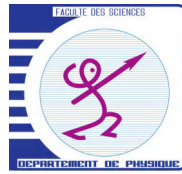




UNIVERSITE D'ANTANANARIVO

FACULTE DES SCIENCES



DEPARTEMENT DE PHYSIQUE

Laboratoire de Physique Nucléaire et de l'Environnement

MEMOIRE

pour l'obtention du

DIPLOME D'ETUDES APPROFONDIES

OPTION : Physique Nucléaire, Physique Théorique et Physique Appliquée

**Déconvolution de spectres d'énergie gamma issus d'un détecteur NaI(Tl)
par la méthode d'optimisation d'ordre zéro de Nelder-Mead**

Présenté par

RAVELONJATO Rivo Herivola Manjakamanana

Le 12 Novembre 2010

Devant la commission d'examen composée de:

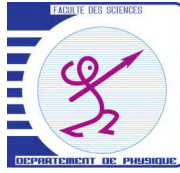
Président :	M. RAOELINA ANDRIAMBOLOLONA	Professeur titulaire de classe exceptionnelle à la Faculté des Sciences de l'Université d'Antananarivo
Examineur :	M. RABOANARY Roland	Professeur à la Faculté des Sciences de l'Université d'Antananarivo
Rapporteurs :	M. RABESIRANANA Naivo	Maître de conférences à la Faculté des Sciences de l'Université d'Antananarivo
	M. RAVELOMANANTSOA Solofonirina D	Professeur à la Faculté des Sciences de l'Université d'Antananarivo



Edité par Madagascar-INSTN



UNIVERSITE D'ANTANANARIVO
FACULTE DES SCIENCES



DEPARTEMENT DE PHYSIQUE
Laboratoire de Physique Nucléaire et de l'Environnement



MEMOIRE

pour l'obtention du

DIPLOME D'ETUDES APPROFONDIES

Option : Physique Nucléaire, Physique Théorique et Physique Appliquée

Déconvolution de spectres d'énergie gamma issus d'un détecteur NaI(Tl) par la méthode d'optimisation d'ordre zéro de Nelder-Mead

Présenté par

RAVELONJATO Rivo Herivola Manjakamanana

Devant la commission d'examen composée de :

Président :	M. RAOELINA ANDRIAMBOLOLONA	Professeur titulaire de classe exceptionnelle à la Faculté des Sciences de l'Université d'Antananarivo
Examineur :	M. RABOANARY Roland	Professeur à la Faculté des Sciences de l'Université d'Antananarivo
Rapporteurs :	M. RABESIRANANA Naivo	Maître de conférences à la Faculté des Sciences de l'Université d'Antananarivo
	M. RAVELOMANANTSOA Solofonirina D	Professeur à la Faculté des Sciences de l'Université d'Antananarivo



Edité par Madagascar-INSTN

“Hampianariko sy hasehoko anao izay lalan-kizoranao; ho mpanolo-tsaina anao aho, sady hitsinjo anao ny masoko”

Salamo 32⁸

Ho an'i Dada sy Mama:

“Izao asako izao dia atolotro ho anareo ary tsy hijanona hatreto akory ny fikarohana ataoko.”

REMERCIEMENTS

Tout d'abord, j'aimerais remercier Notre Seigneur Dieu qui m'a donné la force et le courage pour aller jusqu'au bout de ce que j'ai commencé.

Mes remerciements les plus chaleureux vont à Monsieur RAOELINA ANDRIAMBOLOLONA, Professeur Titulaire de classe exceptionnelle, Directeur Général de Madagascar-INSTN. Je lui suis reconnaissant de m'avoir accepté en tant que chercheur stagiaire à l'INSTN.

J'exprime toute ma profonde reconnaissance à Monsieur RABOANARY Roland, Professeur à la Faculté des Sciences de l'Université d'Antananarivo, responsable de l'option Physique Nucléaire, Physique Théorique et Physique Appliquée d'avoir accepté d'être l'examineur de ce mémoire.

Je présente aussi mes sincères remerciements à Monsieur RABESIRANANA Naivo, Maître de Conférences à la Faculté des Sciences de l'Université d'Antananarivo, Chef de département Analyses et Techniques Nucléaires de Madagascar INSTN, de m'avoir proposé ce sujet et de m'avoir encadré malgré ses occupations. Je lui suis très reconnaissant de m'avoir donné ses précieux conseils pour le contenu du travail.

Ma gratitude s'adresse aussi à Monsieur RAVELOMANANTSOA Solofonirina Dieudonné, Professeur à la Faculté des Sciences de l'Université d'Antananarivo. Je lui remercie d'être le co-encadreur de ce mémoire. Ses conseils et ses critiques ont amélioré le contenu de ce travail.

Je ne saurais oublier de remercier l'équipe du département Analyses et Techniques Nucléaires pour leur entière coopération durant le temps que j'ai passé à l'Institut et qui m'ont permis de mener à terme ce travail.

Je remercie également tous ceux qui ont participé au prélèvement d'échantillons dans la région de l'Anosy au mois de décembre de l'année 2009.

Mes remerciements s'adressent aussi à toute **ma famille, mes frères et sœurs** et à ma fiancée ***Norosoia Julie*** pour leur encouragement durant la préparation de ce travail.

Enfin, j'adresse mes remerciements à **mes parents**, pour leur soutien moral et financier.

TABLE DES MATIERES

LISTE DES FIGURES.....	viii
LISTE DES TABLEAUX.....	x
LISTE DES ANNEXES.....	xi
LISTE DES ABREVIATIONS	xii
INTRODUCTION	1
Chapitre 1. GENERALITES SUR LA RADIOACTIVITE ET LE RAYONNEMENT GAMMA.....	3
1.1. Radioactivité	3
1.1.1. Définition	3
1.1.2. Décroissance radioactive.....	4
1.1.3. Période radioactive	4
1.1.4. Activité et teneur en radionucléide	4
1.1.5. Filiation radioactive	5
1.1.6. Equilibre séculaire	8
1.2. Processus d'interaction du rayonnement gamma avec la matière.....	9
1.2.1. Mécanismes d'interactions.....	9
1.2.2. L'effet photoélectrique.....	9
1.2.3. La diffusion Compton	10
1.2.4. La création de paires	11
1.2.5. Atténuation des photons.....	12
Chapitre 2. SPECTRE D'ENERGIE GAMMA	14
2.1. Introduction.....	14
2.2. Formation d'un spectre gamma.....	14
2.3. Importance des trois effets d'interaction avec la matière	14
2.4. Composante d'un spectre gamma.....	15

2.5.	Pics voisins et pics interférents	15
Chapitre 3. DISPOSITIF D'ACQUISITION ET D'ANALYSE.....		17
3.1.	La chaîne de détection	17
3.1.1.	Le détecteur	18
3.1.2.	Les matériels électroniques associés.....	20
3.1.3.	Le logiciel d'acquisition et de traitement.....	21
3.2.	Caractérisation des performances d'un spectromètre.....	21
3.2.1.	Efficacité de détection.....	21
3.2.2.	Résolution en énergie.....	21
3.2.3.	Rapport signal sur bruit.....	21
3.3.	Etalonnage de la chaîne de mesure.....	22
3.3.1.	Pré étalonnage	22
3.3.2.	Etalonnages	22
3.4.	Calcul d'activité	24
3.5.	Incertitude de mesure.....	25
3.6.	Limite de détection et activité minimale détectable	25
3.7.	Effet du temps mort	26
Chapitre 4. ETUDES ANTERIEURES SUR LA DÉCONVOLUTION DES SPECTRES.....		27
4.1.	Déconvolution des spectres complexes appliquée en LSC.....	27
4.2.	Déconvolution des spectres gamma issu d'un détecteur HPGe.....	28
4.3.	Algorithme de déconvolution des logiciels GeniePC et Genie2000	30
4.3.1.	Ajustement selon le critère des moindres carrés	30
4.3.2.	Algorithme de Marquardt légèrement modifiée	32
4.4.	Le logiciel Gamma Vision.....	34
4.5.	Les recherches effectuées à l'INSTN	34
4.5.1.	Edition des fichiers de lissage de spectres d'échantillons épais radioactifs alpha.....	34

4.5.2.	Logiciel modifié d'AXIL pour le traitement des données de la Fluorescence-X	34
4.5.3.	Méthode de technique d'enlèvement	35
4.5.4.	Optimisation du logiciel de déconvolution	40
4.5.5.	Elaboration d'un algorithme de déconvolution de base d'une courbe de Thermoluminescence.....	40
4.5.6.	Méthodes numériques de traitement des spectres : application à la courbe de thermoluminescence.....	45
Chapitre 5. DEVELOPPEMENT DE LA METHODE DE DÉCONVOLUTION		46
5.1.	Introduction.....	46
5.2.	Aspect mathématique de la forme du pic.....	46
5.2.1.	Pic en forme gaussienne.....	46
5.2.2.	Pic en forme gaussienne modifiée	47
5.2.3.	Aire nette du pic	49
5.3.	Ajustement par la méthode des moindres carrés.....	49
5.4.	Ordre d'une méthode de résolution	50
5.5.	Recherche de l'optimum par la méthode de Nelder-Mead.....	51
5.5.1.	La méthode de Nelder-Mead.....	51
5.5.2.	Minimisation par la méthode de Nelder-Mead.....	51
5.5.3.	Algorithme de déconvolution de spectres.....	56
5.6.	La qualité du lissage	57
5.6.1.	Le résidu.....	57
5.6.2.	F.O.M (Figure of Merit).....	58
5.6.3.	Structure du programme de déconvolution	58
Chapitre 6. TEST DE QUALITE PAR SIMULATION EN SPECTRE SYNTHETIQUE.....		60
6.1.	Spectre synthétique.....	60
6.2.	Logiciel de programmation utilisé : MATLAB 7.6	60
6.2.1.	Généralités sur Matlab	60
6.2.2.	Utilisation de Matlab.....	60

6.3.	Justification de la forme adéquate des pics.....	61
6.3.1.	Caractéristique des sources ponctuelles.....	61
6.3.2.	Exportation et Importation des données.....	61
6.3.3.	Description des programmes de déconvolution.....	62
6.3.4.	Mesure avec le cobalt-60	62
6.3.5.	Conclusion.....	63
6.4.	Simulation à la déconvolution des multiplets	63
6.4.1.	Construction des spectres synthétiques.....	63
6.4.2.	Nombre de paramètre de forme à calculer	63
6.4.3.	Procédure de test par spectre synthétique	64
6.4.4.	Niveau de comptage à 10^1 coups.....	65
6.4.5.	Niveau de comptage à 10^2 coups.....	66
6.4.6.	Niveau de comptage à 10^3 coups.....	67
6.4.7.	Niveau de comptage à 10^4 coups.....	67
6.4.8.	Résultats du lissage de deux pics en considérant les 3 paramètres de test...68	
6.4.9.	Simulation à la déconvolution de 3 et 4 pics.....	69
6.5.	Conclusion	70
Chapitre 7. MESURE ET ANALYSE DES SPECTRES GAMMA		71
7.1.	Matériels utilisés.....	71
7.1.1.	La chaîne de comptage.....	71
7.1.2.	Les matériaux de références	72
7.2.	Mise au point de la chaîne de mesure.....	73
7.2.1.	Etalonnage en énergie	73
7.2.2.	Etalonnage en efficacité	74
7.3.	Mise au point du programme de déconvolution.....	75
7.3.1.	Description du programme d'étalonnage de la forme.....	75
7.3.2.	Etalonnage en largeur σ	75
7.3.3.	Etalonnage en FWHM	76
7.3.4.	Etalonnage en paramètre de queue ou traîne.....	76
7.4.	Mesures avec des échantillons	77
7.4.1.	Echantillonnage	77

7.4.2.	Les données spectrales	78
7.4.3.	Les radionucléides cibles	79
7.4.4.	La région des multiplets à exploiter.....	79
Chapitre 8.	RESULTATS DE MESURES ET INTERPRETATION	80
8.1.	Application du programme de déconvolution.....	80
8.1.1.	Description des programmes de déconvolution	80
8.1.2.	Résultats partiels d'application de DSPEC1.1 et DSPEC2.1	80
8.2.	Application : activité des échantillons	83
8.3.	Interprétation des résultats	86
8.3.1.	Radioactivité des échantillons	86
8.3.2.	Comparaison avec le HPGe.....	87
8.3.3.	Qualité de la déconvolution.....	87
CONCLUSION.....		88
BIBLIOGRAPHIE		90
ANNEXES		95

LISTE DES FIGURES

Figure 1-1: Représentation graphique de la loi de désintégration d'un noyau radioactif [1]	4
Figure 1-2 : Prédominance du type d'interaction	13
Figure 3-1: Schéma synoptique d'une chaîne de comptage au détecteur NaI(Tl), basé sur le digiBASE.....	17
Figure 3-2 : Bande d'énergie du NaI(Tl)	18
Figure 3-3 : Schéma d'un photomultiplicateur.....	19
Figure 4-1: Organigramme représentant l'algorithme de déconvolution spectrale.	29
Figure 4-2 : Fenêtres d'énergies utilisées pour la détermination de la concentration du potassium, de l'uranium et du thorium, d'après la description de RYBACH.	36
Figure 4-3: Organigramme de l'algorithme de déconvolution d'une courbe TL [16].....	44
Figure 5-1: Pic en forme gaussienne.....	46
Figure 5-2: Pic avec effet de queue ou traîne	47
Figure 5-3: Pic isolé.....	49
Figure 5-4: Opérations que le simplexe subit dans la méthode de Nelder-Mead.....	55
Figure 5-5: Algorithme de déconvolution des spectres d'énergies gamma	56
Figure 5-6: Structure du programme de déconvolution.....	58
Figure 6-1 : Pic du ^{60}Co à l'énergie 1173,2 keV ; FOM=4,48%.....	62
Figure 6-2: Pic du ^{60}Co à l'énergie 1173,2 keV ; FOM=1,57%.....	62
Figure 6-3: Pic du ^{60}Co à l'énergie 1332,5 keV; FOM=2,12%.....	62
Figure 6-4: Pic du ^{60}Co à l'énergie 1332,5 keV; FOM=1,30%.....	62
Figure 6-5: Lissage pour 10^1 coups, $R=1$, $r=1$	65
Figure 6-6: Lissage pour $R=2^0$ et $r=2^0$	66
Figure 6-7: Lissage pour $R=2^1$ et $r=2^1$, avec un FOM=6%.....	66
Figure 6-8: Lissage pour $R=2^0$, $r=2^0$ avec un FOM=5%.....	67
Figure 6-9: Lissage pour $R=2^1$ et $r=2^1$ avec un FOM=3%.....	67
Figure 6-10: Lissage de 3 pics avec un FOM= 7,37 %.....	69
Figure 6-11: Lissage de 4 pics avec un FOM=8%	69
Figure 7-1: DigiBASE [24]	71
Figure 7-2: Courbe d'étalonnage en énergie du détecteur NaI(Tl)	73
Figure 7-3: Courbe d'étalonnage en efficacité du détecteur NaI(Tl)	74
Figure 7-4: Courbe d'étalonnage en largeur σ	75

Figure 7-5: Courbe d'étalonnage en FWHM	76
Figure 7-6: Courbe d'étalonnage en paramètre de queue T ou traîne	76
Figure 7-7: Spectre d'énergie de l'échantillon S2091209.....	78
Figure 7-8: Spectre du bruit de fond.....	78
Figure 8-1: Lissage du pic du thallium-208 dans la région 4.....	80
Figure 8-2: Déconvolution de la région 1 de l'échantillon SR081209	81
Figure 8-3: Déconvolution de la région 3 de l'échantillon SR081209	82
Figure 8-4: Déconvolution de la région 2 de l'échantillon S2091209.....	83

LISTE DES TABLEAUX

Tableau 1-1: Les familles radioactives	8
Tableau 4-1: Fenêtres d'énergie typique – spectrométrie gamma	37
Tableau 5-1: Signification des symboles de l'organigramme	57
Tableau 5-2: Programmes de traitement des spectres.....	59
Tableau 6-1: Caractéristiques des sources ponctuelles cobalt-60 et césium-137	61
Tableau 6-2 : Procédure de test par spectre synthétique	64
Tableau 6-3: Résultats de lissage de 2 pics en fonction des 3 paramètres de test	68
Tableau 7-1: Caractéristiques des matériaux des références RGU-1, RGTh-1	72
Tableau 7-2: Valeur de l'efficacité mesurée	74
Tableau 7-3: Renseignement sur les échantillons.....	77
Tableau 8-1: Résultats partiels du lissage du pic du thallium-208 de l'échantillon S2081209	80
Tableau 8-2: Résultat partiel de la déconvolution de la région 1	81
Tableau 8-3: Résultats de déconvolution de la région 3	82
Tableau 8-4: Résultats partiels de la déconvolution de la région 2	82
Tableau 8-5: 1 ^{ère} série d'échantillons.....	84
Tableau 8-6: 2 ^{ème} série d'échantillons.....	84
Tableau 8-7: 3 ^{ème} série d'échantillons.....	84
Tableau 8-8: 4 ^{ème} série d'échantillons.....	84

LISTE DES ANNEXES

ANNEXE 1: Série de l'uranium et du thorium.....	95
ANNEXE 2 : Lissage du pic du ¹³⁷ Cs.....	96
ANNEXE 3 : Générateur de spectre synthétique : GSPEC.1.....	97
ANNEXE 4 : Programmes de déconvolution DSPEC1.1 et DESPEC2.1	100
ANNEXE 5 : Programme d'étalonnage en paramètre de forme ESPEC.1	102
ANNEXE 6 : Extrait de UNSCEAR2000	104
ANNEXE 7 : Teneur en radionucléide des échantillons.....	105
ANNEXE 8 : Algorithme de la méthode de trapèze.....	106
ANNEXE 9: Organigramme de dépouillement d'un spectre	108

LISTE DES ABREVIATIONS

ADC : Analogue to Digital Converter
AIEA : Agence Internationale de l'Energie Atomique
AMD : Activité Minimale Détectable
ASCII : American Standard Code for Information Interchange
ATN : Analyse et Technique Nucléaire
BC : Bande de conduction
BV : Bande de valence
CAN : Convertisseur Analogique Numérique
DSPEC1.1 : Programme de lissage d'un pic simple.
DSPEC2.1 : Programme de déconvolution d'un multiplet.
ESPEC.1 : Programme d'étalonnage en paramètre de forme.
FC: Fond Continu
FOM: Figure Of Merit
FWHM: Full Width at Half Maximum
GSPEC.1 : Programme générateur de spectre synthétique.
HT: Haute Tension
INSTN : Institut National des Sciences et Techniques Nucléaires
IPF : Interactive Peak Fit
LD : Limite de Détection
LSC: Liquid Scintillation Counting
MATLAB: Matrix Laboratory
MCA: Multi Channel Analyzer
NRM: Newton-Raphson Method
PC: Personal Computer
PHA: Pulse Height Analysis
PMT : Photo Multiplier Tube
ppm : Partie Par Millions
RAM: Random Access Memory
ROI: Region Of Interest
S/B: Signal sur Bruit
SGM: Steepest Gradient Method
S/N: Signal to Noise

TL: Thermoluminescence

TLD: Thermoluminescence Dosimeter

UNSCEAR: United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation

USB: Universal Serial Bus

INTRODUCTION

Les rayonnements ionisants ne sont pas perceptibles par nos cinq sens. C'est pour cela que des détecteurs sont conçus pour faire des comptages permettant des mesures d'activité, de la spectrométrie permettant l'identification des radionucléides. La technique d'analyse par spectrométrie gamma permet d'évaluer qualitativement et quantitativement les différentes activités des échantillons à analyser.

Le département ATN de l'INSTN dispose d'une chaîne de spectrométrie gamma munie d'un détecteur NaI(Tl) et d'un logiciel d'acquisition Scintivision développé par ORTEC. Même si la qualité de l'instrumentation nucléaire est bonne, la résolution très basse du détecteur engendre une difficulté sur la séparation des pics interférents. On ne doit pas minimiser ce problème si on veut aboutir à des résultats précis. Le traitement des données spectrales doit être effectué suivant des procédures strictes afin d'éviter l'imprécision ou d'éviter de fausser l'interprétation.

Le but de ce travail est de mettre au point une méthode de déconvolution fiable des spectres d'énergie gamma issus des détecteurs NaI(Tl). Notre étude est basée sur le traitement des spectres d'énergies en utilisant les trois programmes principaux : GSPEC.1, DSPECX.1, ESPEC.1 contenant chacun des sous-programmes. Ces programmes ou scripts ont été édités avec le logiciel Matlab 7.6.

Des applications à la mesure de la radioactivité d'échantillons de roche et de sol prélevés lors d'une étude de l'environnement radioactif dans la région de l'Anosy sont réalisées. Les résultats sont comparés avec ceux obtenus au détecteur HPGe à haute résolution.

Le présent travail intitulé : « **Déconvolution de spectres d'énergie gamma issus d'un détecteur NaI(Tl) par la méthode d'optimisation d'ordre zéro de Nelder-Mead** », est divisé en trois grandes parties.

Une présentation générale du domaine d'étude est donnée dans la première partie, à savoir : la généralité sur la radioactivité et le processus d'interaction des rayonnements gamma avec la matière, les informations pertinentes sur le spectre d'énergie gamma, le dispositif d'acquisitions et d'analyses ainsi que les travaux antérieurs sur la déconvolution en spectrométrie.

La deuxième partie expose la méthodologie que nous avons développée, en commençant par le développement de la méthode de déconvolution, suivi du test de qualité par simulation à l'aide des spectres synthétiques.

La troisième partie renferme la partie expérimentale, c'est à dire l'analyse de spectres gamma, suivie de l'interprétation des résultats de mesures.

La conclusion générale sur les résultats obtenus, sur les techniques utilisées, ainsi que sur les perspectives de recherche à venir terminera le présent travail.

Chapitre 1. GENERALITES SUR LA RADIOACTIVITE ET LE RAYONNEMENT GAMMA

1.1. Radioactivité

1.1.1. Définition

La radioactivité est la transformation d'un atome en un autre atome avec émission de rayonnement. Les noyaux qui sont sujets aux désintégrations radioactives sont dits noyaux radioactifs et les autres noyaux sont dits noyaux stables. Cette transformation est accompagnée d'émission soit de particules (α , β), soit des rayonnements électromagnétiques : photon gamma, rayon X ou se fait par capture électronique.

Il y a deux types de radioactivité [1]:

- La radioactivité naturelle : les noyaux qui en sont la source existent dans la nature. Elle a été découverte en 1896 par le physicien français Henri Becquerel qui a remarqué que les sels d'uranium émettent des rayonnements capables de traverser des couches de matière opaque, capables d'ioniser l'air, capables d'impressionner une plaque photographique, de provoquer la luminescence de certaines matières.
- La radioactivité artificielle : il s'agit d'isotopes synthétisés par l'homme en laboratoire, ou dans les centrales nucléaires ou lors des essais nucléaires.

1.1.2. Décroissance radioactive

La transformation radioactive s'accompagne de la désintégration d'un noyau initial et la production de noyau fils.

$$dN = -\lambda N dt \quad (1-1)$$

En intégrant (1-1) on a :

$$N = N_0 e^{-\lambda t} \quad (1-2)$$

La figure 1-1 représente la loi de désintégration d'un noyau radioactif.

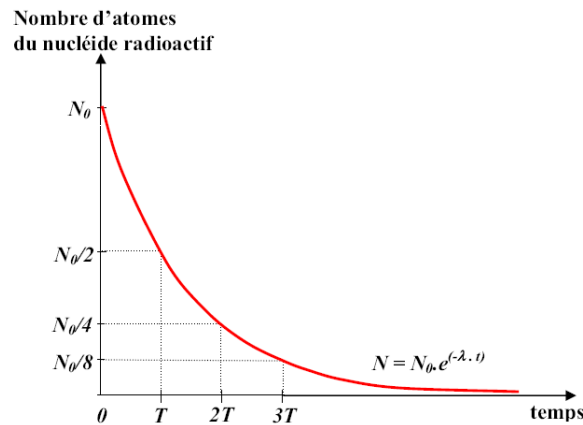


Figure 1-1: Représentation graphique de la loi de désintégration d'un noyau radioactif [1]

1.1.3. Période radioactive

La période radioactive est le temps au bout duquel le nombre d'atome parent est réduit de moitié.

$$T = \frac{\ln 2}{\lambda}$$

1.1.4. Activité et teneur en radionucléide

L'activité est le nombre de désintégrations d'une source par unité de temps.

$$A = \lambda N = -\frac{dN}{dt}$$

Avec :

A : Activité radioactive de la source

N : Nombre d'atome radioactif

L'activité est exprimée en Becquerel (Bq) ou en désintégration par seconde dans le Système International (SI) . L'ancienne unité était le Curie, $1\text{Ci}=3,7.10^{10}$ Bq.

La teneur d'un radionucléide est donnée par la relation :

$$\tau = \frac{M}{\lambda N_A M_e} A$$

Avec :

τ : teneur exprimée en ppm ($\mu\text{g.g}^{-1}$)

M : la masse molaire du radionucléide

λ : la constante radioactive

N_A : le nombre d'Avogadro qui vaut $6,023 \cdot 10^{23} \text{ mole}^{-1}$

M_e : la masse de l'échantillon.

1.1.5. Filiation radioactive

On appelle filiation radioactive, la série de désintégrations en cascade que subissent certains noyaux [2]. Elle est constituée d'un ensemble de noyaux, tous issus d'un noyau initial radioactif, par désintégrations successives et conduit à un noyau stable.

L'activité A d'une quantité N de noyaux radioactifs est

$$A = \lambda N \tag{1-3}$$

N : nombre de noyaux de l'élément

Soient respectivement N_1 et N_2 les nombres de noyaux pères et les noyaux fils.

La variation du nombre de noyaux N_2 par unité de temps est donc:

$$\frac{dN_2}{dt} = \lambda_1 N_1 - \lambda_2 N_2 \tag{1-4}$$

L'intégration de (1-4) se fait en deux étapes

- Première étape : recherche d'une équation particulière

$$\frac{dN_2}{dt} + \lambda_2 N_2 = 0 \tag{1-5}$$

$$N_2 = k e^{-\lambda_2 t} \tag{1-6}$$

- Deuxième étape : recherche d'une équation générale et détermination de k

$$\frac{dN_2}{dt} = k' e^{-\lambda_2 t} - \lambda_2 k e^{-\lambda_2 t} \tag{1-7}$$

En remplaçant $\frac{dN_2}{dt}$ dans l'équation (1-4) on obtient

$$k' = \lambda_1 N_1 e^{-\lambda_2 t} \quad (1-8)$$

En remplaçant N_1 par son expression

$$N_1 = N_{10} e^{-\lambda_1 t} \quad (1-9)$$

$$\text{On a } k = \lambda_1 N_{10} \int_0^t e^{-(\lambda_1 - \lambda_2)t} dt \quad (1-10)$$

$$\text{Finalement } k = \frac{\lambda_1 N_{10}}{\lambda_2 - \lambda_1} [e^{-(\lambda_1 - \lambda_2)t} - 1] \quad (1-11)$$

Et en remplaçant k dans l'équation (1-10), l'expression de N_2 devient

$$N_2 = \frac{\lambda_1 N_{10}}{\lambda_2 - \lambda_1} [e^{-\lambda_1 t} - e^{-\lambda_2 t}] \quad (1-12)$$

D'où

$$A_2 = \frac{\lambda_2 A_{10}}{\lambda_2 - \lambda_1} [e^{-\lambda_1 t} - e^{-\lambda_2 t}] \quad (1-13)$$

A partir de l'équation (1.5) trois cas peuvent se passer.

- Premier cas : si $\lambda_1 \ll \lambda_2$ donc $T_1 \gg T_2$

$$\lambda_2 - \lambda_1 \approx \lambda_2 \quad \text{et} \quad e^{-\lambda_1 t} = e^0 = 1$$

L'équation (1.5) devient

$$A_2 = A_{10} [1 - e^{-\lambda_2 t}] \quad (1-14)$$

- Deuxième cas : si $\lambda_1 < \lambda_2$ et $T_1 > T_2$

On a l'équilibre de régime, (1.5) ne change pas

Mais on peut tirer de cette équation le temps t_m où A_2 est maximum c'est-à-dire sa dérivée par rapport au temps est nulle :

$$\frac{dA_2}{dt} = 0 \quad (1-15)$$

$$\frac{d}{dt} \left[\frac{\lambda_2 A_{10}}{\lambda_2 - \lambda_1} [e^{-\lambda_1 t} - e^{-\lambda_2 t}] \right] = 0 \quad (1-16)$$

$$\text{D'où } t_m = \frac{1}{\lambda_2 - \lambda_1} \ln \frac{\lambda_2}{\lambda_1} \quad (1-17)$$

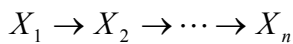
-Troisième cas Si $\lambda_2 \ll \lambda_1$; (soit $T_2 \gg T_1$)

donc $\lambda_2 \rightarrow 0$ et $e^{-\lambda_2 t} \rightarrow 1$

(1.5) dévient :

$$A_2 = \frac{\lambda_2 A_{10}}{\lambda_1} [1 - e^{-\lambda_1 t}] \quad (1-18)$$

La désintégration dans une filiation radioactive où un radionucléide X_1 se transforme en radionucléide X_2 , X_2 en X_3 et ainsi de suite jusqu'à un élément stable X_n .



Les constantes radioactives sont respectivement :

$$\lambda_1, \lambda_2, \lambda_3, \dots, \lambda_n$$

Chacune des désintégrations du noyau père au noyau fils est liée par le système d'équation de Bateman suivant :

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{dN_1(t)}{dt} = -\lambda_1 N_1 \\ \frac{dN_2(t)}{dt} = \lambda_1 N_1 - \lambda_2 N_2 \\ \dots \\ \frac{dN_n(t)}{dt} = \lambda_m N_m - \lambda_n N_n \end{array} \right. \quad (1-19)$$

En intégrant on obtient :

$$N_n(t) = N_1(0)(C_1 e^{-\lambda_1 t} + C_2 e^{-\lambda_2 t} + \dots + C_n e^{-\lambda_n t}) \quad (1-20)$$

où $N_1(0)$: nombre de noyaux initiaux.

Les indices 1, 2,3,... m, n représentent le noyau père et ses descendants.

$C_1, C_2, \dots, C_m, C_n$ sont des constantes telles que :

$$\left\{ \begin{array}{l} C_1 = \frac{\lambda_1}{\lambda_n - \lambda_1} \cdot \frac{\lambda_2}{\lambda_2 - \lambda_1} \cdot \frac{\lambda_3}{\lambda_3 - \lambda_1} \dots \frac{\lambda_m}{\lambda_m - \lambda_1} \\ C_2 = \frac{\lambda_1}{\lambda_1 - \lambda_2} \cdot \frac{\lambda_2}{\lambda_n - \lambda_2} \cdot \frac{\lambda_3}{\lambda_3 - \lambda_2} \dots \frac{\lambda_m}{\lambda_m - \lambda_1} \\ \vdots \\ C_m = \frac{\lambda_1}{\lambda_1 - \lambda_m} \cdot \frac{\lambda_2}{\lambda_2 - \lambda_m} \cdot \frac{\lambda_3}{\lambda_3 - \lambda_m} \dots \frac{\lambda_n}{\lambda_n - \lambda_m} \\ C_n = \frac{\lambda_1}{\lambda_1 - \lambda_n} \cdot \frac{\lambda_2}{\lambda_2 - \lambda_n} \cdot \frac{\lambda_3}{\lambda_3 - \lambda_n} \dots \frac{\lambda_m}{\lambda_m - \lambda_n} \end{array} \right.$$

Le tableau 1-1 montre les quatre grandes familles radioactives.

Tableau 1-1: Les familles radioactives

A	Famille	Origine	Radionucléide parent	Elément final
4n	Thorium	Naturelle	$^{232}_{90}Th$	$^{208}_{82}Pb$
4n+1	Neptunium	Artificielle	$^{237}_{93}Np$	$^{209}_{83}Bi$
4n+2	Uranium	Naturelle	$^{238}_{92}U$	$^{206}_{82}Pb$
4n+3	Actinium	Naturelle	$^{235}_{92}U$	$^{207}_{82}Pb$

1.1.6. Equilibre séculaire

L'équilibre séculaire correspond à l'équilibre atteint lorsque les activités des radionucléides composant la famille radioactive deviennent identiques. Cet équilibre a pour condition :

$$A_1 = A_2 = \dots = A_n$$

$$\lambda_1 N_1 = \lambda_2 N_2 = \dots = \lambda_n N_n$$

L'équilibre est rompu si l'un des éléments n'est plus dans la chaîne de filiation.

Exemple : l'échappement du gaz radon dans le porte échantillon entraîne un déséquilibre.

1.2. Processus d'interaction du rayonnement gamma avec la matière

1.2.1. Mécanismes d'interactions

Les photons gamma sont des radiations électromagnétiques provenant des transitions nucléaires ou des annihilations [3].

$$e^{-} + e^{+} = \gamma_1 + \gamma_2$$

En pénétrant dans la matière, les photons gamma peuvent interagir avec les atomes de différentes manières.

Ces interactions sont dues :

- aux électrons atomiques,
- aux noyaux,
- aux champs électriques du noyau ou des négatons,

L'absorption d'un photon gamma est due essentiellement à 3 effets : effet photoélectrique, effet Compton et effet de matérialisation ou création de paires.

L'effet photoélectrique et l'effet de matérialisation font disparaître complètement le photon gamma. Tandis que pour l'effet Compton, il y a une cession de l'énergie due à la diffusion inélastique du photon gamma.

1.2.2. L'effet photoélectrique

L'effet photoélectrique consiste en l'absorption complète d'un photon par un atome, l'énergie du photon étant transférée à un négaton interne du cortège atomique qui se trouve éjecté.

On qualifie alors cet électron de photoélectron. Celui-ci emporte une énergie cinétique :

$$E = h\nu - E_l \quad (1-21)$$

Où $h\nu$ est l'énergie du photon incident et E_l l'énergie de liaison du négaton dans l'atome.

Pour que l'effet photoélectrique se produise, il faut que le photon cède au négaton une énergie supérieure à son énergie de liaison pour les couches les plus internes de l'atome. Celle-ci varie de quelques keV pour les matériaux légers à quelques dizaines de keV pour les matériaux lourds.

La section efficace de l'effet photoélectrique varie grossièrement comme l'équation (1-22).

$$\sigma_{photo} = C \frac{Z^{4,5}}{(h\nu)^3} \cdot \quad (1-22)$$

Cet effet est donc prédominant à basse énergie et est favorisé dans les matériaux lourds [4]. On considère essentiellement les couches électroniques K et L, car 80% de l'effet photoélectrique se produit avec des négatons de la couche K pour des photons suffisamment énergétiques pour apporter l'énergie de liaison correspondante.

L'effet photoélectrique est toujours suivi d'un réarrangement du cortège électronique, c'est-à-dire qu'un négaton d'une couche supérieure vient combler l'orbite vacante du photoélectron. Ceci se traduit soit par l'émission d'un ou de plusieurs photon dans le domaine des rayons X, inférieur à 100 keV, soit par la capture de ce photon par l'atome et l'éjection d'un négaton périphérique. C'est l'émission Auger.

1.2.3. La diffusion Compton

Il s'agit de la diffusion inélastique d'un photon sur un négaton externe du cortège atomique que l'on peut considérer comme libre, l'énergie de liaison du négaton de la couche de valence est négligeable. Il s'ensuit un photon diffusé avec un changement de direction et d'énergie ainsi que le transfert d'une partie de l'énergie du photon incident au négaton.

L'énergie E' du photon diffusé se déduit des lois de conservation de l'impulsion et de l'énergie :

$$E' = \frac{h\nu}{\left[1 + \frac{h\nu}{mc^2}(1 - \cos\theta)\right]} \quad (1-23)$$

L'énergie transférée au négaton est:

$$E_{e^-} = \frac{h\nu}{1 + \frac{mc^2}{h\nu(1 - \cos\theta)}} \quad (1-24)$$

Où mc^2 est l'énergie au repos du négaton, θ l'angle de diffusion du photon gamma, $h\nu$ l'énergie du photon incident.

Pour un faisceau d'énergie $E=h\nu$, la probabilité que ce photon se diffuse suivant un certain angle θ donné est exprimée par la section efficace Compton σ_c .

$$\sigma_c = C.Z.E^{-1} \quad (1-25)$$

1.2.4. La création de paires

Ce phénomène consiste en la disparition d'un photon et la création d'un positon et d'un négaton. On parle aussi de matérialisation d'un photon en un négaton et un positon. C'est une réaction à seuil qui n'est possible que pour des énergies des photons incident supérieur à $2mc^2=1,022$ MeV. L'excédent étant emporté par le négaton et le positon sous forme d'énergie cinétique :

$$E_{e^-} = E_{e^+} = \frac{1}{2}(h\nu - 2mc^2) \quad (1-26)$$

La conservation de l'énergie et de l'impulsion impose la présence d'un troisième corps, en général un noyau atomique ou un négaton, qui par son recul permet la conservation de l'impulsion. La création de paire ne peut donc pas se produire dans le vide. Dans le cas de la création de paires dans le champ de l'électron, le seuil de la réaction est alors $4mc^2$.

La production des paires dans le champ de l'électron reste un phénomène moins important que la création de paires dans le champ du noyau. C'est-à-dire que pour une énergie donnée, il se produira plutôt une production de paire dans le champ du noyau que dans le champ de l'électron. La section efficace de création de paire augmente comme Z^2 .

Remarque :

Il existe également des effets qui sont secondaires tels que :

- La diffusion de Rayleigh

C'est la diffusion élastique des photons sur les négatons de l'atome. Elle ne modifie pas la longueur d'onde des photons, mais seulement la trajectoire. Ce processus n'intervient que pour $E_\gamma < 0,1$ MeV et Z grand. Il est négligeable dans le cas contraire.

- La diffusion Thomson

C'est la diffusion élastique par le noyau. La probabilité de cet effet est très faible.

- La diffusion de Delbrück

C'est la diffusion inélastique par le noyau qui est excité par le photon incident. Il y a réémission de l'énergie d'excitation.

1.2.5. Atténuation des photons

Les photons interagissent très peu avec la matière. Ainsi, la probabilité pour qu'un photon traverse une épaisseur de matière sans interagir est élevée : un photon de 1 MeV a 74 % de chances de ne subir aucune interaction en traversant 1 cm de germanium. C'est pourquoi on ne parle pas de parcours des photons dans la matière mais plutôt de leur libre parcours moyen. Il s'agit de la distance moyenne parcourue par un photon d'énergie donnée avant la première interaction dans un matériau.

De même on utilise la notion de coefficient d'atténuation qui résulte des différentes interactions que peut subir un photon dans un matériau. Les coefficients sont homogènes à des probabilités d'interaction dans un matériau [4].

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

$$I = I_0 e^{-\mu x} \quad (1-27)$$

μ est le coefficient d'atténuation linéique totale, qui est relié au libre parcours moyen λ

$$\lambda = \frac{\int_0^{\infty} x e^{-\mu x} dx}{\int_0^{\infty} e^{-\mu x} dx} = \frac{1}{\mu} \quad (1-28)$$

L'atténuation que subit un faisceau de photons gamma en traversant la matière résulte des trois types d'interaction que peuvent subir les photons, chaque type d'interaction étant caractérisé par un coefficient d'atténuation qui lui est propre.

Ainsi le coefficient d'atténuation μ est la somme de trois coefficients d'atténuation correspondant aux trois mécanismes d'interaction des photons gamma avec la matière :

$$\mu = \mu_{\sigma_{photo}} + \mu_{\sigma_c} + \mu_k \quad (1-29)$$

La figure 1-2 montre les zones de prédominance selon le type d'interaction.

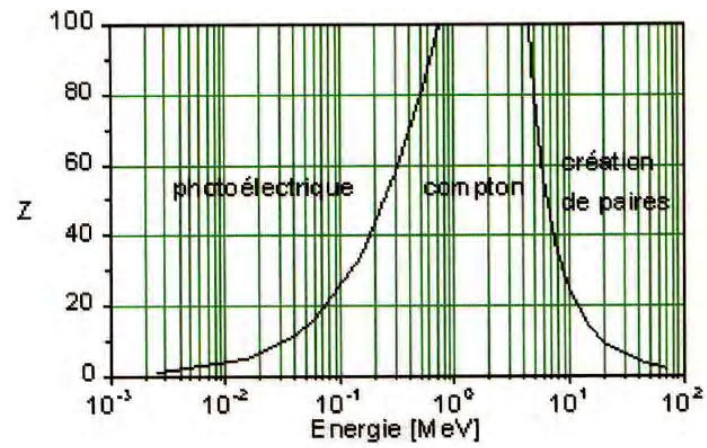


Figure 1-2 : Prédominance du type d'interaction

Chapitre 2. SPECTRE D'ENERGIE GAMMA

2.1. Introduction

Un spectre de lumière est un ensemble de rayonnements monochromatiques résultant de la décomposition d'une lumière complexe. Plus généralement, c'est la répartition de l'intensité d'une onde acoustique ou électromagnétique, d'un faisceau de particules, en fonction de la fréquence ou de l'énergie.

Le spectre énergétique des photons gamma est donc la distribution de l'intensité des photons gamma en fonction de l'énergie.

$$N = f(E)$$

Un spectre gamma est caractérisé par un fond continu, décroissant avec l'énergie et la présence de pics de forme gaussienne.

2.2. Formation d'un spectre gamma

La méthode d'analyse nucléaire exploite les phénomènes d'ionisation et d'excitation produits par les rayonnements nucléaires. Ces phénomènes proviennent de l'interaction des photons gamma avec le détecteur.

On s'intéresse aux trois interactions majeures qui se produisent dans le détecteur, à savoir l'effet photoélectrique, l'effet Compton et l'effet de matérialisation [2].

2.3. Importance des trois effets d'interaction avec la matière

Pour des photons traversant un milieu donné, les trois effets peuvent se produire, mais avec une probabilité différente selon l'énergie des photons incidents et la nature du milieu (Figure 1-2). L'effet photoélectrique et l'effet Compton sont dominants dans la gamme d'énergie de 60 keV à 2000 keV.

2.4. Composante d'un spectre gamma

Quand on observe le spectre de rayons gamma produit par une source radioactive, on peut observer des pics dus aux diverses interactions.

- Le pic photoélectrique appelé photopic correspond à l'absorption totale de l'énergie déposée par le photon incident.
- Le pic somme résulte des transitions en cascade des photons gamma de niveaux d'énergie successifs d'un même radionucléide que le détecteur n'arrive pas à enregistrer séparément.
- Le pic d'annihilation provient de la recombinaison d'une paire négaton-positon. C'est le pic à 511 keV.
- Dans le cas où un photon gamma crée une paire de négaton-positon dans un détecteur, l'énergie du photon est totalement récupérée si les deux photons de 511 keV d'annihilation du positon sont absorbés par le détecteur. Dans le cas contraire, on récupère l'énergie du photon incident à $E=h\nu-mc^2$ c'est le pic de simple échappement et à l'énergie $E=h\nu-2mc^2$ c'est le pic de double échappement.
- Les photons diffusés à 180° de l'angle d'incidence produisent les pics de rétro-diffusion. Généralement ces pics se trouvent entre les énergies 100 keV et 250 keV du spectre d'énergie gamma
- Des pics de rayons X sont constitués de rayons X émis par les éléments au voisinage du détecteur après effet photoélectrique. C'est le cas du blindage en Plomb qui implique l'émission de rayons X du Plomb.

2.5. Pics voisins et pics interférents

Dans un spectre d'énergie, les pics peuvent être classés en plusieurs catégories selon la distance d entre les centres de deux pics et la largeur FWHM. Le tableau 6-7 illustre cette classification.

Lorsque le système de détection n'arrive pas à séparer deux pics adjacents on dit que les pics sont convolués. La convolution des pics provient essentiellement de la mauvaise résolution du système de détection.

Dans le spectre, le recouvrement partiel des pics voisins laisse apparaître plusieurs maxima. Un seul maximum apparaît lorsque les pics interférents sont tellement proches, la largeur est anormale.

Le tableau 4-1 de la page 37 donne la région d'interférence pour un détecteur NaI(Tl) à puits, de dimension 76 x 76 mm, modèle 3MW3/3, de marque Canberra [9]. Nous pouvons nous référer sur ce tableau, même si la technologie en instrumentation entre ce système de comptage et celle que nous utilisons est un peu différente.

Chapitre 3. DISPOSITIF D'ACQUISITION ET D'ANALYSE

3.1. La chaîne de détection

L'ensemble de détection permet de mesurer un signal issu de l'interaction des rayonnements ionisants avec le cristal de NaI(Tl), de l'amplifier et de le mettre en forme en vue d'une analyse ultérieure. La chaîne d'acquisition est constituée du détecteur, du préamplificateur, de l'amplificateur, du convertisseur analogique-numérique (ADC), de l'analyseur multi-canaux (MCA), du générateur de haute tension et d'un ordinateur muni d'un logiciel approprié.

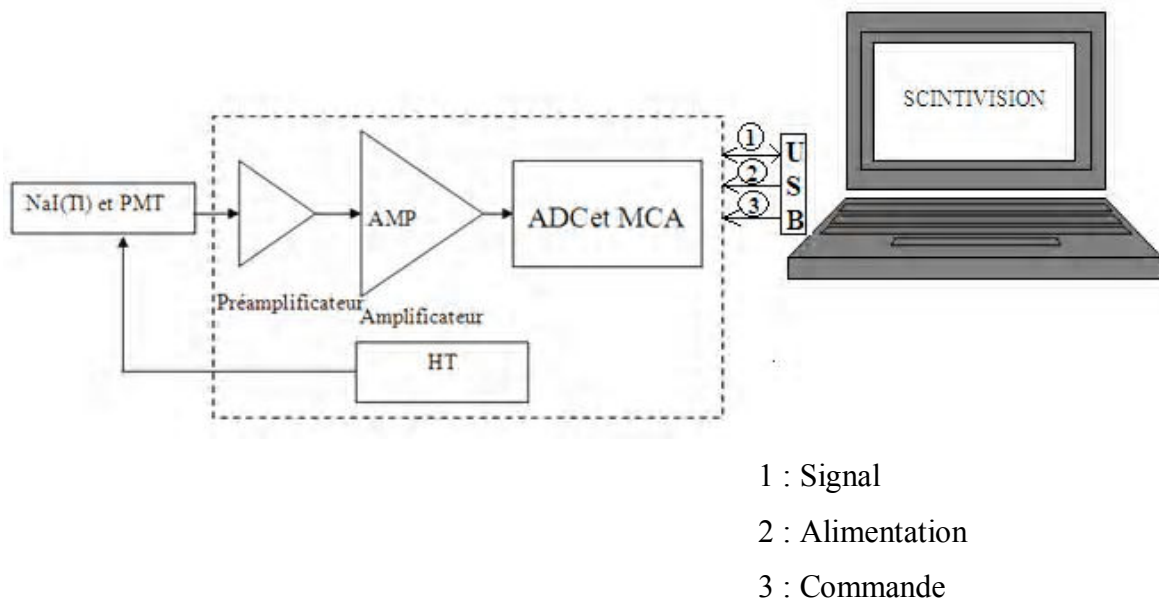


Figure 3-1: Schéma synoptique d'une chaîne de comptage au détecteur NaI(Tl), basé sur le digiBASE

3.1.1. Le détecteur

3.1.1.1. La structure des bandes d'énergie du cristal NaI(Tl)

La bande de valence contient les négatons qui sont essentiellement liés aux sites cristallins, alors que la bande de conduction contient les négatons possédant suffisamment d'énergie pour être libres de migrer à travers le cristal. Il existe une bande intermédiaire d'énergie, appelée bande interdite, dans laquelle les négatons ne peuvent pas se trouver au sein des cristaux purs. (Figure 3-2)

L'absorption d'énergie peut provenir de l'élévation d'un négaton de sa position normale dans la bande de valence jusqu'à la bande de conduction. Il laisse alors un trou dans la bande de valence. Dans un cristal pur, le retour du négaton à la bande de valence avec l'émission d'un photon est un processus inefficace.

Pour augmenter la probabilité d'émission d'un photon visible pendant le processus de désexcitation, on ajoute habituellement de petites quantités d'impuretés aux scintillateurs inorganiques. Ces impuretés, appelés activateurs, créent des sites spéciaux dans le réseau, pour lesquels la structure normale de la bande d'énergie est différente de celle du cristal pur.

En conséquence, des états d'énergie se créent à l'intérieur de la bande interdite, à travers lesquelles le négaton peut revenir à son état initial de la bande de valence. Cette quantité d'énergie est plus petite que celle de la zone interdite remplie, ce qui a pour conséquence que la transition donne lieu à un photon visible et sert de base au processus de scintillation [5].

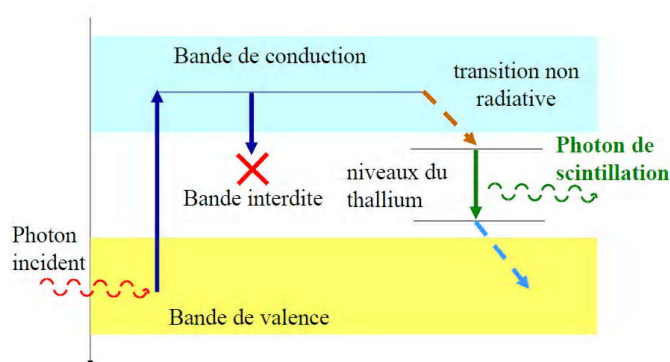


Figure 3-2 : Bande d'énergie du NaI(Tl)

3.1.1.2. Le photomultiplicateur

Pour constituer un système de détection, le cristal scintillateur doit être couplé à un dispositif sensible permettant de collecter les photons de scintillation. Ce dispositif, généralement un tube photomultiplicateur (Figure 3-3) ou une photodiode, doit avoir une excellente sensibilité dans la plage de longueurs d'onde d'émission du scintillateur. Un photomultiplicateur comporte une photocathode, plusieurs dynodes et une anode

Le principe est directement basé sur l'effet photo-électrique se passant sur la fenêtre de la photocathode. Le potentiel de l'anode est positif par rapport à celui de la cathode et il est de plus en plus grand au fur et à mesure qu'on s'éloigne de celle-ci ; l'électrode au potentiel le plus élevé est l'anode comme dans tous les tubes électroniques. La Haute Tension étant de l'ordre de 1000 V [6].

Lorsque la cathode est éclairée, il se produit une émission d'électrons ; ceux-ci sont attirés par la première dynode qui joue un rôle analogue à celui d'une anode puisqu'elle est portée à un potentiel positif par rapport à la cathode. Ce potentiel est suffisamment élevé pour qu'une vitesse relativement grande soit imprimée aux électrons. Au niveau de cette électrode se produit une émission d'électron secondaire ; leur nombre dépasse nettement celui des électrons primaires. Tous ces électrons sont attirés à leur tour par la seconde dynode et le même phénomène se reproduit sur cette dernière.

Après une succession d'émissions secondaires, le nombre d'électrons qui arrivent à l'anode peut être plusieurs millions de fois plus grand que celui des électrons issus de la cathode. L'amplification de courant donné par un photomultiplicateur comportant une dizaine de dynodes peut atteindre 2 à $3 \cdot 10^6$. C'est le rapport de l'intensité I_A du courant entrant par l'anode à l'intensité I_K du courant sortant par la cathode [6].

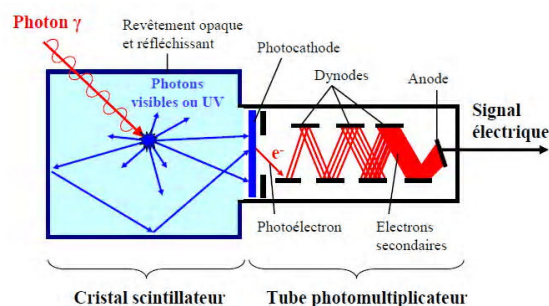


Figure 3-3 : Schéma d'un photomultiplicateur

3.1.2. Les matériels électroniques associés

3.1.2.1. Le préamplificateur et l'amplificateur

L'impulsion produit à la sortie du photomultiplicateur est ensuite traité par le préamplificateur où il est mis en forme et amplifié de manière à optimiser le rapport Signal sur bruit (S/B).

La mise en forme du signal se fait au minimum par une différenciation et une intégration en une impulsion courte.

La constitution de l'amplificateur lui permet d'accomplir les rôles suivants :

- Amplifier le signal afin d'avoir un niveau suffisamment analysable par un MCA c'est-à-dire pour avoir une amplitude dans l'étendue dynamique de 0 à 10 V.
- Mettre en forme le signal de façon à optimiser la performance du spectromètre ; en particulier pour obtenir le meilleur rapport signal-bruit S/B, pour pouvoir opérer à haute activité avec dégradation minimale de la résolution.
- L'amplificateur doit convertir le signal du préamplificateur en une forme convenable à la mesure.

3.1.2.2. Le convertisseur analogique numérique et l'analyseur multi-canaux

La tâche d'un MCA est de mesurer la hauteur des impulsions (PHA) pour former le spectre des rayonnements nucléaires. Les impulsions d'amplitude comprise entre V et $V+\Delta V$ correspondent à des rayonnements gamma dont l'énergie est comprise entre E et $E+\Delta E$. Pour cela la hauteur de chaque signal est convertie en nombre binaire par l'ADC ou CAN. Ce nombre binaire servira d'adresse d'un compartiment dans une mémoire RAM.

On a donc un classement des impulsions en fonction de leur amplitude. L'ensemble de l'histogramme permet la visualisation du spectre d'énergie. Si le MCA fonctionne en 1024 canaux et que la gamme de tension analysable est entre 0 et 10 V, alors un canal a une largeur de 0,01V.

3.1.3. Le logiciel d'acquisition et de traitement

Une interface logicielle commande le système de traitement électronique. Cette interface permet aussi de stocker et d'analyser les données sur micro-ordinateur.

3.2. Caractérisation des performances d'un spectromètre

La qualité d'un spectromètre gamma est liée à sa capacité d'une part à détecter des raies parfois peu intenses c'est le critère d'efficacité et d'autre part à les distinguer entre elles : critère de résolution.

3.2.1. Efficacité de détection

L'efficacité absolue d'un détecteur, notée ε , est le rapport du nombre de coups mesurés dans le pic de pleine énergie, N_S , au nombre total de photons émis depuis la source en direction du détecteur, N_γ . Cette efficacité absolue est exprimée comme suit :

$$\varepsilon = \frac{N_S}{N_\gamma} \quad (3-1)$$

3.2.2. Résolution en énergie

La résolution en énergie mesure la capacité d'un détecteur à séparer les raies dans le spectre. Ce n'est autre que la largeur à mi-hauteur FWHM.

La résolution relative R est exprimée en %.

$$R = \frac{\Delta E}{E_0} \quad (3-2)$$

$$\Delta E = FWHM$$

E_0 : étant l'énergie du pic

3.2.3. Rapport signal sur bruit

Supposons le pic isolé dans une région d'intérêt (Figure 5-3, page 48). L'excès de coups par rapport au continuum N_C constitue le signal utile et est mesuré par l'aire du pic, notée N_S en coups. La qualité du signal se mesure par le rapport signal sur fond continu ou bruit [7].

3.3. Etalonnage de la chaîne de mesure

3.3.1. Pré étalonnage

Le pré étalonnage consiste à mettre une relation simple entre le numéro de canal du MCA et les énergies connues des sources ponctuelles.

3.3.2. Etalonnages

L'étalonnage sert à relier les résultats délivrés par la chaîne avec les valeurs certifiées correspondant à l'étalon et/ou aux matériaux de références.

3.3.2.1. Etalonnage en énergie

Chaque spectre doit avoir un bon étalonnage en énergie pour réduire au minimum le phénomène de dérive des positions des pics. L'étalonnage en énergie consiste à établir la relation entre le numéro de canal et l'énergie connue d'un matériau de référence.

Dans le spectre du matériau de référence, on relève le numéro C du canal présentant un coup maximal et on lui associe l'énergie E correspondante.

Ainsi on peut établir la fonction polynomiale du second degré suivante :

$$E = a_1 + a_2 C + a_3 C^2 \quad (3-3)$$

Avec :

E : énergie du pic

C : numéro de canal correspondant au maximum

a_1, a_2, a_3 : Coefficients d'étalonnage à déterminer.

3.3.2.2. Etalonnage en efficacité

L'étalonnage en efficacité consiste à établir la relation entre l'efficacité de détection de la chaîne de comptage et l'énergie ou canal.

L'efficacité de détection pour une énergie donnée est exprimée par la relation :

$$\varepsilon_i = \frac{N_i}{T \cdot P_\gamma \cdot A \cdot K_w \cdot U_f} \quad (3-4)$$

Avec :

N : Aire nette du pic d'étalonnage

T : Durée de la mesure

P : probabilité d'émission gamma de l'élément i à l'énergie E_i

A : Activité de la source à la date de référence inscrit dans le certificat

U_f : le facteur de conversion d'unité, si l'unité est en Becquerel alors $U_f=1$.

K_w : facteur de correction de la désintégration entre le temps de référence et le temps de début de l'acquisition.

$$K_w = e^{\left(\frac{t_w \ln 2}{T_{1/2}}\right)} \quad (3-5)$$

t_w : le temps écoulé entre la date de référence et le début de l'acquisition

$T_{1/2}$: la période ou demi-vie radioactive.

Si $T_{1/2} \gg t_w$ alors $K_w=1$

Le calcul d'efficacité suivant l'énergie pour chaque radionucléide du matériau de référence permet d'établir la courbe d'efficacité d'équation :

$$\log \varepsilon = a(\log \varepsilon)^3 + b(\log \varepsilon)^2 + c(\log \varepsilon) + d \quad (3-6)$$

Remarque : L'échantillon est conditionné en une géométrie identique de celle de l'étalon ou du matériau de référence. On doit apporter des corrections dans le cas où la géométrie est différente.

3.4. Calcul d'activité

L'activité d'un radionucléide dans un échantillon par unité de masse est :

$$A_m = \frac{N_i}{\varepsilon_i \cdot P_\gamma \cdot m_i \cdot k_c \cdot T \cdot K_w \cdot U_{f_i}} \quad (3-7)$$

Avec :

ε_i : Efficacités de l'élément i à l'énergie E_i .

m_i : Masse de l'échantillon à analyser.

P_γ : Probabilité d'émission gamma de l'élément i à l'énergie E_i .

N_i : Aire nette de l'élément i à l'énergie E_i .

T : Temps de comptage de l'échantillon à analyser.

K_c : facteur de la correction de désintégration qui prend en considération la décroissance radioactive pendant le temps de comptage.

$$K_c = \frac{T_{1/2}}{\ln 2 \cdot t_c} \left(1 - e^{-\frac{\ln 2}{T_{1/2}} t_c} \right) \quad (3-8)$$

Si $t_c \ll T_{1/2}$ on a :

$$K_c = \frac{T_{1/2}}{\ln 2 \cdot t_c} \left[1 - \left(1 - \frac{\ln 2 \cdot t_c}{T_{1/2}} \dots \right) \right] = 1$$

Avec U_f : le facteur de conversion de l'unité

K_w : le facteur de correction dû à la décroissance entre l'instant de collecte et la mesure.

$$K_w = e^{-\left(\frac{t_w \ln 2}{T_{1/2}} \right)} \quad (3-9)$$

t_w : est la durée séparant la collecte et la mesure.

Si :

- la durée de mesure $t \ll T_{1/2}$, alors $k_c = 1$
- l'unité d'activité est le Bq, alors $U_f = 1$

Si on veut mesurer l'activité actuelle de l'échantillon, alors $K_w = 1$.

Ces conditions entraînent :

$$A_m = \frac{N_i}{\varepsilon_i \cdot T \cdot m_i \cdot I_\gamma} \quad (3-10)$$

3.5. Incertitude de mesure

Le calcul de l'incertitude est une étape non négligeable dans toute mesure en physique. La désintégration radioactive est un phénomène aléatoire dans le temps. Les mesures du nombre d'évènements détectés ne sont jamais exactes, mais présentent des valeurs moyennes avec des incertitudes qui s'améliorent pour les mesures de longues durées.

Considérons la fonction u définie par :

$$u = u(x, y, z, \dots)$$

Le développement en série linéaire de l'incertitude de cette fonction, en termes du carré de l'écart type est :

$$\sigma_u^2 = \left(\frac{\partial u}{\partial x}\right)^2 \times \sigma_x^2 + \left(\frac{\partial u}{\partial y}\right)^2 \times \sigma_y^2 + \left(\frac{\partial u}{\partial z}\right)^2 \times \sigma_z^2 + \dots \quad (3-11)$$

3.6. Limite de détection et activité minimale détectable

- La limite de détection peut être calculée à partir de la formule (3-12).

$$L_D = 2,71 + 3,29\sqrt{\mu_B + \sigma_B^2} \quad (3-12)$$

Où μ_B est la valeur du bruit de fond et σ_B l'écart-type. Pour les spectres gamma, le bruit de fond est composé du fond continu b sous le pic et de l'interférence I du radionucléide dans l'environnement du détecteur. La limite de détection s'écrit alors

$$L_D = 2,71 + 3,29\sqrt{(\mu_b + \sigma_b^2) + (\mu_I + \sigma_I^2)} \quad [8] \quad (3-13)$$

- L'activité minimale détectable s'écrit alors

$$AMD(Bq) = \frac{L_D}{\varepsilon \cdot y \cdot T} \quad (3-14)$$

3.7. Effet du temps mort

Dans le cas des échantillons à haute activité, il est particulièrement important de considérer la correction engendrée par le temps mort au taux de comptage [9].

Ainsi, le nombre de coups perdu peut être exprimé par le terme $RN\tau$, en supposant que τ est le temps mort du système de comptage, N le taux de comptage enregistré et R le taux de comptage net réel. La valeur du taux de comptage net réel est la somme du taux de comptage observé et celui qui est perdu. Elle s'exprime comme suit :

$$R = N + RN\tau \quad (3-15)$$

Alors,

$$R = \frac{N}{1 - N\tau} \quad (3-16)$$

Avec :

T : taux de comptage net réel.

N : taux de comptage enregistré.

τ : temps mort, dépendant de la chaîne de comptage.

Chapitre 4. ETUDES ANTERIEURES SUR LA DÉCONVOLUTION DES SPECTRES

4.1. Déconvolution des spectres complexes appliquée en LSC

Vu la difficulté de la préparation de la séparation chimique, Malinovsky et al [10] ont procédé à la méthode mathématique qui est une alternative pour l'analyse des spectres. La minimisation de la méthode des moindres carrés est la technique utilisée pour résoudre le problème de convolution.

Un modèle de pic y_i est créé en fonction des paramètres de forme du pic.

$$y_i = g(c_1, c_2, \dots, c_J; i) \quad (4-1)$$

Avec :

c_j : sont les paramètres du pic avec $j=1, 2, \dots, J$.

Minimisation :

La déconvolution utilise la méthode des moindres carrés pondérés qui est représentée de la manière suivante :

$$f(c_1, c_2, \dots, c_J) = \sum_{i=1}^I w_i (P_i - y_i)^2 \quad (4-2)$$

w_i : représente la pondération

P_i : représente les points expérimentaux.

La méthode introduit la fonction de pénalité pour améliorer la minimisation.

$$f(c_1, c_2, \dots, c_J) = \sum_{k=1}^K \frac{(P_k - y_k)^2}{P_k + \delta} + f_{pen}(c_1, c_2, \dots, c_J) \quad (4-3)$$

δ : Coefficient de stabilité de minimisation

$f_{pen}(c_1, c_2, \dots, J)$: fonction de pénalité

L'algorithme de minimisation de l'équation (4-3) s'effectue de la manière suivante [10]:

- choisir le coefficient correspondant à la plus grande valeur de δ , ensuite effectuer la minimisation.
- réduire δ , réitérer la minimisation.
- Le résultat de calcul de c_j dans la précédente étape est la valeur initiale de l'étape suivante.
- Pour valider la qualité de la minimisation, on effectue le test de χ^2 .

$$\chi^2 = \sum_{k=1}^K \frac{(P_k - y_k)^2}{y_k} \quad (4-4)$$

Le nombre de degré de liberté est $\nu = J - 1$.

La programmation informatique utilise le logiciel Visual C++.

4.2. Déconvolution des spectres gamma issu d'un détecteur HPGe

L'objectif de la méthode développée par Julien Delière [11] est d'obtenir le spectre incident. Le spectre mesuré par le détecteur correspond au spectre incident dégradé par la réponse du détecteur. Un spectre mesuré est un produit de convolution que l'on peut écrire ainsi:

Spectre mesuré = spectre incident \otimes *fonction réponse du détecteur*

Ce produit peut s'écrire sous une forme matricielle dans la base des vecteurs correspondant aux canaux du codage analogique-numérique choisi, où le vecteur du spectre mesuré est égal au produit du vecteur du spectre incident par la matrice des réponses unitaires du détecteur. Ces réponses unitaires sont définies pour un flux parallèle de photons mono-énergétiques, et pour toutes les énergies:

$$\underbrace{(Em1 \quad Em2 \quad \dots \quad Em1500)}_{SM} = \underbrace{(E1 \quad E2 \quad \dots \quad E1500)}_{Si} \otimes \underbrace{\begin{pmatrix} R_1^1 & \dots & \dots & R_n^1 \\ & \ddots & & \vdots \\ & & \ddots & \vdots \\ & & & R_n^m \end{pmatrix}}_{R_{unit}} \quad (4-5)$$

SM : matrice des spectres mesurés.

Si : matrice des spectres incidents.

R_{unit} : matrice de la fonction réponse du détecteur.

La matrice triangulaire R a été obtenue par calcul Monte Carlo, à partir du modèle développé de 0 à 1500 keV.

Connaissant la fonction de réponse, un code en Fortran a été réalisé afin de mettre en œuvre un procédé itératif de déconvolution. La figure suivante représente l'organigramme des différentes étapes du calcul :

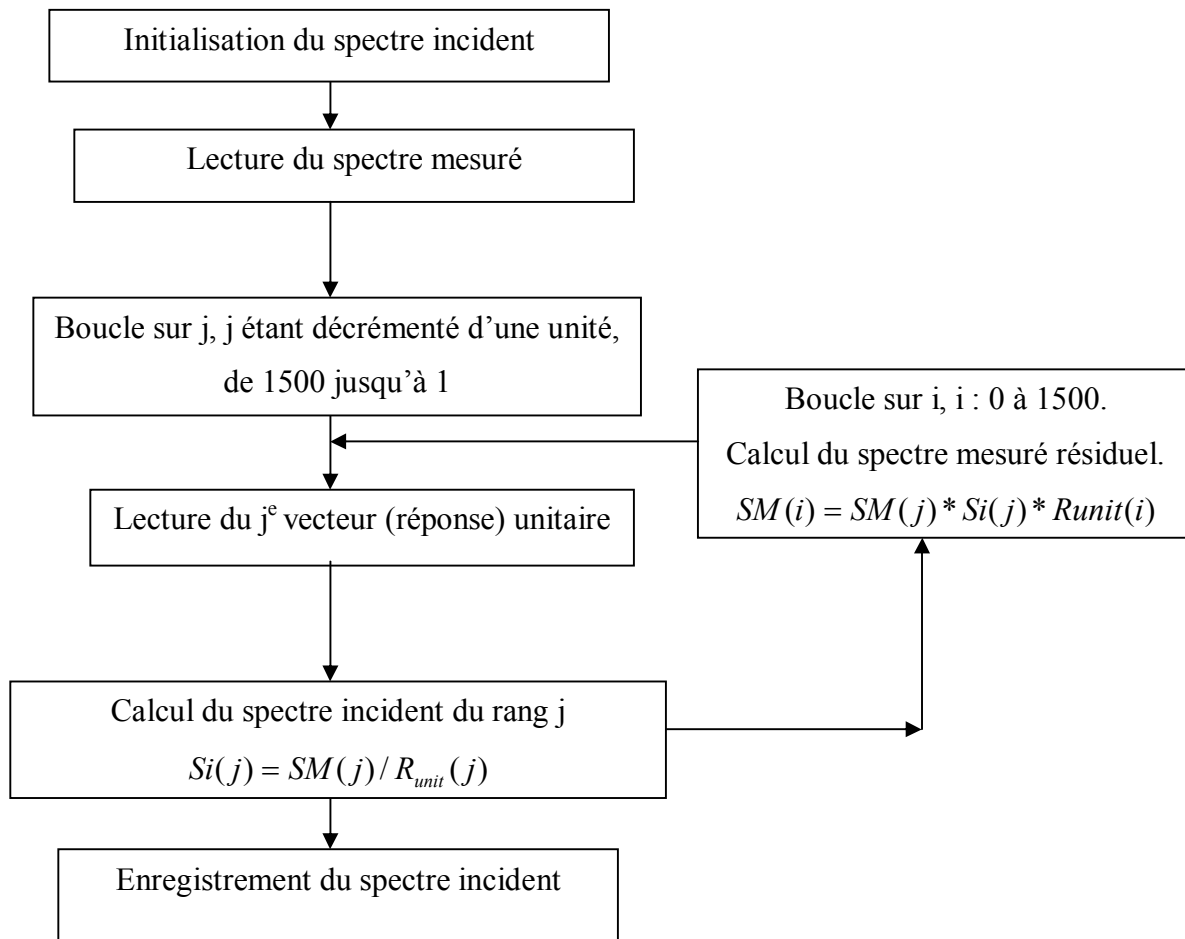


Figure 4-1: Organigramme représentant l'algorithme de déconvolution spectrale.

4.3. Algorithme de déconvolution des logiciels GeniePC et Genie2000

4.3.1. Ajustement selon le critère des moindres carrés

Le lissage du logiciel de CANBERRA utilise le critère d'ajustement des moindres carrés.

Soit une série de m points (x_i, y_i) , x_i désigne le numéro de canal et y_i représente le nombre de coups dans le canal x_i .

y_i peut être représenté par une fonction F tel que :

$$y_i = F(x_i, \alpha_1, \alpha_2, \dots, \alpha_m) \quad (4-6)$$

α_j : les paramètres de formes à déterminer.

Les α_j seront ajustés pour minimiser la somme χ^2 des carrés des écarts représentatifs dans les m points.

$$\chi^2 = \sum_{i=1}^m w_i [y_i - F(x_i, \alpha)]^2 \quad (4-7)$$

w_i : le coefficient de pondération associé au $i^{\text{ème}}$ point.

Comme l'incertitude pour chaque point n'est pas identique alors :

$$w_i = \frac{1}{\sigma_i^2} \quad (4-8)$$

Dans le cas de fond continu linéaire.

Le nombre de coups dans le canal x_i est égale à :

$$y_i' = y_i - \frac{1}{n} B_1 - \frac{i(B_2 - B_1)}{n(N+1)} \quad (4-9)$$

Et

$$w_i = \frac{1}{\frac{y_i + B_1(N+1-i)^2 + B_2 i^2}{[n(N+1)]^2}} \quad (4-10)$$

N : le nombre de canaux dans la région d'intérêt du pic.

n : le nombre de canaux du fond continu dans les deux cotés du pic.

B_1 : la somme des coups dans la région du fond continu à gauche du pic.

B_2 : la somme des coups dans la région du fond continu à droite du pic.

Dans le cas de fond continu en échelon :

$$y_i' = y_i - \frac{1}{n} B_1 - \frac{(B_2 - B_1)}{nG} \sum_{j=1}^i y_j \quad (4-11)$$

Le nouveau coefficient de pondération devient :

$$w_i' = \frac{1}{y_i + \frac{B_1(G - P_i)^2 + B_2 P_i^2 + (B_2 - B_1)^2 P_i}{(nG)^2}} \quad (4-12)$$

G : la somme totale des coups dans la région d'intérêt du pic

Les autres termes ont les mêmes définitions telles qu'explicitées dans le cas de Fond continu linéaire.

Une autre approche est l'utilisation d'un facteur de pondération w_i basé sur la moyenne de coups dans plusieurs canaux adjacents. Les y_i seront alors remplacés par :

$$y_i = \frac{y_{i-1} + 2y_i + y_{i+1}}{4} \text{ quand } y_i < 100 \quad (4-13)$$

Pour minimiser l'équation, il suffit d'annuler chacune des dérivés partiels par rapport aux paramètres α_j .

$$\frac{\partial F_0}{\partial \alpha_j} = 0 \quad (4-14)$$

Si la fonction n'est pas linéaire pour α_j , elle doit être linéarisé par la série de Taylor.

$$F(x, \alpha) = F_0 + \sum_{j=1}^m \frac{\partial F_0}{\partial \alpha_j} \delta \alpha_j + \frac{1}{2} \sum_{j=1}^m \sum_k \left[\frac{\partial^2 F_0}{\partial \alpha_j \partial \alpha_k} \delta \alpha_j \delta \alpha_k \right] + \dots \quad (4-15)$$

En rapportant la valeur de $F(x, \alpha)$ de premier ordre dans l'équation (4-6) nous avons :

$$\chi^2 = \sum_i w_i \left[y_i - F_0 - \sum_j \frac{\partial F_0}{\partial \alpha_j} \delta \alpha_j \right]^2 \quad (4-16)$$

Qui est une fonction linéaire en $\delta \alpha_j$ et peut être minimisé

$$\frac{\partial \chi^2}{\partial (\delta \alpha_k)} = -2 \sum_i w_i \frac{\partial F_0}{\partial \alpha_k} \left[y_i - F_0 - \sum_j \frac{\partial F_0}{\partial \alpha_j} \delta \alpha_j \right] = 0 \quad (4-17)$$

En représentation matricielle, nous avons un système linéaire de la forme :

$$\vec{b} = [M] \cdot \vec{\delta \alpha} \quad (4-18)$$

Avec

$$M_k^j = \sum_i w_i \frac{\partial F_0}{\partial \alpha_j} \frac{\partial F_0}{\partial \alpha_k} \quad (4-19)$$

Et

$$b_k = \sum_i w_i (y_i - F_0) \frac{\partial F_0}{\partial \alpha_k} \quad (4-20)$$

4.3.2. Algorithme de Marquardt légèrement modifiée

L'approche itérative utilisée par CANBERRA est la version légèrement modifiée de la méthode développée par Marquardt.

Voici les étapes de l'algorithme [12] :

Etape 1 : $\lambda=0,5$

$k=0,9$

$n=0,$

$n_{\max}=10,$

$n_{\max d}=15,$

Où λ ; facteur de multiplication,

L'algorithme cherche la solution de :

$$\bar{b} = [M] \cdot \bar{\delta\alpha}$$

Avec $M_k^j = M_k^j (1 + \lambda) \quad j=k.$

$$M_k^j = M_k^j \quad j \neq k$$

Le programme détermine automatiquement les valeurs initiales et les désignent comme données dans l'algorithme.

Etape 2 : Calcul $\bar{\delta\alpha}$ à partir de l'équation :

$$(\bar{\delta\alpha}) = [M]^{-1} \cdot \bar{b}$$

Quitter avec l'erreur appropriée si la matrice [M] est singulière.

Etape 3 : Incrémentation : $n=n+1$

Etape 4 : $\alpha_i^n = \alpha_i^{n-1} + k(\delta\alpha)_i^{n-1}$

Etape 5 : Calcul de $\chi^2(\alpha^n)$

Etape 6 : Si il existe α_i^n en dehors de la limite acceptable

- a. Ajuster les valeurs de α_i^n à la valeur limite.
- b. Si $n > n_{max}$ quitter avec l'erreur approprié.
- c. $n_{max} = n_{max} + 2$, et $n_{max} > n_{maxd}$, $n_{max} = n_{maxd}$.
- d. $\lambda = 5 \lambda$; si $\lambda > 100$, Set $\lambda = 100$; si $\lambda < 0,1$ Set $\lambda = 0,1$.
- e. $k = 0,7k$; si $k < 0,2$; $k = 0,2$.
- f. Retourner à l'étape 2.

Etape 7 : Si $n < 2$ retourner à l'étape 12.

Etape 8 : Si $n < 3$ retourner à l'étape 11.

Etape 9 : Test de convergence.

Etape 10 : Si $n > n_{max}$, quitter avec l'erreur.

Etape 11 : Si $\chi^2(\alpha^n) > \chi^2(\alpha^{n-1}) + \varepsilon$, avec $\varepsilon = 10^{-3}$, l'itération est terminée.

Etape 12 : Donner la valeur de $\chi^2(\alpha^n)$; retourner à l'étape 1.

L'itération converge si les conditions suivantes sont vraies :

- a. Le changement de la position du pic est inférieur à 0,01 canal.
- b. Le changement de la largeur FWHM est inférieur à 0,05W.
- c. Le changement du paramètre de hauteur est :
 Inférieur à 2 coups, ou
 Inférieur à la moitié de la déviation standard de la hauteur du pic qui est toujours le plus élevé et.
- d. Le changement du paramètre de queue est inférieur à 0,5W.

Si ces quatre conditions de convergences ne sont pas satisfaites après 4 itérations, on passe au test suivant.

$$\frac{|\chi^2(\alpha^{n-1}) - \chi^2(\alpha^n)|}{\chi^2(\alpha^n)} < 10^{-3}$$

Si cette condition est vérifiée, on termine l'itération.

Pour éviter la non convergence, les paramètres k et λ doivent être $k > 0.7$ et $\lambda < 0.05$

4.4. Le logiciel Gamma Vision

Gamma vision utilise le lissage selon le critère des moindres carrés et selon le manuel de Gama Vision, un pic a une forme gaussienne [13]. La méthode d'optimisation nécessite le calcul de la dérivée de la somme des carrés des écarts entre le modèle du pic et les valeurs des spectres mesurés. La déconvolution des multiplets se fait automatiquement en se basant aux bibliothèques des radionucléides. Le résultat de déconvolution de spectres gamma issus d'un détecteur HPGe avec gamma vision est satisfaisant. Le logiciel gamma vision est développé en utilisant le langage C.

4.5. Les recherches effectuées à l'INSTN

4.5.1. Edition des fichiers de lissage de spectres d'échantillons épais radioactifs alpha

Ramaroson Edmond Andrianary (1988) a édité un fichier de lissage des spectres alpha pour le micro-ordinateur DEC Professional 350 [14].

4.5.2. Logiciel modifié d'AXIL pour le traitement des données de la Fluorescence-X

Solofoarisina Wilfrid Chrysante (1988) a écrit deux programmes de traitement de données en langage fortran combinés avec le logiciel AXIL pour le micro-ordinateur professional-350 DEC. Ceci dans le but de pouvoir contrôler et piloter par micro-ordinateur le déroulement de l'analyse. Le logiciel « AXIL » établi par H Nullens et P. Vana Espen effectue l'analyse qualitative et lève le problème de dépouillement de spectre [14].

En effet le spectre obtenu sur l'analyseur n'est pas simple. Le phénomène de chevauchement des pics correspondant aux raies X d'énergies voisines apparaît souvent. La méthode de calcul est basée sur l'utilisation des paramètres fondamentaux en analyse par fluorescence-X .

4.5.3. Méthode de technique d'enlèvement

Andrianjafitrimo (2001) a adopté la procédure de mesure décrite par RYBACH (1971, 1988), mais avec quelques modifications afin de généraliser les aspects d'étalonnage [9]. Ainsi, trois régions d'intérêt dans le spectre de rayonnement gamma centrées approximativement aux sommets des trois pics caractéristiques des pics d'énergie 1460 keV du potassium-40, 1764 keV du bismuth-214 et 2614 keV du thallium-208 sont considérées, correspondant respectivement aux familles de désintégrations du potassium-40, de l'uranium-238 et du thorium-232. RYBACH (1988) a suggéré que la largeur des régions d'intérêt devrait être égale à 10% de l'énergie du radionucléide caractéristique, comme le montre la Figure 4-2 de la page 36.

La Figure 4-2 représente des spectres types d'énergie de rayonnement illustrant les trois régions d'intérêt s'étendant sur une plage d'énergie allant de 0 à 3 MeV. Les radionucléides contenus dans les fenêtres 1, 2 et 3 de la largeur égale à 15% de l'énergie du radionucléide principal, sont dans le tableau 4-1.

- La région 1 est représentée par le ^{40}K . Mais les contributions des familles de désintégration de l'uranium-238 et du thorium-232 sont importantes.
- La région 2 est marquée par le bismuth-214 issu de la famille radioactive de l'uranium-238. La présence de l'isotope actinium-228 de la famille radioactive du thorium est significative.
- La région 3 est prédominée par le thallium-208 des familles de désintégration du thorium. La contribution de l'isotope bismuth-214 est relativement faible, mais n'est pas négligeable.

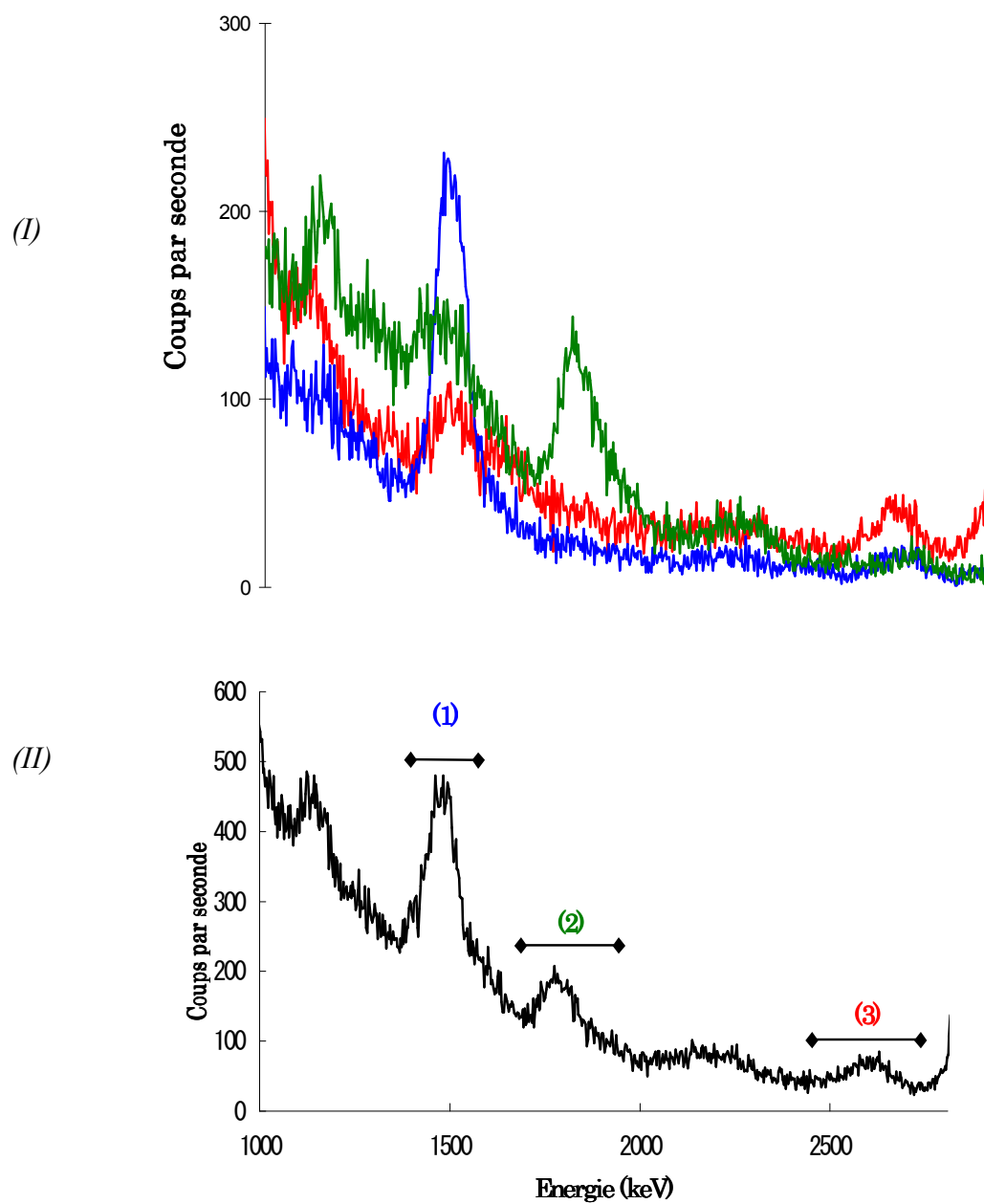


Figure 4-2 : Fenêtres d'énergies utilisées pour la détermination de la concentration du potassium, de l'uranium et du thorium, d'après la description de RYBACH.

- (I) montre les trois spectres obtenus en mesurant séparément les sources RGU-1, RGTh-1 et RGK-1.
- (II) la résultante de ces trois spectres.

Le tableau ci-dessous montre la région d'interférence issue de l'étude effectuée par Andrianjafitrimo [9] avec un détecteur NaI(Tl) à puits, de dimension 76 x 76 mm, modèle 3MW3/3.

Tableau 4-1: Fenêtres d'énergie typique – spectrométrie gamma.

Elément (Désignation)	N° de la région	Sommet (keV)	Plage d'énergie (keV)	Convolution* keV (% , radionucléide)
Potassium (K-40)	(1)	1461	1351 - 1570	1377,67 (3,92 ; ²¹⁴ Bi) 1401,50 (1,5 ; ²¹⁴ Bi) 1407,98 (2,5 ; ²¹⁴ Bi) 1495,23 (1,6 ; ²²⁸ Ac) 1460,50 (10,67 ; ⁴⁰ K) 1501,43 (2,2; ²²⁸ Ac) 1509,23 (2,12 ; ²¹⁴ Bi)
Uranium (U-238)	(2)	1765	1632 - 1896	1661,32 (1,17 ; ²¹⁴ Bi) 1667,40 (8,87 ; ²²⁸ Ac) 1729,60 (2,88 ; ²¹⁴ Bi) 1764,49 (15,36 ; ²¹⁴ Bi) 1847,42 (2,04 ; ²¹⁴ Bi)
Thorium (Th-232)	(3)	2614	2418 - 2810	2447,86 (1,5 ; ²¹⁴ Bi) 2614,89 (99 ; ²⁰⁸ Tl)

* Energie(Intensité [%] ; élément)

La procédure proposée par RYBACH pour le calcul de l'efficacité peut être généralisée. Le taux du comptage net $R^{i,j}$ dans la $i^{\text{ème}}$ région d'intérêt de l'étalon standard j (avec i varie de 1 à 3 et j varie de 1 à 3) est proportionnel à l'activité $A_{j,k}$ de chaque nucléide considéré k ($k = 1, 2, 3$ pour le ⁴⁰K, le ²³⁸U et le ²³²Th respectivement) selon la formule ci-après.

$$R^{i,j} = \sum_{k=1}^3 A_{j,k} \varepsilon_i^k \quad (4-21)$$

Avec ε_i^k , constantes d'étalonnage dans la $i^{\text{ème}}$ région d'intérêt pour le nucléide k.

$A_{j,k}$, activités du nucléide k dans la $j^{\text{ème}}$ source étalon.

R^{ij} , le taux de comptage net pour la $i^{\text{ème}}$ région d'intérêt de la $j^{\text{ème}}$ source étalon, qui est exprimé comme suit:

$$R^{i,j} = \frac{N_{i,j}}{t_j} - B_i \quad (4-22)$$

Où t_j , la durée de comptage pour les sources étalons j,

$N_{i,j}$, le nombre de coups correspondant.

B_i , le taux de comptage du bruit de fond dans la $i^{\text{ème}}$ région d'intérêt.

Les constantes d'étalonnage ε_i^k peuvent être calculées à partir des activités connues des matériaux de référence et des taux de comptage des régions d'intérêt spécifiées retranchés du bruit de fond.

Les standards RGU-1 et RGK-1, sont respectivement composés d'uranium et de potassium presque purs. Par conséquent, la contribution des activités du thorium et du potassium dans le standard RGU-1 ainsi que celle du thorium et de l'uranium dans le standard RGK-1 peuvent être négligées. Par contre, celle de l'uranium dans la source étalon du thorium ne peut pas être omise.

Ainsi

Du potassium standard, on a :

$$\varepsilon_1^1 = \frac{R^{1,1}}{A_{1,1}} \quad (4-23)$$

De l'uranium standard, on déduit:

$$\varepsilon_2^1 = \frac{R^{1,2}}{A_{2,2}} \quad \text{et} \quad \varepsilon_2^2 = \frac{R^{2,2}}{A_{2,2}} \quad (4-24)$$

et du thorium standard, on obtient:

$$\varepsilon_3^1 = \frac{\left(R^{1,3} - R^{1,2} \frac{A_{3,2}}{A_{2,2}} \right)}{A_{3,3}} \quad \text{et} \quad \varepsilon_3^2 = \frac{\left(R^{2,3} - R^{2,2} \frac{A_{3,2}}{A_{2,2}} \right)}{A_{3,3}} \quad (4-25)$$

Les autres constantes peuvent être déterminées en combinant les taux de comptage de l'uranium et du thorium dans la 3^{ième} région d'intérêt.

$$\varepsilon_2^3 = \frac{R^{3,2}}{A_{2,2}} \quad \text{et} \quad \varepsilon_3^3 = \frac{\left(R^{2,3} - R^{3,2} \frac{A_{3,2}}{A_{2,2}} \right)}{A_{3,3}} \quad (4-26)$$

Ainsi nous obtenons la forme matricielle suivante :

$$\begin{bmatrix} R_K \\ R_U \\ R_{Th} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \varepsilon_1^1 & \varepsilon_2^1 & \varepsilon_3^1 \\ 0 & \varepsilon_2^2 & \varepsilon_3^2 \\ 0 & \varepsilon_2^3 & \varepsilon_3^3 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} A_K \\ A_U \\ A_{Th} \end{bmatrix} \quad (4-27)$$

Avec [R], matrice (3xl) des taux de comptage nets enregistrés,
 [ε], matrice (3x3) des constantes d'efficacité ε_i^k ,
 [A], matrice (3xl) des activités des nucléides.

Sachant les taux de comptage nets des 3 régions d'intérêt (R_K , R_U et R_{Th}) ainsi que les efficacités du comptage : les activités inconnues du potassium-40 (A_K), de l'uranium-238 (A_U) et du thorium-232 (A_{Th}) des échantillons de roche et de sol peuvent être calculées en inversant la matrice [ε] de l'Equation 4-27 ci-dessus. Ainsi:

$$\begin{bmatrix} A_K \\ A_U \\ A_{Th} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} a_1^1 & a_2^1 & a_3^1 \\ 0 & a_2^2 & a_3^2 \\ 0 & a_2^3 & a_3^3 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} R_K \\ R_U \\ R_{Th} \end{bmatrix} \quad (4-28)$$

Dans les applications communes que proposait RYBACH, il est commode de négliger la contribution du potassium dans les régions d'intérêt de l'uranium (fenêtre 2) et du thorium (fenêtre 3), car ces derniers sont pratiquement non affectés par le spectre de rayonnement gamma du ^{40}K . Par conséquent, les activités massiques A_K , A_U et A_{Th} sont déterminées en utilisant les relations ci-après.

$$\begin{cases} A_K = a_1^1 R_K + a_2^1 R_U + a_3^1 R_{Th} & (I) \\ A_U = a_2^2 R_U + a_3^2 R_{Th} & (II) \\ A_{Th} = a_2^3 R_U + a_3^3 R_{Th} & (III) \end{cases} \quad (4-29)$$

4.5.4. Optimisation du logiciel de déconvolution

L'étude de Andriamady Narimanana (2005) est focalisée sur l'optimisation du logiciel de déconvolution dans l'analyse des spectres gamma d'échantillon de sol de Madagascar au détecteur HPGe.

Le logiciel utilisé pour le traitement des spectres d'énergie est Génie-PC et le programme de déconvolution des différentes régions de convolution spectrale est IPF [2].

Le travail a pour but d'optimiser les résultats de l'algorithme de dépouillement d'un spectre gamma, contribuant ainsi à l'amélioration de la qualité de traitement des spectres gamma d'échantillon de sol. L'algorithme de traitement utilisé par le programme IPF est décrit en [12].

4.5.5. Elaboration d'un algorithme de déconvolution de base d'une courbe de Thermoluminescence

Ratovonjanahary J F (1995) [16] a élaboré un algorithme de déconvolution de base d'une courbe de Thermoluminescence. L'étude utilise la méthode de Marquardt qui combine la Méthode de Newton Raphson (NRM) et la méthode Steepest Gradient Method (SGM).

4.5.5.1. Ajustement par la méthode des moindres carrés

La méthode des moindres carrés consiste à ajuster les modèles de pics aux données expérimentales en calculant l'équation (4-30).

$$Q(\vec{a}) = \sum_{i=1}^N [y_i - y(x_i, \vec{a})]^2 \quad (4-30)$$

Avec :

N : nombre de canaux

y_i : intensité observé correspondant au canal i.

$\vec{a} = (a_1, a_2, \dots, a_p)$: sont les paramètres cinétiques de la courbe de thermoluminescence.

$y(x_i, \vec{a})$: modèle de la courbe de thermoluminescence.

C'est-à-dire, on doit minimiser l'erreur totale Q dans l'ajustement des données expérimentales par la fonction :

$$y(x_i, \vec{a}) \quad (4-31)$$

Le but est donc de chercher la valeur de $\vec{a} = (a_1, a_2, \dots, a_p)$ qui minimise la valeur de Q. La valeur de Q est obtenue en annulant ses dérivées partielles, par rapport aux paramètres a_j ($j=1, \dots, p$).

$$\frac{\partial Q}{\partial a_j} = \psi_j(\vec{a}) = 0 \quad (4-32)$$

$$\psi_j(\vec{a}) = \sum_{i=1}^N \{ [y_i - y(x_i, \vec{a})] \frac{\partial y(x_i, \vec{a})}{\partial a_j} \} \quad (4-33)$$

$$\psi_j(\vec{a}) = 0 \quad (4-34)$$

Le but est de trouver une solution \vec{a}^* , c'est la valeur de \vec{a} qui minimise Q

4.5.5.2. La méthode de NRM et SGM

Pour résoudre l'équation (4-34), on doit effectuer la linéarisation de l'équation (4-33) en utilisant la méthode NRM. La méthode NRM est basée sur le développement de la fonction $\psi_j(\vec{a})$ en série de Taylor du premier ordre autour d'un premier choix (initialisation) de paramètres $\vec{a}_0 = (a_{01}, a_{02}, \dots, a_{0p})$

$$\psi_j(\vec{a}_0 + \vec{\delta a}) \approx \psi_j(\vec{a}_0) + \sum_{k=1}^p \left[\frac{\partial \psi_j(\vec{a})}{\partial a_k} \right]_{\vec{a}=\vec{a}_0} \delta a_k \quad j=1, \dots, p \quad (4-35)$$

En portant l'équation (4-13) dans l'équation (4-15) et

$$\psi_j(\vec{a}_0 + \vec{\delta a}) = 0 \quad (4-36)$$

on obtient :

$$\sum_{i=1}^N \left\{ [y_i - y(x_i, \vec{a}_0)] \left(\frac{\partial y(x_i, \vec{a})}{\partial a_j} \right) \right\}_{\vec{a}=\vec{a}_0} = \sum_{k=1}^p \left\{ \left[\sum_{i=1}^N \left\{ \frac{\partial y(x_i, \vec{a})}{\partial a_k} \frac{\partial y(x_i, \vec{a})}{\partial a_j} \right\} \right]_{\vec{a}=\vec{a}_0} \right\} \delta a_k \quad (4-37)$$

On peut écrire sous la forme :

$$\vec{f} = [\phi] \vec{\delta a} \quad (4-38)$$

C'est la forme linéaire recherchée.

La solution de l'équation sera :

$$\vec{\delta a} = [\phi]^{-1} \vec{f} \quad (4-39)$$

Les paramètres cinétiques sont donc

$$\vec{a} = \vec{a}_0 + \vec{\delta a} \quad (4-40)$$

Normalement, l'arrivée à l'équation (4-40) signifie que le problème est résolu. Mais il se peut que la méthode NRM ne soit pas suffisante pour aboutir aux résultats attendus car le développement de Taylor doit se faire autour d'un point voisin de la variable considérée.

Pour résoudre ce problème, on doit varier $\vec{\delta a}$, en utilisant le SGM, de manière à ce que l'équation (4-38) devienne un système d'équation indépendante de la forme [16]:

$$\phi_j^i \delta a_j = f_j \quad (4-41)$$

On définit $[\phi']$ au lieu de $[\phi]$, on a:

$$\phi_j^{i'} = \begin{cases} \phi_j^i & i \neq j \\ \phi_j^i (1 + \lambda) & i = j \end{cases} \quad (4-42)$$

Si $\lambda \gg 1$, la matrice $[\phi']$ est une bonne approximation diagonale et la solution de l'équation (4-18) avec $[\phi']$ est identique à la solution obtenue avec la SGM.

Si $\lambda \ll 1$, λ transforme de façon négligeable la matrice $[\phi']$, donc on retourne à la Méthode NRM.

4.5.5.3. Méthode de Marquardt

La méthode de Marquardt utilise la méthode NRM lorsque le premier choix de paramètre \vec{a}_0 est assez proche de la solution \vec{a}^* et la méthode SGM lorsque le choix du paramètre initial \vec{a}_0 est assez éloigné de \vec{a}^* .

La procédure est la suivante :

- (1) programmer $Q(\vec{a})$
- (2) Commencer l'initialisation avec $\lambda=0,001$ (comme dans l'équation)
- (3) Programmer $\vec{\delta a}$ et $Q(\vec{a} + \vec{\delta a})$ avec le choix de λ
- (4) Si $Q(\vec{a} + \vec{\delta a}) > Q(\vec{a})$, augmenter λ par un facteur de 10 et répéter le pas (3).
- (5) Si $Q(\vec{a} + \vec{\delta a}) < Q(\vec{a})$, diminuer λ par un facteur de 10, considérer : $\vec{a} = \vec{a}_0 + \vec{\delta a}$ comme étant le nouveau point départ, et revenir à l'étape (3) en substituant \vec{a} par \vec{a}' .

L'itération s'arrête quand Q diminue d'une valeur négligeable, de l'ordre de 10^{-3} . Ainsi l'algorithme peut être représenté sous forme d'organigramme (Figure 4-3) afin de faciliter la programmation informatique en langage pascal.

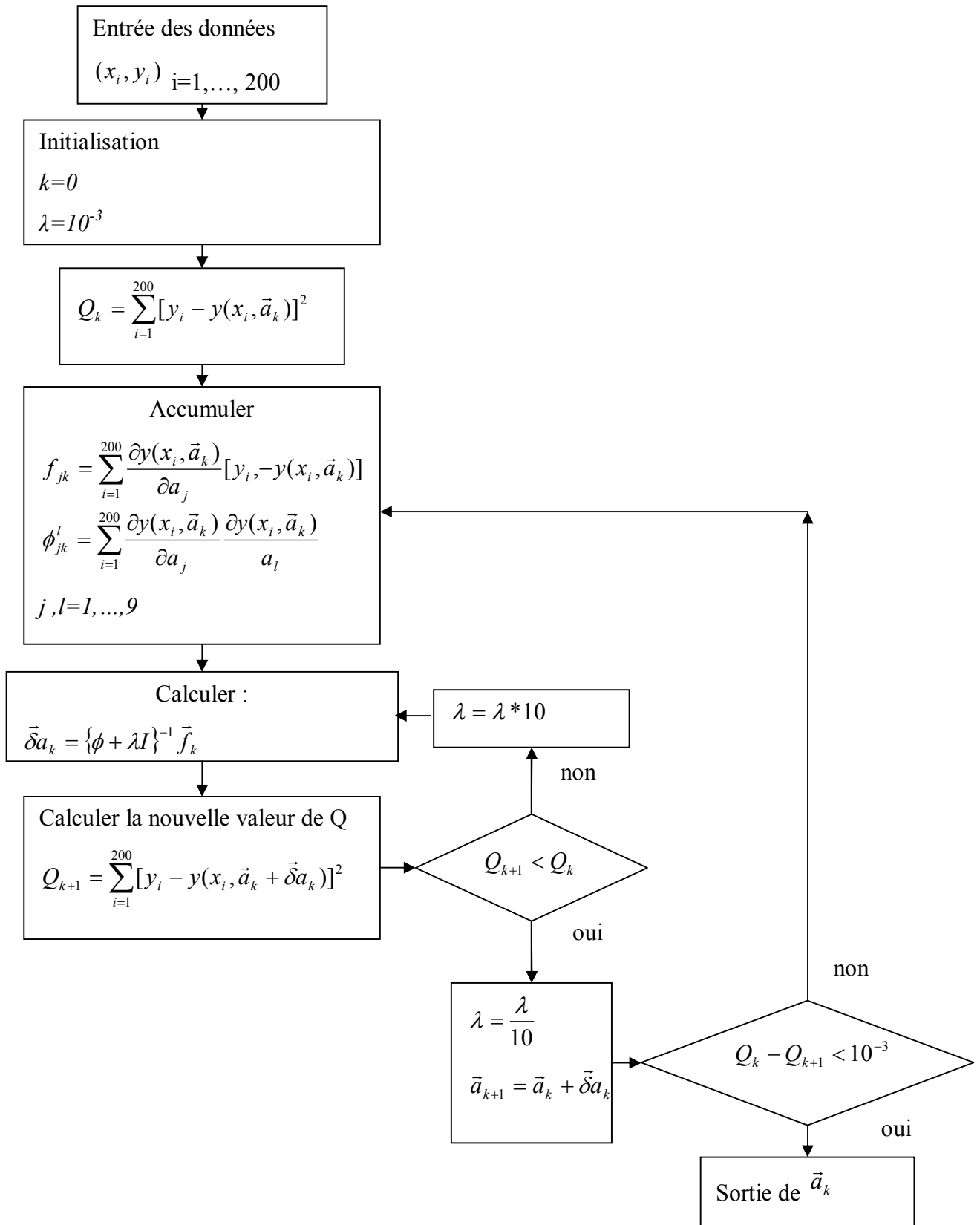


Figure 4-3: Organigramme de l'algorithme de déconvolution d'une courbe TL [16]

En 2005, le même auteur [16] a comparé les résultats de la méthode précédente à ceux de la Méthode d'élévation initiale en utilisant le langage de programmation QBasic pour le calcul numérique [17].

4.5.6. Méthodes numériques de traitement des spectres : application à la courbe de thermoluminescence

RANDRIAMANALINA Solomon (1998) [18] a repris la méthode décrite par [16], le langage de programmation PASCAL est utilisé pour le calcul numérique.

Chapitre 5. DEVELOPPEMENT DE LA METHODE DE DÉCONVOLUTION

5.1. Introduction

Nous venons de voir dans le chapitre précédent les différentes méthodes de déconvolution de spectres élaborées par des chercheurs de l'INSTN et de l'extérieur. Dans le présent chapitre, nous allons développer une autre technique de déconvolution permettant de séparer les pics interférents des spectres d'énergie gamma.

5.2. Aspect mathématique de la forme du pic

Un pic représente la fluctuation de la réponse du système de détection autour de l'énergie du rayonnement incident.

5.2.1. Pic en forme gaussienne

Si le pic obtenu a une forme gaussienne, on a l'allure représentée à la Figure 5-1.

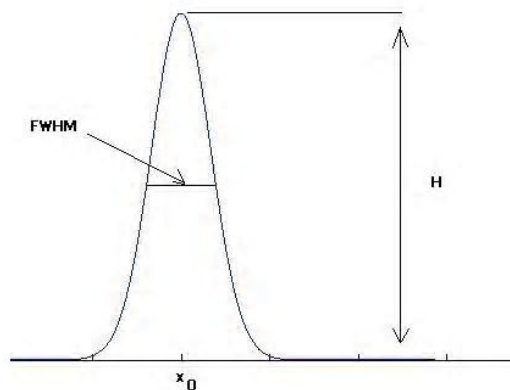


Figure 5-1: Pic en forme gaussienne

L'équation de la courbe de la figure 5-1 s'écrit :

$$y = H e^{-\frac{(i-i_0)^2}{2\sigma^2}} \quad (5-1)$$

Avec :

H : amplitude du pic

i_0 : centre du pic

σ : largeur du pic

La largeur à mi-hauteur est

$$FWHM = 2.351 \sigma$$

5.2.2. Pic en forme gaussienne modifiée

Dans le cas pratique, les photopics observés dans les spectres gamma présentent un effet d'étalement caractérisé par le paramètre de queue du côté de la basse énergie. Il a pour effet d'introduire la composante exponentielle dans la forme du pic.

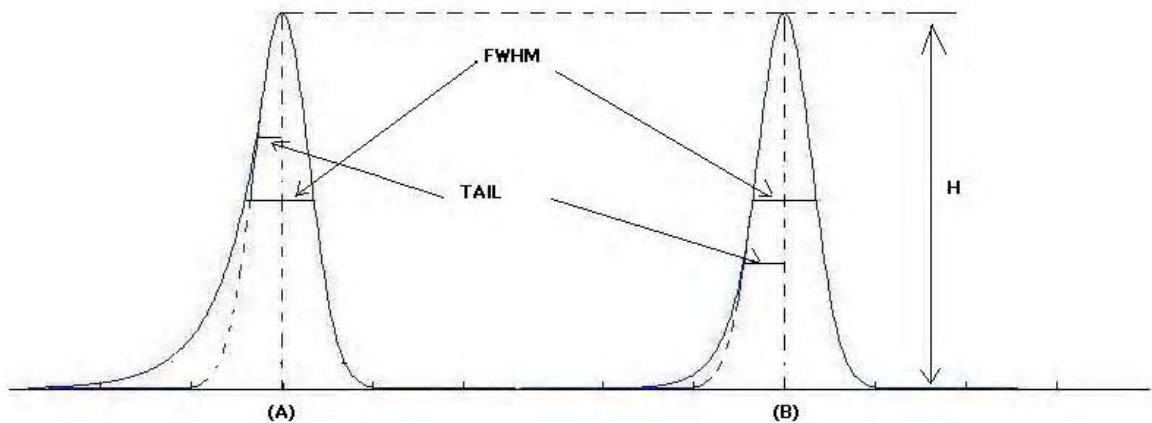


Figure 5-2: Pic avec effet de queue ou traîne

La partie dans la plus basse énergie suit une fonction exponentielle et celle de la plus haute énergie suit une fonction gaussienne. La jonction entre ces deux fonctions se trouve au point $i_0 - T$. Le pic est alors asymétrique par rapport à son centre.

L'équation regissant la forme du pic de la figure 5-2 est définie par la fonction y_i telle que :

$$y_i = \begin{cases} He^{-\frac{(i-i_0)^2}{2\sigma^2}} & i > i_0 - T \\ He^{\frac{T(2i-2i_0+T)}{2\sigma^2}} & i \leq i_0 - T \end{cases} \quad (5-2)$$

Avec :

$i_0 - T$: point de jonction entre la courbe exponentielle et la partie gaussienne.

T : le paramètre de queue (Tail), distance entre le centre du pic et le point de jonction des deux courbes.

pour $i > i_0 - T$ on a une allure gaussienne

pour $i \leq i_0 - T$ on a une allure exponentielle

H : la hauteur du pic

i_0 : le centre du pic

σ : la largeur de la gaussienne

si $T < 0.5$ FWHM alors la queue est assez prononcée comme le montre la figure (A).

si $T > 0.5$ FWHM alors la queue est faible et le point de jonction est assez loin du centre du pic, figure (B).

La fonction y_i est définie, continue et dérivable au point d'intersection $x_0 - T$.

T, x_0, σ, H , constituent les paramètres de forme d'un pic.

5.2.3. Aire nette du pic

L'aire nette du pic est l'aire comprise entre la région d'intérêt après soustraction du bruit de fond entourant le détecteur et le fond continu dans la même région d'intérêt.

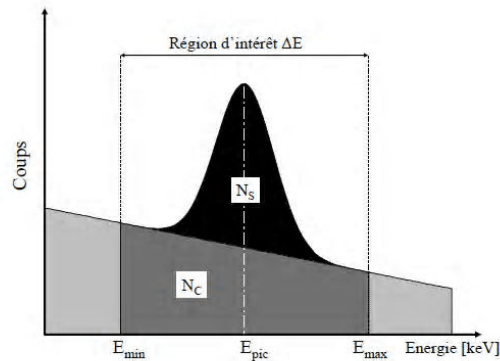


Figure 5-3: Pic isolé

N_s , en haut, représente l'aire du pic entre la région d'intérêt.

N_c , en bas, représente l'aire du fond continu entre la région d'intérêt.

L'aire nette du pic est :

$$N_s = N_{TOT} - N_c$$

N_{TOT} : Aire totale du pic dans sa région d'intérêt.

5.3. Ajustement par la méthode des moindres carrés

L'objectif de la méthode des moindres carrés est d'ajuster les données expérimentales (i, y_i) par la fonction:

$$y = g(x_1, x_2, \dots, x_n; i) \quad (5-3)$$

Notons que x_1, x_2, \dots, x_n correspondent aux paramètres de forme du pic. C'est-à-dire que pour un seul pic, le nombre de paramètres est $n=3$ et $x_1 \rightarrow H$; $x_2 \rightarrow T$; $x_3 \rightarrow \sigma$.

Calculons la somme des carrés des écarts entre les valeurs observées et les valeurs calculées (Equation 5-4).

$$f(x_1, x_2, \dots, x_n) = \sum_{i=1}^m [y_i - g(x_1, x_2, \dots, x_n ; i)]^2 \quad (5-4)$$

m : nombre de canal dans la région d'intérêt

n : nombre de paramètres à estimer

y_i : coups correspondant au canal i

Le problème est de déterminer les valeurs des paramètres de forme du pic telles que $y = g(x_1, x_2, \dots, x_n ; i)$ reproduise le mieux les observations.

Appliquons à la fonction objectif f une optimisation pour déterminer les meilleures valeurs de paramètres de forme x_1, x_2, \dots, x_n . Un problème d'optimisation globale est la recherche du minimum de la fonction $f(x_1, x_2, \dots, x_n)$.

La formulation mathématique de l'optimisation est :

$$\min f(x_1, x_2, \dots, x_n) \quad (5-5)$$

Dans son cadre général, l'optimisation d'une fonction permet de rechercher l'ensemble de paramètres permettant d'obtenir le meilleur résultat.

5.4. Ordre d'une méthode de résolution

Les méthodes de résolution peuvent être classées à partir de leur ordre selon qu'elles nécessitent ou non le calcul des dérivées de la fonction objectif par rapport aux paramètres [19]. Une méthode est dite d'ordre zéro si elle utilise uniquement la connaissance de la fonction elle-même. Elle est d'ordre un si elle requiert le calcul des dérivées premières et d'ordre deux s'il lui faut aussi accéder aux dérivées secondes.

5.5. Recherche de l'optimum par la méthode de Nelder-Mead

5.5.1. La méthode de Nelder-Mead

La méthode de Nelder-Mead est fondée par Nelder, J.A et Mead, R. en 1965 [20]. C'est la généralisation de la méthode du simplexe, classée dans la méthode d'optimisation déterministe.

C'est une optimisation non linéaire qui présente deux avantages. D'une part, elle ne nécessite pratiquement aucune information sur la fonction objectif à optimiser : on n'a pas besoin de connaître son gradient ni sa matrice hessienne ou d'être différentiable. Mais simplement la possibilité de pouvoir l'évaluer en différents points. C'est donc un outil de recherche directe et d'ordre zéro. D'autre part, elle présente en pratique, assez souvent, des performances satisfaisantes.

La méthode de minimisation de Nelder-Mead est basée sur la comparaison des valeurs de la fonction dans les (n+1) sommets d'un simplexe général.

5.5.2. Minimisation par la méthode de Nelder-Mead

Le problème posé est identique à celui qui a été discuté au chapitre précédent : il faut trouver la valeur du vecteur \vec{T} des paramètres qui minimise la quantité f définie à l'équation (5-4). Cette méthode utilise la notion de simplexe dans R^n , qui n'est autre qu'un ensemble de n+1 points de R^n . Par exemple pour n=2, les sommets d'un triangle forment un simplexe [21].

On note $\vec{T} = (x_1, x_2, \dots, x_n)$ le vecteur des paramètres de forme. Pour alléger la notation, nous allons remplacer le vecteur \vec{T} par T .

La méthode présentée ici calcule la valeur de f (équation 5-4) aux différents points d'un simplexe dont l'origine se trouve en T_0 , T_0 est l'estimation initiale des n paramètres.

La méthode est basée sur les 4 opérations: réflexion, expansion, contraction, rétrécissement. La méthode utilise alors quatre paramètres : le coefficient de réflexion ρ , le coefficient d'expansion χ , le coefficient de contraction γ et le coefficient de rétrécissement σ . Ces coefficients sont choisis de façon à satisfaire les conditions:

$$\rho > 0, \chi > 1, \chi > \rho, 0 < \gamma < 1, 0 < \sigma < 1$$

En pratique on prend : $\rho=1, \chi=2, \gamma=1/2, \sigma=1/2$.

Les étapes de calcul s'effectuent de la manière suivante:

- Etape 1 : positionnement des sommets initiaux du simplexe

Haftka & Gürdal (1993) [21] suggèrent l'équation (5-6) pour positionner les sommets d'un simplexe de taille a autour de l'origine T_0

$$T_i = T_0 + pe_i + \sum_{k=1}^n qe_k, \text{ pour } k \neq i \text{ et } i=1, \dots, n \quad (5-6)$$

$$\text{Avec } p = \frac{a}{\sqrt{2}}(\sqrt{n+1} + n - 1) \text{ et } q = \frac{a}{\sqrt{2}}(\sqrt{n+1} - 1)$$

e_i : vecteur unitaire de la base

Après avoir formé le simplexe de départ $\Delta^{(0)}$, la méthode met à jour ce simplexe à chaque itération à l'aide d'un ensemble de règle assez simple. On suppose que $\Delta^{(k)}$ à l'itération k consiste en les points $T_1^{(k)}, T_2^{(k)}, T_3^{(k)}, \dots, T_{n+1}^{(k)}$. Le dernier point est T_0 .

- Etape 2: arrangement en ordre croissant des $n+1$ points

On note $f_i^{(k)}$ la valeur de la fonction objectif au point $T_i^{(k)}$. On supposera en outre que les points $T_i^{(k)}$ sont ordonnés par valeurs croissantes de la fonction objectif, c'est-à-dire $f_1^{(k)} \leq f_2^{(k)} \leq \dots \leq f_{n+1}^{(k)}$. On peut dire que $T_1^{(k)}$ est donc le meilleur point disponible.

On effectue l'itération du simplexe $\Delta^{(k)}$ en initialisant par $k=0$.

- Etape 3 : Calcul du centre de gravité \bar{T} des sommets du simplexe sauf la plus grande valeur, selon la formule (5-7) suivante.

$$\bar{T} = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n T_i^{(k)} \quad (5-7)$$

- Etape 4 : réflexion.

On calcule le point de réflexion T_r selon la formule suivante :

$$T_r = \bar{T} + \rho(\bar{T} - T_{n+1}^{(k)}) = (1 + \rho)\bar{T} - T_{n+1}^{(k)} \quad (5-8)$$

On calcule ensuite $f_r = f(T_r)$.

- Si $f_1^{(k)} \leq f_r \leq f_n^{(k)}$, on accepte le point réfléchi. Accepter un point signifie faire entrer ce point dans le simplexe et en retirer la plus grande valeur. C'est-à-dire remplacer le point T_{n+1} par le meilleur point. Ensuite on fait le test de convergence de l'étape 8.

- Si $f_r < f_1^{(k)}$, on procède à l'étape d'expansion.

- Si $f_r > f_n$, on passe à l'étape de contraction.

- Etape 5 : expansion.

On se trouve dans le cas où $f_r < f_1^{(k)}$, on calcul le point d'expansion T_e selon la formule (5-9).

$$T_e = \bar{T} + \chi(T_r - \bar{T}) = \bar{T} + \rho\chi(T_r - \bar{T}) = (1 + \rho\chi)\bar{T} - \rho\chi T_{n+1}^{(k)} \quad (5-9)$$

On calcule $f_e = f(T_e)$,

- Si $f_e < f_r$, on accepte T_e , c'est-à-dire on remplace T_{n+1} par T_e . Sinon on accepte T_r , c'est à dire on garde T_r à la place de T_{n+1} . On effectue le test de convergence de l'étape 8.

- Etape 6 : contraction.

On se trouve dans le cas $f_r > f_n$. La contraction va s'effectuer entre \bar{T} et $T_{n+1}^{(k)}$. Plus spécifiquement, on procède de la façon suivante:

- Si $f_n \leq f_r \leq f_{n+1}^{(k)}$, on effectue une contraction extérieure. Dans le cas contraire, on effectue la contraction intérieure.

Pour la contraction extérieure, on calcule les expressions:

$$T_c = \bar{T} + \gamma(T_r - \bar{T}) = \bar{T} + \rho\gamma(\bar{T} - T_{n+1}^{(k)}) = (1 + \rho\gamma)\bar{T} - \rho\gamma T_{n+1}^{(k)} \quad (5-10)$$

et $f_c = f(T_c)$.

- Si $f_c \leq f_r$, on remplace T_{n+1} par T_c et on effectue le test de convergence de l'étape 8, sinon on passe directement à l'étape de rétrécissement.

- Il ne nous reste plus que le cas où $f_r \geq f_{n+1}^{(k)}$. On calcule le point de contraction intérieure de l'équation (5-11).

$$T_{cc} = \bar{T} - \gamma(\bar{T} - T_{n+1}^{(k)}) = (1 - \gamma)\bar{T} + \gamma T_{n+1}^{(k)} \quad (5-11)$$

et $f_{cc} = f(T_{cc})$.

▪ Si $f_{cc} < f_{n+1}^{(k)}$, on accepte le point T_{cc} et on effectue le test de convergence de l'étape 8, sinon on passe à l'étape de rétrécissement.

- Etape 7 : rétrécissement.

L'étape de rétrécissement consiste à calculer de nouveau les sommets du simplexe en utilisant l'équation (5-12) pour $i=2, 3, \dots, n+1$.

$$V_i = T_1^{(k)} + \sigma(T_i^{(k)} - T_1^{(k)}) \quad (5-12)$$

Le nouveau simplexe est alors constitué des points $T_1^{(k)}, V_2^{(k)}, V_3^{(k)}, \dots, V_{n+1}^{(k)}$. On remplace les points $V_2^{(k)}, V_3^{(k)}, \dots, V_{n+1}^{(k)}$ respectivement par $T_2^{(k)}, T_3^{(k)}, \dots, T_{n+1}^{(k)}$ et on effectue le test de convergence.

- Etape 8 : test de convergence.

La fonction de convergence est :

$$d = |f_{n+1} - f_1| \quad (5-13)$$

Le calcul s'achève quand les valeurs des fonctions aux sommets sont proches, c'est-à-dire $d < \varepsilon$ avec $\varepsilon = 10^{-20}$. Sinon on reprend l'étape 2.

Il est intéressant de constater qu'en pratique, les étapes de rétrécissement surviennent rarement.

Illustration de la méthode pour le cas de $R^n=R^2$:

Les figures suivantes montrent, en 2 dimensions, les opérations que le simplexe subit dans la méthode de Nelder-Mead. Le simplexe original ou initial est représenté par des traits discontinus, et + représente le barycentre des sommets hormis la plus grande valeur.

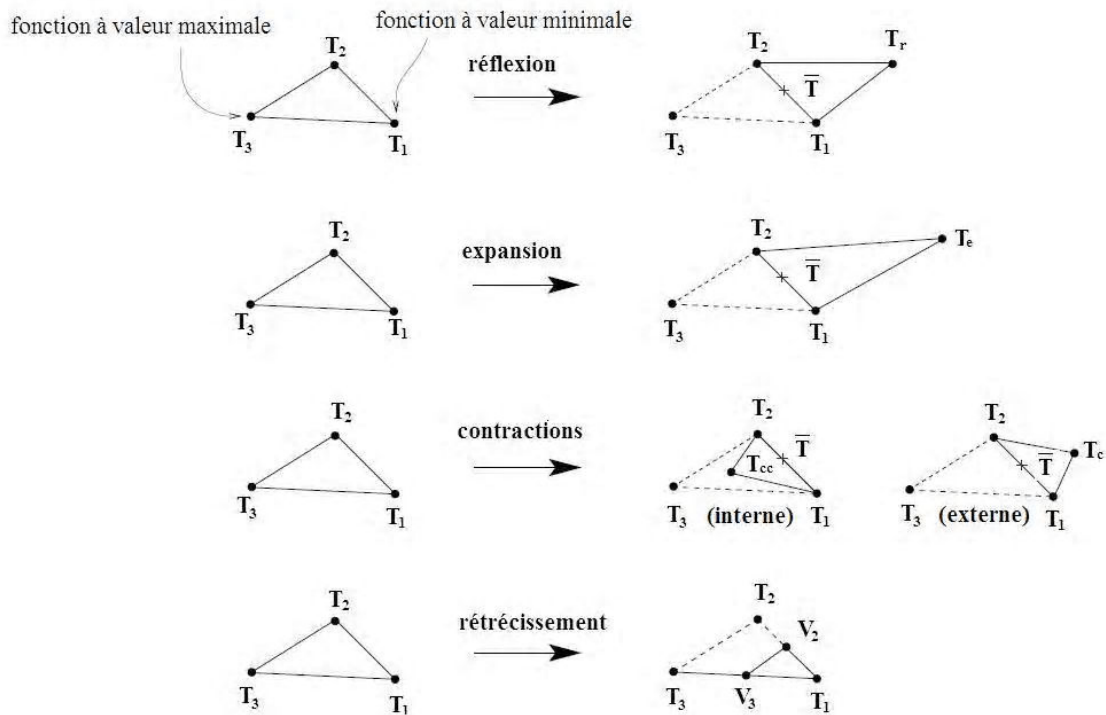


Figure 5-4: Opérations que le simplexe subit dans la méthode de Nelder-Mead.

La méthode qu'on a décrite est transformée en algorithme dans la section 5-5-3 suivante.

5.5.3. Algorithme de déconvolution de spectres

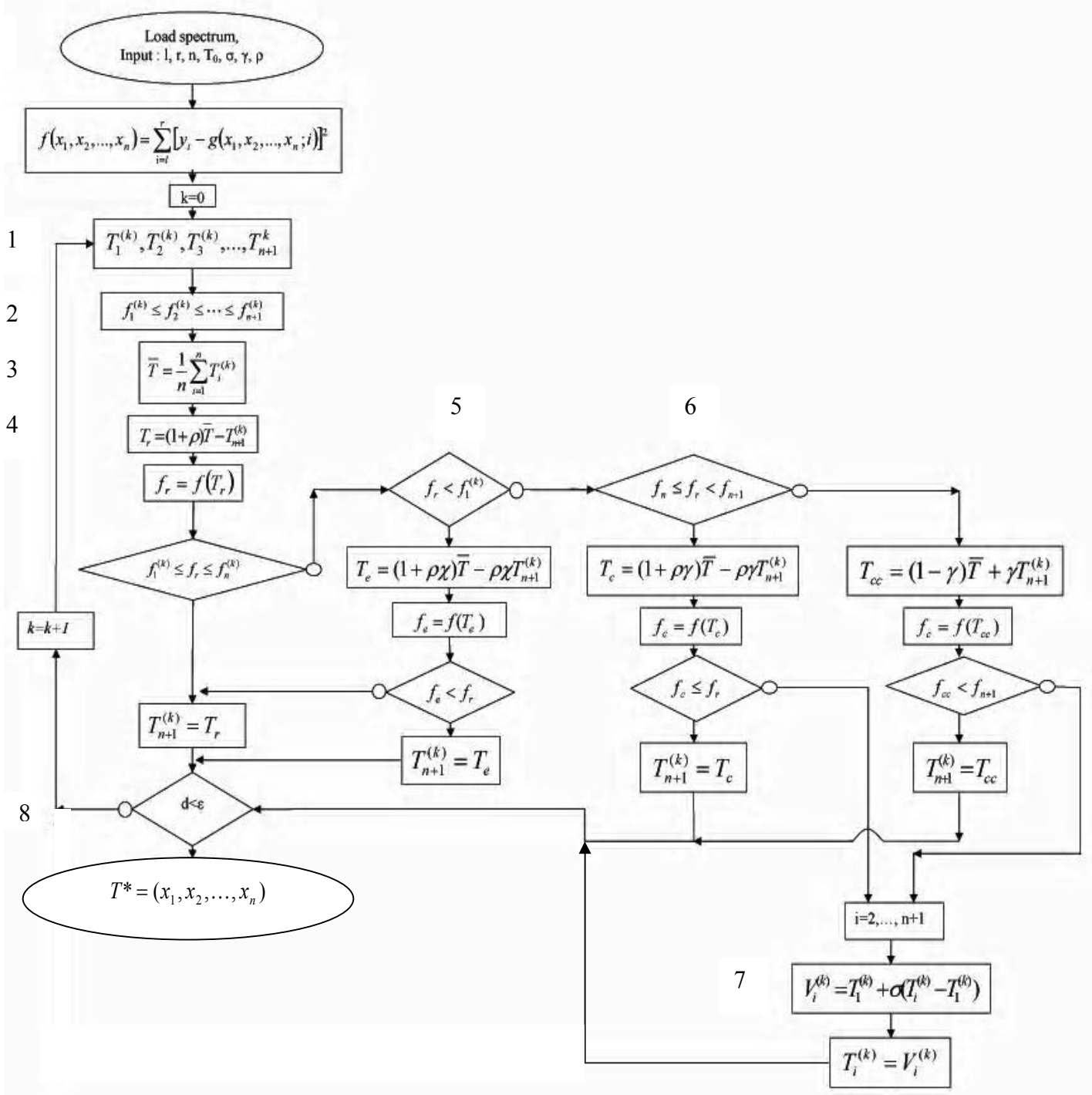

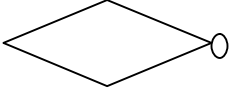



Figure 5-5: Algorithme de déconvolution des spectres d'énergies gamma

Les numérotations indiquent les différentes étapes de la méthode de Nelder-Mead.

Le tableau 5-1 montre le sens des symboles de l'organigramme:

Tableau 5-1: Signification des symboles de l'organigramme

Symbole	Désignation
	Opération ou groupe d'opération sur des données.
	Test, exploitation de conditions variables impliquant un choix parmi plusieurs.
	Début, fin, interruption d'un algorithme.

5.6. La qualité du lissage

Pour déterminer la qualité du lissage, on doit effectuer le test de fiabilité du programme de déconvolution en calculant le résidu et le Figure of Merit.

5.6.1. Le résidu

Le résidu dans chaque canal est défini par

$$R_i = 100 \times \frac{C_i^{réel} - C_i^{lissage}}{C_i^{réel}} \quad (\%) \quad (5-14)$$

Avec :

i : numéro du canal compris entre la région d'intérêt.

$C_i^{réel}$: points expérimentaux dans le canal i .

$C_i^{lissage}$: lissage dans le canal i .

On remarque que d'après la littérature [22], le programme de déconvolution est acceptable si les écarts relatifs se trouvent entre -0,2 et 0,2 c'est-à-dire la valeur absolue de l'écart est inférieur à 20%.

5.6.2. F.O.M (Figure of Merit)

Le F.O.M est une autre possibilité pour la mesure de la fiabilité du test d'ajustement. Elle est définie par:

$$FOM = \sum_{i=1}^r \frac{100 |C_i^{réel} - C_i^{lissage}|}{A} (\%) \quad (5-15)$$

Où A est l'aire du pic déconvolué.

Dans la région d'intérêt, une valeur du F.O.M de l'ordre de 5% représente un bon ajustement [16].

5.6.3. Structure du programme de déconvolution

La structure du programme de déconvolution est illustrée par l'organigramme de la figure 5-6.

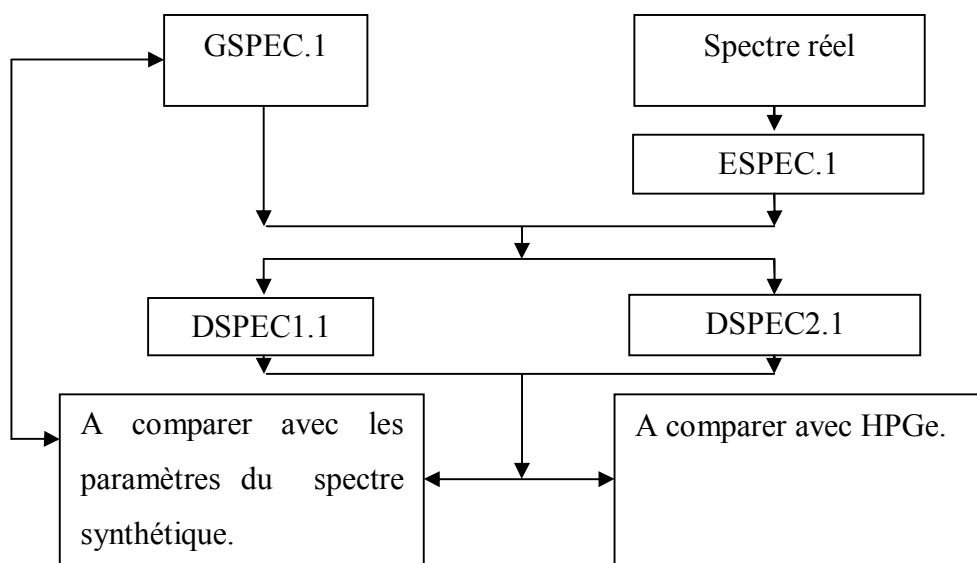


Figure 5-6: Structure du programme de déconvolution

Le tableau 5-2 montre les informations concernant les programmes de traitement de spectres.

Tableau 5-2: Programmes de traitement des spectres.

Nom	Fonction	Entrée	Sortie
GSPEC.1	Générateur de spectre synthétique	Paramètres initiaux des pics à créer : centre, FWHM, T, H. Paramètre de la composante aléatoire.	Spectre synthétique.
ESPEC.1	Etalonnages en paramètres de forme	Spectre réel d'étalonnage. Conditions initiales des paramètres de forme.	Paramètres de forme en fonction de l'énergie.
DSPEC1.1	Lissage d'un pic simple	Spectre réel Paramètres d'étalonnage : formes, énergie. Région d'intérêt à traiter.	Information sur les pics lissés : aire nette du pic, FWHM, σ , centre, T, H.
DSPEC2.1	Déconvolution d'un multiplet	Spectre réel Paramètres d'étalonnage : formes, énergie. Région d'intérêt à traiter Nombre de pic dans la région d'intérêt.	Aire nette des n pics déconvolués.

Chapitre 6. TEST DE QUALITE PAR SIMULATION EN SPECTRE SYNTHETIQUE.

6.1. Spectre synthétique

Un spectre synthétique est un spectre construit à partir des paramètres de forme que l'on choisit, c'est-à-dire des paramètres connus au préalable. Le but est de tester la fiabilité de la technique de lissage par des simulations avant d'effectuer une mesure avec des échantillons.

6.2. Logiciel de programmation utilisé : MATLAB 7.6

6.2.1. Généralités sur Matlab

Matlab est un langage de calcul scientifique de haut niveau. Il offre un environnement interactif pour le développement d'algorithmes, la visualisation et l'analyse de données, ou encore le calcul numérique. En utilisant Matlab, on peut résoudre des problèmes de calcul scientifique plus rapidement qu'avec les langages de programmation traditionnels, tels que C, C++ et Fortran [23].

On peut utiliser Matlab dans une grande variété d'applications, incluant le traitement du signal et d'images, la télécommunication, la conception de systèmes de contrôle, les tests et les mesures, la modélisation et l'analyse financière, ainsi que la biologie informatique. Des boîtes à outils supplémentaires élargissent l'environnement Matlab pour résoudre des catégories particulières de problèmes dans ces domaines d'applications. Le code Matlab s'intègre avec d'autres langages et applications.

6.2.2. Utilisation de Matlab

Dans ce travail, nous utilisons le logiciel Matlab 7.6 qui est la version récente de Matlab. Le logiciel Matlab consiste en un langage interprété qui se fait dans une fenêtre dite d'exécution. L'intérêt de Matlab tient, d'une part, à sa simplicité d'utilisation : pas de déclaration implicite des variables utilisées ; et d'autre part, à sa richesse fonctionnelle : possibilité arithmétique matricielle et disponibilité de nombreuses fonctions de haut niveau dans divers domaines.

Matlab peut être utilisé soit en mode en ligne, en saisissant les commandes dans la fenêtre d'exécution au fur et à mesure, soit en mode programmation, en écrivant dans des fichiers séparés l'enchaînement des commandes. Ces fichiers s'appellent des scripts et on les construit à l'aide de n'importe quel éditeur de texte. Le mode en ligne permet d'obtenir des résultats simples qui ne sont pas sauvegardés. Le mode programmation, quant à lui, permet de développer des applications très complexes.

6.3. Justification de la forme adéquate des pics

On effectue des mesures avec les raies des sources de cobalt-60 et de césium-137 pour déterminer la forme adéquate des pics avant de construire le spectre synthétique.

La source est posée directement au dessus du détecteur, la distance source-détecteur est donc négligeable. La durée de comptage est de 3600 s.

6.3.1. Caractéristique des sources ponctuelles

Les caractéristiques des sources ponctuelles se trouvent dans le Tableau 6-1 suivant.

Tableau 6-1: Caractéristiques des sources ponctuelles cobalt-60 et césium-137

Sources ponctuelles	Energies	Période (Années)	Activités le 01/07/1983
cobalt-60	1173,2 keV et 1332,5 keV	5,21	409,5 kBq
césium-137	661,5 keV	30	448,5 kBq

6.3.2. Exportation et Importation des données

A partir du logiciel Scintivision, les données spectrales sont converties en code ASCII puis sauvegardées sous le format texte d'extension .txt.

En procédant ainsi, on peut traiter les données spectrales sous Matlab7.6.

6.3.3. Description des programmes de déconvolution.

Le programme DSPEC1.1 permet d'effectuer le lissage d'un seul pic et DSPEC2.1 permet de déconvoluer les multiplets. Ces programmes contiennent le calcul des paramètres de forme d'un pic, l'aire nette, le calcul des résidus et de la FOM, la validation de la forme adéquate des pics entre la forme gaussienne et la forme gaussienne modifiée, ainsi que l'affichage des graphes. Ces programmes se trouvent en annexe 4.

6.3.4. Mesure avec le cobalt-60

Les figures suivantes montrent le lissage des deux pics du cobalt-60 afin de vérifier la forme adéquate aux pics d'énergie gamma issus d'un détecteur NaI(Tl).

Lissage du pic du ^{60}Co en forme gaussienne

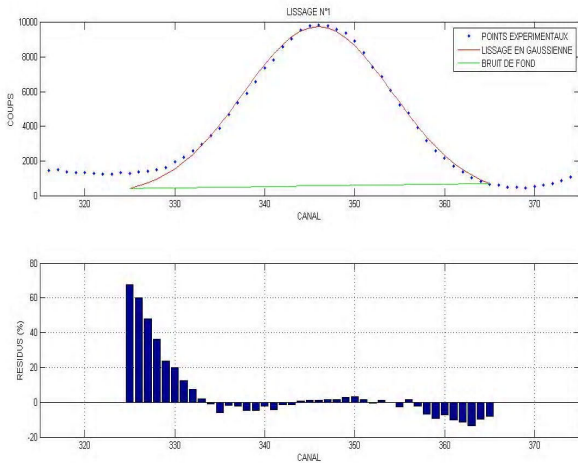


Figure 6-1 : Pic du ^{60}Co à l'énergie 1173,2 keV ; FOM=4,48%

Lissage du pic du ^{60}Co en forme gaussienne modifiée

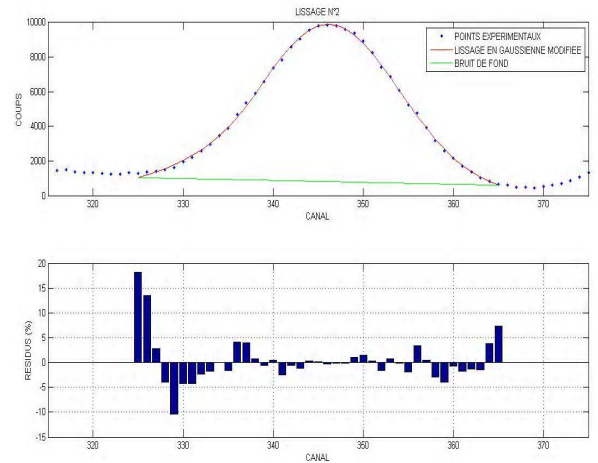


Figure 6-2 : Pic du ^{60}Co à l'énergie 1173,2 keV ; FOM=1,57%

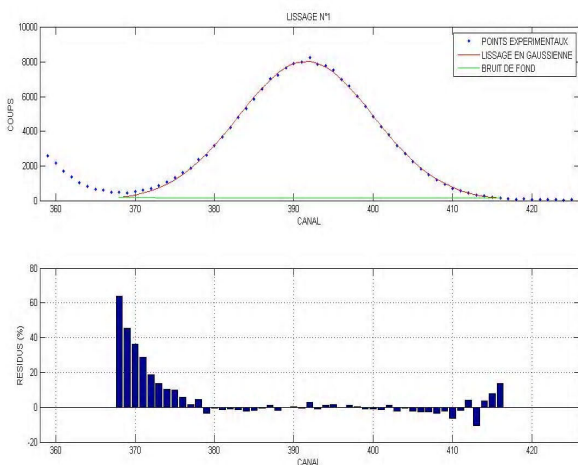


Figure 6-3 : Pic du ^{60}Co à l'énergie 1332,5 keV ; FOM=2,12%

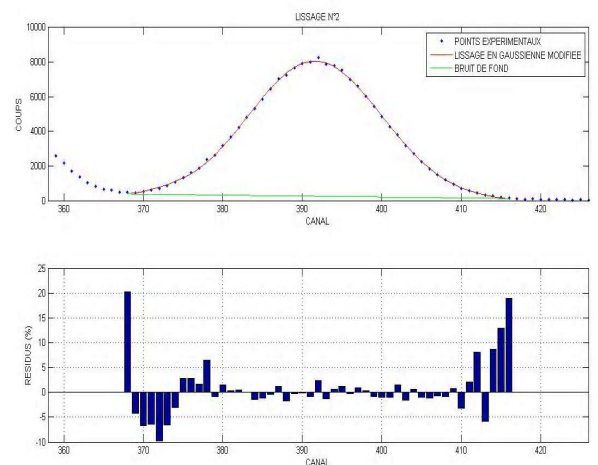


Figure 6-4 : Pic du ^{60}Co à l'énergie 1332,5 keV ; FOM=1,30%

6.3.5. Conclusion

L'étude précédente nous a permis d'effectuer la comparaison du résultat du lissage utilisant la forme gaussienne modifiée et la forme gaussienne simple et les résidus du lissage avec la gaussienne atteignent les 60%, ils sont inférieurs à 20% pour la gaussienne modifiée. Ce qui signifie que l'existence du paramètre de queue n'est pas négligeable.

Ainsi, on doit considérer la forme gaussienne avec étalement. Une étude similaire avec la raie du ^{137}Cs se trouve en annexe 2 et nous avons obtenu la même forme appropriée au pic.

6.4. Simulation à la déconvolution des multiplets

6.4.1. Construction des spectres synthétiques

On utilise le programme GSPEC.1, ce programme génère des spectres aléatoires pour construire le spectre synthétique avec du fond continu en utilisant la commande randn. Les coups notés N dans chaque canal sont construits avec une fluctuation de 3σ avec $\sigma = \sqrt{N}$.

Ce programme se trouve en annexe 3.

6.4.2. Nombre de paramètre de forme à calculer

Le nombre de paramètres à estimer augmente au fur et à mesure que le nombre de pic dans la région de convolution s'accroît. On utilise la forme gaussienne modifiée avec 4 paramètres à estimer pour un seul pic. Si on a n pics dans la région de convolution alors on a $n \times 4$ paramètres à estimer.

En spectrométrie, l'énergie du centre du pic est déjà connue, dans ce cas il ne nous reste plus que déterminer $n \times 3$ paramètres. Cette diminution du nombre de paramètres augmente la qualité du lissage et diminue le coût de calcul et donc une vitesse de convergence améliorée.

6.4.3. Procédure de test par spectre synthétique

6.4.3.1. Paramètres de test par spectre synthétique

Le test est effectué en se basant sur les trois paramètres :

- Niveau de comptage
- Distance entre pics
- Rapport signal sur fond continu

On varie le niveau de comptage en base 10 de 10^1 à 10^4 . Pour chaque niveau de comptage, on fait varier la distance entre pic pour avoir un rapport distance sur FWHM égal à 2^n ($n=-3, -2, \dots, 2$) et un rapport signal sur fond continu égal à 2^n ($n=-3, -2, \dots, 3$).

Le tableau 6-2 donne la procédure du test pour deux pics.

Tableau 6-2 : Procédure de test par spectre synthétique.

R \ r	2^{-3}	2^{-2}	2^{-1}	2^0	2^1	2^2
2^{-3}	O					
2^{-2}		O				O
2^{-1}			O		O	
2^0				O		
2^1			O		O	
2^2		O				O
2^3	O					

R=rappport signal sur fond continu et r=rappport distance sur FWHM

6.4.3.2. Explication du tableau 6-2 :

- Partie rouge : les pics sont noyés par le fond continu et confondus.
- Partie jaune : les pics sont noyés par le fond continu mais séparés.
- Partie grise : les pics sont nets mais confondus.
- Partie bleue : les pics sont nets et séparés.
- Partie verte : on a un rapport $R=1$ et $r=1$.
- Partie blanche : les conditions sont soit le rapport $R=1$ soit $r=1$.

6.4.3.3. Nombre de test pour le spectre synthétique:

Selon le tableau 6-2, le nombre de test doit être 7x6 c'est-à-dire 42 tests pour chaque niveau de comptage. Alors on devait avoir 4 x 42 c'est-à-dire 168 tests. On voit que 168 tests s'avèrent très lourd, alors on doit réduire le nombre de test en choisissant le test nécessaire pour chaque partie du tableau. Les tests nécessaires sont marqués par des ronds, ce qui nous donne 11x4 c'est-à-dire 44 tests.

6.4.4. Niveau de comptage à 10^1 coups

La déconvolution pour le niveau de comptage 10^1 est impossible quels que soient les rapports R et r, les pics sont totalement noyés par le fond continu.

Exemple de lissage pour $R=2^0$ et $r=2^0$:

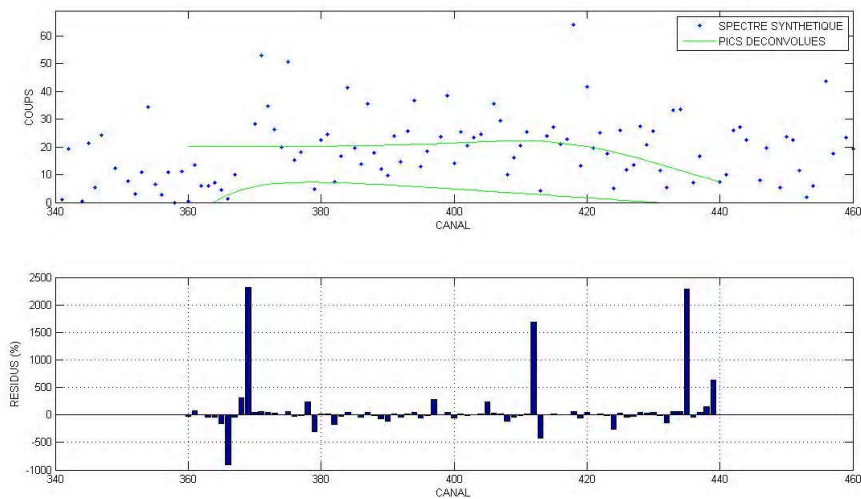


Figure 6-5: Lissage pour 10^1 coups, $R=1$, $r=1$

6.4.5. Niveau de comptage à 10^2 coups

La déconvolution est possible mais la qualité du lissage est mauvaise avec des résidus atteignant les $25 \cdot 10^4$ %. Les pics sont encore en confusion avec le fond continu. La figure 6-6 montre l'exemple de lissage pour $R=2^0$ et $r=2^0$, le FOM obtenu est 30%.

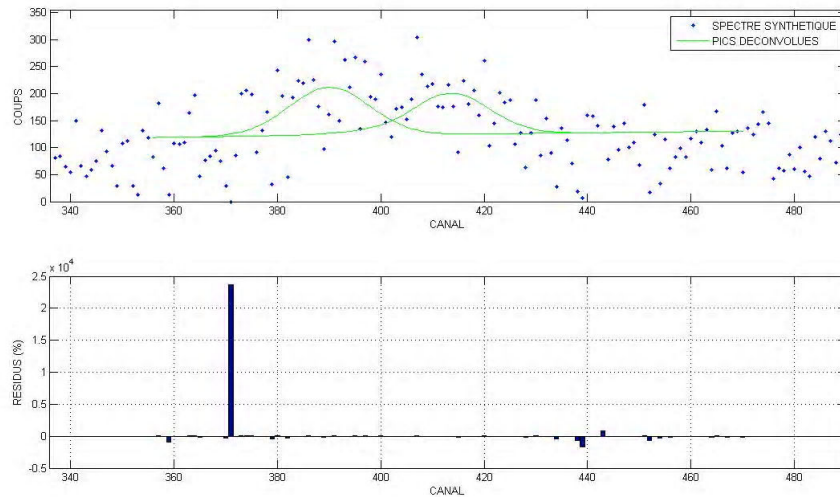


Figure 6-6: Lissage pour $R=2^0$ et $r=2^0$

Le résultat commence à être acceptable lorsque les pics sont nets et séparés. La figure 6-7 montre le cas de $R=2^1$, $r=2^1$.

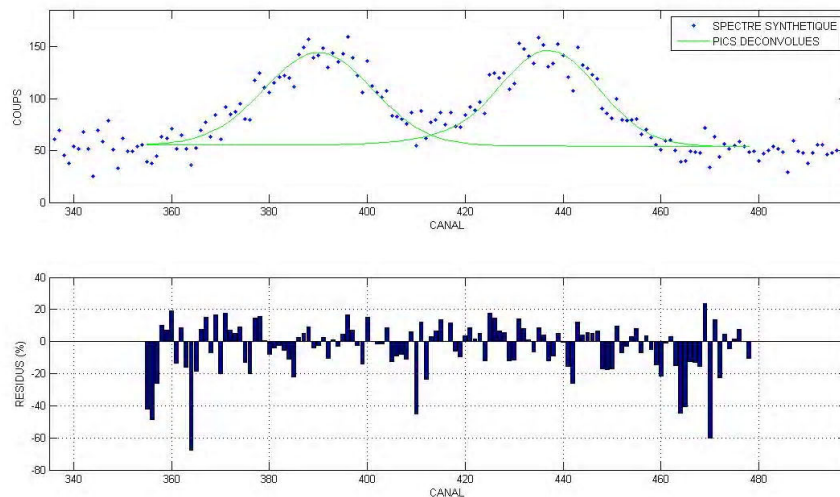


Figure 6-7: Lissage pour $R=2^1$ et $r=2^1$, avec un FOM=6%

6.4.6. Niveau de comptage à 10^3 coups

Le résultat de la déconvolution est acceptable pour toutes les conditions:
La figure 6-8 montre un exemple de lissage pour $R=2^0$, $r=2^0$;

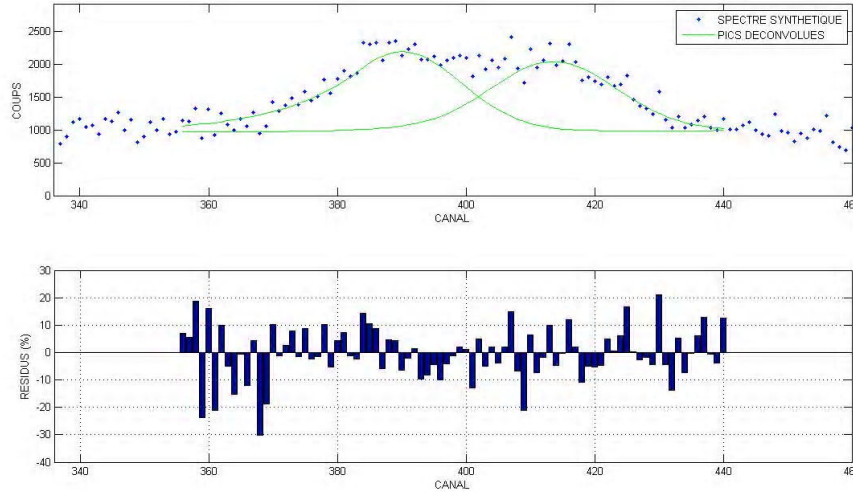


Figure 6-8: Lissage pour $R=2^0$, $r=2^0$ avec un FOM=5%

6.4.7. Niveau de comptage à 10^4 coups

Le résultat du lissage est toujours acceptable quelles que soient les conditions pour R et r . La figure 6-9 montre un exemple de lissage pour $R=2^1$ et $r=2^1$.

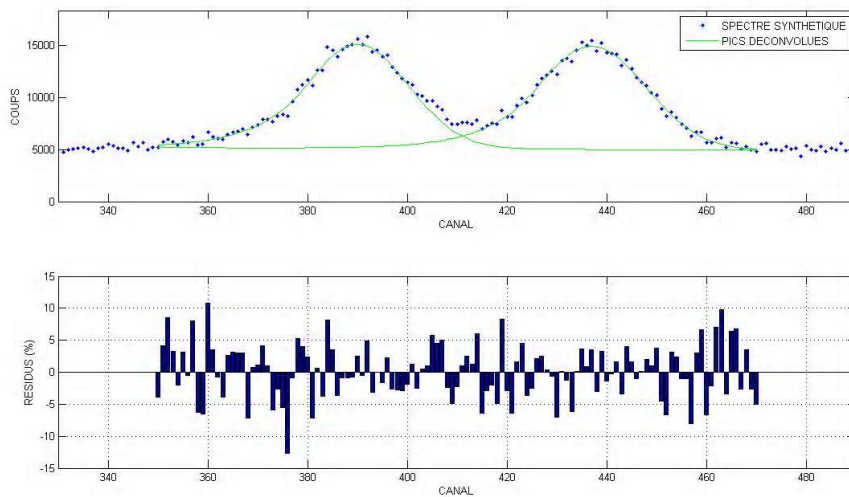


Figure 6-9: Lissage pour $R=2^1$ et $r=2^1$ avec un FOM=3%

6.4.8. Résultats du lissage de deux pics en considérant les 3 paramètres de test.

Le tableau 6-3 illustre les résultats du lissage de deux pics synthétiques.

Tableau 6-3: Résultats de lissage de 2 pics en fonction des 3 paramètres de test.

Rapports		10 coups		100 coups		1000 coups		10000 coups	
S/FC	d/FWHM	FOM (%)	Résidus (%)	FOM (%)	Résidus (%)	FOM (%)	Résidus (%)	FOM (%)	Résidus (%)
2^{-3}	2^{-3}	40	$\pm 12.10^2$	11	± 50	5	± 20	2	± 6
2^{-2}	2^{-2}	42	$\pm 15.10^2$	15	± 70	5	± 20	2	± 5
2^{-1}	2^{-1}	60	$\pm 40.10^2$	20	± 70	5	± 20	2	± 6
2^0	2^0	57	$\pm 25.10^2$	30	$\pm 25.10^4$	5	± 20	3	± 7
2^3	2^3	70	$\pm 10.10^2$	22	$\pm 12.10^2$	3	± 15	3	± 20
2^2	2^2	108	$\pm 35.10^2$	31	$\pm 15.10^2$	5	± 20	3	± 15
2^1	2^1	74	$\pm 25.10^2$	8	± 40	5	± 20	3	± 15
2^1	2^{-1}	55	$\pm 40.10^2$	21	$\pm 20.10^2$	5	± 20	2	± 7
2^2	2^{-2}	46	$\pm 80.10^2$	14	± 70	5	± 15	2	± 6
2^1	2^1	81	$\pm 40.10^3$	7	± 60	5	± 20	3	± 10
2^2	2^2	105	$\pm 12.10^3$	6	± 50	6	± 20	4	± 20

Pour 10 coups le programme ne peut pas déconvoluer car la confusion des pics avec le fond continu est très important. Pour 100 coups le programme peut déconvoluer à partir de $r \geq 2^1$ et $R \geq 2^1$. A 1000 et 10 000 coups, le programme n'a pas de problème pour déconvoluer: le lissage est toujours acceptable.

Les spectres synthétiques sont construits avec une composante aléatoire 3σ . On peut lisser les pics à 100 coups si le spectre synthétique est construit avec une composante aléatoire de 1σ ou 2σ .

Le lissage est bon lorsque le nombre de coups est élevé. Nous pouvons dire que la durée de comptage doit être assez élevée si on veut obtenir des résultats optimaux pour la mesure avec des échantillons.

Les conditions qui sont proches de la réalité seront testées pour la déconvolution des multiplets contenant plus de deux pics.

6.4.9. Simulation à la déconvolution de 3 et 4 pics

Nous allons prendre les conditions proche de la réalité c'est à dire $d/\text{FWHM}=2^0$ et $S/\text{FC}=2^{-1}, 2^0, 2^1$. Le niveau de comptage est de 10^3 .

Les figures 6-10 et 6-11 représentent respectivement des exemples de lissage de 3 et 4 pics.

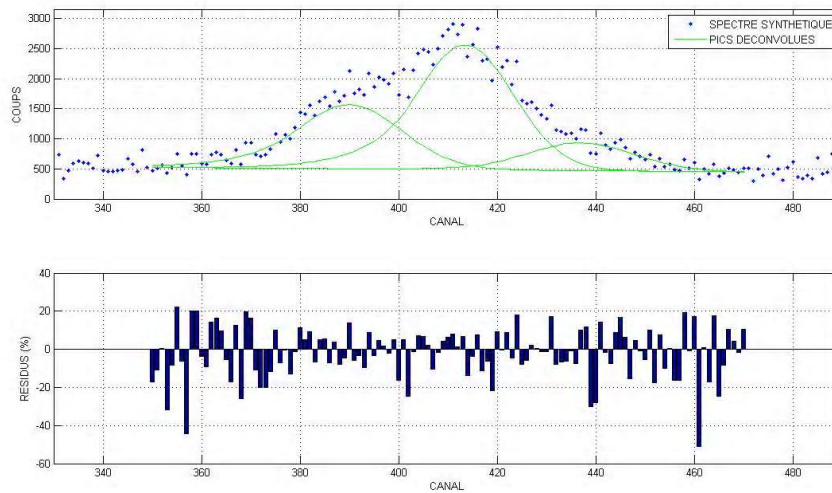


Figure 6-10: Lissage de 3 pics avec un FOM= 7,37 %

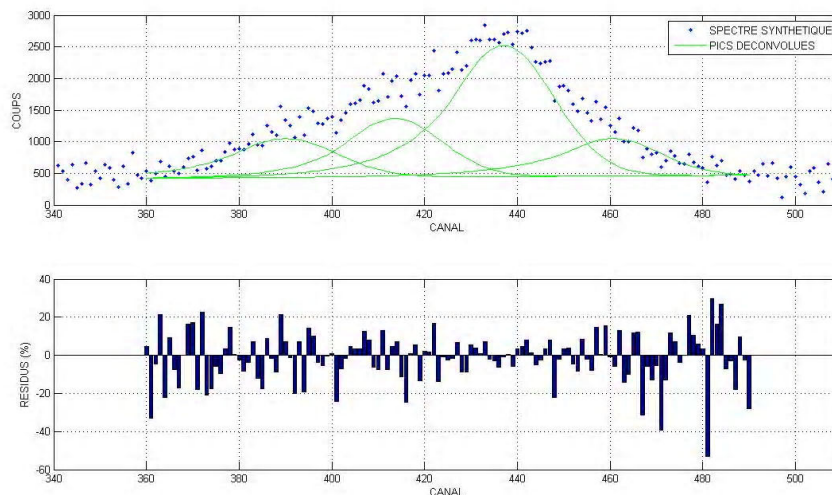


Figure 6-11: Lissage de 4 pics avec un FOM=8%

6.5. Conclusion

On remarque que la qualité du lissage diminue si le nombre de pics dans la région de convolution augmente. Il est à noter aussi que les paramètres de simulations du spectre tels que : la largeur du pic σ , le paramètre de queue T , la hauteur du pic H , le rapport *distance/FWHM* et le rapport *S/FC* étaient choisis de façon à se rapprocher de la réalité. Les spectres sont construits avec une composante aléatoire 3σ . Les résultats de lissage des spectres réels ne doivent pas être loin de ces simulations.

L'étude dans ce chapitre nous a permis de tester la fiabilité du programme en générant des spectres synthétiques. Le programme ne peut pas déconvoluer des pics avec des taux de comptage inférieur à 100 coups si la fluctuation des coups est de 3σ et le rapport *distance/FWHM* est inférieur à 2^1 et/ou le rapport *S/FC* est inférieur à 2^1 (Tableau 6-3 de la page 68). Pourtant, le programme peut dépasser cette limite si on diminue la composante aléatoire.

Le paramètre le plus sensible au programme de déconvolution est le rapport *S/FC*. Lorsque le niveau de comptage est très faible, le signal utile est tellement noyé dans le fond continu, ceci à cause de la composante aléatoire 3σ .

Pour palier à ce problème, on doit augmenter le temps d'acquisition lorsqu'on effectue la mesure avec des échantillons.

Chapitre 7. MESURE ET ANALYSE DES SPECTRES GAMMA

7.1. Matériels utilisés

7.1.1. La chaîne de comptage

La chaîne de comptage utilisée est le digiBASE de ORTEC. Elle est constituée d'un détecteur et des dispositifs électroniques associés constitués du préamplificateur, de l'amplificateur, de l'ADC et du MCA intégrés dans un seul module de masse 250 g, de taille de 63 mm de diamètre et de longueur 80 mm.



Figure 7-1: DigiBASE [24]

Ce module est fixé et enfermé à l'intérieur d'un château de plomb pour être protégé contre la perturbation de la radioactivité à l'entourage du détecteur.

Caractéristique technique de DigiBASE :

Détecteur : Cristal NaI(Tl)

Tube photomultiplicateur contenant 14 étages de dynodes

Générateur de haute tension variant de 0V à 1200V avec une intensité maximale de 500 mA. Il est commandé via le port USB de l'ordinateur.

Gain de conversion : 1024 Canaux

Gain d'amplification: 0,4-1,2

Temps mort : <5% à 50 000 coups

Le logiciel de commande et d'acquisition est Scintivision.

7.1.2. Les matériaux de références

On utilise les deux matériaux de références RGTh-1 et RGU-1 pour l'étalonnage de la chaîne de mesures. Ces matériaux de référence sont spécialement faits pour l'étalonnage du système de spectrométrie de rayonnement gamma utilisé pour des analyses des échantillons géologiques et d'exploitation de l'uranium [9]. Leurs concentrations sont données dans le tableau 7-1 [25].

Tableau 7-1: Caractéristiques des matériaux de références RGU-1, RGTh-1.

Minerais	RGTh-1	RGU-1
Masse de l'échantillon (g)	135,04±0,04	142,85±0,03
Volume (cm ³)	100	100
Teneur		
Th	(800±16) (µg/g)	(400±02) µg/g
U	(6,3±0,4) (µg/g)	<1(µg/g)
K	0,02±0.01%	<20(µg/g)
Masse molaire	Th : 232,038	U : 238,029
Période	1,405.10 ¹⁰ ans	4,468.10 ⁹ ans

A partir de ces données, on détermine la masse de chaque radionucléide dans l'étalon en utilisant la relation suivante :

$$m_i = T_i \cdot f_c \cdot M_e \quad (7-1)$$

Avec :

m_i : masse de l'élément i.

T_i : teneur de l'élément i dans l'étalon.

f_c : Facteur de conversion de µg en g.

M_e : masse de l'étalon.

On détermine alors le nombre d'un radionucléide contenu dans l'étalon en utilisant la relation ci-dessous :

$$N_i = \frac{m_i \cdot N}{M_i} \quad (7-2)$$

Avec :

N_i : nombre d'atomes de l'élément (i).

N : 6.023 10²³ : nombre d'Avogadro.

M_i : masse molaire de l'élément (i).

L'activité de l'élément i contenu dans l'étalon est :

$$A_i = \lambda_i \cdot N_i \quad (7-3)$$

où λ_i est la constante radioactive de l'élément i .

Le nombre de coups émis par le radionucléide sur un pic d'énergie donnée est

$$C_i = P_{\gamma_i} \cdot A_i \quad (7-4)$$

Avec :

C_i : Coups émis par la source en un pic d'énergie donné.

P_{γ_i} : Probabilité d'émission gamma en une énergie donnée.

7.2. Mise au point de la chaîne de mesure

Les paramètres de mesure suivants sont appliqués à la chaîne de comptage et au détecteur. Le gain de conversion est de 1024. La tension de polarisation de la cathode est de 800 V. Ces conditions nous permettent d'avoir un spectre d'énergie de 0 keV à 3500 keV.

La chaîne de mesure doit être étalonnée en énergie et en efficacité. On utilise les matériaux de références RGU-1 et RGTh-1 fourni par l'AIEA. Les pics sont choisis parmi les plus intenses.

7.2.1. Etalonnage en énergie

L'étalonnage en énergie permet d'obtenir la relation entre le canal et l'énergie.

La figure 7-2 montre la variation de l'énergie en fonction du numéro de canal.

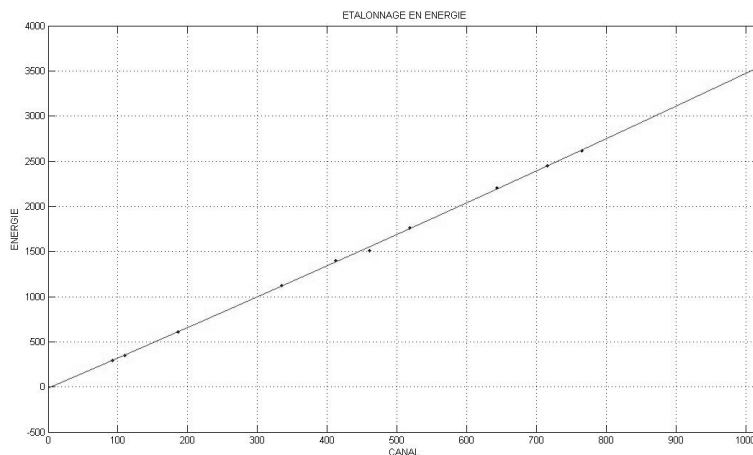


Figure 7-2: Courbe d'étalonnage en énergie du détecteur NaI(Tl)

On calcule l'efficacité à partir de l'équation d'étalonnage:

7.3. Mise au point du programme de déconvolution

La mise au point du programme de déconvolution consiste à étalonner le programme. Le but de cette mise au point est de déterminer une fonction polynomiale du second degré reliant les paramètres σ , $FWHM$, et T à la variation de l'énergie. Ceci facilite l'estimation de la condition initiale pour l'algorithme.

On utilise les spectres de matériaux de référence RGU-1 et RGTh-1 pour l'étalonnage en paramètre de forme.

7.3.1. Description du programme d'étalonnage de la forme

Le fichier ESPEC.1 est le programme utilisé pour l'étalonnage et contient les sous programmes suivants : les étalonnages en largeur σ , en résolution $FWHM$ et en queue ou traîne T , le programme d'affichage des courbes. Ce programme se trouve en annexe 5.

7.3.2. Etalonnage en largeur σ

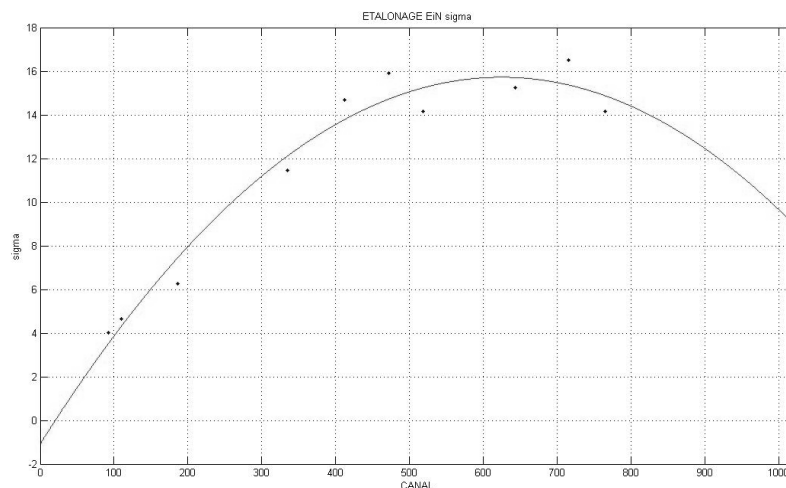


Figure 7-4: Courbe d'étalonnage en largeur σ

Les pics sont choisis parmi les plus nets et les plus intenses.

L'équation de la courbe de la Figure 7-4 est :

$$\text{Sigma} = -4.305 \cdot 10^{-5} C^2 + 0.0537 C - 1.0786 \text{ avec } R^2 = 0.808$$

7.3.3. Etalonnage en FWHM

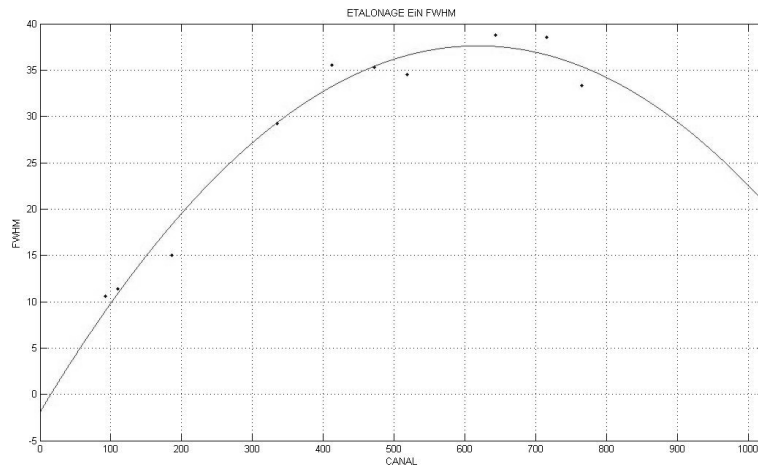


Figure 7-5: Courbe d'étalonnage en FWHM

L'équation de la courbe de la Figure 7-5 est :

$$FWHM = -2.199 \cdot 10^{-5} C^2 + 0.0318 C + 0.5659 \text{ avec } R^2 = 0.807.$$

L'étalonnage en FWHM permet d'identifier les pics à largeur anormale.

7.3.4. Etalonnage en paramètre de queue ou traîne

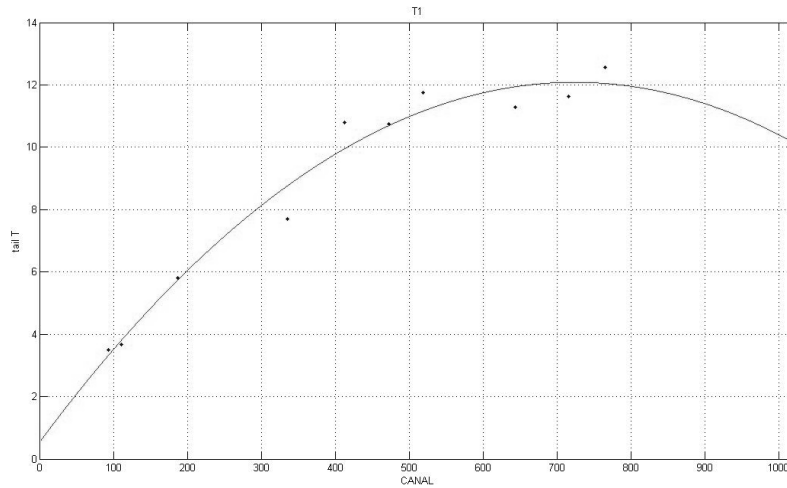


Figure 7-6: Courbe d'étalonnage en paramètre de queue T ou traîne

L'équation de la courbe de la Figure 7-6 est :

$$T = -1,03 \cdot 10^{-4} C^2 + 0,1278 C - 1,9195 \text{ avec } R^2 = 0.807$$

7.4. Mesures avec des échantillons

7.4.1. Echantillonnage

Les échantillons ont été prélevés lors d'une étude de l'environnement radioactif dans la région de l'Anosy. Les travaux de terrain ont été effectués par l'équipe de l'INSTN du 05 au 12 décembre 2009.

Parmi les échantillons prélevés, on a pris des échantillons de roches et de sols pour être mesurés au détecteur NaI(Tl). Les renseignements concernant ces échantillons sont récapitulés dans le tableau 7-3.

Tableau 7-3: Renseignement sur les échantillons

Code	Mpe (g)	Me (g)	Géométrie (cm ³)	Date de préparation
SR071209	15	147,83	100	15/02/2010
S1071209	14,29	135,98	100	15/02/2010
S2071209	14,48	144,23	100	15/02/2010
SR081209	14,98	172,55	100	15/02/2010
S1081209	15,15	133,79	100	15/02/2010
S2091209	14,59	154,57	100	15/02/2010
S3091209	14,78	160,6	100	15/02/2010
S5091209	15,03	168,45	100	15/02/2010
R1091209	180,73	1090	100	22/03/2010
S2081209	14,79	146,62	100	08/03/2010
R1081209	180,52	1595	100	19/03/2010

Source : Madagascar INSTN / ATN

Me : masse de l'échantillon.

Mpe : Masse du porte échantillon.

S : Sol.

R : Roche.

SR : échantillon sur les points de référence.

7.4.2. Les données spectrales

La Figure 7-7 montre l'exemple de spectre gamma acquis par Scintivision.

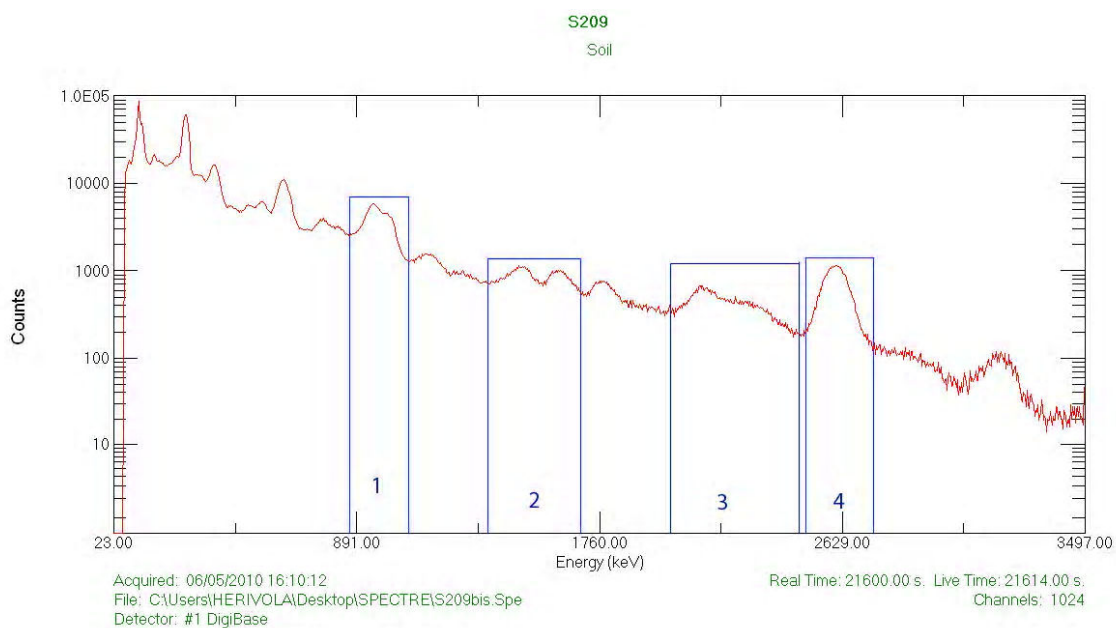


Figure 7-7: Spectre d'énergie de l'échantillon S2091209

La Figure 7-8 montre le spectre du bruit de fond.

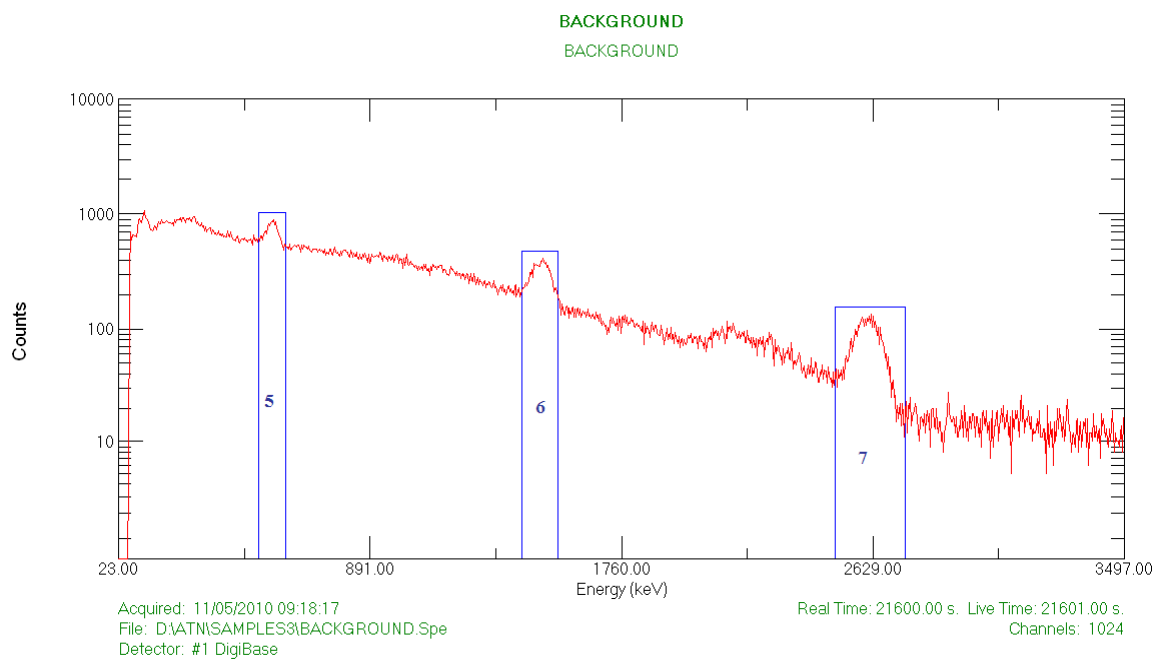


Figure 7-8: Spectre du bruit de fond

Le temps de comptage pour toute l'acquisition est fixé à 21600 s.

7.4.3. Les radionucléides cibles

Nous nous intéressons à la détermination de l'activité du potassium-40, de la famille de l'uranium-238 et du thorium-232. Nous sommes aussi disposés à détecter la présence d'une forme de radioactivité artificielle.

7.4.4. La région des multiplets à exploiter

Nous allons déconvoluer la région 1 (Figure 7-7) contenant les deux Ac-228. On remarque aussi une convolution dans la région 2 entre, 1373 keV à 1735 keV. Les composants de cette région sont le pic du potassium-40 d'énergie 1461 keV, le bismuth-214 d'énergie 1509.23 keV descendant de la l'uranium-238, le bismuth-212 d'énergie 1620.5 keV de la famille du thorium-232, l'actinium-228 d'énergie 1630.63 keV de la famille du thorium-232. L'activité du potassium-40 ne peut être obtenue que par déconvolution dans cette région d'intérêt.

Nous allons aussi traiter la convolution des pics dans la région 3, cette région contient les deux pics du bismuth-214 d'énergie 2118,5 keV et d'énergie 2204,1 keV. La région 4 est le pic du thallium-208 d'énergie 2614,53 keV.

La Figure 7-7 va nous servir de référence dans l'étude qui va se suivre.

Chapitre 8. RESULTATS DE MESURES ET INTERPRETATION

8.1. Application du programme de déconvolution

8.1.1. Description des programmes de déconvolution

DSPEC1.1 et DESPEC2.1 sont les programmes de déconvolution utilisés, ces programmes contiennent le lissage d'un pic ou la déconvolution d'un multiplet, le calcul d'aire nette, le calcul des résidus et du FOM, l'affichage des graphiques, le calcul d'activité ainsi que l'incertitude de mesures. Ces programmes se trouvent en annexe 3.

8.1.2. Résultats partiels d'application de DSPEC1.1 et DSPEC2.1

Les tableaux 8-1, 8-2, 8-3, 8-4 et les figures 8-1, 8-2, 8-3, 8-4 montrent les résultats partiels de lissage et de déconvolution de spectre des échantillons.

8.1.2.1. Exemple de lissage d'un pic simple

Tableau 8-1: Résultats partiels du lissage du pic du thallium-208 de l'échantillon S2081209

Echantillon	Radionucléide	Energie	ROI (canal)	Aire nette (Coups)	FOM
S2081209 (SOL)	thallium-208	2614,53 keV	730-793	144 440 ± 770	3,40 %

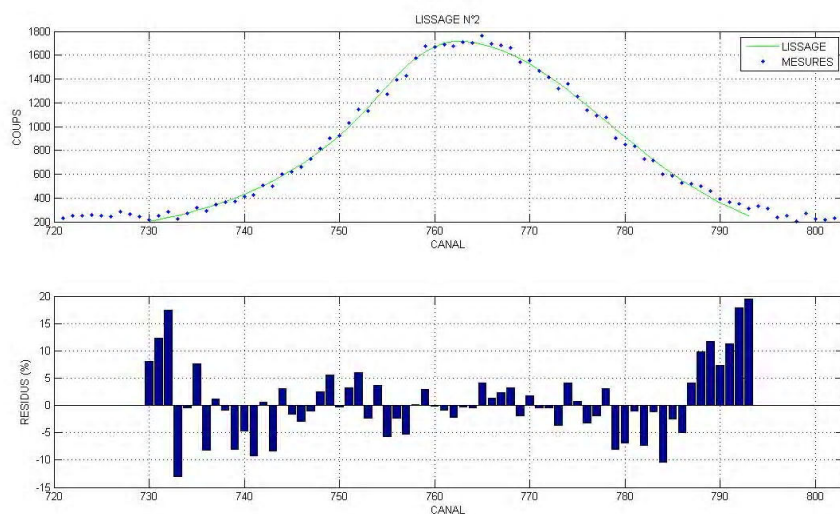


Figure 8-1: Lissage du pic du thallium-208 dans la région 4

Normalement, le pic du Bi-214 devait apparaître autour du canal 730. Ce pic est négligeable car la probabilité d'émission du thallium-208 est 99% et celle du bismuth-214 est 1,5%.

De plus, la teneur en famille du thorium dans l'échantillon est très grande devant celle de l'uranium, la contribution du pic du Bi-214 à la déformation du pic du Tl-208 est minime.

8.1.2.2. Exemples de la déconvolution des multiplets:

a – Déconvolution de la région 1

Tableau 8-2: Résultat partiel de la déconvolution de la région 1

Echantillon	Radionucléide	Energie	ROI (canal)	Aire nette (Coups)	FOM
SR081209 (SOL)	actinium-228	911 keV	255-300	193 743 ± 858	2,10 %
	actinium-228	969 keV	270-305	130 535 ± 746	

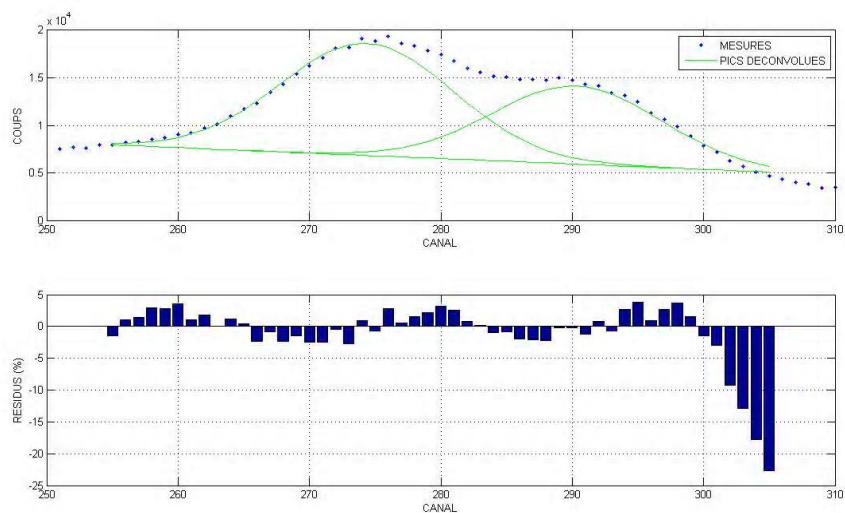


Figure 8-2: Déconvolution de la région 1 de l'échantillon SR081209

b- Déconvolution de la région 3 de l'échantillon

Tableau 8-3: Résultats de déconvolution de la région 3

Echantillon	Radionucléide	Energie	ROI (canal)	Aire nette (Coups)	FOM
SR081209 (SOL)	bismuth-214	2118,5 keV	590-670	33 982 ± 416	4,50 %
	bismuth-214	2204,1 keV	620-730	30 334 ± 438	

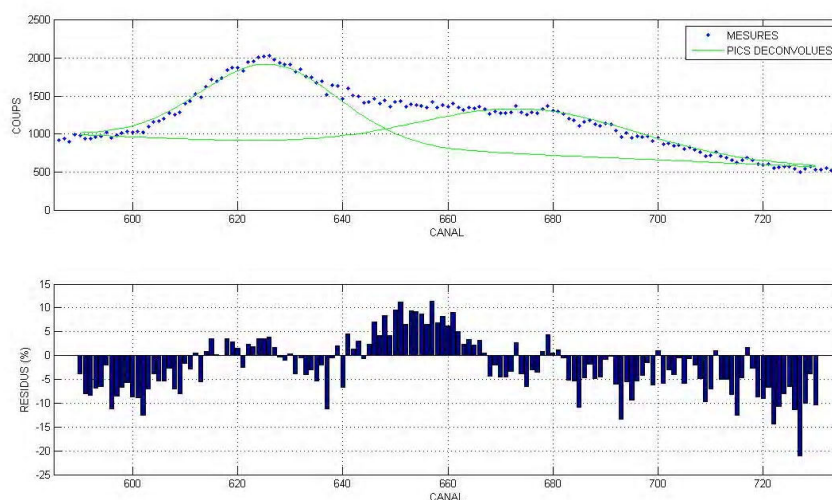


Figure 8-3: Déconvolution de la région 3 de l'échantillon SR081209

c- Déconvolution de la région 2

Tableau 8-4: Résultats partiels de la déconvolution de la région 2

Echantillons	Radionucléides	Energies	ROI (canal)	Aire nette (Coups)	FOM
S2091209 (SOL)	potassium-40	1461 keV	396-440	2 409 ± 54	3,82 %
	bismuth-214	1509,23 keV	396-460	4 728 ± 69	
	bismuth-212	1620,5 keV	420-500	5 487 ± 75	
	actinium-228	1630,63 keV	450-500	6 368 ± 82	
R1081209 (ROCHE)	potassium-40	1461 keV	396-440	341 ± 24	6,39 %
	bismuth-214	1509,23 keV	396-460	2 668 ± 56	
	bismuth-212	1620,5 keV	420-490	1 694 ± 45	
	actinium-228	1630,63 keV	450-500	3 720 ± 64	

La figure 8-4 montre un exemple de lissage de la région 2.

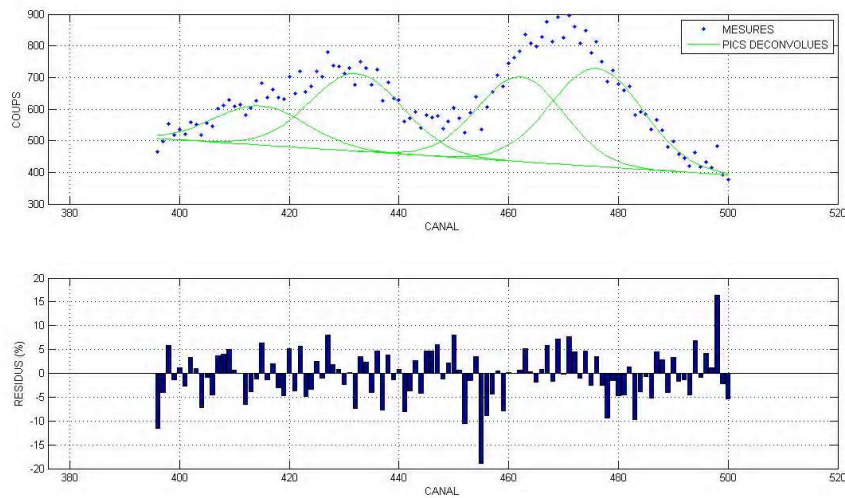


Figure 8-4: Déconvolution de la région 2 de l'échantillon S2091209

8.2. Application : activité des échantillons

Les activités moyennes en $Bq.kg^{-1}$ de la famille de l'uranium-238, de celle du thorium-232 et du potassium-40 dans les échantillons se trouvent dans les séries de tableau ci-après. Chaque tableau comprend les résultats en activité du NaI(Tl), les résultats de HPGe et l'écart entre ces deux techniques de mesures.

La formule du calcul de l'écart est :

$$Ecart = 100 \times \frac{|A_{NaI(Tl)} - A_{HPGe}|}{A_{HPGe}} (\%)$$

Avec :

$A_{NaI(Tl)}$: activité issue du NaI (Tl)

A_{HPGe} : activité issue du HPGe.

Les résultats de mesures de la radioactivité des échantillons du même site sont groupés dans un tableau.

1^{ère} série d'échantillons :

Tableau 8-5: 1^{ère} série d'échantillons

Code	NaI(Tl) ($Bq.kg^{-1}$)			HPGe ($Bq.kg^{-1}$)			Ecart (%)		
	K-40	U	Th	K-40	U	Th	K-40	U	Th
SR071209	617 ± 30	199 ± 3	1 274 ± 20	628 ± 27	207 ± 4	1 232 ± 15	1,75	3,86	3,41
S1071209	652 ± 39	190 ± 2	1 100 ± 11	640 ± 30	180 ± 4	1 063 ± 14	1,88	5,56	3,48
S2071209	599 ± 30	200 ± 4	1 163 ± 19	606 ± 29	194 ± 4	1 146 ± 16	1,16	3,09	1,48

2^{ème} série d'échantillons :

Tableau 8-6: 2^{ème} série d'échantillons

Code	NaI(Tl) ($Bq.kg^{-1}$)			HPGe ($Bq.kg^{-1}$)			Ecart (%)		
	K-40	U	Th	K-40	U	Th	K-40	U	Th
SR081209	148 ± 1	799 ± 15	5 700 ± 70	160 ± 13	750 ± 12	5 665 ± 67	7,50	6,53	0,62
S1081209	290 ± 25	356 ± 5	2 420 ± 28	330 ± 24	336 ± 6	2 430 ± 29	12,12	5,95	0,41

3^{ème} série d'échantillons :

Tableau 8-7: 3^{ème} série d'échantillons

Code	NaI(Tl) ($Bq.kg^{-1}$)			HPGe ($Bq.kg^{-1}$)			Ecart (%)		
	K-40	U	Th	K-40	U	Th	K-40	U	Th
S2081209	480 ± 23	275 ± 4	1990 ± 15	472 ± 23	295 ± 4	2 067 ± 24	15,15	5,95	3,70
R1081209	190 ± 10	164 ± 4	517 ± 9	241 ± 16	128 ± 3	840 ± 11	21,16	28,13	38,45

4^{ème} série d'échantillons :

Tableau 8-8: 4^{ème} série d'échantillons

Code	NaI(Tl) ($Bq.kg^{-1}$)			HPGe ($Bq.kg^{-1}$)			Ecart (%)		
	K-40	U	Th	K-40	U	Th	K-40	U	Th
S2091209	609 ± 17	360 ± 8	1 848 ± 13	537 ± 25	279 ± 4	1 749 ± 20	13,41	29,03	5,66
S3091209	500 ± 16	295 ± 13	1 514 ± 9	566 ± 36	228 ± 5	1 495 ± 21	11,66	29,39	1,27
S5091209	399 ± 13	353 ± 10	2 232 ± 10	405 ± 17	330 ± 4	2 110 ± 23	1,48	6,97	5,78
R1091209	140 ± 10	100 ± 3	343 ± 7	108 ± 7	70 ± 1	397 ± 6	29,63	42,86	13,60

Comme la résolution du détecteur NaI(Tl) est très basse, ces résultats n'étaient pas faciles à trouver. Peu de pic était analysable car le phénomène de convolution des pics apparaît souvent. La programmation sous Matlab 7.6 nous a facilité la déconvolution des spectres gamma des échantillons de roches et de sols.

8.3. Interprétation des résultats

8.3.1. Radioactivité des échantillons

La détermination de l'activité de l'uranium-238 était effectuée en considérant les rayonnements gamma émis par le bismuth-214 et le plomb-214. L'activité du thorium-232 était obtenue à partir de la moyenne d'activité de l'actinium-228, du plomb-212, du bismuth-212 et du thallium-208.

Les résultats obtenus sur les 3 échantillons SR071209, S1071209, S2071209 prélevés dans un même site ont à peu près des activités égales en K-40, U-238 et Th-232, on peut espérer que ces échantillons ont le même âge.

L'activité des échantillons de roches varie entre $(140 \pm 8) \text{ Bq.kg}^{-1}$ et $(190 \pm 17) \text{ Bq.kg}^{-1}$ pour le potassium-40 ; entre $(347 \pm 7) \text{ Bq.kg}^{-1}$ et $(517 \pm 6) \text{ Bq.kg}^{-1}$ pour le thorium-232 ; entre $(100 \pm 3) \text{ Bq.kg}^{-1}$ et $(164 \pm 4) \text{ Bq.kg}^{-1}$ pour l'uranium-238. Les roches ne présentent pas de forte activité.

L'activité des échantillons de sols varie entre $(148 \pm 1) \text{ Bq.kg}^{-1}$ et $(609 \pm 17) \text{ Bq.kg}^{-1}$ pour le potassium-40 ; entre $(100 \pm 11) \text{ Bq.kg}^{-1}$ et $(5700 \pm 40) \text{ Bq.kg}^{-1}$ pour le thorium-232; entre $(190 \pm 2) \text{ Bq.kg}^{-1}$ et $(799 \pm 15) \text{ Bq.kg}^{-1}$ pour l'uranium-238. Alors que les valeurs de références dans UNSCEAR2000 [26] sont de 140 Bq.kg^{-1} à 850 Bq.kg^{-1} pour le potassium-40; de 11 Bq.kg^{-1} à 64 Bq.kg^{-1} pour le thorium-232 ; de 16 Bq.kg^{-1} à 110 Bq.kg^{-1} pour l'uranium-238.

L'activité du K-40 dans neuf échantillons de sols se trouve parfaitement dans l'intervalle de référence de UNSCEAR2000 et deux échantillons se trouvent en dessous de la valeur moyenne.

Concernant la famille du thorium-232 et de l'uranium-238, on constate que toutes les activités des échantillons dépassent largement les valeurs de référence dans la littérature [26]. L'échantillon SR081209 présente une forte concentration en thorium-232 avec un teneur de $(1404 \pm 10) \text{ ppm}$.

Le rapport maximal en Th/U est de 22.18 et le rapport minimal est de 14.48. Les résultats du rapport Th/U montrent que le Thorium est plus abondant par rapport à l'Uranium dans les échantillons géologiques mesurés.

8.3.2. Comparaison avec le HPGe

La contribution du thallium-208 à l'énergie 583 keV et à 2614 keV dans le spectre du bruit de fond, vue dans la région 5 et 7 de la Figure 7-8 de la page 78, peut provenir des éléments constitutifs du détecteur lui-même. Etant activateur, le thallium-208 présente une fraction molaire de l'ordre de 10^{-3} dans le matériau de fabrication du détecteur. Tandis que l'apparition du pic du potassium-40 dans la région 6 du spectre du bruit de fond est due à l'environnement qui nous entoure. La mesure et l'extraction du bruit de fond étaient indispensables.

L'apparition des pics dépend de leurs intensités respectives et de la durée de comptage. Par conséquent. Les pics d'énergie de faibles intensités peuvent ne pas être observées pour le HPGe mais apparaît pour le NaI(Tl) car ces deux détecteurs diffèrent de leur efficacité.

L'unique émission gamma de l'énergie 1460 keV était utilisée pour déterminer l'activité du K-40. A cause de la résolution du détecteur NaI(Tl), l'activité du K-40 ne peut être obtenue que par déconvolution de la région 2 entre 1373 keV à 1705 keV.

La comparaison des résultats obtenus entre le HPGe et le NaI(Tl) varient entre 0,62% à 42,86% correspondent respectivement à l'échantillon de sol S2071209 et à l'échantillon de roche R1091209. L'écart très élevé de 42,86% peut être dû à la différence d'efficacité entre les deux détecteurs. Le NaI(Tl) peut détecter les radionucléides de basse activité, cet écart peut être aussi dû au phénomène aléatoire de la radioactivité.

8.3.3. Qualité de la déconvolution

Même si la résolution du détecteur est très basse, nous avons encore trouvé des résultats proches de ceux obtenus avec le HPGe haute résolution.

Les résultats de lissage de spectre gamma donnent des résidus $-20\% <R < +20\%$ et des FOM de l'ordre de 5 % tout comme le lissage des spectres du spectre synthétique. Ces résultats signifient que le programme de déconvolution est relativement fiable pour de telles plages d'activité.

CONCLUSION

Nous avons analysé 9 échantillons de sols et 2 échantillons de roches collectés lors de l'étude de l'environnement radioactif dans la région de l'Anosy. L'étude consiste à caractériser la radioactivité des échantillons de roches et de sols. Comme DigiBase est destiné pour l'analyse de routine des denrées alimentaires et non à la recherche, nous avons pu surmonter sa limite en éditant des programmes supplémentaires nécessaires pour l'analyse des spectres. La méthode développée dans ce travail a un grand apport dans l'amélioration de la recherche et de la production au sein du département ATN de l'INSTN.

La convergence de la méthode vers la solution adéquate est satisfaisante après avoir effectué la comparaison des résultats de mesures à ceux obtenus avec le détecteur HPGe de haute résolution de Canberra. Cette comparaison nous donne des écarts relatifs entre 0.62 % à 42.86 % respectivement pour l'échantillon de sol SR081209 et R1091209. En plus de cela, les résidus du lissage étaient compris entre -20% et +20% et les FOM sont autour de 5%. Ces résultats de lissage correspondent parfaitement à la simulation à des spectres synthétiques, donc la dispersion à 3σ n'était pas loin de la réalité.

Cette technique développée est donc efficace pour des échantillons de sols et de roches dont les plages d'activité sont analogues à celles présentées dans ce travail.

L'analyse des spectres synthétiques a mis en exergue l'importance du rapport S/FC, la durée de comptage doit être suffisante afin d'obtenir des coups nets par rapport au fond continu.

On peut optimiser ces résultats si on ajoute à l'étalonnage en efficacité la méthode de Rybach [9].

Nous avons trouvé que le logiciel Matlab est sous utilisé en technique nucléaire, alors que c'est l'outil le plus utilisé en géophysique, mécanique, en traitement du signal et électronique. L'exploitation de ce logiciel de programmation dans notre domaine de recherche constitue alors un travail intéressant dans le futur.

En perspective, en modifiant quelques paramètres, la méthode développée dans ce travail peut être améliorée en la couplant avec les instrumentations nucléaires existant à l'INSTN telles que le MCA Canberra série 30 et 35 plus, le LSC Triathler et LSC TriCarb, l'équipement d'analyse par fluorescence $-X$ et même avec les lecteurs de dosimètres TLD.

Cependant, cette méthode a ses limites. Son efficacité diminue au fur et à mesure que le nombre de paramètres à déterminer augmente car les programmes de déconvolution édités utilisent la méthode d'optimisation de Nelder-Mead. Le résultat n'est plus satisfaisant si le nombre de paramètres à déterminer est supérieur à 15 c'est-à-dire si le multiplet est composé de 6 pics ou plus. La méthode de Nelder-Mead a donc ses forces et ses faiblesses : elle gagne en vitesse de convergence mais perd en robustesse.

Notons qu'une méthode de minimisation est robuste si elle converge toujours vers la solution finale indépendamment d'une condition initiale [19]. Ce qui n'est pas le cas pour les méthodes d'optimisation dépendant des conditions initiales telles que la méthode de Newton-Raphson, Nelder-Mead, SGM et la méthode de Marquardt...

Il existe des méthodes ne nécessitant ni point de départ, ni connaissance du gradient de la fonction objectif pour atteindre la solution optimale telles que la méthode Monte-Carlo, l'algorithme génétique... Elles sont d'ordre zéro et s'appuient sur des mécanismes de transition probabilistes et aléatoires. Le développement de ces dernières mérite d'être mené pour résoudre les cas où les méthodes classiques de déconvolution atteignent les limites.

BIBLIOGRAPHIE

- [1] Rasolonirina Martin - *Etude de la radioactivité des eaux de consommation en milieu Uranifère*, DEA - Université d'Antananarivo, Département de Physique. 2003, p 3, p 6.
- [2] Andriamady Narimanana S F – *Optimisation du logiciel de déconvolution sur des spectres d'échantillons de sol de Madagascar*, DEA,- Université d'Antananarivo, Département de Physique - 2005, p.2, p.9, p.15
- [3] Ravelomanantsoa Solofonirina D – *Cours spectrométrie gamma*, cours en AEA de l'option physique nucléaire, physique théorique et physique appliquée, Université d'Antananarivo, Département de Physique, 2008
- [4] Fabien Courtine – *Etalonnage d'un spectromètre gamma en vue de la mesure de la radioactivité naturelle, Mesure expérimentale et modélisation par la technique de Monte-Carlo*, Thèse spécialité Physique Corpusculaire - Université Blaise Pascal, 2007, p.10
- [5] Rajaobelison Joël – *Cours physique des détecteurs liquides et solides, Cours en maîtrise de physique nucléaire, physique théorique et physique appliquée.*- Université d'Antananarivo, Département de physique, 2007
- [6] Quillet – *Encyclopedie des sciences industrielles*- 1973, p.491
- [7] Benoît Pibard - *Etude et validation d'un spectromètre gamma pour la mesure de la composition chimique des surfaces planétaires*, Thèse- Université de Toulouse III, 2006, p.39
- [8] Rabesiranana Naivo - *Analyse Multi Groupe des spectres gamma*, Thèse de troisième cycle - Université d'Antananarivo, Département de physique, 2001, p. 21

- [9] Andrianjafitrimo- *Etablissement d'un dispositif d'analyse spectrométrique au NaI(Tl) : application à la caractérisation de la radioactivité des sols. Thèse de troisième cycle* - Université d'Antananarivo, Département de Physique, 2001, p. 47, p.25
- [10] Malinovsky et al – *Mathematical aspects of decoding complex spectra applied to liquid scintillation counting* – International Conferences in Liquid Scintillation Spectrometry, LSC2001, Karlsruhe Germany, 2001, p. 127
- [11] Julien Delière – *Déconvolution spectral pour la spectrométrie gamma in situ.*- IRSN, 2004, p.17
- [12] Canberra - *Genie™ 2000 Spectroscopy Software Customization Tools* - 2004, p.231
- [13] Ortec – *Gamma Vision 32 Gamma-Ray Spectrum Analysis and MCA Emulator* - 2006
- [14] Ramaroson Edmond Andrianary – *Edition des fichiers de lissage de spectres d'échantillons épais radioactifs alpha pour le microordinateur DEC Professional 350 DEA* - Université d'Antananarivo, Département de physique. 1988
- [15] Solofoarisina Wilfrid Chrisante – *Logiciel modifiée d'AXIL pour le traitement de données de la fluorescence-X, applications.* DEA- Université d'Antananarivo, Département de Physique, 1988, p. 81
- [16] Ratovonjanahary Justinien Franck - *Etude de la courbe de Thermoluminescence : Elaboration d'un Algorithme pour une programmation de base de déconvolution,* DEA,- Université d'Antananarivo, Département de Physique, 1995.

- [17] Ratovonjanahary Justinien Franck -*Etude de la durée de vie des pics de TL du Quartz : comparaison de la déconvolution utilisant le premier ordre cinétique à la méthode de l'élévation initiale. Thèse de troisième cycle* -Université d'Antananarivo, Département de physique. 2005
- [18] Randriamanalina Solomon - *Méthodes numériques de traitement de spectre. Application à la courbe de thermoluminescence, DEA* - Université d'Antananarivo, Département de Physique, 1999
- [19] Omessaad Hajji – *Contribution au développement de méthodes d'optimisation stochastiques. Application à la conception des dispositifs électrotechniques, Thèse* – Université des Sciences et Technologiques de Lille, p.10, p.44
- [20] Lagarias, J. C., J. A. Reeds, M. H.Wright, and P. E. Wright - *Convergence Properties of the Nelder-Mead Simplex Method in Low Dimensions* - SIAM Journal of Optimization, Vol. 9, Number 1, 1998.
- [21] Haftka, R. T. and Gürdal, Z- *Elements of Structural Optimization-* Third Edition, Kluwer, Academic Publishers, Boston, 1993.
- [22] Y. Horowitz. - *Glow curve deconvolution of various TLD materials.-*, R.P.D, Nuclear Technology publishing, Vol.60 N°1, 1995, p.21.
- [23] The Mathworks - *Optimization toolbox, User's guide, Matlab - 2009.*
- [24] www.ortec-online.com
- [25] IAEA – *Analytical quality control services* – 2004 2005
- [26] UNSCEAR2000 - *Annex b: exposures from 116 natural radiation sources* - 2000

- [27] C. Debouche & J. Steiner- *Revue de statistique appliquée, à propos de deux modèles d'ajustement mathématiques non linéaires* - Tome 22, n°3, 1974, p.17,

ANNEXES

ANNEXE 1: Série de l'uranium et du thorium

Elément	Série de l'uranium 238					Série du thorium 232					Série de l'uranium 235						
U	238 4,47.10 ⁹ a		234 245.10 ³ a									235 0,7.10 ⁹ a					
Pa	234 1,2mm												231 24.10 ³ a				
Th	234 24,1 j		230 77.10 ³ a					232 14.10 ⁹ a	228 6,1 h	228 1,9 a		231 26 h	227 22 a	227 19 j			
Ac								228 5,7 a									
Ra			226 1,6.10 ³ a						224 3,6 j					223 11 j			
Fr																	
Rn			222 3,82 j							220 55 s				219 3,96 s			
At																	
Po			218 3,05 mm							216 0,2 s				215 1,8 ms			
Bi																	
Pb			214 26,8 mm							212 11 h				212 3 μs			
Tl																	

ANNEXE 2

Justification de la forme adéquate d'un pic utilisant la raie du césium-137 à l'énergie 661,5 keV.

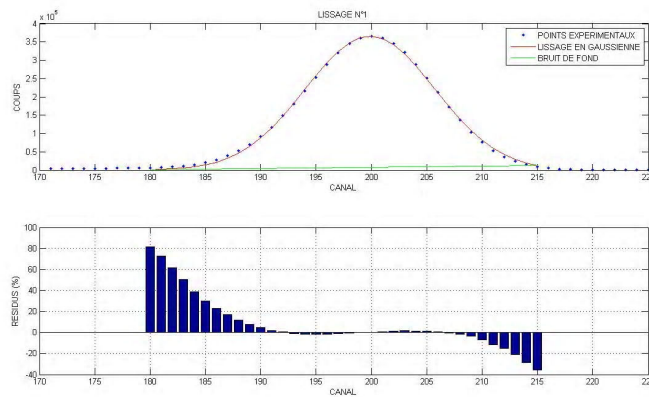


Figure de lissage du pic du ^{137}Cs en forme gaussienne, FOM=2,72 %

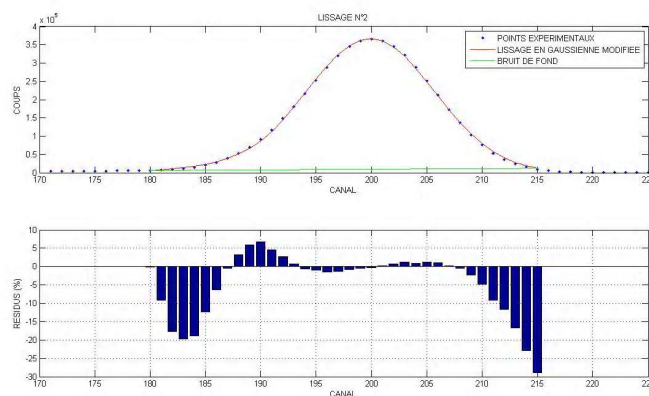


Figure de lissage du pic du ^{137}Cs en forme gaussienne modifiée, FOM=1,73 %

ANNEXE 3

Générateur de spectre synthétique : GSPEC.1

Le spectre synthétique est généré aléatoirement en utilisant la commande `randn(size(i))` avec une composante aléatoire 3σ ensuite sauvegardé sous le nom : `matlab2.mat`

```

close all, clc
cd D:\ATN\ASA_MATLAB
disp('DÉCONVOLUTION DE QUATRE PICS')
H=1000
distance=10*2.35*(2^0)
BG=H/(2^1)
I0=390
C=[I0 I0+distance I0+2*distance I0+3*distance]
L=360;
R=490;
ROI=[L R]
x=[0.5*H 9 9.5 H 10 10 2*H 10.5 11 0.5*H 11 11.5]
%% x(1), x(4), x(7), x(10): amplitudes
%% C(1), C(2), C(3), C(4): centre
%% x(2), x(5), x(8), x(11): Tail
%% x(3), x(6): x(9), x(12) : largeur

i=0:1023;
ECART_TYPE=3
A=0;
J1=(x(1)*exp(x(2)*(2*i-2*C(1)+x(2))/(2*x(3)^2)))+(x(1)*exp(-(i-C(1)).^2/(2*x(3)^2)))*randn(size(i));
y1=(x(1)*exp(x(2)*(2*i-2*C(1)+x(2))/(2*x(3)^2)))+(x(1)*exp(-(i-C(1)).^2/(2*x(3)^2)))*randn(size(i));
J2=(x(4)*exp(x(5)*(2*i-2*C(2)+x(5))/(2*x(6)^2)))+(x(4)*exp(-(i-C(2)).^2/(2*x(6)^2)))*randn(size(i));
y2=(x(4)*exp(x(5)*(2*i-2*C(2)+x(5))/(2*x(6)^2)))+(x(4)*exp(-(i-C(2)).^2/(2*x(6)^2)))*randn(size(i));
J3=(x(7)*exp(x(8)*(2*i-2*C(3)+x(8))/(2*x(9)^2)))+(x(7)*exp(-(i-C(3)).^2/(2*x(9)^2)))*randn(size(i));
y3=(x(7)*exp(x(8)*(2*i-2*C(3)+x(8))/(2*x(9)^2)))+(x(7)*exp(-(i-C(3)).^2/(2*x(9)^2)))*randn(size(i));

```

```

y3=(x(7)*exp(x(8)*(2*i-2*C(3)+x(8))/(2*x(9)^2)))*(i<C(3)-
x(8))+(x(7)*exp(-(i-C(3)).^2/(2*x(9)^2)))*(i>=C(3)-x(8))-
A*i+BG+3*sqrt(J3).*randn(size(i));
J4=(x(10)*exp(x(11)*(2*i-2*C(4)+x(11))/(2*x(12)^2)))*(i<C(4)-
x(11))+(x(10)*exp(-(i-C(4)).^2/(2*x(12)^2)))*(i>=C(4)-x(11))-A*i+BG;
y4=(x(10)*exp(x(11)*(2*i-2*C(4)+x(11))/(2*x(12)^2)))*(i<C(4)-
x(11))+(x(10)*exp(-(i-C(4)).^2/(2*x(12)^2)))*(i>=C(4)-x(11))-
A*i+BG+3*sqrt(J4).*randn(size(i));

f1=@(i) (x(1)*exp(x(2)*(2*i-2*C(1)+x(2))/(2*x(3)^2)))*(i<C(1)-
x(2))+(x(1)*exp(-(i-C(1)).^2/(2*x(3)^2)))*(i>=C(1)-x(2)) - (x(1)/2)-
A*i+BG;
a = fzero(f1,C(1)-(2.35*x(3)/2));
b = fzero(f1,C(1)+(2.35*x(3)/2));
fwhm1=b-a;
f2=@(i) (x(4)*exp(x(5)*(2*i-2*C(2)+x(5))/(2*x(6)^2)))*(i<C(2)-
x(5))+(x(4)*exp(-(i-C(2)).^2/(2*x(6)^2)))*(i>=C(2)-x(5)) - (x(4)/2)-
A*i+BG;
a = fzero(f2,C(2)-(2.35*x(6)/2));
b = fzero(f2,C(2)+(2.35*x(6)/2));
fwhm2=b-a;
f3=@(i) (x(7)*exp(x(8)*(2*i-2*C(3)+x(8))/(2*x(9)^2)))*(i<C(3)-
x(8))+(x(7)*exp(-(i-C(3)).^2/(2*x(9)^2)))*(i>=C(3)-x(8)) - (x(7)/2)-
A*i+BG;
a = fzero(f3,C(3)-(2.35*x(9)/2));
b = fzero(f3,C(3)+(2.35*x(9)/2));
fwhm3=b-a;
f4=@(i) (x(10)*exp(x(11)*(2*i-2*C(4)+x(11))/(2*x(12)^2)))*(i<C(4)-
x(11))+(x(10)*exp(-(i-C(4)).^2/(2*x(12)^2)))*(i>=C(4)-x(11)) - (x(10)/2)-
A*i+BG;
a = fzero(f4,C(4)-(2.35*x(12)/2));
b = fzero(f4,C(4)+(2.35*x(12)/2));
fwhm4=b-a;
fwhm=[fwhm1 fwhm2 fwhm3 fwhm4]

y=y1+y2+y3+y4-3*(-A*i+BG);
T=sum(y)
M=max(y);

```

```
subplot(2,1,1)
Z=(inv([L 1;R 1]))*[y(L);y(R)]
i=L:R;
z=Z(1)*i+Z(2);
i=0:1023;

plot(i,y, '.'), grid on,hold on;
save matlab2.mat;
```

ANNEXE 4

Programmes de lissage et de déconvolution d'un spectre gamma : DSPEC1.1 et DSPEC2.1 .

Ces programmes ne sont pas disponibles dans cette version.

ANNEXE 5

Programme d'étalonnage en paramètre de forme ESPEC.1 :

```

cd D:\ATN\ASA_MATLAB
close all,clc
load E1.mat
C=E(:,2);
Ei=E(:,1);
FWHM=E(:,8);
sigma=E(:,5);
T=E(:,4);

%% ENERGIE
[p s]=polyfit(C,Ei,2)
x=0:0.1:1023;
y= p(1)*x.^2+p(2)*x+p(3);
figure(1)
plot(C,Ei, '.'),grid on,hold on
plot(x,y, 'r'),grid on,hold on,xlim([0
1023]),xlabel('CANAL'),ylabel('ENERGIE'),title('ETALONNAGE EN ENERGIE')
f=@(x) p(1)*x.^2+p(2)*x+p(3);

%% CALCUL DU NUMERO DE CANAL
format long g
Ei=1173.2;
f=@(x) (p(1)*x.^2+p(2)*x+p(3)-Ei);
CANAL = fzero(f,[0 1023])
FWHM1=abs(f(381.542)-f(401.539))
FWHM2=abs(f(381.684)-f(401.485))

%% sigma
disp('sigma')
[p s]=polyfit(C,sigma,2)
x=0:0.1:1024;
y= p(1)*x.^2+p(2)*x+p(3);
figure(2)

```

```

plot(C,sigma, '.'),grid on,hold on
plot(x,y, 'r'),grid on, hold on,xlim([0
800]),xlabel('CANAL'),ylabel('sigma')

%% TAIL T
disp('Tail')
[p s]=polyfit(C,T,2)
x=0:0.1:1024;
y= p(1)*x.^2+p(2)*x+p(3);
figure(3)
plot(C,T, '.'),grid on,hold
plot(x,y, 'r'),grid on, hold on,xlim([0 800]),xlabel('CANAL'),ylabel('tail
T')

%% FWHM
disp('FWHM')
[p s]=polyfit(C,FWHM,2)
x=0:0.1:1024;
y= p(1)*x.^2+p(2)*x+p(3);
figure(4)
plot(C,FWHM, '.'),grid on,hold on
plot(x,y, 'r'),grid on, hold on,xlim([0
800]),xlabel('CANAL'),ylabel('FWHM')

```


ANNEXE 6

Extrait de la recommandation donnée dans UNSCEAR2000 pour les échantillons de sol :

Pays	Concentration en activité dans le sol (Bq.kg-1)					
	potassium-40		uranium-238		thorium-232	
	Moyenne	Plage	Moyenne	Plage	Moyenne	Plage
Egypte	320	29-650	37	6-120	18	2-96
USA	370	100-700	35	4-140	35	4-130
Russie	520	100-1400	19	0-67	30	2-79
Moyenne mondiale	400	140-850	35	16-110	30	11-64

ANNEXE 7

Le tableau suivant montre la teneur en radionucléide des échantillons.

Code	Teneur en K-40 (ppm)	Teneur en famille du Th-232 (ppm)	Teneur en famille de l'U-238 (ppm)	Th/U
SR071209	20 240 ± 996	314 ± 3	16,01 ± 0,24	19,50
S1071209	21 400 ± 1 021	271 ± 3	15,26 ± 0,19	17,74
S2071209	19 661 ± 561	287 ± 3	35,63 ± 3,00	18,27
SR081209	4 861 ± 39	1 404 ± 10	64,21 ± 1,24	21,86
S1081209	9 192 ± 171	620 ± 5	28,59 ± 0,38	21,70
S2081209	15 756 ± 233	490 ± 2	22,11 ± 0,32	22,18
R1081209	6 239 ± 554	217 ± 1	13,20 ± 0,30	16,43
S2091209	19 968 ± 561	455 ± 3	28,93 ± 0,66	15,73
S3091209	16 411 ± 529	373 ± 2	23,69 ± 1,08	15,74
S5091209	13 097 ± 431	550 ± 2	28,25 ± 0,77	19,46
R1091209	4 594 ± 266	84 ± 2	8,03 ± 0,20	10,51

ANNEXE 8

Calcul d'aire et algorithme de la méthode des trapèzes :

La méthode d'approximation d'une intégrale dite « Trapèze » repose sur le calcul de l'aire d'un trapèze.

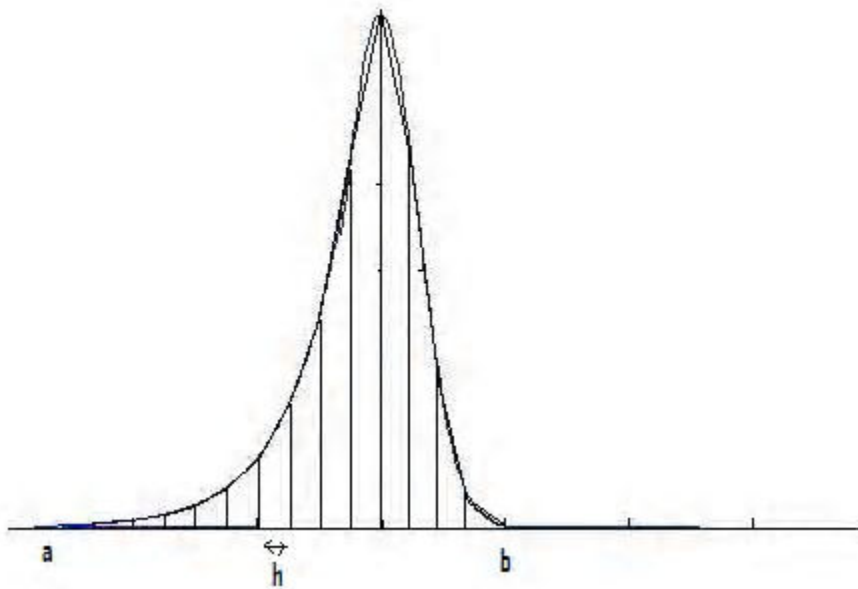
L'aire d'un trapèze :

Considérons alors une subdivision de l'intervalle $[a;b]$ de pas h .

Rappelons qu'une subdivision de pas h est définie par l'entier n tel que:

$h = \frac{b-a}{n}$ et par la suite des réels " $a, a + h, a + 2h, \dots, a + k.h, \dots, a + n.h = b$ ".

n est le nombre des pas



Sur chaque intervalle $[a + k.h ; a + (k+1).h]$, où k est un entier compris entre 0 et $(n-1)$,

l'intégrale de f sur intervalle peut être approximée par :

$$\int_{a+kh}^{a+(k+1)h} f(x)dx \approx h \frac{f(a+kh) + f(a+(k+1)h)}{2}$$

En utilisant la relation de Chasles pour l'intégrale $\int_a^b f(x)dx$, on écrit alors :

$$\int_a^b f(x)dx = \int_a^{a+h} f(x)dx + \int_{a+h}^{a+2h} f(x)dx + \dots + \int_{a+(n-1)h}^b f(x)dx$$

$$\int_a^b f(x)dx = \sum_{k=0}^{n-1} \int_{a+kh}^{a+(k+1)h} f(x)dx$$

D'où, en utilisant l'approximation de chacune des intégrales de cette somme, on obtient la formule d'approximation par la méthode des Trapèzes :

$$\int_a^b f(x)dx = h \left(\sum_{k=0}^{n-1} \frac{f(a+kh) + f(a+(k+1)h)}{2} \right)$$

- Algorithme du calcul d'aire par la méthode de trapèze

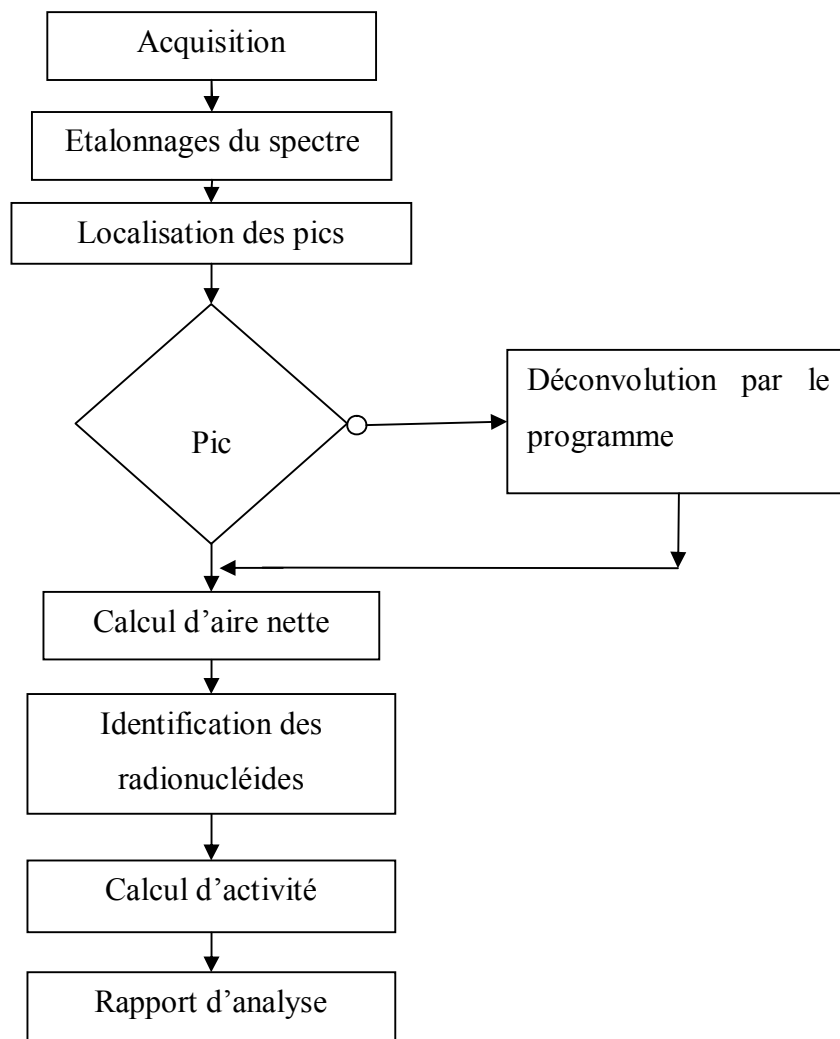
1. Donner a et b
2. Donner n
3. Calculer h
4. Poser k=0
5. Poser x=0
6. Poser y=a+h/2
7. Poser S=0
8. Poser k=0
9. S=S+[f(x)+f(y)]
10. x=y
11. y=y+h
12. k=k+1
13. Si k<n retour à l'étape 9
14. Aire=S*h/2

ANNEXE 9

Organigramme de dépouillement d'un spectre gamma

Pour avoir un bon résultat d'analyse, on doit procéder à des étapes.

L'organigramme suivant permet de guider le manipulateur pour que le travail de dépouillement d'un spectre soit élaboré avec exactitude.



RESUME

Ce travail a pour but de développer une méthode de déconvolution pour les spectres d'énergies gamma des détecteurs NaI(Tl). Des programmes de déconvolution écrits avec le logiciel Matlab7.6 utilisant la méthode d'optimisation de Nelder-Mead sont élaborés pour déterminer les paramètres de forme de chaque pic du multiplet.

Les paramètres de simulation étaient : distance entre pic/FWHM, Signal/Fond Continu, niveau de comptage. Les spectres synthétiques ont été construits avec des composantes aléatoires 3σ . Les tests ont donné des résultats satisfaisants à partir des valeurs du rapport distance/FWHM $\geq 2^1$, du rapport Signal/Fond Continu $\geq 2^1$ et de comptage de 100 coups.

Ensuite, la technique a été utilisée pour mesurer l'activité des échantillons de roches et de sols prélevés dans la région de l'Anosy. Les activités des échantillons de roches varient entre $(140 \pm 8) \text{ Bq.kg}^{-1}$ et $(190 \pm 17) \text{ Bq.kg}^{-1}$ pour le potassium-40; entre $(343 \pm 7) \text{ Bq.kg}^{-1}$ et $(881 \pm 6) \text{ Bq.kg}^{-1}$ pour le thorium-232 et entre $(100 \pm 3) \text{ Bq.kg}^{-1}$ et $(164 \pm 4) \text{ Bq.kg}^{-1}$ pour l'uranium-238. Les activités des échantillons de sols varient entre $(148 \pm 1) \text{ Bq.kg}^{-1}$ et $(652 \pm 31) \text{ Bq.kg}^{-1}$ pour le potassium-40; entre $(100 \pm 11) \text{ Bq.kg}^{-1}$ et $(5700 \pm 40) \text{ Bq.kg}^{-1}$ pour le thorium-232 et entre $(190 \pm 2) \text{ Bq.kg}^{-1}$ et $(779 \pm 15) \text{ Bq.kg}^{-1}$ pour l'uranium-238.

Sur les 11 échantillons, les écarts relatifs entre ces résultats et ceux obtenus avec un détecteur HPGe de haute résolution varient entre 0.62% et 42.86 %. Les résidus du lissage se trouvent entre -20% et +20 %, avec des valeurs de « Figure of Merit » autour de 5 %. Ces résultats montrent que la méthode développée dans ce travail est relativement fiable pour de telles plages d'activité et la convergence vers la solution finale est acceptable.

Ainsi, le détecteur NaI(Tl) combiné avec la méthode de déconvolution de spectre développée peut remplacer la chaîne de comptage muni d'un détecteur HPGe dans une limite acceptable, si la détermination séparée des radionucléides dans une famille radioactive n'est pas exigée.

Mots clés: *spectre gamma, NaI(Tl), déconvolution, programmation, radioactivité.*

ABSTRACT

The aim of this work is to develop a method for gamma ray spectrum deconvolution from NaI(Tl) detector. Deconvolution programs edited with Matlab7.6 using Nelder-Mead method were developed to determine multiplet shape parameters.

The simulation parameters were: centroid distance/FWHM ratio, Signal/Continuum ratio and counting rate. The test using synthetic spectrum was built with 3σ uncertainty. The tests gave suitable results for centroid distance/FWHM ratio $\geq 2^1$, Signal/Continuum ratio $\geq 2^1$ and counting level 100 counts.

The technique was applied to measure the activity of soils and rocks samples from the Anosy region. The rock activity varies from $(140 \pm 8) \text{ Bq.kg}^{-1}$ to $(190 \pm 17) \text{ Bq.kg}^{-1}$ for potassium-40; from $(343 \pm 7) \text{ Bq.kg}^{-1}$ to $(881 \pm 6) \text{ Bq.kg}^{-1}$ for thorium-213 and from $(100 \pm 3) \text{ Bq.kg}^{-1}$ to $(164 \pm 4) \text{ Bq.kg}^{-1}$ for uranium-238. The soil activity varies from $(148 \pm 1) \text{ Bq.kg}^{-1}$ to $(652 \pm 31) \text{ Bq.kg}^{-1}$ for potassium-40; from $(100 \pm 11) \text{ Bq.kg}^{-1}$ to $(5700 \pm 40) \text{ Bq.kg}^{-1}$ for thorium-232 and from $(190 \pm 2) \text{ Bq.kg}^{-1}$ to $(779 \pm 15) \text{ Bq.kg}^{-1}$ for uranium-238.

Among 11 samples, the activity value discrepancies, compared to high resolution HPGe detector varies from 0.62 % to 42.86 %. The fitting residuals are between -20% and +20%. The Figure of Merit values are around 5%. These results show that the method developed is reliable for such activity range and the convergence is good.

So, NaI(Tl) detector combined with deconvolution method developed may replace HPGe detector within an acceptable limit, if the identification of each nuclides in the radioactive series is not required.

Key words: *gamma spectrum, NaI(Tl), deconvolution, programming, radioactivity.*

Encadreur : Monsieur Rabesiranana Naivo

Maître de Conférences à la Faculté des Sciences, Université d'Antananarivo

Co-encadreur: Monsieur Ravelomanantsoa Solofonirina Dieudonné

Professeur à la Faculté des Sciences, Université d'Antananarivo

Impétrant: Ravelonjato Rivo Herivola M

Logt 406 cité des 67 Ha Sud

manjakamanana@yahoo.fr

Tel: 261330815081

Ce travail a été fait à l'Institut National des Sciences et Techniques Nucléaires (Madagascar-INSTN)