

**République algérienne démocratique et populaire**  
**Ministère de l'enseignement supérieur et de la recherche scientifique**  
**Université Saad Dahleb Blida 1**



**Faculté des sciences**  
**Département de physique**

**Mémoire de fin d'étude**  
**Pour l'obtention du diplôme de Master en Physique**

Option : Physique Appliquée

Thème :

**Analyse qualitative et quantitative d'un sol Algérien au  
moyen de la technique d'analyse par activation  
neutronique (INAA)**

Présenté par :

ZIANI ZINEDDINE

ALLAL NOUR ELISLAM

Soutenu le 29 /07/ 2019 devant le jury composé de :

Mr Benrkia	Grade	Organisme	Président
Mme Achour Souad	Chercheur assistante	Organisme	Encadreur
Mr Bounemri	Professeur au USDB	Organisme	Examineur

Blida 1-2018/2019-

## Résumé

L'objectif de ce travail est l'analyse qualitative et quantitative des éléments mineurs et de trace dans des échantillons argileux de la région de Mostaganem par la technique d'Analyse par Activation Neutronique Instrumentale.

Dans ce travail, une technique d'Analyse par Activation Neutronique Instrumentale (INAA) a été élaborée à fin de doser les éléments de traces dans le sol, nous avons irradié ces derniers après préparations et conditionnement par le flux de neutron produit par le réacteur nucléaire NuR du Centre de Recherche Nucléaire de Draria (CRND) dont le but d'obtenir une représentation de la distribution de ces éléments dans le site étudié. Les rayonnements gamma émis par les éléments qui ont dans l'échantillon sont mesurés par un phénomène d'interaction rayonnement-matière c'est la spectrométrie gamma. L'étalonnage est effectué à l'aide d'une source d'<sup>152</sup>Eu.

On a associée d'autres méthodologies de dosages des éléments de traces, où nous avons utilisé la méthode relative, et pour les éléments qui n'existent pas dans le standard, nous avons appliqué la méthode absolue.

Les résultats obtenus ont permis une étude environnementale, en particulier, nous avons constaté que le site d'étude n'a pas été exposé à une pollution par les éléments lourds.

En fait la présence des éléments de traces dans les sols provient généralement de l'altération des éléments de la roche mère ou éventuellement par la présence des traces de l'uranium.

Ce dernier conduit à la formation des terres rares selon la réaction de fission de l'<sup>U-235</sup> sous l'irradiation par les neutrons thermiques.

## **Abstract**

The objective of this work is the qualitative and quantitative analysis of minor and trace elements in clay samples from the Mostaganem region using the Instrumental Neutronic Activation Analysis technique.

In this work, an Instrumental Neutronic Activation Analysis (INAA) technique was developed to measure the trace elements in the soil, we irradiated them after preparation and conditioning by the neutron flux produced by the nuclear reactor NuR of Draria Nuclear Research Center (CRND) whose goal is to obtain a representation of the distribution of these elements in the studied site. The gamma rays emitted by the elements that have in the sample are measured by a radiation-matter interaction phenomenon is gamma spectrometry. Calibration is performed using a  $^{152}\text{Eu}$  source.

Other methodologies for trace element assays were used, where we used the relative method, and for items that do not exist in the standard, we applied the absolute method.

The results obtained allowed an environmental study, in particular, we found that the study site was not exposed to pollution by heavy elements.

In fact, the presence of trace elements in soils usually comes from the alteration of the elements of the source rock or possibly by the presence of traces of uranium.

The latter leads to the formation of rare earths according to the fission reaction of  $^{235}\text{U}$  under irradiation by thermal neutrons.

# Remerciement

*Je remercie tout d'abord Dieu le tout puissant de m'avoir donné santé, volonté, courage, connaissance, surtout de la patience durant mon petit parcours de la vie et qui ma donné toutes les capacités physiques et morales pour la réalisation du présent travail.*

*En premier lieu le tiens à remercier à **Mme Achour Souad** , qui en tant que Promotrice, d'avoir accepté de diriger ma thèse.  
Je voudrais vous dire merci pour tout ce que vous avez fait pour moi durant tout ce travail.*

*J'exprime mes remerciements à **Mr Azbouche Ahmed** , en tant que promoteur à*

*Université Saad Dahleb Blida-1-*

*pour la qualité des conseils, la confiance et la résolution des problèmes rencontrés.*

*Ce travail a été réalisé dans le Département d'Analyse par Activation Neutronique du Centre de Recherche Nucléaire du Draria (CRND).*

*Je remercie les personnel du Départements Physique et Application Nucléaires (DPAN) qui aidés sur le plan administratif et matériel.*

*Je suis plus que reconnaissant pour les gens que participées dans les expériences.*

*Je tiens tout d'abord à remercier les membres de mon jury de thèse.*

*Je suis très reconnaissant envers "**Mr Benrkia**" d'avoir accepté de présider ce jury.*

*Je remercie vivement "**Mr Bounemri**" d'avoir accepté d'être membres de ce jury en tant que Examineur.*

*Je suis très sensible à l'honneur qu'ils me font en accordant une partie de leur temps afin de juger ce travail.*

*Je remercie infiniment **Mr Guedioura** pour ces conseils judicieux ,son intérêt dans la réussite ,pour l'inspiration ,ses conseils éclairés, s'est toujours disponible tout au long de la réalisation de ce mémoire , merci pour avoir toujours les mots justes pour me reconforter .*

*Un grand merci à **mes parents** pour la confiance qu'ils m'ont toujours accordée, pour leurs encouragements et leur soutien de tous les instants.*

*Merci à **mes sœurs, mes frères** et toute ma famille pour leurs encouragements.*

*Merci spécialement à **Siakhene Narimene** pour la compréhension dont elle a fait preuve et son soutien dans les moments difficiles.*

*A celles et ceux qui m'ont aidée et contribué, de près ou de loin, pour la réalisation de ce modeste travail.*



# *Dédicace*

*Je dédie ce mémoire ;*

*A mon idole , mon soutien , celui qui s'est toujours sacrifié pour me voir réussir ;*

***A toi mon père, Papa je t'aime .***

*A la femme de ma vie , la lumière de mes jours, la source de mes efforts, la flamme de mon cœur, ma vie et mon bonheur ;*

***A toi ma mère, Maman je t'adore.***

*A mon exemple éternel, mon soutien moral et source de joie et de bonheur,*

*A celle qui m'a donné le courage et la volonté pour arriver à mon but,*

*A celle que j'aime beaucoup et qui m'a soutenue tout au long de ce travail,*

*A tous mes chers frères et mes chères sœurs.*

*A toutes la famille **Ziani***

*Aux personnes qui m'ont toujours aidé et encouragé, qui étaient toujours à mes côtés,*

*qui m'ont compris dont ils ont fait preuve et leur soutien*

*dans des moments que j'avoue parfois très difficiles*

***mes Frères et mes Sœurs , Siakhene Narimene***

*A mon binôme **Nour el islam** et toute la famille **Allal***

*A mes aimables amis dont le grand plaisir leurs revient en premier lieu pour leurs conseils, aides, et encouragements.*

*A tous mes collègues de promotion M2 Physique Appliquée .*

*Enfin, A tous ceux que j'ai oubliés et qui me sont chers.*



## Liste des figures

### Chapitre I

#### Interaction des rayonnements avec la matière

**Figure I-1** : Spectre de neutrons

**Figure I-2** : Effet Compton

**Figure I-3** : Effet Photoélectrique

**Figure I-4** : Effet Production de paire

### Chapitre II

#### Analyse par activation neutronique

**Figure II-1** : Principe de la technique NAA

**Figure II-2** : Variation de l'activité en fonction du temps lors d'une analyse par activation neutronique

### Chapitre III

#### Matériels et Méthodes

**Figure III-1** : Localisation du gisement de M'Zila

**Figure III-2** : Instruments et matériels utilisés pour l'irradiation des échantillons

**Figure III-3** : Conditionnement des échantillons dans la capsule d'irradiation

**Figure III-4** : Chaîne de spectrométrie gamma

**Figure III-5** : Droit d'étalonnage de la chaîne de mesure

**Figure III-6** : Courbe d'efficacité expérimentale du détecteur mesurée une distance  $d=7c$  m

**Figure III-7** : Spectre INAA d'un échantillon du sol mesuré après 7 jours de décroissance durant 5000 secondes(a); Spectre INAA d'un échantillon du sol mesuré après 30 jours de décroissance durant 10000 secondes (b)

**Figure III-8** : Spectre de l'échantillon M1 mesuré par INAA après 7 jours de décroissance durant 5000 secondes.

### Chapitre IV

#### Résultats et discussion

**Figure IV-1** : Spectre  $\gamma$  du bruit de fond de l'installation spectrométrie  $\gamma$  utilisée.

## Liste des tableaux

### Chapitre I

#### Interaction des rayonnements avec la matière

**Tableau I-1** : Sources isotopiques des neutrons

**Tableau I-2** : Sources isotopiques type photo-neutron

### Chapitre III

#### Matériels et Méthodes

**Tableau III-1** : Concentrations des éléments à doser dans le standard utilisé

**Tableau III-2** : Conditions d'irradiation des échantillons étudiés

**Tableau III-3** : Numéros des canaux correspondent aux énergies pour  $^{152}\text{Eu}$

**Tableau III-4** : Efficacité expérimentale du détecteur mesurée à une distance  $d=7$  cm

**Tableau III-5** : Les conditions de comptage pour les moyennes et longues périodes

**Tableau III-6** : Caractéristiques des éléments de moyenne et de longues périodes

### Chapitre IV

#### Résultats et discussion

**Tableau IV-1** : Propriétés nucléaires des éléments à doser

**Tableau IV-2** : Concentration des éléments dosés dans l'échantillon  $M_0$

**Tableau IV-3** : Concentration des éléments dosés dans l'échantillon  $M_1$

**Tableau IV-4** : Concentration des éléments dosés dans l'échantillon  $M_2$

**Tableau IV-5** : Valeur d'erreur des éléments mesurés par INAA pour les échantillons  $M_1$ ,  $M_2$  et  $M_3$ .

# SOMMAIRE

Liste des figures .....	3
Liste des tableaux .....	4
<b>INTRODUCTION Générale .....</b>	<b>8</b>

## Chapitre I : Interaction des rayonnements avec la matière

I-1- Introduction .....	10
I-2- Propriétés du neutron.....	10
I-3-Source de neutrons.....	10
I-3-1-Réacteurs nucléaires .....	11
I-3-2-Accélérateurs de particules.....	11
I-3-3-Sources isotopiques .....	11
I-4-Spectre de neutron .....	13
I-5-Interaction des neutrons avec la matière .....	14
I-5-1-Diffusion du neutron.....	14
I-5-1-1-Diffusion élastique .....	14
I-5-1-2-Diffusion inélastique.....	15
I-5-2-Absorption de neutron.....	15
I-5-2-1-Capture radiative.....	16
I-5-2-2-Fission .....	16
I-5-2-3-Absorption par l'émission de particules chargées .....	16
I-6-Interaction des rayons gamma avec la matière.....	16
I-6-1-Diffusion élastique de Rayleigh .....	16

---

I-6-2-Diffusion Compton .....	17
I-6-3-Effet photoélectrique .....	18
I-6-4-Effet de créations de paires .....	19

## **Chapitre II : Analyse par activation neutronique**

II-1-Introduction.....	20
II-2-Historique .....	20
II-3-Principe de l'analyse par activation neutronique .....	20
II-3-1-Equation fondamentale de l'analyse par activation neutronique .....	21
II-3-2-Analyse qualitative .....	23
II-3-2-1-Interférences du premier ordre .....	24
II-3-2-2-Interférences du deuxième ordre .....	24
II-3-3-Analyse quantitative .....	24
II-3-3-1-Méthode absolue .....	25
II-3-3-2-Méthode relative.....	25
II-3-3-3-Méthode semi-relative (k0 méthode).....	25
II-4-Limite de la méthode.....	26
II-5-Application de la INAA.....	27

## **Chapitre III : Matériels et Méthodes**

III-1-Introduction .....	28
III-2-Nature et origine de l'échantillon de sol étudié .....	28
III-3-Préparation des échantillons .....	29
III-3-1-Conditionnement des échantillons pour irradiation.....	30

---

III-3-2-Irradiation des échantillons .....	31
III-4-Mesures Spectrométrique .....	31
III-5-Etalonnage de la chaine spectrométrie GAMMA de la technique INAA .....	32
III-5-1-Etalonnage en énergie.....	32
III-5-2-Etalonnage en efficacité.....	34
III-6-Mesure des échantillons irradiées par INNA.....	36
III-6-1-Analyse qualitative .....	39
III-6-2-Analyse quantitative .....	39
III-6-3-Calcul d'erreur.....	40
III-7-Conclusion .....	41

#### **Chapitre IV : Résultats et discussion**

IV-1- Introduction .....	42
IV-2-Mesure du bruit de fond .....	42
IV-3-Mesure des échantillons par INAA.....	43
IV-3-1- Dosage des éléments de longues périodes .....	43
IV-3-2- Calcul d'erreur .....	44
IV-4- Conclusion.....	47
<b>Conclusion Générale .....</b>	<b>48</b>
<b>Références.....</b>	<b>49</b>

### INTRODUCTION GENERALE

Le développement de la science nucléaire ainsi que l'ampleur que cette dernière a permis la création de nombreuses techniques analytiques et à de nombreuses méthodes expérimentales. Ces nouvelles techniques et ces nouvelles méthodes ont permis à plusieurs scientifiques de progresser considérablement et leurs ont permis de surmonter les limites qui ont été imposées par les méthodes classiques.

En 1930, deux scientifiques, Walther Wilhelm Georg Bothe et Herbert Becker bombardent des éléments tels que le béryllium, le bore ainsi que le lithium avec des particules alpha provenant du polonium et observent une nouvelle forme d'émission d'un rayonnement très pénétrant [1]. Un an plus tard, soit en 1931, un autre scientifique, Frédéric Joliot-Curie, reprend les expériences des deux derniers et remarqua que le nouveau rayonnement produit des protons très énergétiques lorsque celui-ci traverse une chambre de Wilson remplie d'hydrogène. Avec cette nouvelle observation, ce dernier annonce que le rayonnement de Bothe est constitué de photons de haute énergie. En 1932, un autre scientifique connu sous le nom de James Chadwick du laboratoire Rutherford annonce, tout en se basant sur les expériences de Frédéric Joliot-Curie, que le rayonnement est en fait constitué de neutrons. James Chadwick expliqua que les neutrons, des particules de masse égale au proton mais ne possédant aucune charge, sont la raison pour laquelle ce rayonnement était très pénétrant. Hevesy à Copenhague, en 1936, effectuait des expériences pour lesquelles ce dernier irradiait des minerais de terre rares par les neutrons à l'aide d'une source radium-béryllium. Après quelques essais sans résultats, Hevesy obtint une radioactivité pour laquelle celui-ci attribua à de nouveaux isotopes radioactifs identifiés par leur période de décroissance. C'est ainsi que l'analyse par activation neutronique fut découvert [2].

L'introduction de l'analyse par activation neutronique instrumentale (INAA) au sein des laboratoires algériens est datée des années 90. Nous citons quelques récentes applications de la méthode dans les différents domaines : l'utilisation de la NAA pour le contrôle de la pollution de l'air d'Alger [3], la détermination des éléments de terre- rare (REEs) dans les sols pour étude de l'érosion des sols et de la sédimentation [4]. La détermination de la concentration du zinc dans les cheveux des femmes atteintes du cancer du sein [5] ...etc.

Divers applications dans différents domaines vue leurs avantages d'être une technique multi-élémentaires, précise, non destructive.

Le choix de la technique d'analyse INAA est très important afin d'évaluer la composition du sol plus au moins fiable de la région étudiée. Cette technique offre la possibilité de doser les éléments de traces avec une grande précision et de rapidité, grâce aux mesures de l'énergie et de l'intensité des rayonnements gamma qui caractérisent le radioélément émetteur [6].

La préparation des échantillons est une étape très importante dans cette étude, après l'échantillonnage, les échantillons de sol à doser sont préparés et conditionnés pour les irradier dans un réacteur. Les rayons gamma émis les différents éléments radioactifs produits lors de l'irradiation sont ensuite mesurés au laboratoire à l'aide d'un détecteur au germanium à haute résolution qui est bien calibré.

## INTRODUCTION GENERALE

Dans la première partie de travail, nous présentons la partie théorique qui s'étale sur deux chapitres :

Le premier chapitre est consacré à l'étude de l'interaction des neutrons avec la matière, en situant les différentes sources de neutrons, ainsi que l'interaction des rayonnements gammas avec la matière.

Le second chapitre décrit la technique d'Analyse par Activation Neutronique, les notions de base théoriques de la technique, ses avantages, ses limites ainsi que ses applications.

La deuxième partie est dédiée à la partie expérimentale . Le chapitre matériels et méthodes et le chapitre résultats et discussions puis nous finiront par une conclusion générale regroupant l'essentiel des résultats dégagés de cette étude.

### I-1- Introduction

D'une manière générale, on peut définir un rayonnement ou radiation comme un mode de propagation de l'énergie dans l'espace, sous forme d'ondes électromagnétiques ou de particules. Les rayonnements ne peuvent être détectés et caractérisés que grâce à leurs interactions avec la matière dans laquelle ils se propagent. Ils peuvent céder au milieu qu'ils traversent, la totalité ou une partie de leur énergie au cours de ces interactions. Un rayonnement est dit ionisant quand il est susceptible d'arracher des électrons à la matière.

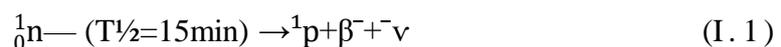
Une définition plus exhaustive est donnée : « un rayonnement ionisant est un transport d'énergie sous la forme des particules ou d'ondes électromagnétiques d'une longueur d'ondes inférieure ou égale à 100 nanomètres, soit d'une fréquence supérieure ou égale à  $3 \times 10^{15}$  hertz, pouvant produire des ions directement ou indirectement. ».

L'équivalent en énergie correspond à 12,4 eV. Parmi ces rayonnements, on distingue ceux qui sont directement ionisants, particules chargées, de ceux qui sont dits indirectement ionisants car n'étant pas chargés [7].

### I-2- Propriétés des neutrons :

Le neutron est une particule non chargée de spin  $\frac{1}{2}$ . La masse d'un neutron est  $1,675 \times 10^{-27}$  kg. Sa durée de vie à l'état libre est de l'ordre de  $(885,7 \pm 0,8)$  s [8]. Un neutron est indifféremment caractérisé par son énergie E, sa longueur d'onde  $\lambda$  ou son vecteur d'onde  $k_0$ . les neutrons peuvent interagir avec la matière selon deux processus, soit avec des noyaux via l'interaction nucléaire forte ou avec des électrons non appariés via la force magnétique [9].

A l'état libre, les neutrons sont des particules instables qui se transforment spontanément en des protons, par désintégration  $\beta^-$ , selon la réaction suivante [10] :



### I-3- Sources de neutrons :

Les neutrons sont des particules radioactives, ils doivent être produits artificiellement. Ils existent plusieurs sources de neutrons qui peuvent être utilisées pour différentes applications neutroniques trois types de sources sont utilisées [10] :

- Les sources isotopiques
- Les accélérateurs de particules
- Les réacteurs nucléaires

**I-3-1- Réacteurs nucléaires :**

Les réacteurs nucléaires produisent des neutrons à partir de la fission tel que l'uranium-235 et constituent les sources les plus intenses de neutrons dont l'énergie peut atteindre 20 MeV avec une moyenne de 2 MeV. En subissant des collisions élastiques avec des noyaux du modérateur [11].

Ce sont les réacteurs de recherches qui sont utilisés généralement dans les recherches nucléaires particulièrement en analyse par activation neutronique NAA (plus précisément les neutrons thermiques qui sont nécessaires pour INAA en raison de leur section efficace d'absorption maximale)

Le faisceau de neutrons du réacteur est constitué de neutrons thermique, épi thermique et rapide dans ce cas, ils doivent être thermalisés en utilisant des modérateurs qui sont des éléments légers tel que : Be,  $^1\text{H}$ ,  $^2\text{H}$ , C, etc...caractérisés par une grande section efficace de diffusion.

Par rapport aux autres sources de neutron, le réacteur, permettant d'irradier simultanément de nombreux échantillons dans un flux relativement homogène pendant une longue durée, ainsi le choix de divers spectre de neutron.

**I-3-2- Accélérateurs de particules :**

Ce sont des petits accélérateurs qui produisent des neutrons utilisant les réactions de fusion deutérium-tritium **D-T** ou deutérium-tritium **D-D**. En bombardant des cibles adéquates avec des isotopes de l'hydrogène ou de particules  $\alpha$ , est particulièrement intéressante en raison des bilans énergétiques favorables des réactions. Les réactions  $t(d, n)$  et  $d(d, n)$  sont actuellement les plus utilisées pour la production de neutrons au moyen de générateurs de neutrons avec des tensions d'accélération variant généralement de 150 kV à 750 kV selon le type de cibles qui peuvent être minces ou épaisses. Les cibles sont constituées d'un support en cuivre sur lequel est déposée une fine couche de titane dans laquelle le tritium (isotope de l'hydrogène, noté,  $^3\text{T}$ ) ou le deutérium (isotope de l'hydrogène noté,  $^2\text{D}$ ) sont déposés par adsorption ou par implantation [10].

**I-3-3- Sources isotopiques :**

Les sources isotopiques sont constituées par un mélange d'isotopes dont l'un au moins est un radioélément émetteur de particules  $\text{He}^+$  (particule  $\alpha$ ), ou de rayonnement électromagnétique provenant du noyau (rayonnement  $\gamma$ ).

L'interaction de ces rayonnements avec certains noyaux provoque l'émission de neutrons. Dans ces expériences, les neutrons sont produits à partir de réactions nucléaires lorsque les noyaux du Bore ou du Béryllium sont bombardés par des particules  $\alpha$ [12].



Les sources isotopiques sont la première source de neutrons utilisées pour l'analyse par activation neutronique avant l'apparition des premiers réacteurs. On cite aussi parmi les sources isotopiques de fission spontanée telle que le californium-252.

Des exemples des sources isotopiques sont présentés dans les tableau I-1 et I-2 [13].

**Tableau I-1 : Sources isotopiques des neutrons**

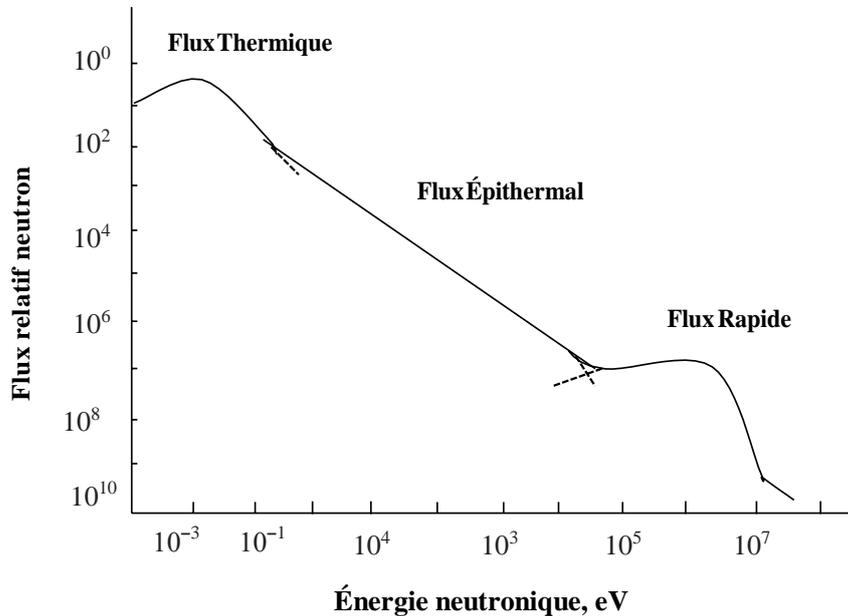
Source $\alpha$	Demi-vie	$E_{\alpha}$ (MeV)	Source neutron de	Flux neutronique $\text{n cm}^{-2}\text{s}^{-1}$
${}^{225}\text{Ra}$	1.620 ans	4.5	Ra-be	$2.5 \times 10^6$
${}^{241}\text{Am}$	433 ans	5.1	$\text{AmO}_2\text{-Be}$	$2.2 \times 10^6$

**Tableau I-2 : Sources, isotopiques type photo-neutron.**

Source $\gamma$	Demi-vie	$E_{\gamma}$ (MeV)	Interaction $\gamma$ avec	Energie du neutron (MeV)	Rendement ( $\text{n s}^{-1} \text{Ci}^{-1}$ )
${}^{24}\text{Na}$	15h	2.75	Be D2O	0.2 0.8	14 29
${}^{124}\text{Sb}$	60.4j	1.7	Be	0.16	0.02

## I-4- Spectre de neutrons :

Nous donnons un exemple de spectre de neutrons dans la **figure(I-1)** suivante [6] :



**Figure I-1** : Exemple de spectre de neutrons

Selon leurs énergies, les neutrons sont classés en trois groupes [14] :

## a) Neutrons thermiques :

La composante de neutrons thermique est constitué de neutrons de base énergie (des énergies inférieures à 0.5eV), qui sont en équilibre thermique avec le milieu modérateur. 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  $2200 \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$  ; il est donné par l'expression suivante :

$$\Phi_{th}(E) = \frac{E}{E_0^2} \exp\left(-\frac{E}{KT}\right) \quad (\text{I.5})$$

avec :

$$E_0 = KT_0 = \frac{3}{2} KT \quad (\text{I.6})$$

Où :

**T** : la température ;

**E** : L'énergie des neutrons ;

**K** : La constant de Boltzmann ;

**b) Neutrons épi-thermiques :**

Ceux sont des neutrons qui ont des énergies entre 0.5 eV et 10 KeV, qui sont partiellement modérés Utilisant une feuille de cadmium de 1 mm d'épaisseur qui absorbe tous les neutrons thermique, mais permettre de passer les neutrons épi-thermique et rapides dont l'énergie est au-dessus de 0.5 eV. Cette région est caractérisée par des résonances où la section efficace de capture de neutrons devient très importante [15,16] ; Les neutrons épi-thermiques induisent aussi les réactions  $(n,\gamma)$ .

**c) Neutrons rapides :**

Les neutrons rapides ont des énergies supérieures à 100 KeV.

Ceux sont les neutrons de la fission primaires. Les neutrons rapides contribuent très peu à la réaction  $(n, \gamma)$ , mais induire des réactions nucléaires qui sont principalement  $(n,p)$ ,  $(n,2p)$  et  $(n, \alpha)$ . Les propriétés de neutrons rapides, dans un spectre de neutrons dans les réacteurs à flux de neutrons thermique est faible ; elle varie en fonction de la position du x=canal d'irradiation par rapport au cœur de réacteur [13,17,18] .

**I-5- Interaction des neutrons avec la matière**

L'interaction d'un neutron avec la matière est caractérisée, en première lieu, par son faible pouvoir ionisant par rapport aux autres particules élémentaires chargées. De par sa nature même, le neutron n'a pas d'interaction d'origine coulombienne avec les électrons du cortège. La seule forme d'interaction importante est celle du neutron avec les noyaux.

Ces interactions se divisent en deux catégories : celle qui entraînent la disparition du neutron, que nomme absorptions et celles qui ne contribuent qu'à diminuer l'énergie du neutron que l'on nomme diffusion [19] .

**I-5-1- Diffusion du neutron :****I-5-1-1- Diffusion élastique (n,n) :**

La diffusion élastique rappelle la collision entre des boules de billard ,Pour atteindre une énergie  $E'(n)$  à partir d'une énergie  $E \rightarrow$  il faut donc que le neutron subissent en moyenne  $n$  collisions élastiques [20] .

Par conservation de l'énergie et de la quantité de mouvement, on obtient la relation qui lie l'énergie transférée par le neutron au noyau en fonction de l'angle de recul  $\mu_r$  du noyau,

le noyau cible de masse  $m_2$  initialement au repos reçoit du neutron (masse  $m_n$  et énergie cinétique  $E$ ) une énergie cinétique  $T_c$  comprise entre 0 et  $T_{max} \rightarrow$

$$E = \frac{4m_n.m_2}{(m_n+m_2)^2} E \quad (I.7)$$

Qui se note généralement →

$$E_r = \frac{4A}{(1+A)^2} E \cos^2 \theta_r \quad (\text{I.8})$$

$$\text{Avec } A = m_2/m_1 \quad (1.8)$$

$E_r$ : Énergie du noyau de recul

$E$ : Énergie du neutron

$A$  : Nombre de masse du noyau de recul

$\theta_r$ : Angle entre la direction du neutron incident et celle du neutron diffusé

La diffusion élastique est un processus très efficace pour ralentir les neutrons (un neutron peut communiquer toute son énergie à un noyau d'hydrogène si ( $m_p \approx m_n$ ) [20].

### I-5-1-2- Diffusion inélastique (n,n') :

Durant une diffusion inélastique, le noyau cible est amené dans un état excité, le neutron perd une partie de son énergie que l'on retrouve sous la forme d'énergie cinétique et d'énergie potentielle du noyau cible. Cette réaction passe par un état intermédiaire où il y a formation d'un noyau composé avec ensuite émission d'un neutron pour reformer le noyau dans un état excité [21].

Le plus souvent le noyau excité retourne dans son état fondamental en émettant un ou plusieurs. La section efficace inélastique présente des résonances qui correspondent aux différents niveaux d'énergie du noyau composé. La collision inélastique ne peut se produire que si l'énergie cinétique du neutron dépasse un certain seuil,  $E_{\text{seuil}}$

$$E_{\text{seuil}} = \frac{A+1}{A} E_{\text{exc.}} \quad (\text{I.9})$$

Avec  $E_{\text{seuil}}$  l'énergie d'excitation du noyau.

### 1-5-2- Absorption du neutron :

Après l'absorption d'un neutron par un noyau, un ou plusieurs rayonnements secondaires peuvent être émis, ces rayonnements secondaires sont [22] :

- Un rayonnement  $\gamma$  (absorption électromagnétique ou radiative) (n,  $\gamma$ ) ;
- Une particule chargée (proton ou une particule alpha) (n, p) ou (n,  $\alpha$ ) ;
- Des produits de fission (n, ff).

**I-5-2-1- Capture radiative (n,  $\gamma$ ):**

La capture radiative est une réaction (n,  $\gamma$ ) où le neutron est absorbé par le noyau pour former un noyau dans un état excité qui émet un ou plusieurs  $\gamma$ , le noyau produit est un isotope de noyau cible. La capture radiative dominée surtout par les neutrons thermiques.

La section efficace d'une capture radiative présente des résonances à certaines valeurs d'énergies.

**I-5-2-2- Fission :**

La réaction de fission se produit pour des matériaux à Z élevé quand la capture d'un neutron conduit à la scission du noyau et à la production de fragments lourds ainsi que de nucléons de grande énergie cinétique, par exemple la fission du  $^{235}\text{U}$  libère une énergie de l'ordre de 200 MeV qui est distribuée entre les fragments de fission, des neutrons émis (2 ou 3), des particules  $\beta$  provenant de la désintégration radioactive des fragments de fission et des photons [22-23].

L'émission de neutrons est utilisée pour induire d'autres réactions de fission, des réactions en chaîne (réacteur à fission).

**I-5-2-3- Absorption suivie de l'émission de particules chargées :**

Il s'agit principalement de réactions telles que (n, p) ou (n,  $\alpha$ ). Elles se produisent surtout avec des neutrons rapides car ces réactions sont le plus souvent des réactions à seuil (endoénergétique), l'énergie cédée à la particule chargée dans le noyau doit être suffisante pour que cette particule puisse franchir la barrière de potentiel de noyau.

Pour quelques noyaux légers, les réactions (n, p) et (n,  $\alpha$ ) sont exoénergétiques, Elles peuvent être produites par des neutrons thermiques.

Exemples :  $^3\text{He}$  (n, p)  $^3\text{H}$ ,  $^6\text{Li}$  (n,  $\alpha$ )  $^3\text{H}$  et  $^{10}\text{B}$  (n,  $\alpha$ )  $^7\text{Li}$

**I-6- Interaction des rayons gamma avec la matière :**

Les principales interactions possibles sont : l'effet photoélectrique, l'effet Compton et création de paires, d'autres effets de moindre importance : la diffusion élastique Rayleigh produite dans les faibles énergies et les réactions photo nucléaire qui se produisent photons de très hautes énergies [24-25].

**I-6-1- Diffusion élastique de Rayleigh :**

L'énergie du photon incident n'est pas absorbée par l'atome, il y a simplement un changement de la direction de propagation du photon. On parle de diffusion sans transfert d'énergie ou de diffusion élastique.

La diffusion d'un photon de faible énergie s'effectue sur un électron, assez fortement lié à l'atome pour que ce soit l'ensemble de l'atome qui absorbe le recul.

Le transfert d'énergie à l'atome est alors négligeable, l'atome reste dans son état fondamental (sans excitation), le photon est diffusé sans perte d'énergie.

Ce processus de diffusion se produit essentiellement aux petits angles à des énergies faibles pour les éléments de Z élevé [26].

### I-6-2- Diffusion Compton :

L'effet Compton est prépondérant pour les photons d'énergie intermédiaire, typiquement comprise entre quelques dixièmes de MeV et quelques MeV (Les photons x et les photons y).

Il est plus probable pour les atomes légers.

Ce phénomène est observé lorsqu'un photon incident entre une collision avec un électron libre d'un atome. Au cours de ce processus, l'électron est éjecté de l'atome, qui est donc ionisé tandis qu'un photon est diffusé.

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 un électron libre, ce qui donne la relation suivant [26] :

$$\lambda - \lambda' = \frac{h}{m_e c} (1 - \cos \theta) \quad (1.10)$$

$$h\nu = x = \frac{h\nu}{1 + \alpha(1 - \cos\theta)} \quad (1.11)$$

Avec  $\alpha = \frac{h\nu}{(m_0 c^2)}$

$\lambda'$ : Longueurs d'onde du photon diffusé

$\lambda$  : Longueurs d'onde de photon incident

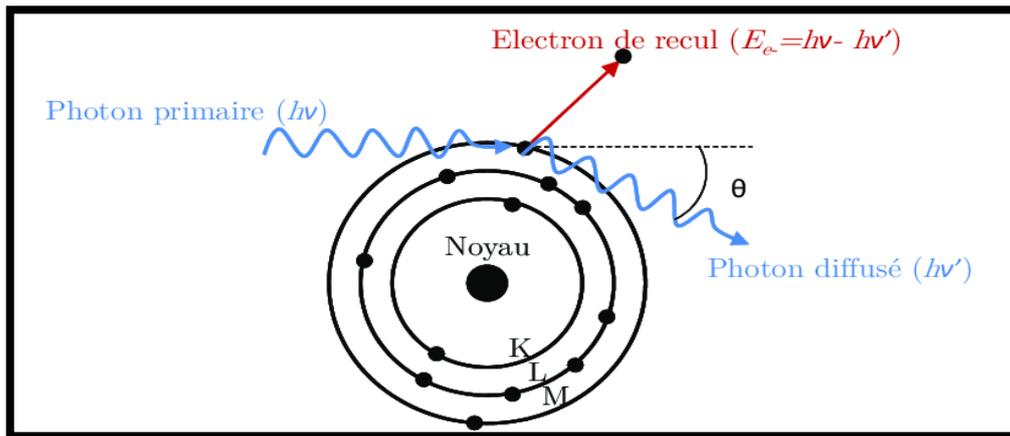
$\theta$ : L'angle entre photon incident et photon diffusé

$h$  : Constant de Planck

$m_e$  : Masse de l'électron

$c$  : Vitesse de la lumière

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



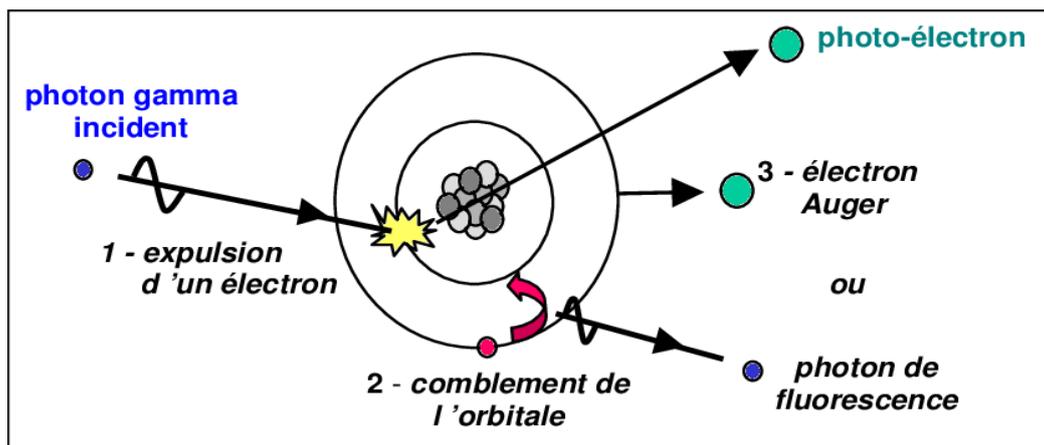
**Figure I-2 :** Effet Compton

**I-6-3- Effet photoélectrique :**

L'absorption photoélectrique est le mode dominant d'interaction pour les photons de basse énergie (0.01 et 0.1 MeV) [24-25] . C'est un processus par lequel le photon incident, cède toute son énergie à un électron des couches profondes (Couche K ou L), qui est alors éjecté de l'atome : il y a une absorption totale du photon et donc l'ionisation de l'atome [27] .

L'effet photoélectrique ne peut exister que si l'énergie du photon incident est supérieure à l'énergie de liaison de l'électron ; L'électron éjecté emporte une énergie cinétique  $E_c$  égale à la différence entre l'énergie  $h\nu$  du photon incident et son énergie de liaison  $W$ .

$$E_c = h\nu - W \tag{1.12}$$

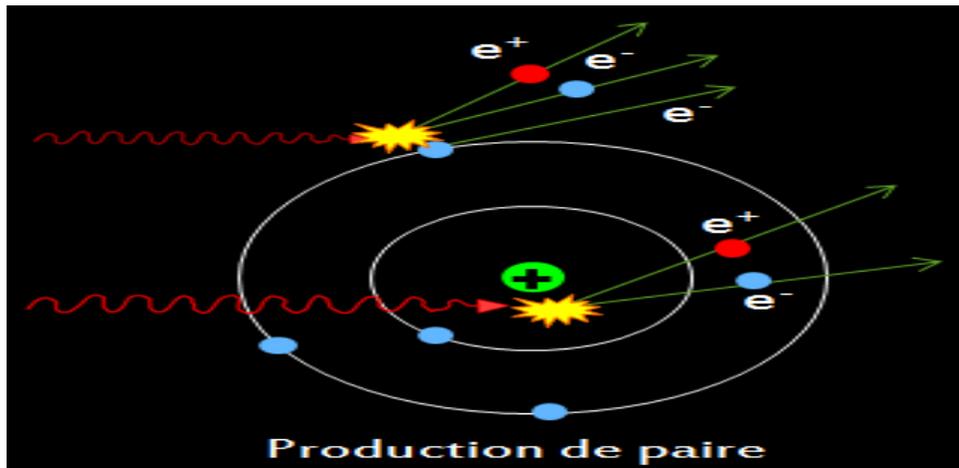


**Figure I-3 :** Effet Photoélectrique

**I-6-4- Effet Création de paires :**

Dans un champ électrique comme celui d'un noyau atomique, un photon gamma peut être totalement absorbé et son énergie partiellement remise sous forme d'une paire électron-positron. Cette conversion requiert que l'énergie  $E$  du photon incident soit supérieure au seuil de  $2m_{ec}^2 = 1022 \text{ keV}$ .

L'énergie résiduelle  $E - 1022 \text{ keV}$  se retrouve sous forme d'énergie cinétique répartie entre les deux particules. La section efficace de ce processus svPP augmente proportionnellement avec le carré du nombre atomique  $Z$  et avec l'énergie  $E_g$  du photon incident [26].



***Figure I-4*** : Effet Production de paire

## II-1- Introduction

L'analyse par activation neutronique (INAA : Instrumental Neutron Activation Analysis) est une méthode d'analyse exclusivement élémentaire. Sa mise en œuvre consiste à irradier l'échantillon à analyser dans un flux de particules appropriées, neutrons, particules chargées... et à identifier, ensuite, après irradiation, les isotopes radioactifs créés à partir des éléments à doser. Par son principe même, la méthode est unique parmi les méthodes d'analyse : l'excitation concerne le noyau de l'atome et les mesures portent sur les isotopes radioactifs artificiels ainsi créés [28].

## II-2- Historique :

L'analyse par activation est la plus ancienne méthode nucléaire d'analyse puisqu'elle remonte aux travaux de Von HEVESY et LEVI en 1936 ; deux ans après la découverte de la radioactivité artificielle par Frédéric et JULIOT-CURIE....

Par la suite, le développement de la méthode et de ses applications a été défini par des progrès dans ses composants et instrumentations tels que des réacteurs nucléaires dans les années 1940 ; des détecteurs à scintillation comme NaI (TI) dans les années 1950, les détecteurs à semi-conducteurs (Ge, Si, etc...), l'analyseur multicanaux dans les années 1960 et des ordinateurs et des logiciels appropriés en 1970[29].

## II-3- Principe de l'analyse par activation neutronique instrumentale (INAA) :

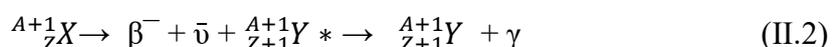
L'activation neutronique est une méthode analytique multi-élémentaires rapide, non destructive et très sensible, son principe consiste à irradier un échantillon par un flux de neutrons. Les éléments qu'il contient l'échantillon subissent des réactions nucléaires (n,  $\gamma$ ) dites de capture radiative qui conduisent à la formation des radio-isotopes [30].

Ces radio-isotopes sont alors identifier et quantifier par l'étude de leur spectre de rayon gamma émis lors de la désintégration

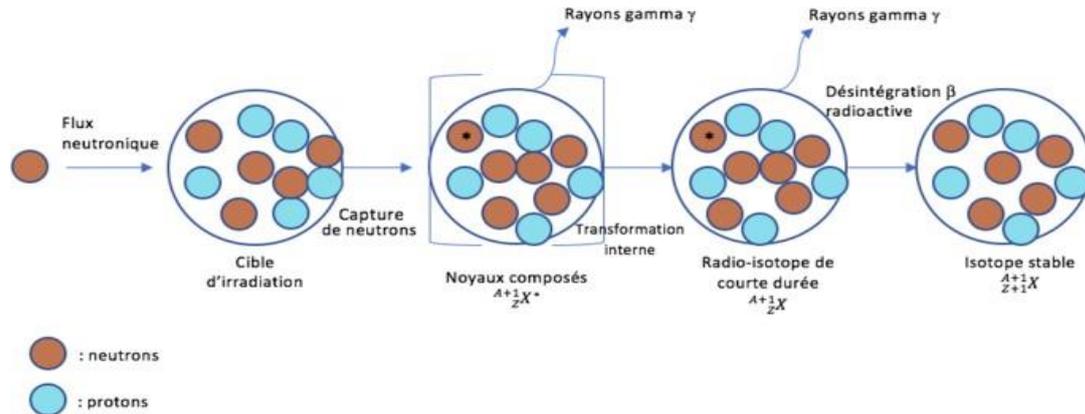
La création de capture radiative est beaucoup plus probable avec des neutrons thermiques ou épi-thermique. Le noyau composé produit se désexcite par émission gamma prompt, la capture radiative est donnée par la réaction suivante :



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



Sur la figure suivante, on présente le processus de la technique d'analyse par activation neutronique lors d'une capture radiative (INAA).



**Figure II-1** : Principe de la technique NAA

**II-3-1- Equation fondamentale de l'analyse par activation neutronique :**

L'activité induite dans l'échantillon est due à la production de radio-isotopes. Quand  $N_1$  atomes stables d'un matériau sont irradiés par un flux de neutrons  $\phi$  ( $n.cm^{-2}.s^{-1}$ ) pendant un temps  $dt$ , le nombre d'atomes radioactifs formés  $N_2$  est proportionnel à  $N_1.\sigma_1.\phi$ . En même temps, commence la disparition par désintégration des radio-isotopes formés qui est donnée par :  $\lambda_2.N_2.dt$ . La présence du flux neutronique a tendance à s'opposer à la fabrication d'un radio-isotope, elle est donnée par  $N_2.\sigma_2.\phi$  [31].

Le système d'équations d'évolution s'obtient en faisant le bilan (production - disparition) :

$$\frac{dN_1}{dt} = \sigma_1\phi N_1 \tag{II.3}$$

$$\frac{dN_2}{dt} = \sigma_1\phi N_1 - \sigma_2\phi N_2 - \lambda_2 N_2 \tag{II.4}$$

où l'on a désigné par  $N_1$  et  $N_2$  les nombres de densité ( $at./cm^3$ ) de l'isotope  $X_1$  et  $X_2$  respectivement  $\sigma_i$  et  $\lambda_i$  sont la section efficace microscopique de capture et la constante de désintégration du radio-isotope  $i$  produit ( $s^{-1}$ ).

Avec les conditions : au temps  $t=0$ ,  $N_1(0) = N_1^0$  et  $N_2(0) = 0$ .

La solution de ce système s'écrit :

$$N_1(t) = N_1^0 e^{-\sigma_1\phi t} \tag{II.5}$$

Avec  $N_1^0 = \frac{m}{M_A} \xi N$   $m$  étant la masse de l'échantillon,  $M_A$  la masse atomique,  $\xi$  l'enrichissement isotopique et  $N$  le nombre d'Avogadro.

L'activité  $A_2(t)$  s'obtient :

$$N_2(t) = \frac{\sigma_1 \varphi N_1^0 (e^{-\sigma_1 \varphi t} - e^{-(\lambda_2 + \sigma_2 \varphi)t})}{\lambda_2 + (\sigma_2 - \sigma_1) \varphi} \quad (\text{II.6})$$

L'activité  $A_2(t)$  s'obtient :

$$A_2(t) = \lambda_2 N_2(t) \quad (\text{II.7})$$

En posant :

$$\lambda^* = \lambda_2 + \sigma_2 \varphi \quad (\text{II.8})$$

$\lambda^*$  est la période réduite. La relation prend la forme suivante :

$$A_2(t_i) = \frac{\lambda_2 \sigma_1 \varphi N_1^0 (e^{-\sigma_1 \varphi t_i} - e^{-\lambda^* t_i})}{\lambda^* - \sigma_1 \varphi} \quad (\text{II.9})$$

Cette relation est valable dans la plupart des cas. Cependant quand il s'agit de longue irradiation pour les éléments possédant de grandes sections efficaces d'absorption où les longues irradiations à haut flux neutronique, on tient compte de la perte de masse de la cible (burn-up). Pour les éléments possédant une grande intégrale de résonance, on doit tenir compte de la fraction du spectre neutronique située au-delà du domaine thermique, le terme  $\sigma_1 \varphi$  sera remplacé par  $(\sigma_1 \varphi + I_0 \varphi_{\text{epi}})$  où  $\varphi_{\text{epi}}$  la composante épi-thermique du flux neutronique et  $I_0$  l'intégrale de résonance (exprimé en barns) qui s'écrit [31] :

$$I_0 = \int_{0.55}^{+\infty} \sigma_1(E) \frac{dE}{E} \quad (\text{II.10})$$

L'activité de l'échantillon à la fin d'irradiation (au temps  $t=t_i$ ) et après un temps de décroissance ( $t_d$ ) est :

$$A_2(t_i, t_d) = A_2(t_i) e^{-\lambda_2 t_d} \quad (\text{II.11})$$

Si on compte l'activité accumulée de l'échantillon, exprimée en désintégrations par seconde, après un temps de comptage ( $t_c$ ) on a :

$$A_2(t_i, t_d, t_c) = \int_0^{t_c} A_2(t_i, t_d) e^{-\lambda_2 t} dt \quad (\text{II.12})$$

L'activité accumulée est donc :

$$A_2(t_i, t_d, t_c) = \frac{\sigma_1 \varphi N_1^0}{\lambda_2} (1 - e^{-\lambda_2 t_i})(1 - e^{-\lambda_2 t_c}) e^{-\lambda_2 t_d} \quad (\text{II.13})$$

La fraction comptée des rayonnements émis est :

$$R = A_2 f \varepsilon \quad (\text{II.14})$$

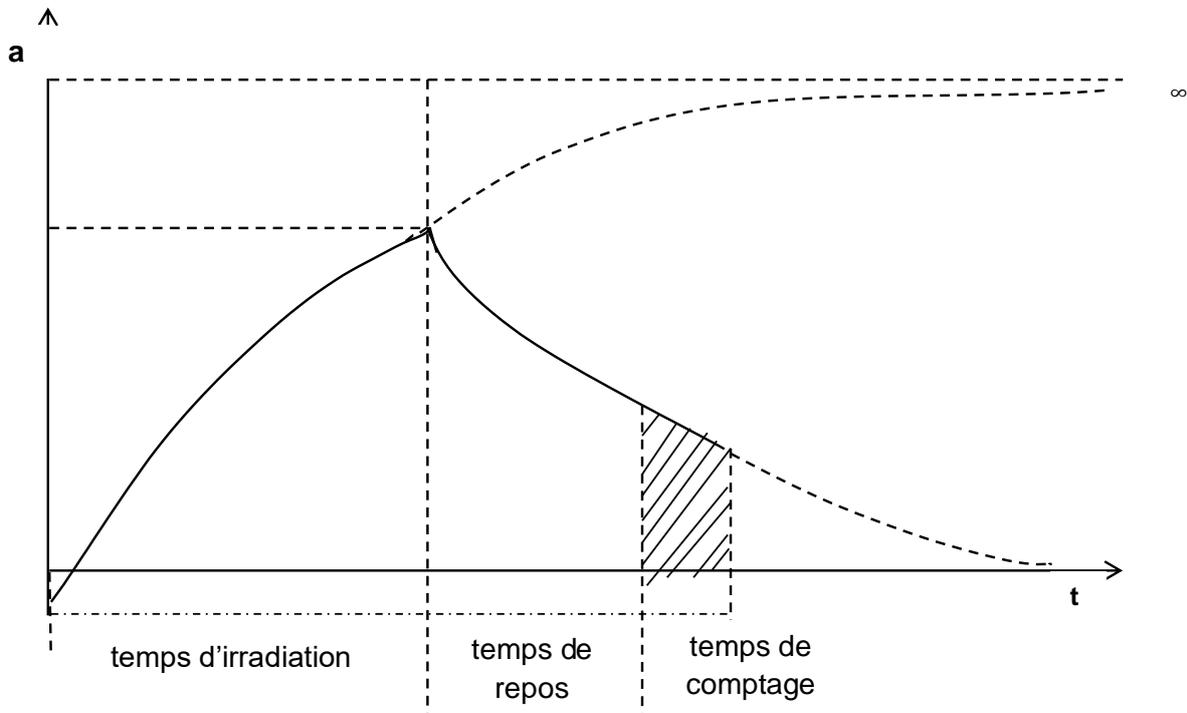
$\varepsilon$  : efficacité du détecteur à l'énergie  $E$

$f$  : coefficient d'embranchement de la raie gamma d'énergie  $E$

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

$$A(t) = A_s S D \quad (\text{II.15})$$

$D = e^{-\lambda t_d}$  est le temps de décroissance.



**Figure II-2** : Variation de l'activité en fonction du temps lors d'une analyse par activation neutronique.

### II-3-2- Analyse qualitative:

L'analyse qualitative consiste à identifier les éléments émetteurs gammas continus dans l'échantillon analysé. Lors de l'identification des radioéléments, on tient compte des paramètres suivants :

- 1) L'énergie du rayonnement gamma émis par les radio-isotopes.
- 2) La période radioactive du radioélément.
- 3) La réaction nucléaire utilisée et section efficace de production du radioélément produit.

Souvent, on peut avoir deux ou plusieurs radioéléments qui émettant 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 interférences pour pouvoir identifier correctement les éléments composant l'échantillon analysé [32].

**II-3-2-1- Interférence du premier ordre :**

Il existe des radioéléments qui peuvent être produits par plusieurs voies de réaction nucléaires, ces réactions conduisent aux mêmes produits finaux.

Certains radioéléments produits par des réactions de capture radiative de type (n,  $\gamma$ ), ces derniers sont produits des neutrons thermiques.

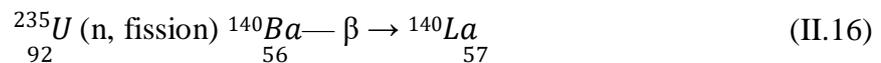
Il peut y avoir des réactions induites par les neutrons rapides comme les réactions (n, p) et (n,  $\alpha$ ) qui sont généralement endoénergétiques. Ces réactions sont classées comme des réactions d'interférences du 1<sup>er</sup> ordre. Le degré de leur perturbation dépend du spectre énergétique

Des neutrons dans le réacteur.

Ce type d'interférence peut être corrigé dans l'analyse du spectre en tenant compte de la section efficace des radioéléments produits par les neutrons rapides.

**II-3-2-2- Interférence du deuxième 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  $> 10^{13} \text{ n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$ ). 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'uranium-235 donne :



${}_{57}^{140}\text{La}$  est aussi produit par la réaction de capture  ${}_{57}^{139}\text{La} \text{ (n,y)}$ . Cette réaction peut augmenter l'activité après l'irradiation du radioélément ce qui constitue une source d'erreur importante conduisant à une surestimation de la concentration de cet élément dans l'échantillon.

**II-3-3- Analyse quantitative :**

La détection des rayonnements électromagnétique gamma émis lors de la désintégration du radionucléide  ${}^A_{Z+1}$ , permet la mesure de son activité, en désignant par  $\gamma$  le pourcentage d'émission de ce rayonnement et par  $\varepsilon$  l'efficacité de détection correspondant à l'énergie du rayonnement, et  $Np$  le nombre de désintégration mesuré pendant un temps  $t_c$  [32].

$$Np = As \varepsilon \gamma S D C \quad (\text{II.17})$$

Où :

$C = 1 - e^{-\lambda t_c}$  : est le facteur de comptage

La teneur de l'élément à doser dans l'échantillon s'écrit :  $p = \frac{m}{m_{ech}}$

Où :

$m_{ech}$  : Masse de l'échantillon irradié ;

Trois techniques sont possibles pour évaluer les teneurs des éléments à doser : absolue , relative (comparative) et semi-relative.

**II-3-3-1 Méthode absolue :**

Cette première technique consiste à appliquer l'expression, la méthode permet de déterminer directement la masse de l'élément recherché à partir de la relation suivante :

$$m = \frac{M \lambda N_p}{\theta N_a \gamma \epsilon (\Phi \sigma_{th} + \Phi \sigma_{epi}) (1 - e^{-\lambda t_i}) e^{-\lambda t_d} (1 - e^{-\lambda t_c})} \tag{II.18}$$

L'utilisation de cette relation nécessite la connaissance des différentes grandeurs physiques comme le flux de neutrons  $\Phi$  et la section efficace de capture  $\sigma$  dont les valeurs ne sont pas déterminées avec une très bonne précision. De plus, le nombre de photon détectés dépend de l'efficacité de détection .L'avantage de cette méthode réside dans la rapidité d'analyse et dans son cout modéré. Afin de réduire les risques d'erreur, on utilise la méthode comparative [33].

**II-3-3-2-Méthode relative (comparative) :**

Consiste à irradier simultanément l'échantillon et le standard et puis mesurer successivement, pendant le même temps, leurs activités. En faisant le rapport des masses de l'élément dans l'échantillon et dans le standard, on obtient :

$$\frac{N_{ech}}{N_{st}} = \frac{m_{ech}(e^{-\lambda t_d})_{ech}}{m_{st}(e^{-\lambda t_d})_{st}} \tag{II.19}$$

Où :

,  $m_{st}$  sont respectivement les masses de l'élément dans l'échantillon et le standard.

Cette méthode de dosage a l'avantage d'être facile et plus précise que la méthode absolue néanmoins la non disponibilité des standards de références de différentes matrices rend l'analyse lourde et coûteuse.

**II-3-3-3-Méthodes semi-relatives (k0 méthode) :**

Une autre voie d'analyse, appelée méthode de la standardisation absolue (k0 méthode) [34,35] 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 :

$$C_{ech} = \frac{N_{ech}}{Nm_0} \frac{1}{k_0} \frac{(f+Q_{m_0}\alpha)}{(f+Q_{ech}\alpha)} \frac{\varepsilon_{m_0}}{\varepsilon_{ech}} \quad (\text{II.20})$$

Où :

**f** : Rapport du flux de neutron thermiques au flux de neutrons épithermiques ;

**c** : Efficacité du détecteur à l'énergie gamma considérée ;

**k<sub>0</sub>** : Facteur de proportionnalité entre les propriétés de l'élément et le comparateur ;

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

**Q** : Rapport de l'intégrale de résonance (qui intègre les variations de la section efficace en fonction des débits et des énergies des neutrons épithermiques et rapide) à la section efficace pour les neutrons thermiques.

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 *k<sub>0</sub>* conduit pratiquement à la même précision que celle par la méthode relative. De plus la méthode permet de doser tous les éléments détectés. La méthode *k<sub>0</sub>* 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 [6].

#### II-4- Limite de la méthode :

La sensibilité de NAA pour un élément particulier dépend des paramètres d'irradiation (par exemple, les neutrons flux, l'irradiation et les temps de désintégration), les conditions de mesure (par exemple, temps de mesure, l'efficacité du détecteur), les paramètres nucléaires des éléments étant mesurés (par exemple, l'abondance isotopique, la demi-vie, et section efficace de neutrons). La précision d'une détermination de la NAA varie généralement de  $10^{-3}$  à  $10^{-10}$  grammes par gramme d'échantillon. La précision d'une détermination de NAA est habituellement comprise entre 2% et 10% de la valeur indiquée, en fonction de l'élément analysé et sa concentration dans l'échantillon.

La limite de détection de la NAA est donnée par [6] :

$$DL = 2.71 + 4.65 \sqrt{B} \quad (\text{II.21})$$

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-5- Application de la INAA :**

L'analyse par activation neutronique est très compétitive surtout dans le domaine de la détermination des traces d'élément, les échantillons peuvent être sous forme liquide ou solide. Les avantages cités auparavant ouvrant un grand éventail d'application de cette technique d'analyse qui sont très nombreuses :

Dans le domaine nucléaire pour le recherche de trace dans les matériaux de haute pureté (graphite, aluminium), et pour la détermination du burn-up ou du taux de combustion de l'uranium dans le réacteur. En science géologique de l'agriculture , en microanalyse des construction, dans la surveillance de l'environnement , en microanalyse des matériaux biologique, en science des matériaux (détection des composants de métaux , semi-conducteurs, et alliages), dans l'archéologie et la biochimie, dans les enquêtes de criminologie, et pour la détection des explosifs, des matières fissiles et les drogues[30].

**III-1-Introduction**

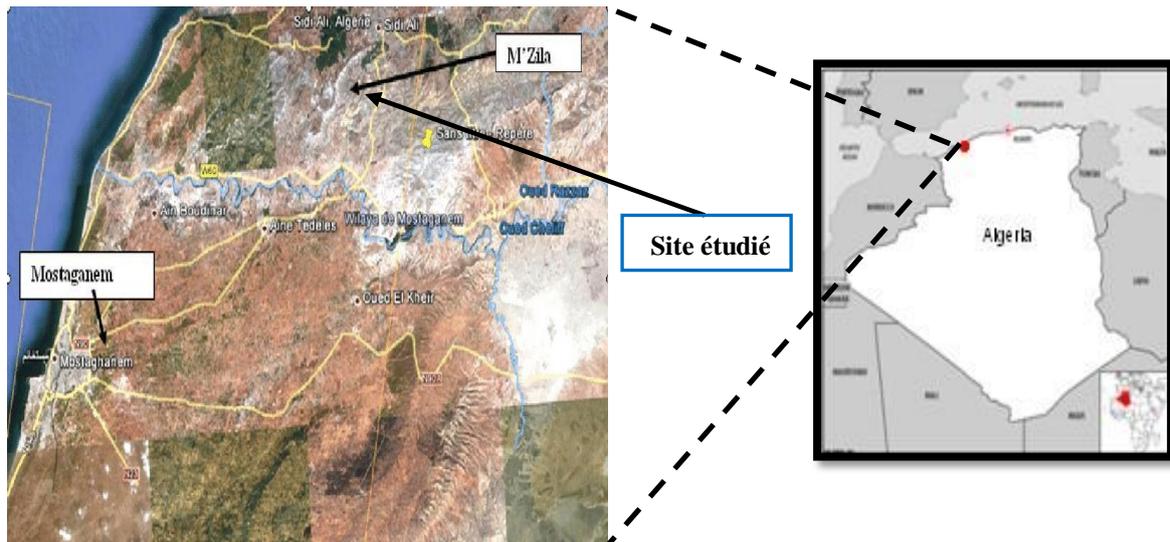
Ce chapitre est consacré aux techniques et appareils de mesure qui ont été utilisé pour la caractérisation des matériaux à l'étude par une analyse qualitative et quantitative par Activation Neutronique.

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 chaine de mesure sont exposés et présents dans ce chapitre.

**III-2-Nature et origine de l'échantillon de sol étudié**

L'échantillon de sol étudié dans ce manuscrit est une bentonite locale brute qui a été fournie par ENOF [36], et a été prélevée sur l'un des gisements les plus importants économiquement se trouvant à l'ouest dénommé le gisement de M'zila à Mostaganem avec ses réserves actuelles d'argile de deux millions de tonnes.

Les carrières d'argiles benthonique désignées sous le nom de « chantier M'zila» sont situées à 35 Km à l'ENE de Mostaganem, et a 10 Kilomètres à l'Est du village d'Achastas. Le site est accessible et le relief est accidenté et atteint une centaine de mètres [37] (fig III.1).



**Fig III-1** : Localisation du gisement de M'Zila.

**III-3-Préparation des échantillons :**

L'échantillon brute à l'étude a été fourni par ENOF (Entreprise National des substances utile non ferreux), l'échantillon a été transféré au laboratoire de caractérisation au CRND pour subir une préparation des échantillons, les étapes de préparation suivies sont:

- Séchage des échantillons à l'air libre.
- Séchage des échantillons à l'étuve à une température de 105°C pendant 24h.
- Broyage avec mortier pour détruire les agrégats, et mixage afin d'assurer une bonne homogénéisation.
- Tamisage des échantillons du sol.

Après le broyage et le tamisage des échantillons de sols, des aliquotes de masse moyenne de 100 mg ont été soigneusement pesées à l'aide d'une micro balance analytique de grande précision (0.01 mg).

Les échantillons standards sont pesés précisément puis emballés de la même façon que les échantillons des sols. La composition de l'échantillon étalon du sol sont données dans le Tableau III-1.

*Tableau III-1: Concentrations des éléments à doser dans le standard utilisé*

Élément	Concentration (mg/Kg)	Déviat ion standard $\sigma$
Fe	33890	740
K	16940	620
Na	14000	1310
As	19.18	0.578
Ba	332	14.9
Br	98.6	5.75
Ce	52.91	0.124
Co	11.16	0.138
Cr	100.5	6.55
Cs	7.64	0.658
Ga	11.9	0.91
Sb	0.97	0.09
Sc	45	22.9
Se	8.5	0.4
Sm	5.075	0.0360
Ta	49	67.8
Zn	146.1	7.31
Zr	200	12.3

Dans la présente étude, nous avons désigné nos échantillons selon le Protocole de leurs préparation comme suivant: M0 pour l'échantillon naturel, M1 celui de la première modification et M2 celui de la deuxième modification.

**III-3-1- Conditionnement des échantillons pour irradiation**

Nous avons suivi une procédure de préparation conventionnelle [3].

Tous les supports benthonique à analyser sont référenciés selon leurs préparations. Les échantillons ont été enveloppés dans des feuilles d'aluminium de dimension 1cmx1cm, de haute pureté nucléaire (99,9999 %). Le choix de l'aluminium comme enveloppe est dû essentiellement à sa faible section efficace d'absorption qui est de l'ordre de 0,23 barn, en plus de sa période radioactive très courte ( $T_{1/2}=2,24$  minutes). Ces deux paramètres permettent d'éviter la perturbation de flux neutronique durant l'irradiation, et la facilité de manipulation des échantillons après irradiation [3].

Les standards de sol certifiés et fournis par l'Agence Internationale de l'Energie Atomique (AIEA) sont utilisés comme des références, ils ont été préparés et utilisés sous la référence : SDT AIEA (Soil-7) (matrice géologique similaire à la matière étudiée) afin de comparer les résultats obtenus avec ceux obtenus par la voie relative vu la précision de cette dernière.

Dans la figure III-2, nous donnons l'emplacement des échantillons conditionnés dans la capsule d'irradiation.



**Figure III-2:** Instruments et matériels utilisés pour l'irradiation des échantillons.

Dans la figure III-3, nous donnons l'emplacement des échantillons conditionnés dans la capsule d'irradiation. [35]



**Figure III-3:**Conditionnement des échantillons dans la capsule d'irradiation

### III-3-2- Irradiation des échantillons

Tous les échantillons étudiés, les moniteurs et les standards ont été irradiés au réacteur nucléaire NUR de Centre de Recherche Nucléaire de Draria, qui est un réacteur de type piscine modéré et refroidi par l'eau légère, sous un flux de neutrons de  $2,31 \cdot 10^{13} \text{cm}^{-2}\text{s}^{-1}$  pendant 04 heures et mesurés par spectrométrie gamma.

Dans le Tableau III-2, nous résumons les conditions d'irradiation des échantillons benthoniques dans le canal d'irradiation.

*Tableau III-2 : Conditions d'irradiation des échantillons étudiés.*

Paramètre d'irradiation	Valeur SD* =5%
Temps d'irradiation	4 heures
$\phi_{\text{th}}$	$2,31 \cdot 10^{13}$ neutrons $\text{cm}^{-2}\text{s}^{-1}$
$\phi_{\text{épi}}$	$8,77 \cdot 10^{11}$ neutrons $\text{cm}^{-2}\text{s}^{-1}$

SD\* : déviation standard

### III-4- Mesures spectrométriques

Les mesures des rayonnements gamma émis par les éléments composants l'échantillon sont basées sur le principe de l'interaction des rayonnements avec la matière. Ce phénomène permet de transformer l'énergie d'un rayonnement en une impulsion qui peut être traitée à l'aide d'un système électronique de détection.

Toutes les mesures ont été effectuées en utilisant un détecteur HPGe à semi-conducteur haute résolution (1,8 keV pour la raie 1332,5 keV du  $^{60}\text{Co}$ ). Ce dernier est maintenu à la température de l'azote liquide et entouré par un château de plomb afin de réduire le bruit de fond dû à la radioactivité naturelle ambiante. Les impulsions délivrées par le détecteur sont ajustées et traitées par un système hardware de type DSA 1000 (Digital Spectrum Analyzer) de marque Canberra et les spectres obtenus ont été analysés à l'aide du logiciel gamma vision dédié au traitement des spectres gamma. La figure III-4 montre le dispositif expérimental utilisé dans ce travail.



***Figure III-4:*** Chaîne de spectrométrie gamma

### **III-5- Etalonnage de la chaîne spectrométrie GAMMA de la technique INAA**

#### **III-5-1- Etalonnage en énergie**

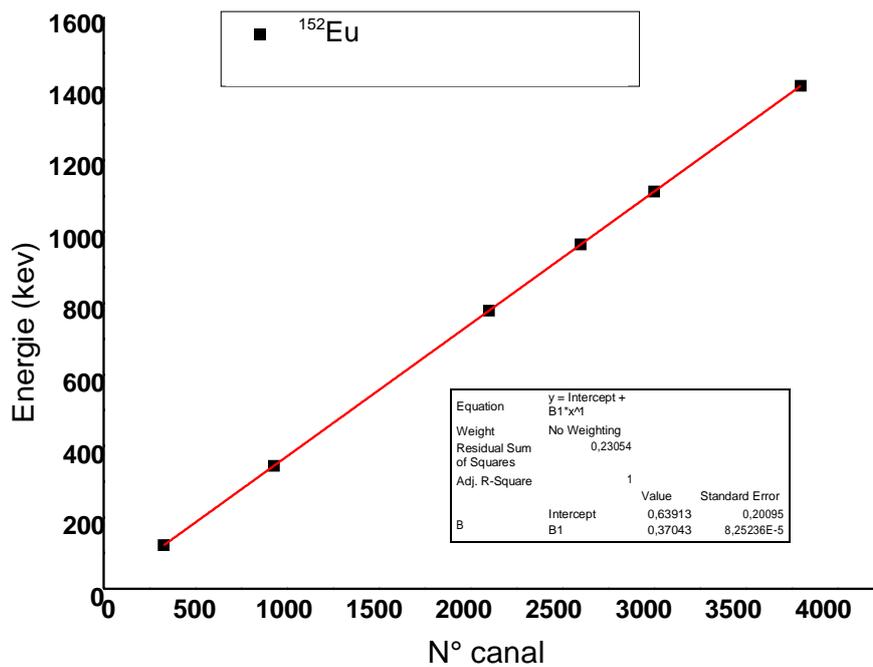
Avant d'entamer toutes les mesures, la première étape du travail est la calibration en énergie de la chaîne de spectrométrie gamma, afin de permettre une identification correcte des radioéléments présents dans les échantillons de bentonite. Cette calibration en énergie consiste à déterminer la droite de l'énergie en fonction du numéro du canal.

L'opération est effectuée à l'aide d'une source radioactive ponctuelle dont leurs énergies gammas sont bien connues.

La calibration en énergie a été effectuée à l'aide d'une source d'étalonnage d' $^{152}\text{Eu}$  de géométrie ponctuelle fabriquée le 01/01/1985 et fournie par le constructeur avec une activité initiale de 3600Bq. Le spectre de la source a été collecté durant un temps de 3600 secondes. La droite de calibration donnant l'énergie en fonction du numéro du canal a été déterminée par ajustement des points expérimentaux en utilisant la méthode des moindres carrés.

Tableau III-3 : Numéros des canaux correspondent aux énergies pour  $^{152}\text{Eu}$ .

<i>Energie (kev)</i>	<i>Canal</i>
121.78	3.27E+2
344.2	9.28E+2
778.6	2.10E+3
964.1	2.60E+3
1112.01	3.00E+3
1408.02	3.80E+3



**Fig III-5** : Droit d'étalonnage de la chaîne de mesure.

**III-5-2- Etalonnage en efficacité**

Pour effectuer une analyse quantitative, il faut procéder à une calibration en efficacité de la chaîne de détection utilisée. Le détecteur Ge (HP) utilisé est calibré par une source ponctuelle d'  $^{152}\text{Eu}$  d'une activité  $A=62.61$  (KBq). Le choix de  $^{152}\text{Eu}$  est justifié par ses nombreuses principales raies caractéristiques.

L'efficacité absolue du détecteur est définie par le rapport du nombre de photons détectés par le détecteur sur le nombre de photons émis par la source, selon l'expression suivante

$$\epsilon_{\text{absolue}} = \frac{N}{A \cdot t_c \cdot \gamma} \quad (\text{III.1})$$

Avec :

$N$  : le comptage net sous le pic photoélectrique du spectre obtenu,

$\gamma$  : le rapport d'embranchement.

$t_c$  : le temps de comptage.

$A$  : l'activité de la source.

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

$$\frac{\Delta \epsilon}{\epsilon} = \left[ \left( \frac{\Delta N}{N} \right)^2 + \left( \frac{\Delta A_0}{A_0} \right)^2 + \left( \frac{\Delta \gamma}{\gamma} \right)^2 + \left( \frac{\Delta t_c}{t_c} \right)^2 \right]^{1/2} \quad (\text{III.2})$$

Avec :

$\Delta N$  : l'incertitude sur la surface du pic (l'intensité);

$\Delta A_0$  : étant l'incertitude sur l'activité de la source;

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

$\Delta t_c$  : Erreur sur le temps de collection.

Tableau III-4 : Efficacité expérimentale du détecteur mesurée à une distance  $d=7\text{ cm}$

Energie	$\epsilon$
121,78	0,01806352
244,66	0,01120359
344,31	0,00845767
411,13	0,00800256
778,87	0,0041969
964,01	0,00362136
112,04	0,00342475
1408,02	0,00264058

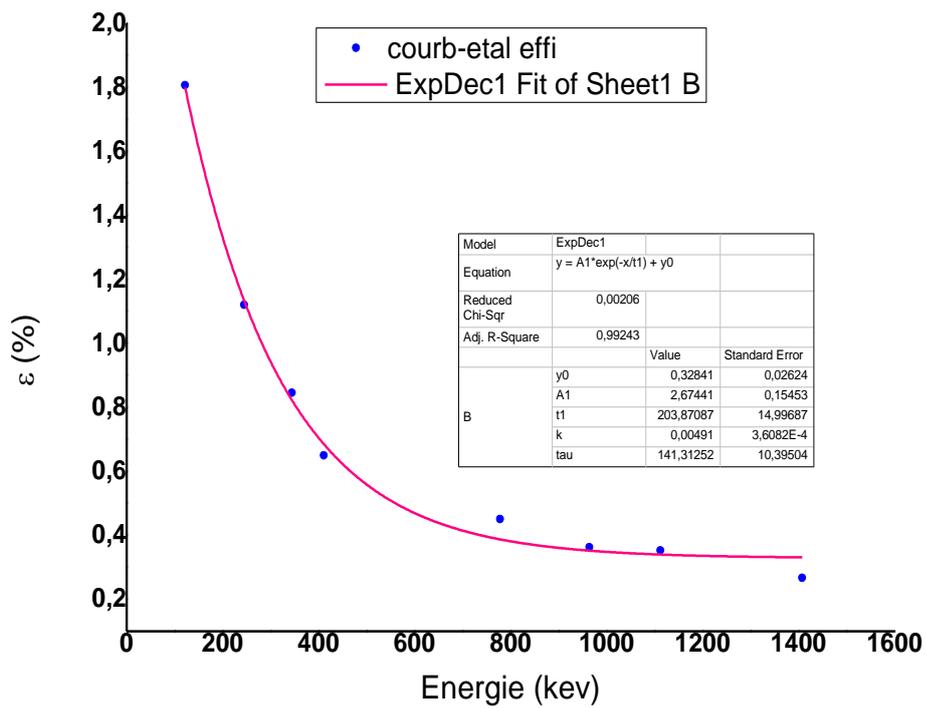


Fig III-6 : Courbe d'efficacité expérimentale du détecteur mesurée une distance  $d=7\text{cm}$

**III-6- Mesure des échantillons irradiés par INAA**

Le comptage des photons gamma émis par les échantillons irradiés permet alors d'identifier les isotopes émetteurs, et de remonter à la concentration des éléments constituant l'échantillon. Pour permettre un comptage sélectif des rayonnements émis par les radio-isotopes des éléments recherchés, une opération de refroidissement des échantillons irradiés a été effectuée pour permettre la disparition des activités des radio-isotopes de courtes périodes et identifier les radio-isotopes de moyennes et de longues périodes. Les mesures des concentrations des éléments de moyennes périodes ( $T_{1/2}$  de quelques heures à deux jours) et longues périodes ( $T_{1/2}$  supérieure à une semaine) dans l'ensemble des échantillons de sols ont été effectuées en utilisant la réaction nucléaire de capture radiative  ${}^A\text{X}(n, \gamma){}^{A+1}\text{X}$ . Les radioéléments produits  ${}^{A+1}\text{X}$  sont mesurés durant la campagne de mesure de moyenne période après une semaine de décroissance [38].

Le tableau suivant résume les conditions de mesure pour les éléments de moyennes et longues périodes:

**Tableau III-5** : Les conditions de comptage pour les moyennes et longues périodes

Conditions	Moyenne période (a)	Longue période (b)
Temps de décroissance	5 jours	30 jours
Distance source-détecteur (cm)	d=7	Échantillons placés directement sur le détecteur
Temps de comptage (s)	5000	10000

Sur la figure III (a,b), nous donnons un exemple d'un spectre d'échantillon du sol irradié durant 4 heures, et mesuré durant 5000 et 10000 secondes respectivement durant la campagne de mesure des radioéléments de moyennes et longues périodes.

Les analyses qualitatives et quantitatives sont réalisées après avoir traité les spectres gammas obtenus à l'aide du logiciel GammaVision.



Les raies d'énergies utilisées pour le dosage d'éléments de moyenne et longue période sont portées dans le Tableau III-6

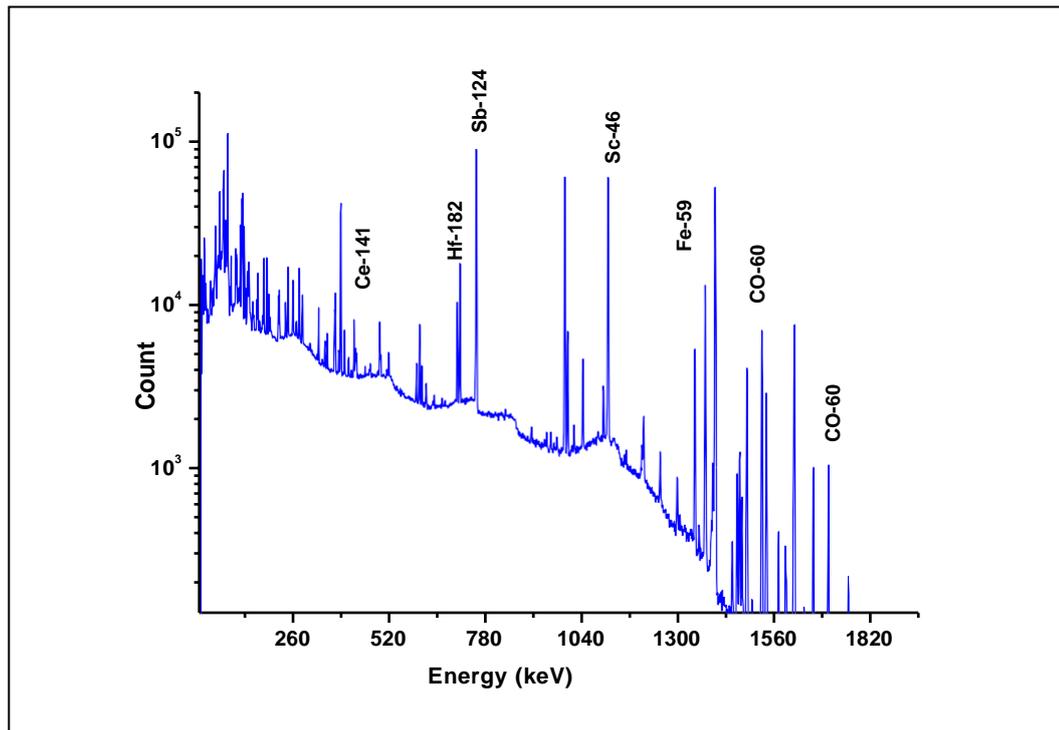
**Tableau III-6 : Caractéristiques des éléments de moyenne et de longues périodes**

Élément	Energie de la raie gamma(keV)	Période h	Réaction
<b>Élément de moyenne période</b>			
<sup>76</sup> As	559.2	26.3	<sup>75</sup> As (n, γ) <sup>76</sup> As
<sup>82</sup> Br	776.6	35.87	<sup>81</sup> Br (n, γ) <sup>82</sup> Br
<sup>42</sup> K	1524.7	12.52	<sup>41</sup> K (n, γ) <sup>42</sup> K
<sup>72</sup> Ga	834.1	14.3	<sup>71</sup> Ga (n, γ) <sup>72</sup> Ga
<sup>24</sup> Na	1368.4	15	<sup>23</sup> Na (n, γ) <sup>24</sup> Na
<b>Élément de longue période</b>			
<sup>131</sup> Ba	124.2	11.5 J	<sup>130</sup> Ba (n, γ) <sup>131</sup> Ba
<sup>60</sup> Co	1173.1	5.24 ans	<sup>59</sup> Co (n, γ) <sup>60</sup> Co
<sup>51</sup> Cr	320.0	27.8 J	<sup>50</sup> Cr (n, γ) <sup>51</sup> Cr
<sup>134</sup> Cs	604.7	2.07 ans	<sup>133</sup> Cs (n, γ) <sup>134</sup> Cs
<sup>59</sup> Fe	1098.6	45.1 J	<sup>58</sup> Fe (n, γ) <sup>59</sup> Fe
<sup>122</sup> Sb	564.0	2.75 J	<sup>121</sup> Sb (n, γ) <sup>122</sup> Sb
<sup>46</sup> Sc	889.4	83.9 J	<sup>45</sup> Sc (n, γ) <sup>46</sup> Sc
<sup>75</sup> Se	136	121 J	<sup>74</sup> Se (n, γ) <sup>75</sup> Se
<sup>153</sup> Sm	103.2	47.1J	<sup>152</sup> Sm (n, γ) <sup>153</sup> Sm
<sup>65</sup> Zn	1115.4	245 J	<sup>64</sup> Zn (n, γ) <sup>65</sup> Zn
<sup>95</sup> Zr	756.6	65 J	<sup>93</sup> Zr (n, γ) <sup>95</sup> Zr

Après 7 jours de refroidissement, les échantillons irradiés ont été transférés directement à une cellule blindée pour acquisition durant 5000 secondes.

Sur la figure III.8, nous donnons un exemple d'un spectre INAA de l'échantillon de bentonite M1 irradiée durant 4 heures, et mesuré durant 5000 secondes durant la campagne de mesure des radioéléments de moyennes et longues périodes.

Les analyses qualitatives et quantitatives sont réalisées après avoir traité les spectres gamma obtenus à l'aide du logiciel Gamma Vision.



**Figure III-8 :** Spectre de l'échantillon M1 mesuré par INAA après 7 jours de décroissance durant 5000 secondes.

### III-6-1 Analyse qualitative

Pour l'identification des éléments dans les échantillons mesurés, nous nous sommes basés sur trois paramètres physiques:

- L'énergie du rayonnement gamma émis par le radioélément ;
- La période radioactive du radio-isotope;
- La réaction nucléaire induite pour la production du radioélément détecté. Ces paramètres ont permis d'éliminer les interférences du premier ordre.

### III-6-2- Analyse quantitative

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

L'application de la méthode relative pour quantifier les éléments composant l'échantillon est réalisée en utilisant un échantillon standard. Cette méthode est basée sur l'irradiation de l'échantillon et le standard dans les mêmes conditions, et de la mesure en même temps de mesure.

C'est la voie de référence la plus utilisée en analyse par activation neutronique vue sa grande précision (déviations standard inférieures à 5%) l'expression de la concentration est introduite sous forme du rapport des surfaces nettes des pics de l'échantillon et du standard, dans la formule suivante :

$$C_e = C_s \frac{N_e}{N_s} e^{-\lambda(t_d e - t_d s)} \quad (\text{III.3})$$

$C_s$  : Concentration de l'élément dans le standard ;

$N_e$  et  $N_s$  : sont respectivement les surfaces des pics d'absorption du radioélément dans l'échantillon et le standard.

Par ailleurs dans les cas des interférences les deux méthodes peuvent être utilisées en effectuant des calculs de contribution des éléments interférant, cette opération est effectuée avec l'utilisation de l'expression de la méthode absolue donnée par la formule suivante:

$$N_p = \frac{m \theta N \phi \sigma \gamma \epsilon}{M \lambda} (1 - e^{-\lambda t_i}) e^{-\lambda t_d} (1 - e^{-\lambda t_c}) \quad (\text{III.4})$$

l'intensité de l'élément interférant est soustraite de l'intensité totale du pic d'absorption totale correspond aux radioéléments interférant.

### III-6-3- Calcul d'erreur

Nous avons utilisée la Loi de propagation d'erreur (III.1) pour calculer les incertitudes de mesure.

$$\sigma_u^2 = \left(\frac{\partial u}{\partial x}\right)^2 \sigma_x^2 + \left(\frac{\partial u}{\partial y}\right)^2 \sigma_y^2 + \left(\frac{\partial u}{\partial z}\right)^2 \sigma_z^2 + \dots \quad (\text{III.5})$$

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

$$\frac{\Delta C_e}{C_e} = \sqrt{\left(\frac{\Delta C_s}{C_s}\right)^2 + \left(\frac{\Delta N_e}{N_e}\right)^2 + \left(\frac{\Delta N_s}{N_s}\right)^2} \quad (\text{III.6})$$

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

$$\frac{\Delta m}{m} = \sqrt{\left(\frac{\Delta \epsilon}{\epsilon}\right)^2 + \left(\frac{\Delta N_p}{N_p}\right)^2 + \left(\frac{\Delta m_e}{m_e}\right)^2 + \left(\frac{\Delta \phi}{\phi}\right)^2 + \left(\frac{\Delta \sigma}{\sigma}\right)^2} \quad (\text{III.7})$$

**III-7-Conclusion**

Dans ce chapitre, nous avons parlé de la partie expérimentale qui est menée par l'application de la méthode d'analyse par activation neutronique instrumentale sur les échantillons de sols en utilisant les voies des moyennes et des longues périodes. La méthode consiste à identifier et quantifier les teneurs des éléments de traces après qu'ils soient activés dans le réacteur nucléaire NUR de DRARIA, dont le but d'obtenir une représentation de la distribution de ces éléments dans le site étudié.

Les rayonnements gamma émis par les éléments qui ont dans l'échantillon sont mesurés par un phénomène d'interaction rayonnement- matière c'est la spectrométrie gamma. Celle-là peut transformer l'énergie de rayonnement en une impulsion qui peut être traitée à l'aide d'un système électronique de détection.

Les détecteurs du type semi-conducteurs ont une zone active très localisée. Les échantillons et les étalons doivent être mesurés dans les mêmes géométries de comptage. Dans nos analyses nous avons utilisé la même position pour compter tous les échantillons.

Premièrement on passe par une étape essentielle c'est la calibration en énergie qui consiste à déterminer la droite de l'énergie en fonction du numéro du canal. L'étalonnage est effectué à l'aide d'une source d'  $^{152}\text{Eu}$ .

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. Ci pour cela on a choisi l'  $^{152}\text{Eu}$  car ces nombreuses raisons.

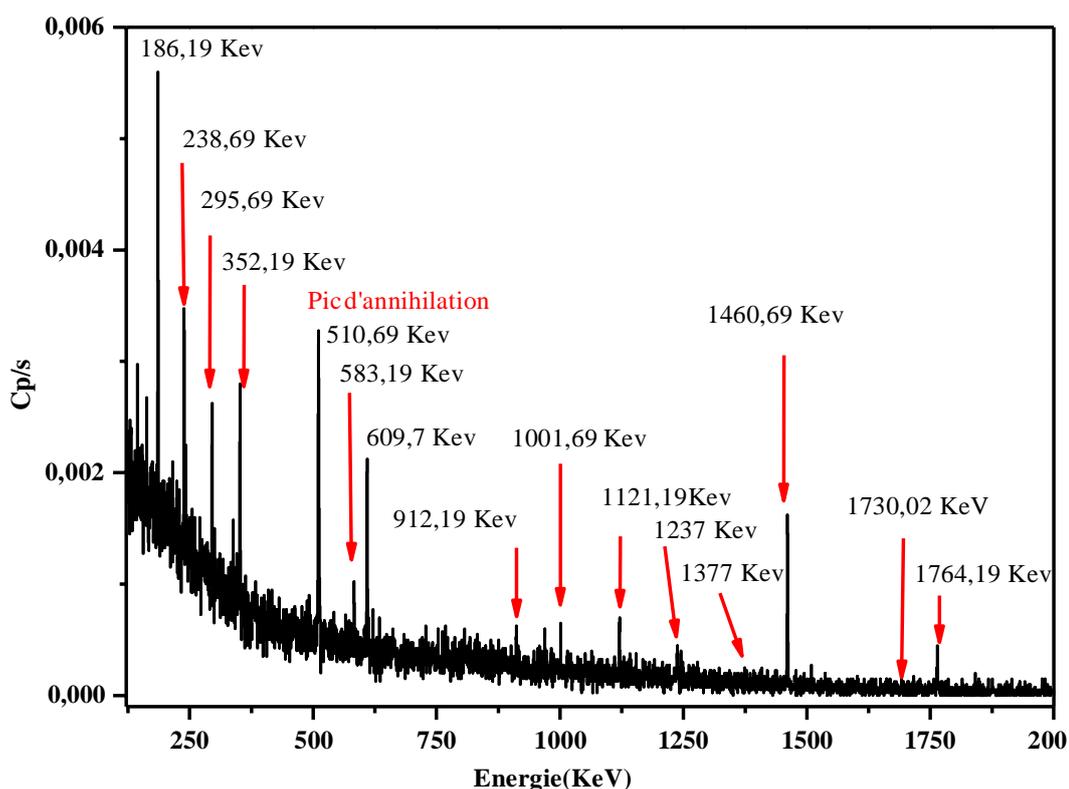
Pour une géométrie de comptage donnée les constantes de sensibilité pour chaque élément et pour chaque pic (un élément peut avoir plusieurs isotopes et un isotope peut avoir plusieurs pics), ont été effectuées à l'aide d'étalons dont les concentrations sont connues. Les étalons pour chaque élément ont été préparés et mesurés en tenant compte de toutes les erreurs qui peuvent arriver inévitablement.

### IV-1- Introduction :

La caractérisation analytique de la bentonite étudiée est réalisée au moyen de la technique d'analyse par Activation Neutronique Instrumentale pour déterminer les éléments de traces contenus dans le sol. Dans cette partie, nous présentons tous les résultats des étapes intermédiaires qui conduisent au résultat final (la composition chimique des échantillons).

### IV-2- Mesure du bruit de fond

Cette mesure nous renseigne sur le niveau de la radioactivité naturelle; pour obtenir le spectre de bruit de fond, l'acquisition a été effectuée avec un détecteur germanium hyper pur Ge(HP)-monté dans un château en plomb à faible bruit de fond. Le temps d'acquisition du spectre bruit a été fixé 40000 secondes, le temps ne nécessaire pour l'amélioration des statistiques du comptage déduit pour les faibles activités due a la radioactivité naturelle.



**Fig IV-1:** Spectre  $\gamma$  du bruit de fond de l'installation spectrométrie  $\gamma$  utilisée.

D'après le spectre obtenu de la figure IV-5, on remarque que le pic d'annihilation qui correspond à l'énergie  $E_{\gamma} = 511 \text{ keV}$ , est un pic commun à plusieurs éléments dont les raies  $\gamma$  possèdent une énergie  $E_{\gamma} = 991022 \text{ keV}$ .

## IV-3- Mesure des échantillons par INAA

## IV-3-1- Dosage des éléments de longues périodes :

Les éléments de longues périodes sont identifier aussi par l'intermédiaire d'une réaction de capture radiative  ${}^A\text{X} (n, \gamma) {}^{A+1}\text{X}$  en utilisant la voie de longue période, c'est-à-dire qu'on doit effectuer une mesure après un temps de décroissance de plusieurs semaines. Ces éléments à doser sont classés dans le tableau IV-1 avec les énergies gamma qui ont été choisies pour leurs dosages.

Tableau IV-1 : Propriétés nucléaires des éléments à doser

Nucléide	Réaction nucléaire	Période	Energie gamma (keV)
Sc-46	${}^{45}\text{Sc} (n, \gamma) {}^{46}\text{Sc}$	83.8 jours	889.26, 1120.52
Fe-59	${}^{58}\text{Fe} (n, \gamma) {}^{59}\text{Fe}$	45.1 jours	1099.2, 1291.5
Co-60	${}^{59}\text{Co} (n, \gamma) {}^{60}\text{Co}$	5.26 ans	11173.2, 1332.5
Zn-65	${}^{64}\text{Zn} (n, \gamma) {}^{65}\text{Zn}$	244 jours	1115.5
La-140	${}^{139}\text{La} (n, \gamma) {}^{140}\text{La}$	40.22 heures	328.8, 487.1, 815.7, 1596.4
Ce-141	${}^{140}\text{Ce} (n, \gamma) {}^{141}\text{Ce}$	32.45 jours	145.4
Pa-233	${}^{232}\text{Th} (n, \gamma) {}^{233}\text{Th}$ ${}^{233}\text{Th} \rightarrow {}^{233}\text{Pa} + \beta^- + \nu^-$	27 jours	259
Np-239	${}^{238}\text{U} (n, \gamma) {}^{239}\text{U}$ ${}^{239}\text{U} \rightarrow {}^{239}\text{Np} + \beta^- + \nu^-$	2.35 jours	277.6

Tableau IV-2 : Concentration des éléments dosés dans l'échantillon  $M_0$ 

Nucléide	exp ( $\lambda \cdot t_d$ )	$(A_x/m_x)/(A_{std}/m_{std})$	$C_{std}$	$C_x(\mu\text{g/g})$
Sc	1.016	0.40757	24.0( $\mu\text{g/g}$ )	9.9381
Fe	1.030	0.29807	90.2(g/kg)	27.6924 (g/kg)
Co	1.0007	0.88158	5.55( $\mu\text{g/g}$ )**	4.8962
Zn	1.0054	0.78958	68.7( $\mu\text{g/g}$ )	54.537
La	2.2155	2.33005	6.11( $\mu\text{g/g}$ )**	31.5411
Ce	1.0419	5.30124	11.2( $\mu\text{g/g}$ )	61.861
Pa (Th)	1.0507	1.97517	15.1( $\mu\text{g/g}$ )	31.337
Np (U)	1.7620	1.90188	2.41( $\mu\text{g/g}$ )	8.0761

**Tableau IV-3** : Concentration des éléments dosés dans l'échantillon M1

Nucléide	$\exp(\lambda \cdot t_d)$	$(A_x/m_x)/(A_{std}/m_{std})$	$C_{std}$	$C_x(\mu\text{g/g})$
Sc	1.0079	0.24897	24.0( $\mu\text{g/g}$ )	6.0224
Fe	1.0150	0.17533	90.2(g/kg)	16.0519(g/kg)
Co	1.0003	2.08021	5.55( $\mu\text{g/g}$ )**	7.3886
Zn	1.0027	0.56759	68.7( $\mu\text{g/g}$ )	39.0987
La	1.4857	1.36617	6.11( $\mu\text{g/g}$ )**	12.4015
Ce	1.0206	1.88901	11.2( $\mu\text{g/g}$ )	21.5927
Pa (Th)	1.0249	0.66936	15.1( $\mu\text{g/g}$ )	10.3590
Np(U)	1.3257		2.41( $\mu\text{g/g}$ )	-----

**Tableau IV-4** : Concentration des éléments dosés dans l'échantillon M2

Nucléide	$\exp(\lambda \cdot t_d)$	$(A_x/m_x)/(A_{std}/m_{std})$	$C_{std}$	$C_x(\mu\text{g/g})$
Sc	1.02625	0.21831	24.0( $\mu\text{g/g}$ )	5.3769
Fe	1.04999	0.34042	90.2(g/kg)	32.2408(g/kg)
Co	1.00113	1.20654	5.55( $\mu\text{g/g}$ )**	6.7038
Zn	1.00892	0.11210	68.7( $\mu\text{g/g}$ )	7.7699
La	3.64679	0.80377	6.11( $\mu\text{g/g}$ )**	17.9095
Ce	1.06908	1.66636	11.2( $\mu\text{g/g}$ )	19.9524
Pa-(Th)	1.0838	0.55332	15.1( $\mu\text{g/g}$ )	9.0553
Np (U)	2.5127	0.71289	2.41( $\mu\text{g/g}$ )	4.3169

**IV-3-2- Calcul d'erreur**

Nous avons utilisé la Loi de propagation d'erreur (III.1) pour calculer les incertitudes de mesure.

$$\sigma_u^2 = \left(\frac{\partial u}{\partial x}\right)^2 \sigma_x^2 + \left(\frac{\partial u}{\partial y}\right)^2 \sigma_y^2 + \left(\frac{\partial u}{\partial z}\right)^2 \sigma_z^2 + \dots \quad (\text{IV.1})$$

L'erreur sur la concentration calculée par la voie comparative est donnée par l'équation :

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

L'erreur sur la masse calculée par la voie absolue est donnée par l'équation :

$$\frac{\Delta m}{m} = \sqrt{\left(\frac{\Delta \epsilon}{\epsilon}\right)^2 + \left(\frac{\Delta N_p}{N_p}\right)^2 + \left(\frac{\Delta m_e}{m_e}\right)^2 + \left(\frac{\Delta \phi}{\phi}\right)^2 + \left(\frac{\Delta \sigma}{\sigma}\right)^2} \quad (IV.3)$$

Nous avons utilisé la loi de propagation d'erreur pour calculer les incertitudes de mesure : Dans le tableau IV-5, nous donnons les récapitulatifs des concentrations finales obtenues par la technique INAA.

**Tableau IV-5 :** Valeur d'erreur des éléments mesurés par INAA pour les échantillons M1, M2 et M3.

Nucléide	$C_{M0} \pm \sigma$ (µg/g)	$C_{M1} \pm \sigma$ (µg/g)	$C_{M2} \pm \sigma$ (µg/g)	$\Delta M1$ (%) a expliquer	$\Delta M2$ (%) a expliquer
Sc	9.94 ±0.11	6.02 ±0.71	5.38 ±0.71	39.43	4.56
*Fe	27.7 ±0.04	16.0 ±0.05	32.2 ±0.04	42.23	-4.5
Co	4.89 ±0.47	11.5 ±0.45	6.7 ±0.48	----	-1.81
Zn	54.5 ±0.24	39.1 ±0.13	7.77 ±0.21	28.25	46.73
La	31.5 ±0.42	12.4 ±0.37	17.9 ±0.44	60.63	13.6
Ce	61.8 ±0.37	21.6 ±0.30	19.9 ±0.40	65.04	41.9
Th	31.3 ±0.20	10.3 ±0.17	9.05 ±0.24	67.09	22.25
U	8.07 ±0.27	LD	4.31 ±0.22	100.	3.76

Nous avons dosé la majorité des éléments qu'on a trouvé dans le standard utilisé (soil-7) par la méthode relative, alors qu'il y a des éléments qui présentent une particularité; où leurs énergies gamma interfèrent avec d'autres éléments, ces dernier présente une difficulté de leurs dosages. Pour remédier ce problème, nous avons utilisé les deux méthodes absolue et relative afin de soustraire la contribution d'autres éléments dans le pic d'absorption totale en énergie de ces éléments à analyser.

La caractérisation des sols par la techniques nucléaire INAA a permis d'identifier la composition chimique globale des échantillons solides, en éléments majeurs tels que le fer (Fe), en particulier les éléments de terres rares (REEs) qui sont indicateurs de la présence d'éléments fissiles tels que l'uranium et le thorium. Les oligo-éléments ont également été détectés comme le zinc (Zn), le cobalt (Co), le scandium (Sc).

Pour nos échantillons, nous avons enregistré l'absence des éléments Mercure (Hg) et le Sélénium (Se), à noter aussi la présence des éléments Zn, Co à très faibles concentrations (de l'ordre de quelques ppm) ce qui traduit que le gisement de bentonite de notre échantillon brute étudié, n'avait été exposé à une aucune source de pollution externe par les métaux lourds ou des éléments polluants en général.

On remarque d'après les résultats fournis dans les tableaux (IV-2, IV-3 et IV-4) que la teneur en fer dans l'échantillon M1 ( $16.0 \pm 0.05 \text{g/kg}$ ) a diminué par rapport au M<sub>0</sub> ( $27.7 \pm 0.04 \text{g/kg}$ ), et ceci est du au traitement de l'échantillon brute M<sub>0</sub> par de l'acide ce qui a entraîné la dissolution de fer dans l'acide. Pour l'échantillon M<sub>2</sub>, nous avons enregistré une augmentation de la teneur en fer qui est de  $32.2 \pm 0.04 \text{g/kg}$ , ceci est dû principalement au protocole de son préparation qui a nécessité l'utilisation de l'hématite qui est l'oxyde de fer. Donc les résultats de dosage du fer confirment clairement d'une part ; l'insertion d'oxydes de fer (III) dans M2 et permet d'autre part de quantifier le revêtement.

Nous avons constaté aussi la même variation concernant la concentration de l'uranium dosée qui est variable dans les trois échantillons.

L'uranium a été dosé par activation neutronique en utilisant le radio-isotope Np-239. La production des éléments de terres rares par la réaction de fission de l'U-235 peut nous conduire à une sous-estimation de la teneur de l'uranium dans nos échantillons. Ce problème peut être résolu soit par la mesure passive des échantillons du sol par spectrométrie gamma ; ou par l'estimation de la concentration de l'U-235 provenant de la réaction de fission de l'uranium-235.

**VI-4- Conclusion**

Les résultats de cette analyse nous ont permis de conclure que la technique INAA est une méthode très sensible, précise, multi élémentaires et non destructive.

L'analyse des échantillons de sol a nécessité l'application de la voie relative avec l'utilisation d'un standard de référence externe pour obtenir des résultats avec une bonne précision. Néanmoins cette voie de dosage rend la technique longue et d'un coût élevé.

Le dosage de l'uranium par voie relative nous a mené à deux réactions d'interférences.

La réaction de capture radiative en utilisant l'uranium-238 et la réaction de fission de l'uranium-235. Cette dernière a nécessité la correction de la contribution de l'U-235 pour obtenir une concentration précise de l'uranium.

Cette technique a permis de valider les protocoles de modification et de synthèse de l'échantillon brute en confirmant l'inclusion des réactifs cibles tels que l'hématite en les présentant comme de bons candidats pour le traitement des déchets radioactifs.

On recommande à travers cette étude d'utiliser un autre standard de type sol qui sera plus riche en éléments, qui nous permettra la détermination de tous les éléments qui se trouvent dans l'échantillon pour une caractérisation complète.

### Conclusion Générale

L'objectif de ce travail était de doser les éléments de traces dans le sol par la technique d'analyse par activation neutronique instrumentale en utilisant les voies des moyennes et des longues périodes, afin d'étudier le fond géochimique et évaluer le niveau de pollution dans le site étudié.

Dans ce travail nous avons irradié les échantillons de sols après préparation et conditionnement par un flux de neutrons produit par le réacteur nucléaire NuR du Centre de Recherche Nucléaire de Draria. Après l'irradiation, nous avons effectué deux campagnes de mesures différentes en se basant sur les périodes des radioéléments constituant l'échantillon à analyser, une campagne pour les mesures des radioéléments de moyennes périodes et autre pour les radioéléments de longues périodes.

L'analyse qualitative est effectuée grâce à la mesure de l'énergie des photons gamma. La détermination de la concentration de chaque élément présent dans les échantillons de sol, est assurée à partir de l'intensité des pics d'absorption totale, en appliquant la méthode relative et absolue. Nous avons appliqué la méthode relative, avec une précision inférieure à 10 % ; cette méthode a nécessité l'utilisation d'un standard de référence de sol (Soil-7) fourni par l'AIEA (Agence Internationale à l'Energie Atomique).

La méthode absolue a été appliquée pour le calcul des contributions des radioéléments interférant (les éléments qui émettent les mêmes énergies gamma). Les erreurs commises sur l'efficacité de détection et le flux de neutrons sont les principales sources qui diminuent la précision de cette méthode pour la détermination de concentrations avec une erreur qui peut atteindre une valeur de 20%.

Selon les résultats obtenus, nous avons constaté que le site n'a pas été exposé à une pollution par les éléments lourds. En fait la présence des éléments de traces dans les sols provient généralement de l'altération des éléments de la roche mère ou éventuellement des sources de contaminations externes. Néanmoins, le site étudié est loin de toute source de perturbation. La présence d'éléments traces disponible est uniquement d'origine naturel.

Dans l'ensemble, suite aux résultats obtenus, on peut conclure que la technique d'analyse par activation neutronique instrumentale, est très puissante et attractive, car elle nous a permis d'analyser les échantillons de sol sans traitement chimique, elle est aussi non destructive et très précise.

Enfin il est nécessaire de développer d'autres méthodologies de dosages des éléments de traces sans l'utilisation de standards de référence, comme la méthode keyzero (kONAA) ou avec l'utilisation des méthodes de simulation Monte Carlo qui permettent de donner des résultats avec une précision suffisante avec un coût d'analyse abordable.

On recommande aussi à travers cette étude d'utiliser un autre standard de référence de même type de sol qui sera plus riche en éléments, qui nous permettra la détermination de tous les éléments qui se trouvent dans l'échantillon pour une caractérisation complète.

Références

- [1] Joliot-Curie, Irène, Frédéric Joliot-Curie, and Frédéric Joliot. *La projection de noyaux atomiques par un rayonnement très pénétrant: l'existence du neutron*. Vol. 32. Hermann et cie, 1932.
- [2] Meyer, G. (2003, February). L'analyse par activation de neutrons de réacteur. In *Journal de Physique IV (Proceedings)* (Vol. 103, pp. 243-252). EDP sciences.
- [3] Belamri M, Benrachdi K, Use of neutron activation analysis for the control of air pollution of Algiers. *Pollution Atmosphérique N°207 –Juillet- Septembre 2010*
- [4] Azbouche A., Belamri M., Mouzai M., Belgaid M., 2014. Determination of rare earth elements (REEs) in soil by INAA technique for the study of hydrique erosion watershed 2014. 8<sup>th</sup> African Conference on Research reactor utilization and Safety , Algiers 14-16 December 2014
- [5] A. Mansouri, M. Mouzai, L. Hamidatou Alghem, B. Beladel, M. Belamri, M.E.A. Benamar Détermination de la concentration du zinc dans les cheveux des femmes atteinte cancer du sein par l'analyse par activation neutronique instrumentale (INAA) Conference Paper . Novembre 2015
- [6] Greenberg R., Bode P., Elisabete A., Fernandes D- N., 2011. Neutron Activation Analysis : A Primary Method of Measurement, *Spectrochimica Acta Part B* .
- [7] Dahi & Merchachi .L , 2010. Chapitre 1 ; Interaction des rayonnements avec la matière. Thèse de Master , Faculté des sciences Département de Physique, Université Abou Bekr Belkaid Tlemcen.
- [8] The Review of Particle Physics , Particle Data Group, 2014 .
- [9] FUESS, H., BERTAUT, E. F., PAUTHENET, R., 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*, 1970, vol. 26, no 12, p. 2036-2046.
- [10] K. AOlive et al.(PDG)*Chin. Phys. C*, 38,090001 ,2014
- [11] MICHEL, L. U. N. G. Les réacteurs nucléaires du futur.
- [12] Alaerts, L., De Beeck, J. O., & Hoste, J. (1974). An<sup>227</sup>Ac-Be isotopic neutron source for application in high-accuracy neutron activation analysis. *Analytica Chimica Acta*, 69(1), 1-9.
- [13] Verma, H. R., 2007. *Atomic and Nuclear Analytical Methods*, Punjabi University ; Springer Link.
- [14] El Masri, Y., Keutgen, T., & Tilquin, I. (1994). Comment détecter les neutrons?.
- [15] Peetermans S., 2009. *Neutron Activation Analysis, Training ship at the Nuclear Physics Institute*.

- [16] Benmosbah M., 2005. Spectrométrie des neutrons : étude de la réponse d'un ensemble de compteurs proportionnels École Doctorale Louis Pasteur, Université de Franche Comté.
- [17] Balla M., Keomley G., Molnar Zs., 1998. Neutron Activation Analysis. Institute of Nuclear Technology, Technical University Budapest, H-1521
- [18]. Landsberger, S., George, G., Lara, R., Tamalis, D., Louis-Jean, J., & Dayman, K. (2012). Analysis of naturally occurring radioactive material using neutron activation analysis and passive Compton suppression gamma-ray spectrometry. *NUKLEONIKA*, 57(4), 461-465.
- [19] Paul REUSS. Précis de neutronique, collection Génie Atomique . EDP Science 2003.
- [20] Brissaud, I., Le Bornec, Y., Tatischeff, B., Bimbot, L., Brussel, M. K., & Duhamel, G. (1972). Détermination du rayon de la distribution de neutrons de certains noyaux par l'étude de la diffusion élastique de particules alpha de 166 mev. *Nuclear Physics A*, 191(1), 145-165.
- [21] Milman, B., Amsel, G., & Loyau, M. C. (1959). Étude des rayons  $\gamma$  produits par la diffusion inélastique des neutrons rapides. *J. phys. radium*, 20(1), 51-59.
- [22] <https://www.sciencedirect.com/topics/engineering/neutron-absorption>
- [23] Raymond L. Murray, Keith E. Holbert, in Nuclear Energy (Seventh Edition), 2015
- [24] Interaction Matière-Rayonnement. Professeur Eva PEBAY-PEYROULA Université Joseph Fourier de Grenoble Année Universitaire 2011/2012.
- [25] Interaction Matière-Rayonnement, Pr. Laurent Dusseau Équipe «Électronique et Rayonnements » Institut d'Électronique du Sud (IES) 2009.
- [26] [http://metronu.ulb.ac.be/npauly/Pauly/metronu/1\\_4.pdf](http://metronu.ulb.ac.be/npauly/Pauly/metronu/1_4.pdf) ; Chapitre 4: Interaction des photons avec la matière - ULB
- [27] Interaction Matière-Rayonnement, Pr. A. Sabir- Université Mohammed V Agdal - Faculté des sciences Rabat – SMP / S6 – 2012.
- [28] LI, Y.-R., SHAKHVOROSTOV, D., PEREIRA, G., *et al.* A novel method for quantitative determination of ultra-low wear rates of materials, Part I: on steels. *Tribology letters*, 2009, vol. 33, no 2, p. 143-152.
- [29] Olga Shulyakova, Petr Avtonomova, Valeria Kornienkoa New Developments of Neutron Activation Analysis Applications. *Social and Behavioral Sciences* 195 (2015) 2717.
- [30] Engelmann, C. (1980). Principe, possibilites et applications de l'analyse par activation aux photons gamma. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 55(2), 379-393.
- [31] <http://www.univ-setif.dz/Tdoctorat/facultes/facultes/Science/Alghem.pdf>

- [32] De Soete, D., Gijbels, R., & Hoste, J. (1972). *Neutron activation analysis* (Vol. 34). London: Wiley-Interscience.
- [33] MESSAOUDI, M. (2016). *Développement de la méthode de séparation radiochimique du sélénium basée sur l'activation neutronique RNAA et son application sur les grains de café et les feuilles de menthe* (Doctoral dissertation)
- [34] L. Alghem, 2005. Implémentation et validation de la méthode de standardisation de l'analyse par activation neutronique **K0-NAA**. Mémoire de Magistère , Faculté des Sciences Département de Physique, UNIVERSITÉ MENTOURI de CONSTANTINE .
- [35] L. Alghem, 2010. Mise au point de la méthode K0-NAA en utilisant la convention de HeGDAHL et le formalisme de WESTCOTT et son application dans la nutrition, la santé et la minéralogie. Thèse de Doctorat, Faculté des sciences Département de Physique, UNIVERSITÉ FERHAT ABBAS – SETIF .
- [36] ACHOUR, Souad, AZBOUCHE, Ahmed, AMOKRANE, Samira, *et al.* Characterization Study of Algerian Bentonite Samples Using Nuclear Techniques Analysis for Environment Applications. Available at SSRN 3384001, 2018.
- [37] MELKI, Abderrahim. ETUDE ANALYTIQUE DES CARACTERES PHYSICO-CHIMIQUES ET HYDRIQUES DE DEUX TYPES DE BENTONITE (exemple de la bentonite de Maghnia et de la bentonite de Mostaganem). Thèse de doctorat.
- [38] REVEL, Gilles. *Analyse par activation*. Vol. 5. Ed. Techniques Ingénieur, 1965.