie modérée, généralement comprise entre quelques dixièmes de MeV et quelques MeV (les photons X et les photons γ).

Ce phénomène est produit par l'interaction entre les photons incidents et les électrons. [28]

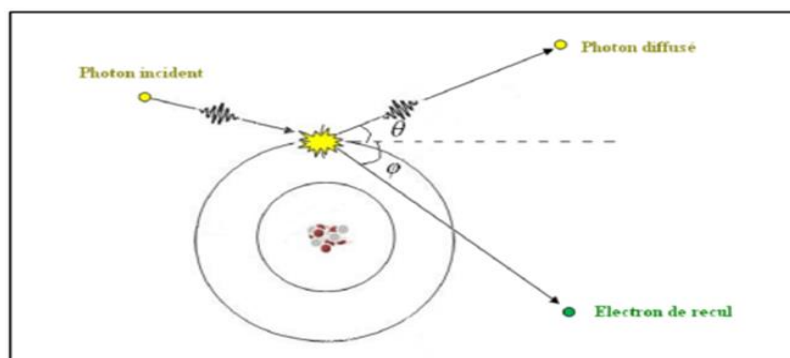


FIGURE I.12: EFFET COMPTON.

L'énergie du photon diffusé et l'électron de Compton est donnée simplement, en appliquant les lois de conservation de l'énergie et du moment cinétique au choc du photon avec électron libre, ce qui donne la relation suivante :

$$\lambda' - \lambda = \frac{h}{m_e c} (1 - \cos\theta) \quad (\text{I. 21})$$

$$E' = h\nu' = \frac{h\nu}{1 + h\nu(1 - \cos\theta)} \quad (\text{I. 22})$$

Avec :

$$\alpha = \frac{h\nu}{(m_0 c^2)} \quad (\text{I. 23})$$

λ' : Longueur d'onde du photon diffusé

λ : longueur d'onde de photon incident

θ : l'angle entre le photon incident et diffusé

h : Constante de plank

m_e : Masse de l'électron

C : vitesse de la lumière

L'énergie de l'électron dépend de l'angle de diffusion du photon

Ses caractéristiques

- $E > T_e$
- E externe semi libre
- Z faible
- E élevé

II.3.Création des paires [29]

Lorsque le photon a une énergie supérieure ou égale à 1,022 MeV. Le champ de noyau est ce matérialise aux : un électron et un positron. Si l'énergie du photon gamma dépasse le double de la masse d'un électron au repos

$$E_\gamma \geq 2E_0 = 1.02\text{MeV} \tag{I. 24}$$

Le voisinage du noyau (ou d'un autre photon) est nécessaire à la conservation de la quantité de mouvement et de l'énergie.

$$E_\gamma = E_- + E_+ + 2E_0 \tag{I. 25}$$

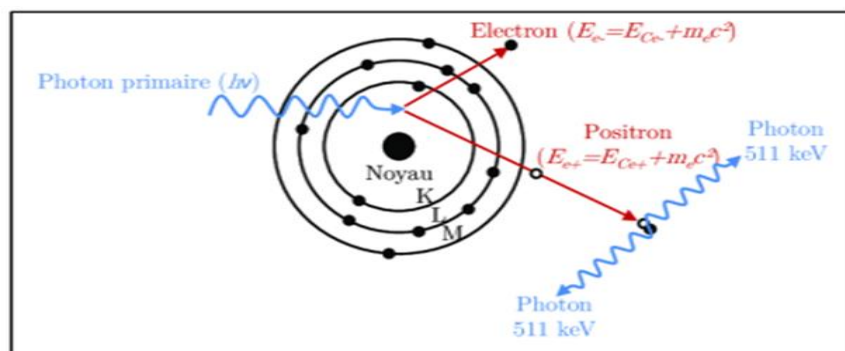


FIGURE I.13: CREATION DE PAIRES.

En résumé les trois interactions sur la figure suivant:

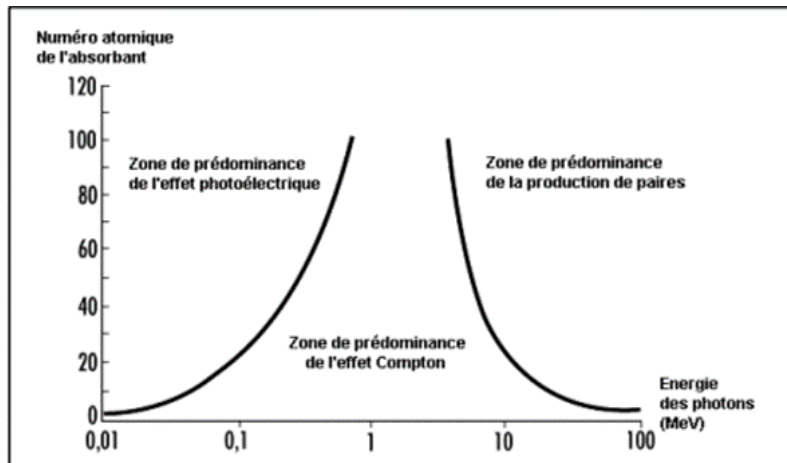


Figure I.15 : TYPE D'INTERACTION EN FONCTION D'ENERGIE DE PHOTON ET LE NOMBRE Z ATOMIQUE DU MATERIAU TRAVERSE. [28]

**Chapitre II : Technique d'analyse par
activation neutronique instrumentale
(INAA)**

Introduction

La technique d'analyse par activation neutronique est une méthode d'analyse nucléaire très ancienne, elle remonte aux travaux de Von HEVESY et LEVI en 1936, deux ans après la découverte de la radioactivité artificielle par Frédéric et Julio- Curie.

Par la suite le développement de la méthode et de ses applications dépendait des progrès de ses composants et de son instrumentation, par exemple les réacteurs nucléaires dans les années 1940. [29]

Certaines variantes de la technique NAA basées sur les mêmes principes sont citées :

La technique PGNAA (Prompt Gamma Neutron Activation Analysis)

PGNAA est une technique non destructive et relativement rapide pour la détermination des éléments de traces qui ne peuvent pas être déterminés par la méthode d'activation conventionnelles. Elle est basée sur la détection des rayons gamma prompts émis pendant la réaction nucléaire. [30]



La technique DNC (Delayed Neutron Counting)

La technique de comptage de neutrons retardés est une méthode d'analyse par activation neutronique applicable pour la détermination uniquement des éléments fissiles. Le principe consiste à exposer un échantillon à un flux neutronique afin de provoquer des réactions de fission. [31]

La technique RNAA (Radiochemical Neutron Activation Analysis)

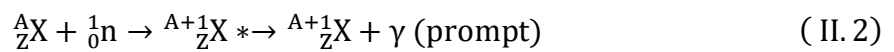
RNAA est une technique destructive ; elle est basée sur le traitement chimique post-irradiation pour isoler certains éléments qu'on souhaite étudier. [34]

Dans ce cas nous parlerons de **la technique INAA (Instrumental Neutron Activation Analysis)** qui est une méthode analytique, sensible et précise, permettant l'identification ainsi que la quantification des éléments présents dans un échantillon

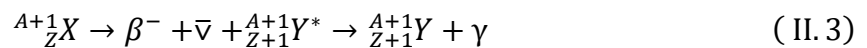
II.1. Principe de la technique INAA

L'analyse par activation neutronique instrumentale est une technique d'analyse nucléaire multi-élémentaire rapide, non destructive et très sensible, elle consiste à irradier l'échantillon à analyser par un flux de neutrons, Son principe est basé sur la réaction (n, γ) dite capture radiative qui conduit à la formation des radio-isotopes. Ces radio-isotopes sont alors identifiés et quantifiés par l'étude de leur spectre de rayon gamma émis lors de la désintégration. [11]

La réaction de capture radiative est beaucoup plus probable avec des neutrons thermiques ou épi thermiques. Le noyau composé produit se désexcite par émission gamma prompt, la capture radiative est donnée par la réaction suivante :



Le radio-isotope ${}^{A+1}_ZX$ produit, se désintègre par plusieurs modes de décroissance radioactives (béta, alpha ou transition isométrique). Cette désintégration est accompagnée par émission de rayonnements gammas. La réaction de désintégration β^- du noyau produit s'écrit :



Sur la figure suivante, on présente le principe de la technique d'analyse par activation neutronique Instrumentale (INAA).

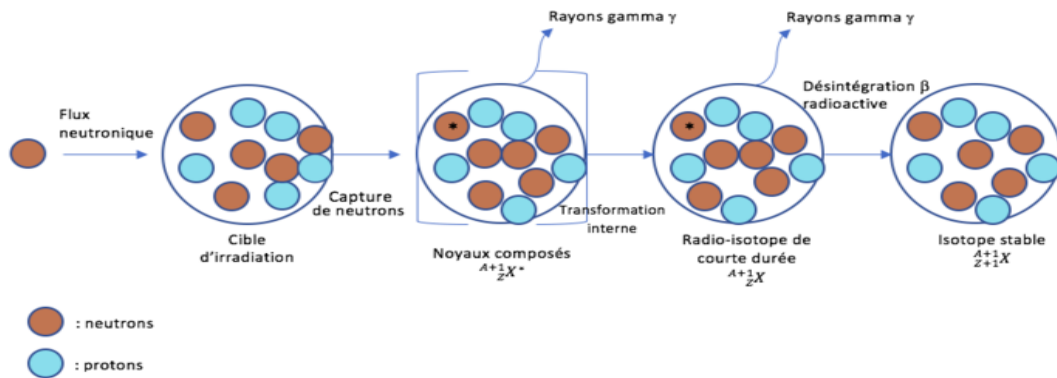


FIGURE II.1 : SCHEMA QUI REPRESENTE LE PRINCIPE DE LA TECHNIQUE INAA.

II.2. Equation fondamentale de la méthode INAA :

Lors de l'irradiation d'un échantillon dans un réacteur, le taux de réaction (n, γ) par noyau (en s⁻¹) est donné par la formule suivante : [11]

$$R_0 = N_0 \int_0^{\infty} \phi(E) \sigma(E) dE \quad (\text{II. 4})$$

$\phi(E)$ Représente les deux composantes du flux de neutrons thermiques et épithermiques.

Pour un flux de neutrons thermiques, le taux de réaction est donné par :

$$R_0 = N_0 \phi_{th} \sigma_{th} \quad (\text{II. 5})$$

σ_{th} : est la section efficace de capture des neutrons thermiques.

Le taux de réaction de la composante épi thermique est donné par la relation suivante :

$$R_0 = N_0 \phi_{epi} I_0 \quad (\text{II. 6})$$

Où :

$$N_0 = \frac{m \theta N_A}{M} \quad (\text{II. 7})$$

m : Masse de l'élément ;

θ : Abondance isotopique ;

N_A : Nombre d'Avogadro ;

M : Masse molaire.

Et :

I_0 : l'intégrale de résonance donnée par l'équation suivante :

$$I_0 = \int_{E_{cd}}^{\infty} \frac{\sigma(E)}{E^{\alpha+1}} \quad (\text{II. 8})$$

Où :

α : est la déviation de flux épi thermique dans le réacteur.

Le taux de réaction d'un échantillon irradié dans le réacteur est donné par la relation suivante :

$$R_0 = R_{th} + R_{epi} = N_0(\Phi_{epi}I_0 + \Phi_{th}\sigma_{th}) \quad (\text{II. 9})$$

La variation du nombre de radio-isotopes formés lors de l'irradiation est donnée par la formule :

$$\frac{dN(t)}{dt} = R - \lambda N(t) \quad (\text{II. 10})$$

Où :

λ : est la constante radioactive, reliée à la période radioactive par la relation $\lambda = \ln 2 / T$.

L'équation donnée est une équation différentielle du premier ordre qui peut être facilement résolue en tenant compte des conditions initiales suivantes en tenant compte des conditions initiales : $N(t=0) = 0$

Le nombre de noyaux produits à la fin d'irradiation est donné par la relation suivante :

$$N(t) = \frac{R}{\lambda} (1 - e^{-\lambda t_i}) \quad (\text{II. 11})$$

$$S = (1 - e^{-\lambda t_i}) \quad (\text{II. 12})$$

Est le facteur de saturation

L'activité de saturation A_s est obtenue quand $t_i \gg T_{1/2}$; elle est donnée par la relation suivante :

$$A_s = \frac{m\theta N_a}{M} (\Phi_{epi}I_0 + \Phi_{th}\sigma_{th}), N_0 = \frac{m\theta N_a}{M}$$

L'équation de l'activité d'un radioélément produit après un temps de décroissance t_d est donnée par la relation suivante :

$$A(t) = A_s S D \quad (\text{II. 14})$$

Où :

$$D = e^{-\lambda t_d} \quad (\text{II. 15})$$

t_d : est le temps de décroissance.

Sur la figure 2.2, nous représentons la courbe de saturation de l'activité d'un radioélément produit en fonction du temps d'irradiation :

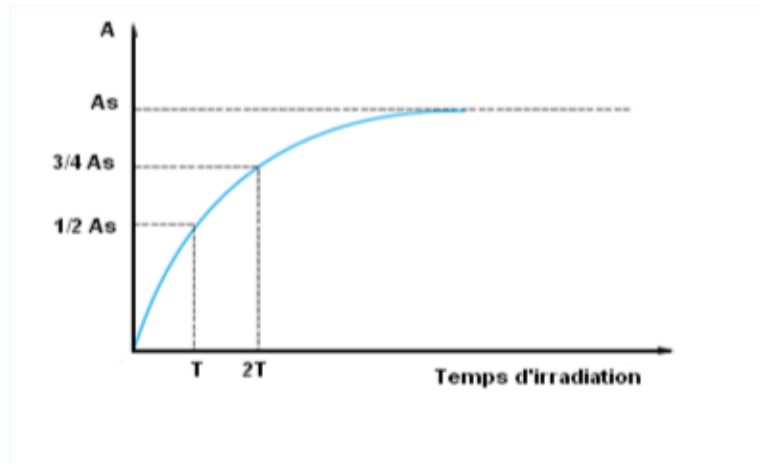


FIGURE II.2: ACCROISSEMENT DE LA RADIOACTIVITE D'UN ELEMENT AU COURS DE L'IRRADIATION.

II.3. Analyse qualitative

Analyse qualitative comprenant l'identification des éléments émetteurs gamma contenus dans l'échantillon analysée. L'identification des éléments radioactifs basés sur, les paramètres suivants :

- 1) l'énergie des rayons gamma émis par le radio-isotope ;
- 2) cycle de radioactivité des éléments radioactifs ;
- 3) Section efficace de production des réactions nucléaires et des éléments radioactifs ;

Souvent, on peut y avoir deux éléments radioactifs ou plus qui émettent des gammas de même énergie, produisent une interférence dans le spectre de l'échantillon irradié.

Ce phénomène engendre une confusion dans l'identification des éléments, ce qui nécessite une correction réelle ces interférence pour pouvoir identifier correctement les éléments composant l'échantillon analysé.

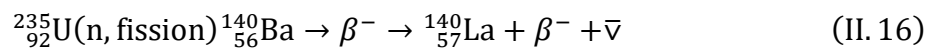
II.3.1. Interférence du premier ordre :

Certains éléments radioactifs peuvent être produits par plusieurs réactions nucléaires qui produisent le même produit final. Par exemple, certains éléments radioactifs sont produits par des réactions de capture de rayonnement de type (n, γ) , qui sont produites par des neutrons thermiques. Une réaction de type (n, p) ou (n, α) utilisant un flux de neutrons rapides produit le même élément radioactif. Ces réactions ont été classées comme réactions interférentes de

premier ordre. Ce type d'interférence peut être corrigé par analyse spectroscopique, en tenant compte de la section efficace de l'élément radioactif produit par les neutrons rapides.

II.3.2. Interférence du second ordre :

L'interférence du second ordre pose un problème sérieux d'analyse si le temps d'irradiation est relativement long sous un flux de neutrons élevé (flux=10⁻¹³ncm⁻²s⁻¹). Le radioélément produit par la réaction de capture de neutrons peut se désintégrer durant l'irradiation en donnant un radioélément qui peut être produit par réaction de capture radiative. Par exemple la fission de l'U-235 donne :



¹⁴⁰₅₇La; Est également produit par la réaction de capture ¹³⁹₅₇La(n, γ) qui surestime la concentration de cet élément dans l'échantillon. Dans le tableau II-5, nous donnons des exemples des réactions d'interférence lors de l'analyse des éléments de terre rares. [11]

TABLEAU II.1 : REACTIONS DE FISSION INTERFERENTES POUR LORS DU DOSAGE DES REES

Elément	Réaction de fission	Période	Rendement
Zr	²³⁵ U(n, f) ⁹⁵ Zr	64.4 jours	6.5
Mo	²³⁵ U(n, f) ⁹⁹ Mo	2.76 jours	6.9
La	²³⁵ U(n, f) ¹⁴⁰ Ba → ¹⁴⁰ La	40.3 heures	6.33
Ce	²³⁵ U(n, f) ¹⁴¹ Ce	32.4 jours	5.78
Nd	²³⁵ U(n, f) ¹⁴⁷ Nd	11.1 jours	2.3
Sm	²³⁵ U(n, f) ¹⁵³ Sm	1.95 jours	0.27

II.4. Analyse quantitative :

Lors des mesures spectrométriques des échantillons analysés, l'intensité N_p du pic photoélectrique mesurée à l'aide d'un détecteur de rayons gamma d'efficacité ε est donnée par l'expression suivante :

$$N_p = A_S S \epsilon \gamma \int_{t_d}^{t_d+t_c} e^{-\lambda t_d} dt_d \tag{II. 17}$$

L'intégration de cette expression en tenant compte des limites d'intégration nous donne l'aire du pic caractéristique de l'élément à doser selon la relation suivante

$$N_p = A_S \epsilon \gamma SDC \tag{II. 18}$$

$$C = \frac{(1 - e^{-\lambda t_c})}{\lambda} \quad (\text{II. 19})$$

C: Est le facteur de comptage, t_c est le temps de comptage de l'échantillon.

La quantité d'un élément dans un échantillon peut être obtenue par trois méthodes : absolue, relative (comparative), semi-relative. [20]

II.4.1 Méthode absolue :

Cette première technique consiste à déterminer la concentration des éléments dans l'échantillon, en tenant compte de tous les paramètres d'irradiation et de mesures ainsi que des grandeurs physiques de l'élément à doser. [11]

La relation entre l'aire nette du pic gamma d'un radioélément détecté et la masse totale de l'élément s'écrit donc :

$$N_p = \frac{m\theta N_A \varepsilon \gamma}{M\lambda} (\Phi_{epi} I_0 + \Phi_{th} \sigma_{th}) (1 - e^{-\lambda t_i}) (e^{-\lambda t_d}) (1 - e^{-\lambda t_c}) \quad (\text{II. 20})$$

La concentration massique de l'élément dans l'échantillon analysé est donc donnée par la relation suivante :

$$m = \frac{M\lambda N_p}{\theta N_A \varepsilon \gamma (\Phi_{epi} I_0 + \Phi_{th} \sigma_{th}) (1 - e^{-\lambda t_i}) (e^{-\lambda t_d}) (1 - e^{-\lambda t_c})} \quad (\text{II. 21})$$

La précision de la mesure dans ce mode dépend donc de la précision des constantes nucléaires, de la connaissance précise de l'efficacité du détecteur, du flux de neutrons, les statistiques de comptage et la géométrie entre la source et le détecteur, Pour la plupart des éléments, les erreurs dans les constantes nucléaires sont inférieures à 5 %. [11]

II.4.2 Méthode relative (comparative) :

Si l'échantillon et l'étalon de référence sont irradiés et mesurés dans les mêmes conditions expérimentales, le rapport entre les surfaces nettes de la raie gamma mesurée du radioélément dans l'échantillon et le standard s'écrit sous la forme suivante :

$$\frac{N_{ech}}{N_{st}} = \frac{m_{ech}(e - \lambda t_d)ech}{m_{st}(e - \lambda t_d)st} \quad (\text{II. 22})$$

Où :

m_{ech}, m_{st} Sont respectivement les masses de l'élément dans l'échantillon et le standard. Cette méthode de dosage a l'avantage d'être facile est plus précise que la méthode absolue, néanmoins la non disponibilité des standards de références de différentes matrices rend l'analyse lourde est coûteux. [11]

II.4.3 Méthode semi-relative :

Une autre voie d'analyse, appelée méthode de la standardisation absolue (k0 méthode) a été développée dans les années 80. Cette méthode est basée sur l'irradiation de l'échantillon avec un moniteur de flux appelé comparateur, ce dernier sert comme un standard de référence pour tous les éléments. Le dosage par cette méthode doit tenir compte des caractéristiques nucléaires des radio-isotopes, les conditions d'irradiation comme la variation des sections efficaces en fonction de l'énergie des neutrons et l'efficacité de détection à différentes distances mesurées.

La concentration de l'élément analysé, dans un échantillon irradié dans les mêmes conditions que le comparateur, est donnée par la relation suivante :

$$c_{ech} = \frac{N_{ech}}{N_{m_0}} \frac{1}{k_0} \frac{(f + Q_{m_0} \alpha) \varepsilon m_0}{(f + Q_{ech} \alpha) \varepsilon_{ech}} \quad (II.23)$$

Où :

f : Rapport du flux de neutrons thermiques au flux de neutrons épi thermiques ;

Q : Rapport de l'intégrale de résonance (qui intègre les variations de la section efficace en fonction des débits et des énergies des neutrons épi thermiques et rapides) à la section efficace pour les neutrons thermiques ;

α : Facteur qui traduit l'écart à la loi de la variation de flux épi thermique en fonction de l'inverse de l'énergie ;

ε : Efficacité du détecteur à l'énergie gamma considérée ;

K_0 : Facteur de proportionnalité entre les propriétés de l'élément et le comparateur.

L'or, le cobalt, le zirconium et le zinc sont les éléments les plus souvent utilisés comme comparateur. Si elle est bien maîtrisée, la méthode k0 conduit pratiquement à la même précision que celle par la méthode relative. De plus, la méthode permet de doser tous les éléments

défectés. La méthode k_0 a de plus en plus une tendance à se répandre dans les laboratoires qui pratiquent l'analyse par activation neutronique routinière. Elle n'est pas encore totalement admise pour les analyses de certification.

II.5. Limite de la technique :

La sensibilité de détection de la technique INAA est basée sur le rapport signal sur bruit obtenu dans les spectres. Les régions de pic d'absorption dans les spectres gamma sélectifs jouent avec une certaine confiance un rôle important dans l'identification des signaux utiles. La limite de détection est affectées par des conditions d'irradiation et de comptage : (la quantité de l'échantillon irradié, le flux de neutron, temps de mesure, la section efficace du neutron, l'efficacité du détecteur, l'abondance isotopique, la demi de vie). Le seuil de détection est généralement donné par la formule :

$$DL = 2.71 + 4.65\sqrt{B} \quad (\text{II. 24})$$

Où :

DL : Limite de détection ;

B : Comptage du bruit de fond sous la région du pic d'absorption totale de l'élément d'intérêt.

II.6. Domaines d'application de la technique NAA :

Nous donnons dans ce qui suit les applications les plus courantes :

1) Environnement :

L'analyse par activation est utilisée pour le dosage des poussières atmosphérique retenues par des filtres (Dams and al, 1970) sur les mousses ou les lichens.

Pour l'analyse des filtres, elle est en compétition avec les méthodes de fluorescence X et de PIXE mais la NAA présente l'avantage d'avoir une sensibilité supérieure.

2) Domaine nucléaire :

Dans ce domaine, les analyses suivantes sont effectuées de façon routinière :

- Analyse de la pureté du graphite utilisé comme modérateur dans les réacteurs (pureté exigée : 99,999%).

- analyse de la pureté de la capsule en aluminium utilisé pour activer les échantillons dont les éléments à doser possèdent une longue période (pureté exigée 99,99%).

3) Domaine biologique et médical :

Dans ces domaines, la NAA a donné lieu à une multitude d'application in vitro et quelque fois in vivo. De très nombreux éléments ont été ainsi dosés dans le sang, l'urine et la plupart des tissu. La NAA est l'une des méthodes les plus sensibles pour les dosages de traces de certains d'entre eux, tel le sélénium et le vanadium.

II.7. Caractéristiques de la INAA

Avantage :

- Haute sensibilité (entre 10^{-13} à 10^{-6} g),
- Grande précision pouvant atteindre 5%,
- Propreté : c'est une méthode sans pollution chimique,
- Elle permet d'analyser un grand nombre d'éléments,
- Non destructive,
- Sélective (elle ne tient pas compte de la forme chimique de l'élément).

Inconvénients :

- Le cycle d'analyse est parfois très long,
- L'installation et les équipements coûtent cher. [35]

II.8. Sources d'erreur

Plusieurs sources d'erreurs dans la technique d'analyse par activation neutronique peuvent affecter la sensibilité et détériorer la précision tels que :

- L'échantillon : masse homogénéité
- L'irradiation : variations de flux neutronique, temps du transport par système pneumatique.
- Le comptage : facteur géométrique, dérive électronique, corrections de temps mort, erreur statistique de comptage. [11]

Chapitre III : Matériels et méthodes

Ce chapitre est consacré aux matériels et méthodes utilisés pour la préparation, l'irradiation et l'analyse des éléments de moyennes et longues périodes par la technique d'analyse d'Activation Neutronique Instrumentale.

Les outils nécessaires utilisés et les procédures expérimentales suivies à la réalisation de ce travail tels que la préparation des échantillons et la méthode de calibration de la chaîne de mesure sont exposés dans ce chapitre.

III.1. Gisements de phosphate de Djebel-Onk

III.1.1. Situation géographique du secteur d'étude

Tébessa fait partie de la région de Namamsha et se situe dans la partie orientale de l'Algérie. Elle est reliée à la frontière avec la Tunisie. Cette zone est limitée au nord par la wilaya de souk Ahras, la wilaya d'El oued au sud et les wilayas de Khenchla et d'Oum El Bouaghi à l'ouest.

III.1.2. Djebel-Onk

Djebel-Onk est situé au sud-ouest de Tébessa, à 80 km et à 20 km de la frontière Algéro-Tunisienne, sur la route reliant Tébessa à El-Oued, il constitue la limite géographique naturelle entre les hauts-plateaux constantinois et le domaine saharien. Djebel-Onk ressemble à un massif de calcaire d'environ 20 km de long et atteint un sommet de 1198 m sur le montage de Tarfaya. Cette région présente plusieurs indices, nous nous intéressons par le gisement de Djebel Onk nord ce gisement est situé à 6 km au nord du centre minier de Djemi Djema. Il présente les meilleures ressources en phosphates dans tout le bassin phosphaté de Djebel Onk

Gisement de bled Hadba : situé à 14 km au sud-Est des gisements du flanc de Djebel Onk (Djemi Djema et Kef Es-Snoun) et a 6 km de la frontière Algéro- Tunisienne [36] (Fig. III.1).

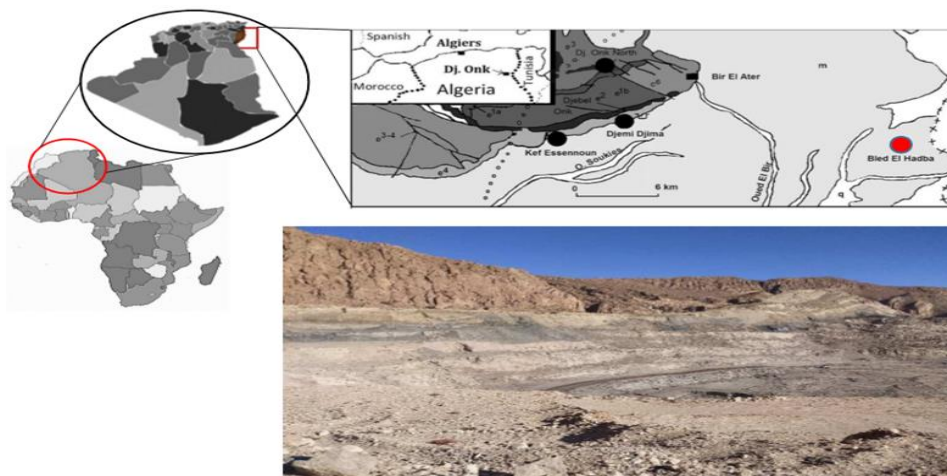


Figure III.1 : cadre géologique de la mine à ciel ouvert de bled el Hadba. [37]

Le gisement de Bled El Hadba est composé de trois couches principales dont l'épaisseur moyenne est la suivante :

- Une couche inférieure (basale) de phosphate de 6 m de profondeur. Pauvre en pentoxyde de phosphore (P₂O₅) et très dolomitique ;
- Une couche principale de phosphate de 16 m. qui est riche en P₂O₅ et peu dolomitique ;
- Couche supérieure de phosphate très dolomitique de 7 m d'épaisseur. Qui est pauvre en P₂O₅.

Les faciès sont généralement beiges à bruns et gris foncé à noirs à la base de la couche. Les variations de couleurs sont liées à la teneur en matière organique [38].

III.2. Techniques d'échantillonnage

III.2.1. Echantillonnage

Un ensemble de 03 échantillons a été prélevé dans différentes couches géologiques du gisement de Bled Hadba :

BEH04/21 : Calcaire phosphaté de la partie principale

BEH07/21 : Calcaire phosphaté de la couche sommitale

BEH15/21 : Calcaire phosphaté de la couche basale

Les échantillons sont placés dans des sacs en plastique étiquetés et transférés au laboratoire pour préparation et analyse.

III.2.2. Préparation et conditionnement des échantillons

Après l'échantillonnage, les 03 échantillons de roche de phosphate les processus de concassage, de quartage, de mélange et de broyage ont été effectués au niveau de l'atelier de prétraitement, avant d'être transportés vers laboratoire de CRNA.



FIGURE III.2 : MACHINE DE CONCASSAGE, BROYAGE ET TAMISAGE AU NIVEAU DE L'ATELIER.

Le matériel utilisé dans la préparation des échantillons est présenté dans la Figure (III.3)



FIGURE III.3 : LE MATERIEL UTILISE DANS LA PREPARATION.

Après homogénéisation, une quantité de 80 mg de chaque échantillon a été conditionnée et encapsulée avec un standard de référence dans des enveloppes en aluminium de pureté nucléaire 99.9999%. Le choix des enveloppes en aluminium est dû principalement à la faible section efficace d'absorption des neutrons (0.23 barn), et la période radioactive de l'aluminium-28 produit par la réaction $^{27}\text{Al} (n, \gamma) ^{28}\text{Al}$ lors d'irradiation de la capsule (Figure III.4)



FIGURE III.4 : REMPLISSAGE D'ÉCHANTILLON DANS UNE ENVELOPPE EN ALUMINIUM APRES EN CAPSULE.

III.2.3. Irradiation

La capsule contenant les échantillons préparés et les étalons sont irradiés dans le canal du réacteur du centre de recherche de Draria nous résumons les conditions d'irradiation dans le tableau suivant.

TABLEAU III.1: FLUX NEUTRONIQUES DE L'IRRADIATION DE LA CAPSULE [11]

Flux neutroniques	Valeurs ($n\text{ cm}^{-2}\text{ s}^{-1}$)
Temps d'irradiation	4 heures
ϕ_{th}	$2,31\ 10^{13} \pm 1.16\ 10^{12}\ \text{neutrons cm}^{-2}\text{ s}^{-1}$
$\phi_{\text{épi}}$	$8,77\ 10^{11} \pm 4.36\ 10^{10}$

Après l'irradiation nous avons divisé notre travail en deux parties :

1. Pour les moyennes périodes ($T_{1/2}$ de quelques heures a quelque jour).
2. Pour les longues périodes ($T_{1/2}$ supérieure à une semaine).

III.3. Analyse par spectrométrie Gamma

III.3.1. Instrumentation

La chaîne de de mesures utilisée est composée d'un détecteur à semi-conducteur Ge(HP) de géométrie coaxial de type p, GX-3519, muni d'une fenêtre en carbone époxy, fabriqué par Canberra (figure III.5).



FIGURE III.5: CHAÎNE DE SPECTROMÉTRIE GAMMA AVEC LE DÉTECTEUR À SEMI-CONDUCTEUR GE (HP).

Le détecteur a une efficacité relative de 35%, et une résolution de 1,8 (keV) pour la raie gamma d'énergie 1332.5 keV du ^{60}Co . Le détecteur est entouré de blindages en plomb de 100 mm d'épaisseur (Canberra 747 Series Lead Shield), avec des revêtements de 1 (mm) d'étain et 1,6 (mm) de cuivre pour réduire la contribution des rayons X du plomb au spectre, le blindage garantit l'obtention d'un bruit de fond faible nécessaire aux mesures de la radioactivité environnementale (Canberra Industries, 2008b). Le détecteur est connecté au DSA-XL Canberra (Digital Signal Analyzer) qui assure toutes les tâches électroniques conventionnelles associées, comme l'amplificateur, l'analyseur multicanal et l'alimentation haute tension. De manière à améliorer la résolution du détecteur, celui-ci doit être refroidi, ce qui diminue l'agitation thermique des porteurs de charges. Le détecteur est maintenu sous la température de l'azote liquide. Tous les équipements sont gérés par le logiciel Genie2000 (Canberra industries/Mirion Technologies, 2000). [11]

III.3.2. Etalonnage de la chaîne de détection

II.3.2.1. Etalonnage en énergie

La première étape du travail avant toutes mesures, est la calibration en énergie de la chaîne de spectrométrie gamma, afin de permettre une identification correcte des radioéléments présents dans les échantillons de phosphates. L'étalonnage en énergie consiste à attribuer une énergie aux canaux de l'analyseur multicanaux, c'est à dire l'établissement d'une relation entre l'énergie et le numéro du canal ; pour cela nous avons utilisé une source radioactive ponctuelle dont les énergies gammas sont bien connues.

La calibration en énergie, a été effectuée à l'aide d'une source d'étalonnage d' ^{152}Eu de géométrie ponctuelle fabriquée en date du 27/10/1992 avec une activité initiale de 62.61 KBq. Le spectre de la source a été collecté durant un temps de 1000 secondes, le tableau (III.3), présente les valeurs des énergies et les canaux.

TABLEAU III. 2 : LES VALEURS DES ENERGIES ET DES CANAUX D'EUROPIUM-152.

Energie (Kev)	Canal
121,78	330
244,66	661
344,31	930
778,87	2103
964,01	2603
1120,04	3003
1408,02	3803

La droite d'étalonnage en énergie, est obtenue par la méthode de moindre carré en utilisant le logiciel Génie 2000, elle est présentée sur la Figure III.6

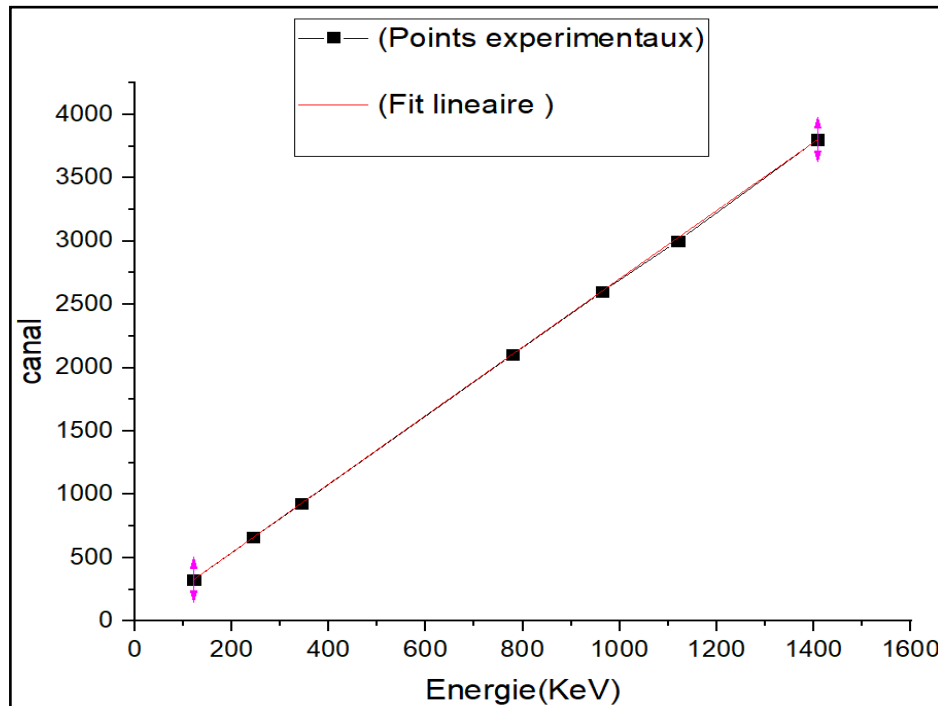


FIGURE III.6 : DROITE D'ETALONNAGE DE LA SOURCE D'EUROPIUM-152.

L'équation du premier ordre de l'étalonnage en l'énergie peut décrire correctement les données. On aura ainsi :

$$E = 0.3703C - 0.1505$$

III.3.2.2 Etalonnage en efficacité

L'efficacité absolue du détecteur est définie par le rapport du nombre de photons détectés sur le nombre de photons émis par la source en fonction de temps. Cette définition est traduite par la relation suivante :

$$\varepsilon = \frac{N/tc}{A.\gamma} \quad (\text{III. 1})$$

Où :

ε : Efficacité du détecteur ;

N : Intensité du pic d'absorption totale ;

A : Activité de la source au temps de mesure ;

γ : Rapport d'embranchement ;

tc : Temps de collection.

L'activité au temps de collection est corrigée par le temps de décroissance de la source t_d depuis la date de fabrication.

L'activité au moment de mesure est donnée par la relation suivante :

$$A = A_0 e^{-\frac{\ln 2}{T_{1/2}} t_d} \quad (III.2)$$

Où :

A_0 : Activité initiale de la source donnée par le fabricant ;

$T_{1/2}$: Période de la source d'Europium-152.

L'expression précédente de l'efficacité du détecteur devient :

$$\varepsilon = \frac{N}{A_0 * e^{-\frac{\ln 2}{T_{1/2}} t_d} * t_c * \gamma} \quad (III.3)$$

L'erreur de l'efficacité de mesure est calculée selon la loi de propagation d'erreur. Elle est liée à l'incertitude des paramètres suivants : La surface N du pic d'absorption totale, l'activité A de la source, l'intensité gamma et le temps de comptage t_c .

L'incertitude sur la mesure de l'efficacité du détecteur est donnée par la relation suivante :

$$\frac{\Delta \varepsilon}{\varepsilon} = \left[\left(\frac{\Delta N}{N} \right)^2 + \left(\frac{\Delta A}{A} \right)^2 + \left(\frac{\Delta \gamma}{\gamma} \right)^2 + \left(\frac{\Delta t_c}{t_c} \right)^2 \right]^{\frac{1}{2}} \quad (III.4)$$

Avec :

ΔN : Erreur sur l'intensité du pic d'absorption

ΔA : Erreur sur l'activité de la source ;

$\Delta \gamma$: Erreur sur le rapport d'embranchement ;

Δt_c : Erreur sur le temps de collection (négligeable).

Deux campagnes de mesures de l'efficacité de la chaîne de détection. En utilisant une source d'europium-152 d'activité connue, ont été réalisées.

La première consiste à déterminer l'efficacité du détecteur à une distance de 17 cm, durant un temps de comptage de 2000 secondes. Cette distance est nécessaire pour la détermination des concentrations des éléments de moyennes périodes.

La deuxième mesure de l'efficacité, a été faite sur une distance de 8.5 cm. Cette mesure est utilisée pour le dosage des éléments de longues périodes.

Le choix de la source de l'Europium-152 pour les mesures de l'efficacité a été justifié par sa large gamme d'énergie allant de 120 keV à 1400 keV

Sur le tableau suivant, nous donnons les valeurs de l'efficacité du détecteur pour une distance source-détecteur égale 17 cm et 8.5 cm:

TABLEAU III. 3 : L'EFFICACITE DU DETECTEUR POUR UNE DISTANCE SOURCE-DETECTEUR POUR 17 CM ET 8.5 CM.

Energie (keV)	Efficacité pour 8.5 cm 10^{-2}	Efficacité pour 17 cm 10^{-2}
121.78	$1,71 \pm 0,06$	$0,53 \pm 0,02$
344.31	$0,86 \pm 0,07$	$0,27 \pm 0,01$
411.11	$0,79 \pm 0,05$	$0,23 \pm 0,12$
778.72	$0,42 \pm 0,32$	$0,14 \pm 0,01$
964.01	$0,35 \pm 0,25$	$0,13 \pm 0,01$
1085.79	$0,32 \pm 0,51$	$0,11 \pm 0,01$
1112.04	$0,31 \pm 0,29$	$0,11 \pm 0,01$
1408.02	$0,25 \pm 0,13$	$0,09 \pm 0,01$

Par la suite, ces valeurs afin d'obtenir une courbe de variation de l'efficacité en fonction de l'énergie (voir figure III.7)

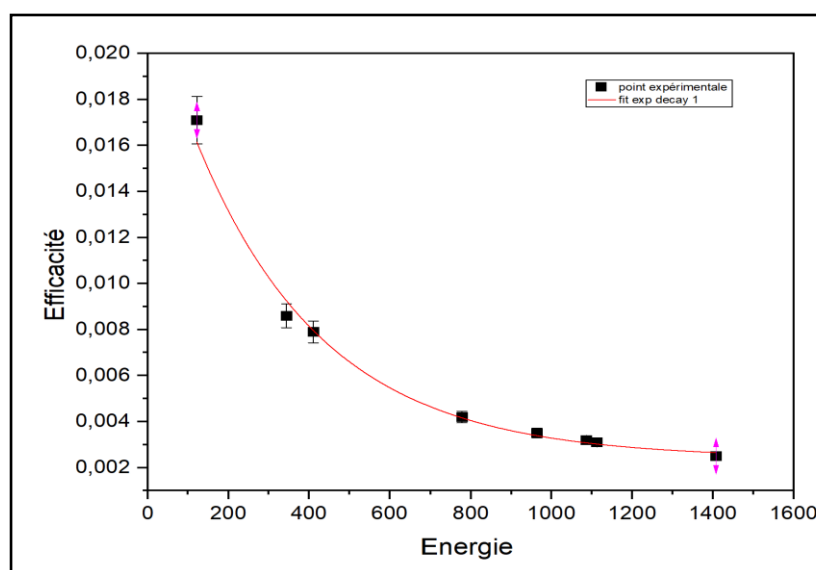
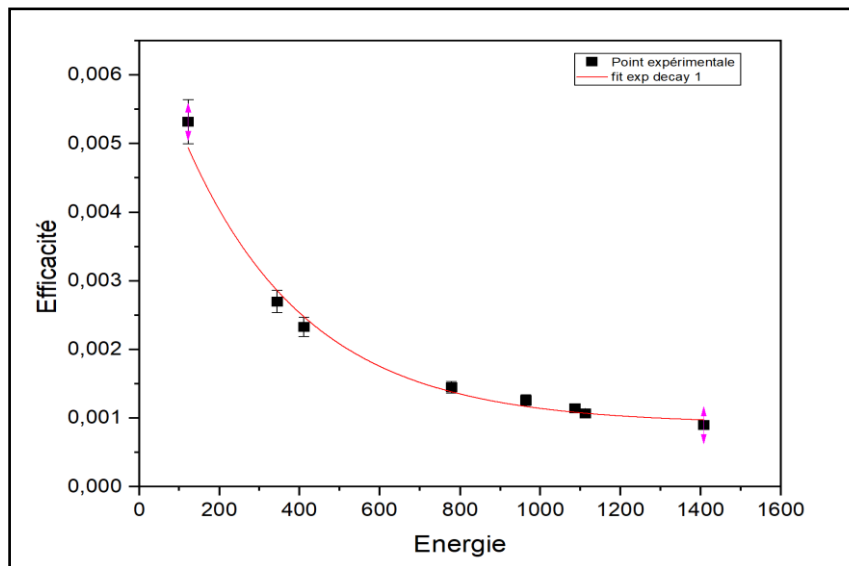


FIGURE III.7 LA COURBE D'EFFICACITE A UNE DISTANCE SOURCE-DETECTEUR DE 8.5CM.**FIGURE III.8** : LA COURBE D'EFFICACITE A UNE DISTANCE SOURCE-DETECTEUR DE 17CM.

III.4.Analyse qualitative

Pour l'identification des éléments dans l'échantillon, nous nous sommes basé sur trois paramètres physiques :

- L'énergie de rayonnements gammas émis par le radioélément ;
- La période radioactive de radio-isotope ;
- La réaction nucléaire induite pour la production du radioélément détecté ces paramètres ont permis d'éliminer les interférences de premier ordre. [25]

Pour les mesures des éléments de longues périodes, nous avons fixé un temps de mesures de 5000 secondes après un temps de décroissance de 30 jours. Les mesures ont été effectuées pour une distance de 8.5 cm du détecteur. Le temps mort enregistré pour toutes les mesures était inférieur à 5%, le spectre de cette mesure sur la figure III.9

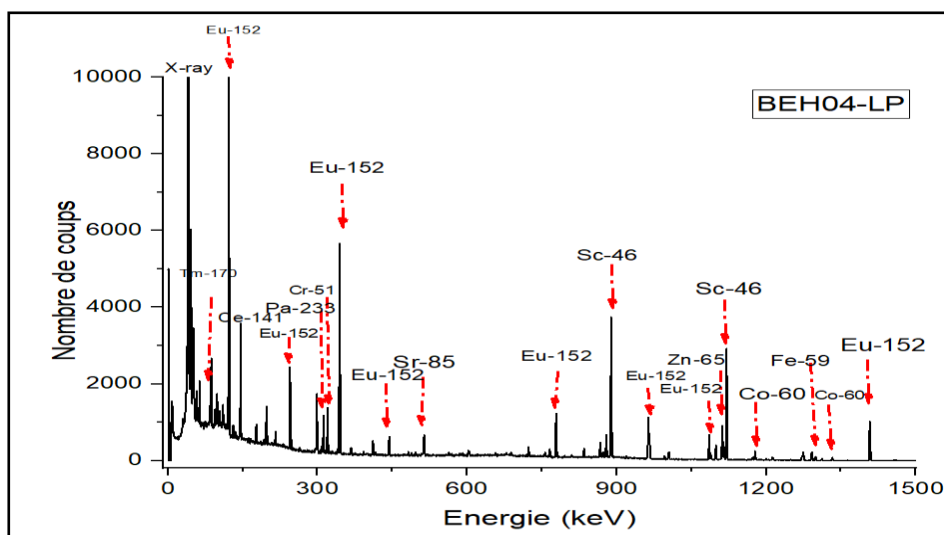


FIGURE III.9: SPECTRE INAA D’UN ECHANTILLON DU PHOSPHATE MESURE DURANT 5000 SECONDES APRES 30 JOURS DE DECROISSANCE POUR LE DOSAGE DES ELEMENTS DE LONGUES PERIODES.

Nous donnons un exemple d’un spectre d’échantillon du phosphate de Bled El Hadba de couche mesuré durant 10000 secondes aussi dans la compagnie de mesures des radioéléments des moyennes périodes après de 8 jours de décroissance à distance de 17cm du détecteur sur la figure III.10

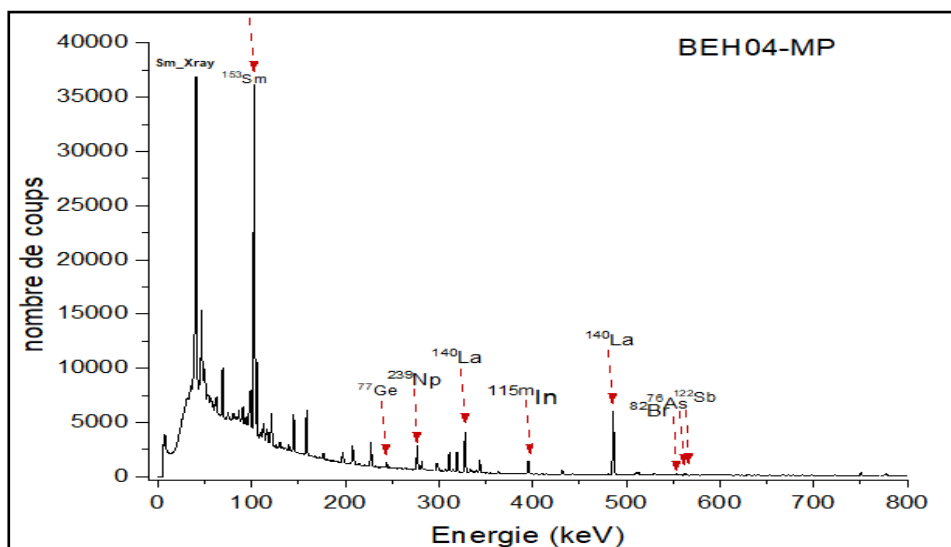


FIGURE III.10 : SPECTRE D’UN ECHANTILLON DU PHOSPHATE MESURE APRES 8 JOURS DE DECROISSANCE

Les raies d’énergie utilisées pour le dosage d’éléments de moyenne et longue période sont portées dans le tableau (III. 5)

vingt-cinq éléments ont été déterminés lors de cette analyse par la technique nucléaire INAA sont données par le tableau III.5

TABLEAU III. 4 : CARACTERISTIQUES DES ELEMENTS DE MOYENNE ET DE LONGUES PERIODES.

Eléments	Radioéléments	Facteurs d'embranchements (%)	Energies des raies gamma (keV)	Périodes	Réactions
Eléments de Moyennes périodes					
AS	As-76	559,1	559,1	26,3h	$^{75}_{33}\text{As}(n,\gamma)^{76}_{33}\text{As}$
Mo	Mo-99	777,921	777,921	65,924h	$^{98}_{42}\text{Mo}(n,\gamma)^{99}_{42}\text{Mo}$
Sb	Sb-122	564	564	65,28 h	$^{121}_{51}\text{Sb}(n,\gamma)^{122}_{51}\text{Sb}$
U	Np-239	277,7	277,7	56,4 h	$^{238}_{92}\text{U}(n,\gamma\beta)^{239}_{93}\text{Np}$
Ge	Ge-77	264,4	264,4	11,6 h	$^{76}_{32}\text{Ge}(n,\gamma)^{77}_{32}\text{Ge}$
La	La-140	1596,2	1596,2	40,23 h	$^{139}_{57}\text{La}(n,\gamma)^{140}_{57}\text{La}$
La	La-141	328,8	328,8	40,23 h	$^{139}_{57}\text{La}(n,\gamma)^{140}_{57}\text{La}$
La	La-142	487,021	487	40,23 h	$^{139}_{57}\text{La}(n,\gamma)^{140}_{57}\text{La}$
Na	Na-24	1368,6	1368,6	14,997 h	$^{23}_{11}\text{Na}(n,\gamma)^{24}_{11}\text{Na}$
Na	Na-24	2754,1	2754,1	14,997 h	$^{23}_{11}\text{Na}(n,\gamma)^{24}_{11}\text{Na}$
Cd	In-115m	45,9	336,3	53,5	$^{115}_{48}\text{Cd}(n,\gamma\beta)^{116}_{49}\text{In}$
Pd	Pd-109	88	88	13,59 h	$^{108}_{46}\text{Pd}(n,\gamma)^{109}_{46}\text{Pd}$
Sm	Sm-153	103,2	103,2	46,284 h	$^{152}_{62}\text{Sm}(n,\gamma)^{153}_{62}\text{Sm}$
Eléments de longues périodes					
Ce	Ce-141	48,4	146	32,51 J	$^{140}_{58}\text{Ce}(n,\gamma)^{141}_{58}\text{Ce}$
Cr	Cr-51	9,91	320	27,7 J	$^{50}_{24}\text{Cr}(n,\gamma)^{51}_{24}\text{Cr}$
Co	Co-60	99,85	1173	1925,28 J	$^{59}_{27}\text{Co}(n,\gamma)^{60}_{27}\text{Co}$
Co	Co-60	99,98	1332	1925,28 J	$^{59}_{27}\text{Co}(n,\gamma)^{60}_{27}\text{Co}$
Eu	Eu-152	20,87	1408,2	13,51 ans	$^{151}_{63}\text{Eu}(n,\gamma)^{152}_{63}\text{Eu}$
Fe	Fe-59	56,5	1099,16	44,49 J	$^{58}_{26}\text{Fe}(n,\gamma)^{59}_{26}\text{Fe}$
Fe	Fe-59	43,2	1291,56	44,49 J	$^{58}_{26}\text{Fe}(n,\gamma)^{59}_{26}\text{Fe}$
HF	HF-175	84	344,37	70 J	$^{180}_{71}\text{HF}(n,\gamma)^{181}_{71}\text{HF}$
HF	HF-181	80,5	482	42,39 J	$^{180}_{71}\text{HF}(n,\gamma)^{181}_{71}\text{HF}$
Nd	Nd-147	28,9	91	11,03 J	$^{146}_{60}\text{Nd}(n,\gamma)^{147}_{60}\text{Nd}$
Nd	Nd-147	13,11	531	11,03 j	$^{146}_{60}\text{Nd}(n,\gamma)^{147}_{60}\text{Nd}$
Sb	Sb-124	47,57	1691,49	60,2 J	$^{123}_{51}\text{Sb}(n,\gamma)^{124}_{51}\text{Sb}$
SC	Sc-46	99,984	889	83,79 J	$^{45}_{21}\text{Sc}(n,\gamma)^{46}_{21}\text{Sc}$
SC	Sc-46	99,987	1121	83,79 J	$^{45}_{21}\text{Sc}(n,\gamma)^{46}_{21}\text{Sc}$
Sr	Sr-85	96	514	64,84 J	$^{84}_{38}\text{Sr}(n,\gamma)^{85}_{38}\text{Sr}$
Tb	Tb-160	26,1	298,69	72,3 J	$^{159}_{63}\text{Tb}(n,\gamma)^{160}_{63}\text{Tb}$
Tb	Tb-160	30,1	879	72,3 J	$^{159}_{63}\text{Tb}(n,\gamma)^{160}_{63}\text{Tb}$
Th	Pa-233	38,2	312	26,97 J	$^{232}_{90}\text{Th}(n,\gamma)^{233}_{91}\text{Pa}$
Yb	Yb-175	13,2	396	4,18 J	$^{174}_{80}\text{Yb}(n,\gamma)^{175}_{80}\text{Yb}$
Zn	Zn-65	50,04	1116	243,93 J	$^{64}_{30}\text{Zn}(n,\gamma)^{65}_{30}\text{Zn}$

III.5 Analyse quantitative

Pour déterminer les concentrations des éléments de traces dans les échantillons des phosphates nous avons utilisé les deux méthodes : la méthode relative et la méthode absolue.

III.5.1 La méthode absolue

La méthode absolue est basée sur l'équation fondamentale de l'analyse par activation neutronique, elle est donnée par l'expression suivante:

$$m = \frac{\lambda MN}{\theta N_a \varepsilon \gamma (\Phi_{epi} * I_{epi} + \Phi_{th} * \sigma_{th}) (1 - e^{-\lambda t_i})(e^{-\lambda t_d})(1 - e^{-\lambda t_m})} \quad (III.5)$$

Ou :

m : C'est la concentration de l'élément donnée par la méthode absolue.

Les autres paramètres sont donnés par l'équation dans la page 19

Calcul d'erreur :

L'erreur sur la masse calculée par la voie absolue :

$$\frac{\Delta m}{m} = \sqrt{\left(\frac{\Delta \varepsilon}{\varepsilon}\right)^2 + \left(\frac{\Delta N_p}{N_p}\right)^2 + \left(\frac{\Delta m_e}{m_e}\right)^2 + \left(\frac{\Delta \varphi}{\varphi}\right)^2 + \left(\frac{\Delta \sigma}{\sigma}\right)^2} \quad (III.6)$$

III.5.2 La méthode relative

La méthode relative est la voie de référence la plus utilisée en analyse par activation neutronique pour quantifier les éléments composant l'échantillon avec une grande précision (déviations standard inférieure à 5%). Cette méthode est basée sur l'irradiation de l'échantillon et le standard dans les mêmes conditions, et de préférence les compter avec le même temps de mesure. Pour tenir compte de cette différence de décroissance depuis l'irradiation, les activités sont ramenées à la date de l'irradiation. L'expression de la concentration est introduite sous forme du rapport des surfaces des pics des moniteurs, accompagnant séparément l'échantillon et le standard, dans la formule suivante :

$$m_e^x = \frac{(e^{-\lambda t_d})_{ech} * N_e}{(e^{-\lambda t_d})_{st} * N_{st}} m_e^{st} \quad (III.7)$$

C_e^s : Concentration de l'élément dans le standard ;

N_e Et N_{st} : sont respectivement les surfaces des pics d'absorption du radioélément dans l'échantillon et le standard.

Calcul d'erreur :

L'erreur sur la concentration calculée par la voie comparative :

$$\frac{\Delta C_e}{C_e} = \sqrt{\left(\frac{\Delta C_s}{C_s}\right)^2 + \left(\frac{\Delta N_e}{N_e}\right)^2 + \left(\frac{\Delta N_s}{N_s}\right)^2} \quad (III.8)$$

III.7 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons traité de la partie expérimentale qui est menée par l'application de la méthode d'analyse par activation neutronique instrumentale sur les échantillons de phosphates en utilisant les voies des moyennes et longues périodes. La méthode consiste à identifier et quantifier les teneurs des éléments mineurs et de traces pour qu'ils soient activés dans le réacteur nucléaire de Draria. Le but est le dosage de ces éléments et pour la contribution à l'étude de leurs distribution dans le gisement phosphaté de Djebel Onk.

Les rayonnements gamma émis par les radioéléments sont mesurés par le détecteur à semi-conducteur Ge(HP) de géométrie coaxial de type p, GX-3519, muni d'une fenêtre en carbone époxy, Le détecteur a une efficacité relative de 35%, et une résolution de 1,8 (keV) pour la raie gamma d'énergie 1332.5 keV du ^{60}Co .

La Première étape est, La calibration en énergie qui consiste à déterminer la droite de l'énergie en fonction du numéro du canal, a été effectuée à l'aide d'une source europium d' ^{152}Eu .

La deuxième étape l'étalonnage en efficacité. Pour une analyse quantitative précise il faut procéder à une calibration en efficacité de la chaîne de détection utilisée. Cette étape a été réalisée à l'aide d'une source l' ^{152}Eu , d'une activité connue et des énergies gamma bien connues.

La troisième étape l'analyse qualitative. Les raies d'énergies utilisées pour le dosage des éléments de moyenne et longue période sont portées dans le tableau (III. 5), vingt-cinq éléments ont été déterminés lors de cette analyse par la technique d'activation neutronique instrumentale.

Chapitre IV : Résultats et discussion

Introduction

Dans ce chapitre, nous allons présenter les résultats de mesures des concentrations des radionucléides présents dans les 3 échantillons de Phosphate en utilisant les voies des moyennes périodes et des longues périodes pour la contribution à l'étude de leurs distributions dans le gisements phosphaté de Bled El Hadba.

IV.1. Analyse des échantillons par INNA

IV.1.1 Utilisation de la méthode absolue

L'utilisation de la méthode absolue est basée sur l'application de l'équation fondamentale de l'analyse par activation neutronique, Les résultats de la voie absolue sont donnés par les tableaux suivants :

TABLEAU IV .1 : CONCENTRATIONS DES ELEMENTS PRESENTS DANS LES TROIS ECHANTILLONS DE PHOSPHATES PAR LA METHODE ABSOLUE POUR LES LONGUES PERIODES.

Eléments	Isotopes	Energies (keV)	T1/2	Concentrations en ppm		
				Ech BEH04 LP	Ech BEH07 LP	Ech BEH15 LP
Ce	Ce-141	146	32,51 J	201,724±30.150	173,438±24.495	314,910±46.99
Cr	Cr-51	320	27,7 J	216,263±31.165	179,974±24.897	275,119±40.282
Co	Co-60	1173	1925,28 J	0,742±0.123	0,811±0.124	0,665±0.119
Co	Co-60	1332	1925,28 J	0,680±0.119	0,718±0.119	0,725±0.137
Eu	Eu-152	1408	13,51 ans	3,257±0.463	2,398±0.327	4,819±0.696
Fe	Fe-59	1099,16	44,49 J	6138,035±907.654	5324,361±741.321	5626,950±837.992
Fe	Fe-59	1291,56	44,49 J	5758,157±829.957	5377,309±741.553	5323,646±780.866
Hf	Hf-181	482	42,39 J	0,889±0.401	0,319±0.412	1,449±0.716
Sb	Sb-124	1691,49	60,2 J	0,970±0.1623	0,995±0.156	1,499±0.241
Sc	Sc-46	1121	83,79 J	41533.33±5963.417	39956.11±5736.957	40067±5752.879
Sr	Sr-85	514	64,84 J	1604,091±314.349	1293,614±268.194	2664,709±532.992
Tb	Tb-160	879	72,3 J	3,924±0.591	2,827±0.398	5,646±0.829
Th	Pa-233	312	26,97 J	13,789±1.967	9,935±1.353	20,402±2.941
Zn	Zn-65	1116	243,93 J	86,353±17.176	88,274±17.246	137,506±23.731

Pour le dosage du scandium, nous avons utilisé la réaction $^{45}\text{Sc}(n, \gamma)^{46}\text{Sc}$ en tenant compte de la correction de contribution due à l'interférence de scandium-47

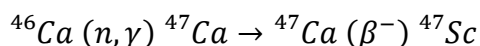
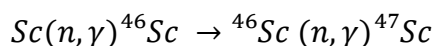


TABLEAU IV .2 : CONCENTRATION DES ELEMENTS PRESENTS DANS LES TROIS ECHANTILLONS DE PHOSPHATES PAR LA METHODE ABSOLUE POUR LES MOYENNES PERIODES.

Éléments	Isotopes	Energie (keV)	T1/2 (h)	Concentration des éléments en (ppm)		
				Couche principale	couche sommitale	Couche basale
As	As-76	559,1	26,3	7,884±0,334	8,482±0,1484	/
Sb	Sb-122	564	65,28	13,621±0,193	11,201±0,1561	12,201±0,170
U	Np-239	277,7	56,4	42,073 ± 1,439	79,411±0,8237	58,732±0,613
Mo	Mo-99	777,921	11,6	34,477±1,220	34,323±0,3995	28,418±0,374
La	La-140	328,8	40,23	113,307±38,655	90,076±0,9324	168,145±1,741
Na	Na-24	1368,6	14,997	4505,553±1744,673	39531,119±592,4779	7310,938±109,222
Br	Br-82	554,3	35,3	5,851±0,237	4,085±0,0953	/

- Les résultats de la voie absolue pour les moyennes et longues périodes sont donnés par le tableau IV.1.2; nous avons constaté que les concentrations de tous les éléments variaient modérément entre les différents échantillons.
- La concentration est déterminée si on connaît le flux de neutrons, la section efficace et l'efficacité du détecteur, en plus des paramètres physiques. Pour la méthode absolue, l'erreur commise sur l'efficacité de détection et le flux de neutrons de l'échantillon sont les principales sources d'erreurs, d'autres paramètres secondaires peuvent contribuer à l'augmentation de l'erreur sur la concentration, il s'agit de l'auto absorption des neutrons, l'auto-atténuation des gammas dans la matrice l'échantillon et d'autres sources d'erreurs lié à la préparation des échantillons, l'irradiation et les mesures spectrométriques. L'addition de ces erreurs peut atteindre une valeur de 20% dans certains cas lors de l'utilisation de la méthode absolue.

IV.1.2. Dosage par la méthode relative

La méthode relative est la voie de référence la plus utilisée en analyse par activation neutronique pour quantifier les éléments composant l'échantillon avec une grande précision (déviatoin standard inférieure à 5%), nous avons dosé la plupart des éléments qu'on a trouvés dans le standard (Kef-noir), ces derniers résultats sont présentés sur le tableau suivant :

TABLEAU IV.3: CONCENTRATIONS DES ELEMENTS PRESENTS DANS LES TROIS ECHANTILLONS DE PHOSPHATES PAR LA METHODE RELATIVE.

Eléments	Isotopes	Energies (keV)	Concentration relative (ppm)			
			Ech BEH04	Ech BEH07	Ech BEH15	Standard
Zn	Zn-65	1115.5	67,295±3,365	69,152±3,457	102,740±5,137	150±7.50
Cr	Cr-51	320.20	126.600±6.33	101.235 ±5.062	147.600 ±7.38	135±6.75
Sr	Sr-85	514.04	1005.333±50.267	802.048±40.102	1576±78.8	1400±70
Co	Co-60	1332.63	3,715±0,186	3,966±0,198	3,816±0,191	<5±0.250
Sb	Sb-122	121	12,840±0,016	14.904±0,017	19,573±0,018	12.5±0.625
As	As-76	559,1	10,577±0,013	11.170±0,014	/	7.5±0.375
Mo	Mo-99	777,921	8,477±0,011	13,709±0,019	14,535±0,024	7.5±0.375
U	Np-239	277,7	43,325±0,054	81,81±0,102	57,588±0,072	65±3.25

Les résultats obtenus sont en bon accords par rapport à les concentrations de standard.

IV.2. Etude comparative entre la méthode relative et absolue

Une étude comparative entre la méthode relative et absolue pour la couche principale BEH04 est présentée dans la figure (VI.1).

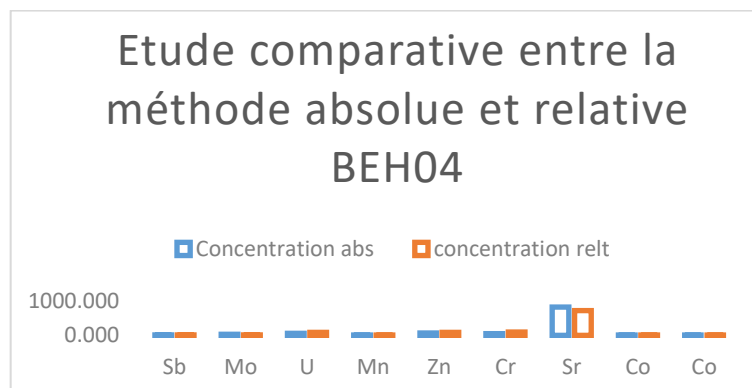


FIGURE IV.1 : ETUDE COMPARATIVE ENTRE LA METHODE RELATIVE ET ABSOLUE POUR LA COUCHE PRINCIPALE BEH04.

La méthode relative elle nous donne des résultats plus précis, l'erreur est inférieure à 5% par rapport à la méthode absolue, L'erreur est supérieure à 20%.

Nous constatons qu'il y'a des éléments majeurs, mineurs et de traces dans les trois échantillons de phosphates. Nous avons opté pour leur classification selon leurs concentrations dans l'échantillon :

- ❖ Eléments majeurs dont leurs concentrations sont supérieurs à 1%. Ces éléments sont généralement sous forme d'oxyde.
- ❖ Eléments mineurs dont les concentrations sont compris entre 0.1% et 1%.
- ❖ Eléments de traces qui se trouvent avec des concentrations inférieures à 0.1%.

Nous nous intéressons par les éléments mineurs et de traces

Pour les éléments mineurs on trouve : Sr ; Br ; Mn.

Les éléments de traces est de 11 à savoir : Zn ; Co ; As ; U ; Th ; Mo ; Sb ; Sm ; Cr ; Eu ; Ce. Les éléments traces qui sont indicateurs de la présence d'éléments fissiles tels que l'uranium et le thorium.

A noter aussi l'absence des éléments : Hg ; Ag et Car la section efficace d'absorption de capture radiative est faible donc il faut augmenter le temps d'irradiation.

IV.3.Distribution des éléments de traces

La figure suivante représente la distribution des éléments de traces dans les trois couches

(Principal, sommitale et basale).

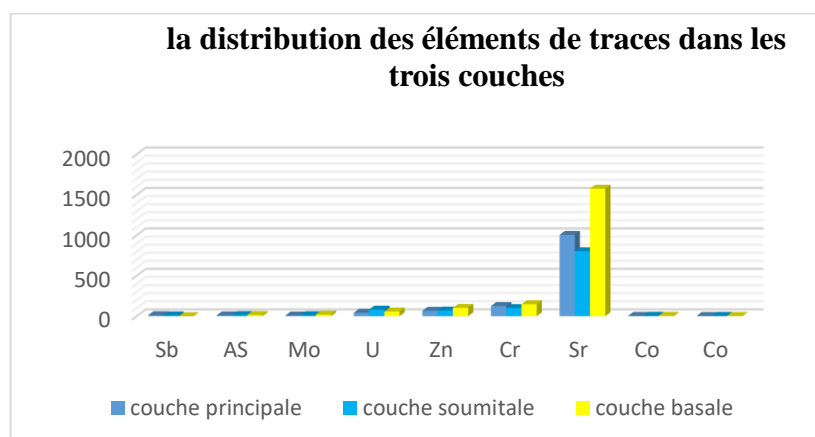


FIGURE IV.2: DISTRIBUTION DES ELEMENTS DE TRACES DANS LES TROIS COUCHES.

Tous les éléments sont distribués dans le même intervalle.

Conclusion Générale

Conclusion générale

L'objectif de ce travail était de déterminer les concentrations des éléments mineurs et de traces dans les phosphates par la technique d'analyse par activation neutronique instrumentale en utilisant les moyennes périodes et longues périodes pour étudier la distribution dans le gisement phosphaté de Djebel Onk.

La méthodologie suivie dans la réalisation du programme de ce travail, a permis de bien distinguer entre les différents processus analytiques : la préparation, l'irradiation, la mesure, le calcul de concentrations ainsi que l'évaluation des résultats obtenus.

Dans ce travail, trois échantillons de phosphate prélevés dans différentes couches géologiques ont été préparés et traités pour être irradiés avec un flux de neutrons thermiques et épi-thermiques. Après irradiation, nous avons réalisé deux campagnes de mesures différentes en fonction de la période des radio-isotopes. Une campagne de mesure pour l'analyse des éléments de moyennes périodes et l'autre campagne pour mesurer les éléments de longues périodes.

Le prélèvement et la préparation des échantillons sont des étapes très importantes dans l'analyse. La bonne réalisation de ces procédures permet de donner une bonne représentativité des échantillons des phosphates étudiés, et des résultats plus précis permettant d'obtenir une conclusion fiable.

L'analyse quantitative des échantillons de phosphates a été réalisée par deux méthodes : la méthode absolue et la méthode relative.

Les concentrations des éléments dans les échantillons de phosphates, ont été déterminées en premier lieu par la méthode relative, vu sa fiabilité, sa simplicité et la précision qui présente cette méthode de l'ordre de 5%. Néanmoins, le manque des standards de référence rend cette méthode limitée et d'un coût d'analyse relativement élevé.

L'application de la méthode absolue, a nécessité l'application de l'équation fondamentale de l'analyse par activation neutronique à cause de l'absence de certains éléments dans le standard de phosphates. Cette voie nous oblige à prendre en considération de tous les paramètres physiques à savoir le flux thermique et épi thermique la section efficace et l'efficacité du détecteur, etc...

L'erreur d'efficacité de détection et de flux neutronique est la principale raison de la réduction de la précision de mesure de la concentration de cette méthode. L'erreur peut atteindre une valeur de 20% ; Nous utilisons la méthode relative, avec une précision inférieure à 5%, dans cette voie, nous avons aussi étudié les réactions de contribution des interférences du premier et deuxième ordre.

Enfin, les résultats obtenus, nous pouvons conclure que la technique d'analyse par activation neutronique instrumentale porte un intérêt majeur pour le dosage d'un nombre d'éléments avec une précision et attraction car elle permet d'analyser des échantillons de phosphate sans modification chimique, d'où elle est non destructive et très sensible.

Il est nécessaire de continuer les recherches pour développer les capacités analytiques de cette technique afin d'élargir son domaine d'application.

Bibliographies

- [1] Dahi & Merchachi thèse de master intitulé interaction rayonnements matière, L,2010.
- [2] Belmari M, Benrachdi, Use of neutron activation analysis for the control of air pollution of Algiers. Pollution atmosphérique N°207_Juillet-Septembre 2010.
- [3] A.Azbouche, M.Belamri, M.Mouzai, M.Belgaid.Determination of rare earth elements (REEs) in soil by INAA technique for study of hydrique erosion watershed 2014. 8th African conference on research reactor utilization and safety, Algiers 14-16 December 2014.
- [4] Daniel blanc physique nucléaire p61.
- [5] K.A. Olive et al (Particle Data Group). Chin. Phys. C, 2014, 38(9): 090001.
- [6] MICHEL, L.U.NG. Les réacteurs nucléaires du futur.
- [7] H.FUESS, E.BERTAUT, F.PAUTHENET; et al. Structure aux rayons X, neutrons et propriétés magnétiques des orthovanadates de nickel et de cobalt. Acta crystallographica section B: Structural crystallography and crystal chemistry, vol.26, no 12,p.2036-2046,l'1970.
- [8] Articles universités correspondent aux terms THE Review of particle physics, particle data group, 2014.
- [9]L,Alaerts,De J.Beeck & J.Hoste. An227 Ac-B isotopic neutron source for application in high-accuracy neutron activation analysis. Analytica Chimica Acta,69(1),1-9. (1974)
- [10] Mr A.Azebouche thèse de doctorat en science intitulé Développement d'une méthodologie d'analyse par spectrométrie gamma et par activation neutronique pour l'étude de la distribution des radio-traceurs et desterres rares dans le sol, p 42-43.2015
- [11]<https://www.radiation-dosimetry.org/fr/quest-ce-que-la-detection-des-neutrons-definition/>
- [12] Ziani Zinedine et Allal nour elislem Mémoire physique appliqué Analyse qualitative et quantitative d'un sol Algérien au moyen de la technique d'analyse par activation neutronique (INAA).2019 BLIDA1
- [13] Mehdi Benmosbah Thèse de Doctorat Spécialité chimie spectrométrie des neutrons : étude de la réponse d'un ensemble de compteurs proportionnels,2007.
- [14] Balla M., Keomley G., Molnar Zs. Neutron Activation analysis. Institute of Nuclear Technology, Technical University Budapest, H-1521,1998
- [15] Landsberger S., Lara G., R., Tamalis D., Louis-Jean J., Dayman K. Analysis of naturally occurring radioactive material using neutron activation analysis and passive Compton suppression gamma-ray spectrometry.2012 NUKLEONIKA, 57(4), 461-465
- [16] L. Brissaud, Y.Bornec, B.Tatischeff, L.Bimbot, M.brussel, K.Dhumel, Détermination du rayon de la distribution de neutrons de certain noyaux par l'étude de la diffusion élastique de particules alpha de 166 MeV. Nuclear physics A, 191(1),145-165, (1972).

- [17] <https://fr.dreamstime.com/diffusion-%C3%A9lastique-neutron-image105976491>
- [18] Milman, G.Amsel,&M,C.Loyau .Etude des rayons gamma produit par la diffusion inélastique des neutrons rapides.J. phys. Radium, 20(1),51-59. (1959).
- [19] <https://guy-chaumeton.pagesperso-orange.fr/scphysiques18/2d08chc18.htm#a>
- [20] Josette Bedjaoui. Thèse de Magistère en génie nucléaire C.S.T.N Méthode de l'analyse gamma par activation neutronique,1978.
- [21] Microsoft Word - CANDU Fundamentals-Master-R1-Fr.doc. Principes fondamentaux des réacteurs CANDU
- [22] <https://www.futura-sciences.com/sciences/definitions/physique-fission-nucleaire-2462/>
- [23]https://www.researchgate.net/figure/Section-efficace-de-capture-neutronique-et-de-fission-de-l-235-U-en-fonction-de_fig2_48908545
- [24] Pr. A. Sabir – Université Mohamed V Agdal - Faculté des sciences Rabat – SMP / S6 -2012
- [25] Pr. Laurant Dusseau Equipe <Electronique et Rayonnements>, Interaction Rayonnement-Matière, Instiut d'Electronique du Sud (IES) 2009.
- [26] http://metronu.ulb.ac.be/npauly/pauly/metronu/1_4.pdf; chapitre 4 : Interaction des photons avec la matière –ULB
- [27] G. F. Knoll, Radiation Detection and Measurement, 3rd ed. USA: John Wiley & Sons, Inc, 2000
- [28]D.Soete;R.Gijbels,&J.Hostel,Neutronactivationanalysis(Vol.34).LONDON:WileyInterscienc (1927).
- [29] Mme ALGHEM HAMIDATOU Lylia, implémentation et validation de méthode de Constantine faculté des sciences département de physique 2005
- [30] Mme ALGHEM HAMIDATOU Lylia, implémentation et validation de méthode de Constantine faculté des sciences departement de physique 2005
- [31] Ibrahim Alfadil Alnour,Noorddin Ibrahim, lieWHwi Fen, International journal of the physical Sciences Vol.(17), 2011
- [32] B. Pirada,J.Cabrerab, C. d'ustona, J.J.Thocaavena,O.Gasanault,P.Leleuxb,J.Bru ckner, solar proton damage in high-purity germanium detectors,Journal"nuclear instruments and methods in physics research "section A 572pp698-707,2007
- [33] M. MESSAOUDI, Développement de la méthode de séparation radiochimique su sélénium basée sur l'activation neutronique RNAA et son application sur les grains de café et les feuilles de menthe (Doctoral dissertation),2016
- [34] BELADEL BRAHIM. Thèse de doctorat étude de taux de sélénium dans la ration alimentaire algérienne aux moyennes des techniques nucléaires de microanalyse. 2014-2015

[35] Mm. Tata kelhalifa. Méthodologie de l'estimation des éléments de terres rares dans les minerais de phosphates : application préliminaire sur le gisement de Bled El Hadba (Djbel onk-Tebessa, Ne, Algérie) Mémoire de Master Académique, université Kasdi Merbah-ouargla, 2019.

[36] N. Bezzi, T. Aïfa, D. Merabet, J.Y. Pivan. Propriétés magnétiques de la formation phosphatée de Bled El-Hadba (Djebel Onk, Algérie) : Conséquences de l'enrichissement du gisement de minerai de phosphate. Journal of African Earth Sciences, 50(2-4), 255-267, 2008

[37] R. Rebbah, J. Duarte, O. Djezairi, M. Fredj, J.S. Baptista. Un tunnel sous une décharge de déchets miniers en fosse pour améliorer la valorisation environnementale et paysagère du site. Minéraux, 11(6), 566, 2021.