UNIVERSITE D'ANTANANARIVO

Domaine: Sciences et Technologies

Mention: Physique et Applications

Parcours: Physique Nucléaire Appliquée et Environnement

Mémoire pour l'obtention du diplôme de :

Master en Physique et Applications

Intitulé

ETALONNAGE D'UN DETECTEUR HPGe PORTABLE PAR LA METHODE ISOCS/LABSOCS

Présenté par : RASOATSARATANANY Garoson Albertine

Devant la commission d'examen composée par :

Président : M. RABESIRANANA Naivo

Maître de Conférences, HDR au Domaine Sciences et Technologies de l'Université d'Antananarivo

Rapporteurs : M. RAVELOMANANTSOA Solofonirina Dieudonné

Professeur au Domaine Sciences et Technologies de l'Université d'Antananarivo

M. RASOLONIRINA Martin

Maître de Recherches à l'INSTN-Madagascar

Examinateur : Mme RALAIARISOA Haritiana Luciette

Maître de Conférences au Domaine Sciences et Technologies de l'Université d'Antananarivo

le 12 septembre 2018

Edité par INSTN-Madagascar

UNIVERSITE D'ANTANANARIVO

Domaine: Sciences et Technologies

Mention : Physique et Applications

Parcours : Physique Nucléaire Appliqué et Environnement

Mémoire pour l'obtention du diplôme de :

Master en Physique et Applications

Intitulé

ETALONNAGE D'UN DETECTEUR HPGe PORTABLE PAR LA METHODE ISOCS/LABSOCS

Présenté par : RASOATSARATANANY Garoson Albertine

Devant la commission d'examen composée par :

Président : M. RABESIRANANA Naivo
Maître de Conférences, HDR au Domaine Sciences et Technologies de l'Université d'Antananarivo

Rapporteurs : M. RAVELOMANANTSOA Solofonirina Dieudonné
Professeur au Domaine Sciences et Technologies de l'Université d'Antananarivo
M. RASOLONIRINA Martin
Maître de Recherches à l'INSTN-Madagascar

Examinateur : Mme RALAIARISOA Haritiana Luciette
Maître de Conférences au Domaine Sciences et Technologies de l'Univeristé d'Antananarivo

le 12 septembre 2018

Edité par INSTN-Madagascar

REMERCIEMENTS

Je remercie Dieu de m'avoir donné sa Grâce pour que je puisse réaliser ce présent travail.

Je tiens à remercier Monsieur RAJAOBELISON Joël, Professeur Titulaire au Domaine Sciences et Technologies de l'Université d'Antananarivo et Directeur Général de l'Institut National des Sciences et Techniques Nucléaires (INSTN-Madagascar), de m'avoir accueilli en tant que chercheur dans le laboratoire et donné l'occasion d'enrichir mes connaissances.

J'adresse mes vifs remerciements à M. RABESIRANANA Naivo, Maître de Conférences, HDR au Domaine Sciences et Technologies de l'Université d'Antananarivo et responsable du Parcours Physique Nucléaire Appliquée et Environnement, qui m'a fait l'honneur de présider le jury de ce travail.

Je tiens aussi à remercier Mme RALAIARISOA Haritiana Luciette, Maître de Conférences au Domaine Sciences et Technologies de l'Université d'Antananarivo, d'avoir accepté d'examiner ce travail.

Je tiens à exprimer mes sincères remerciements à mes encadreurs :

- Monsieur RAVELOMANANTSOA Solofonirina Dieudonné, Professeur au Domaine Sciences et Technologies de l'Université d'Antananarivo, encadreur pédagogique, de m'avoir encadré malgré ses occupations.
- Monsieur RASOLONIRINA Martin, Maître de Recherches à l'INSTN-Madagascar et chef de Département Analyses et Techniques Nucléaires, encadreur technique, d'avoir accepté de m'encadrer durant mon stage au sein du Département ATN.

J'adresse aussi mes remerciements à toutes les équipes de l'INSTN et surtout à toute l'équipe du département ATN pour leurs conseils techniques et leurs aides.

Je remercie ma famille qui m'a apporté leurs soutiens financier, matériel et spirituel pour l'aboutissement de ce travail.

Je tiens à adresser un grand merci à tous ceux qui, de près et de loin, m'ont toujours aidée et encouragée à la réalisation de ce travail.

Je tiens à exprimer ma gratitude à tous les enseignants et les responsables de la Mention Physique et Applications.

TABLE DES MATIERES

REMERCIEMENTS i

TABLE DES MATIERES ii

LISTE DES TABLEAUX iv

LISTE DES FIGURES.....v

LISTE DES ABREVIATIONS..... vii

INTRODUCTION 1

Partie théorique

Chapitre 1 : GENERALITES SUR LA RADIOACTIVITE 2

1.1. Noyau 2

1.2. Radioactivité.....3

Chapitre 2 : INTERACTION DES RAYONNEMENTS GAMMA AVEC LA MATIERE 8

2.1. Effet photoélectrique 8

2.2. Effet Compton 9

2.3. Effet de création de paires ou matérialisation.....9

Partie méthodologique

Chapitre 3 : SPECTROMETRIE GAMMA 11

3.1. Définition 11

3.2. Chaîne de spectrométrie gamma.....11

3.3. Analyse spectrale 18

Chapitre 4 : MISE AU POINT DE LA CHAINE DE MESURE 19

4.1. Logiciel de traitement 19

4.2. Etalonnage par méthode classique.....19

4.3. Etalonnage par méthode ISOCS/LABSOCS.....21

4.4. Calcul d'incertitude 28

Partie pratique

Chapitre 5 : MESURES EXPERIMENTALES.....30

5.1. Mesure in-situ 30

5.2. Mesure en laboratoire 33

Chapitre 6 : RESULTATS ET DISCUSSIONS 41

6.1. Résultats 41

6.2. Discussions 47

CONCLUSON 49

REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES 51

ANNEXES I

LISTE DES TABLEAUX

Tableau 1: Eléments constitutifs d'un atome 2
Tableau 2: Masse de l'échantillon et du verre de montre 34
Tableau 3: Caractéristiques du matériau de référence 36
Tableau 4: Radionucléides descendants de l'^{238}U avec leurs énergies ainsi que les numéros de canal correspondants 37
Tableau 5: Valeurs de l'efficacité du matériau de référence RGU-1 par calcul manuel 38
Tableau 6: Activité spécifique, diamètre de 6 m avec une couche de sol 41
Tableau 7: Activité spécifique, diamètre de 6 m avec deux couches (sol 60% et roche 40%) 42
Tableau 8: Activité spécifique, diamètre de 6 m avec deux couches (sol 80% et roche 20%) 43
Tableau 9: Activité moyenne, diamètre de 6 m avec une couche de sol 44
Tableau 10: Activité moyenne, diamètre de 6 m avec deux couches (sol 60% et roche 40%) 45
Tableau 11: Activité moyenne, diamètre de 6 m avec deux couches (sol 80% et roche 20%) 45
Tableau 12: Valeurs des références 46
Tableau 13: Activité spécifique de l'étalon IAEA-375 46
Tableau 14: Activité spécifique moyenne de chaque radionucléide 46
Tableau 15: Activité spécifique des radionucléides 47
Tableau 16: Récapitulatif des résultats HPGe fixe et ISOCS 47

LISTE DES FIGURES

Figure 1: Pouvoir de pénétration de la particule alpha 5
Figure 2: Pouvoir de pénétration de la particule beta 6
Figure 3: Pouvoir de pénétration du photon (ou du rayon) gamma 6
Figure 4: Courbe de décroissance radioactive 7
Figure 5: Effet photoélectrique 8
Figure 6: Effet de Compton 9
Figure 7: Effet de Création de paire 10
Figure 8: Schéma simplifié de la chaîne de spectrométrie gamma 11
Figure 9: Pic d'absorption totale gamma (forme gaussienne) 13
Figure 10: Structure de détecteur à scintillation 14
Figure 11: Structure du détecteur à gaz 14
Figure 12: Détecteur HPGe a) pour laboratoire et b) pour mesure in-situ 17
Figure 13: Fenêtre principale d'un éditeur de géométrie 22
Figure 14: Sélection du bécher simple dans les modèles 22
Figure 15: Sélection du détecteur 23
Figure 16: Schéma du détecteur choisi avec l'échantillon 23
Figure 17: Fenêtre de confirmation de la validation 24
Figure 18: Fenêtre de calcul d'efficacité 24
Figure 19: Sélection du type de l'efficacité 25
Figure 20: Sélection du modèle boîte simple 25
Figure 21: Sélection du détecteur 26
Figure 22: Modèle détecteur-source dans la fenêtre de l'éditeur de géométrie 26
Figure 23: Message de la validation du modèle 27
Figure 24: Calcul d'étalonnage en efficacité 27
Figure 25: Ouverture du fichier ECC d'une boîte simple 28
Figure 26: Equipement de mesure sur terrain 30
Figure 27: Spectre de mesure in situ du sol de l'INSTN 31
Figure 28: Modèle géométrique ISOCS à l'aide d'un éditeur de géométrie 31
Figure 29: Courbe d'étalonnage en efficacité par la méthode ISOCS 32
Figure 30: Spectre de l'étalon IAEA-375 par la méthode LABSOCS 32
Figure 31: Modèle géométrique LABSOCS à l'aide d'un éditeur de géométrie 33
Figure 32: Courbe d'étalonnage en efficacité par la méthode LABSOCS 33
Figure 33: Matériel de préparation a) Etuve et b) Balance électronique 35
Figure 34: Matériau de référence RGU-1 36
Figure 35: Courbe d'étalonnage en énergie par calcul manuel 37
Figure 36: Courbe d'étalonnage en énergie donnée par le logiciel Génie 2000 38
Figure 37: Courbe d'étalonnage en efficacité par calcul manuel 39
Figure 38: Fichier du certificat des radionucléides de la famille de l'uranium-238 39
Figure 39: Courbe d'étalonnage en efficacité à l'échelle linéaire 40
Figure 40: Courbe d'étalonnage en efficacité à l'échelle logarithmique 40
Figure 41: Courbe de l'activité spécifique, diamètre de 6 m avec une couche de sol 42
Figure 42: Courbe de l'activité spécifique, diamètre de 6 m avec deux couches (sol 60% et roche 40%) 43

Figure 43: Courbe de l'activité spécifique, diamètre de 6 m avec deux couches (sol 80% et roche 20%) 44

LISTE DES ABREVIATIONS

ATN: Analyses et Techniques Nucléaires

ADC: Analog to Digital Converter (Convertisseur Analogique Numérique)

FWHM: Full Width at Half Maximum (largeur à mi-hauteur)

GAA: Gamma Acquisition &Analysis (Analyses et Acquisition Gamma)

HPGe: High Purity Germanium (Germanium à Haute Pureté)

IAEA: International of Atomic Energy Agency (Agence Internationale de l'Energie Atomique)

INSTN: Institut National des Sciences et Techniques Nucléaires

ISOCS: In Situ Object Counting System

LABSOCS: LABoratory Sourceless Object Counting System

MCA : Multi-channel Analyser (Analyseur Multicanaux)

MCNP: Monte Carlo N-Particule

INTRODUCTION

La radioactivité prend une place importante dans la vie quotidienne de l'homme. Depuis la formation de la Terre, la matière était constituée d'éléments radioactifs et d'éléments stables. De même, l'atmosphère et la croûte terrestre contiennent des éléments radioactifs. Les principaux radionucléides naturels comme le potassium K-40 et ceux issus des trois familles radioactives de l'uranium U-235, de l'uranium U-238 et du thorium Th-232 se rencontrent dans le sol, les roches, dans l'air, dans l'eau et dans les organismes vivants. Leurs teneurs varient selon la nature du sol et les autres facteurs géographiques. Il y a aussi des radionucléides artificiels qui ont été dispersés dans l'environnement par divers procédés, comme les isotopes du césium, Cs-137 et Cs-134, qui sont les plus importants. Ils sont déposés par les retombées sur le sol et les plantes parce qu'ils sont produits par plusieurs types d'activités humaines, comme les armes et les accidents nucléaires.

La spectrométrie gamma est une technique d'analyse non destructive qui permet d'identifier et de quantifier les radioéléments naturels ou artificiels présents dans l'environnement. L'utilisation d'un spectromètre gamma portable nous permet d'avoir une détermination in-situ rapide et plus précisément l'activité d'un sol contaminé.

L'ATN est un des quatre départements de l'INSTN-Madagascar. Ce département effectue plusieurs études concernant la contamination de l'environnement, en partenariat avec l'IAEA et l'université d'Antananarivo. Ce département possède un détecteur HPGe portable in-situ et une chaine de spectrométrie gamma en laboratoire. Ce travail intitulé : «étalonnage d'un détecteur gamma HPGe portable par la méthode ISOCS/LABSOCS» a pour objectifs, en premier lieu, de maitriser la procédure d'analyse à suivre pour la spectrométrie gamma (méthode classique et méthode ISOCS/LABSOCS) surtout le cas d'un détecteur gamma HPGe portable et en second lieu, de déterminer l'activité des radionucléides présents dans les échantillons à analyser.

Le présent travail se divise en trois parties. En premier lieu, la partie théorique présente les généralités sur la radioactivité et l'interaction du rayonnement gamma avec la matière. En second lieu, la partie méthodologique parlera de la spectrométrie gamma et de la mise au point de la chaine de mesure. En dernier lieu, la partie pratique donne la mesure in-situ, la mesure en laboratoire et les résultats avec les discussions. Enfin, nous présenterons une conclusion générale.

Partie théorique

Chapitre 1 : GENERALITES SUR LA RADIOACTIVITE

La matière est formée d'atomes qui en sont les constituants élémentaires. Un atome est constitué d'un noyau et des électrons. Les électrons constituent le nuage électronique et le nuage électronique enveloppe le noyau.

1.1. Noyau

1.1.1. Définition

Le noyau est le cœur d'un atome. Il est chargé positivement et les électrons négativement [1]. Le noyau est composé de nucléons qui sont des protons et des neutrons. La dimension du noyau est de l'ordre de 10^{-15} m. Le proton a une charge positive et le neutron est neutre.

Tableau 1: Eléments constitutifs d'un atome

Type	Masse	Charge
Electron	$m_e = 9{,}10938\times10^{-31}$ kg	$q_e = -e = -1{,}602177\times10^{-19}$ C
Proton	$m_p = 1{,}672622\times10^{-27}$ kg	$q_p = e = 1{,}602177\times10^{-19}$ C
Neutron	$m_N = 1{,}674927\times10^{-27}$ kg	0

On représente le noyau par la notation ${}^{A}_{Z}X$

Avec X : symbole de l'élément chimique

A : nombre total de nucléons ou nombre de masse

Z : nombre de protons dans le noyau ou nombre de charge ou numéro atomique

$$A = Z + N \tag{1.1}$$

Exemple : noyau du carbone -14

Notation ${}^{14}_{6}C$

C : symbole chimique du carbone

14 : nombre de masse

6 : nombre de charge.

1.1.2. Types de noyaux

Il existe deux types de noyaux :

- noyaux stables, s'il y a l'équilibre entre le nombre de protons et le nombre de neutrons.

- noyaux instables, s'il y a l'excès de protons ou de neutrons.

La stabilité du noyau dépend le nombre de proton. Dans le tableau de Mendeleïev, les noyaux sont classés comme suit :

$Z \leq 83$: les noyaux sont naturels et en majorité stables ;

$84 \leq Z \leq 92$: les noyaux sont naturels et radioactifs ;

$Z > 92$: les noyaux sont instables artificiels.

Les isotopes sont les nucléides ayant le même nombre de protons mais le nombre de nucléons différents.

Exemple d'isotope d'oxygène ${}^{16}_{8}O, {}^{17}_{8}O, {}^{18}_{8}O$.

Les isotones sont les nucléides ayant le même nombre de neutrons.

Exemple : ${}^{15}_{7}N, {}^{16}_{8}O$.

Les isobares sont les nucléides ayant le même nombre de nucléons.

Exemple : ${}^{40}_{18}Ar, {}^{40}_{20}Ca$.

1.2. Radioactivité

1.2.1. Définition

La radioactivité est une réaction spontanée d'un noyau instable en un autre noyau qui peut être stable ou instable avec une émission d'un rayonnement ou d'une particule. Les noyaux radioactifs sont appelés « radioéléments ou radionucléides » [2]. Il existe deux types de radioactivité : la radioactivité naturelle et la radioactivité artificielle.

1.2.1.1. Radioactivité naturelle

La radioactivité naturelle provient des rayons cosmiques et des radio-isotopes existants dans l'écorce terrestre.

- ✓ Radioactivité de l'écorce terrestre :

Lors de la formation de la Terre sont apparus les isotopes des divers éléments : ce sont les radionucléides primordiaux qui sont présents dans les roches et les sols. Ceux qui étaient radioactifs à faible période ont disparu ; par contre ceux dont la période n'est pas négligeable devant l'âge de la terre (quelques milliards d'années) sont toujours présents. La radioactivité naturelle provient des trois chaines de filiation suivantes : famille du Th-232, famille de l'U-238 et famille de l'U-235.

- ✓ Radioactivité de l'atmosphère :

Les rayonnements cosmiques primaires sont d'origine galactique et solaire. Ils sont constitués de protons (86%), d'hélions (12%) et de noyaux plus lourds (2%) ayant des énergies importantes [3]. Ils interagissent avec les noyaux présents dans la haute atmosphère terrestre (au-dessus de 15 km) notamment avec l'oxygène et l'azote en produisant des radionucléides cosmogoniques et les rayonnements cosmiques secondaires qui à leur tour peuvent aussi créer des radionucléides par interactions. Ces radionucléides sont toujours présents dans l'atmosphère, dans le sol, dans l'eau, dans les sédiments et aussi chez les êtres vivants. Parmi ces radionucléides, on a le C-14, le H-3 et le Na-22.

1.2.1.2. Radioactivité artificielle

La radioactivité artificielle est due par des activités humaines, on la nomme aussi la radioactivité anthropogénique [4]. En général, le radionucléide artificiel provient: des retombées nucléaires, des essais d'arme nucléaire effectués dans les années 60, de l'accident du réacteur nucléaire comme Tchernobyl, mais aussi de l'industrie, de la médecine et de la recherche.

1.2.2. Types de radioactivité

Il existe trois types de radioactivité : la radioactivité alpha, la radioactivité beta et la radioactivité gamma.

1.2.2.1. Radioactivité alpha

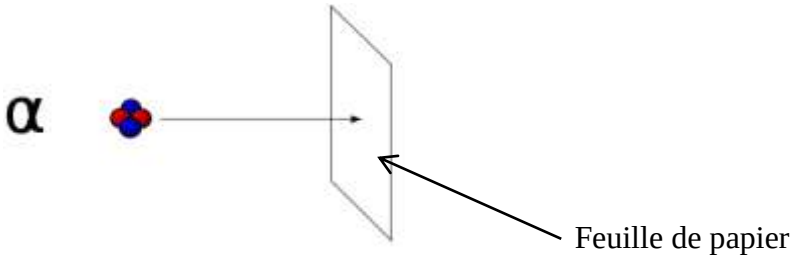
La radioactivité alpha est un type de désintégration radioactive. Dans le noyau atomique, il y a une éjection d'une particule d'hélium et ce noyau change en un noyau de nombre de masse diminué de 4 et de numéro atomique diminué de 2 [5].

La transformation générale de la radioactivité alpha s'écrit:

$$^{A}_{Z}X \rightarrow ^{A-4}_{Z-2}Y + ^{4}_{2}He$$

Exemple : $^{226}_{88}Ra \rightarrow ^{222}_{86}Rn + ^{4}_{2}He$

La radioactivité alpha concerne les noyaux lourds de numéro atomique supérieur à 82. La particule alpha est peu pénétrante et une feuille de papier peut l'arrêter (Fig.1).



Source : https://fr.wikipedia.org/wiki/Rayonnement_ionisant

Figure 1: Pouvoir de pénétration de la particule alpha

1.2.2.2. Radioactivité beta

La radioactivité beta est l'émission d'un négaton ou d'un positon de haute énergie par un noyau instable. Le nombre de nucléon A de l'atome ne change pas après désintégration beta.

Il existe deux sortes : beta moins et beta plus.

- Radioactivité beta moins (β^-)

La radioactivité beta moins concerne le noyau radioactif ayant le nombre de neutron supérieur au nombre de proton. Pour avoir une configuration stable, un neutron est transformé en proton par une interaction faible. La conversion est suivie d'une émission d'un négaton et d'un antineutrino.

$$ {}^{1}_{0}n \rightarrow {}^{1}_{1}p + {}^{0}_{-1}e + {}^{0}_{0}\overline{\nu} $$

Le schéma général d'une émission beta moins est le suivant :

$$ {}^{A}_{Z}X \rightarrow {}^{A}_{Z+1}Y + {}^{0}_{-1}e + {}^{0}_{0}\overline{\nu} $$

Exemple : $ {}^{14}_{6}C \rightarrow {}^{14}_{7}N + {}^{0}_{-1}e + {}^{0}_{0}\overline{\nu} $

- Radioactivité béta plus (β^+)

Le noyau émetteur beta plus contient un excès de proton. Par l'interaction faible, un proton est converti en neutron suivi d'un positon et d'un neutrino.

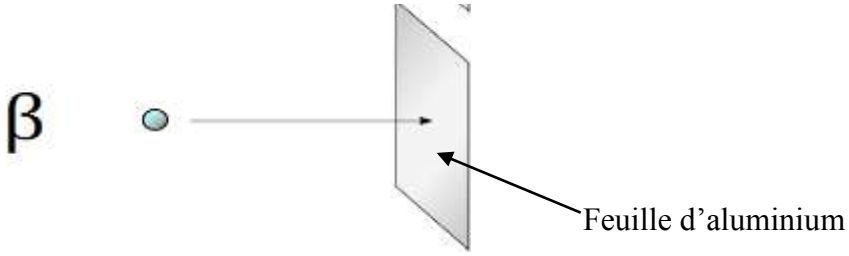
$$ {}^{1}_{1}p \rightarrow {}^{1}_{0}n + {}^{0}_{+1}e + {}^{0}_{0}\nu $$

Le schéma général d'une émission beta plus est le suivant :

$$ {}^{A}_{Z}X \rightarrow {}^{A}_{Z-1}Y + {}^{0}_{+1}e + {}^{0}_{0}\nu $$

Exemple : $ {}^{19}_{10}Ne \rightarrow {}^{19}_{9}F + {}^{0}_{+1}e + {}^{0}_{0}\nu $

La particule beta est plus pénétrante que la particule alpha et une feuille d'aluminium peut l'arrêter (Fig.2).



Source : https://fr.wikipedia.org/wiki/Rayonnement_ionisant

Figure 2: Pouvoir de pénétration de la particule beta

1.2.2.3. Radioactivité gamma

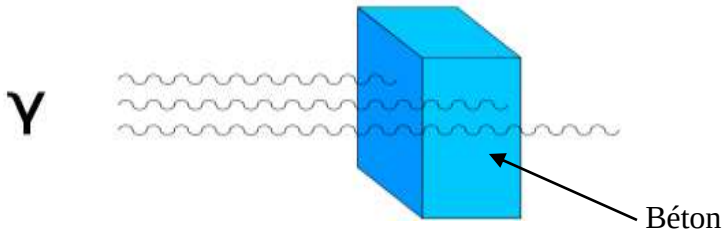
Après les émissions alpha et beta, le noyau fils peut se trouver à un état excité. La stabilisation s'effectue par émission d'un rayonnement électromagnétique de très courte longueur d'onde appelé rayon gamma.

La réaction de la radioactivité gamma s'écrit :

$$^{A}_{Z}X^{*} \rightarrow ^{A}_{Z}X + \gamma$$

Exemple : $^{60}_{27}Co^{*} \rightarrow ^{60}_{27}Co + \gamma$

Le rayonnement gamma est très dangereux et seul un matériau dense peut l'arrêter comme le béton ou plomb (Fig.3).



Source : https://fr.wikipedia.org/wiki/Rayonnement_ionisant

Figure 3: Pouvoir de pénétration du photon (ou du rayon) gamma

1.2.3. Loi de décroissance

Le nombre de radionucléides d'un échantillon décroît exponentiellement avec le temps. La loi de décroissance est donnée par :

$$N(t) = N_0 e^{-\lambda t} \quad (1.2)$$

où $N(t)$: nombre de noyaux radioactifs restant l'instant t,

N_0 : nombre de noyaux initial,

λ : constante de désintégration radioactive (s^{-1}).

La constante de désintégration notée λ représente la probabilité de désintégration d'un noyau par unité de temps.

L'activité d'une source radioactive est notée $A(t)$, c'est le nombre de désintégration par unité de temps(en seconde).

Par définition, $A(t) = -\frac{dN}{dt} = \lambda N(t)$ (1.3)

On peut aussi écrire $A(t) = \lambda N_0 e^{-\lambda t} = A_0 e^{-\lambda t}$ (1.4)

où $A(t)$: activité à l'instant t(Bq),

A_0 : activité à l'instant t_0(Bq).

L'unité de l'activité radioactive est le becquerel (Bq), qui représente une désintégration par seconde. L'ancienne unité de l'activité est le curie (Ci), qui est l'activité d'un gramme de radium-226 en équilibre avec ses descendants [6].

1Ci=3,7×10^{10}Bq [7].

La période radioactive (ou demi-vie) notée $t_{1/2}$ ou T est le temps pendant lequel le nombre initial est réduit de moitié [7].

A t=T, on a $N(T) = \frac{N_0}{2}$. (1.5)

Par définition, $T = \frac{\ln 2}{\lambda}$ (1.6)

Voici un schéma qui illustre la loi de décroissance :

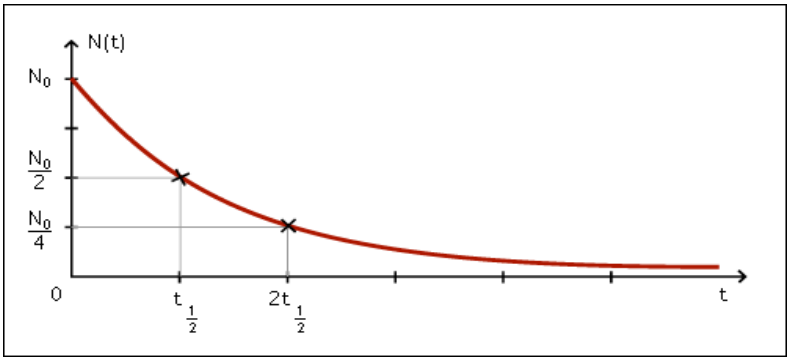


Figure 4: Courbe de décroissance radioactive

Chapitre 2 : INTERACTION DES RAYONNEMENTS GAMMA AVEC LA MATIERE

Les rayonnements électromagnétiques gamma n'ont pas de charges électriques. Ils interagissent avec la matière suivant trois processus principaux : l'effet photoélectrique, l'effet Compton et l'effet de création de paires ou matérialisation [8].

2.1. Effet photoélectrique

C'est l'interaction d'un photon incident avec un électron lié de l'atome (c'est-à-dire les électrons appartenant aux couches les plus internes L ou K). Il y a l'absorption totale d'un photon par un atome, c'est-à-dire le photon transmet toute son énergie à un électron du cortège atomique qui est été expulsé. Cet électron est appelé photoélectron et il possède une énergie cinétique donnée par la relation suivante :

$$E_c = h\nu - E_l \qquad (2.1)$$

avec E_c : énergie cinétique de l'électron (MeV)

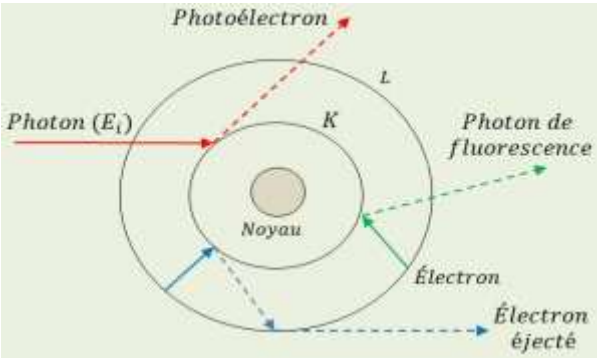
E_l : énergie de liaison de l'électron dans l'atome (MeV)

$h\nu$: énergie de photon incident (MeV).

L'effet photoélectrique est toujours suivi d'un réarrangement du cortège électronique, c'est-à-dire qu'un électron d'une couche supérieure remplit l'orbite vacante du photoélectron avec émission de rayon X. Ainsi, deux cas peuvent se produire :

- un photon X de fluorescence sort de l'atome,
- un photon X lui-même va expulser un autre électron de la couche périphérique et cet électron éjecté est appelé électron Auger (Fig.5).

L'effet photoélectrique est favorisé dans le milieu de numéro atomique élevé et pour l'énergie E_γ < 0,2 MeV.



Source : http://claude-gimenes.fr/physique/physiques-atomique-moleculaire-et-nucleaire/physique-atomique/-ix-effet-compton-effet-photoelectrique

Figure 5: Effet photoélectrique

2.2. Effet Compton

Il s'agit de l'interaction d'un photon incident d'énergie E avec un électron libre de l'atome. Dans ce processus Compton, le photon gamma incident est diffusé d'un angle θ par rapport à la direction incidente. Puis le photon transmet une partie de son énergie à un électron au repos qui est l'électron Compton. Il fait l'angle ϕ avec cette direction et une énergie cinétique T (Fig.6).

Soit :

$E = h\nu$: énergie du photon incident ;

$E' = h\nu'$: énergie du photon diffusé ;

L'énergie cinétique de l'électron est :

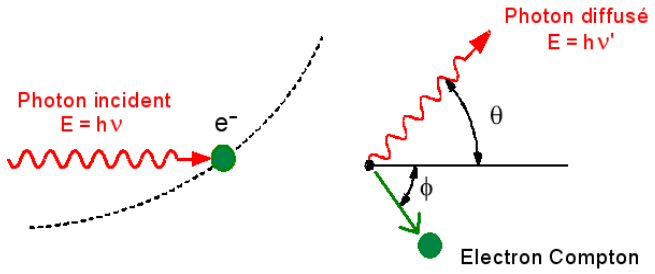
$$T = E - E' = h\nu' * \gamma(1 - \cos\theta) \qquad (2.2)$$

avec $\gamma = \dfrac{h\nu}{m_0 c^2}$ et $E' = \dfrac{h\nu}{1 + \gamma(1 - \cos\theta)}$

La relation entre les angles θ et ϕ est :

$$\tan\phi = \frac{\cot an(\frac{\theta}{2})}{1 + \gamma} \qquad (2.3)$$

L'effet Compton est prépondérant pour la matière de numéro atomique faible et pour les photons d'énergies comprises entre 0,2 MeV et quelques MeV.



Source : http://www.nucleide.org/Gamma_spectro/interactions.htm

Figure 6: Effet de Compton

2.3. Effet de création de paires ou matérialisation

L'effet de création de paires se produit si le photon incident possède une énergie supérieure au double de l'énergie de masse au repos d'un électron ($E_i = h\nu_i > 2m_0c^2 = 1{,}022$

MeV). La matérialisation traduit l'interaction entre le photon et le noyau. Le processus de matérialisation est la conversion d'un photon d'énergie $h\nu$, qui arrive aux alentours du noyau, en une paire de négaton-positon. Ensuite, le positon va s'annihiler avec un négaton de la matière, pour donner deux photons d'annihilation de 511 keV à 180° l'un de l'autre (Fig.7).

Voici la réaction qui traduit l'effet de création de paires :

$$\gamma + A \rightarrow A + e^+ + e^-$$

où A : atome de la cible

La conservation de l'énergie pour l'effet de matérialisation s'écrit comme suit :

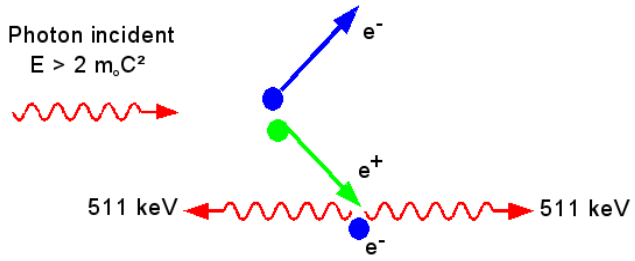
$$E_\gamma = 2m_0c^2 + T_{e^+} + T_{e^-} \qquad (2.4)$$

avec m_0c^2 : énergie au repos de l'électron,

T_{e+} : énergie cinétique du positon,

T_{e-} : énergie cinétique du négaton.

L'effet de création de paires est prépondérant pour le milieu de numéro atomique élevé et pour les photons d'énergie supérieure à 10 MeV.



Source : http://www.nucleide.org/Gamma_spectro/interactions.htm

Figure 7: Effet de Création de paire

Partie méthodologique

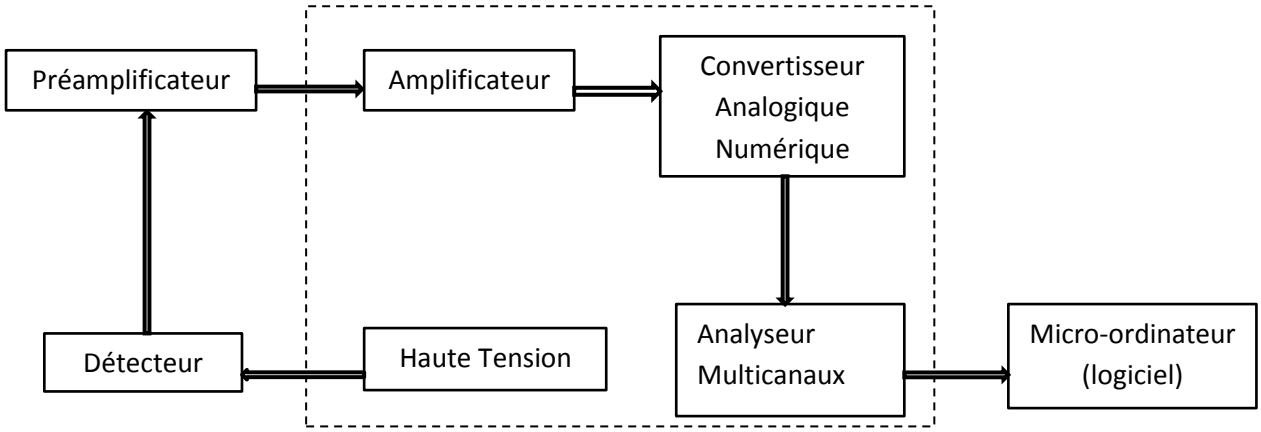
Chapitre 3 : SPECTROMETRIE GAMMA

3.1. Définition

La spectrométrie gamma est une technique de mesure nucléaire pour identifier et quantifier les éléments radioactifs émetteurs gamma. Les spectres obtenus permettent donc de faire des analyses qualitative et quantitative des échantillons [9].

3.2. Chaîne de spectrométrie gamma

Une chaîne de spectrométrie gamma est constitué par les éléments suivants : un détecteur, un préamplificateur, un amplificateur, une alimentation haute tension, un convertisseur analogique numérique, un analyseur multicanaux et un micro-ordinateur avec un logiciel de traitement de données. La figure 8 montre la représentation simplifiée de la chaine.



électronique associée

Figure 8: Schéma simplifié de la chaîne de spectrométrie gamma

3.2.1. Détecteur

Le détecteur est l'instrument principal de la physique nucléaire parce qu'il rend visible le phénomène de la radioactivité. Si le détecteur utilisé est le Germanium, il est placé juste au sommet d'un cryostat rempli d'azote liquide et recouvert d'un château de plomb. L'azote liquide maintient le détecteur à basse température pour éviter le déplacement des porteurs des charges en l'absence de rayonnement.

3.2.1.1. Principales caractéristiques d'un détecteur

Les principales caractéristiques d'un détecteur sont l'efficacité, la résolution et le temps mort.

❖ Efficacité d'un détecteur

En spectrométrie gamma, il existe deux types d'efficacités : efficacité absolue et efficacité intrinsèque.

L'efficacité absolue est le rapport entre le nombre de photons détectés et le nombre de photons émis par la source dans toutes les directions.

$$\varepsilon_{abs} = \frac{\text{Nombre de photons détectés}}{\text{Nombre de photons émis par la source}} \tag{3.1}$$

L'efficacité intrinsèque est le rapport entre la quantité des photons détectés et la quantité des photons atteignant le détecteur.

$$\varepsilon_{intr} = \frac{\text{Nombre de photons détectés}}{\text{Nombre de photons atteignant le détecteur}} \tag{3.2}$$

Il existe une relation entre l'efficacité absolue et l'efficacité intrinsèque :

$$\varepsilon_{intr} = \varepsilon_{abs} \cdot \frac{4\pi}{\Omega} \tag{3.3}$$

où Ω est l'angle solide dans lequel le détecteur voit la source de rayonnement gamma.

❖ Résolution

Elle caractérise la capacité du détecteur à séparer deux énergies proches. La résolution en énergie du détecteur est donnée par le rapport entre la largeur à mi-hauteur (FWHM : Full Width at Half Maximum) du pic d'absorption totale et l'énergie E_γ. Plus la largeur est petite, plus la résolution est bonne. L'expression de la résolution en pourcentage est donnée par la formule (3.4) ci-après.

$$R(\%) = \frac{\Delta E_\gamma}{E_\gamma} \times 100 = \frac{2{,}35\sigma_{E_\gamma}}{E_\gamma} \quad (3.4)$$

avec ΔE_γ : largeur à mi-hauteur du pic,

E_γ : énergie du rayonnement gamma,

σ_{E_γ} : écart-type de la distribution gaussienne.

La figure 9 illustre la largeur à mi-hauteur et l'énergie du pic.

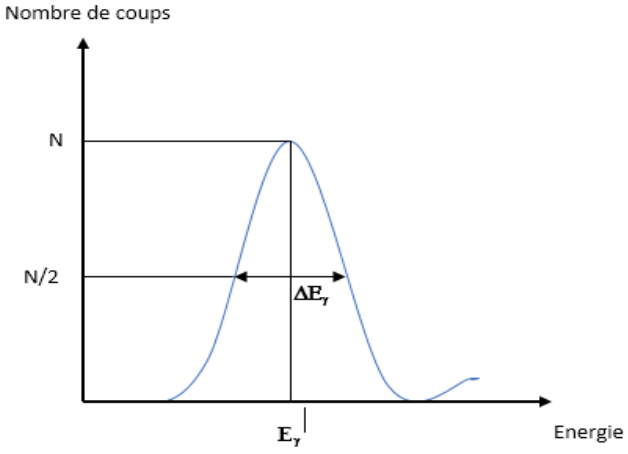


Figure 9: Pic d'absorption totale gamma (forme gaussienne)

❖ Temps mort

Le temps mort (τ) est obtenu à partir du temps réel (t_r) et du temps actif (t_a) pendant la mesure (3.5). Il est exprimé en pourcentage (%).

$$\tau = \frac{t_r - t_a}{t_r} \times 100 \quad (3.5)$$

3.2.1.2. Différents types du détecteur

Il existe trois types de détecteurs : détecteurs à scintillation, détecteurs à semi-conducteur et détecteurs à gaz.

➢ Détecteurs à scintillation

Le détecteur à scintillation est formé par un scintillateur couplé avec un photomultiplicateur. Les photons interagissent avec le milieu scintillant en ionisant ou en excitant les atomes de la matière du détecteur. Le retour à l'état fondamental provoque

l'émission des signaux lumineux proportionnels à l'énergie déposée par les photons incidents dans le scintillateur. Ces signaux sont orientés vers le photomultiplicateur composé d'une photocathode et d'une série de dynodes. La photocathode transforme les signaux lumineux en électrons par l'effet photoélectrique tandis que la série de dynodes amplifie le flux électronique (Fig.10). Ces détecteurs sont utilisés en médecine nucléaire, dans l'industrie et pour la surveillance environnementale. Un exemple de détecteur à scintillation est le détecteur NaI(Tl).

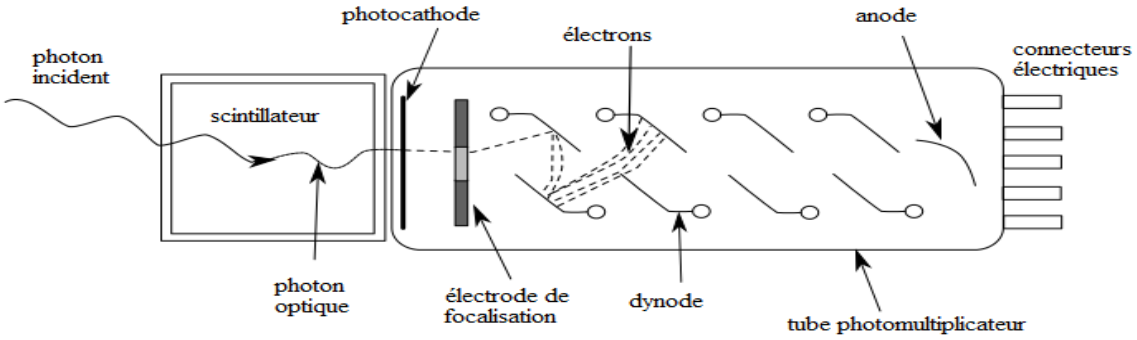


Figure 10: Structure de détecteur à scintillation

- Détecteurs à gaz

Le détecteur à gaz est constitué par une enceinte remplie de gaz rare (comme l'hélium et l'argon) et deux électrodes métalliques. Le milieu gazeux est placé entre ces deux électrodes et la forme la plus utilisée est cylindrique. L'interaction des rayonnements ionisants avec le volume gazeux produit des paires d'ions- électrons. Le champ électrique conduit les électrons et ions vers les électrodes selon le signe de leur charge. Les charges sont ensuite converties en signal électrique à l'aide du circuit RC (Fig.11). Le Geiger Müller est un exemple du détecteur à gaz.

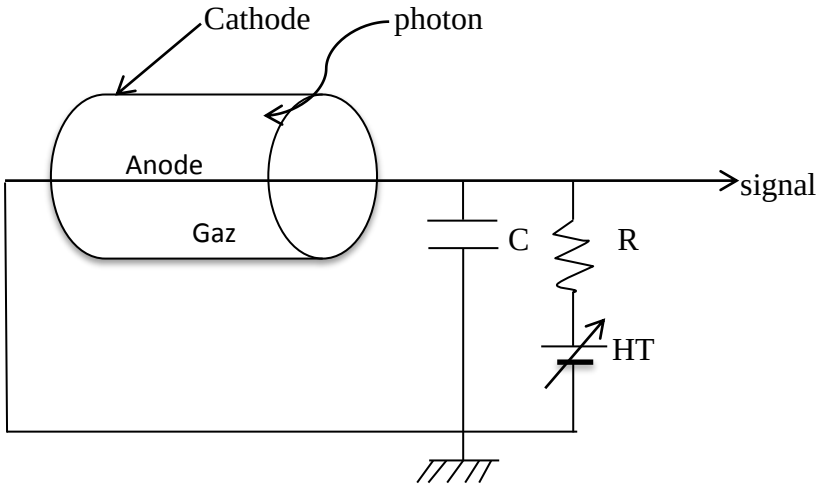


Figure 11: Structure du détecteur à gaz

- Détecteurs à semi-conducteur

Les détecteurs à semi-conducteurs ont le même principe que les détecteurs à gaz. Dans le cas des détecteurs à semi-conducteurs, les gaz sont remplacés par le semi-conducteur. Prenons comme exemple le détecteur en germanium de haute pureté (en anglais HPGe : High Purity of Germanium). Ce détecteur permet aussi de faire des analyses qualitatives et quantitatives. Le principe du semi-conducteur est détaillé dans l'annexe 1.

3.2.1.3. Principe de détection

Le détecteur germanium possède une diode semi-conductrice avec une structure P-I-N jonction dans laquelle la région intrinsèque (I) est sensible aux rayons X ou Gamma. Sous le sens inverse, le champ électrique règne dans la région intrinsèque. Lorsqu'un photon traverse la zone désertée (ou intrinsèque), il interagit avec le germanium et crée des paires d'électrons-trous. Sous l'action du champ électrique, les électrons se déplacent vers la région P et les trous vers la région N du détecteur. A la sortie, il y a un préamplificateur qui collecte une impulsion électrique. Cette impulsion est créée par les déplacements des électrons-trous vers les deux pôles différents. L'azote liquide maintient le détecteur à basse température (77°K) pour réduire la fuite de courant (bruit de fond).

3.2.1.4. Description du détecteur utilisé

Dans ce travail, nous avons utilisé deux détecteurs en germanium de haute pureté HPGe dont un détecteur pour mesure en laboratoire et l'autre pour mesure in-situ.

Utilisation	Description
Laboratoire	• Spécifications : Marque : CANBERRA Modèle : GC3018-7500SL Numéro de série : b95086 Efficacité relative : 30% Résolution : 1,8 keV(FWHM) à 1,33 MeV 0,875 keV(FWHM) à 122 keV • Caractéristiques physiques : Géométrie : coaxiale, partie supérieure fermée et partie inférieure ouverte

	Diamètre : 62,5 mm Longueur : 40 mm Distance à la fenêtre supérieure : 5 mm • Caractéristiques électriques : Tension de déplétion : +2000 V Tension recommandée : +4000V Courant de fuite pour la tension recommandée : 0,01 nA Tension de préamplificateur à la tension recommandée : -1,5 V
In-situ	• Spécifications Marque : CANBERRA Modèle : GC3019 Cryostat : 7935-2SL Préamplificateur : 2002CSL Numéro de série : b15033 Efficacité relative : 30% Résolution : 0,8892 keV(FHWM) à 122 keV 1,75 keV(FHWM) à 1,332 MeV • Caractéristiques physiques : Géométrie : coaxiale, une extrémité ouverte et extrémité face à la fenêtre Diamètre : 60 mm Longueur : 46 mm Distance depuis la fenêtre externe : 6 mm • Caractéristiques électriques : Tension de déplétion : +3000 V Tension recommandée : +3500 V Courant de fuite pour la tension recommandée : 0,01 nA Tension de préamplificateur à la tension recommandée : -1,1 V

a) **b)**

Figure 12: Détecteur HPGe a) pour laboratoire et b) pour mesure in-situ

3.2.2. Alimentation haute tension

La haute tension polarise le détecteur pour créer un champ électrique qui collecte les charges créées par l'interaction des rayonnements gamma dans le détecteur. La valeur de la haute tension dépend de la nature et de la géométrie du détecteur.

3.2.3. Préamplificateur

Le préamplificateur est placé juste après le détecteur. Son rôle est de cueillir le signal électrique à la sortie du détecteur, de filtrer les bruits électroniques et de délivrer à la sortie le signal sous forme d'impulsion électrique.

3.2.4. Amplificateur

Il amplifie l'impulsion pour rendre son amplitude à la gamme de tension analysable du système de traitement. L'amplificateur assure la mise en forme optimale pour le traitement du spectre après l'ajustement des paramètres du système. Le gain, l'un de ces paramètres, peut être linéaire ou logarithmique.

3.2.5. Convertisseur analogique-numérique

Le convertisseur analogique-numérique (ou en anglais ADC : Analog to Digital Converter) modifie l'amplitude du signal électrique obtenu après l'amplificateur qui est proportionnelle à l'énergie déposée dans le cristal, en numéro de canal.

3.2.6. Analyseur multicanaux

Dans l'analyseur multicanaux (en anglais MCA : Multi Channel Analyser), les signaux créés par les rayonnements gamma sont stockés pour avoir un spectre (le nombre de rayons gamma détectés en fonction de leurs énergies).

3.2.7. Micro-ordinateur avec logiciel de traitement de données

Le micro-ordinateur permet de faire le traitement des spectres à l'aide d'un logiciel approprié. Dans ce travail, nous avons utilisé le logiciel Génie 2000. Ce logiciel est commercialisé et fabriqué par la société Canberra [10].

3.3. Analyse spectrale

On distingue deux types d'analyse : l'analyse qualitative et l'analyse quantitative.

3.3.1. Analyse qualitative

L'analyse qualitative consiste à déterminer l'énergie des photons par la mesure de la quantité d'énergie cédée au cours de leur interaction avec la matière du détecteur. Cette mesure utilise le pic photoélectrique qui est théoriquement une raie. Mais l'émission de porteurs de charge dans le détecteur est un phénomène aléatoire qui suit la loi de distribution gaussienne. On a l'élargissement de la raie qui tend à acquérir la forme de cloche de gauss. Le centroïde du pic correspond alors à l'énergie de la raie gamma. Cette énergie permet d'identifier le radionucléide émetteur gamma.

3.3.2. Analyse quantitative

L'analyse quantitative détermine soit l'activité des radionucléides, soit la teneur en élément radioactif. Pour cela, on doit mesurer le nombre de photons détectés dans le spectre. Ainsi, l'activité est proportionnelle à l'aire nette d'un pic photoélectrique d'une énergie donnée en fonction du rendement du détecteur (3.6).

$$A_m = \frac{N_N}{\varepsilon \times P_\gamma \times t_c \times m} \tag{3.6}$$

avec A_m : activité massique ($Bq.kg^{-1}$) ;

N_N : aire nette du pic (coup) ;

ε : efficacité du détecteur ;

P_γ : probabilité d'émission du rayonnement γ ;

m : masse de l'échantillon (kg) ;

t_c : temps de comptage (s) ;

Chapitre 4 : MISE AU POINT DE LA CHAINE DE MESURE

4.1. Logiciel de traitement

Le logiciel de traitement nous permet de faire l'acquisition, de visualiser un spectre et de procéder l'analyse des données spectrométriques à l'aide d'un ordinateur [11]. Dans ce travail, nous avons utilisé le logiciel Génie 2000.

Ainsi, ce logiciel permet de :

- commander le fonctionnement et ajuster les paramètres de la chaine de mesure ;
- visualiser un spectre avec en abscisse le numéro de canal (ou l'énergie) et en ordonnée le nombre de coups correspondant ;
- stocker et traiter les spectres obtenus ;
- faire les analyses qualitatives et/ou quantitatives ;
- fournir le rapport des résultats de l'analyse.

4.2. Etalonnage par méthode classique

L'étalonnage est une phase préliminaire indispensable avant de procéder aux analyses. Il permet donc d'avoir des résultats précis et fiables. L'étalonnage se fait en deux façons : soit par logiciel, soit par calcul manuel. En spectrométrie gamma, il existe deux types d'étalonnages : étalonnage en énergie et étalonnage en efficacité.

4.2.1 Etalonnage en énergie

Chaque énergie du photon gamma correspond à un numéro de canal bien déterminé dans le MCA. Pour faire cet étalonnage, on utilise un étalon, c'est-à-dire, une source connue muni d'un certificat. A partir du spectre de l'étalon, on relève le numéro du canal *C* correspondant au centroïde du pic photoélectrique de l'énergie *E*. La relation obtenue est une droite d'équation (4.1) ci-après :

$$E = aC + b \tag{4.1}$$

où *E* : énergie (keV),

C : numéro de canal,

a et b : constantes à déterminer

Les deux constantes sont déterminées par la méthode des moindres carrés à l'aide des relations (4.2) et (4.3) suivantes :

$$a = \frac{\sum_{i=1}^{n}(C_i - \overline{C})(E_i - \overline{E})}{\sum_{i=1}^{n}(C_i - \overline{C})^2} \quad (4.2)$$

$$b = \overline{E} - a\overline{C} \quad (4.3)$$

avec n : nombre des pics à utilisés,

$\overline{C}$: moyenne de la valeur du canal,

$\overline{E}$: énergie moyenne.

4.2.2. Etalonnage en efficacité

L'étalonnage en efficacité est utile pour la détermination de l'activité des échantillons. Il doit être corrigé si les géométries de l'étalon et de l'échantillon ne sont pas les mêmes. Le but de cet étalonnage est de définir une relation entre l'efficacité de détection et l'énergie *E*. Pour cela, il faut tracer la courbe d'efficacité du détecteur en fonction de l'énergie du photon incident.

La constante d'efficacité ε est calculée à partir de la relation (4.4) suivante :

$$\varepsilon(E) = \frac{N_N}{A \times P_\gamma \times t_c} \quad (4.4)$$

avec N_N : aire ou surface nette (coup),

A : activité de l'étalon à la date de mesure (Bq),

P_γ : probabilité d'émission du rayonnement γ,

t_c : temps de comptage (s).

4.2.3. Détermination de l'activité

L'activité massique A_m est donnée par la relation (4.5) suivante :

$$A_m = \frac{N_N}{\varepsilon \times P_\gamma \times t_c \times m_{ech}} \quad (4.5)$$

Où A_m : activité massique ($Bq.kg^{-1}$) ;

N_N : aire ou surface nette (coup) ;

ε : efficacité de détection ;

m_{ech} : masse de l'échantillon (kg).

4.2.3.1. Analyse à l'aide du logiciel Génie 2000

Le logiciel Génie 2000 permet de déterminer l'activité des radionucléides. Pour ce faire, il faut suivre les étapes suivantes (voir annexe 3) :

- Indentification des pics
- Détermination des surfaces des pics,
- Soustraction du bruit de fond,
- Chargement du fichier d'étalonnage en efficacité,
- Chargement du fichier de la bibliothèque,
- Rapport des résultats.

4.3. Etalonnage par méthode ISOCS/LABSOCS

4.3.1. Définitions

ISOCS/LABSOCS est une méthode d'étalonnage d'une chaîne de spectrométrie sans utiliser de source radioactive. Le SOCS (en anglais SOurceless Counting System) est un outil mathématique permettant de donner la courbe d'étalonnage énergie-efficacité. Il y a deux types de SOCS: LABSOCS (LABoratory Sourceless Object Counting System) modèle S574 et ISOCS (In Situ Object Counting System) modèle S573.

La méthode LABSOCS permet d'analyser un échantillon selon la géométrie souhaitée. Cette méthode nécessite de faire le prélèvement de l'échantillon. Dans le logiciel Génie 2000 version 3.4, il existe plusieurs modèles de la géométrie de porte-échantillon (filtre en papier, bouteille, Marinelli, etc.) avec leurs paramètres correspondants. Cependant, le choix du modèle est en fonction de la forme du porte-échantillon utilisé. De plus, le logiciel donne d'autre possibilité d'établir la forme d'un porte-échantillon selon la géométrie de l'échantillon à analyser.

La méthode ISOCS permet de faire la mesure in-situ ou sur terrain. Comme en LABSOCS, l'étalonnage en efficacité peut être effectué à partir des modèles déjà préétablis dans le logiciel. Par contre, la forme et la dimension des modèles sont différentes.

4.3.2. Etalonnage par LABSOCS

Dans ce paragraphe, nous avons montré les étapes à suivre pour configurer le modèle d'un porte-échantillon existant. Prenons l'exemple d'un porte-échantillon bécher simple parmi les modèles disponibles comme forme cylindrique, en boîte, Marinelli, en sphère, etc.

Une fois le logiciel Génie 2000 est lancé, plus précisément le programme Gamma Acquisition &Analysis, on doit suivre les étapes suivantes :

- Ouvrir le spectre convenable,
- entrer dans la barre de menu « options »,
- puis cliquer sur éditeur géométrie « Geometry Composer », puis la fenêtre sur la figure13 ci-après apparaît.

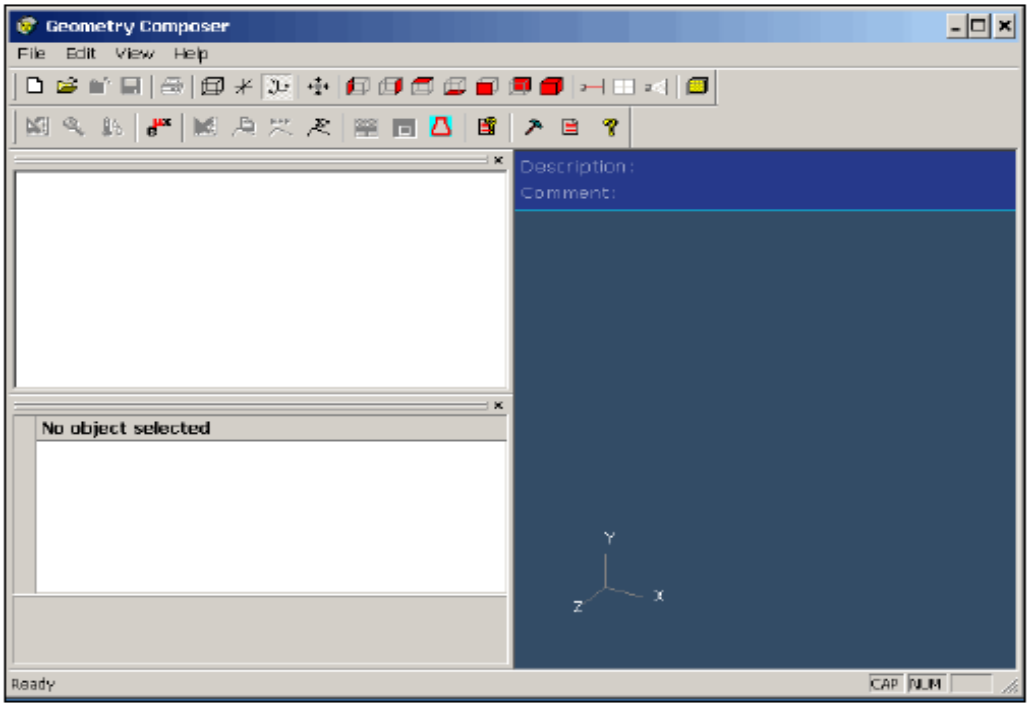


Figure 13: Fenêtre principale d'un éditeur de géométrie

A partir de la figure 13, on doit entrer dans la barre de menu Fichier « File », puis cliquer sur Nouveau « New », choisir la méthode LABSOCS ainsi que le modèle de la géométrie bécher simple (Fig. 14).

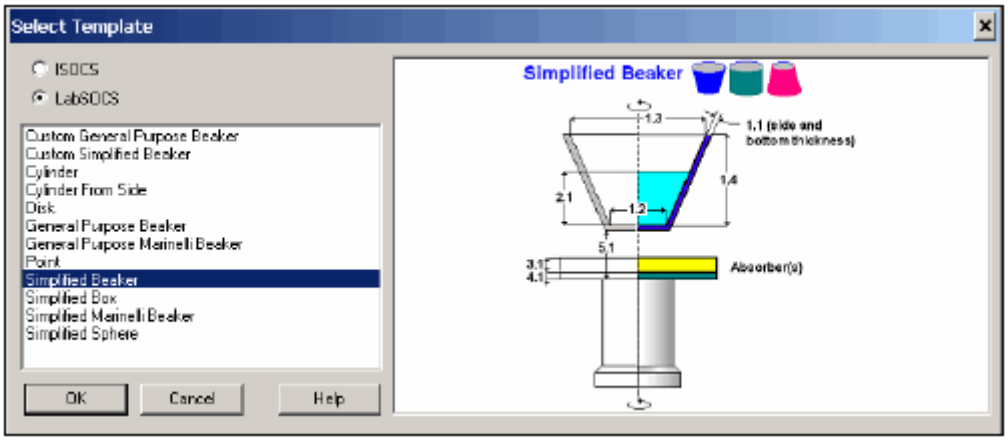


Figure 14: Sélection du bécher simple dans les modèles

Une fois le modèle est défini, on doit sélectionner le détecteur correspondant (Fig.15).

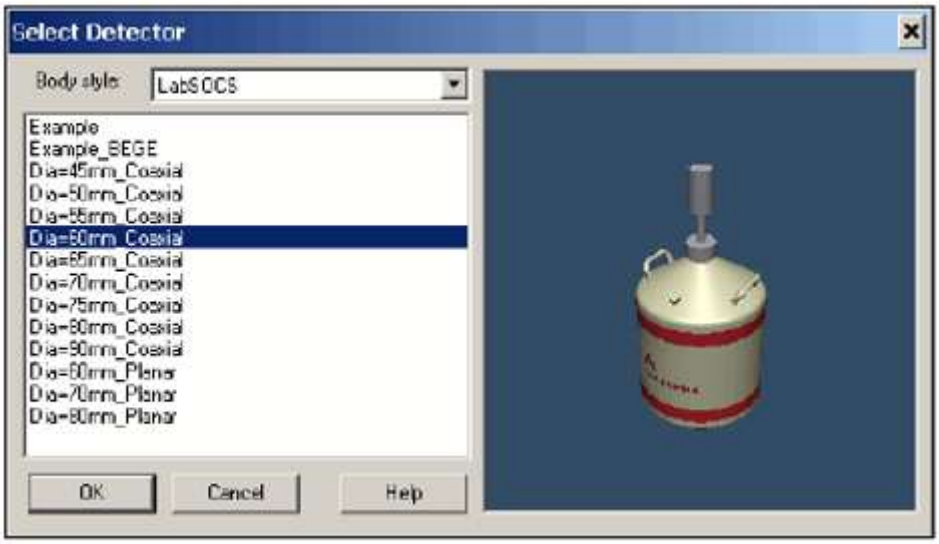


Figure 15: Sélection du détecteur

Pour la configuration des paramètres, on revient à la barre de menu en entrant sur « Edit Dimensions », cliquer sur Dessin « View Drawing », ajuster les valeurs de paramètres et sauvegarder le fichier. La figure 16 suivante montre cette étape.

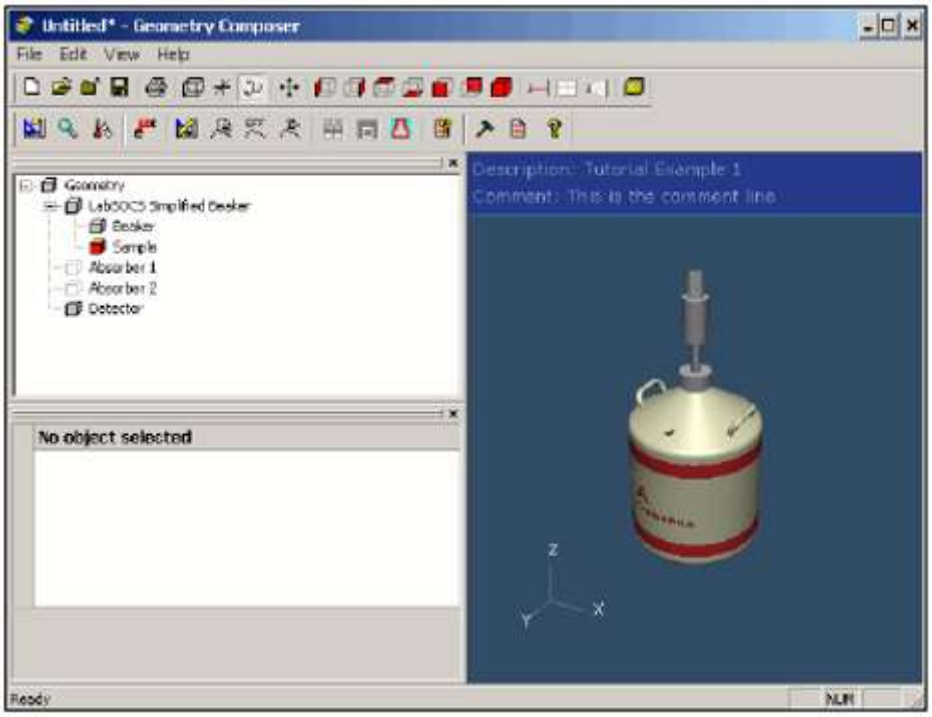


Figure 16: Schéma du détecteur choisi avec l'échantillon

Pour la validation du modèle choisi, on entre dans la barre de menu « Edit », choisir l'onglet Calcul d'efficacité « Efficiency Curve » puis Paramètres et Validation Géométrie « Validate Geometry ». Une fenêtre de confirmation apparait comme ci-après (Fig. 17).

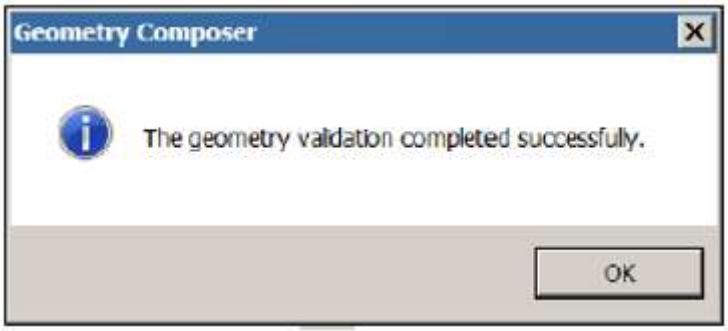


Figure 17: Fenêtre de confirmation de la validation

Pour sauver le fichier, on revient sur la barre de menu fichier« File » puis choisir l'onglet enregistrer sous« Save as ». Le nom du fichier est suivi d'extension « .geo ». Ensuite, on clique sur le menu éditer « Edit » puis sur la courbe d'efficacité « Efficiency Curve » et on choisit sur le menu générer les points d'efficacité « Generate data point » (Fig.18).

Figure 18: Fenêtre de calcul d'efficacité

Enfin, l'étalonnage en efficacité se fait en entrant dans la barre de menu étalonnage « Calibrate » puis sélectionner l'efficacité « Efficiency » et choisir « ISOCS/LABSOCS ». Une fois sélectionnée, on choisit le type de l'étalonnage dans la fenêtre de la figure 19 suivante.

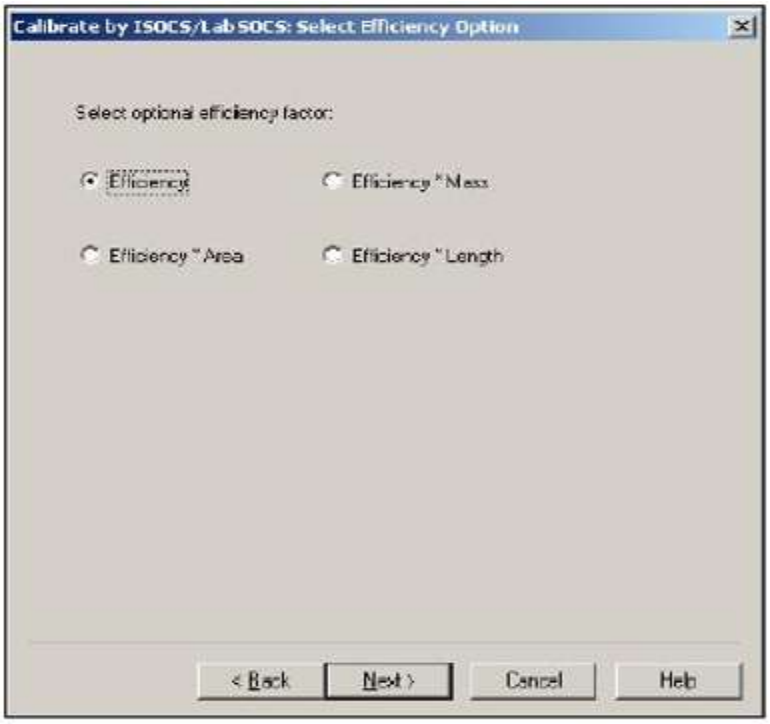


Figure 19: Sélection du type de l'efficacité

4.3.3. Etalonnage par ISOCS

Pour l'étalonnage en efficacité par méthode ISOCS, on utilise les mêmes procédures que pour la méthode LABSOCS. La différence entre les deux méthodes se trouve sur le type du modèle. Dans l'ISOCS, il y a les modèles boîte simple, boîte complexe, sphère, cercle plan, etc.

Dans ce paragraphe, nous avons montré les étapes à suivre pour l'étalonnage en efficacité d'un modèle en boîte simple. Comme dans la méthode LABSOCS, on utilise toujours le logiciel Génie 2000. Après avoir choisi ce modèle, les paramètres du dessin apparaissent dans la fenêtre de la figure 20 ci-après.

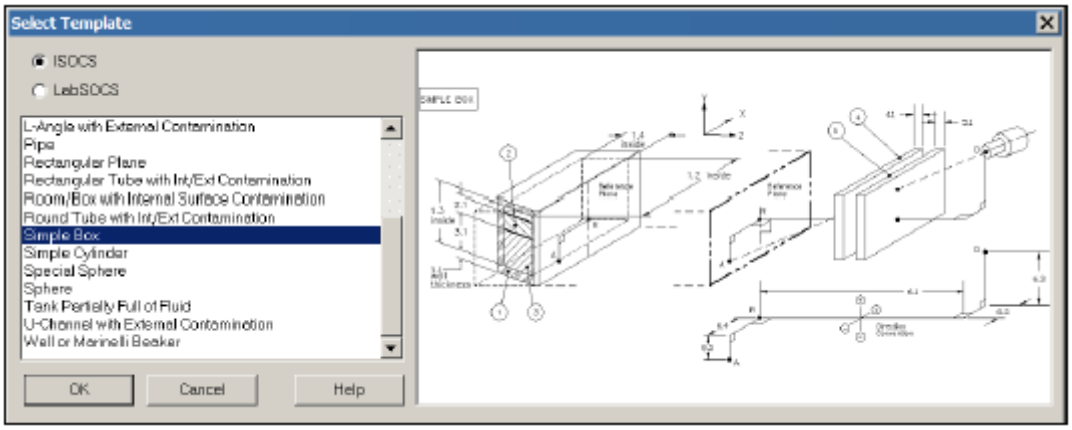


Figure 20: Sélection du modèle boîte simple

La figure 21 suivante montre la sélection du détecteur utilisé dans la fenêtre du détecteur « Detector Window ».

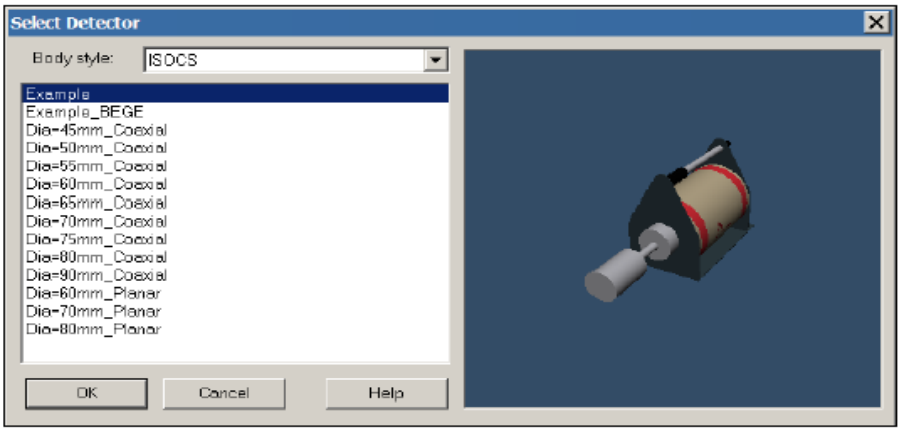


Figure 21: Sélection du détecteur

Pour éditer le modèle, on doit ajuster les paramètres du modèle (distance détecteur-source, diamètre, épaisseur, etc.) et de la matrice (type de la source, densité, proportion, etc.). La figure 22 ci-après montre la configuration du modèle détecteur-source après avoir complété tous les paramètres requis.

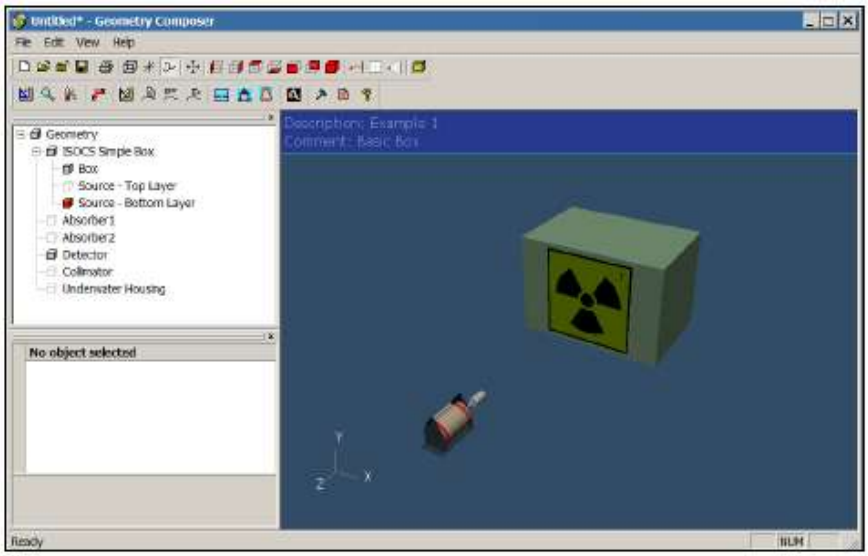


Figure 22: Modèle détecteur-source dans la fenêtre de l'éditeur de géométrie

Pour la validation du modèle choisi, on sélectionne sur le menu éditer « Edit » puis sur la courbe d'efficacité « Efficiency Curve » et sur la validation géométrie « Validate Geometry ». Le message de la validation apparait dans la fenêtre de la figure 23 ci-après.

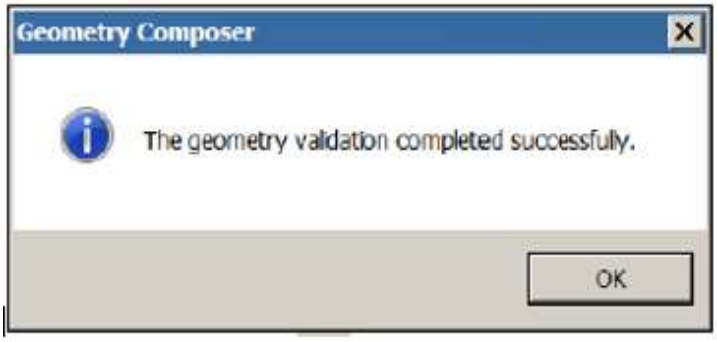


Figure 23: Message de la validation du modèle

Pour sauvegarder le fichier de l'étalonnage, on clique sur la barre de menu fichier « File » puis sur enregistrer sous « Save As ». Ensuite, on clique sur le menu éditer « Edit » puis la courbe de l'efficacité « Efficiency Curve » et la génération des points de donnée « Generate data point»(Fig.24).

Figure 24: Calcul d'étalonnage en efficacité

Une fois les paramètres du modèle terminés, on quitte la fenêtre « Geometry Composer » puis on ouvre le programme de Gamma Acquisition et Analyse afin de suivre l'étalonnage en efficacité. Au début, on commence par la sélection du menu étalonnage « Calibrate », efficacité « Efficiency » puis par ISOCS/LABSOCS et on clique sur le bouton « select » pour ouvrir un fichier correspondant. Ensuite, on sélectionne sur le bouton ouvrir « Open » puis suivant « Next »(Fig.25).

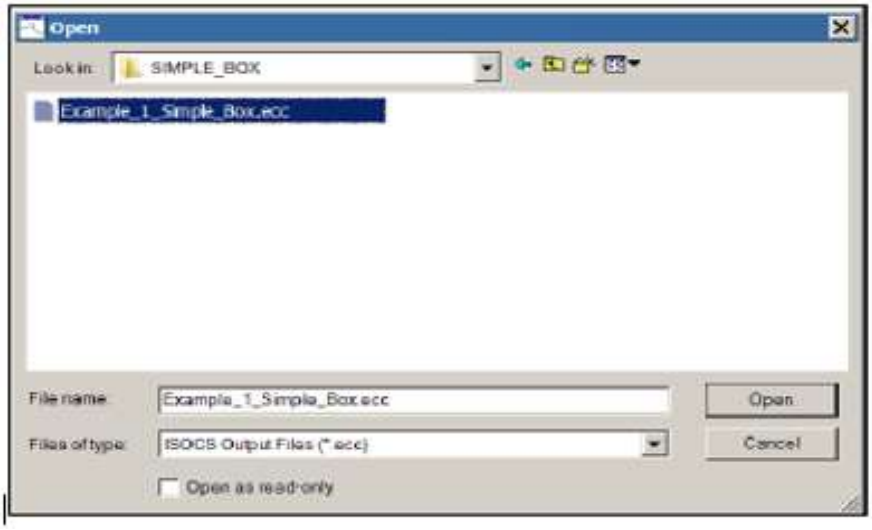


Figure 25: Ouverture du fichier ECC d'une boîte simple

Pour le type d'étalonnage, on sélectionne sur option d'efficacité « Efficiency Option » et on suit les instructions jusqu'on obtient la fenêtre de la figure 19 dans la méthode LABSOCS.

4.4. Calcul d'incertitude

Toute manipulation provoque toujours des incertitudes. Ceci se produit pendant l'étape de la collecte, de la préparation et de l'analyse des échantillons. L'incertitude est notée par σ.

Pour une fonction f qui dépend de plusieurs variables (x, y, z, …, n), le développement en série entière de l'incertitude est donné par la relation 4.6 suivante.

$$\sigma_f^2 = \left(\frac{\partial f}{\partial x}\right)^2 \times \sigma_x^2 + \left(\frac{\partial f}{\partial y}\right)^2 \times \sigma_y^2 + \cdots + \left(\frac{\partial f}{\partial n}\right)^2 \times \sigma_n^2 \qquad (4.6)$$

4.4.1. Multiplication avec une constante

Soit $f = ax$, l'incertitude est donnée par :

$$\sigma_f = a\sigma_x \qquad (4.7)$$

avec σ_f : incertitude de la fonction *f*,

σ_x : incertitude de la variable *x*,

a : constante.

4.4.2. Somme ou différence

Pour une relation : $f=x+y$ ou $f=x-y$, l'incertitude est égale à :

$$\sigma_f = \sqrt{\sigma_x^{\,2} + \sigma_y^{\,2}} \tag{4.8}$$

avec σ_f : incertitude de la fonction f,

σ_x : incertitude de la variable x,

σ_y : incertitude de la variable y.

4.4.3. Multiplication ou division

Pour une relation $f=xy$ ou $f=x/y$, on a :

$$\sigma_f = f\sqrt{\left(\frac{\sigma_x^{\,2}}{x}\right) + \left(\frac{\sigma_y^{\,2}}{y}\right)} \tag{4.9}$$

avec σ_f : incertitude de la fonction f,

σ_x : incertitude de la variable x,

σ_y : incertitude de la variable y.

Partie pratique

Chapitre 5 : MESURES EXPERIMENTALES

5.1. Mesure in-situ

Le spectromètre gamma portable permet de déterminer l'activité massique ($Bq.kg^{-1}$) ou surfacique ($Bq.m^{-2}$) des radionucléides émetteurs gamma dans le sol. Dans ce travail, nous avons utilisé le détecteur portable HPGe, de marque Canberra, de type P, de résolution 1,8 keV pour le pic du ^{60}Co à 1332,5 keV et d'efficacité relative 30%. Le détecteur couplé à un préamplificateur est relié à l'azote liquide à l'aide d'un cryostat. Le dewar d'azote liquide, d'une capacité de 2 litres, peut maintenir le refroidissement du détecteur pendant 48 heures. L'ensemble détecteur-dewar est placé à une hauteur donnée de la surface du sol à l'aide d'un support en tripode réglable selon la distance voulue. Le détecteur est orienté vers le sol. La tension de polarisation recommandée est de 3000V. Le système détecteur-préamplificateur est relié à l'analyseur multicanaux MCA, modèle InSpector 2000 de marque Camberra, et connecté à un micro-ordinateur portable muni d'un logiciel Génie 2000.

Pendant la mesure, nous avons fixé le détecteur à une hauteur de 73 cm au-dessus du sol (Fig. 26).

Figure 26: Equipement de mesure sur terrain

5.1.1. Traitement des spectres par la méthode ISOCS

La mesure in-situ a été effectuée dans l'enceinte de l'INSTN de coordonnées géographiques : latitude: 18°54'52,86'' S et longitude: 47°33'27,74'' E, à la date du 24 janvier 2018. Le temps de comptage est fixé à 15000 secondes. Le spectre obtenu est montré dans la figure 27 ci-après.

Figure 27: Spectre de mesure in situ du sol de l'INSTN

Le traitement de ce spectre se fait à l'aide du logiciel Génie 2000, à travers les programmes Gamma Acquisition &Analyse et Editeur de Géométrie. Le modèle et la courbe d'étalonnage utilisés sont présentés sur les figures 28 et 29 respectivement.

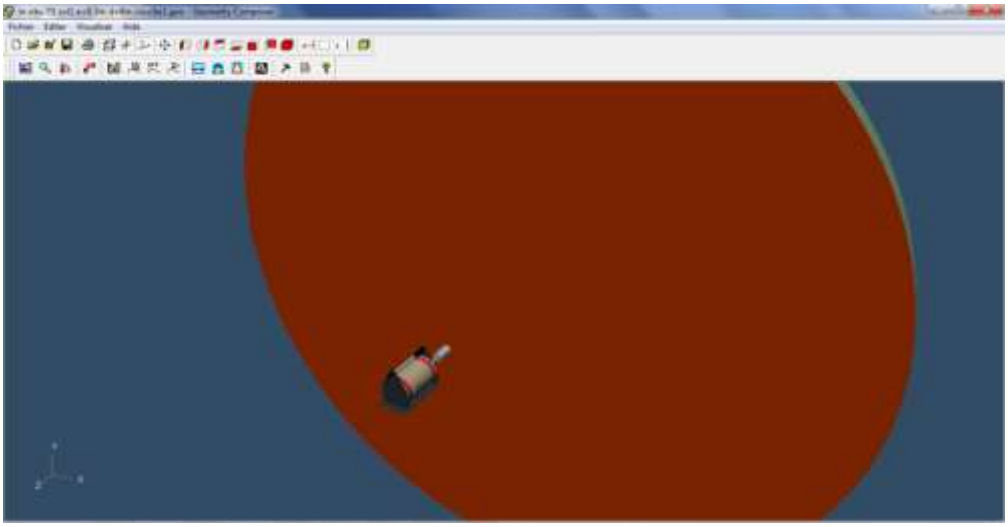


Figure 28: Modèle géométrique ISOCS à l'aide d'un éditeur de géométrie

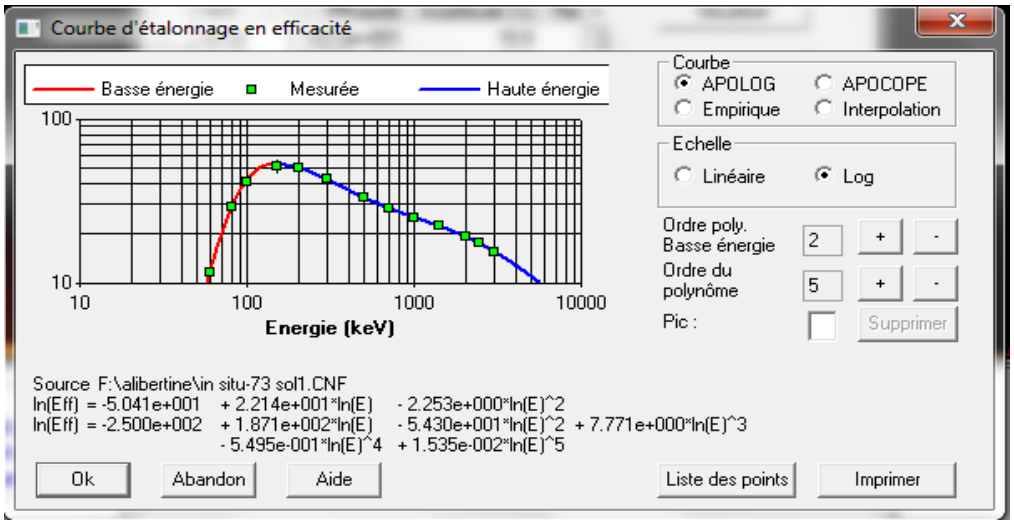


Figure 29: Courbe d'étalonnage en efficacité par la méthode ISOCS

5.1.2. Traitement des spectres par la méthode LABSOCS

Pour la méthode LABSOCS, l'acquisition du spectre a été effectuée au laboratoire (ou salle) dans un milieu bien dégagé. L'échantillon est fixé sur le détecteur pendant la mesure. Dans ce travail, nous avons utilisé l'étalon IAEA-375 comme échantillon à analyser. La figure 30 dans la page suivante représente le spectre de l'étalon IAEA-375.

La matrice de l'étalon IAEA-375 est le sol. Cet étalon a été préparé le 14 avril 2011, de masse 129,08 ± 0,01 g et de volume 100 cm^3.

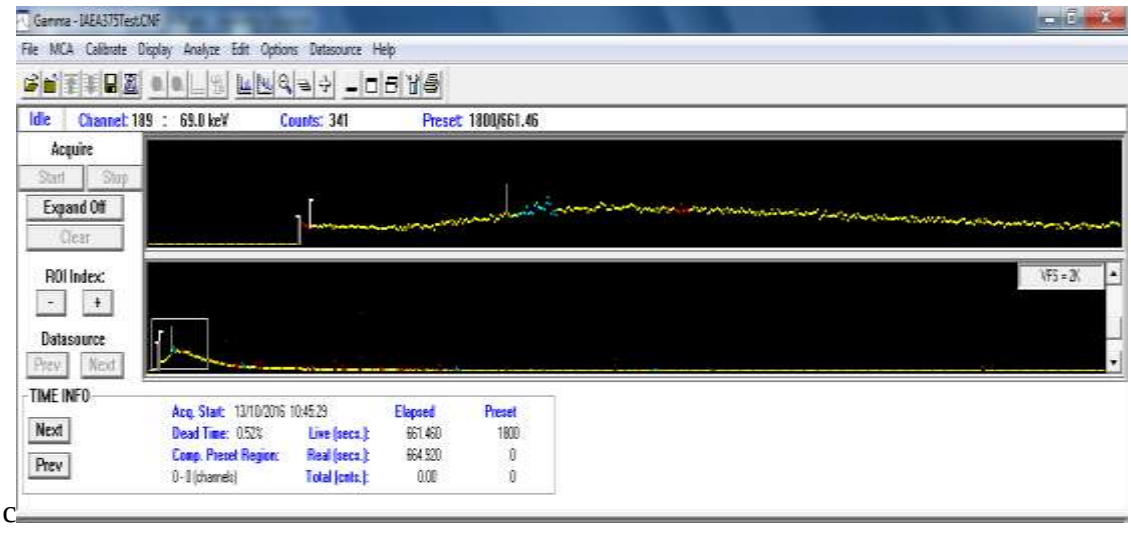


Figure 30: Spectre de l'étalon IAEA-375 par la méthode LABSOCS

Le traitement du spectre est similaire à la méthode ISOCS à l'aide du logiciel Génie 2000. Les figures 31 et 32 illustrent ces étapes.

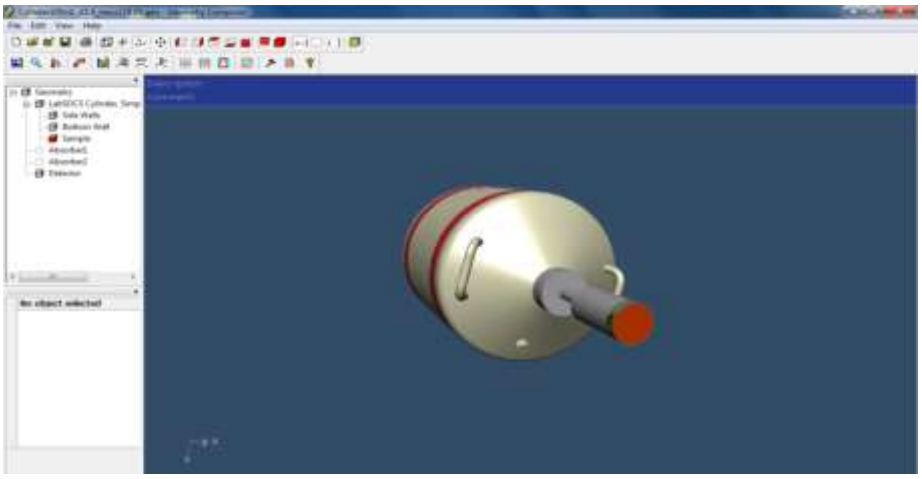


Figure 31: Modèle géométrique LABSOCS à l'aide d'un éditeur de géométrie

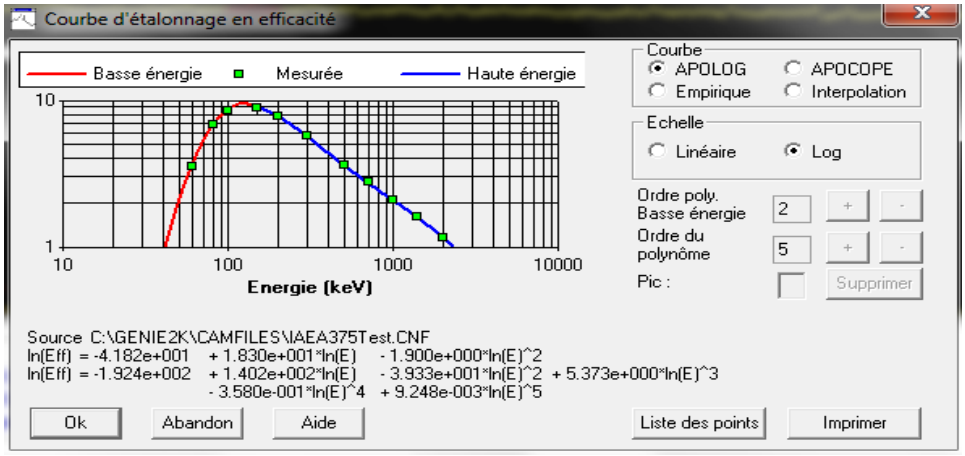


Figure 32: Courbe d'étalonnage en efficacité par la méthode LABSOCS

5.2. Mesure en laboratoire

Pour confirmer les résultats des méthodes ISOCS/LABSOCS, l'utilisation de la méthode classique est nécessaire. La mesure a été faite à partir d'un échantillon prélevé dans la zone où on a effectué la mesure in-situ. Dans ce travail, nous avons utilisé une chaîne de spectrométrie gamma de laboratoire, muni d'un détecteur HPGe, de type P et d'efficacité relative de 30%.

5.2.1. Echantillonnage et préparation

L'échantillon collecté est environ constitué de 01 kg de sol caillouteux, prélevé jusqu'à 20 cm de profondeur. Après le prélèvement, il a été directement mis dans un sachet en plastique, bien codé et étiqueté.

Avant de procéder à l'analyse de l'échantillon, nous avons effectué la préparation physique telle que le séchage, le pesage et le conditionnement.

5.2.1.1. Séchage

Le but du séchage est de déterminer le taux d'humidité de l'échantillon. Pour ce faire, nous avons mis 12 g de l'échantillon humide dans un verre de montre. Puis on le met dans une étuve à 80°C pendant 15 heures pour éliminer l'humidité. La masse sèche de l'échantillon a été donc obtenue après le séchage.

5.2.1.2. Pesage

Une balance électrique de précision a été utilisée pour peser les masses du verre de montre vide, de l'échantillon humide et sec. Les masses obtenues ont été utilisées pour le calcul de l'humidité et de l'activité massique.

Tableau 2: Masse de l'échantillon et du verre de montre

Désignation	Quantité (g)
Verre de montre	14,10
Echantillon humide	11,90
Echantillon sec	09,50

5.2.1.3. Conditionnement de l'échantillon

Pour l'analyse, nous avons utilisé le porte-échantillon cylindrique en polyéthylène de 100 cm^3. Ce porte-échantillon a été bien rempli jusqu'au niveau de la marque de remplissage pour avoir une bonne homogénéisation de l'échantillon à analyser. Il faut entasser l'échantillon lors du remplissage afin d'éviter toute la réduction ultérieure de volume [12]. L'échantillon préparé a été ensuite fermé hermétiquement, puis stocké pendant trois semaines environ pour avoir l'équilibre séculaire entre le radium-226 et ses descendants.

5.2.2. Matériels utilisés

Les matériels et les équipements nécessaires sont disponibles dans le laboratoire du département Analyses et Techniques Nucléaires de l'INSTN-Madagascar. Ce laboratoire possède donc des matériels pour la préparation et la mise au point de la chaine de mesure.

5.2.2.1. Matériels pour la préparation

Pour faire la préparation, nous avons utilisé les matériels suivants (Fig.33) :

- Etuve de marque GALLENKAMP pour le séchage,
- Verre de montre pour la détermination du taux d'humidité,
- Balance électronique de marque SARTORIUS, modèle LE42025 pour le pesage,
- Porte échantillon cylindrique en polyéthylène, volume 100 cm^3 et dimension (diamètre = 74 mm, hauteur = 27 mm) pour le conditionnement.

a) b)

Figure 33: Matériel de préparation a) Etuve et b) Balance électronique

5.2.2.2. Matériel utilisé pour la mise au point de la chaine de mesure

Nous avons utilisé un matériau de référence pour l'étalonnage en énergie et l'étalonnage en efficacité. Ce matériau est un minerai d'uranium, code RGU-1, certifié par l'AIEA (Fig.34). L'uranium-238 est en équilibre séculaire avec ses descendants, c'est-à-dire, l'activité des descendants est égale à l'activité de l'uranium-238.

Figure 34: Matériau de référence RGU-1

Tableau 3: Caractéristiques du matériau de référence

Désignation	Caractéristique
Code	IAEA/RGU-1
Nature	Minerais d'Uranium
Masse de l'échantillon (g)	142,85 ± 0,03
Volume (cm^3)	100
Teneur en U ($\mu g.g^{-1}$)	400 ± 2
Teneur en Th ($\mu g.g^{-1}$)	< 1
Teneur en K ($\mu g.g^{-1}$)	< 20
Masse molaire	238,029
Demi-vie (ans)	$4,468.10^9$ ans
Date de préparation	05 octobre 1998
Activité massique ($Bq.kg^{-1}$)	4940 ± 30

- Etalonnage en énergie

C'est une relation entre le numéro du canal et de l'énergie. Les pics d'absorption totale, dans le tableau 4 suivant, appartiennent à la famille de l'uranium 238.

Tableau 4: Radionucléides descendants de l'^{238}U avec leurs énergies ainsi que les numéros de canal correspondants

Radionucléides	Intensité (%)	Canal	Energie (keV)
Th-234	4,50	176	63, 3
Pb-214	7,50	674	242,0
Pb-214	18,50	823	295,2
Pb-214	35,80	981	351,9
Bi-214	46,10	1700	609,3
Bi-214	4,94	2144	768,4
Bi-214	15,10	3127	1120,3
Bi-214	5,79	3456	1238,1
Bi-214	4,00	3845	1377,7
Bi-214	15,40	4925	1764,5
Bi-214	5,08	6153	2204,2

La figure 35 montre l'équation linéaire et la courbe correspondante obtenues à partir du calcul manuel.

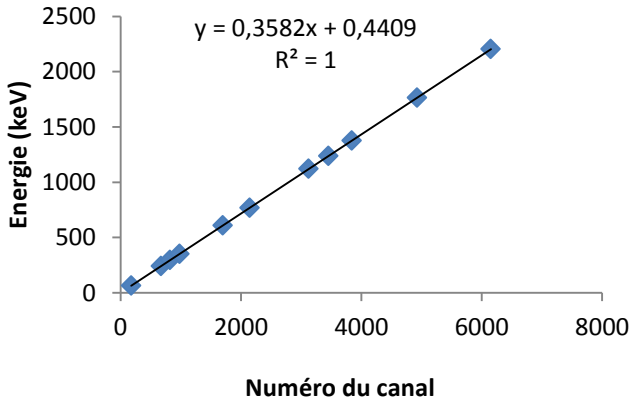


Figure 35: Courbe d'étalonnage en énergie par calcul manuel

Le logiciel donne la même équation de l'étalonnage en énergie que pour la méthode manuelle, illustrée par la figure 36 suivante :

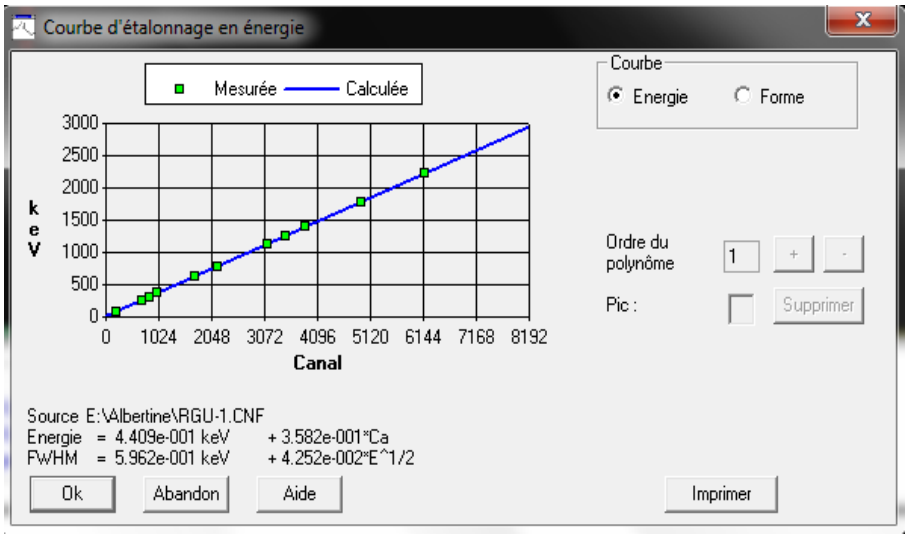


Figure 36: Courbe d'étalonnage en énergie donnée par le logiciel Génie 2000

- Etalonnage en efficacité

Pour avoir la courbe d'étalonnage en efficacité, nous avons utilisé l'étalon RGU-1. Comme pour l'étalonnage en énergie, l'étalonnage en efficacité utilise la méthode manuelle et le logiciel Génie 200. Les constantes d'étalonnage ε sont calculées à l'aide de l'équation (4.4) du paragraphe 4.2.2.

Les valeurs de l'efficacité obtenues par calcul manuel sont présentées dans le tableau 5 suivant.

Tableau 5: Valeurs de l'efficacité du matériau de référence RGU-1 par calcul manuel

Radionucléides	Energie (keV)	Efficacité mesurée	Efficacité calculée
Th-234	63,3	0,0213 ± 0,0007	0,0213 ± 0,0004
Pb-214	242,0	0,0440 ± 0,0005	0,0443 ± 0,0007
Pb-214	295,2	0,0371 ± 0,0003	0,0372 ± 0,0006
Pb-214	351,9	0,0320 ± 0,0002	0,0314 ± 0,0005
Bi-214	609,3	0,0182 ± 0,0001	0,0186 ± 0,0003
Bi-214	768,4	0,0157 ± 0,0003	0,0152 ± 0,0003
Bi-214	1120,3	0,0111 ± 0,0002	0,0114 ± 0,0002
Bi-214	1238,1	0,0105 ± 0,0003	0,0106 ± 0,0002
Bi-214	1764,5	0,0082 ± 0,0001	0,0080 ± 0,0001
Bi-214	2204,2	0,0064 ± 0,0002	0,0065 ± 0,0001

Pour avoir un bon lissage de la courbe, on utilise la fonction transformée logarithmique de l'énergie et de l'efficacité dans la relation 6.1 ci-après.

$$\ln \varepsilon = a_0 + a_1 \ln E_\gamma + a_2 (\ln E_\gamma)^2 + a_3 (\ln E_\gamma)^3 + \ldots \qquad (6.1)$$

Où $a_0, a_1, a_2, a_3, \ldots$ sont des constantes à déterminer.

Par le calcul manuel, la courbe d'étalonnage en efficacité est illustrée dans la figure 37 suivante. On note que l'abscisse *x* est le logarithme de l'énergie E_γ. L'ordonnée *y* est le logarithme de l'efficacité ε.

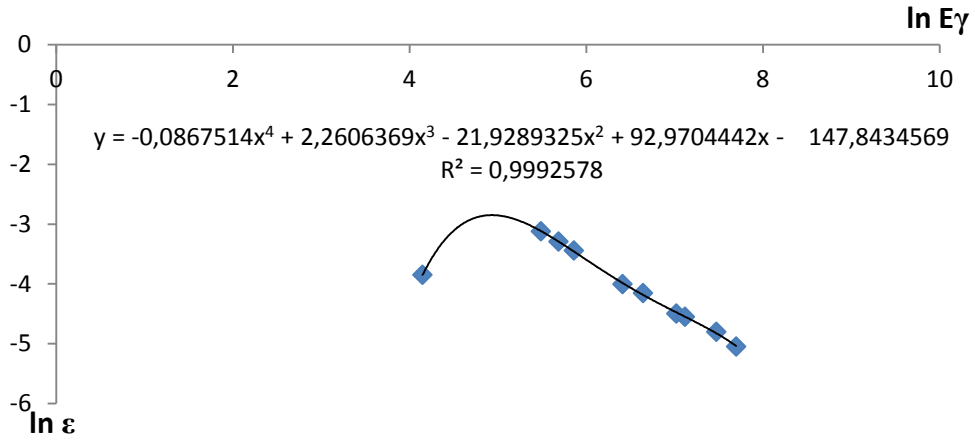


Figure 37: Courbe d'étalonnage en efficacité par calcul manuel

Pour le logiciel Génie 2000, il faut créer en premier lieu un fichier d'éditeur de certificat des radionucléides (Fig. 38).

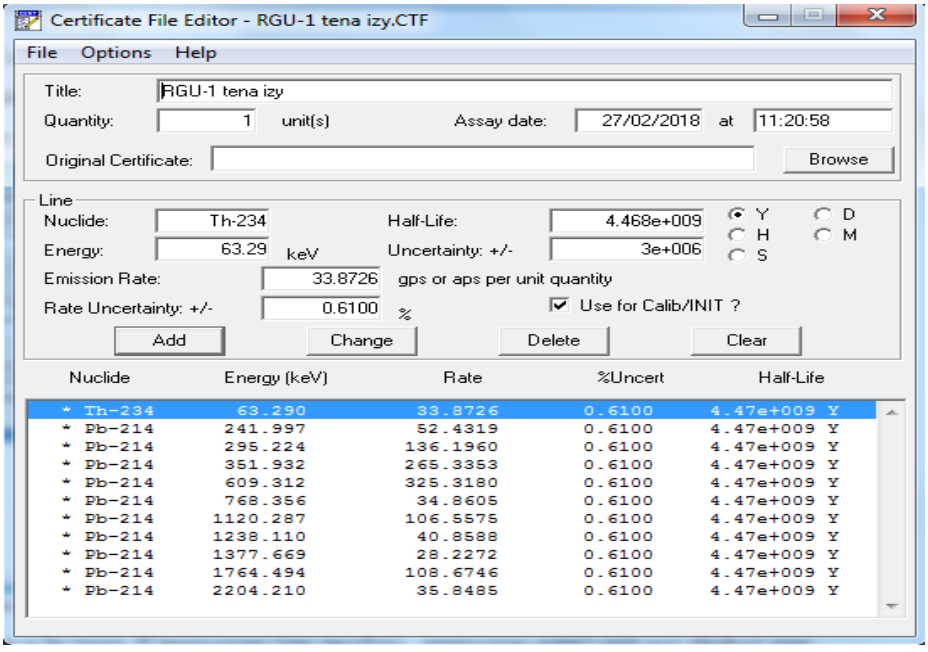


Figure 38: Fichier du certificat des radionucléides de la famille de l'uranium-238

Le fichier du certificat doit être chargé dans le spectre du matériau de référence RGU-1. Le logiciel peut afficher la courbe d'étalonnage à l'échelle linéaire ou logarithmique comme le montrent les figures 39 et 40 respectivement.

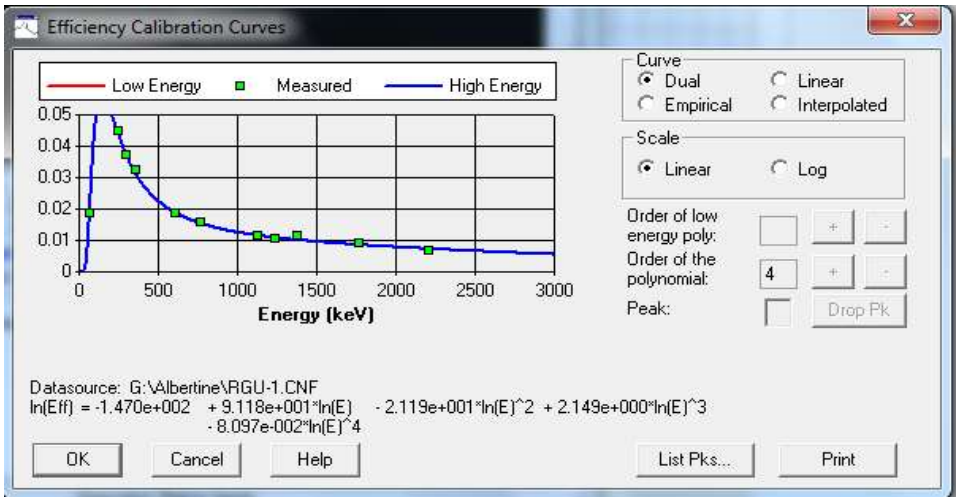


Figure 39: Courbe d'étalonnage en efficacité à l'échelle linéaire

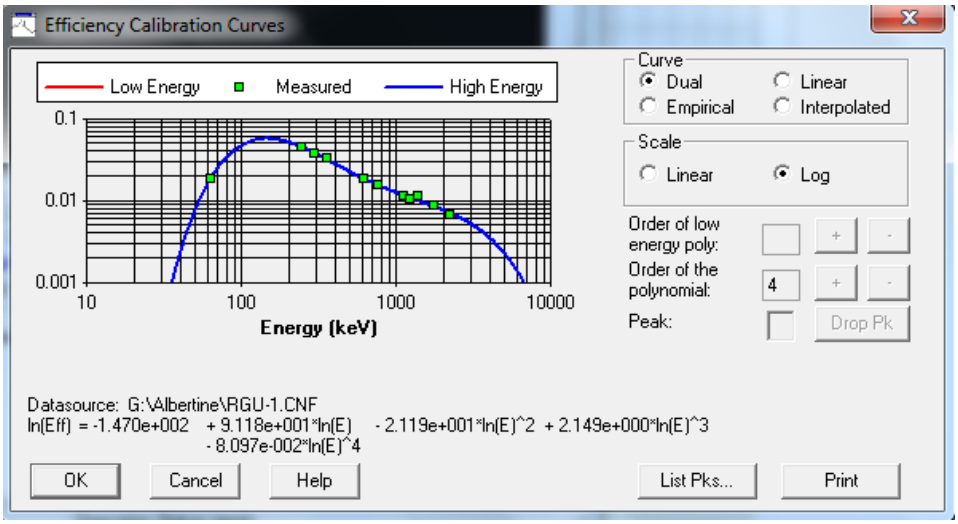


Figure 40: Courbe d'étalonnage en efficacité à l'échelle logarithmique

5.2.3. Mesure du bruit de fond

Le bruit de fond (BF) est le comptage d'un spectre dans les conditions normales d'utilisation de la chaîne de mesure en l'absence de la source ou échantillon (mesure à vide). Ce bruit de fond provient du détecteur et/ou de l'environnement dans le laboratoire. Avant de procéder à l'analyse d'un échantillon donné, il est nécessaire de connaître le niveau du bruit de fond afin d'avoir des résultats précis. Ainsi, la contribution du bruit de fond doit être soustraite dans le spectre de l'échantillon.

Dans ce travail, nous avons fixé le temps de comptage du bruit de fond à 72 heures.

Chapitre 6 : RESULTATS ET DISCUSSIONS

6.1. Résultats

A l'aide du logiciel Génie 2000, les résultats obtenus peuvent être exprimés en termes d'activité massique ($Bq.kg^{-1}$) ou d'activité surfacique ($Bq.m^{-2}$).

6.1.1. Activité massique par méthode ISOCS

Les activités massiques sont déterminées à partir du spectre de la mesure in-situ, d'une distance (détecteur – sol) de 73 cm, par la méthode ISOCS et la bibliothèque créée (voir annexe 2). Les paramètres de la méthode à considérer sont le diamètre, la profondeur et la couche du sol avec leur proportion de matière existante. Pendant le traitement du spectre, nous avons fait varier le diamètre de 1,5 m à 13 m et la profondeur de 30 cm à 5 m.

6.1.1.1. Activité spécifique des radionucléides

L'activité spécifique est représentée par la valeur moyenne de l'activité de chaque énergie du radionucléide. Les résultats obtenus sont présentés dans les tableaux 6, 7 et 8 en fonction de la variation de ces paramètres. Cependant, un exemple du rapport d'analyse détaillé est donné dans l'annexe 4.

Tableau 6: Activité spécifique, diamètre de 6 m avec une couche de sol

Profondeur(m)	**Activité massique ($Bq.kg^{-1}$)**						
	K-40	Th-232				U-238	
		Tl-208	Bi-212	Ac-228	Pb-212	Bi-214	Pb-214
0,3	398 ± 17	40 ± 1	108 ± 8	102 ± 4	94 ± 8	35 ± 1	32 ± 2
0,6	384 ± 16	38 ± 1	106 ± 8	101 ± 3	94 ± 8	34 ± 1	32 ± 2
1,2	383 ± 16	38 ± 1	106 ± 8	101 ± 3	94 ± 8	34 ± 1	32 ± 2
2,4	384 ± 16	38 ± 1	106 ± 8	101 ± 3	94 ± 8	34 ± 1	32 ± 2
4,8	383 ± 16	38 ± 1	106 ± 8	101 ± 3	94 ± 8	34 ± 1	32 ± 2
5	383 ± 16	38 ± 1	106 ± 8	101 ± 3	94 ± 8	34 ± 1	32 ± 2

Les activités du K-40 varient de (383 ± 16) $Bq.kg^{-1}$ à (398 ± 17) $Bq.kg^{-1}$. Les activités duTl-208 varient de (38 ± 1) $Bq.kg^{-1}$ à (40 ± 1) $Bq.kg^{-1}$. Les activités du Bi-212 varient de (106 ± 3) $Bq.kg^{-1}$ à (108 ± 8) $Bq.kg^{-1}$. Les activités du radionucléide Ac-228 varient de (101 ± 3) $Bq.kg^{-1}$ à (102 ± 4) $Bq.kg^{-1}$. Les activités du Bi-214 varient de (34 ± 1) $Bq.kg^{-1}$ à (35 ± 1) $Bq.kg^{-1}$. Par contre, les activités du Pb-212 et du Pb-214 restent constantes lors de la

variation de la profondeur de 0,3 m à 5 m. Ces activités sont respectivement de (94 ± 8) $Bq.kg^{-1}$ et (32 ± 2) $Bq.kg^{-1}$.

La figure 41 montre l'allure d'activité spécifique de chaque radionucléide en fonction de la variation de profondeur. Pour chaque radionucléide, l'activité maximale se trouve à la profondeur 0,3 m et diminue légèrement jusqu'à la profondeur de 0,6 m. Ces activités sont relativement constantes de la profondeur 0,6 m à 5 m.

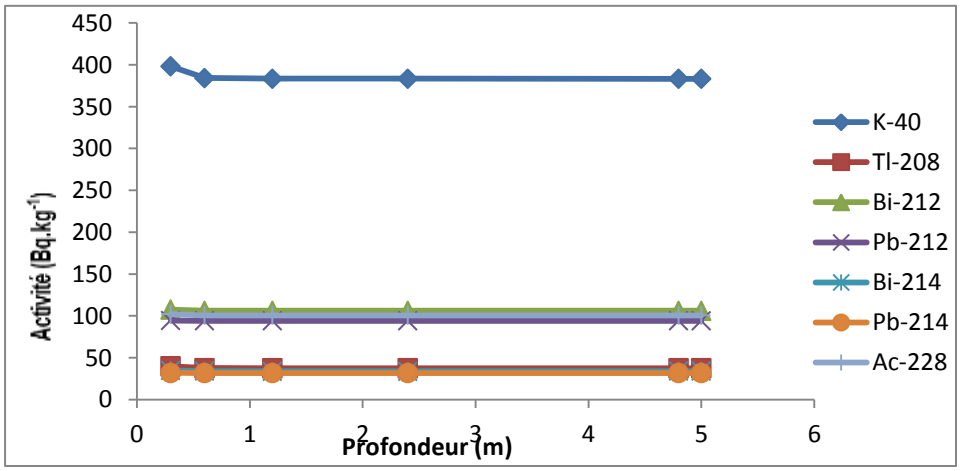


Figure 41: Courbe de l'activité spécifique, diamètre de 6 m avec une couche de sol

Tableau 7: Activité spécifique, diamètre de 6 m avec deux couches (sol 60% et roche 40%)

Profondeur (m)	**Activité massique ($Bq.kg^{-1}$)**						
	K-40	Th-232				U-238	
		Tl-208	Bi-212	Ac-228	Pb-212	Bi-214	Pb-214
0,3	336 ± 14	34 ± 1	91 ± 7	86 ± 3	79 ± 7	29 ± 1	27 ± 2
0,6	323 ± 14	32 ± 1	89 ± 6	85 ± 3	79 ± 7	29 ± 1	27 ± 2
1,2	322 ± 14	32 ± 1	89 ± 6	86 ± 3	79 ± 7	29 ± 1	27 ± 2
2,4	322 ± 14	32 ± 1	89 ± 6	85 ± 3	79 ± 7	29 ± 1	27 ± 2
4,8	322 ± 14	32 ± 1	89 ± 6	85 ± 3	79 ± 7	29 ± 1	27 ± 2
5	324 ± 14	32 ± 1	90 ± 6	85 ± 3	80 ± 7	29 ± 1	27 ± 2

Les activités du radionucléide K-40 varient de (322 ± 14) $Bq.kg^{-1}$ à (336 ± 14) $Bq.kg^{-1}$. Les activités du radionucléide Tl-208 varient de (32 ± 1) $Bq.kg^{-1}$ à (34 ± 1) $Bq.kg^{-1}$. Les activités du radionucléide Bi-212 varient de (89 ± 6) $Bq.kg^{-1}$ à (91 ± 7) $Bq.kg^{-1}$. Les activités du radionucléide Ac-228 varient de (85 ± 3) $Bq.kg^{-1}$ à (86 ± 3) $Bq.kg^{-1}$. Les activités du radionucléide Pb-212 varient de (79 ± 7) $Bq.kg^{-1}$ à (80 ± 7) $Bq.kg^{-1}$. Par contre, les activités

du Pb-214 et du Bi-214 restent constantes. Ces activités massiques sont respectivement de (29 ± 1) $Bq.kg^{-1}$ et (27 ± 2) $Bq.kg^{-1}$.

La figure 42 montre l'allure d'activité spécifique de chaque radionucléide en fonction de la variation de profondeur. Pour chaque radionucléide, l'activité maximale se trouve à la profondeur 0,3 m et diminue légèrement jusqu'à la profondeur de 0,6 m. Ces activités sont relativement constantes de la profondeur 0,6 m à 5 m.

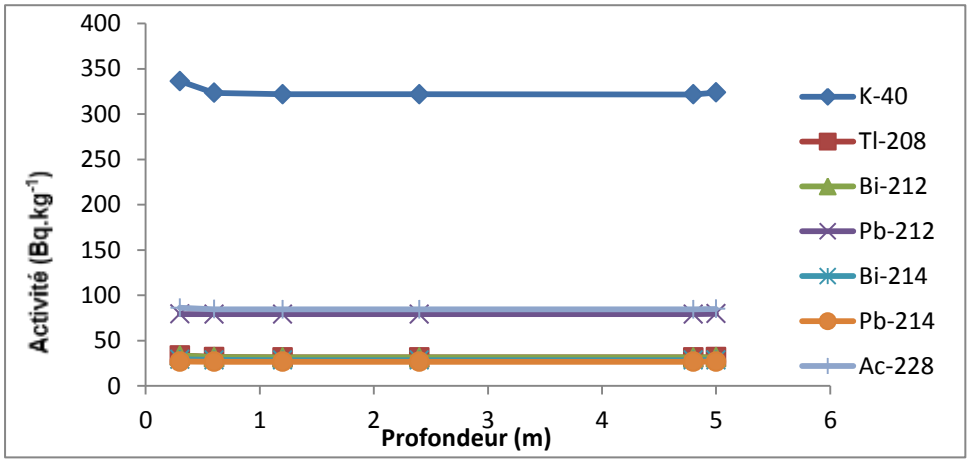


Figure 42: Courbe de l'activité spécifique, diamètre de 6 m avec deux couches (sol 60% et roche 40%)

Tableau 8: Activité spécifique, diamètre de 6 m avec deux couches (sol 80% et roche 20%)

Profondeur (m)	**Activité massique ($Bq.kg^{-1}$)**						
	K-40	Th-232				U-238	
		Tl-208	Bi-212	Ac-228	Pb-212	Bi-214	Pb-214
0,3	322 ± 14	31 ± 1	86 ± 6	82 ± 3	75 ± 6	28 ± 1	26 ± 2
0,6	307 ±13	30 ± 1	85 ± 6	80 ± 3	75 ± 6	27 ± 1	25 ± 2
1,2	273 ± 12	27 ± 1	76 ± 5	72 ± 2	67 ± 6	24 ± 1	23 ± 2
2,4	259 ±11	25 ± 1	72 ± 5	68 ± 2	64 ± 5	23 ± 1	21 ± 2
4,8	252 ± 11	25 ± 1	70 ± 5	66 ± 2	62 ± 5	22 ± 1	21 ± 2
5	256 ± 11	25 ± 1	71 ± 5	67 ± 2	63 ± 5	23 ± 1	21 ± 2

Les activités du radionucléide K-40 varient de (252 ± 11) $Bq.kg^{-1}$ à (322 ± 13) $Bq.kg^{-1}$. Les activités du radionucléide Tl-208 varient de (25 ± 1) $Bq.kg^{-1}$ à (31 ± 1) $Bq.kg^{-1}$. Les activités du radionucléide Bi-212 varient de (70 ± 5) $Bq.kg^{-1}$ à (86 ± 6) $Bq.kg^{-1}$. Les activités du radionucléide Ac-228 varient de (66 ± 2) $Bq.kg^{-1}$ à (82 ± 3) $Bq.kg^{-1}$. Les activités du radionucléide Pb-212 varient de (62 ± 5) $Bq.kg^{-1}$ à (75 ± 6) $Bq.kg^{-1}$. Les activités du

radionucléide Bi-214 varient de (22 ± 1) $Bq.kg^{-1}$ à (28 ± 1) $Bq.kg^{-1}$. Les activités du radionucléide Pb-214 varient de (21 ± 2) $Bq.kg^{-1}$ à (26 ± 2) $Bq.kg^{-1}$.

La figure 43 montre l'allure d'activité spécifique de chaque radionucléide en fonction de la variation de profondeur. Pour chaque radionucléide, l'activité maximale se trouve à la profondeur 0,3 m et diminue légèrement jusqu'à la profondeur de 0,6 m. Ces activités sont relativement constantes de la profondeur 0,6 m à 5 m.

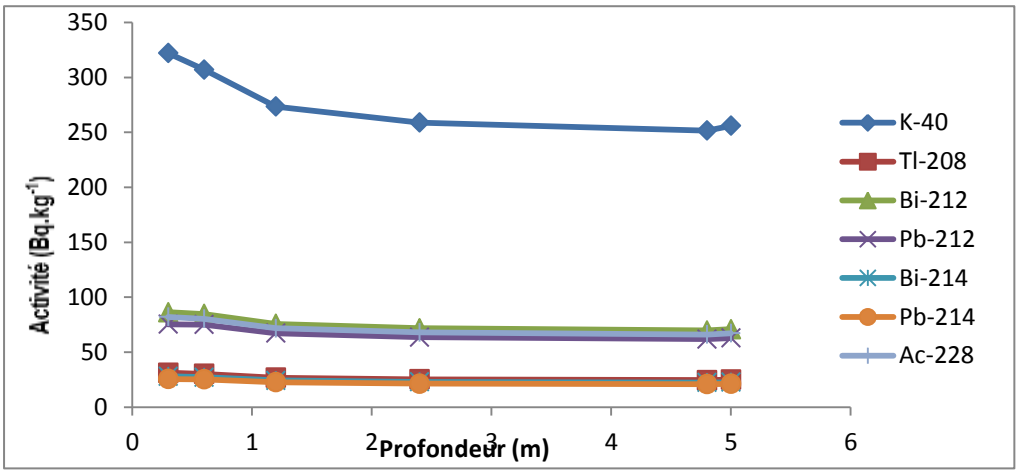


Figure 43: Courbe de l'activité spécifique, diamètre de 6 m avec deux couches (sol 80% et roche 20%)

6.1.1.2. Activité moyenne de trois principaux radionucléides naturels

Tableau 9: Activité moyenne, diamètre de 6 m avec une couche de sol

Profondeur (m)	**Activité moyenne ($Bq.kg^{-1}$)**		
	K-40	Th-232	U-238
0,3	398 ± 17	103 ± 5	33 ± 2
0,6	384 ± 16	101 ± 5	33 ± 1
1,2	383 ± 16	101 ± 5	33 ± 1
2,4	384 ± 16	101 ± 5	33 ± 1
4,8	383 ± 16	101 ± 5	33 ± 1
5	383 ± 16	101 ± 5	33 ± 1

Pour le potassium - 40, les activités moyennes varient de (383 ± 16) $Bq.kg^{-1}$ à (398 ± 17) $Bq.kg^{-1}$. Pour la famille du Th-232, les activités moyennes varient de (101 ± 5) $Bq.kg^{-1}$ à (103 ± 5) $Bq.kg^{-1}$. Celle de la famille d'uranium-238, les activités moyennes sont comprises entre (33 ± 1) $Bq.kg^{-1}$ et (33 ± 2) $Bq.kg^{-1}$.

Tableau 10: Activité moyenne, diamètre de 6 m avec deux couches (sol 60% et roche 40%)

Profondeur (m)	Activité moyenne (Bq.kg^{-1})		
	K-40	Th-232	U-238
0,3	336 ± 14	87 ± 5	28 ± 1
0,6	324 ± 14	85 ± 4	28 ± 1
1,2	322 ± 14	85 ± 4	28 ± 1
2,4	322 ± 14	85 ± 4	28 ± 1
4,8	322 ± 14	85 ± 4	28 ± 1
5	324 ± 14	86 ± 4	28 ± 1

Pour le K-40, les activités moyennes varient de (322 ± 14) Bq.kg^{-1} à (336 ± 14) Bq.kg^{-1}. Pour la famille du Th-232, les activités moyennes varient de (85 ± 4) Bq.kg^{-1} à (87 ± 5) Bq.kg^{-1}. Celle de la famille d'U-238, les activités moyennes restent constantes. Ces activités moyennes sont respectivement de (28 ± 1) Bq.kg^{-1}.

Tableau 11: Activité moyenne, diamètre de 6 m avec deux couches (sol 80% et roche 20%)

Profondeur (m)	Activité moyenne (Bq.kg^{-1})		
	K-40	Th-232	U-238
0,3	322 ± 14	83 ± 5	27 ± 1
0,6	307 ± 13	81 ± 4	26 ± 1
1,2	273 ± 12	72 ± 3	24 ± 1
2,4	259 ± 11	68 ± 3	22 ± 1
4,8	252 ± 11	66 ± 3	22 ± 1
5	256 ± 11	68 ± 3	22 ± 1

Pour le K-40, les activités moyennes varient de (252 ± 11) Bq.kg^{-1} et de (322 ± 14) Bq.kg^{-1}. Pour la famille du Th-232, l'activité moyenne varie de (66 ± 3) Bq.kg^{-1} à (83 ± 5) Bq.kg^{-1}. Celle de la famille d'U-238, l'activité moyenne varie de (22 ± 1) Bq.kg^{-1} à (27 ± 1) Bq.kg^{-1}.

Pour évaluer les niveaux de la radioactivité du milieu étudié, nous avons utilisés les valeurs d'exemption des matières radioactives et de référence mondiale pour les trois principaux radionucléides naturels [13, 14]. Ces valeurs sont présentées dans le tableau 12.

Tableau 12: Valeurs des références

Référence	Activités spécifiques (Bq.kg $^{-1}$)		
	K-40	Th-232	U-238
Niveau d'exemption	100000	10000	10000
Moyenne mondiale	400 (140 ; 850)	30 (11 ; 64)	35 (16 ;110)

6.1.2. Activité massique par méthode LABSOCS

Le tableau 13 présente le résultat d'activité des radionucléides artificiels dans le matériau de référence IAEA-375.

Tableau 13: Activité spécifique de l'étalon IAEA-375

Radionucléide	Activité spécifique (Bq.kg $^{-1}$)	
	dans le certificat	**Mesurée**
Cs-137	2977 ± 45	2661 ± 166
Cs-134	0,111 ± 0,002	< 53

6.1.3. Activité massique par méthode classique

Le tableau 14 montre le résultat d'activité moyenne de chaque radionucléide dans l'échantillon.

Tableau 14: Activité spécifique moyenne de chaque radionucléide

Radionucléide		Activité spécifique (Bq.kg $^{-1}$)
U-238	Pb-214	19 ± 1
	Bi-214	18 ± 9
Th-232	Pb-212	79 ± 2
	Bi-212	99 ± 5
	Ac-228	91 ± 1
	Tl-208	84 ± 2
K-40	K-40	149 ± 8

D'après le tableau 14, les activités des descendants de l'uranium (Pb-214 et Bi-214), de même pour celles des descendants du thorium (Pb-212, Bi-212, Ac-228 et Tl-208) sont presque égales dans l'échantillon. Ainsi, on a l'équilibre séculaire entre le Th-232 et ses

descendants, de même pour l'U-238 et ses descendants. Le tableau 15 présente les activités spécifiques de trois radionucléides naturelles dans l'échantillon.

Tableau 15: Activité spécifique des radionucléides

Radionucléides	**Activité spécifique (Bq.kg^{-1})**
U-238	19 ± 1
Th-232	88 ± 8
K-40	149 ± 8

Le tableau 16 montre le résumé des résultats obtenus par la méthode ISOCS/LABSOCS et la méthode classique.

Tableau 16: Récapitulatif des résultats HPGe fixe et ISOCS

Radionucléides	**Activité massique (Bq.kg^{-1})**	
	HPGe	ISOCS
U-238	19 ± 1	24 ± 1
Th-232	88 ± 8	72 ± 3
K-40	149 ± 8	273 ± 12

On constate que les activités de l'uranium -238 et du thorium-232 pendant la mesure en laboratoire sont relativement comparables à celles de la mesure in-situ. Par contre, le potassium-40 présente une légère différence par rapport à la valeur de mesure sur terrain.

6.2. Discussions

Les résultats obtenus montrent que les activités maximales de trois radionucléides naturels se trouvent à la profondeur de 0,3 m. Cela veut dire que le détecteur peut recevoir le maximum de rayonnement jusqu'au premier 30 cm du sol. En revanche, les activités diminuent progressivement lorsqu'on fait varier la profondeur du sol jusqu'à 0,6 m. Au-delà de cette profondeur, elles restent constantes. De même, les activités changent aussi lorsqu'on fait varier le diamètre de la surface à détecter.

En variant les deux paramètres (profondeur et diamètre), les activités trouvées varient de (252 ± 11) Bq.kg^{-1} à (398 ± 17) Bq.kg^{-1}, de (22 ± 1) Bq.kg^{-1} à (33 ± 1) Bq.kg^{-1} et de (66 ± 3) Bq.kg^{-1} à (103 ± 5) Bq.kg^{-1} respectivement pour le K-40, l'U-238 et le Th-232. Les activités maximales correspondent à la surface et les minimales à la profondeur de 30 cm.

Pour le K-40 et l'U-238, les activités à la surface sont relativement similaires aux valeurs moyennes mondiales (Tableau n°12). Par contre, le Th-232 est supérieur à la moyenne mondiale.

En ce qui concerne les résultats de la méthode classique, les activités trouvées sont de (149 ± 8) $Bq.kg^{-1}$, de (18 ± 1) $Bq.kg^{-1}$ et de (88 ± 8) $Bq.kg^{-1}$ respectivement pour les trois radionucléides.

De plus, les activités varient aussi lorsqu'on tient compte des proportions d'autres matières telles que le sable et les roches avec différentes densités selon les propriétés de ces matières. La méthode ISOCS montre des résultats relativement proches de ceux de la méthode classique pour les deux familles de l'uranium-238 et du thorium-232 lorsqu'on fixe le diamètre à 6m, la profondeur à 1,2 m, avec une proportion de 80% de sol et de 20% de roche. Tandis que pour le potassium-40, ces résultats sont différents. Les résultats obtenus sont aussi comparés avec les valeurs de références mondiales. Les activités du K-40 et de l'U-238 sont inférieures aux valeurs moyennes mondiales. Pareillement aux résultats précédents, l'activité du Th-232 est toujours supérieure à cette référence mondiale. Cela veut dire que le site contient une légère proportion en thorium. Néanmoins, les résultats trouvés sont largement inférieurs au niveau d'exemption en termes de matières radioactives.

L'activité du Cs-137 trouvée est de (2661 ± 166) $Bq.kg^{-1}$ qui présente une légère différence par rapport à la valeur donnée par le certificat. Cette différence peut être due aux paramètres introduits dans le modèle utilisé. Tandis que le Cs-134 est en-dessous de la limite de détection en raison de sa courte demi-vie comparée au temps entre les dates de référence et de mesure.

CONCLUSON

Ce travail nous a permis de déterminer les activités de trois principaux radionucléides naturels présents dans le site étudié, à l'aide d'une chaine de spectrométrie gamma portable et de conclure que la méthode ISOCS/LABSOCS est très simple à utiliser et facile à manipuler en comparaison avec à la méthode classique. L'équipement de mesure permet donc de faire l'analyse qualitative et quantitative des radionucléides par les méthodes LABSOCS et ISOCS. Les résultats obtenus peuvent être comparés à ceux de la méthode classique si le modèle et les paramètres utilisés sont appropriés.

Nous avons effectué une mesure sur terrain et un prélèvement d'échantillon du sol dans l'enceinte de l'INSTN-Madagascar. Le spectre du matériau de référence IAEA-375 certifié pour les radionucléides artificiels Cs-137 et Cs-134 a été utilisé pour la méthode LABSOCS.

Pour l'échantillon prélevé, les activités détectées proviennent des radionucléides naturels. Il en est de même pour la mesure sur terrain. En effet, dans cette mesure in-situ, aucun radionucléide artificiel n'a été détecté. Les méthodes ISOCS/LABSOCS permettent de déterminer différents niveaux d'activités selon le modèle choisi.

Les résultats obtenus par la méthode ISOCS sont relativement identiques à ceux obtenus par la méthode classique. Des légères différences ont été remarquées à cause de certains paramètres du modèle comme la densité et les propriétés de la matière.

La variation des activités peut être aussi due à la variation de texture, de densité et des éléments constitutifs du sol. Les hypothèses peuvent être valables lorsqu'on utilise les modèles des méthodes ISOCS/LABSOCS.

Les méthodes ISOCS/LABSOCS présentent donc de nombreux avantages. Certains d'entre eux sont le temps d'investigation courte, la mise au point de la chaîne de mesure ne nécessitant pas de source étalon, travail moins coûteux, etc. Pour ISOCS, on n'a pas besoin de suivre les procédures standards tels que l'échantillonnage, la préparation de l'échantillon et le conditionnement pour avoir des résultats [15]. Cette méthode a permis de faire l'étalonnage d'une chaîne de mesure pour une distance de diamètre de 0 à 500 m autour du détecteur, une énergie de 45 à 7000 keV, et toute direction de l'angle par rapport au détecteur - sol.

Comme toutes les techniques, les méthodes ISOCS/LABSOCS présentent aussi des inconvénients tels que le problème d'homogénéisation, la taille, les propriétés exactes de la surface étudiée, etc. Les paramètres introduits dans le modèle sont parfois différents de la

réalité de la zone étudiée. C'est-à-dire il y a non-conformité des configurations réelles sur terrain et au laboratoire. Cela entraine alors des résultats erronés.

Malgré tous ces inconvénients, les résultats montrent que la spectrométrie gamma in-situ est fiable et efficace pour l'étude de la contamination de l'environnement. Ainsi, les méthodes ISOCS et LABSOCS peuvent être appliquées dans toutes conditions d'études de l'environnement de notre pays.

REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

[1] Commission canadienne de sûreté nucléaire (CCSN), 2012. Introduction au rayonnement. Ministre de Travaux publics et Services gouvernementaux Canada (Canada). p. 2. ISBN 978-0-662—71632-7.

[2] Chaouki L., 2006. Mesures qualitatives et quantitatives des éléments radioactifs naturels présents dans des échantillons de l'environnement par spectrométrieγ. Mémoire de Magister. Université Mentouri-Constantine. p. 4.

[3] RALAIARISOA H. Cours de Radioprotection M1-2016, Université d'Antananarivo.

[4] Paradis H., 2016. Développement de la mesure par spectrométrie ɣ en coïncidence. Thèse de Doctorat. Université de Paris-Scalay. p.4.

[5] Rafik B., 2009. Détermination de la radioactivité gamma d'un sol contaminé par une explosion nucléaire. Mémoire de Magister. Université Ferhat Abbas-SETIF UFAS (ALGERIE), p .6.

[6] Baggenstos M., Zeller W., 2007. Radioactivité et radioprotection. Brochure (Berne), p.7-8.

[7] Dendene O., 2009. Etude de la radioactivité des eaux thermales de la Willaya de Sétif. Mémoire de Magister. Université Ferhat Abbas-SETIF UFAS (ALGERIE), p.10-18.

[8] Champion C., 2002. Institut de physique de Metz, LPMC-e2phy2002, p.29.

[9] RAVELOMANANTSOA S. D., Cours de Spectrométrie Gamma M2-2017, Université d'Antananarivo.

[10] WASSILA B., 2011. Concentration de l'uranium-Application aux fertilisants agricoles. Thèse de doctorat .Université Ferhat Abbas-SETIF UFAS (ALGERIE), p.39.

[11] Guembou C., 2013. Etude des échantillons environnementaux par spectrométrie Gamma: cas des sols des Campus I et II de l'Université de Douala. Université de Douala. p. 31.

[12] NASRI M., 2010, Etude et exploitation d'un muni spectromètre germanium portable. Mémoire d'ingéniorat, Université du 7 novembre à Carthage, p.60.

[13] AIEA, Vienne 1997. Normes fondamentales internationales de protection contre les rayonnements ionisants et de sûreté des sources de rayonnements, COLLECTION SECURITE N° 115.

[14] UNSCEAR2000 (United Nation Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation).

[15] LEMERCIER M., 2007. Développement d'une méthode analytique pour quantifier par spectrométrie gamma in situ les radionucléides présents dans les sols. Thèse de doctorat. Université de Paris XI. p.11.

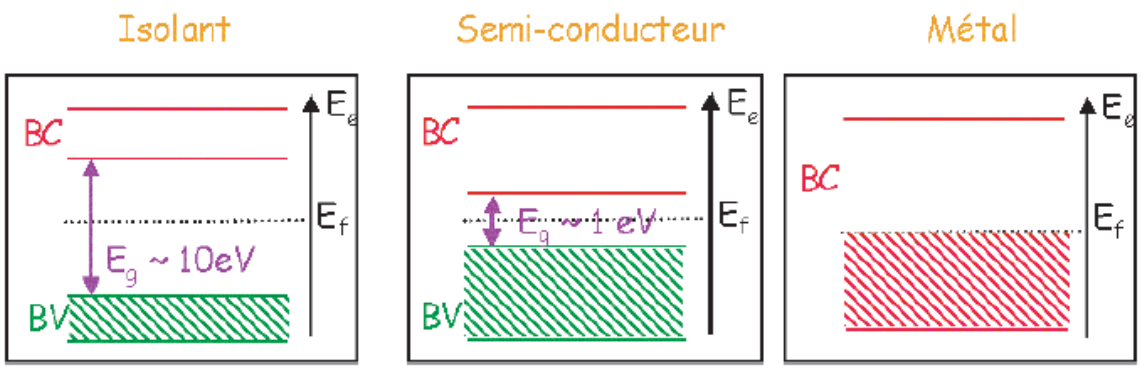
ANNEXES

ANNEXE 1 : Fonctionnement du détecteur

Le semi-conducteur est un matériau dont la conductivité électrique comprise entre celle de l'isolant et celle de conducteur. Dans un solide cristallin, il y a deux bandes permises : la bande de valence (BV) et la bande de conduction (BC). La bande de valence contient les électrons de valence (ou électrons couches externes de l'atome) et la bande de conduction est le siège d'électrons de conduction qui est responsable de la circulation du courant électrique. Pour les isolants, tous les électrons se trouvent dans la bande de valence.

Par contre, pour les conducteurs, les électrons se trouvent dans la bande de conduction. Entre la BV et la BC, il y a la bande interdite ou gap. C'est la différence d'énergie nécessaire pour migrer un électron de valence vers la bande de conduction.

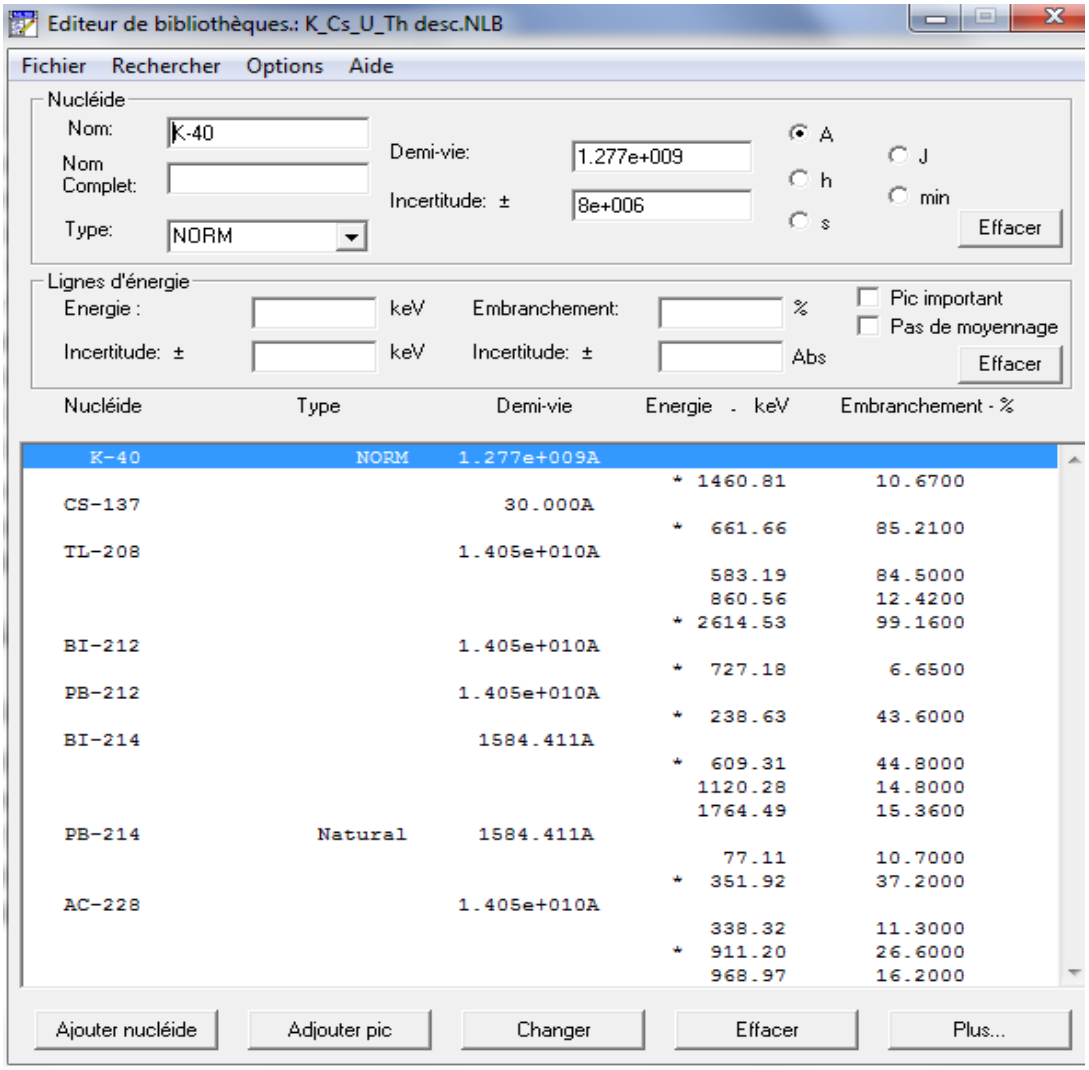
Pour le cas du HPGe, l'énergie de gap est 0,66eV et l'énergie pour créer des paires d'électrons est 2,96eV à température 77°K.



ANNEXE 2 : Création d'une bibliothèque

Pour créer une bibliothèque des radionucléides, les informations dans la fenêtre « Editeur de bibliothèque » des radionucléides doivent être remplies correctement. Il s'agit des radionucléides à déterminer, les énergies ainsi que leurs demi-vies et probabilités d'émissions correspondantes, etc. A l'aide de cette bibliothèque, le logiciel Génie 2000 permet de faire une analyse qualitative.

Dans ce travail, la bibliothèque créée est illustrée dans la figure suivante.

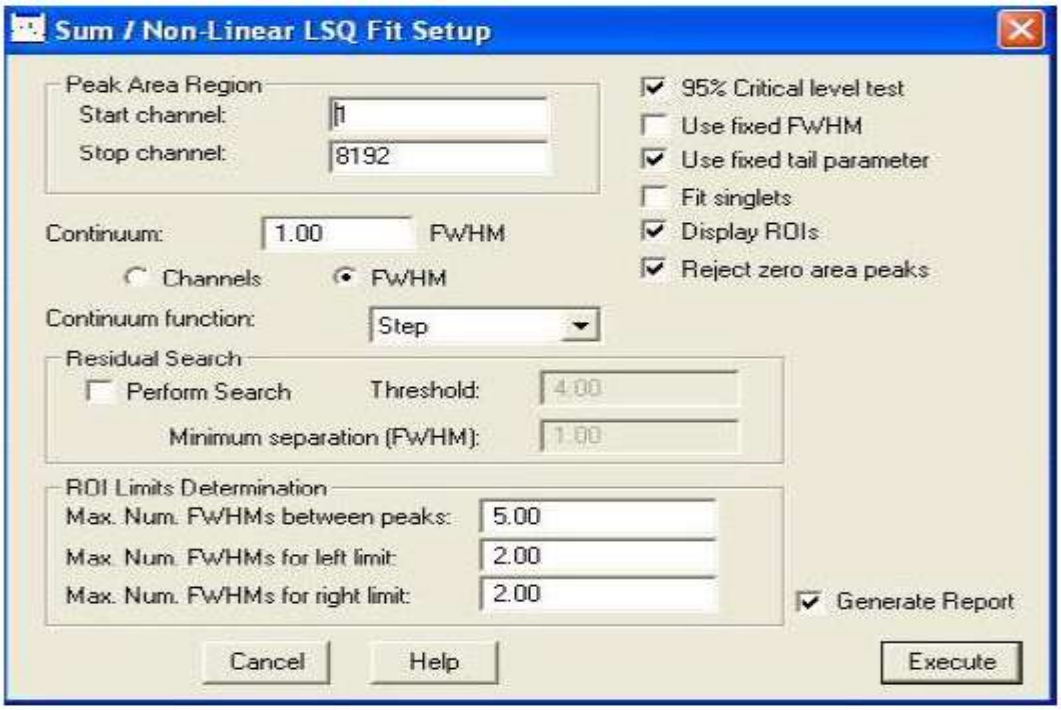


ANNEXE 3 : Etapes à suivre pour l'analyse en utilisant la méthode classique

Pour sortir les résultats, on doit suivre l'algorithme dans la barre de menu « Analyze ».

1- Identification des pics : il s'agit de définir le seuil de détection et calcul des surfaces de pics d'absorption totale.

Définir seuil de détection des pics



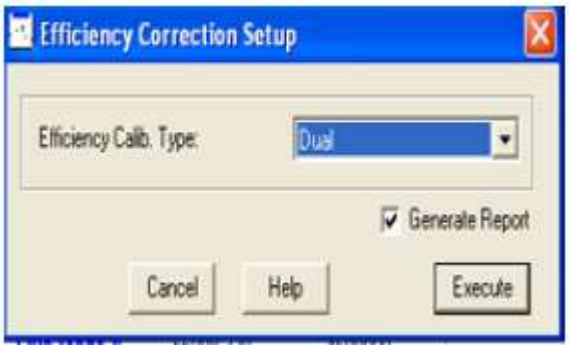
Calcul des surfaces de pics

2- Soustraction du bruit de fond de l'environnement

Le spectre du bruit de fond doit être introduit afin de soustraire la contribution de la radioactivité ambiante dans le spectre de l'échantillon à analyser.

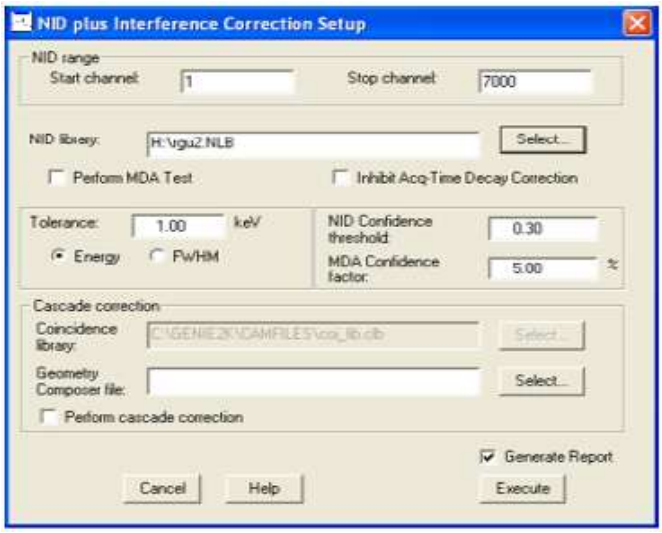
3- Correction de l'efficacité

L'efficacité peut être une fonction Dual, Empirique et Linéaire.



4- Chargement du fichier bibliothèque

La bibliothèque créée doit être chargée dans le logiciel afin d'identifier les radionucléides et de calculer leurs activités correspondantes.



5- Rapport d'analyse

Il permet de voir les résultats d'analyse après avoir sélectionné le type d'affichage des résultats, de choisir l'unité de l'activité (Bq ou Ci) et de définir l'intervalle de comptage statistique (1 σ ou 2 σ ou 3 σ).

ANNEXE 4 : Exemple du rapport d'analyse

Rapport sur l'identification avec correction 3/13/2018 11:36:03 AM Page 1

****
***** RAPPORT IDENTIFICATION DES NUCLEIDES *****
****

Nom échantillon : Sample title.
Bibliothèque : C:\GENIE2K\CAMFILES\K_Cs_U_Th desc.NLB

..... NUCLEIDES IDENTIFIES.....

Nom du nucléide	Indice de confiance	Energie (keV)	Intensité (%)	Activité (Bq /g)	Incert. (Bq /g)
K-40	0.919	1460.81*	10.67	3.98144E-001	1.68446E-002
TL-208	0.976	583.19*	84.50	3.70799E-002	2.28624E-003
		860.56*	12.42	3.66630E-002	2.54695E-003
		2614.53*	99.16	4.13296E-002	1.30640E-003
BI-212	0.966	727.18*	6.65	1.07524E-001	7.70375E-003
PB-212	0.996	238.63*	43.60	9.43971E-002	8.08377E-003
BI-214	0.962	609.31*	44.80	3.14009E-002	2.03511E-003
		1120.29*	14.80	3.51977E-002	2.02989E-003
		1764.49*	15.36	3.77808E-002	1.97092E-003
PB-214	0.993	77.11*	10.70	1.75605E-001	1.81984E-002
		351.92*	37.20	2.94934E-002	2.35282E-003
AC-228	0.971	338.32*	11.30	9.21086E-002	7.94753E-003
		911.21*	26.60	1.04164E-001	5.60702E-003
		968.97*	16.20	1.05041E-001	5.30155E-003

* = Pic présent dans le spectre
@ = Pic non utilisé pour le calcul de l'activité moyenne pondérée
Tolérance d'identification : 1.000 keV
Seuil Indice de confiance : 0.30
Les incertitudes sont données pour 1.000 SIGMA

Rapport sur l'identification avec correction 3/13/2018 11:36:03 AM Page 2

****
***** RAPPORT IDENTIFICATION AVEC CORRECTION D'INTERFERENCE *****
****

Nom du nucléide	Indice de confiance	Activité moyenne pondérée (Bq /g)	Incert. (Bq /g)
K-40	0.919	3.981445E-001	1.684464E-002
TL-208	0.976	3.968432E-002	1.036167E-003
BI-212	0.966	1.075239E-001	7.703746E-003
PB-212	0.996	9.439715E-002	8.083767E-003
BI-214	0.962	3.485821E-002	1.161245E-003
PB-214	0.993	3.189549E-002	2.333401E-003
AC-228	0.971	1.022452E-001	3.466480E-003

? = Attention - plusieurs nucléides possibles
X = nucléide rejeté lors des calculs d'interférences
@ = certain Pics non utilisés pour le calcul de l'activité moyenne
Les incertitudes sont données pour 1.000 SIGMA

Titre : Etalonnage d'un détecteur HPGe portable par la méthode ISOCS/LABSOCS

Résumé :

L'objectif de ce travail est de déterminer l'activité des radionucléides émetteurs gamma du sol dans l'enceinte du laboratoire de l'Institut National des Sciences et Techniques Nucléaires (INSTN-Madagascar), à l'aide d'une chaîne de spectrométrie gamma portable, muni d'un détecteur HPGe et du logiciel Génie 2000. Pour la confirmation des résultats, une analyse au laboratoire d'un échantillon provenant du milieu étudié a été effectuée. Un matériau de référence IAEA-375 a été utilisé pour l'application de la méthode LABSOCS. L'analyse en laboratoire a été faite au département Analyses et Techniques Nucléaires de l'Institut. L'étalonnage de l'équipement de mesure sur terrain a été effectué par la méthode ISOCS/LABSOCS et celle de l'équipement en laboratoire par le matériau de référence certifié RGU-1. Pour la méthode ISOCS, les activités de trois radionucléides naturels (U-238, Th-232 et K-40) sont respectivement de (24 ± 1) $Bq.kg^{-1}$, (72 ± 3) $Bq.kg^{-1}$ et (273 ± 12) $Bq.kg^{-1}$. Tandis que, l'activité du radionucléide artificiel Cs-137 est de (2661 ± 166) $Bq.kg^{-1}$ et celle du Cs-134 est inférieure à la limite de détection. En général, les résultats trouvés sont inclus dans les plages des moyennes mondiales et inférieures aux niveaux d'exemption.

Mots clés : radionucléide, méthode ISOCS/LABSOCS, spectrométrie gamma portable

Title: Calibration of a portable HPGe detector by the ISOCS/LABSOCS method

Abstract

The aim of this work is to determine the radionuclide activities of gamma-ray emitters from soil in the laboratory of the National Institute of Nuclear Sciences and Techniques (INSTN-Madagascar), using a portable gamma spectrometry system, with HPGe detector and software Genie 2000. For confirmation of results, sample from study area were analysed at the laboratory. For LABSOCS method, IAEA-Soil-375 reference material has been used. Sample was analysed at the Department of Nuclear Analyses and Techniques of the Institute. The In-situ equipment calibration was performed by ISOCS/LABSOCS method while the laboratory equipment calibration using RGU-1 certified reference material. By ISOCS method, the results show that the three main natural radionuclides (U-238, Th-232 and K-40) activities are respectively to (24 ± 1) $Bq.kg^{-1}$, (72 ± 3) $Bq.kg^{-1}$ and (273 ± 12) $Bq.kg^{-1}$. The artificial radionuclide Cs-137 activity is to (2661 ± 166) $Bq.kg^{-1}$ and for the Cs-134 is below the limit of detection. Inwhole study area, the obtained results are generally within the range of the global average values and below the exemption levels.

Key words: radionuclide, ISOCS/LABSOCS method, portable spectrometry gamma

Encadreurs :

M. RAVELOMANANTSOA Solofonirina Dieudonné

M. RASOLONIRINA Martin

Impétrante :

RASOATSARATANANY Garoson Albertine
E-mail:rgarosonalbertine@gmail.com
Tél: 0325039017
Lot VT29LAQ Ampahateza Ambohipo, ANTANANARIVO 101.