

REPUBLIQUE ALGERIENNE DEMOCRATIQUE ET POPULAIRE
MINISTERE DE L'ENSEIGNEMENT SUPERIEUR ET DE LA RECHERCHE
SCIENTIFIQUE

UNIVERSITE - BLIDA 1



Faculté des sciences

Département de physique

Mémoire de fin d'étude

Pour l'Obtention du diplôme de master en physique

Option : Physique des rayonnements

Thème :

**Etude de la teneur en radionucléides naturels dans un
sol du Hoggar**

Présenté par :
M^{lle} LARABI Kaouthar

Soutenu le 22/10/2020 devant le jury composé de :

Mr KHELIFI Rachid	Professeur, (USDB)	Président
Mr GUEDIOURA Bouzid	Chercheur, (CRND)	Encadreur
Mr SEGUINI Tarik	Chargé de recherche, (CRND)	Examineur

Blida 1-2019/2020-

REMERCIEMENT

Je remercie le Dieu de m'avoir donnée la force, le courage, et la patience pour mener à bien ce modeste travail.

Mes remerciement à mes parents qui n'ont pas cessé ou hésité à tout moment de protégé, de veiller à mon instruction.

Je tiens tout particulièrement à exprimer mes profondes gratitudes ainsi que mes sincères reconnaissances à mon promoteur Monsieur GUEDIOURA Bouzid, chercheur principal au CRND/DRN pour m'avoir proposé ce sujet, guidé par ses conseils judicieux et avisé et encouragé tout au long de mon stage.

Mes vifs sincères remerciements à monsieur KHELIFI Rachid pour l'honneur qu'il m'a fait en acceptant de présider ce jury

Mes vifs remerciements à :

Monsieur SEGUINI Tarik, d'avoir accepté d'examiner et juger ce travail.

Mes remerciements vont :

Aux enseignements de la spécialité physique des rayonnements.

A tout(es) mes amis (es) de physique des rayonnements (2019/2020).

DEDICACE

Je dédie ce modeste travail à :

La lumière de mes jours, la source de mes efforts, la flamme de mon cœur, celle qui m'a éclaircie les chemins, celle qui n'a cessé de me soutenir et de m'encourager durant toutes les années de mes études, celle qui est présente à mes côtés pour me consoler quand il fallait, rien que pour toi maman, tous les mots du monde ne suffiront pas pour te remercier.

L'homme de ma vie, mon exemple éternel, mon soutien moral et source de joie et de bonheur, la personne qui m'a donné la force, celui qui s'est toujours sacrifié pour me voir réussir, rien que pour toi papa, que Dieu te préserve, t'accorde santé, bonheur, et te protège de tout mal inshallah.

A mon cher et unique frère Aissa.

A mes chères sœurs Chaimaa, Loubna et son mari Mohammed et leurs fille Nibel.

A mes meilleures amies Rokaia, Selma, Reyane, Bisma, Chaima, Oumaima.

A toute la promotion de Master Physique des rayonnements.

A ceux qui m'ont chers, là où ils pourraient se trouver.

Kaouthar

SOMMAIRE

REMERCIEMENTS

DÉDICACE

LISTE DES TABLEAUX

LISTE DES FIGURES

LISTE DES ABREVIATIONS

Introduction générale (1)

Partie Bibliographique

Chapitre I : Radioactivité naturelle (3)

I.1. Introduction (3)

I.2. Modes de désintégrations radioactives (3)

I.2.1. Désintégration α (4)

I.2.2. Désintégration β (4)

I.2.2.1. Désintégration β^+ (4)

I.2.2.2. Désintégration β^- (4)

I.2.3. Désintégrations γ (4)

I.3. Lois fondamentales de la radioactivité (4)

I.3.1. Activité (5)

I.3.2. la décroissance (5)

I.3.3. Période radioactive (6)

I.4. Unité de mesure de la radioactivité (6)

I.5. Familles radioactives (7)

I.5.1. Chaînes de désintégration radioactives (7)

I.5.1.1. famille de l'uranium (^{238}U) (8)

I.5.1.2. famille de thorium (^{232}Th) (8)

I.5.1.3. Famille de l'uranium (^{235}U) (9)

Chapitre II : Interactions rayonnements matière (10)

II.1. Introduction (10)

II.2. Différents types des rayonnements ionisants (10)

II.2.1. Les rayonnements directement ionisants (10)

II .2.2.Les rayonnements indirectement ionisants	(10)
II .3.Interaction des rayonnements ionisants avec la matière	(10)
II .3.1. Rayonnement γ	(10)
II .3.1.1. L'effet photoélectrique	(11)
II .3.1.2.L'effet Compton	(12)
II .3.1.3.Création des paires	(12)
II .3.1.4.L'effet Raleigh	(13)
II .3.1.5.Coefficient d'atténuation et libre parcours moyen	(13)
II .4. Électrons	(13)
II .4.1. Ionisation	(14)
II .4.2. Effet de freinage (Bremsstrahlung)	(14)
II .4.3. La diffusion coulombienne multiple	(14)
II .4.4. Annihilation	(14)
II .4.5. Parcours des électrons dans la matière	(14)
Chapitre III : Spectrométrie γ	(15)
III .1.Généralités sur la spectrométrie γ	(15)
III.2.Principe de la technique spectrométrie gamma	(15)
III.3.Chaine d'acquisition	(16)
III.3.1.Le préamplificateur	(16)
III.3.2.L'amplificateur	(16)
III.3.3.Le convertisseur analogique-numérique et l'analyseur multicanaux	(16)
III.4. Les détecteurs	(17)
III.4.1.Principe de fonctionnement	(17)
III.4.2.Détecteur au Germanium hyper pur (Ge HP)	(17)
III.5.Calibration d'une chaine de mesure	(17)

III .5.1.Calibration analogique	(17)
III .5.2.Calibration en énergie	(18)
III.6. Les spectres γ	(18)
III.7. Le temps morts	(19)
III.8. Interférences	(19)
III.8.1. Interférence spectrale	(19)
III.8.2. Interférence nucléaire	(20)
III.9. Logiciel de traitement et d'analyse de spectre γ	(20)
III.10. Grandeurs fondamentaux pour le calcul de l'activité	(21)
III.10.1. Les différentes grandeurs	(21)
III.10.1.1 Paramètres reliés à la source radioactive	(21)
III.10.1.2 Paramètres reliés au détecteur	(22)
III.10.1.3 Paramètres reliés à l'électronique	(22)
III.10.2. Paramètres nécessaires pour calculer l'activité d'un échantillon	(22)
III.11. Mesure de la teneur en Uranium dans un échantillon via la raie $E_{\gamma} = 1001 \text{ keV}$ de ^{238}U	(23)
III.12. Calcul des incertitudes	(25)
Chapitre IV : Analyse par fluorescence X	(27)
IV.1.Introduction	(26)
IV.2.Bases théoriques de la technique XRF	(26)
IV.2.1.La fluorescence X	(26)
IV.2.1.1 Principe	(27)
IV.2.1.2. Analyse qualitative	(27)
IV.2.1.3. Analyse quantitative	(27)
IV.2.2. Méthodes relatives	(27)
IV.2.2.1. Méthode des standards externes	(28)

IV.2.2.2. Méthode des standards internes	(28)
IV.2.2.3. Méthodes de régression	(28)
IV.2.2.4. Méthode de l'émission-transmission	(29)
IV.2.2.5. Méthode des paramètres fondamentaux	(29)
IV.2.3. Section efficace de production X (Q_i)	(29)
IV.2.4. Facteur d'accroissement (H_j)	(30)
IV.2.5. L'efficacité du détecteur	(30)
IV.2.6. Pics de diffusion	(30)
Partie expérimentale	
Chapitre V : Matériels et Méthodes	(31)
V.1. Situation géographique du gisement du Hoggar	(31)
V.2. Préparation des échantillons	(33)
V.2.1. Concassage et broyage	(33)
V.2.2. Tamisage	(36)
V.3. Mesure de la radioactivité naturelle	(36)
V.3.1. Chaîne de spectrométrie γ	(36)
V.3.2. Analyse du spectre γ	(38)
V.4. La technique de la spectrométrie de fluorescence des rayons X	(39)
V.4.1. Dispositif XRF	(39)
Chapitre VI : Résultats et discussion	(41)
VI.1. Introduction	(41)
VI.2. Analyse par XRF	(41)
VI.3. Analyse par spectrométrie γ haute résolution	(42)
VI.3.1. Etalonnage en énergie	(42)
VI.3.2. Mesure du bruit de fond	(45)
VI.3.3. Calibration en efficacité de la chaîne de spectrométrie γ	(46)

VI.3.4. Analyse qualitative et identification des éléments	(46)
VI.3.5. Analyse quantitative	(49)
VI.3.5.1. Procédure de mesure	(49)
VI.3.5.2. Analyse des pics γ	(50)
VI.3.5.3. Recherche des données nucléaires des radionucléides	(50)
VI.3.5.3.1. Quantification de l'Uranium 238	(51)
VI.3.5.3.2. Quantification du Radium 226	(52)
VI.3.5.3.3. Quantification du Thorium 232	(53)
VI.3.5.3.4. Quantification du potassium ^{40}K	(55)
❖ Radioactivité artificielle ^{137}Cs	(55)
V.3.5.4. Calcul de l'activité d'un radionucléide	(57)
V.3.5.4.1. Mesure de la radioactivité naturelle de l'échantillon conglomérat de la roche du Hoggar	(57)
V.3.5.4.2. Calcul de l'activité des radionucléides sans tenir compte de l'effet de matrice	(58)
V.3.5.4.3. Cas d'échantillon épais	(58)
Conclusion générale	(62)
Références bibliographique	
Annexe	
Résumé	

Tableau 1:Caractéristique des familles radioactives.

Tableau 2 : Résultats XRF de la composition élémentaire.

Tableau 3 : Correspondance numéros du canal et énergie des pics de la source ^{152}Eu .

Tableau 4 : Données nucléaires nécessaires au calcul de l'activité des radioéléments.

Tableau 5 : Radionucléides détectés, leurs énergies et les probabilités d'émission γ .

Tableau 6 : Activités des radioéléments calculés.

Tableau 7 : Variation du coefficient d'auto absorption en fonction de l'énergie E_γ en (keV) et la densité ρ en (g/cm^3).

Tableau 8 : Radionucléides détectés leurs énergies et activités spécifiques pour μ (densité=0.8 g/cm^3).

Tableau 9: Radionucléides détectés leurs énergies et activités spécifiques pour μ (densité=1.4 g/cm^3).

Tableau 10: Radionucléides détectés leurs énergies et activités spécifiques pour μ (densité=2.2 g/cm^3).

Figure 1 : Le degré pénétration des radiations α , β , γ .

Figure 2 : Chaîne de désintégration de ^{238}U .

Figure 3 : Chaîne de désintégration du ^{232}Th .

Figure 4 : Chaîne de désintégration de ^{235}U .

Figure 5 : Prédominance des interactions photon-matière en fonction de l'énergie du photon incident et du numéro atomique du milieu.

Figure 6 : l'effet photoélectrique.

Figure 7 : l'effet Compton.

Figure 8 : l'effet création des paires.

Figure 9 : Modules de la chaîne de spectrométrie γ

Figure 10 : Spectre γ caractéristique d'un détecteur Hp/Ge

Figure 11 : Principe de détermination de l'aire nette d'un pic gamma par soustraction du bruit de fond continu sous le pic.

Figure 12 : Principe de l'interaction photoélectrique.

Figure 13 : carte de situation géographique du Hoggar.

Figure 14 : échantillon de roche Conglomérat du minerai du Hoggar

Figure 15: Concasseur à mâchoire, type DRAGON.

Figure 16 : Concasseur à cône.

Figure 17 : Broyeur de type (FRITISCH). .

Figure 18 : échantillons broyés à $100\mu\text{m}$

Figure 19 : Tamiseur de type (Retsch AS 200).

Figure 20 : Chaîne de spectrométrie γ .

Figure 21: Détecteur hyper pur Hp/Ge.

Figure 22 : Le cryostat.

Figure 23 : Rack d'instrumentation de la chaîne de la spectrométrie γ .

Figure 24 : Le dispositif de la spectrométrie de fluorescence X.

Figure 25 : Porte échantillon en polyéthylène pour l'analyse de l'XRF.

Figure 26 : Spectre obtenu suite à une mesure XRF d'un échantillon de Conglomérat (roche du Hoggar).

Figure 27 : Spectre caractéristique de la source étalon d' ^{152}Eu .

Figure 28 : Spectre γ des sources standards.

Figure 29 : Droite de calibration en énergie de la chaîne de spectrométrie γ .

Figure 30 : Spectre γ du bruit de fond de l'installation CRND.

Figure 31: Courbe d'efficacité du détecteur en fonction de l'énergie à la géométrie 3.

Figure 32 : spectre sur la bande d'énergie E_γ [0-600] keV.

Figure 33 : spectre sur la bande d'énergie E_γ [600-1200] keV.

Figure 34 : spectre sur la bande d'énergie E_γ [1200-2000] keV.

Figure 35 : Graphe de la raie γ du ^{214}Pb à $E_\gamma=351.93$.

Figure 36 : Graphe de la raie γ du ^{214}Bi .

Figure 37 : Détermination du ^{226}Ra

Figure 38 : Graphe de la raie γ du ^{212}Pb

Figure 39 : Graphe du Pic de la raie γ du ^{208}Tl .

Figure 40 : Graphe du Pic de la raie γ du ^{212}Bi .

Figure 41 : Graphe du pic de la raie γ du ^{40}K .

Figure 42 : Graphe du pic de la raie du ^{137}Cs .

Figure 43 : Graphe du pic de la raie du ^{234}Pa .

Figure 44 : Graphe du pic de la raie du ^{228}Ac .

Figure 45 : Représentation de la variation du coefficient d'auto atténuation pour les valeurs simulées par MCNP en fonction de l'énergie pour différentes densités ($d_1 = 0.8$, $d_3 = 1.4$, $d_8 = 2.2$) g/cm^3 .

^{235}U	Uranium 235.
^{238}U	Uranium238.
^{232}Th	Thorium.
^{40}K	Potassium.
^{226}Ra	Radium.
^{206}Pb	Plomb.
A	Nombre de masse.
N	Nombre de neutrons.
Z	Numéro atomique.
β^+	Beta plus.
β^-	Beta moins.
α	Alpha.
ν_e	Neutrino électronique.
$\bar{\nu}_e$	Anti neutrino électronique.
e^+	Positron.
e^-	électron.
ε	Capture électronique.
$T_{1/2}$	Période radioactive.
A_c	Nombre de désintégrations par unité de temps(Activité).
A_{ci}	Activité partielle.
N	Nombre de noyaux à l'instant considéré dans le matériau donné.
λ	Constante de décroissance radioactive du nucléide (seconde ⁻¹).
p_i	Probabilité de désintégration.

N(t)	Nombre d'atomes présent à l'instant t.
N(0), N ₀	Nombre d'atomes présent initialement.
t	Temps.
s	Seconde.
Bq	Becquerel.
Ci	Curie.
keV	Kilo électron volts.
E _l	Energie de liaison de l'électron.
<i>l</i>	libre parcours moyen (cm).
μ	coefficient d'atténuation linéique (cm ⁻¹).
TEL	transfert d'énergie linéique (MeV/cm).
R	Parcours des électrons dans la matière.
I(x)	lois d'atténuation.
γ	photon gamma.
E	énergie(MeV).
X	Rayons X.
ppm	partie par million.

Introduction générale

La radioactivité est un phénomène naturel, tous ce qui nous entoure est radioactif. Elle est présente dans tous les milieux (roches, le sol, dans l'eau et dans nos matériaux de construction,...). La radioactivité naturelle provient principalement des radionucléides primordiaux comme le ^{40}K et les trois séries (^{238}U , ^{232}Th et ^{235}U) ainsi que leurs descendants, dont les périodes radioactives sont proches de l'âge de la terre. Ces radionucléides sont considérés comme les principaux termes source qui contribue à l'irradiation externe et interne au corps humain. L'intervention humaine à travers certaines activités industrielle, telle que l'extraction minière, le forage et la production pétrolière ou différents processus physico-chimiques sont mis en œuvre peuvent conduire à l'augmentation des risques radioactifs. La connaissance précise des concentrations des radionucléides naturelles dans des milieux est importante car ces milieux ont un lien direct et permanent avec l'homme durant toute sa vie.

Dans la littérature on trouve des nombreux travaux concernant la radioactivité dans l'environnement .les auteurs travaillant dans ce champ de recherche proposent plusieurs méthodes d'analyse consacrées à la mesure de la radioactivité dans les milieux différents. L'objectif de ce travail est de mesurer la radioactivité naturelle d'un échantillon de roche Conglomérat du Hoggar au moyen de deux techniques de caractérisation analytiques. Nous aurons a utilisé la technique de spectrométrie γ haute résolution avec détecteur germanium hyper pur(Hp/Ge) pour mesurer la radioactivité naturelle contenue dans notre échantillon et la technique d'analyse par fluorescence X(XRF) pour doser les éléments que contient notre échantillon.

L'étude bibliographique qui fait l'objet du premier chapitre est subdivisée en quatre parties. La première partie concerne les notions fondamentales de la radioactivité naturelle telle que les modes de désintégrations radioactives, les Unités de mesure de la radioactivité et aux familles et chaînes de désintégration radioactives.

En seconde et troisième partie nous donnerons des aspects théoriques de l'interaction rayonnements matière, ensuite nous introduisons également la techniques d'analyse par spectrométrie γ en vue de l'appliquer aux mesures de la radioactivité naturelles des échantillons de roches du Hoggar. Pour terminer nous abordons les méthodes de simulation qui sont largement utilisées pour l'étalonnage en rendement des détecteurs Hp/Ge.

La quatrième partie sera consacrée à la technique d'analyse par fluorescence-X (XRF) ou les notions de base théoriques seront abordés. Cette technique présente l'avantage d'être rapide, non destructive et multi élémentaire. Elle se base sur l'activation de l'échantillon par (γ ou X) pour obtenir des informations sur la nature et la qualité des éléments constituant l'échantillon. Nous allons montrer aussi que cette méthode est particulièrement adaptée pour obtenir d'importantes informations sur la composition élémentaire de divers échantillon.

La partie expérimentale concerne l'analyse spectrale, avec les étapes d'analyse suivit qui vont du comptage de l'échantillon au calcul de l'activité des radioéléments contenus dans l'échantillon de roche conglomérat du Hoggar et on finira par une conclusion.

Partie
bibliographique

Chapitre I

Radioactivité naturelle

I.1. Introduction

La radioactivité est un phénomène naturel, elle a été découverte en 1896 par le physicien français Henri Becquerel, il cherchait à savoir si les rayons émis par l'uranium étaient les mêmes que les rayons X. En mars 1896 à Paris, il découvrit que le film photographique avait été impressionné sans avoir été exposé à la lumière du soleil. Il en conclut que l'uranium émettait spontanément des rayonnements invisibles différents des rayons X.

Un peu plus tard, Pierre et Marie Curie réussirent à séparer des éléments radioactifs comme le Polonium et le Radium dont le rayonnement résulte d'une transformation spontanée statistique de noyaux atomiques instables d'un élément en noyaux d'un autre élément : c'est le phénomène de radioactivité. Celui-ci est observé avec 40 espèces atomiques naturelles dont la quasi-totalité a des nombres atomiques supérieurs à 81 ; le samarium et le potassium sont parmi les exceptions de cette règle. La radioactivité peut être provoquée dans certains noyaux par bombardement des noyaux de ces éléments : la radioactivité ainsi observée est dite artificielle [1].

I.2. Modes de désintégrations radioactives :

Le rayonnement émis de radioactivité, émis par les substances radioactives naturelles, renferme trois catégories de radiation, notées radiations α (alpha), β (bêta), γ (gamma) (Figure 1). Elle se distingue par leurs pouvoirs d'ionisation et de leurs pouvoirs de pénétration différents.

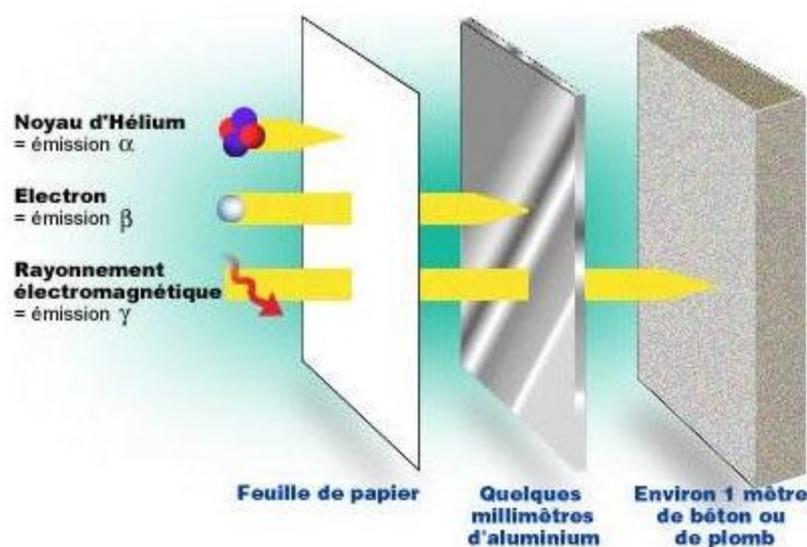


Figure 1 : Degré de pénétration des radiations α , β , γ .

I.2.1. Désintégration α :

Les particules α sont déviées par les champs électriques et magnétiques. Ce sont des noyaux d'hélium portant une charge He^{++} . Ils sont facilement absorbés par des couches fines de matière, leurs vitesses vont jusqu'à 2.10^7 ms^{-1} et leurs énergies atteignent 9 MeV environ.



I.2.2. Désintégration β :

Désigne tous types de radioactivité dans laquelle une particule beta (électron ou positron) est émise.

I.2.2.1. Désintégration β^+ :

On parle de désintégration β^+ (haute énergie) lorsque c'est un positron (particule chargée positivement) qui est émis.



I.2.2.2. Désintégration β^- :

On parle de désintégration β^- (basse énergie) lorsque c'est un électron (particule chargée négativement) qui est émis. Pour ce cas un neutron est converti en proton par l'intermédiaire de la force nucléaire faible et une particule β^- et un antineutrino $\bar{\nu}$ sont émis. Les radiations β sont plus pénétrantes que les radiations α .



I.2.3. Désintégrations γ :

Les radiations γ sont des ondes électromagnétiques de très courte longueur d'onde et sont donc plus pénétrantes, leur longueur d'onde est située entre 5.10^{-13} et 3.10^{-11} m.



I.3. Lois fondamentales de la radioactivité :

Une substance est radioactive lorsque ses noyaux se désintègrent spontanément au cours du temps en émettant des rayonnements [2].

I.3.1. Activité :

On appelle activité A_c , le nombre de désintégrations par unité de temps. La relation fondamentale de la radioactivité s'écrit :

$$A_c = \lambda N \quad (1)$$

La loi de désintégration est donnée par la relation suivante :

$$A(t) = \lambda N(t) = A_0 \times e^{-\lambda t} \quad (2)$$

Avec : N nombre de noyaux à l'instant considéré dans le matériau donné ; λ la constante de décroissance radioactive du nucléide (seconde^{-1}).

Cette constante est indépendante de la quantité de la matière et ne fait intervenir que les caractéristiques du nucléide. Dans le cas où plusieurs modes de désintégrations se produisent, on définit les activités partielles A_{ci} , qui représentent les sources de rayonnement de chaque type. A chaque mode on définit une probabilité p_i telle que :

$$A_{ci} = p_i * A_c \quad (3)$$

Avec $\sum p_i = 1$ car la somme des activités partielles est égale à l'activité totale A_c , elle représente aussi un taux de désintégration. De même que λ , les probabilités p_i sont des données nucléaires.

I.3.2. Décroissance radioactive :

Dans un échantillon de matière radioactive, le nombre de noyaux radioactifs va décroître au cours de temps, et sera noté $N(t)$. Si N_0 le nombre de noyaux radioactifs présents initialement dans l'échantillon, ce nombre ne peut décroître et ce selon l'équation (1) donc la relation sera :

$$\frac{dN}{dt} = -A_c = -\lambda N \quad (4)$$

L'intégration donne :

$$N(t) = N_0 e^{-\lambda t} \quad (5)$$

Avec : $N(t)$ est le nombre d'atomes présent à l'instant t ; $N(0) = N_0$: représente le nombre d'atomes présent initialement; λ est la constante de décroissance radioactive (s^{-1}); t le temps de décroissance

L'activité est alors :

$$A_c(t) = A_c(0)e^{-\lambda t} \quad (6)$$

Avec : A_c représente l'activité présente à l'instant t ; $A_c(0) = A_{c0}$ est l'activité initialement présente ; λ est constante de décroissance radioactive (s^{-1}) ; t : temps de décroissance

I.3.3. Période radioactive :

Un des termes les plus utiles pour estimer la rapidité avec laquelle un nucléide va se désintégrer est la demi-vie radioactive. Elle est définie comme le temps nécessaire à l'activité pour diminuer de moitié de sa valeur initiale. Une relation entre la demi-vie et la constante de décroissance peut être développé à partir de l'équation (6). La demi-vie peut être calculée en résolvant l'équation (6) pour le temps t lorsque l'activité actuelle A_c correspond à la moitié de l'activité initiale $A_c(0)$.

$$\ln \frac{A_c}{A_{c0}} = -\lambda t \quad (7)$$

Si A_{c0} est égal à la moitié de A_c , alors A_c / A_{c0} est égal à la moitié. En substituant ceci dans l'équation ci-dessus, on obtient la demi-vie notée $t_{1/2}$:

$$T_{1/2} = \frac{\ln 2}{\lambda} \quad (8)$$

La loi décrite ci-dessus est valable pour tous les types de radioactivité, que les matériaux radioactifs soient naturels ou artificiels.

I.4. Unité de mesure de la radioactivité :

Un échantillon radioactif est caractérisé par son activité qui est le nombre de désintégration par seconde qui se produisent en son sein, les unités de l'activité sont:

- le Becquerel, de symbole Bq : 1Bq =une désintégration par seconde.

Cette unité est très petite, l'activité de sources radioactives s'exprimera donc le plus souvent en multiples du Becquerel.

- Le Curie, de symbole Ci : 1Ci=3.7x10¹⁰désintégrations par seconde.

L'ancienne unité de mesure de la radioactivité est le Curie, Ceci équivaut approximativement au nombre de désintégrations d'un gramme que le noyau du radium 226 subira en une seconde.

I.5.Familles radioactives :

Trois principales familles radioactives existent dans la nature. Ce sont la famille de l'uranium-238, la famille de l'uranium-235 et la famille du thorium-232. Ces radionucléides ont des périodes qui sont comparables à l'âge de la terre, c'est-à-dire de l'ordre de milliard d'année. Le produit final de chaque famille est un isotope stable du plomb. Pour arriver au plomb, le père de chaque famille suit des désintégrations successives accompagnées d'émission des particules alpha ou beta et/ou ensuite par émission des photons gamma. Le (Tableau 1) ci-dessous résume quelques caractéristiques distinguant ces trois familles radioactives.

Tableau 1 : Caractéristiques des familles radioactives.

Désignation	Famille U-238	Famille U-235	Famille Th-232
Nombre de masse A	$4n+2$	$4n+3$	$4n$
Période radioactive	$4,5.10^9$ ans	$7,04.10^8$ ans	$1,45.10^{10}$ ans
Produit final (stable)	^{206}Pb	^{207}Pb	^{208}Pb
Descendent émetteurs gamma	^{234}Th , ^{230}Th , ^{226}Ra , ^{222}Rn , ^{214}Pb , ^{214}Bi , ^{210}Pb	^{235}U , ^{231}Pa , ^{227}Th , ^{223}Ra , ^{219}Rn , ^{211}Pb	^{228}Ac , ^{212}Pb , ^{212}Bi , ^{208}Tl

I.5.1.Chaînes de désintégration radioactives :

La désintégration d'un noyau peut conduire à un noyau instable soumis aux mêmes lois que le noyau initial forme ce qu'on appelle chaîne de filiation radioactive. Dans ce qui suit et puisque une partie de notre étude est reliée à la radioactivité naturelle relative aux filiations naturelles de l'uranium, du thorium et du potassium-40, nous allons décrire brièvement ces filiations et les spécifier.

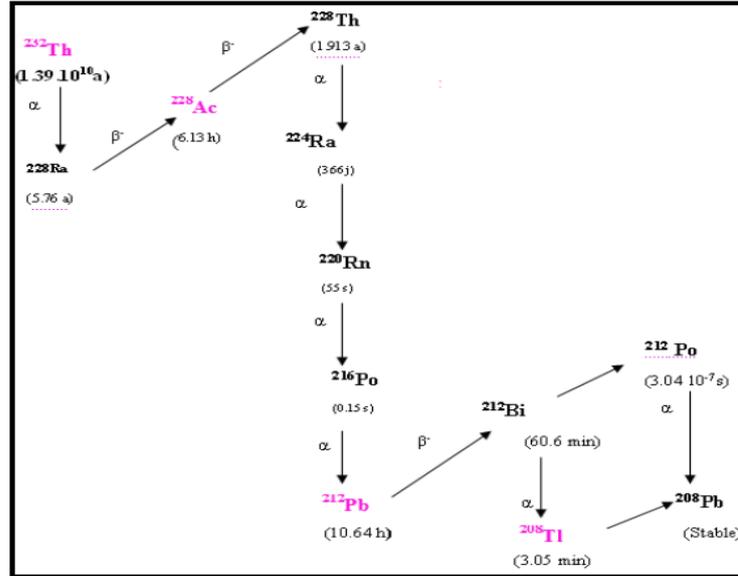


Figure 3 : Chaîne de désintégration du ^{232}Th .

I.5.1.3. Famille de l'uranium (^{235}U) :

Elle englobe les éléments de la chaîne de décroissance de l' ^{235}U de période de 7.3×10^8 ans (Figure 4) et dont le produit final stable est l'isotope de plomb ^{207}Pb .

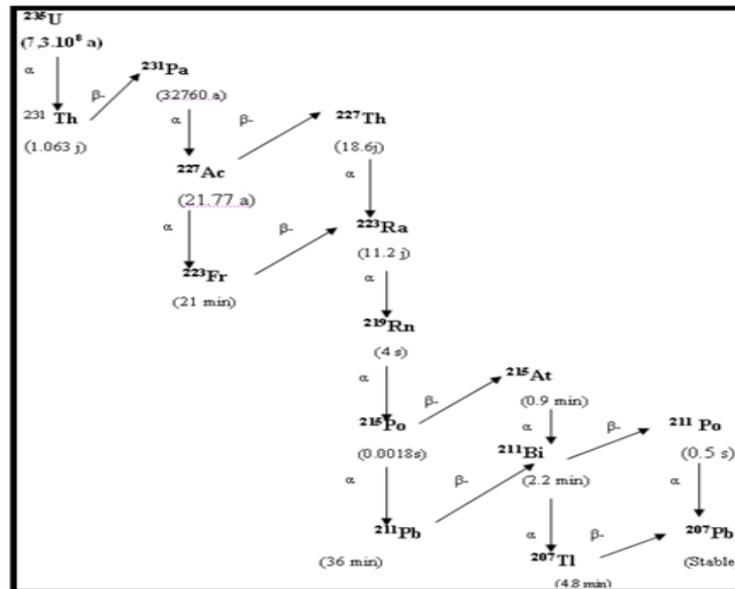


Figure 4 : Chaîne de désintégration de ^{235}U .

Chapitre II
Interaction
rayonnements-matière

II.1. Introduction

Les interactions rayonnement- matière décrivent, dans le cadre de la mécanique quantique, le terme « rayonnement » est à prendre dans son sens quantique : rayonnement électromagnétique ; particule. Ces rayonnements sont utilisés pour analyser la matière.

Les rayonnements ionisants sont une forme d'énergie libérée par les atomes qui se propage par le biais d'onde électromagnétiques (rayons X ou gamma) ou de particule (neutrons, particule β ou α). Pour les distinguer des rayonnements qui provoquent toujours l'ionisation, on définit un seuil arbitraire d'énergie en général 10 keV, à partir duquel les rayonnements sont dits ionisants.

II .2. Différents types des rayonnements ionisants :

II .2.1. Les rayonnements directement ionisants :

Consistent en particules chargées électrons énergétiques (parfois appelés négatons), positons, protons, particules alpha et ions lourds (atomes ionisés). Les rayonnements de ce type agissent sur la matière en vertu de la loi de Coulomb, leur charge attirant ou repoussant les électrons qui gravitent autour des atomes et des molécules [4].

II .2.2. Les rayonnements indirectement ionisants :

Consistent en particules neutres (non chargées) ; les plus courants étant les photons de plus de 10 keV (Rayons X et gamma) et les neutrons.

II.3. Interaction des rayonnements ionisants avec la matière :

II .3.1. Rayonnement γ :

Le type d'interaction du rayonnement gamma avec la matière dépend de l'énergie du photon incident et aussi la densité de matériau traversé, on distingue trois zones dans le plan $(h\nu, Z)$ (Figure 5) :

- ✓ Pour des faibles énergies des photons et un milieu de Z élevé : prédominance de l'effet photoélectrique.
- ✓ Pour des énergies moyennes : prédominance de l'effet Compton.
- ✓ Pour des énergies élevées et un milieu de Z élevé : prédominance de la production des paires

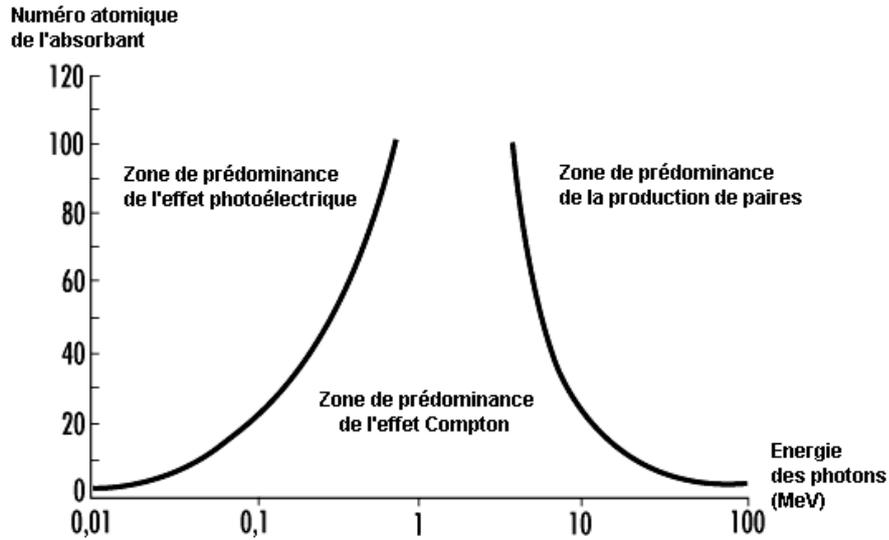


Figure 5 : Prédominance des interactions photon-matière en fonction de l'énergie du photon incident et du numéro atomique du milieu [5].

II .3.1.1. L'effet photoélectrique :

L'effet photoélectrique, mode d'interaction privilégié des photons de faible énergie avec la matière, Dans ce phénomène, il y a une absorption totale de l'énergie du photon incident $h\nu$ par l'ensemble des électrons de l'atome, le photon interagit principalement avec un électron fortement lié (**Figure 6**). Cet effet ne peut se produire que si l'énergie du photon est supérieure à l'énergie de liaison E_l de l'électron [6]. On qualifie alors cet électron de photoélectron. Celui-ci possède une énergie cinétique qui peut être exprimé par la formule suivante [7] :

$$E_c = h\nu - E_l \tag{9}$$

Avec : E_c l'énergie cinétique de l'électron(MeV); E_l l'énergie de liaison de l'électron dans l'atome(MeV); $h\nu$ est l'énergie du photon incident(MeV).

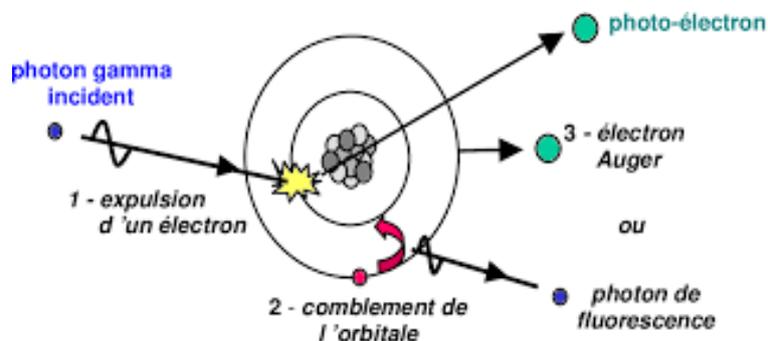


Figure 6 : l'effet photoélectrique.

L'effet photoélectrique est donc caractérisé par l'absorption d'un photon par un milieu et l'éjection d'un électron lequel va interagir par ionisation ou excitation avec ce milieu. La probabilité d'une telle interaction dépend de l'énergie du photon et du numéro atomique du milieu considéré.

II .3.1.2.L'effet Compton :

Le photon gamma interagit avec un électron, que l'on peut considérer comme libre et au repos. Cet électron est lié à un atome, mais avec une énergie négligeable devant l'énergie du photon incident. Après la collision, le photon diffuse avec un angle θ par rapport la direction du photon incident, l'électron reculant selon l'angle ϕ avec cette direction (**figure7**). La conservation de l'énergie s'exprime par la relation suivante [8] :

$$h\nu' = h\nu + E_c \quad (10)$$

Avec : $h\nu'$ L'énergie du photon incident (MeV); $h\nu$ l'énergie du photon diffusé(MeV); E_c est l'énergie cinétique de l'électron de recul (MeV).

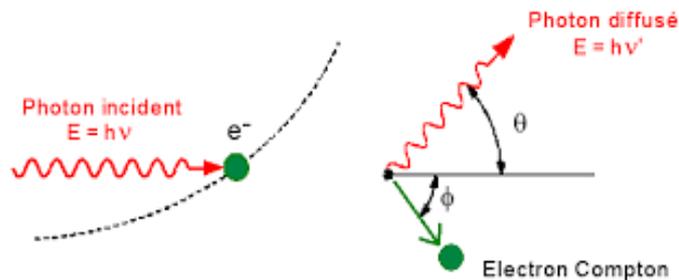


Figure 7: l'effet Compton.

II .3.1.3.Création des paires :

Le troisième mode d'interaction des photons γ est la création d'une paire de particules, un électron et son antiparticule dit le positron. Cette production ne s'observe qu'au-dessus d'une énergie seuil de 1,02 MeV, énergie requise par la relation d'Einstein pour créer la masse d'un électron et d'un positon (**figure8**). La plupart des photons gamma issus des désintégrations radioactives n'atteignant pas cette énergie seuil, la production de paires ne concerne que la tranche des gammas les plus énergétiques. Les photons gamma de haute énergie se matérialisent principalement en passant à proximité de la charge électrique des noyaux avec lesquels ils interagissent.

$$E_e = E_\gamma - 1.022\text{Mev} \quad (11)$$

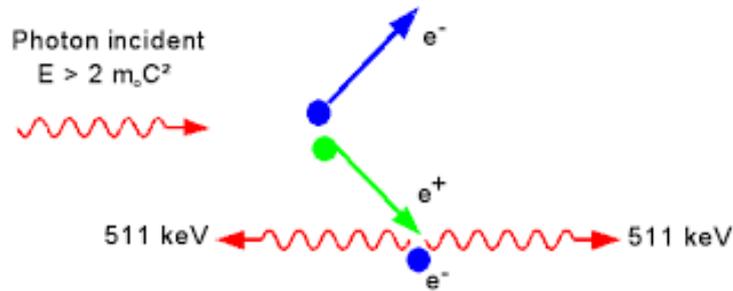


Figure 8: l'effet création des paires.

II .3.1.4. L'effet Raleigh :

Il s'agit de la diffusion cohérente d'un photon par les atomes du matériau sans transfert d'énergie. Le photon diffusé garde la même énergie que le photon incident mais avec un changement de direction [7].

II .3.1.5.Coefficient d'atténuation et libre parcours moyen :

Le coefficient d'atténuation est de la distance moyenne parcourue par un photon d'énergie donnée avant la première interaction dans un matériau. De même on utilise la notion de coefficient d'atténuation qui résulte des différentes interactions que peut subir un photon dans un matériau. Les coefficients sont proportionnels à des probabilités d'interaction dans un matériau.

Considérons un faisceau de photons mono énergétiques traversant une épaisseur x de matériau. Le nombre de photons transmis I dépend du nombre total de photons émis par la source I_0 suit la loi d'atténuation suivante :

$$I(x) = I_0 e^{-\mu x} \quad (12)$$

Où μ est le coefficient d'atténuation linéique totale (cm^{-1}), qui est relié au libre parcours moyen l (cm) :

$$l = \frac{1}{\mu} \quad (13)$$

II .4. Électrons :

Les rayonnements β^- ou électrons énergétique interagissent avec la matière selon ces modes principaux :

II .4.1. Ionisation :

Il s'agit d'un mécanisme de collision inélastique d'un électron ou d'un positron en mouvement avec les électrons du cortège atomique. Ceci va se traduire par une perte d'énergie par collision. La perte d'énergie par unité de longueur encore appelée pouvoir d'arrêt ou transfert d'énergie linéique (TEL) s'exprime en MeV/cm, ou excitation si l'énergie est faible.

II .4.2. Effet de freinage (Bremsstrahlung) :

Par interaction avec champ coulombien du noyau appelée effet de freinage (ou effet Bremsstrahlung) en produisant un rayonnement électromagnétique lorsque les électrons ont une énergie cinétique élevée et supérieure à 1 MeV.

II .4.3. La diffusion coulombienne multiple :

A chaque fois qu'un électron fait une « collision » avec un électron du cortège atomique en traversant une épaisseur de matériau, il subit une diffusion coulombienne. Ceci se traduit par une déviation de la trajectoire de l'électron par rapport à sa direction initiale. Si le nombre de collisions pour chaque électron est suffisamment important (supérieur à 20), la distribution angulaire de la diffusion coulombienne multiple suit une loi gaussienne aux petits angles et se comporte comme une diffusion de Rutherford aux grands angles.

II .4.4. Annihilation :

Les positrons (β^+), qui sont les antiparticules des électrons, se comportent exactement comme les électrons en ce qui concerne leur passage à travers la matière. L'interaction avec les électrons du cortège atomique est attractive et non répulsive. Par contre, en fin de parcours, lorsque leur vitesse devient quasiment nulle, ils sont encerclés par leurs antiparticules et il survient une annihilation matière/antimatière avec un électron du cortège atomique. Ceci étant accompagné par l'émission de deux photons de 511 keV émis à 180° dans le référentiel du laboratoire.

II .4.5. Parcours des électrons dans la matière :

Il s'agit de la distance parcourue par un électron dans un matériau jusqu'à ce qu'il perde toute son énergie. Le parcours peut donc être relié par la perte d'énergie [9, 5] :

$$R = \int_{E_0}^0 \left(-\frac{dE}{dx}\right)^{-1} dE \quad (14)$$

Chapitre III

Spectrométrie γ

III .1.Généralités sur la spectrométrie γ :

La spectrométrie gamma, tout particulièrement à l'aide des cristaux de germanium hyper pur (Ge HP) est l'une des plus puissantes techniques d'analyse multi élémentaire. Cette technique a par ailleurs l'avantage d'être non destructive. Elle est utilisée en physique nucléaire, consiste à mesurer l'énergie et à compter le nombre de photons γ émis d'un échantillon pendant une durée donnée. A partir du spectre enregistré, il est possible d'identifier différents radioéléments (analyse qualitative) et de déterminer leur concentration (analyse quantitative) dans l'échantillon étudié.

La spectrométrie gamma s'appuie notamment sur la physique des semi-conducteurs mis en jeu dans la détection tels que des détecteurs au germanium ou au silicium [10].

Les trois grandes familles de détecteurs utilisés en spectrométrie gamma sont :

- ✓ Détecteur à scintillation ;
- ✓ Détecteur à semi-conducteurs ;
- ✓ Détecteur à gaz.

III.2.Principe de la technique spectrométrie gamma :

La technique de spectrométrie gamma permet d'identifier les rayonnements émis par un radioélément, principalement ceux qui lui sont spécifiques. Il est appelé que les noyaux atomiques ont une structure en niveaux d'énergie analogue à celle des niveaux d'énergie des atomes, de sorte qu'ils peuvent émettre des photons d'énergie particulière. Les noyaux sont caractéristiques de chaque espèce d'atome, de sorte que les énergies des rayonnements gamma émis correspondent aux différences d'énergie des noyaux, ils peuvent être utilisés pour identifier des éléments radioactifs. la distinction entre des rayonnements γ d'énergie légèrement différente est très importantes dans l'analyse des spectres qui peuvent être complexes. L'amplitude d'un spectromètre à identifier des rayonnements gamma d'énergie très proche est appelée résolution en énergie.

La détection des rayonnements- γ est obtenue à l'aide de matériaux sensibles au dépôt d'énergie des interactions de ces rayonnements [11]. En plus de la résolution en énergie d'un détecteur, l'efficacité de détection est également une caractéristique importante surtout pour la mesure des faibles concentrations de radioélément.

III.3.Chaine d'acquisition :

Afin d'exploiter le signal délivré par le détecteur, celui-ci est suivi d'une chaîne de traitement électronique analogique ou numérique. (Figure 9) représente une chaîne de spectrométrie analogique classique composée de plusieurs modules assurant des fonctions d'amplification, de mise en forme, de filtrage et de codage de chaque impulsion, puis de traitement du spectre γ .



Figure 9 : Modules de la chaîne de spectrométrie γ

III.3.1.Le préamplificateur :

Le signal à l'entrée n'est pas proportionnel à l'énergie déposée dans le cristal, mais son intégrale est égale à la charge collectée qui dépend de l'énergie déposée. Le préamplificateur est un montage intégrateur qui va intégrer le signal pour faire le lien avec l'énergie [12].

III.3.2.L'amplificateur :

Qui sert à la mise en forme du signal et à son amplification : le but est de minimiser le bruit et d'obtenir un signal gaussien. De plus il permet de filtrer les signaux parasites de fréquences élevées.

III.3.3.Le convertisseur analogique-numérique et l'analyseur multicanaux :

A la sortie de l'amplificateur on a un signal continu, le convertisseur transforme l'amplitude du signal en un nombre qui est proportionnelle à l'énergie déposée dans le cristal. Ensuite l'analyseur multi canaux collecte, classe et enregistre les informations dans différents canaux, chaque canal correspond à une énergie. Cela permet d'obtenir un histogramme en temps réel dans lequel l'énergie déposée dans le cristal est relié au numéro de canal et le nombre de coup dans un canal donné est proportionnelle aux nombres de photons ayant déposés la même énergie dans le détecteur [13].

III.4. Les détecteurs :

Les détecteurs à semi-conducteur peuvent être assimilés à des chambres d'ionisation, exception faite de la charge des particules est transportée par des électrons-libres que par des électrons et des ions positifs pour les chambres d'ionisation. Les détecteurs semi-conducteurs présentent deux avantages par rapport aux détecteurs à gaz du fait que la densité du solide est très supérieure à celles des gaz. Ainsi que pour le silicium une basse énergie est suffisante pour la production d'une paire d'électron cavité, 2.94 eV comparé à celle de 30 eV pour le gaz. En plus la probabilité de collection des charges est grandes donc une meilleure énergie de résolution.

III.4.1.Principe de fonctionnement :

Un photon issu de l'élément radioactif interagit avec le cristal par l'effet photoélectrique, l'effet Compton ou par création de pair ce qui aura pour effet de céder de l'énergie aux électrons du détecteur. Grâce à une haute tension, ces électrons passent le gap énergétique et être accélérés ce qui fournit un courant dont la quantité de charges obtenues est proportionnelle à celle déposé dans le cristal par les rayonnements [13].

III.4.2.Détecteur au Germanium hyper pur (Ge HP) :

Constitué d'un cristal du germanium hyper pur, protégé d'une structure en plomb permettant d'atténuer les rayonnements ionisants provenant de l'extérieur (rayonnements cosmiques...), et d'une structure en cuivre (cage de Faraday). Un cryostat permet de baisser la température du cristal, donc réduire l'agitation thermique ce qui limite le bruit de fond du cristal et le stabilise.

III.5.Calibration d'une chaîne de mesure :

III .5.1.Calibration analogique :

Une calibration analogique est réalisée périodiquement. A la sortie du détecteur, un oscilloscope visualise le signal suivant ; sur l'abscisse le temps et sur l'ordonnée le voltage. Une série de réglages est nécessaire pour bien optimiser le signal :

- ✓ La première calibration consiste à changer les paramètres du préamplificateur et de l'amplificateur afin d'obtenir un signal gaussien optimum, de sorte qu'il croît et décroît suffisamment et rapidement ce qui permet d'éviter l'empilement de deux différents signaux.

- ✓ Régler le temps d'occupation ou temps d'échantillonnage : durée pendant laquelle le signal est enregistré, s'il est trop court le signal risque de ne pas être pris dans son intégralité, s'il est trop long il risque de cumuler deux signaux en même temps.
- ✓ Enfin le réglage du gain qui permet de ne pas prendre en compte les rayons X se situant entre 0 - 100 KeV.

III .5.2.Calibration en énergie :

Permet d'avoir un spectre avec le numéro de canal en abscisse et le nombre coups dans le canal correspondant. Ce spectre correspond à un histogramme représentant le nombre de photons mesurés en fonction de leur énergie. Un étalonnage en énergie est donc nécessaire à l'identification des éléments radioactifs, en établissant une relation linéaire entre le numéro de canal et l'énergie déposée dans le cristal [7].

III.6. Les spectres γ :

Le pic photoélectrique traduit un dépôt dans le cristal Hp/Ge de l'énergie totale (E) du photon incident par absorption photoélectrique, éventuellement précédée de diffusions Compton au sein du cristal. Lors de la diffusion Compton, il est cependant possible que le photon diffusé s'échappe du cristal Ge Hp, ce qui résulte en la détection d'une partie seulement de l'énergie du photon incident et se traduit par un continuum appelé fond Compton. En cas d'interaction par création de paires, comme cela peut se produire avec des rayonnements gamma de plusieurs MeV produits par activation neutronique, si les deux photons de 511 keV s'arrêtent dans le matériau, alors l'intégralité de l'énergie du photon initial est détectée, contribuant au pic photoélectrique. Si un ou les deux photons viennent à sortir du cristal Hp/Ge, l'énergie mesurée sera inférieure de 511 keV ou 1022 keV, respectivement, à celle du photon incident, se traduisant par l'apparition dans le spectre de pics de simple et double échappement. On observe également un pic à 511 keV traduisant la détection de photons de 511 keV dus à des créations de paires se produisant en dehors du cristal. A basse énergie, on observe une composante du bruit de fond due au rayonnement de freinage (bremsstrahlung) induit par la décélération des électrons issue des interactions gamma-matière dans ou à proximité du détecteur. Enfin, à haute énergie, un phénomène d'empilement peut être observé en cas de taux de comptage élevé, lorsque plusieurs photons sont détectés au même moment et ne peuvent pas être discernés par le dispositif de rejet des empilements [5].

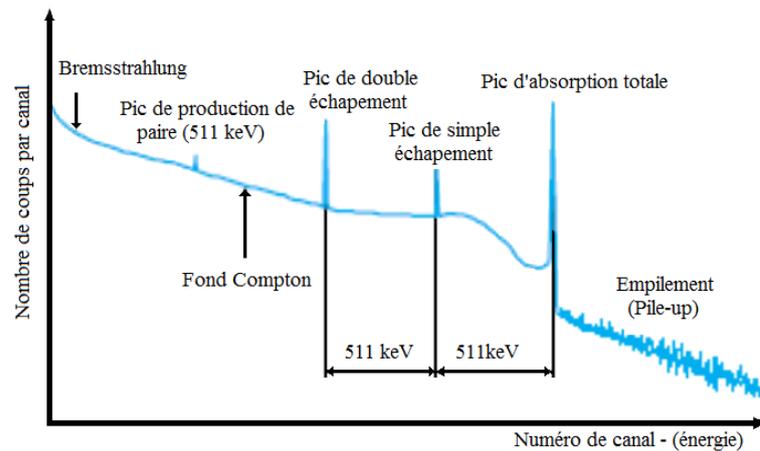


Figure 10 : Spectre γ caractéristique d'un détecteur Hp/Ge

III.7. Le temps morts :

Pendant le traitement d'une impulsion par la chaîne de spectrométrie gamma haute résolution, celle-ci est dans l'incapacité de traiter un autre signal et on parle de temps mort. L'acquisition ne se faisant pas sur la totalité du temps de la mesure, on différencie donc :

- ✓ le temps réel correspondant à la durée de la mesure,
- ✓ le temps actif correspondant à la durée pendant laquelle le système est effectivement capable de traiter une impulsion (inférieur au temps réel).
- ✓ Le temps mort, qui est la différence entre ces deux termes, est généralement exprimé en pourcentage du temps réel.

III.8. Interférences :

Bien que la résolution du détecteur soit assez bonne, elle n'est pas toujours suffisante pour séparer deux photopics qui se superposent (énergies très voisines ou identiques). Ce phénomène d'interférence se présente dans deux situations.

III.8.1. Interférence spectrale :

Deux éléments différents produisent 2 radio-isotopes différents mais leurs photopics sont très voisins ou identiques. Pour séparer ce type d'interférence on peut :

- ✓ maximiser les éléments de périodes courtes et minimiser ceux de périodes longues (choix de t_i et t_d) ou inversement.
- ✓ prendre un autre pic photoélectrique du même radio-isotope, ou un autre pic formé par une autre réaction nucléaire ou à partir d'un autre isotope.
- ✓ doser l'interférant par un autre pic.

III.8.2. Interférence nucléaire :

Ce type d'interférence est défini comme étant des réactions nucléaires qui modifient la relation linéaire entre l'élément dosé et le radio-isotope mesuré. Ce phénomène peut se produire lorsque le radio-isotope mesuré est formé aussi à partir d'un autre élément par une autre réaction nucléaire (n, p), (n, α) ou bien une séquence quelconque de réaction nucléaire [15].

III.9. Logiciel de traitement et d'analyse de spectre γ :

Enfin, le spectre est analysé en cherchant le meilleur ajustement de chaque pic (le plus souvent gaussien) afin de soustraire le bruit de fond Compton, qui est approximé de façon linéaire ou en escalier (Galton), (**Figure 11**).

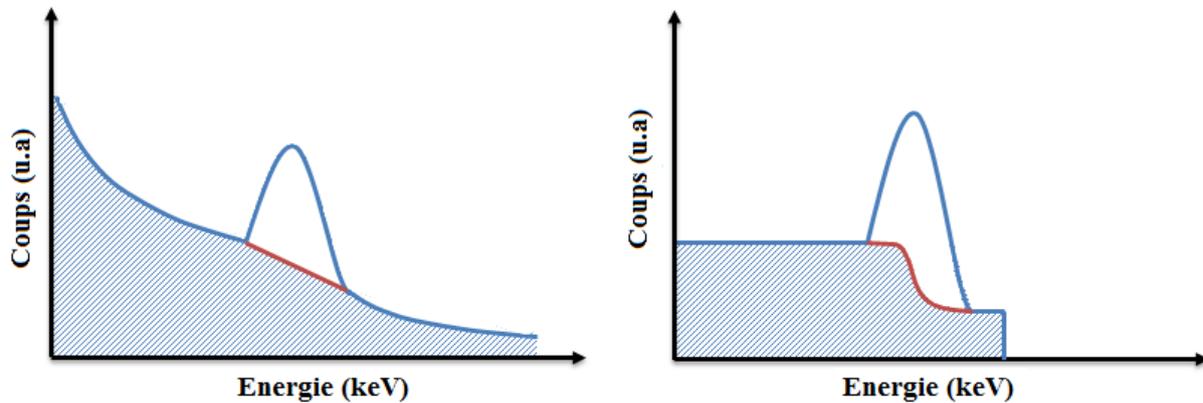


Figure 11 : Principe de détermination de l'aire nette d'un pic gamma par soustraction du bruit de fond continu sous le pic.

Pour effectuer les analyses, plusieurs logiciels sont à disposition, dont notamment :

- Gamma-vision, Ortec
- Gamma-W.
- Génie 2000, CANBERRA
- Visu gamma, Automatismes et mesure.

III.10. Grandeurs fondamentaux pour le calcul de l'activité [14, 15] :

Le logiciel d'analyse permet de visualiser le spectre (nombre de coups en fonction de l'énergie) en temps réel. Celui-ci consiste en un certain nombre de pics qui se démarquent d'un fond continu (voir **Figure 11**). L'acquisition dure un temps suffisamment long (de quelques heures à quelques jours) de manière à ce que l'erreur statistique sur le calcul de la surface des pics soit négligeable (pour avoir une erreur inférieure à 1 %, il faut que la surface nette du pic analysée, c.à.d. la surface totale du pic diminuée du bruit de fond sous le pic, soit supérieure à 10 000 coups). L'analyse du spectre fournit la surface de chacun des pics mais pour pouvoir relier la surface d'un pic donné avec l'activité du radioélément dans la source, il faut prendre en compte un certain nombre de paramètres.

III.10.1. Les différentes grandeurs :

Soit N le nombre de coups comptés sous un pic auquel la contribution du fond continu a été retranchée, on peut définir le taux de comptage R comme étant le rapport suivant :

$$R = N/t_c \quad (15)$$

Avec t_c le temps de comptage. L'activité A d'un radioélément donné, exprimée en Becquerels, (Bq) correspond au nombre de désintégrations de ce radioélément par unité de temps (1 Bq = une désintégration/s). Pour relier l'activité A au taux de comptage R dans le photopic, il faut tenir compte de plusieurs paramètres dépendant du radioélément émetteur, de la nature de l'échantillon à analyser, de la géométrie générale du détecteur, des caractéristiques du détecteur ainsi que de l'électronique associée.

III.10.1.1 Paramètres reliés à la source radioactive :

Pour tenir compte de la nature de la source, il faut corriger le taux de comptage R de trois effets : le rapport d'embranchement, l'effet de matrice et l'effet de cascade.

- ✓ Le rapport d'embranchement f correspond, dans notre cas, à la probabilité pour qu'une désintégration du noyau considéré soit suivie de l'émission d'un photon gamma d'une énergie donnée. Il est exprimé en % désintégrations d'un radioélément.
- ✓ L'effet de matrice (ou auto-atténuation) : lorsqu'on dispose d'un échantillon radioactif de dimensions non négligeables, un certain nombre de photons émis dans l'échantillon peuvent interagir avec la matrice de l'échantillon lui-même en perdant une partie ou la totalité de leur énergie. Cela a comme conséquence la diminution du comptage dans le photopic.

- ✓ L'effet de cascade : dans de nombreux cas, au cours d'une désintégration, la désexcitation d'un noyau se fait par paliers.

III.10.1.2 Paramètres reliés au détecteur :

Ils traduisent l'influence de la géométrie générale du détecteur ainsi que de ces caractéristiques sur le taux de comptage. Celui-ci doit être corrigé de l'effet d'angle solide car le détecteur ne couvre pas un angle solide de 4π stéradian. De même, l'absorption par les parois du conteneur porte échantillon et du détecteur doit être prise en compte.

III.10.1.3 Paramètres reliés à l'électronique :

L'électronique peut introduire des limitations sur le taux de comptage à cause des effets de temps mort et des problèmes liés à la collection de charge. Le temps mort correspond au temps minimal pour séparer deux événements qui vont être transformés en deux signaux électriques distincts. Le temps mort est relié à une limitation de l'électronique.

Les pertes de comptage liées au temps mort sont d'autant plus importantes que l'activité de la source est grande, car cela augmente la probabilité pour que deux gammas interagissent avec le cristal dans un laps de temps inférieur au temps mort. Le logiciel d'analyse de spectre fournit donc deux informations : le temps « réel » qui correspond au temps total pendant lequel les mesures ont été effectuées et le temps « actif » qui prend en compte le temps mort (le temps actif étant plus petit que le temps réel). Pour calculer l'activité de la source en s'affranchissant du temps mort, il faut donc utiliser le temps actif.

III.10.2. Paramètres nécessaires pour calculer l'activité d'un échantillon :

Nous venons de voir toute une série de paramètres qui font que l'on ne peut pas déterminer directement l'activité de la source à partir de la seule mesure d'un photopic. Il est donc nécessaire d'évaluer une efficacité de comptage. On distingue deux types d'efficacité : l'efficacité absolue ε_0 et l'efficacité globale ε . On peut définir l'efficacité absolue comme étant le rapport :

$$\varepsilon_0 = N_0 / N'_0 \quad (16)$$

Avec : N_0 nombre total de coups qui seraient comptés dans un photopic donné pour un échantillon idéal, homogène et sans matrice.

N'_0 nombre total de photons mono énergétiques émis par la source pendant la même durée t_c , soit :

$$N'_0 = f \times A \times t_c \quad (17)$$

A étant l'activité et f le rapport d'embranchement. En injectant la relation [17] dans [16], on trouve comme expression pour l'efficacité absolue :

$$\varepsilon_0 = \frac{N_0}{f \times A \times t_c} \quad (18)$$

L'efficacité absolue varie aussi avec l'énergie des photons émis. Elle pourrait être déterminée par calcul MCNP mais, en pratique, le recours à un étalonnage semi-expérimental est indispensable.

Expérimentalement, en utilisant des sources étalons ponctuelles (donc ne présentant pas d'effet de matrice) émettant des photons mono énergétiques (source sans effet de cascade), dont on connaît exactement l'activité. Nous pouvons donc évaluer la variation de l'efficacité absolue en fonction de l'énergie des photons émis par la source à partir du taux de comptage dans le photopic. Ceci n'étant valable que dans une configuration donnée, c'est-à-dire pour une géométrie du détecteur et une position source-détecteur.

Généralement, pour une géométrie donnée, ε_0 est une fonction décroissante de $\ln(E)$ pour les énergies allant de [150 à 3] MeV. Aux basses énergies, ε_0 décroît, après être passé par un maximum aux environs de 100 keV.

III.11. Mesure de la teneur en Uranium dans un échantillon via la raie $E_\gamma = 1001 \text{ keV}$ de ^{238}U :

La méthode proposée illustre le traitement réalisé à titre d'exemple de calcul sur la raie à 1001 keV de ^{238}U , qui peut être appliqué à tous les raies γ présentes dans le spectre de l'échantillon. On notera $A(^{238}_{92}\text{U})$ l'activité de ^{238}U dans l'échantillon (exprimé en Bq) :

$$A(^{238}_{92}\text{U}) = \lambda \times N_{U238} \quad (19)$$

$\lambda = \frac{\ln(2)}{T_{1/2}}$ Est la constante de décroissance radioactive du radioélément ; $T_{1/2}$ est la période radioactive de l'élément (4.47×10^9 ans pour ^{238}U) et N représente le nombre d'atome de l'élément présent dans l'échantillon.

Soit M_{ech} la masse de l'échantillon en grammes et A_s l'activité spécifique (massique) en Bq/g qu'on écrit $A_s(^{238}_{92}\text{U}) = A(^{238}_{92}\text{U})/M_{ech}$

Le nombre d'atomes est donné par :

$$N = \frac{m_e}{M_A} \times N_A \quad (20)$$

Où N_A est le nombre d'Avogadro $=6.022 \times 10^{23}$; M_{ech} la masse de l'élément (^{238}U) par exemple dans l'échantillon en (g) et M_A la masse molaire de l'élément.

L'expression de l'activité spécifique A_s s'écrit alors :

$$A_s = \ln(2) \times N_A \times M_e / M_A \times m_e \times T_{1/2} \quad (21)$$

Pour le cas de l'uranium naturel, sa masse molaire est $M_A = M(^{238}\text{U}) = 238.0507\text{g/mol}$. On notera par Cm_u la teneur massique en uranium qu'on exprime en ppm (masse en (g) de l'uranium /masse en (Kg) de l'échantillon). La teneur en Uranium peut être exprimée en utilisant l'abondance naturelle de l'isotope ^{235}U (0.72%).

$$m_e = m_{238u} + m_{235u} = (1 + 0.0072) \times m_{238u} \quad (22)$$

m_{235U} est la masse totale en ^{235}U dans l'échantillon(g) et m_u est la masse d'uranium dans l'échantillon (g). On obtient alors :

$$Cm_u = \frac{1.0072 \times 10^6 \times m_{238u}}{M_{ech}} \quad (23)$$

Le facteur 10^6 est introduit dans la relation pour m_{238u} et M_{ech} dans la même unité (g) alors que Cm_u s'exprime en ppm. On aura alors :

$$A_s(^{238}_{92}\text{U}) = \frac{\lambda_{U238} \times N_A \times Cm_U}{1.0072 \times 10^6 \times M_A} \quad (24)$$

Or de la surface net de la raie à 1001 keV du spectre γ de l'échantillon étudié on peut remonter à l'activité spécifique en ^{238}U par la relation :

$$A_s(^{238}_{92}\text{U}) = \frac{S_{net}(1001keV) - BF(1001keV)}{\varepsilon_{1001keV} \times I_{\gamma 1001keV} (^{234m}_{91}\text{Pa}) \times T_c \times M_{ech}} \quad (25)$$

Avec :

- ✓ T_c : temps de comptage (s)
- ✓ $I_{\gamma 1001keV} (^{234m}_{91}\text{Pa})$: Intensité d'émission du ($^{234m}_{91}\text{Pa}$) du ^{234m}Pa . Sa valeur est tabulé est vaut $(0.835 \pm 0.004)\%$.
- ✓ $\varepsilon_{1001keV}$: efficacité du détecteur à 1001keV(%), sans dimension il donne le nombre de coups dans le pic à 1001 keV par photon γ émis dans l'échantillon. Il est calculé par le

code MCNP (méthode probabiliste) ou autre code de calcul. On peut également le déduire d'un étalonnage expérimental.

- ✓ $S_{net}(1001keV)$: nombre de coups compté dans la raie à 1001 keV (surface net après soustraction du bruit de fond Compton) lors de la mesure de l'échantillon et qui comprend le nombre de coups du bruit de fond BF ci-dessous.
- ✓ $BF(1001keV)$: nombre de coups émis dans la raie à l'énergie 1001 keV lors de la mesure du bruit de fond sans échantillon (surface net après soustraction du bruit de fond Compton).

III.12. Calcul des incertitudes [16]:

En science expérimentale, il est impossible de mesurer une grandeur qui soit totalement exempte d'erreur. Ainsi « incertitude » désigne l'évaluation de la fiabilité immédiate et intuitive. C'est pourquoi on utilise obligatoirement dans toute mesure en physique le calcul d'incertitude.

La propagation des incertitudes d'une fonction F dépendant de plusieurs variables (x, y, z, \dots) définie par :

$F = f(x, y, z, \dots)$. En termes de carré de l'écart-type, elle s'écrit sous la forme :

$$\sigma_F^2 = \left(\frac{\partial F}{\partial x}\right)^2 \sigma_x^2 + \left(\frac{\partial F}{\partial y}\right)^2 \sigma_y^2 + \left(\frac{\partial F}{\partial z}\right)^2 \sigma_z^2 + \dots \quad (26)$$

Ou encore :

$$\sigma_F = F \sqrt{\left(\frac{\partial x}{x}\right)^2 + \left(\frac{\partial y}{y}\right)^2 + \left(\frac{\partial z}{z}\right)^2 + \dots} \quad (27)$$

Avec :

σ_F : Incertitude de la fonction F ,

$\sigma_x, \sigma_y, \sigma_z, \dots$: Incertitudes respectivement des variables x, y, z, etc

L'équation (26) ou (27) permet d'écrire alors que l'incertitude sur :

- ✓ La somme ou la différence à deux variables est :

$$F = x \pm y ; \quad \text{on a } \sigma_F = F \sqrt{(\sigma_x)^2 + (\sigma_y)^2}$$

- ✓ La multiplication ou division d'une fonction de deux variables est :

$$F = x/y \quad \text{ou} \quad F = x \times y \quad \text{on a} \quad \sigma_F = F \sqrt{\left(\frac{\partial x}{x}\right)^2 + \left(\frac{\partial y}{y}\right)^2}$$

- ✓ La multiplication d'une fonction à une variable avec une constante λ est :

$$F = \lambda f(x) \quad \text{on a} \quad \sigma_F = \lambda \sigma_x$$

Chapitre IV
Analyse par
Fluorescence X

IV.1.Introduction :

L'interaction des radiations avec la matière donne lieu à différents phénomènes, dont celui des collisions inélastiques avec les électrons atomiques engendrant l'excitation des couches profondes K, L et M. Lors de l'excitation, des lacunes dans les niveaux de l'atome sont créées et comblées par des électrons des couches supérieures donnant lieu à une émission de rayonnement X caractéristique [17]. C'est une méthode d'analyse qui présente l'avantage d'être rapide, non destructive et multi-élémentaire. Elle se base sur l'activation de l'échantillon par (γ ou X) pour obtenir des informations sur la nature et la quantité des éléments constituant l'échantillon. La technique d'analyse utilisée dans ce travail est présentée dans son principe physique, instrumentation associée ainsi que les applications qu'elle permet. Nous allons montrer aussi que cette méthode est particulièrement adaptée pour obtenir d'importantes informations sur la composition élémentaire de divers échantillons du minerais (roches du Hoggar).

IV.2.Bases théoriques de la technique XRF [17] :

IV.2.1.La fluorescence X :

Le bombardement d'un matériau par un rayonnement γ ou X issu d'une source radioactive ou un tube à rayons X conduit à l'émission de rayonnements X caractéristiques des éléments présents dans l'échantillon. L'excitation est produite principalement par effet photoélectrique (figure 12). Le spectre de rayonnement X diffère de celui obtenu par excitation particulaire par la forme du bruit de fond.

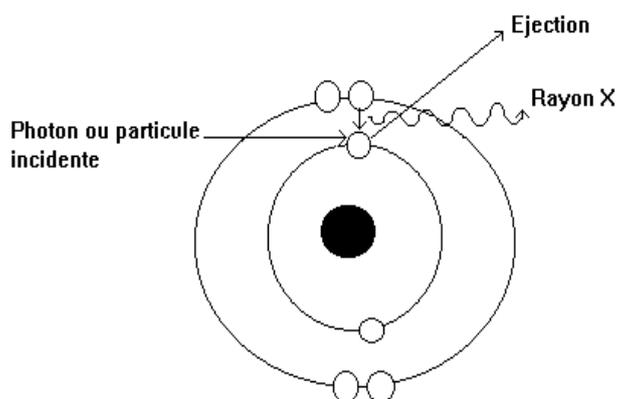


Figure 12 : Principe de l'interaction photoélectrique [17]

IV.2.1.1 Principe :

Selon le modèle de Bohr, les électrons constituant le cortège électronique des atomes sont situés sur des niveaux d'énergie bien définis, correspondant aux différentes couches (K, L, M, N,...) et sous-couches. L'interaction des rayonnements électromagnétiques ou corpusculaires avec la matière, engendre l'excitation atomique des couches profondes (K, L, M). Sous l'influence d'un rayonnement d'énergie suffisante, un électron du cortège électronique d'un atome situé sur un niveau d'énergie profond (K, L, M), peut être arraché de la couche à laquelle il appartient. La place libre est alors comblée par un électron situé sur une couche plus externe (**figure 13**), avec émission d'un rayonnement X caractéristique dont la fréquence ν est fonction de la différence d'énergie existant entre les deux niveaux concernés.

IV.2.1.2. Analyse qualitative [18] :

L'analyse qualitative ne présente pas en général de difficultés. La mesure de l'énergie du rayonnement de fluorescence permet d'identifier les différents éléments constituant l'échantillon irradié. Ces énergies sont données par la loi de Mosley et tabulées par différents auteurs.

IV.2.1.3. Analyse quantitative :

L'intensité de la raie caractéristique d'un élément i présent dans l'échantillon est proportionnelle à sa concentration. S'il n'y a aucune interaction du rayonnement avec la matrice (milieu entourant l'élément i), l'intensité mesurée sera directement proportionnelle à la concentration selon la relation suivante :

$$I_i = K \times C_i \quad (28)$$

K : étant la sensibilité du dispositif XRF.

En réalité cette intensité est susceptible d'être modifiée par les effets de matrices (absorption de rayonnements X primaire et secondaire). Parmi les méthodes de corrections utilisées, nous pouvons citer : les méthodes quantitatives simples, émission-transmission et paramètres fondamentaux.

IV.2.2. Méthodes relatives :

Plusieurs méthodes sont communément utilisées, i.e., la méthode des standards externes, la méthode des standards internes, la méthode de régression, la méthode d'émission-transmission et la méthode des paramètres fondamentaux.

IV.2.2.1. Méthode des standards externes :

Elle consiste en l'utilisation des composés standards contenant des éléments identifiés, à des concentrations connues. L'irradiation des standards et des échantillons à analyser dans les mêmes conditions, permet le calcul des concentrations inconnues des éléments constituant l'échantillon.

IV.2.2.2. Méthode des standards internes :

Cette méthode consiste à ajouter à l'échantillon un élément en proportion connue de telle manière qu'il n'interfère pas avec les éléments d'intérêt. Les concentrations des éléments présents sont calculées à partir des aires des raies X en tenant compte des facteurs de sensibilité et d'absorption. De manière générale, la concentration d'un élément i est donnée par l'expression ci-dessous :

$$C_i = C_s \times \frac{I_i}{I_s} \times \frac{K_s}{K_i} \times \frac{A_s}{A_i} \quad (29)$$

I_i est l'aire de la raie X de l'élément recherché ; I_s , l'aire de la raie X du standard interne ; K_i la sensibilité de l'élément recherché et K la sensibilité du standard interne.

IV.2.2.3. Méthodes de régression :

D'autres méthodes simples sont basées sur une approche de régression. Notamment, celle qui consiste à utiliser un standard interne. Une quantité fixe d'un standard interne est ajoutée à plusieurs composés standards contenant des éléments connus. Pour chaque élément contenu dans les standards, une courbe de régression est déterminée :

$$C_i = a_i + b_i \times C_{std-int} \times \frac{I_i}{I_{std-int}} \quad (30)$$

Une autre méthode simple similaire à celle indiquée ci-dessus est basée sur l'ajout d'un standard interne (seulement dans l'échantillon) et l'utilisation de facteurs de calibration. Une troisième méthode de régression consiste à utiliser les intensités des pics cohérents et incohérents. Plusieurs standards sont analysés et des coefficients de régressions sont obtenus pour chaque élément donné :

$$C_i = a_i + b_i \times \frac{I_i}{I_{coh}} \quad (31)$$

IV.2.2.4. Méthode de l'émission-transmission :

Dans ce cas l'absorption de la radiation primaire et secondaire (raies caractéristiques) dans l'échantillon est mesurée expérimentalement.

IV.2.2.5. Méthode des paramètres fondamentaux :

Pour un échantillon homogène, la relation entre la concentration (%) d'un élément (i) et l'intensité nette de sa raie caractéristique est donnée par :

$$I_i = C_i(\%).G.\varepsilon(E_i).\sum I(E_n).[Q_i(E_n).A_i(E_n, E_{char(i)}) + H_i E_n] \quad (32)$$

La sommation tient compte du caractère polychromatique de la radiation ; $I(E_n)$ est donné par la distribution de cette radiation sur les énergies. G est le facteur d'instrument moyen tenant compte de la géométrie de détection et d'excitation ; théoriquement il est donné par la relation :

$$G = \frac{d\Omega_1 d\Omega_2}{4\pi \cos \varphi_1} \quad (33)$$

Où $d\Omega_1$ et $d\Omega_2$ sont respectivement l'angle solide d'excitation et de détection. Il est plus pratique de déterminer le facteur G expérimentalement par l'analyse des standards purs afin d'inclure dans ce facteur géométrique toute incertitude sur : l'efficacité du détecteur, l'angle de détection (φ_2), l'angle d'excitation (φ_1) et les distances entre la source et la cible d'une part et d'autre part entre le détecteur et la cible.

$E_{char(i)}$ est l'énergie caractéristique de l'élément i, E_n est l'énergie primaire. A est le facteur de correction de l'absorption de la radiation primaire et secondaire dans l'échantillon.

IV.2.3. Section efficace de production X (Q_i) :

La section efficace de production de la raie caractéristique d'un élément i par des photons d'énergie E_n est donnée par :

$$Q_i(E_n) = \begin{cases} w_i P_i \frac{r_k - 1}{r_k} t_{i,totale}(E_n), & E_n > E_{liaison} \\ 0, & E_n < E_{liaison} \end{cases} \quad (34)$$

Où w_i est le rendement de fluorescence, P_i est la probabilité de transition correspondant à l'énergie caractéristique utilisée et r_k est l'amplitude du seuil d'absorption [17].

IV.2.4. Facteur d'accroissement (H_j) :

Les rayons X émis par les éléments lourds excitent les éléments légers. Il s'en suit une émission de rayons X secondaires par ces éléments. Il existe un effet d'accroissement (absorption négative) dû à des réactions secondaires. Les raies caractéristiques deviennent une source d'excitation par les éléments avec des électrons des couches profondes ayant une énergie de liaison légèrement inférieure à celle des raies caractéristiques.

IV.2.5. L'efficacité du détecteur :

L'efficacité du détecteur dépend des propriétés spécifiques du détecteur (l'épaisseur de la couche sensible, de l'électrode d'or, de la couche morte et de la fenêtre béryllium). Les coefficients d'absorption massique sont utilisés dans le calcul de l'efficacité du détecteur.

Théoriquement, l'efficacité est donnée par la relation ci-dessous tenant compte de l'atténuation des rayons X dans les fenêtres (Be, électrode d'or, zone active et zone morte du détecteur).

$$\varepsilon(E) = G \exp[-\mu_{Be}(E) \cdot t_{Be}] \exp[-\mu_{Au}(E) \cdot t_{Au}] \exp[-\mu_{dl} \cdot t_{dl}] [1 - \exp(-\mu_{Si}(E) \cdot t_{Si})] \quad (35)$$

Où G est un facteur géométrique, t_{Be} l'épaisseur de la fenêtre de béryllium, t_{Au} l'épaisseur de l'électrode or, t_{dl} l'épaisseur de la couche morte (dead layer thickness), t_{Si} l'épaisseur de la zone active et μ_{Be} , μ_{Au} , μ_{dl} , μ_{Si} les coefficients respectifs d'atténuation massique de la fenêtre en béryllium, de l'électrode en Au, de la couche active du détecteur, en $\text{cm}^2 \cdot \text{g}^{-2}$. L'efficacité est déduite à partir des coefficients d'absorption ajustés entre 1 et 30 keV au moyen d'un logiciel spécialisé.

IV.2.6. Pics de diffusion :

La radiation diffusée (Compton ou Rayleigh) est utilisée dans la méthode à paramètres fondamentaux comme source d'information pour l'estimation de la composition de la matrice irradiée. Elle permet également d'estimer l'épaisseur de l'échantillon. Dans le cas d'une excitation monochromatique.

Partie

Expérimentale

Chapitre V

Matériels et méthodes

V.1. Situation géographique du gisement du Hoggar :

Le Hoggar (ou Ahaggar) est situé au sud du Sahara algérien et couvre une superficie d'environ 556.000 km². Sa capitale administrative et économique Tamanrasset, se situe à 2000 km au sud d'Alger (**Figure 13**). Ses coordonnées géographiques sont les suivantes: longitude 5°27', Latitude 22°41'.

Le territoire de la wilaya de Tamanrasset englobe le Hoggar et une majeure partie des Tassilis et compte environ 100 000 habitants (statistiques de 1998). C'est un vaste territoire saharien constitué d'une population appelée touareg communiquant à l'aide d'un dialecte berbère dit (Tamachakt ou Tamahaght) d'écriture lyrique dite «Tifinagh».

Cette région est caractérisée par un climat typiquement désertique, aride et sec, avec de fortes fluctuations de température; Un été relativement chaud avec des températures diurnes allant jusqu'à 40°C ou plus et un hiver (Période décembre - février) moyennement tempéré, avec des températures diurnes allant de 15°C à 25°C et nocturnes jusqu'à 0°C. Cette période est la meilleure saison pour les travaux de terrain.

Le Hoggar contient d'important gisement d'uranium et thorium, 19 juin 1972, le président Boumediene a annoncé la découverte de gisement d'uranium dans le massif du Hoggar, c'est l'un des plus importants en Afrique. Le chiffre de 12 000 tonnes en oxyde d'uranium, c'est-à-dire en concentrés, a été donné par le chef de l'Etat algérien. Il reste à savoir quelles sont les teneurs de ce gisement et les éventuelles conditions d'exploitation. Ces deux paramètres sont essentiels pour savoir si le gisement du Hoggar est exploitable dans les conditions actuelles du marché, qui sont plutôt mauvaises, plus de 100 000 tonnes de concentrés, dont la moitié aux États-Unis, étant actuellement stockées, faute d'une demande suffisante.

Cela dit, la découverte d'uranium au Hoggar constitue une ressource potentielle pour l'économie algérienne, puisque les demandes d'uranium sont appelées à croître avec le développement des centrales nucléaires. Avec 12 000 tonnes de réserve, l'Algérie se place au troisième rang africain, après la République Sud-Africaine (plus de 150 000 tonnes) et le Niger (plus de 20 000 tonnes), et parmi les principaux pays du monde, bien que loin derrière les États-Unis et le Canada.

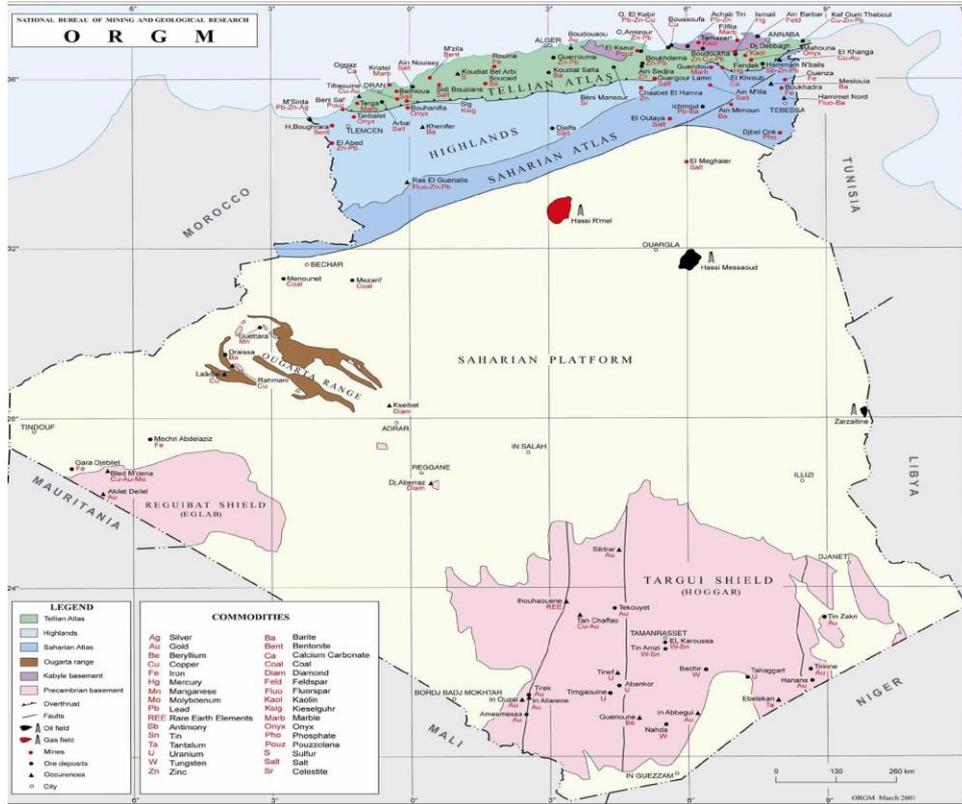


Figure 13 : carte de situation géographique du Hoggar.

V.2. Préparation des échantillons :

Avant l'analyse et le traitement d'un minerai, plusieurs opérations doivent être réalisées comme le concassage, le broyage, le criblage, le quartage et la séparation magnétique. Dans ce chapitre nous passons en revue et d'une manière brève la préparation mécanique de notre minerai et la description du matériel utilisé à cet effet.

Les échantillons ainsi traités mécaniquement doivent subir quelques opérations obligatoires à leurs analyses. (**Figure 14**) montre notre échantillon de roche Conglomérat du minerai du Hoggar qui a fait l'objet de cette étude.



Figure 14: échantillon de roche Conglomérat du minerai du Hoggar.

V.2.1. Concassage et broyage :

Le traitement mécanique fait consiste à la réduction des dimensions du bloc afin d'obtenir une granulométrie favorable aux traitements chimique et physique.

Environ 3kg de roche ont été concassé au niveau du CRND à l'aide d'un concasseur à mâchoire de type DRAGON (**Figure 15**) c'est un concassage grossier.



Figure 15: Concasseur à mâchoire, type DRAGON.

Afin d'avoir des particules encore plus fines nous avons utilisé un concasseur à cône (figure 16). La taille des particules du minerai a été réduite jusqu'à $100\mu\text{m}$.



Figure 16 : Concasseur à cône.

Un broyage a été effectué pour la granulométrie de 100 μ m et à l'aide d'un broyeur de type (FRITSCH). Cette opération est demandée pour les analyses XRF (**Figure 17**).



Figure 17 : Broyeur de type (FRITISCH).

La **figure 18** Montre les échantillons broyés à 100 μ m.

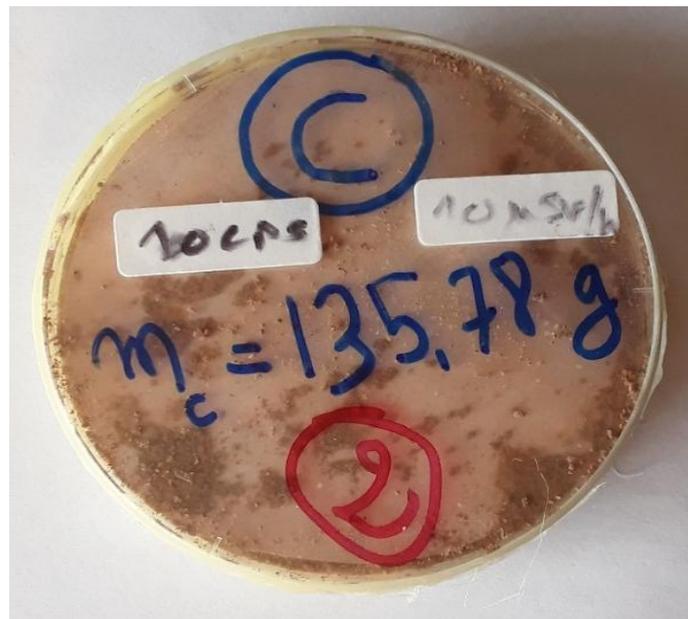


Figure 18: échantillons broyés à 100 μ m

V.2.2. Tamisage :

Après avoir une préparation du produit par deux stades de concassage (grossier par concasseur à mâchoire et fin par concasseur à cône) et broyage à sec (broyage autogène). Les grains obtenus ont été tamisé par un tamiseur de type (Retsch AS 200) avec des tamis de 5 diamètres différents (**figure 19**).



Figure 19 : Tamiseur de type (Retsch AS 200).

V.3. Mesure de la radioactivité naturelle :

Le travail expérimental relatif aux analyses par spectrométrie γ et XRF ont été réalisés au Centre de Recherche Nucléaire de Draria (CRND). La mesure de la radioactivité naturelle a été effectuée à l'aide d'une chaîne de spectrométrie γ (**Figure 20**), le traitement du spectre a été effectué par le logiciel Origin-Pro-9, développé par Origin/Lab. Ce logiciel de traitement et d'analyse des données est adapté aux besoins des scientifiques.

V.3.1. Chaîne de spectrométrie γ :

La radioactivité des échantillons est mesurée à l'aide d'une chaîne de spectrométrie γ (**Figure 21**) qui est composée des éléments suivants :

- Un détecteur hyper-pur germanium (**Hp/Ge**) qui possède un volume $V = 63 \text{ cm}^3$, une surface active $S_a = 16 \text{ cm}^2$, une efficacité $\varepsilon = 1.2\%$, une résolution de 1.80 KeV . Le rapport Pic/Compton est de **40**. Ces caractéristiques sont mesurées pour la raie γ à 1.33 MeV du ^{60}Co (**Figure 22**). Plongé dans un cryostat (**Figure 23**)

- Un préamplificateur incorporé
- Un module compacte d'instrumentation

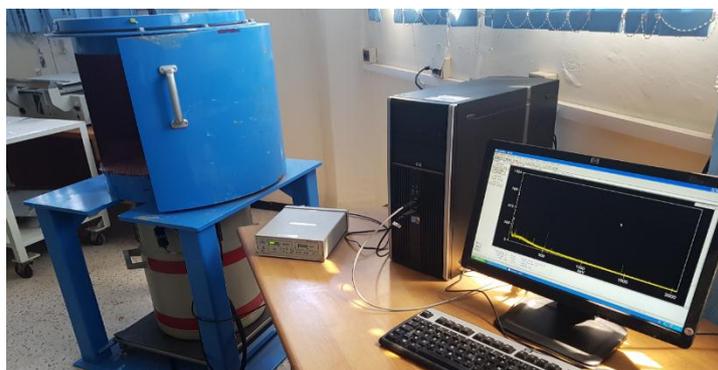


Figure 20: Chaîne de spectrométrie γ .



Figure 21 : Détecteur hyper pur Hp/Ge



Figure 22 : Le cryostat.



Figure 23 : Rack d'instrumentation de la chaîne de la spectrométrie γ .

V.3.2. Analyse du spectre γ :

Après les interactions au niveau du détecteur, l'analyseur multicanaux forme à l'écran l'histogramme de nombre de coups enregistrés. L'ensemble de l'histogramme est appelé le spectre d'énergie gamma. Chaque énergie d'un radionucléide est placée dans chaque numéro de canal de l'analyseur. Il existe deux types d'analyse en spectrométrie gamma : analyse qualitative et analyse quantitative.

V.4. La technique de la spectrométrie de fluorescence des rayons X :

V.4.1. Dispositif XRF :

Nous avons appliqué la fluorescence des rayons X (XRF) de notre échantillon de roche du Hoggar broyé et tamisé à la granulométrie $\Phi=100\mu\text{m}$ (**figure 24**).



Figure 24 : Le dispositif de la spectrométrie de fluorescence X.

L'échantillon de roche du Hoggar est rempli dans des portes échantillons en polyéthylène (**figure 25**) avec comme fond un film ultra mince en mylar (une couche de polyester).



Figure 25 : Porte échantillon en polyéthylène pour l'analyse de l'XRF.

Le présent travail a été effectué à l'aide d'un spectromètre de fluorescence X (XRF) portable (de marque : Thermo Scientific Niton XL3t GOLDD+). Celui-ci est spécialement conçu pour l'analyse des métaux et alliages sous forme solide, des minerais et des sols. C'est cette dernière fonctionnalité qui a été mise en œuvre. Les tensions et intensité maximales du tube sont respectivement de 35 kV et 10 μ A délivrant une puissance de 1,7 W. Le tube générateur de rayons X est refroidi par air, son anode est en argent avec une fenêtre de sortie en béryllium de 0,127 mm d'épaisseur. La section du faisceau (spot) à l'endroit où il touche l'échantillon est approximativement de 20 mm par 10 mm. Les éléments qu'il est possible de détecter vont du potassium (K, 19) au plutonium (Pu, 94).

Chapitre VI

Résultats et discussion

VI.1. Introduction :

Dans cette partie, nous présentons les résultats d'analyses que nous avons obtenus par la technique XRF et par la technique de spectrométrie γ haute résolution. L'étude concerne la radioactivité naturelle dans des échantillons de roche du Hoggar (roche de Conglomérat).

VI.2. Analyse XRF :

La (Figure 26) représente le spectre obtenu pour l'échantillon de conglomérat de la roche du Hoggar en 300 secondes avec l'analyseur à fluorescence X portable du CRND. Un logiciel spécialisé identifie chaque élément grâce à la bibliothèque d'émission de raies X implémentée avec logiciel d'identification. Les raies de fluorescence de l'uranium sont représentées par des traits verticaux rouges. On observe de nombreuses autres raies de fluorescence du fer, du cuivre ou du plomb.

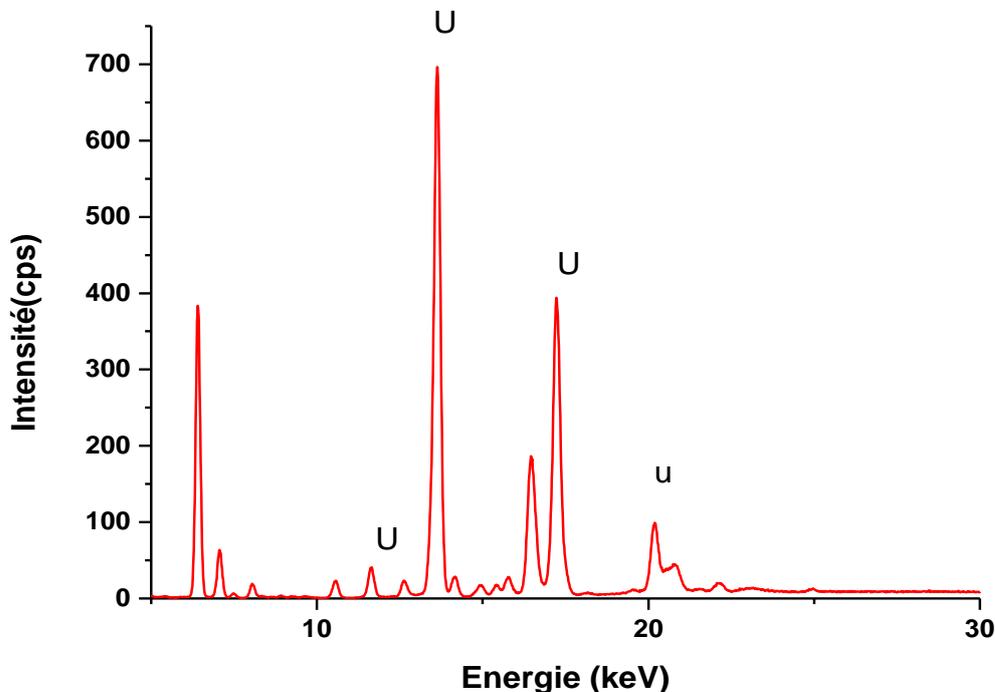


Figure 26 : Spectre obtenu suite à une mesure XRF d'un échantillon de Conglomérat (roche du Hoggar).

Par la suite, les différentes aires nettes identifiées sont estimées à partir du spectre et la concentration des éléments est déterminée après étalonnage et calibration du détecteur. Une teneur en uranium est calculée grâce aux différentes droites d'étalonnage implémentées au sein de l'analyseur. Ces droites d'étalonnage sont sélectionnées par l'opérateur suivant le type de mesure réalisée (mode minéral). Elles sont fournies par le fabricant sur des échantillons étalons.

Pour l'échantillon de minerai de conglomérat du Hoggar, les mesures obtenues pour la teneur en uranium, thorium et potassium sont respectivement : (8697 ± 34.997) ppm, (48.422 ± 4.591) ppm et (10493 ± 139.045) ppm. L'incertitude de mesure de l'analyseur est donnée à 2σ . Les résultats de l'analyse élémentaire sont donnés dans le (Tableau 2) suivant :

Tableau 2 : Résultats XRF de la composition élémentaire

Éléments	Concentration $\pm 2\sigma$ (ppm)	Élément	Concentration $\pm 2\sigma$ (ppm)
Zr	664.308 ± 5.821	V	596.909 ± 20.766
Sr	130.929 ± 2.511	Ti	6874.751 ± 71.418
Pb	247.515 ± 7.589	Sc	32.964 ± 11.904
Au	389.833 ± 12.518	Ca	5293.046 ± 74.196
As	25.661 ± 5.789	S	685.815 ± 77.632
Zn	77.087 ± 6.129	Pd	63.725 ± 2.652
W	27.632 ± 15.395	Nb	854.995 ± 7.259
Cu	143.412 ± 9.685	Al	22180.994 ± 430.397
Fe	22495.428 ± 176.679	P	3823.079 ± 728.012
Mn	39.168 ± 25.572	Si	194172.141 ± 905.037
Cr	114.399 ± 7.795		

VI.3. Analyse par spectrométrie γ haute résolution :

L'étalonnage de la chaîne de mesure est une étape importante qui doit être effectuée obligatoirement avant le dépouillement du spectre γ obtenu. Ceci constitue l'ajustement d'un instrument de mesure de telle façon que sa réponse est acceptable.

En spectrométrie gamma, on doit effectuer obligatoirement deux types d'étalonnage tels que :

- l'étalonnage en énergie
- l'étalonnage en efficacité.

On pratique, ces étalonnages se font au moyen des sources étalons (^{60}Co , ^{152}Eu , ^{137}Cs).

VI.3.1. Etalonnage en énergie :

C'est la mise en équation de l'énergie des photons gamma avec leurs numéros de canal. Pour pouvoir déterminer alors l'énergie du pic d'un rayon gamma, chaque canal du MCA (Multi Canal Analyseur) doit être attribué à une énergie donnée. La calibration en énergie de cette chaîne est reliée au numéro de canal C par une

fonction linéaire de type : $E(\text{keV}) = a \times C + b$ où a (keV/canal) et b (keV) désignent les paramètres d'ajustement qui sont déterminés expérimentalement au moyen d'une source standard de l'isotope d'Europium (^{152}Eu), qui possède une demi-vie $T_{1/2} = 13.537$ ans et dont le spectre est donné sur (figure 27).

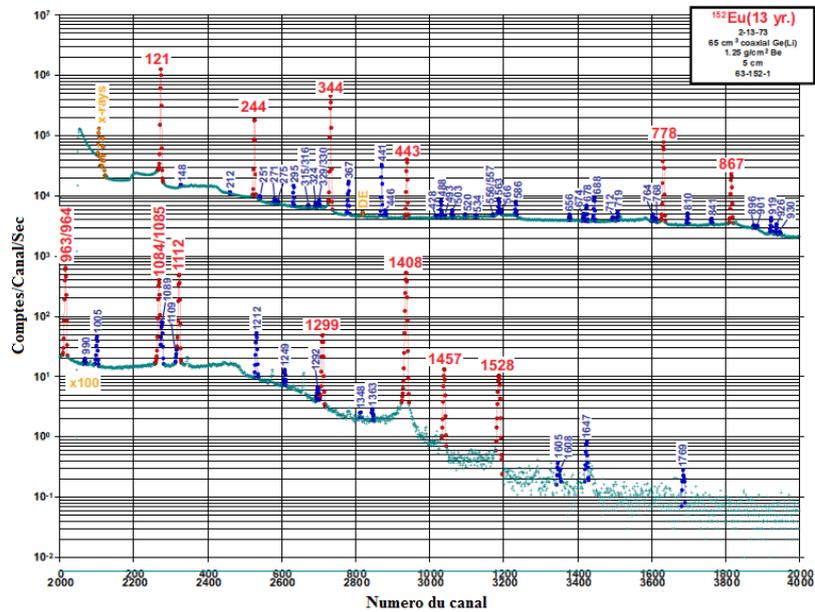


Figure 27 : Spectre caractéristique de la source étalon d' ^{152}Eu [19].

Nous avons tracé la droite d'étalonnage dont l'abscisse indique le numéro de canal de la surface du pic de l'élément considéré et l'ordonnée indique un nombre de coups. Le spectre énergétique de la source est donné dans (figure 28) où nous avons marqué les énergies de tous les pics correspondants aux raies γ de la source ^{152}Eu .

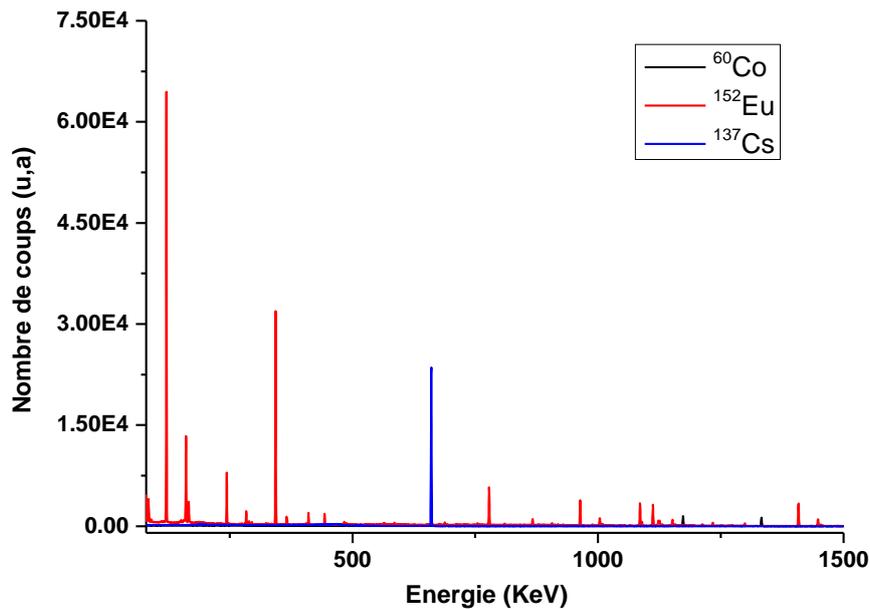


Figure 28 : Spectre γ des sources standards.

A partir du spectre donné en (Figure 28) nous avons établi la relation canal/énergie au (Tableau 3) qui suit :

Tableau 3 : Correspondance numéros du canal et énergie des pics de la source ^{152}Eu .

N° Canal	Energie (KeV)
152	121.72
305	244.67
430	344.30
554	444.01
973	778.93
1083	867.44
1024	964.12
1356	1085.91
1389	1112.09
1763	1408.01

L'ajustement des points expérimentaux s'est fait par la méthode des moindres carrés au moyen du logiciel OriginPro-9. On obtient une droite d'équation (Figure 29): $E(\text{KeV}) = 0.499950 \times C - 0.0268$

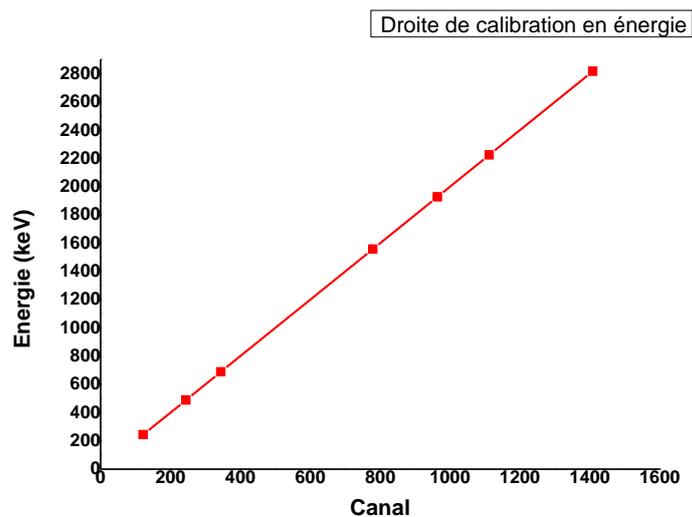


Figure 29 : Droite de calibration en énergie de la chaîne de spectrométrie γ .

VI.3.2. 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 "HP/Ge" blindé par une chambre de détection d'épaisseur ≈ 10 cm de Pb à faible bruit de fond.

Le temps d'acquisition du spectre a été fixé 40000 s. Le spectre obtenu est donné en (Figure 30). On remarque que le pic d'annihilation qui correspond à l'énergie $E_\gamma=511,7$ keV est un pic commun à plusieurs éléments dont les raies γ possèdent une énergie $E_\gamma>1022$ keV.

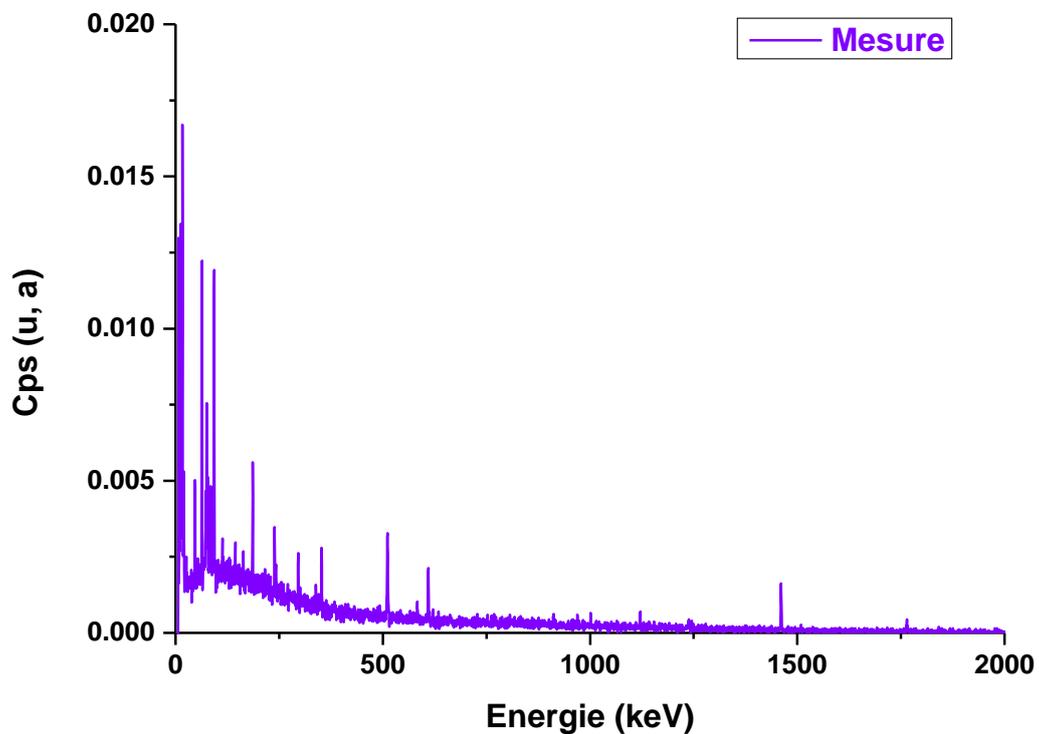


Figure 30 : Spectre γ du bruit de fond de l'installation CRND.

VI.3.3. Calibration en efficacité de la chaîne de spectrométrie γ :

Cette calibration a été faite expérimentalement aux moyens d'une source standard : europium (^{152}Eu).

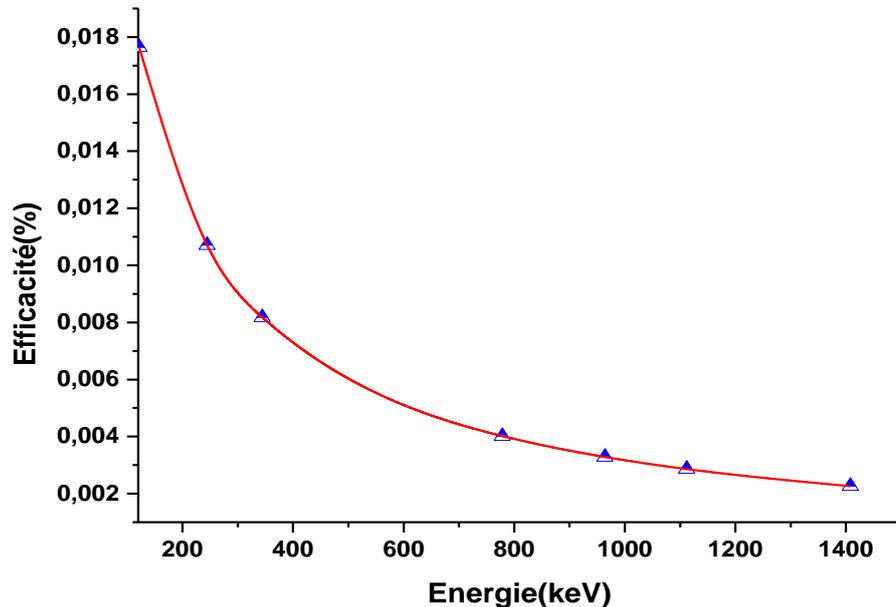


Figure 31: Courbe d'efficacité du détecteur en fonction de l'énergie à la géométrie 3.

Cette courbe d'étalonnage permet la lecture du facteur d'efficacité en fonction de l'énergie dans la bande d'énergie couverte par les sources de calibration ^{152}Eu correspond à la bande d'énergie E gamma ($121.78 < E < 1408.01$) keV. Les autres facteurs qui interviennent dans le calcul de la radioactivité naturelle sont tirés de la documentation spécialisée [19, 20].

VI.3.4. Analyse qualitative et identification des éléments :

Cette mesure a été effectuée sur un échantillon de Conglomérat de masse ($m \approx 0.1357$ Kg), de granulométries de l'ordre de $100 \mu\text{m}$. Le traitement des graphes est effectué par le logiciel OriginPro9 développé par Origin-Lab. Ce logiciel de traitement et d'analyse des données est adapté aux besoins des scientifiques et des ingénieurs. Les spectres γ de notre échantillon de roche couvrant la bande d'énergie [0 à 2000] keV sont représentés sur (figures 32, 33, 34), ce découpage en bande d'énergie fine a été effectué pour avoir une meilleure clarté et identification des pics d'énergie des radionucléides contenus dans l'échantillon étudié.

1-Bande d'énergie $E_\gamma = [0, 600]$ keV : nous obtenons le graphe suivants :

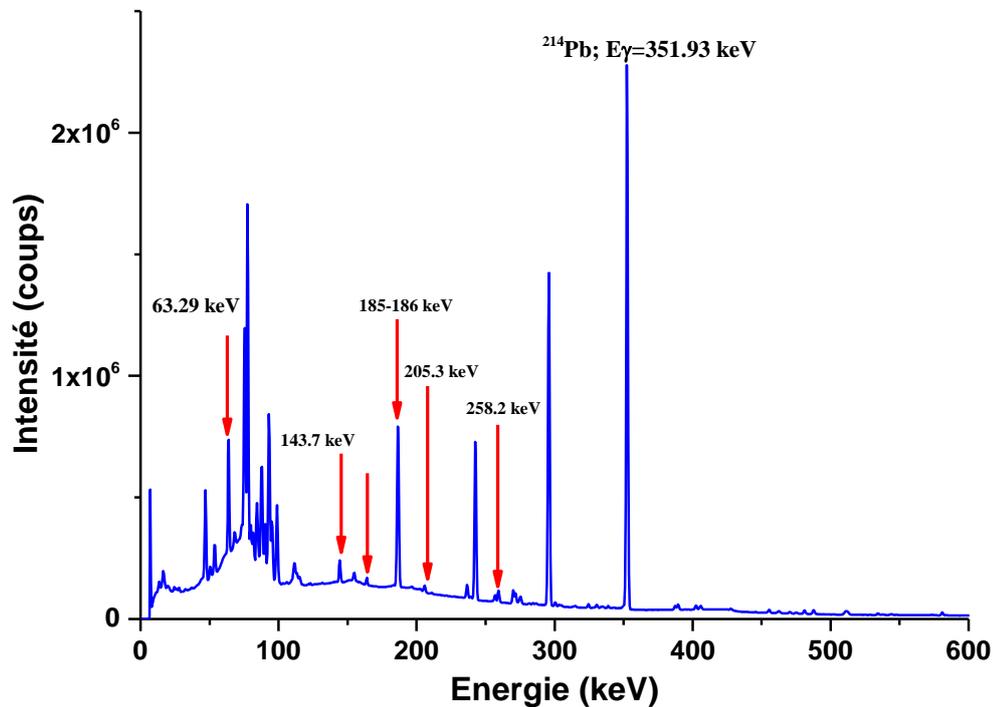


Figure 32 : spectre sur la bande d'énergie $E_\gamma [0-600]$ keV.

La figure montre le profil de détection d'importantes raies γ à 63,29 keV, 143,7 keV, 163,4 keV, 185–186 keV, 205,3 keV, 258,2 keV. Les raies γ autour de 63 keV, sont attribués au descendant de ^{238}U , c'est-à-dire ^{234}Th , $^{234\text{m}}\text{Pa}$ et ^{234}Pa .

Les émissions par fluorescence X de ^{234}U des raies $K_{\alpha 2}$, $K_{\alpha 1}$, $K_{\beta 1}$ et $K_{\beta 3}$ apparaissent respectivement à 94,6 keV, 98,4 keV, 111,24 keV et 114,5 keV. Ces émissions de rayons X interfèrent avec les raies γ importantes de ^{234}Pa à 97,17 keV et 98,4 keV et 99,8 keV. Ainsi, ces raies n'ont pas été considérées comme des pics de référence dans le présent travail. La raie 226,5 keV est très faible tandis que le reste des raies γ entre 64 keV et 258 keV sont en dessous des limites de détection. Pour un détecteur à haute résolution, la ligne γ 92,38 keV de ^{234}Th peut être utilisée, mais elle peut interférer avec les raies X ($K_{\alpha 2}$) de ^{234}U et provoquer une grande incertitude

2-Bande d'énergie $E_\gamma = [600,1200]$ keV : nous obtenons le graphe suivants :

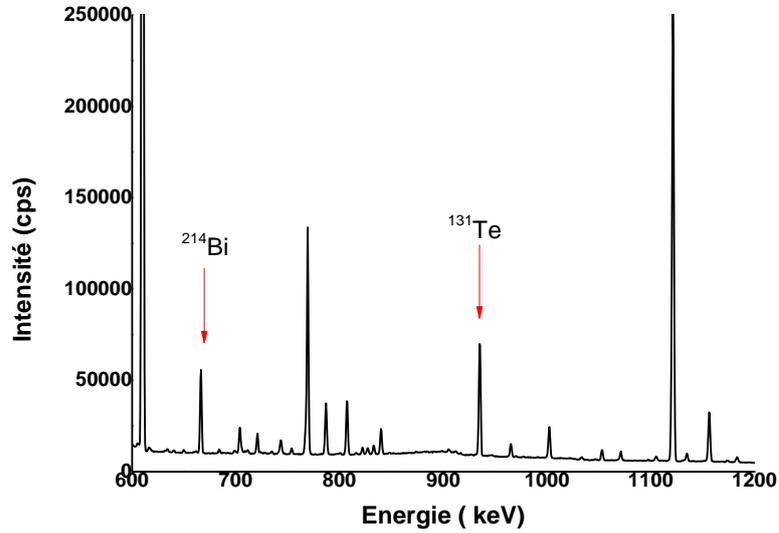


Figure 33 : spectre sur la bande d'énergie $E_\gamma [600-1200]$ keV.

3-Bande d'énergie $E_\gamma = [1200,2000]$ keV : nous obtenons le graphe suivant:

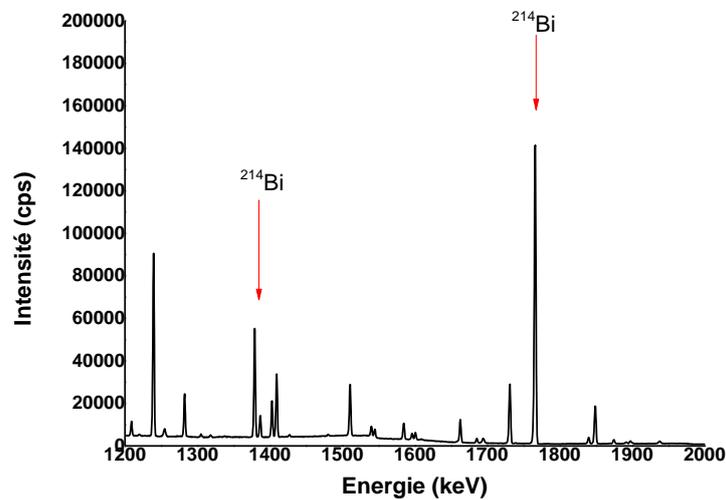


Figure 34 : spectre sur la bande d'énergie $E_\gamma [1200-2000]$ keV.

VI.3.5. Analyse quantitative :

VI.3.5.1. Procédure de mesure :

L'échantillon est placé sur le détecteur. Le temps de comptage pour notre échantillon était de 86400 s et le temps mort pendant la mesure était égal à 3.5%. Nous avons effectué une seule mesure. Les radionucléides sélectionnés sont les descendances du ^{232}Th et ^{238}U . Le (Tableau 4) montre les radionucléides utilisés et leurs énergies de rayons gamma. L'étalonnage de l'efficacité du détecteur a été effectué en utilisant la source d'étalonnage ^{152}Eu .

Tableau 4 : Données nucléaires nécessaires au calcul de l'activité des radioéléments [19].

Série ^{238}U				
Radionucléides	E_γ (keV)	Intensités (P_γ (%))	ε (%)	λ (s $^{-1}$)
^{226}Ra	186.21	3.56	0.01362	1.892×10^{-11}
^{214}Pb	295.22	18.50	0.0379	4.310×10^{-4}
	351.93	37.60	0.0571	
^{214}Bi	609.31	46.49	0.00503	5.805×10^{-4}
	1120.29	14.91	0.00284	
	1764.49	15.28	0.00179	
Séries ^{232}Th				
Radionucléides	E_γ (keV)	Intensités (%)	ε (%)	λ (s $^{-1}$)
^{212}Pb	238.63	43.60	0.010954	1.816×10^{-5}
^{212}Bi	727.33	6.74	0.004275	1.906×10^{-4}
^{208}Tl	583.19	30.60	0.005243	3.726×10^{-3}
	2614.51	35.85	0.00118	
^{40}K				
Radionucléides	E_γ (keV)	Intensités (%)	ε (%)	λ (s $^{-1}$)
^{40}K	1460.82	10.66	0.00218	4.226×10^{-16}

Nous signalons que pour les valeurs d'énergies plus grandes que 1406 keV (situées en dehors de la gamme de la source d'énergie de la source standard ^{152}Eu) nous avons utilisés la relation suivante :

$$\ln(\varepsilon) = A + B \ln(E) + C (\ln(E))^2$$

Avec les paramètres : $A = -2.4656$

$$B = 0.011447$$

$$C = -0.705594$$

VI.3.5.2. Analyse des pics γ :

Cette première opération consiste à définir un certain nombre de zones en particulier les zones correspondantes à des pics d'absorption totale dont la surface va permettre de faire correspondre des énergies. Ces régions sont appelées « régions d'intérêt : ROI » ou « zones pics ». L'analyse des pics γ est essentielle afin d'en extraire les informations utiles à l'analyse.

VI.3.5.3. Recherche des données nucléaires des radionucléides :

Après identification des nucléides présents dans le spectre que nous avons réalisée à partir de l'énergie E (keV) mesurée pour chaque pic γ . Nous avons obtenue à partir de la littérature les probabilités d'émission associée au pic d'énergie E_γ . Ces probabilités sont tabulées dans la littérature spécialisée (voir **Tableau 5**), elle intervient dans le calcul de l'activité (voir **équation 36**) [15]. La mesure ^{238}U , le ^{232}Th et le ^{226}Ra par spectrométrie γ se fait d'une façon indirecte, puisqu'ils constituent des membres des filiations de la radioactives naturelles. Les mesures se font à partir de leurs descendants à conditions que ces derniers doivent être émetteurs gamma avec une probabilité d'émission significative et qu'ils doivent être capables d'entrer en équilibre séculaire avec leurs parents qui sont des radioéléments émetteurs α au cours d'une période temporelle raisonnable.

Tableau 5 : Radionucléides détectés, leurs énergies et les probabilités d'émission γ [19, 20]

Radionucléides	Energie (keV)	Probabilité d'émission (%)
^{212}Pb	238,63	43,30
^{214}Pb	351,93	37,60
^{214}Bi	609,31	46,10
^{228}Ac	911,20	25,80
^{234}Pa	1001,03	0,84
^{40}K	1460,83	11,00

VI.3.5.3.1. Quantification de l'Uranium 238 :

L'uranium 238 peut être dosé par spectrométrie γ par la mesure des activités des radionucléides issus de sa désintégration, le ^{214}Pb , le ^{214}Bi et le ^{226}Ra qui sont en équilibre séculaire avec lui.

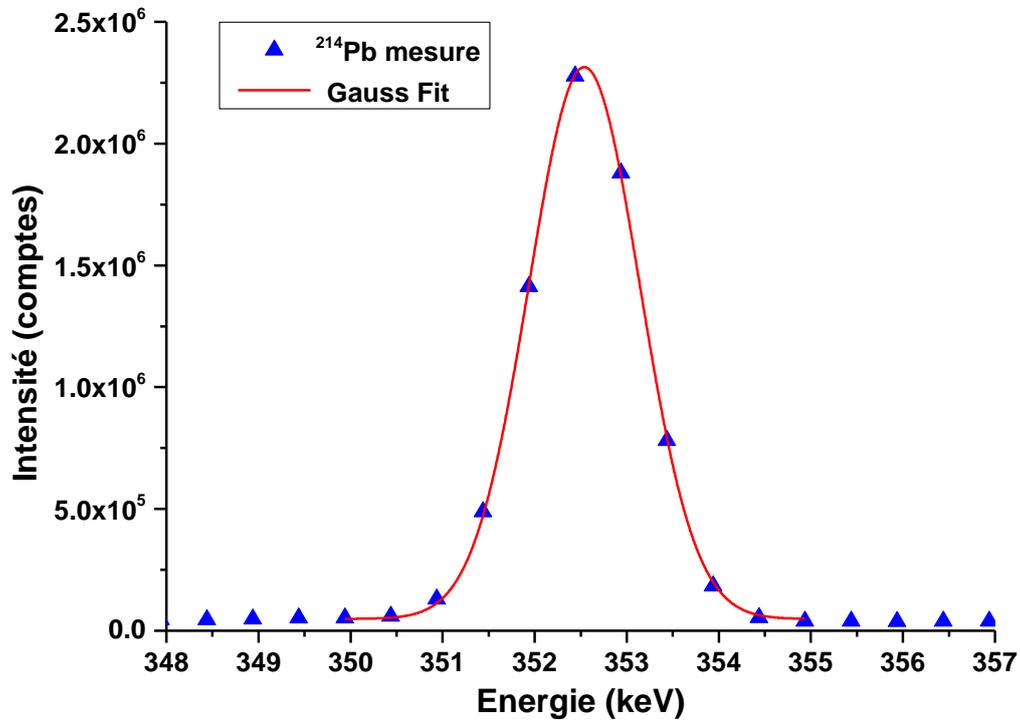


Figure 35 : Graphe de la raie γ du ^{214}Pb à $E_{\gamma}=351.93$.

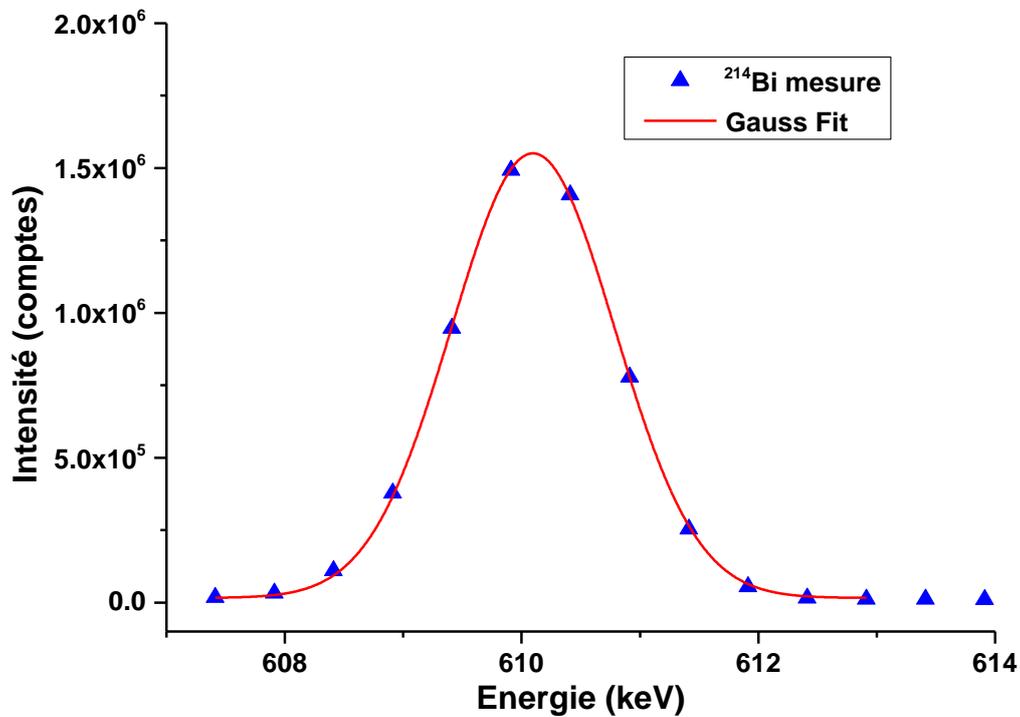


Figure 36: Graphe de la raie γ du ^{214}Bi .

VI.3.5.3.2. Quantification du Radium 226 :

Le ^{226}Ra est un radionucléide à longue période dans la chaîne de désintégration Uranium/Radium, de période de 1600 ans. L'évaluation du ^{226}Ra peut être effectuée à partir de la raie de 186,1 keV, ou bien le ^{214}Pb et le ^{214}Bi , radionucléides à courte période et produits de filiation du ^{222}Rn . Ils ont été mesurés après établissement de l'état d'équilibre radioactif entre le ^{226}Ra , le ^{222}Rn , le ^{214}Pb et le ^{214}Bi . La raie de 186,1 keV est interférée par celle de 185,72 keV due à l' ^{235}U donc en supposant que l'équilibre séculaire est établi entre le ^{226}Ra et le ^{222}Rn lors de la mesure et en tenant compte de l'effet de sommation qui doit faire l'objet d'une correction si toutes les raies gamma du Pb et du Bi détectables, les figures suivantes représentent les spectres relatifs aux zones de Pic retenues des radioéléments descendant de la chaîne ^{238}U .

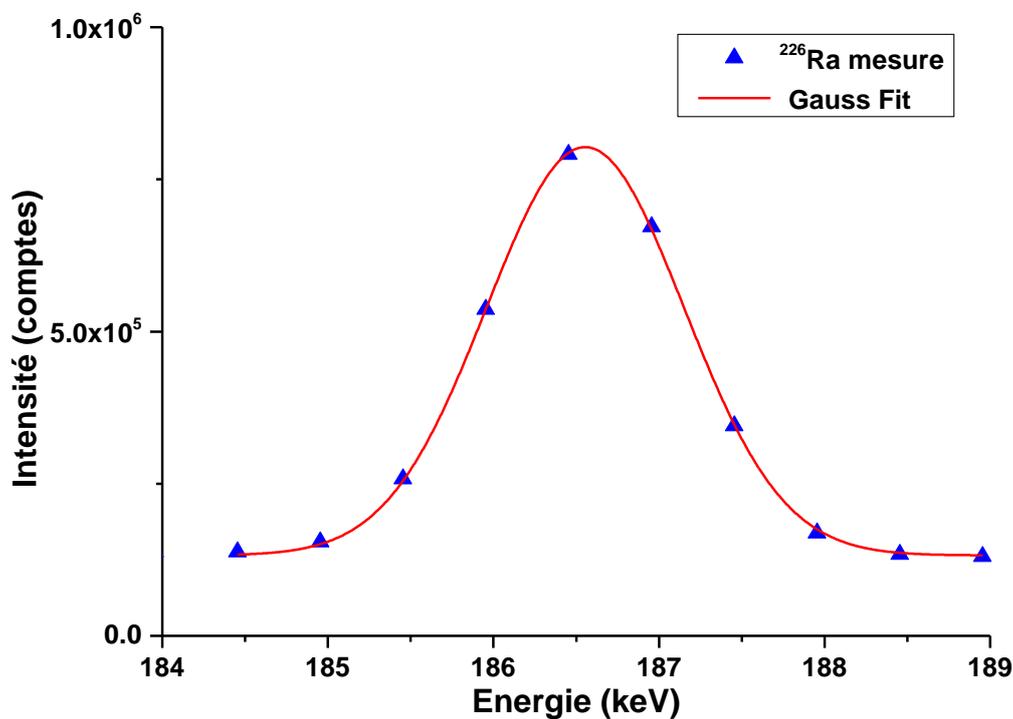


Figure 37: Détermination du ^{226}Ra

Cette raie γ est classiquement utilisée pour la mesure du déséquilibre U/Ra de l'échantillon. On note que les teneurs que l'on calcul pour l'uranium et le thorium ne sont que des teneurs équivalentes car elles sont obtenues grâce à des nucléides présents en fin de leurs chaînes respectives (^{214}Bi et ^{208}Tl). En connaissant la résolution des détecteurs communément utilisée avec un détecteur Hp/Ge et les efficacités de détection on peut déduire de l'activité massique (voir chap. 3) les teneurs en potassium, uranium et thorium équivalentes.

On note cependant que cette méthode dépend essentiellement des corrections effectuées pour calculer l'efficacité de détection. Ainsi que les corrections de l'effet de matrice déterminées par un calcul MCNP pour plusieurs densités de l'échantillon

VI.3.5.3.3. Quantification du Thorium 232 :

Le Thorium-232 a une raie à 63,81 keV qui présente une probabilité d'émission très faible, de 0,263 %. Cette raie interfère avec celle du Thorium-234, à 63,28 keV qui présente une probabilité d'émission plus forte égale à 4,1 %, raison pour laquelle le Thorium-232 ne peut pas être déterminé directement par spectrométrie gamma dans des échantillons de roche.

La détermination du Thorium-232 à partir de ses radionucléides descendants Tellure-208 et le Plomb-212 et Bismuth-212 ne peut être réalisée que dans la mesure où l'on suppose que les radionucléides sont en état d'équilibre radioactif l'un par rapport à l'autre et par rapport au Th. Les figures suivantes représentent les spectres relatifs aux zones de Pic retenues des radioéléments descendant de la chaîne ^{232}Th :

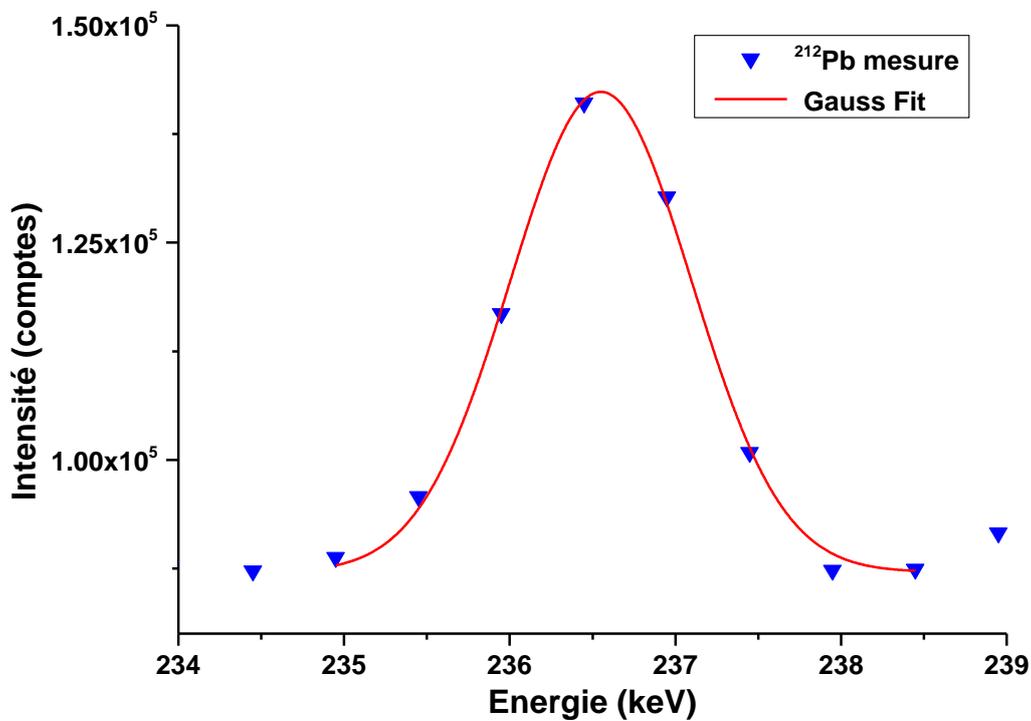


Figure 38: Graphe de la raie γ du ^{212}Pb

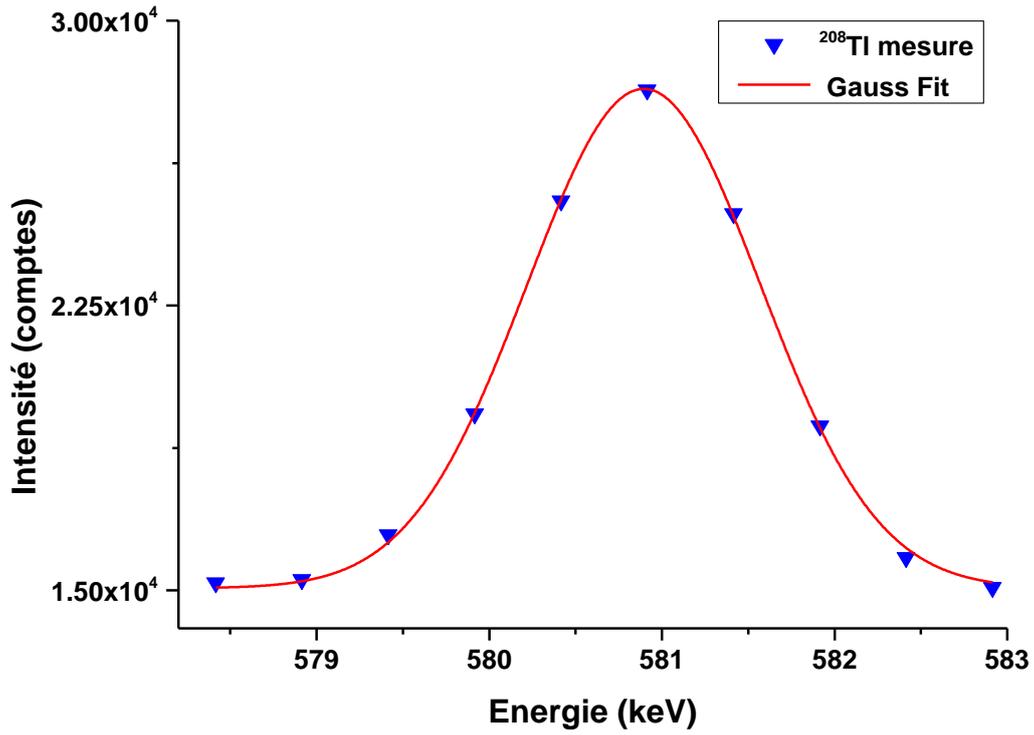


Figure 39 : Graphe du Pic de la raie γ du ^{208}Tl .

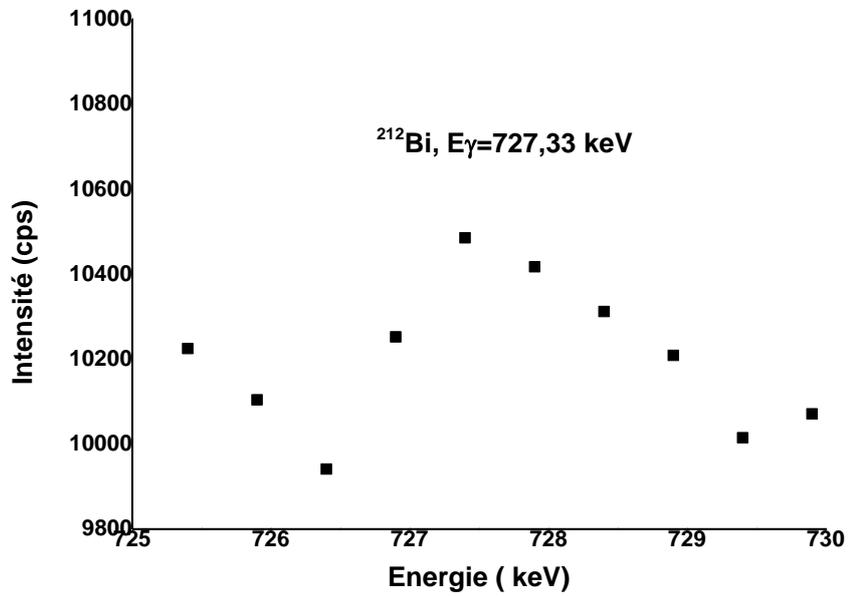


Figure 40 : Graphe du Pic de la raie γ du ^{212}Bi .

Remarque : L'ajustement par le logiciel Origin lab n'a pas convergé. Ce resultat était prévisible car le pic $E_{\gamma}=727.33$ keV de ^{212}Bi est confondu avec le bruit de fond. La hauteur de pic est 10485 cps, le niveau de bruit de fond est 10225 cps, donc on est dans un cas de limite de détection.

VI.3.5.3.4. Quantification du potassium K-40 :

Le ^{40}K est déterminé par spectrométrie gamma en utilisant la raie 1460.83 Kev

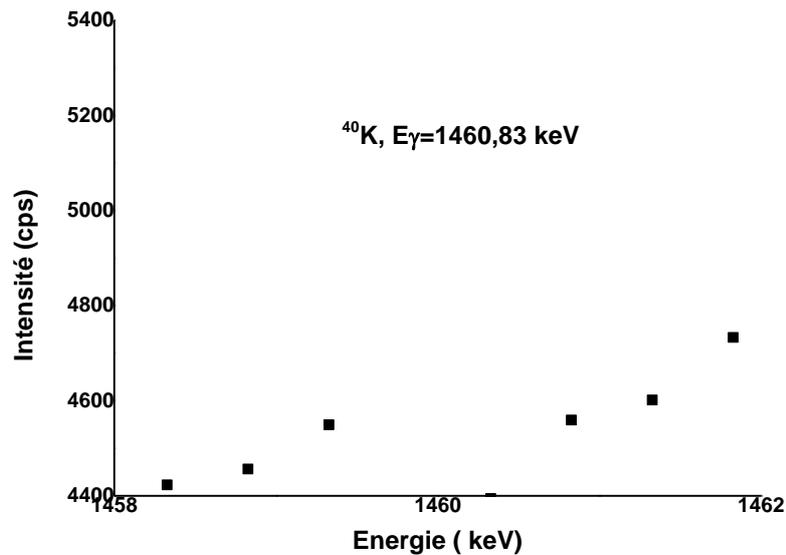


Figure 41 : Graphe du pic de la raie du ^{40}K .

Remarque :

Le spectre γ obtenus lors de la mesure de notre échantillon est une combinaison linéaire du spectre de l'uranium, du thorium et du potassium. Cependant, afin de corriger les différents effets d'atténuation qui interviennent lors de la mesure effectuée par identification des raies principales pour chaque radioélément. C'est le même cas pour le ^{40}K , on a une limite de détection. On remarque que le pic $E_{\gamma}=1459.3$ keV de ^{40}K est confondu avec le bruit de fond. La hauteur de pic est 10485 cps, le niveau de bruit de fond est de 1458.3 cps.

✓ Radioactivité artificielle ^{137}Cs :

Quand on a mesuré la radioactivité naturelle dans la roche conglomérat du Hoggar, une activité artificielle a été détectée et identifiée par son énergie $E_{\gamma} = 661$ keV comme radioéléments artificielle ^{137}Cs . Le césium-137 est un élément radioactif dont la durée de vie est considérée comme moyenne. Sa période est de 30,1ans. Cet isotope du césium est un émetteur de rayons bêta dont l'énergie moyenne est de 187 keV. Les désintégrations sont accompagnées dans 85% des cas d'un rayonnement- γ énergétique de 661,6 keV. Cette raie

caractéristique permet de détecter la présence de très faibles quantités de ce césium radioactif. Le césium-137 a été répandu dans le Sahara algérien lors des essais dans l'atmosphère et sous terre des armes atomiques.

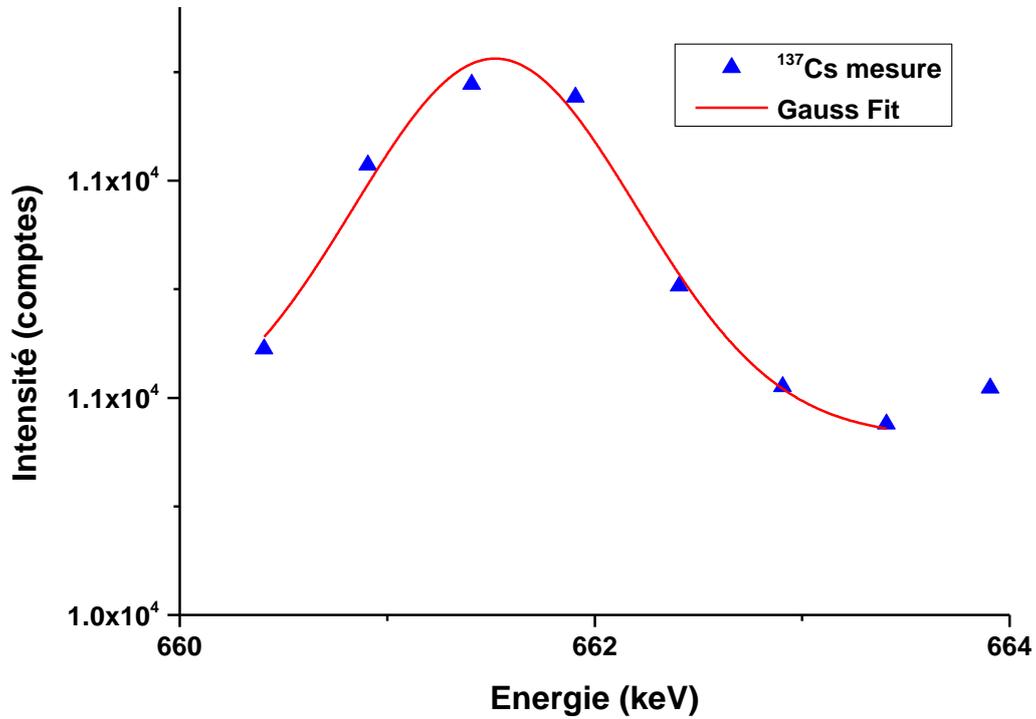


Figure 42 : Graphe du pic de la raie du ^{137}Cs .

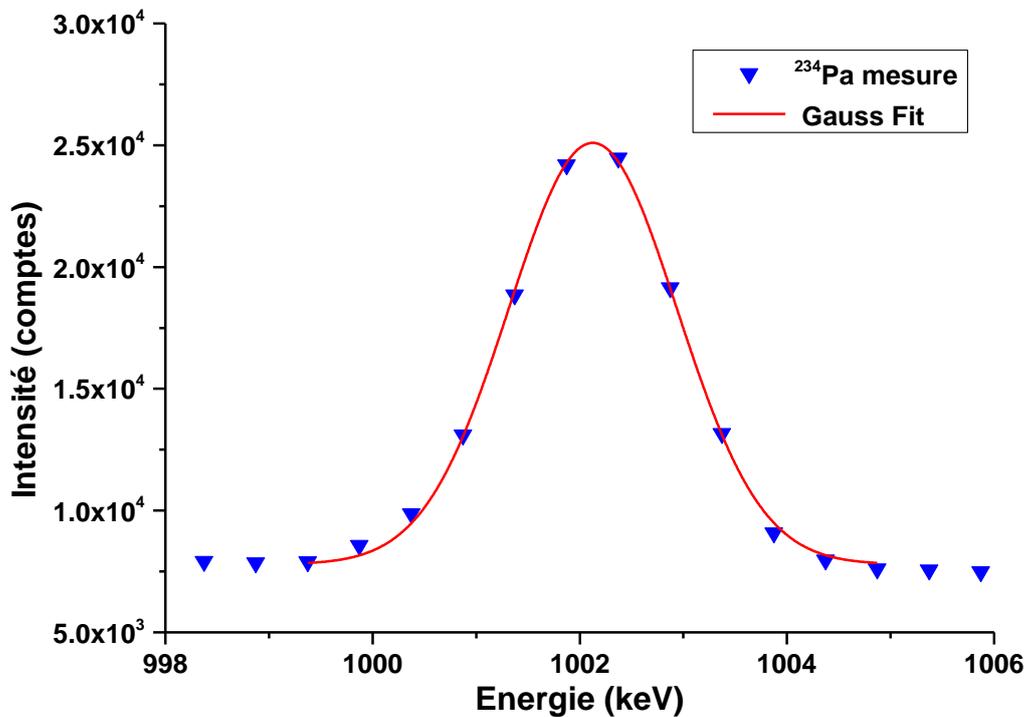


Figure 43 : Graphe du pic de la raie du ^{234}Pa .

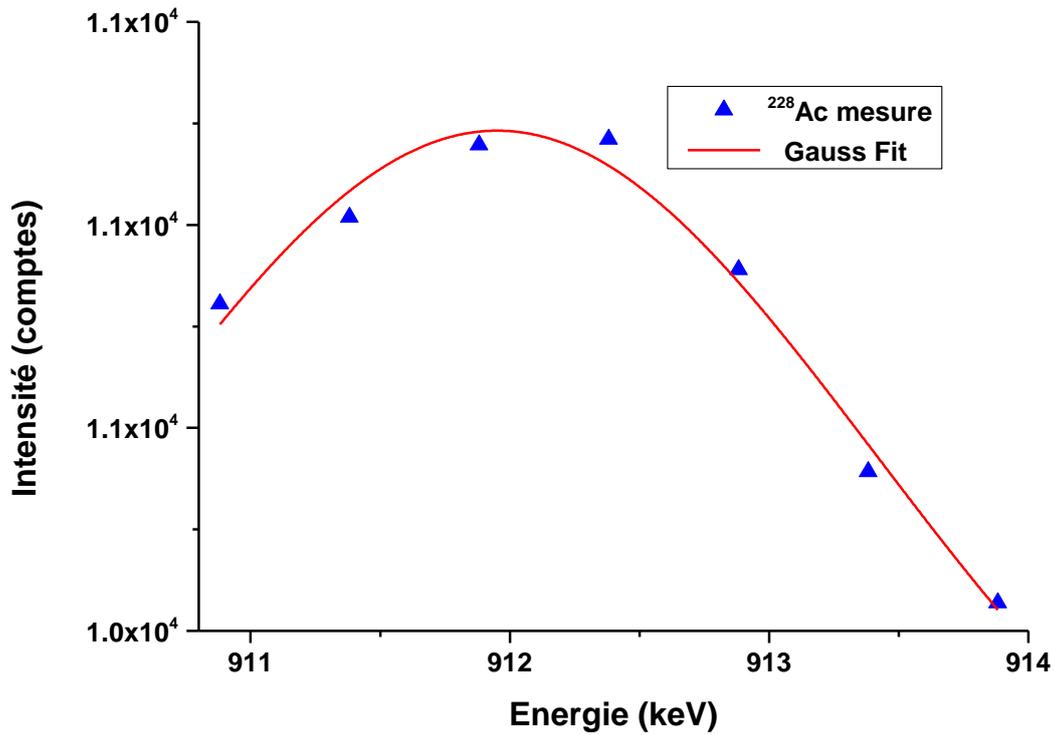


Figure 44 : Graphe du pic de la raie du ^{228}Ac .

V.3.5.4. Calcul de l'activité d'un radionucléide :

V.3.5.4.1. Mesure de la radioactivité naturelle de l'échantillon conglomérat de la roche du Hoggar :

- Temps actif : 86400sec
- Temps réel : 89594sec
- Temps mort : 3.57%

L'activité d'un radionucléide est donnée par la formule ci-après :

$$A = \frac{N_{ech} - N_{BF}}{\epsilon \cdot P_{\gamma} \cdot m \cdot Tc} \quad (36)$$

Avec : N_{ech} est la surface nette du pic de l'échantillon, N_{BF} est la surface nette du pic du bruit de fond, le temps de comptage de l'échantillon est 86400 s, ϵ représente l'efficacité de détection à l'énergie du radionucléide (en pourcentages), P_{γ} traduit la probabilité d'émission du radionucléide (en pourcentages), et m représente la masse de l'échantillon en g $m=135.7$ g

V.3.5.4.2. Calcul de l'activité des radionucléides sans tenir compte de l'effet de matrice :

Dans ce calcul de l'activité des radionucléides nous considérons que l'effet d'auto-atténuation comme négligeable. L'ajustement des points expérimentaux ont été fait suivant la fonction de Gauss. Les surfaces des pics ont été calculées par Origin-Lab. Les résultats de calcul sont compilés dans le (Tableau 6) suivant :

Tableau 6 : Activités des radioéléments calculés.

Elément	R ²	S _{NET} ± ΔS _{NET} (coups)	Activité (Bq/g)
²¹² Pb	0.9956	(7.57 ± 0.08)E+06	13617±372.3
²¹⁴ Pb	0.9997	(3.413 ± 0.028)E+06	2042±51.00
²¹⁴ Bi	0.9996	(2.654 ± 0.028)E+06	9761±266.7
²²⁸ Ac	0.9669	(7328 ± 5089)	LD
²³⁴ Pa	0.9979	(35205 ± 804)	11312 ± 448.07
⁴⁰ K	N.D	N.D	N.D

V.3.5.4.3. Cas d'échantillon épais :

L'efficacité globale a été déterminée par simulation avec le code de calcul MCNP soit à partir des efficacités pratiques moyennes, p.e, évaluées expérimentalement (pour les radioéléments naturels) et de l'auto atténuation calculée par méthode de Monte-Carlo. Dans les deux cas, il est nécessaire de connaître la masse et la composition de l'échantillon [7].

Afin d'analyser l'effet dû à l'auto-atténuation γ par l'uranium et le thorium, de notre échantillon il a été simulé à de la teneur en uranium, thorium tel que déterminé au moyen de l'analyse élémentaire faite dans ce travail par la technique XRF. Notre échantillon a été supposé homogène sa hauteur de 1.1 cm, une densité variable de ($d_1 = 0.8$, $d_2 = 1.0$, $d_3 = 1.2$, $d_4 = 1.4$, $d_5 = 1.6$, $d_6 = 1.8$, $d_7 = 2.0$, $d_8 = 2.2$) g/cm³ et une minéralogie SiO₂, Fe₂O₃, d'un échantillon type. Dans notre étude la densité du milieu est inconnue. Les spectres issus de ces différentes densités sont présentés sur la (Figure 45).

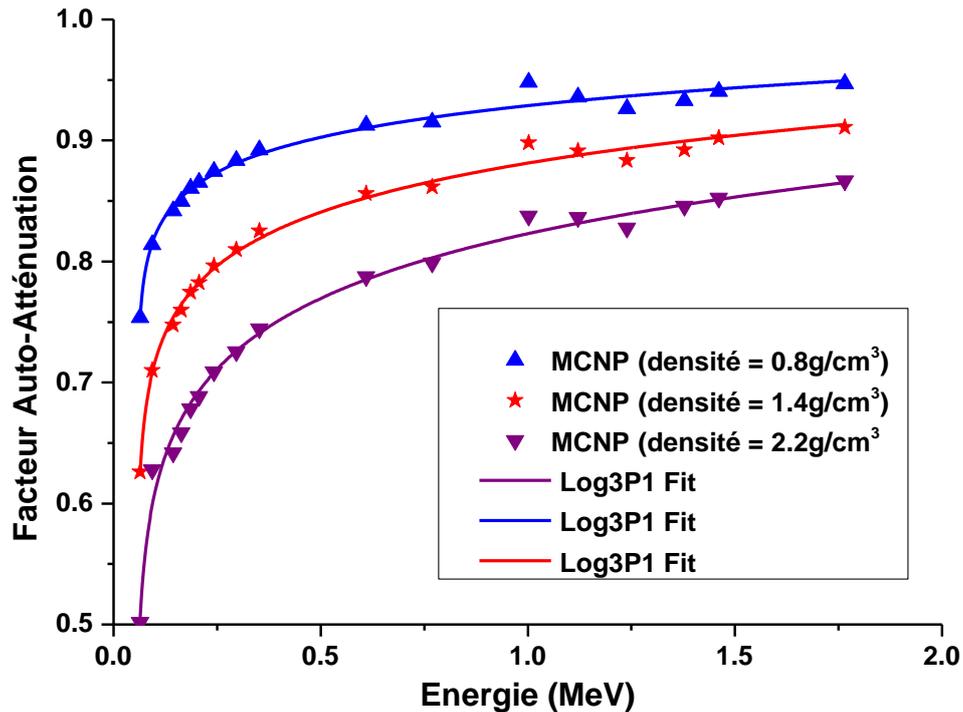


Figure 45 : Représentation de la variation du coefficient d'auto atténuation pour les valeurs simulées par MCNP en fonction de l'énergie pour différentes densités ($d_1 = 0.8$, $d_3 = 1.4$, $d_8 = 2.2$) g/cm^3 .

Les facteurs d'auto atténuation $F_A(E)$ sont déterminés graphiquement à partir du graphe en figure 26 pour chaque densité. Les résultats obtenus pour chaque radioélément sont regroupés dans le (Tableau 7).

Tableau 7 : Variation du coefficient d'auto absorption en fonction de l'énergie E_γ en (keV) et la densité ρ en (g/cm^3).

Elément	Energie (keV)	F_A (densité=0.8)	F_A densité=1.4)	F_A (densité=2.2)
^{212}Pb	238.63	0.875 ± 0.00875	0.797 ± 0.00797	0.707 ± 0.00707
^{214}Pb	351.93	0.888 ± 0.00888	0.816 ± 0.00816	0.732 ± 0.00732
^{214}Bi	609.31	0.918 ± 0.00918	0.864 ± 0.00864	0.798 ± 0.00798
^{228}Ac	911.20	0.928 ± 0.00928	0.881 ± 0.00881	0.823 ± 0.00823
^{234}Pa	1001.03	0.930 ± 0.0093	0.884 ± 0.00884	0.828 ± 0.00828
^{40}K	1460.83	0.937 ± 0.00937	0.895 ± 0.00895	0.844 ± 0.00844

La méthode proposée méthode consiste à utiliser l'efficacité ε mesuré expérimentalement pour des sources standards sans effet de matrice. Seule l'autoatténuation est calculée par méthode de Monte-Carlo. L'inconvénient de ces méthodes c'est qu'ils sont peu sensible aux erreurs qui découleraient d'une description imparfaite de l'ensemble de détection. L'efficacité est alors : $\varepsilon^* = \varepsilon * F_A$

Avec ; ϵ : Coefficient d'efficacité déterminé expérimentalement au moyens d'une source ponctuelle ;

$F_A(E)$: facteur qui permet de corriger l'effet de matrice d'un échantillon de masse m.

Les résultats des activités mesurés par éléments suivant la chaîne d'uranium et de thorium sont donnés dans les (tableaux 8, 9, 10) qui suit :

Pour F_A (densité=0.8 g/cm³) :

Tableau 8 : Détermination des activités spécifiques des radionucléides détectés.

Radionucléides	ϵ^*	Activités spécifiques (Bq/g)
²¹² Pb	1.362×10^{-5}	(1093±40.04)
²¹⁴ Bi	4.124×10^{-6}	(93560±3426.45)
²¹⁴ Pb	1.023×10^{-3}	(59192±2028.68)
²²⁸ Ac	2.491×10^{-6}	LD
²³⁴ Pa	2.212×10^{-6}	(203732±9964.66)
⁴⁰ K	1.373×10^{-6}	ND

Pour F_A (densité=1.4 g/cm³) :

Tableau 9 : Détermination des activités spécifiques des radionucléides détectés.

Radionucléides	ϵ^*	Activités spécifiques (Bq/g)
²¹² Pb	2.22×10^{-5}	(670±24.54)
²¹⁴ Bi	6.81×10^{-6}	(54906±2010.82)
²¹⁴ Pb	1.67×10^{-5}	(36211±1241.20)
²²⁸ Ac	4.46×10^{-6}	LD
²³⁴ Pa	3.66×10^{-6}	(101750±4976.66)
⁴⁰ K	2.28×10^{-6}	ND

Pour F_A (densité=2.2 g/cm³) :

Tableau 10 : Détermination des activités spécifiques des radionucléides détectés.

Radionucléides	ϵ^*	Activités spécifiques (Bq/g)
²¹² Pb	3.20×10^{-5}	(465±17.03)
²¹⁴ Bi	1.01×10^{-5}	(7449±272.8)
²¹⁴ Pb	2.44×10^{-5}	(24822±850.82)
²²⁸ Ac	6.12×10^{-6}	LD
²³⁴ Pa	5.43×10^{-6}	(66721±3263.36)
⁴⁰ K	3.40×10^{-6}	ND

Interprétation :

- ✓ La radioactivité de notre échantillon présente une singularité car les teneurs en radionucléides naturels des chaînes de l'uranium naturel sont nettement supérieures à la moyenne de l'écorce terrestre.
- ✓ On remarque que si on néglige l'effet de la matrice de notre échantillon, les teneurs sont sous-estimés à cause de l'auto absorption dans l'échantillon à basse énergie des rayonnements γ . Par contre à haute énergie (1001 keV), l'effet de l'auto absorption est peu visible car les valeurs de l'activité trouvées sont égales aux erreurs statistiques prés.
- ✓ On observe qu'à la densité $\rho=1.4 \text{ g/cm}^3$ l'activité spécifique du ²¹⁴Bi est sensiblement égale à l'activité spécifique du ²¹⁴Pb ceci nous permet de conclure qu'on travaille à la bonne densité du milieu de notre échantillon.
- ✓ Le rapport des activités est (0.89, 0.95, 4.81) correspondant respectivement aux densités (0.8, 1.4, 2.2) g/cm³, ce rapport est proche de l'unité pour la densité $\rho=1.4 \text{ g/cm}^3$. Ce résultat nous permet de déterminer l'activité de ²²⁶Ra et par conséquent celle de l'²³⁸U car la condition d'équilibre séculaire est satisfaite aux erreurs d'expériences prés.

Ce travail a eu pour but la détermination de la radioactivité naturelle d'un échantillon de roche conglomérat du Hoggar, en utilisant deux techniques de caractérisations analytiques : l'analyse par spectrométrie γ haute résolution et l'analyse par fluorescence X. Les travaux en laboratoire ont été effectués à la Division Réacteur NuR du Centre des Recherche Nucléaires de Draria (CRND). Ce travail nous a permis d'avoir une approche pluridisciplinaire dans les différents domaines du génie nucléaire.

Une préparation mécanique indispensable pour a été effectuée notre minerai en faisant plusieurs opérations avant le début d'analyse et de traitement. Ces opérations consistent à la réduction des dimensions des roches afin d'obtenir une granulométrie favorable aux traitements et analyses chimiques et physiques. Pour atteindre l'équilibre séculaire avec les radionucléides descendants du radon, l'échantillon a été conservé dans le porte échantillon hermétiquement fermé pendant 1 mois avant la mesure

L'analyse XRF a permis d'obtenir à basse énergie une bonne séparation des raies de fluorescence L et K de l'uranium, du thorium et du potassium. L'analyse multiélémentaire obtenue par XRF a été utilisée par le code MCNP pour le calcul de l'auto absorption de l'échantillon.

Dans une seconde partie, nous nous sommes particulièrement intéressés aux processus physiques régissant la radioactivité et le fonctionnement des chaînes de détection à semi-conducteurs à haute résolution. Nous avons dans une première partie été initié à la technique de spectrométrie γ à haute résolution. L'étalonnage en énergie et en efficacité de la chaîne a été fait au moyen d'une source standard d'euporium-252. Les logiciels Gamma Vision et Origin-9 ont été utilisés pour le traitement et l'analyse spectrale. Les activités spécifiques ont été déterminées à partir des masses sèches de l'échantillon.

En spectrométrie γ l'autoatténuation des photons est un des facteurs qui influe sur l'analyse quantitative des échantillons volumineux. Pour étudier l'auto absorption et sa variation en fonction de l'énergie de rayonnement- γ , de la composition et de la densité de l'échantillon, nous avons utilisé le code MCNP qui était pratiquement adapté pour les calculs des facteurs correctifs, tel que dans notre cas le coefficient d'auto absorption.

Pour l'échantillon de minerai de conglomérat du Hoggar, les mesures obtenues pour la teneur en uranium, thorium et potassium sont respectivement : (8697 ± 34.997) ppm, (48.422 ± 4.591) ppm et (10493 ± 139.045) ppm. Les résultats des activités mesurés par éléments suivant la chaîne d'uranium et de thorium sont les suivants : (54906 ± 2010.82) ; (36211 ± 1241.20) ; (670 ± 24.54) Bq pour F_A (densité=1.4 g/cm³).

- [1] Van De Vorst A., Introduction à la physique, De Boeck-Wesmael, Bruxelles, 1992, pp.156-172.
- [2] Ligou J., Introduction au génie nucléaire, Presse polytechnique et universitaire romandes, Suisse, 1982.
- [3] Foos J., Manuel de radioactivité, Hermann, Paris, 2009, pp.206-209.
- [4] E.Dahi, L.Meherchi ; Système de double calcul dosimétrique, mémoire de master en physique médicale(2010).
- [5] R.D. Evans "The Atomic-Nucleus". Kreiger, New York, (1982)
- [6] M.Maache., Application d'une méthode d'Analyse d'échantillons solides par spectrométrie gamma, 1993, Ingénieur en radioprotection (1993), p10, 11.
- [7] F. Courtine., Etalonnage d'un spectromètre gamma en vue de la mesure de la radioactivité naturelle: Mesures expérimentales et modélisation par techniques de Monte-Carlo. Université Blaise Pascal - Clermont-Ferrand II, (2007).
- [8] Blanc D., Physique nucléaire pour les médecins et les biologistes, Masson, Paris, 1993, pp.133-192.
- [9] Kneeth S. Krane, Introductory Nuclear Physics, John Wiley and Sons, 1988.
- [10] F.Salem, A.Sifi, Détermination du Polonium -210 dans les moules *Mytilus galloprovincialis* de la zone côtière Algéroise, ingénieur d'état en génie de l'environnement (2009).
- [11]A.cheetah.Y.Hamoum, Concentration du Radium-226 contenu dans le résidu de l'industrie pétrolière. Ingénieur d'état. Génie de l'environnement. Alger (2012).
- [12] G.Le Petit, G.Granier, spectrométrie gamma appliqué aux échantillons de l'environnement. Edition TEC et DOC (Lavoisier, 2002).
- [13] T.Mekil, Institut de chimie de Nice(ICN), These Doctorat, Paris Tanguy.
- [14] H. Bartova, J. Kucera, L. Musilek, T. Trojek, E. Gregorova, Determination of U, Th and K in bricks by gamma-ray spectrometry, X-ray fluorescence analysis and neutron activation analysis, Rad. Phy. Chem. 140 (2017) 161-166
- [15]T. Marchais, Optimisation des mesures de spectrométrie gamma pour la prospection de l'uranium. Instrumentations et Détecteurs, thèse Doctorat Université Grenoble Alpes, (2019).
- [16]W. T. Edie, D. Dryard, F. E. James, M. Roos*, B Sadoulet, Statistical Methods in Experimental Physics, North-Holland Publishing Company. Amesterdam. London (1970).
- [17] M. E. Benamar, Les techniques XRF et PIXE : Application, Alg. Rev. Nucl., CDTN, (1999), 93-100.
- [18]H.R. Verma, Atomic and Nuclear Analytical Methods: XRF, Mössbauer, XPS, NAA and Ion-Beam Spectroscopic Techniques, (2007), Springer-Verlag Berlin Heidelberg.

[19] Idaho National Engineering & Environmental Laboratory, γ -Ray Spectrum Catalogue, Fourth Edition, 1998.

[20] Nuclear Data, <http://nucleardata.nuclear.lu.se/>, [Consulté en ligne septembre 2020]

Résumé :

La radioactivité est un phénomène naturel, elle provient principalement des radionucléides primordiaux comme le ^{40}K et les trois séries (^{238}U , ^{232}Th et ^{235}U) ainsi que leurs descendants.

Ces radionucléides sont considérés comme les principaux termes source qui contribue à l'irradiation externe au corps humain.

La mesure de la radioactivité naturelle d'un échantillon de roche Conglomérat du Hoggar est réalisé au moyen de deux techniques de caractérisation analytiques.

La technique de spectrométrie γ haute résolution avec détecteur germanium hyper pur (Hp/Ge) pour mesurer la radioactivité naturelle contenue dans notre échantillon et la technique d'analyse par fluorescence X(XRF) pour doser les éléments que contient notre échantillon.

Mots clés : radioactivité naturelle, radionucléides, spectrométrie γ , spectrométrie de fluorescence.

Abstract:

Radioactivity is a natural phenomenon, it comes mainly from primordial radionuclides such as ^{40}K and the three series (^{238}U , ^{235}U , ^{232}Th) as well as their descendants. These radionuclides are considered to be the main source terms that contribute to external irradiation to the human body. The measurement of the natural radioactivity of a sample of Hoggar Conglomerate rock is carried out using two analytical characterization techniques. The high resolution gamma spectrometry technique with hyper pure germanium detector (Hp/Ge) to measure the natural radioactivity contained in our sample and the X-ray fluorescence analysis (XRF) technique to measure the elements in our sample.

Keywords: natural activity, radionuclides, spectrometry, fluorescence spectrometry.

المخلص

النشاط الإشعاعي هو ظاهرة طبيعية ، وهو يأتي بشكل أساسي من النويدات المشعة البدائية مثل ^{40}K والمتسلسلات الثلاث (^{238}U ، ^{232}Th و ^{235}U) بالإضافة إلى نسلها.

تعتبر هذه النويدات المشعة من المصادر الرئيسية التي تساهم في التشعيع الخارجي لجسم الإنسان. يتم قياس النشاط الإشعاعي الطبيعي لعينة من صخور تكتل الهقار عن طريق تقنيتي توصيف تحليلي. تقنية قياس الطيف عالية الدقة باستخدام كاشف الجرمانيوم شديد النقاء (Hp / Ge) لقياس النشاط الإشعاعي الطبيعي الموجود في العينة وتقنية تحليل مضان الأشعة السينية (XRF) لقياس العناصر الموجودة في العينة. **الكلمات المفتاحية:** النشاط الإشعاعي الطبيعي ، النويدات المشعة ، قياس الطيف ، مطياف التآلق.