

Analyse d'un Bois d'Europe de l'Est Analyse d'un Minéral d'Uranium

Laboratoire de Radiochimie

M1 Ingénieur Industriel
Physiques nucléaire et médicale

DUFLOT Matthieu

KARABET Jirair

LOUYET Félicien

Professeurs
C. LICOUR
J. DERRIEN

Année académique
2019 - 2020

Table des matières

Table des figures	4
Liste des tableaux	5
1 Introduction	1
2 Analyse d'un Bois d'Europe de l'Est	2
2.1 Contexte	2
2.2 Les radioisotopes recherchés	2
2.3 Bio-distribution dans le bois	3
2.4 Protocole	3
2.5 Difficultés liées à la crise sanitaire	4
2.6 Résultats et interprétation	4
2.6.1 Calibration en énergie	6
2.6.2 Calibration en efficacité de détection	7
2.6.3 Spectre des cendres suspectes	11
2.6.4 Incertitudes	15
2.6.5 Analyse des données	16
3 Analyse d'un Minéral d'Uranium	19
3.1 Contexte	19
3.2 Les radioisotopes recherchés	21
3.3 Protocole	21
3.4 Analyse	24
3.5 Étalonnage en énergie et en efficacité	28
3.6 Analyse du spectre de la roche	29
3.7 Préalable théorique	32
3.8 Application numérique	33
4 Extraction de l'uranium	35
4.1 Risques liés à l'extraction de l'uranium	35
4.2 Concassage et broyage	36
4.3 Lessivage	36
4.4 Extraction	37

4.4.1	Échange par solvant	37
4.4.2	Échange ionique	38
4.5	Précipitation	38
Appendices		40
A Droite de régression linéaire et incertitudes		40
B Calcul de l'activité de l'étalon		41
Références		44

Table des figures

1	Spectre de 900 secondes de l'étalon de ^{226}Ra . Détecteur HPGe.	5
2	Correspondance entre le numéro du canal et l'énergie des principaux pics du ^{226}Ra	7
3	Évolution de l'efficiencce absolue en énergie, pour $E < 2$ MeV. Les données proviennent des pics du ^{226}Ra de la source étalon.	8
4	Évolution de l'incertitude relative sur l'efficiencce de détection, pour $E < 1.84$ MeV. Les données proviennent des pics du ^{226}Ra de la source étalon.	11
5	Spectre des cendres de bois suspectes, acquisition de 40 heures au détecteur HPGe.	14
6	Différents échantillons prélevés dans l'ancienne mine (prélèvement en surface, sur critère d'activité). En haut à gauche et à droite, le plus gros échantillon récupéré, analysé dans ce rapport. En bas, deux autres échantillons légèrement moins colorés, et de plus petite taille.	20
7	Efficiencce du pic de pleine énergie en fonction de l'énergie des γ , dans une sphère de granite de 10 cm de diamètre. 10^5 γ simulés pour chaque énergie. .	26
8	Contribution des effets photoélectrique et de diffusion Compton dans la section efficace totale pour le granite. Données issues de [1].	26
9	Spectre de l'échantillon de minerai d'uranium, acquisition de une heure au détecteur HPGe.	27
10	Droite d'étalonnage de l'HPGe, à l'aide de la source étalon de ^{226}Ra	28
11	Évolution de l'efficiencce absolue en énergie , pour $E < 2$ MeV.	29
12	Activité calculée pour les 21 pics retenus dans le spectre de la roche.	31

Liste des tableaux

1	Activité des isotopes d'intérêt dans l'étalon de ^{226}Ra de charbon. Détail des calculs en Annexes B.	5
2	Paramètres de la fonction 1	9
3	Paramètres de la fonction 2	10
4	Pics ne faisant pas partie de la série du ^{226}Ra , et candidats potentiels.	12
5	Analyse de l'activité en ^{137}Cs dans l'échantillon de cendres du bois de Biélorussie.	13
6	Analyse de l'activité en ^{40}K dans l'échantillon de cendres du bois de Biélorussie.	13
7	Analyse de l'activité des isotopes de la série du ^{226}Ra (émetteurs γ d'intérêt) dans l'échantillon de cendres du bois de Biélorussie.	13
8	Analyse de l'activité des isotopes de la série du ^{228}Ra (émetteurs γ d'intérêt) dans l'échantillon de cendres du bois de Biélorussie.	13
9	Calcul de l'AMD pour chacun des pics utilisés pour déterminer l'activité des cendres	16
10	Valeur min et max pour les 47 échantillons mesurés sur le territoire américain en 1991.	18
11	Comparaison des données obtenues par HUSA et all. [2], avec les données mesurée dans le présent rapport. Les valeurs correspondent à l'activité par kilogramme de bois. Pour la présente étude, les activités sont indicatives, et sujettes à caution (voir plus haut).	19
12	Éléments d'intérêt dans la chaîne de l' ^{238}U , et leurs intensités cumulées en pourcent.	22
13	Éléments d'intérêt dans la chaîne de l' ^{235}U , et leurs intensités cumulées en pourcent. Les cases vides représentent des valeurs d'intensités inférieurs à $10^{-2}\%$	23
14	Activités calculés en considérant les intensités de l'uranium 238.	31
15	Calcul de l'abondance isotopique de l' ^{235}U . Incertitudes de $\pm 1\sigma$. Moyenne calculée via les formules de la première partie de ce même rapport.	33
16	Valeurs des activités et leurs incertitudes, dans la série du ^{226}Ra	42

1 Introduction

Ce laboratoire est divisé en deux manipulations. La première, consiste en l'étude d'un bois acheté en Belgique, et provenant d'europe de l'est, afin de déterminer si l'accident de Chernobyl a une influence sur sa composition isotopique. L'analyse se fera via l'étude du bois et des cendres, en comparaison d'un bois ayant poussé en Belgique.

La deuxième manipulation a pour but d'analyser des roches provenant d'une ancienne mine d'uranium au Portugal. Dans un premier temps, une analyse non destructive sera effectuée, afin de caractériser ces roches, via une étude visuelle tout d'abord, puis via l'acquisition de spectres γ . Une estimation de l'abondance isotopique de ^{235}U est présentée, et un ordre de grandeur est donné quant aux quantités en présence dans la roche.

Dans un second temps, un protocole est mis en place afin d'extraire l'uranium présent dans une partie de l'échantillon. Cette extraction sera suivie étape par étape à l'aide d'acquisitions (NaI et HPGe) afin de caractériser l'efficacité de la manipulation. À terme, le rendement et la pureté radio-isotopique de l'échantillon seront analysés, à l'aide d'acquisitions γ , β et α sur l'échantillon récupéré.

2 Analyse d'un Bois d'Europe de l'Est

2.1 Contexte

L'accident de Chernobyl est à ce jour l'accident nucléaire le plus important en terme de conséquences. S'il est difficile de quantifier avec certitude l'impact de ce dernier sur la santé publique, il est néanmoins possible de retrouver des traces de certains radioisotopes libérés dans l'environnement.

En particulier, les arbres sont de bons témoins de cet événement datant maintenant de près de 35 ans. Certains radioisotopes libérés lors de la catastrophe sont en effet des analogues chimiques de substances accumulées par les plantes, comme par exemple le ^{90}Sr analogue du calcium et du magnésium, et le ^{137}Cs , analogue du potassium et du sodium. Il est donc possible, 35 ans après, de retrouver des isotopes radioactifs issus de l'accident, dans les cernes des arbres de plus de 35 ans¹.

2.2 Les radioisotopes recherchés

Les principaux éléments libérés lors de cet accident ayant une demi-vie suffisamment longue pour être encore détectés à ce jour sont le ^{90}Sr (28.78 ans), le ^{137}Cs (30.5 ans) et le ^{241}Pu (13.2 ans, non volatile) [3]. Parmi ces trois éléments, le plutonium est resté proche de la centrale, et le strontium est difficilement détectable, car il a la propriété de se désintégrer par émission β^- , et ce directement vers l'état fondamental de l' ^{90}Y (désintégration β^- pure). De ce fait il n'émet pas de rayonnement γ , ce qui rend les mesures à l'HPGe ou au NaI impossibles. Pour trouver des traces de cet élément, il faudrait donc procéder à des analyses par scintillation liquide par exemple, ce qui n'est pas possible dans notre laboratoire.

Le ^{137}Cs , émettant des rayonnements γ caractéristiques de 661.7 keV, est facilement observable à l'aide des détecteurs NaI et HPGe. Le premier possédant une meilleure efficacité, il sera choisis pour étudier l'activité des échantillons, tandis que le détecteur HPGe, possédant une meilleure résolution en énergie, sera utilisé pour identifier les isotopes présents.

Le ^{137}Cs vas donc nous servir d'étalon dans notre caractérisation des échantillons.

1. En réalité, comme nous le verrons plus loin, les arbres plus jeunes ont aussi incorporé des radio éléments, du fait du cycle sylvestre. Les feuilles retournent à la terre, déposant les radio éléments au sol, où ils peuvent être réabsorbé par les racines des arbres alentours.

2.3 Bio-distribution dans le bois

Avant toute mesure, il est important de connaître la captation par le bois des radioisotopes, ainsi que la distribution spatiale et temporelle dans le tronc (partie étudiée ici).

Les éléments radioactifs libérés lors de la catastrophe de Chernobyl sont véhiculés par l'air, pour peu qu'ils soient volatiles, comme c'est le cas du césium et du strontium. Ils sont alors interceptés par la végétation, ou déposés sur la conopée, à un rythme qui dépend du type d'arbre et de la localisation géographique. Les particules sont alors absorbées par les arbres, dans un premier temps par les feuilles, puis, une fois lessivés et transférés au sol, via les racines. Le césium est connu pour être facilement capté par les arbres [4]. Même plusieurs décennies après le dépôt de césium, ce dernier peut être retrouvé dans les parties jeunes de l'arbre. Une certaine quantité de ^{137}Cs est présente dans les arbres, du fait des tests nucléaires atmosphériques et des accidents, en plus de celui de Chernobyl, dans une proportion qui dépend de la zone géographique et de l'espèce de l'arbre. Il est difficile de connaître la proportion du césium due à l'accident en question. Les résultats seront donc comparés à des valeurs provenant de la littérature scientifique.

Les parties les plus susceptibles de présenter des taux élevés de césium sont, par ordre décroissant (pour le chêne) : les écorces, les branches ($d < 1$ cm), les feuilles, les branches ($d > 1$ cm) et enfin le tronc [5] avec d qui définit le diamètre. Il semble donc que les résultats obtenus avec nos échantillons ne représenteront qu'une petite part du césium capté par l'arbre dans son ensemble.

2.4 Protocole

Les échantillons disponibles pour l'étude sont les suivants :

- un morceau de bois, provenant de Biélorussie, via achat dans une enseigne *Brico* [6]
- un échantillon de cendres non triées, supposées provenir (en partie du moins) de la combustion de ce même bois,
- un échantillon de bois provenant d'un arbre ayant poussé en Belgique et ayant plus de 35 ans,
- un échantillon de cendres non triées provenant de ce bois belge.

Les échantillons de bois ne subissent aucune préparation particulière, ils sont mesurés via le détecteur NaI ou HPGe tel quel.

Les échantillons de cendre par contre, sont triés. Trois lots sont préparés, suivant la taille

des grains :

- un lot de particules fines (moins d'1 mm²)
- un lot de particules grossières (plus d'1 mm)
- un lot de base (pas de modification).

Cette séparation a lieu dans le but de pouvoir comparer les valeurs d'activité obtenues à la littérature. En effet, les cendres sont généralement considérées comme les restes fins de combustion totale du bois. Les restes de charbon sont donc des résidus qui affectent la qualité des résultats, et compliquent leur interprétation.

2.5 Difficultés liées à la crise sanitaire

En raison du confinement, l'accès au laboratoire de l'ISIB n'a pas été possible autant que souhaité. Certaines mesures ont pu être réalisées grâce à la présence de certains professeurs en fin de confinement.

Cette absence d'accès aux laboratoires a néanmoins empêché l'acquisition de toutes les données prévues. La suite du rapport se concentre donc sur l'acquisition à l'HPGe du lot de cendres du bois de Biélorussie (granulométrie originale, non triée).

2.6 Résultats et interprétation

Dans cette section, les différents calculs utilisés afin de caractériser le spectre des cendres suspectes sont décrits. Dans un premier temps, le comportement du détecteur HPGe est étudié à l'aide d'une source étalon de ²²⁶Ra. Après avoir obtenu une calibration en énergie et en efficacité absolue, le spectre de l'échantillon est analysé.

Dans un premier temps, il est important de s'attarder sur la source étalon. C'est une source de ²²⁶Ra (en équilibre séculaire avec sa descendance) contenue dans du charbon. La géométrie est la même que notre échantillon, à savoir une boîte de pétrir.

On retrouve dans le Tableau 1, les principaux isotopes d'intérêt (émetteurs γ , avec intensité suffisante). Ces pics sont ceux utilisés pour les différentes calibrations.

On retrouve ces 10 principaux pics sur la Figure 1. Le centroïde des pics a été considéré comme étant le canal comportant le plus de coups. L'aire net des pics a été calculée en retirant le bruit de fond en « coupant » le pic à sa base par la droite passant par les bornes d'intégration.

2. Cette taille fait référence à la dimension des mailles du tamis.

Isotope	Activité [Bq]	Énergie pic [kev]	Intensité α [%]	Aire net du pic
Ra-226	788.4 \pm 13.1	186.211	3.64	1052 \pm 75
Pb-214	788.2 \pm 13.1	351.932	35.60	4624 \pm 82
	788.2 \pm 13.1	295.223	18.42	3018 \pm 71
	788.2 \pm 13.1	241.995	7.25	1453 \pm 62
Bi-214	788.4 \pm 13.1	609.320	45.49	3024 \pm 59
	788.4 \pm 13.1	1764.491	15.30	354 \pm 20
	788.4 \pm 13.1	1120.294	14.92	583 \pm 28
	788.4 \pm 13.1	1238.12	5.83	-
	788.4 \pm 13.1	768.36	4.89	-
Pb-210	795.3 \pm 10.8	46.539	4.25	334 \pm 57

TABLEAU 1 – Activité des isotopes d'intérêt dans l'étalon de ^{226}Ra de charbon. Détail des calculs en Annexes B.

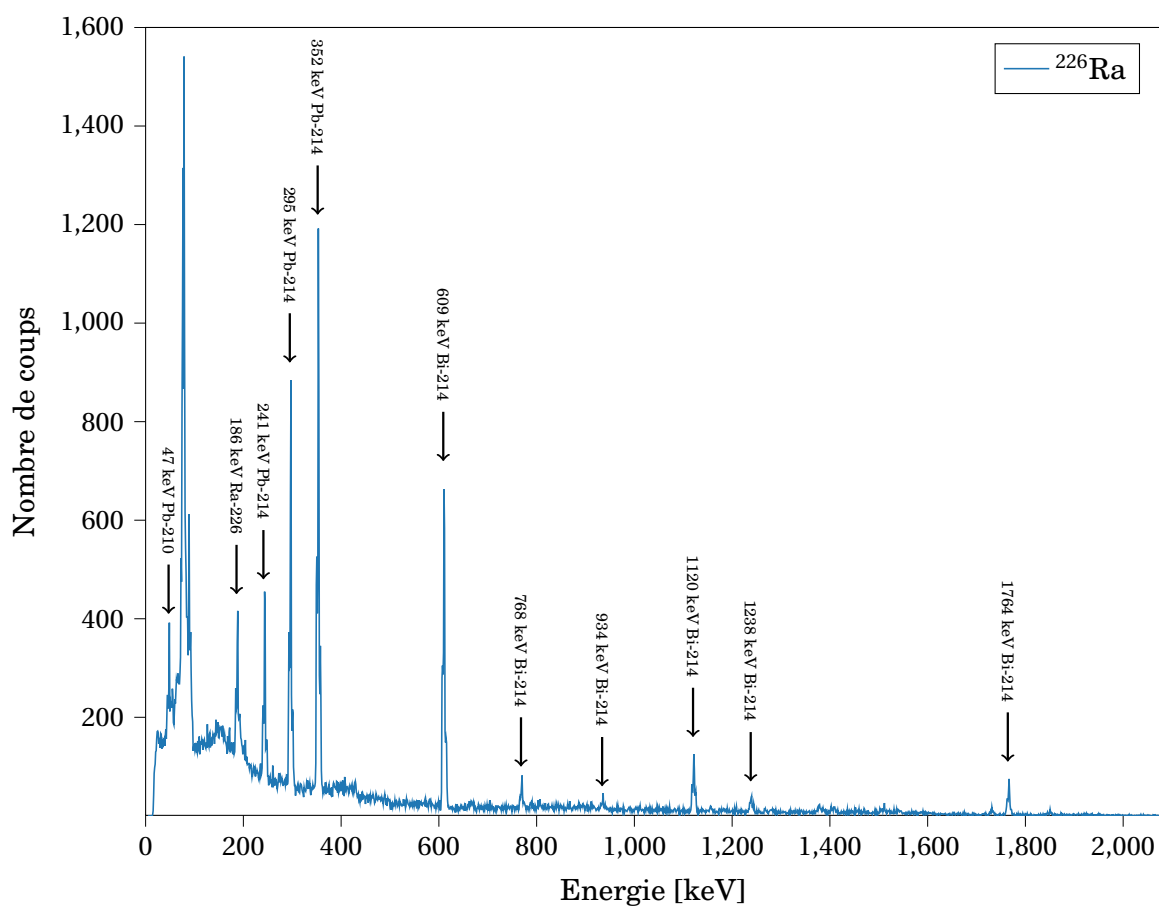


FIGURE 1 – Spectre de 900 secondes de l'étalon de ^{226}Ra . Détecteur HPGe.

2.6.1 Calibration en énergie

La première calibration consiste à trouver la correspondance entre le numéro des canaux et l'énergie des coups qui y sont comptés. Pour ce faire, les canaux comportant les centroïdes des pics sont portés en graphique et comparés à l'énergie de ces mêmes pics. On retrouve le graphique correspondant sur la Figure 2.

On remarque que le coefficient de détermination est très proche de 1, ce qui signifie une très bonne relation linéaire entre le numéro du canal et l'énergie correspondante. Cette linéarité énergétique est intéressante car elle permet d'avoir un bon niveau de précision dans la détermination des énergies des pics inconnus. De plus, on peut supposer que cette droite de calibration peut être extrapolée jusqu'à 3 MeV environs.

L'équation de la droite de calibration est donnée, sa détermination et la méthode de calcul des incertitudes se trouvent en annexe A. Elle permet de retrouver l'énergie E d'un canal (N_{canal}), en résolvant l'équation suivante :

$$N_{canal}^o = 0.9645 \times E - 3.148$$

Cette dernière a été déterminée grâce à une régression linéaire. Pour rappel les conditions d'application d'une régression linéaire sont [7] :

- . L'incertitude doit être négligeable pour la grandeur portée en abscisse.
- . L'incertitude doit être constante pour la grandeur portée en ordonnée.

Dans le cas présent, l'incertitude sur le canal a été choisie comme étant égale à 0.5 canal, soit la précision du système. Comme la condition d'application l'impose cette incertitude est constante. L'incertitude sur les énergies des pics est indiquée sur le site du Laboratoire National Henry Bequerel [8]. Les incertitudes calculées sur les coefficients de la droite de régression d'équation $y = mx + p$ sont :

$$m = 0.9645 \pm 0.0009$$

$$p = -3.1 \pm 0.4$$

Grâce à ces deux incertitudes il est possible de trouver une incertitude sur l'énergie. Pour ce faire il faut trouver l'énergie pour la droite maximale (pente maximale et ordonnée à l'origine maximale) et pour la droite minimale (pente minimale et ordonnée à l'origine minimale). Grâce à cette incertitude sur la droite de régression il ne faudra plus tenir compte de l'incertitude sur l'énergie seule car elle est comprise dedans. L'incertitude calculée est : $\sigma_E = 2\%$.

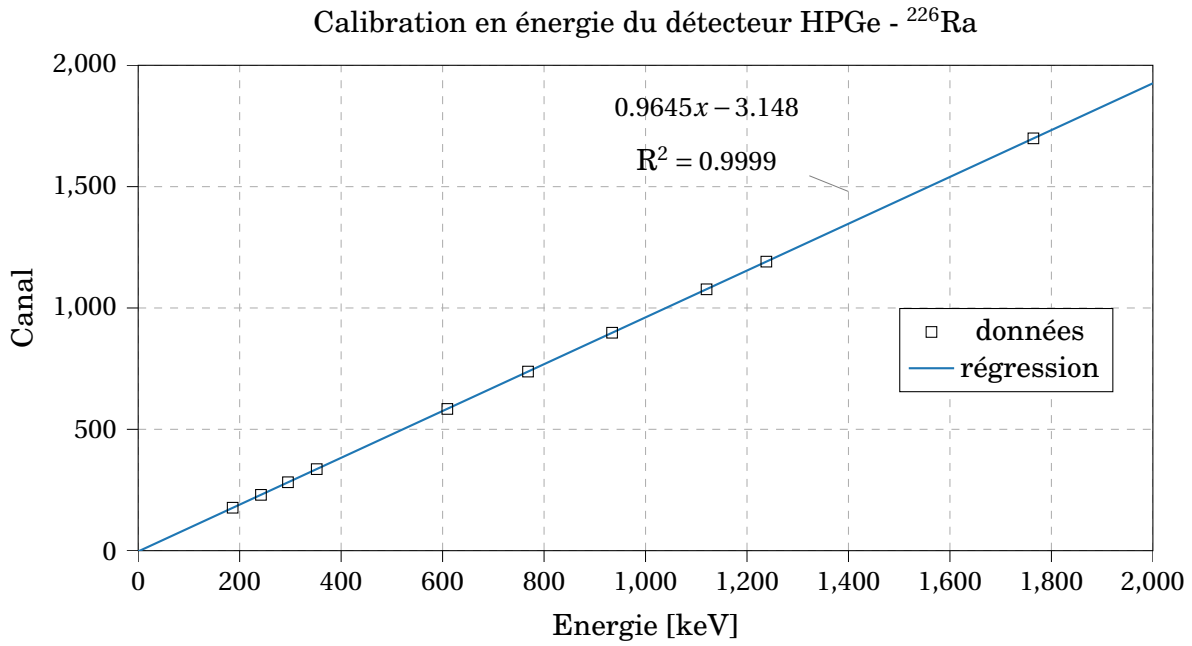


FIGURE 2 – Correspondance entre le numéro du canal et l'énergie des principaux pics du ^{226}Ra .

2.6.2 Calibration en efficacité de détection

Après avoir réalisé une calibration en énergie, il est encore nécessaire de connaître l'efficacité absolue de détection, dans les conditions de mesure.

L'efficacité absolue, ou efficacité du pic de pleine énergie ε_P dans les conditions géométriques de détection ε_G , et selon l'efficacité intrinsèque du détecteur ε_I , vaut :

$$\varepsilon_{abs} = \varepsilon_P = \varepsilon_G \times \varepsilon_I$$

La source étalon ayant la même forme et la même composition (charbon) que l'échantillon à analyser, on suppose que les facteurs géométriques sont identiques. Il est certain qu'une incertitude subsiste ici car la forme n'est pas parfaitement identique et la densité n'est pas nécessairement exactement la même. Cette incertitude étant complexe à évaluer, l'hypothèse est que les facteurs géométriques sont identiques.

On retrouve les valeurs d'efficacité absolues, calculées à partir des pics de la source étalon de ^{226}Ra , sur la Figure 3.

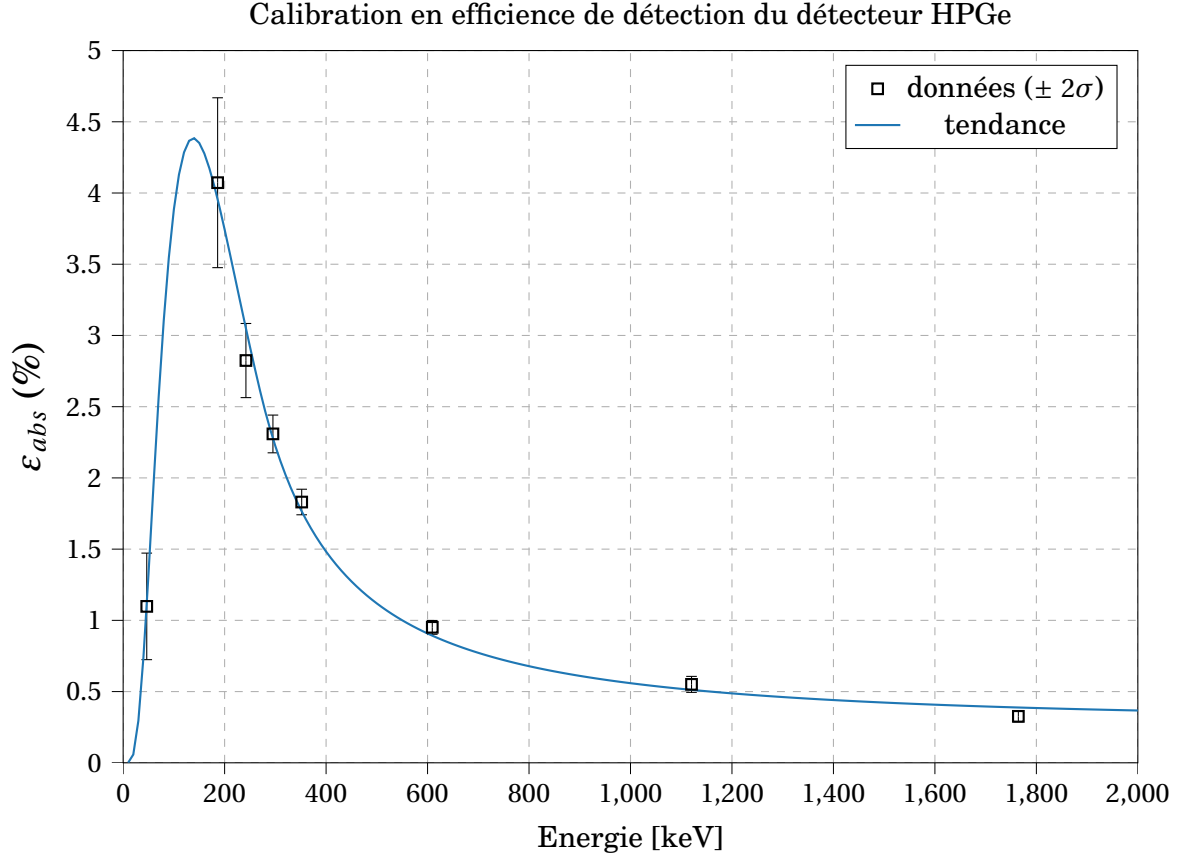


FIGURE 3 – Évolution de l'efficacité absolue en énergie, pour $E < 2$ MeV. Les données proviennent des pics du ^{226}Ra de la source étalon.

Les incertitudes, correspondant à un intervalle de $\pm 1\sigma$ ont été calculées en prenant en compte l'incertitude sur l'activité de l'étalon ($\pm 1.67\%$), l'incertitude liée à l'aire net sous les pics, ainsi que l'incertitude sur le temps d'acquisition. Pour plus de précisions, voir le paragraphe sur les incertitudes page suivante.

La courbe de tendance a été construite suivant la formule développée par DIAS et CARDOSO [9], modifiée pour correspondre au détecteur du laboratoire.

La courbe est composée de deux arcs de courbe, dont voici l'équation et le domaine. Elle lie directement l'efficacité absolue ε_{abs} à l'énergie E .

$$\ln(\varepsilon_{abs}) = \wp + \vartheta \ln\left[\frac{E}{\varrho}\right] + \Upsilon \ln^2\left[\frac{E}{\varrho}\right] \quad (1)$$

Les paramètres ont été choisis à l'aide d'un programme *Python*³ ayant simulé plusieurs centaines de millions de combinaisons, en cherchant à minimiser la somme des carré des écarts à la courbe. Les meilleurs paramètres trouvés sont les suivants (Tableau 2) :

3. Programme original, créé par les auteurs du présent rapport.

$$\begin{aligned}
\wp &= -3.646 \\
\vartheta &= -1.55 \\
\rho &= +270 \text{ [keV]} \\
Y &= -1.157 \text{ si } E < \rho, \text{ et } +0.285 \text{ si } E > \rho
\end{aligned}$$

TABLEAU 2 – Paramètres de la fonction 1

Cette courbe de tendance est valable pour des énergies allant de 59 à 2 754 keV [9]. Avec cette courbe de calibration, il est maintenant possible de retrouver l'activité d'un radioisotope du spectre des cendres suspectes, en fonction du nombre de coups mesuré dans un pic.

Incertitudes : les incertitudes sur le calcul de l'efficienne prennent en compte les points suivants :

L'incertitude sur l'**aire net du pic** :

$$\sigma_{pic} = \sqrt{\sigma_{tot}^2 + \sigma_{bf}^2} = \sqrt{N_{tot} + N_{bf}}$$

L'incertitude sur l'**activité de l'étalon**, indiquée sur le certificat de calibration comme valant 4.3% à 99% de certitude, soit :

$$\frac{\sigma_A}{A} = 1.7 \text{ \%}.$$

L'incertitude sur le **temps** de mesure, choisie comme valant sa précision :

$$\sigma_t = 1 \text{ seconde}$$

L'incertitude sur l'efficienne a donc été calculée selon la formule suivante :

$$\sigma_\varepsilon^2 = \left[\frac{\sigma_{pic}}{A \cdot \alpha \cdot t} \right]^2 + \left[\frac{-N_{pic} \cdot \sigma_A}{A^2 \cdot \alpha \cdot t} \right]^2 + \left[\frac{-N_{pic} \cdot \sigma_t}{A \cdot \alpha \cdot t^2} \right]^2$$

Afin de pouvoir calculer l'incertitude sur l'efficienne à toutes les énergies possible, l'équation suivante a été développée, en observant le comportement des données :

$$\frac{\sigma_\varepsilon}{\varepsilon} = \wp \cdot e^{\alpha \cdot E} + B \cdot \ln(\beta \cdot E) + C \cdot e^{\kappa \cdot E} \quad (2)$$

Cette équation permet simplement d'estimer l'incertitude, à défaut de quoi l'incertitude maximale observée aurait dû être utilisée pour toutes les valeurs.

Le même code *Python* (modifié) a été utilisé afin de tester des combinaisons de paramètres

pour cette équation. Au total, plusieurs centaines de millions de combinaisons de paramètres ont été simulées, et comparées suivant l'écart des valeurs connues à la courbe. Le facteur de comparaison R^2 a été choisis comme valant ⁴ :

$$R^2 = \sum \left(\sigma_{\epsilon, calc} - \sigma_{\epsilon, mes} \right)^2$$

Avec :

- $\sigma_{\epsilon, calc}$: l'incertitude sur l'efficience calculée selon les paramètres choisis, et
- $\sigma_{\epsilon, mes}$: l'incertitude réelle, mesurée à l'aide des pics de la source étalon.

Les meilleurs paramètres proposés sont les suivants (Tableau 3) :

$$\begin{aligned} \varphi &= +1.072(5) \\ \alpha &= -0.0044(5) \text{ [keV}^{-1}\text{]} \\ B &= +0.0103(5) \\ \beta &= +0.23(0) \text{ [keV}^{-1}\text{]} \\ C &= -0.85(3) \\ \kappa &= -0.0035(5) \text{ [keV}^{-1}\text{]} \end{aligned}$$

TABLEAU 3 – Paramètres de la fonction 2

L'incertitude sur la valeur de ces paramètres est évaluée sur base du fonctionnement du programme. Ce dernier fonctionne de manière itérative, en diminuant l'incrément des valeurs testées à chaque pas. Le programme test à chaque itération 10^6 combinaisons, et sélectionne les meilleurs pour l'étape suivante. Les paramètres peuvent donc toujours être précisés. Dans le cadre présent, l'imprécision concerne le dernier digit de chaque valeur. Cette fonction est visible sur le Figure 4. Elle permet de calculer l'incertitude sur l'efficience de détection, pour toutes les énergies entre 10 keV et 1.8 MeV. Dans la pratique, elle est supposée valable en extrapolation jusqu'à 3 MeV⁵.

À l'aide de ces deux équations, il est donc maintenant possible de calculer, pour toutes les énergies entre 10 keV et 2.8 MeV, l'efficience de détection ainsi que l'incertitude relative à cette efficience.

4. Cet estimateur a été choisis par analogie avec ce qui se fait dans le cas des droites de régression. L'estimateur a permis au programme *Python* de connaître la qualité de son approximation.

5. On remarque que la courbe tends à se stabiliser, et n'augmente pas beaucoup entre 1.8 MeV et 3.0 MeV, suivant une croissance en logarithme népérien.

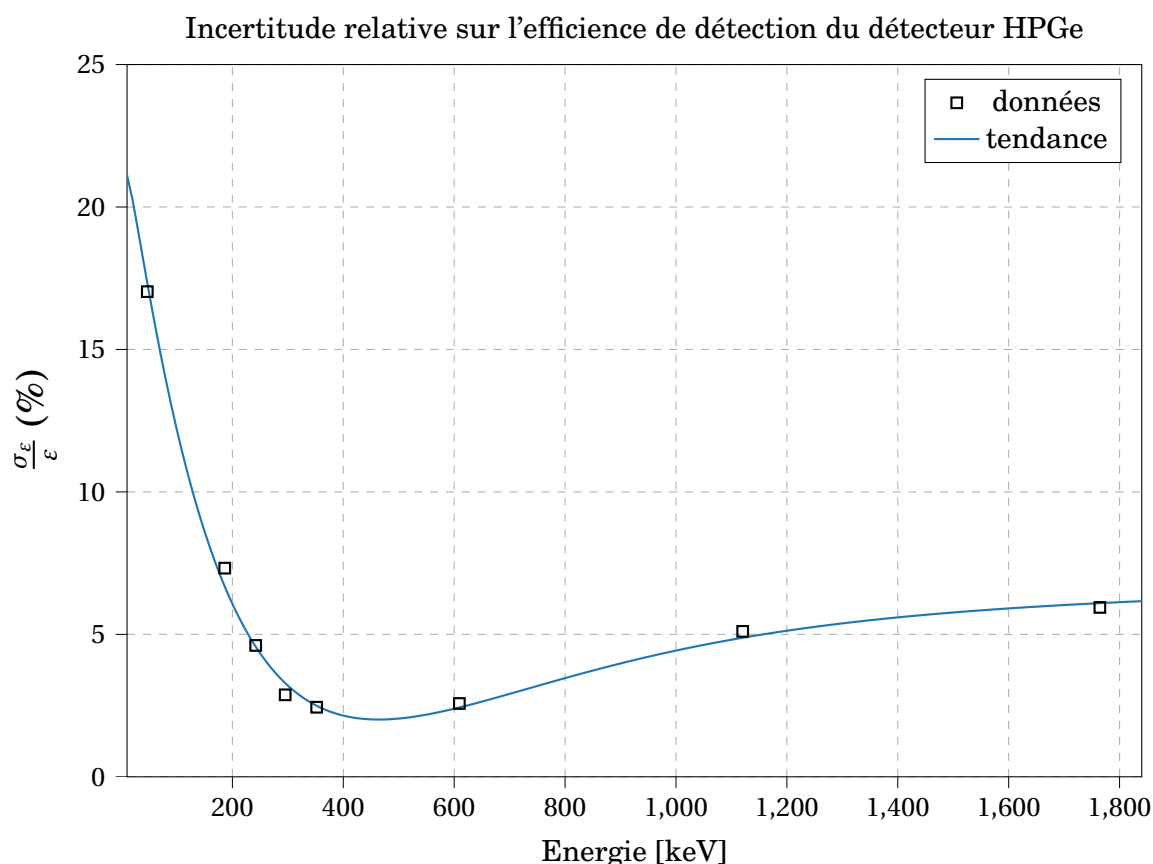


FIGURE 4 – Évolution de l'incertitude relative sur l'efficacité de détection, pour $E < 1.84$ MeV. Les données proviennent des pics du ^{226}Ra de la source étalon.

2.6.3 Spectre des cendres suspectes

Maintenant que toutes les données de calibrations sont connues, il est temps de se pencher sur le spectre de l'échantillon de cendres provenant du bois de Biélorussie. On retrouve le spectre obtenu à l'aide du détecteur HPGe sur la Figure 5 page 14. On remarque immédiatement la présence des mêmes spectres caractéristiques de la série du ^{226}Ra (en noir sur la Figure 5).

Cependant, un certain nombre de pics supplémentaires apparaissent distinctement (en rouge). Outre la série du ^{226}Ra , on remarque en effet six pics distincts qui n'étaient pas présents sur le spectre de l'étalon. Ils ne font donc pas partie de la même série.

Le Tableau 4 reprends les pics en question, et propose des isotopes suspectés d'en être à l'origine.

N°	$E_{spectre}$ [keV]	Candidat(s)	E_{pic} [keV]	Intensité α (%)
1	510.4	^{208}Tl	510.77	22.6
		(annihilation)	511.00	-
2	583.0	^{208}Tl	583.19	85.0
3	661.8	^{137}Cs	661.66	85.1
4	911.7	^{228}Ac	911.20	25.8
5	1 461.3	^{40}K	1 460.82	10.7
6	2 613.4	^{208}Tl	2 614.51	99.8

TABLEAU 4 – Pics ne faisant pas partie de la série du ^{226}Ra , et candidats potentiels.

Après une première analyse des pics présents sur le graphique, quatre séries ont été sélectionnées pour une analyse poussée. La série du ^{226}Ra , la série du ^{228}Ra ⁶, ainsi que les radionucléides ^{137}Cs et ^{40}K .

On retrouve sur les Tableaux 5, 6, 7 et 8 page 13 les données calculées pour les différentes séries.

6. Du fait de la présence du ^{208}Tl et de l' ^{228}Ac , tous deux présents dans la chaîne du ^{228}Ra .

Élément	E_{pic} [keV]	α [%]	Aire net ($\pm \sigma$)	$A_{éch}$ [Bq] ($\pm \sigma$)	A_{mass} [Bq.kg ⁻¹] ($\pm \sigma$)
¹³⁷ Cs	661.66	85.1	1 976 ± 72	1.94 ± 0.09	102 ± 5

TABLEAU 5 – Analyse de l’activité en ¹³⁷Cs dans l’échantillon de cendres du bois de Biélorussie.

Isotope	E_{pic} [keV]	α [%]	Aire net ($\pm \sigma$)	$A_{éch}$ [Bq] ($\pm \sigma$)	A_{mass} [Bq.kg ⁻¹] ($\pm \sigma$)
⁴⁰ K	1 460.82	10.66	5 545 ± 80	82.7 ± 4.9	4 370 ± 260

TABLEAU 6 – Analyse de l’activité en ⁴⁰K dans l’échantillon de cendres du bois de Biélorussie.

Élément	E_{pic} [keV]	α [%]	Aire net ($\pm \sigma$)	$A_{éch}$ [Bq] ($\pm \sigma$)	A_{mass} [Bq.kg ⁻¹] ($\pm \sigma$)
²¹⁴ Pb	351.93	35.60	2 684 ± 104	2.92 ± 0.13	154 ± 7
²¹⁴ Bi	609.32	45.49	1 659 ± 75	2.79 ± 0.14	147 ± 8
	1 764.49	15.30	231 ± 24	2.65 ± 0.32	140 ± 17
	1 120.29	14.92	282 ± 49	2.52 ± 0.45	133 ± 24

TABLEAU 7 – Analyse de l’activité des isotopes de la série du ²²⁶Ra (émetteurs γ d’intérêt) dans l’échantillon de cendres du bois de Biélorussie.

Élément	E_{pic} [keV]	α [%]	Aire net ($\pm \sigma$)	$A_{éch}$ [Bq] ($\pm 3 \sigma$)	A_{mass} [Bq.kg ⁻¹] ($\pm 3 \sigma$)
²⁰⁸ Tl	2 614.51	99.75	262 ± 18	0.533 ± 0.05	28.2 ± 2.7
	583.19	85.00	665 ± 65	0.570 ± 0.06	30.1 ± 3.0
²²⁸ Ac	911.20	25.80	383 ± 43	1.68 ± 0.20	88.6 ± 10.6

TABLEAU 8 – Analyse de l’activité des isotopes de la série du ²²⁸Ra (émetteurs γ d’intérêt) dans l’échantillon de cendres du bois de Biélorussie.

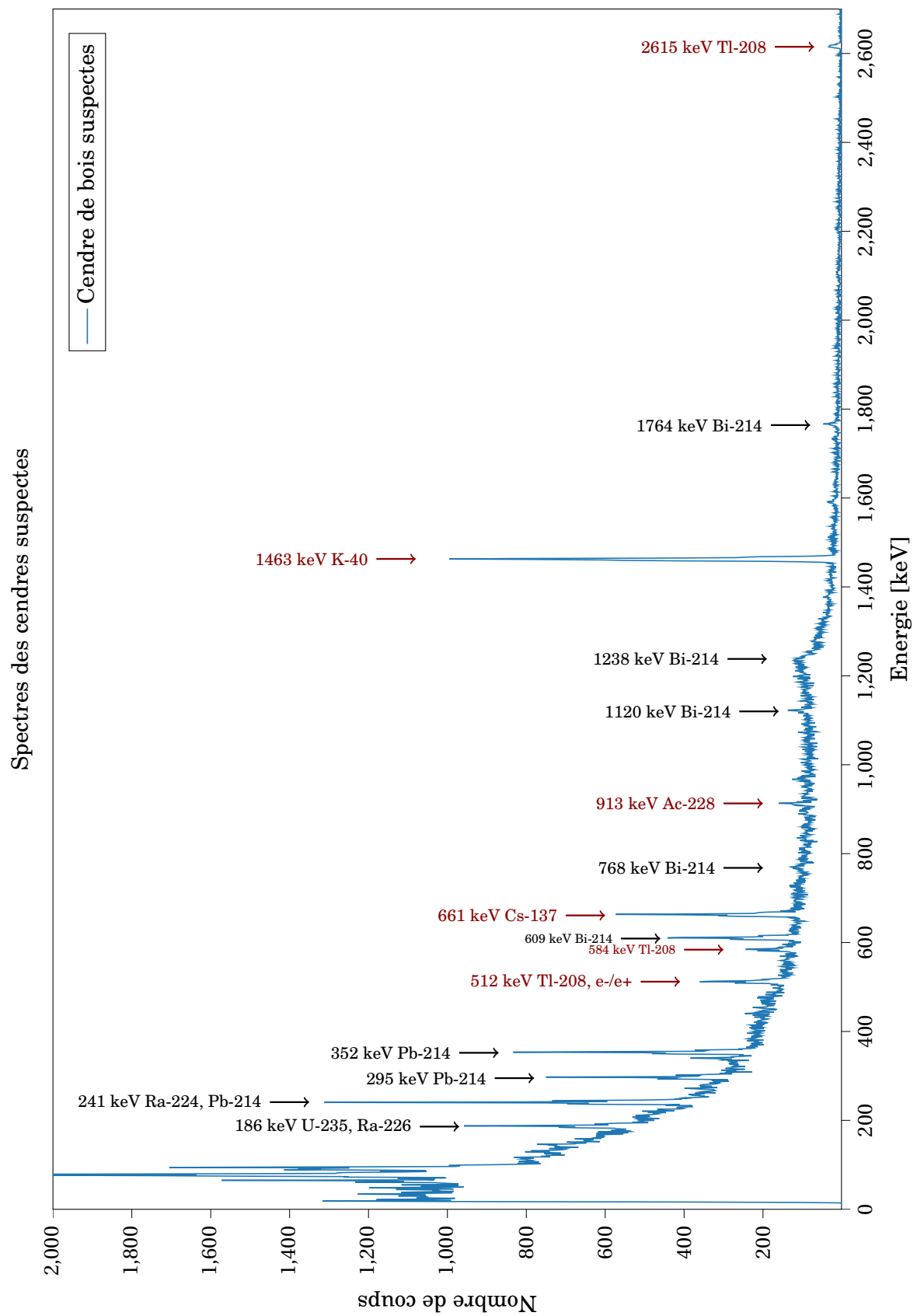


FIGURE 5 – Spectre des cendres de bois suspectes, acquisition de 40 heures au détecteur HPGe.

2.6.4 Incertitudes

Détails des calculs pour l'activité L'objectif est de déterminer l'activité A des différents radionucléides présents dans l'échantillon. Soit N_{net} le nombre de coups dans le pic d'absorption totale pour un isotope donné, calculé comme suit :

$$N_{net} = N_{tot} - N_{bf}$$

Et son incertitude :

$$\sigma_N = \sqrt{N_{tot} + N_{bf}}$$

On peut alors calculer le nombre de photons γ émis par la source pour ce pic, de la manière suivante, en calculant l'efficacité de détection ε à l'aide de la fonction 1 :

$$N_\gamma = \frac{N_{net}}{\varepsilon} \quad (3)$$

Et son incertitude :

$$\sigma_\gamma = \sqrt{\left(\frac{\sigma_N}{\varepsilon}\right)^2 + \left(\frac{-N_{net} \cdot \sigma_\varepsilon}{\varepsilon^2}\right)^2}$$

avec σ_ε calculé avec l'aide de la fonction 2.

On peut alors calculer l'activité selon la formule :

$$A = \frac{N_\gamma}{\alpha \cdot t}$$

Cette formule n'est valable que pour les activités longues, par rapport au temps de comptage, qui sont considérées constantes sur le temps de mesure. Ici grâce à l'équilibre séculaire dans la roche cette condition est respectée pour tous les éléments de la suite du ^{226}Ra . avec son incertitude (incertitude sur le temps négligée) :

$$\sigma_A = \frac{\sigma_\gamma}{\alpha \cdot t}$$

On obtient alors l'activité correspondante du radionucléide considéré, sous la forme $A \pm \sigma_A$.

Calcul de l'activité minimum détectable Il est important de calculer l'activité minimum détectable (**AMD**) du système de détection. Si l'AMD est plus grande que les activités calculées, il n'est pas possible de considérer les résultats obtenus. C'est donc une étape primordiale dans les incertitudes de détection. Pour rappel l'AMD se calcul comme [10] :

$$AMD = \frac{4.65\sqrt{N_B} + 2.71}{\alpha \varepsilon t}$$

Cette formule donne l'AMD pour un intervalle de confiance de 95%. Les résultats obtenus sont les suivants :

Energie [keV]	Élément	A [Bq]	Coups _{bf}	AMD [Bq]	σ_{AMD} [Bq]
661,660	Cs-137	1,938	1631,000	0,187	0,006
1460,820	K-40	82,699	389,000	1,408	0,087
351,930	Pb-214	2,915	4059,000	0,325	0,008
609,320	Bi-214	2,789	1997,000	0,354	0,009
1764,490	Bi-214	2,655	212,000	0,809	0,056
1120,290	Bi-214	2,520	1053,000	1,372	0,070
2614,510	Tl-208	0,534	31,000	0,058	0,006
583,190	Tl-208	0,570	1800,000	0,171	0,004
911,200	Ac-228	1,678	735,000	0,564	0,025

TABLEAU 9 – Calcul de l'AMD pour chacun des pics utilisés pour déterminer l'activité des cendres

Le tableau montre que malgré le fait que les activités calculées soient relativement faibles l'AMD est inférieure pour chaque pic. De ce fait il est possible de considérer les valeurs comme étant représentatives de l'échantillon et indépendante du bruit de fond. L'incertitude sur l'activité minimum détectable a été calculée grâce à la formule de propagation des incertitudes.

2.6.5 Analyse des données

Dans cette section, les différents résultats obtenus sont passés en revue et discutés.

Potassium : l'analyse du spectre des cendres du bois Biélorusse indique la présence de ^{40}K en quantité non-négligeable. En effet, on en retrouve environs 4.4 kBq par kilogramme de cendres.

Afin de vérifier la pertinence de cette valeur, il est intéressant de chercher à retrouver la quantité totale de potassium (tous isotopes confondus) présents dans ces cendres. Nous avons donc :

$$N_{K40} = \frac{A}{\lambda} = \frac{A \times T_{1/2}}{\ln 2} = 2.49 \pm 0.15 \times 10^{20} \text{ atomes de } ^{40}\text{K par kg de cendres,} \quad (4)$$

ce qui nous donne :

$$m_{K40} = \frac{2.49 \times 10^{20}}{N_A} \times 40 = 1.65 \pm 0.10 \times 10^{-2} \text{ grammes de } ^{40}\text{K par kg de cendres.} \quad (5)$$

En tenant compte de l'abondance isotopique du ^{40}K de 0.0117 %, on obtient :

$$M_{K_{TOT}} = \frac{1.65 \times 10^{-2}}{0.000117} = 141 \pm 8 \text{ grammes de potassium par kilogramme de cendres.} \quad (6)$$

On retrouve donc une abondance en potassium de 14.1 ± 0.8 % en masse dans les cendres. D'après la littérature, les cendres de bois contiennent généralement du potassium sous forme de K_2O à hauteur de 10 à 35 % en masse (soit 8.3 à 29.1 % de potassium), totalement en accord avec le résultat obtenus ici [11].

De plus, les cendres représentent de 0.2 à 4 % de la masse initiale en bois avant combustion. Cependant, il faut faire attention que ce pourcentage prends en compte uniquement les cendres fines (poudre grise-blanche) et non les résidus de combustion incomplète.

De manière très approximative, il est donc possible de donner un ordre de grandeur de la quantité de potassium dans le bois d'origine, à savoir de l'ordre de 0.14 % en masse, en prenant un ratio massique cendres/bois initial de 1 %.

On peut donc conclure que l'activité en ^{40}K est d'environ 4.37 ± 0.26 kBq par kilogramme de cendres, et donner un ordre de grandeur de 40 Bq par kilogramme de bois.

Césium : la même logique que celle employée pour le potassium peut être appliquée au ^{137}Cs . On retrouve ainsi une activité d'environ 102 ± 5 Bq par kilogramme de cendres, soit environ 1 Bq par kilogramme de bois.

Un rapide calcul permet de retrouver les masses mises en jeu, à savoir environ 31.7 ± 1.6 pico-gramme de ^{137}Cs par kilogramme de cendres et de l'ordre de 300 femto-gramme de ^{137}Cs par kilogramme de bois.

Afin de comparer ces valeurs à des mesures effectuées dans d'autres régions du monde, une étude de 1991 nous permet de positionner ces cendres en fonction de leur activité en ^{137}Cs et en ^{40}K [12]. Les résultats portent sur 47 prélèvements de cendres dans différents états des États-Unis. Les valeurs extrêmes sont reprises dans le Tableau 10 ci-dessous.

	A_{min} [Bq.kg ⁻¹]	A_{max} [Bq.kg ⁻¹]
¹³⁷ Cs	2.92	781
⁴⁰ K	1036	5700

TABLEAU 10 – Valeur min et max pour les 47 échantillons mesurés sur le territoire américain en 1991.

Ces données permettent de mettre en perspective les 102 ± 5 Bq de ¹³⁷Cs et les 4.37 ± 0.26 kBq de ⁴⁰K par kilogramme de cendres dans notre échantillon.

L'évaluation du ratio ¹³⁷Cs/⁴⁰K des cendres, est également un bon indicateur de comparaison dans la contamination au césium [13]. Dans le cas présent, ce ratio vaut :

$$\log \left[\frac{102}{4370} \right] = -1.63 \quad (7)$$

D'après BURROWS et CHALMERS [13], ce ratio pouvait varier de +1 à +3 en Europe, et plus particulièrement en Europe de l'est. Même en divisant par deux l'activité de césium (données datant de 1990, donc une demi-vie du césium écoulée), les résultats obtenus ici sont très encourageants. Il faut noter cependant que ces données ont été obtenues via des cendres résultant de feux de forêt, or, comme nous l'avons vu, le tronc des arbres est la partie contenant le moins de césium. Les cendres après un feu de forêt contiennent donc naturellement plus de césium, du fait de la présence des branches et du feuillage.

Le ratio obtenu pour les cendres de Biélorussie permet néanmoins de relativiser l'activité de césium mesurée.

Plus proche de la méthodologie utilisée ici, HUSA et son équipe [2] ont réalisés des analyses d'activité pour trois types d'arbre, dont les résultats sont présentés dans le Tableau 11 ci-dessous. Comme expliqué précédemment, les valeurs pour le bois de Biélorussie sont à considérer comme un ordre de grandeur, du fait de l'incertitude très élevée sur la masse de bois correspondant aux cendres analysées.

	HUSA et all. [Bq/kg de bois] [min : max]	Bois biélorusse [Bq/kg de bois]
^{137}Cs	[1.6 : 2.7]	≈ 1.0
^{40}K	[21.5 : 38.7]	≈ 40
^{214}Bi	[0.2 : 2.2]	≈ 1.5

TABLEAU 11 – Comparaison des données obtenues par HUSA et all. [2], avec les données mesurée dans le présent rapport. Les valeurs correspondent à l'activité par kilogramme de bois. Pour la présente étude, les activités sont indicatives, et sujettes à caution (voir plus haut).

3 Analyse d'un Minerais d'Uranium

Dans cette section, est décrite l'analyse d'un minerai provenant d'une ancienne mine d'uranium au Portugal⁷. Le sous-sol de la région est riche en filons uranifères, et a été exploité pour le radium comme pour l'uranium au cours du 20^{ème} siècle. De plus de 50 mines en activité en 1925, la quasi totalité ont été arrêtées pour raison économique vers la fin des années 80/90. Il n'en reste plus aucune en activité aujourd'hui, et les sites sont en cours de réhabilitation.

3.1 Contexte

Au cours de notre visite au Portugal, il a été possible de visiter une ancienne mine. Armés de compteurs *Geiger*, il était très intéressant de pouvoir mesurer les variations de bruit de fond. De nombreuses roches ont été sélectionnées pour être ramenées au laboratoire en Belgique, du fait de leur activité importante.

On retrouve sur la Figure 6 page 20, certains des échantillons prélevés.

L'échantillon sélectionné pour des analyses plus poussées est la roche la plus massive et la plus active récupérée (au compteur *Geiger*). Elle présente une couleur orange et ocre, parcourue de veines noires. Toutes les roches récupérées sont massives, et difficiles à fracturer.

D'après leur apparence et leur provenance, on peut estimer leur appartenance au groupe des Pechblende (forme la plus courante des minerais uranifères). D'autre types de roches sont également possibles sur le site, comme la Tornbernite (caractérisée par des cristaux vert émeraude apparents), l'Autunite et une variété locale, la Sabugalite [14].

7. Complexe Minier de *Bica Mine, Quarta-Feira, Sabugal, Portugal*.

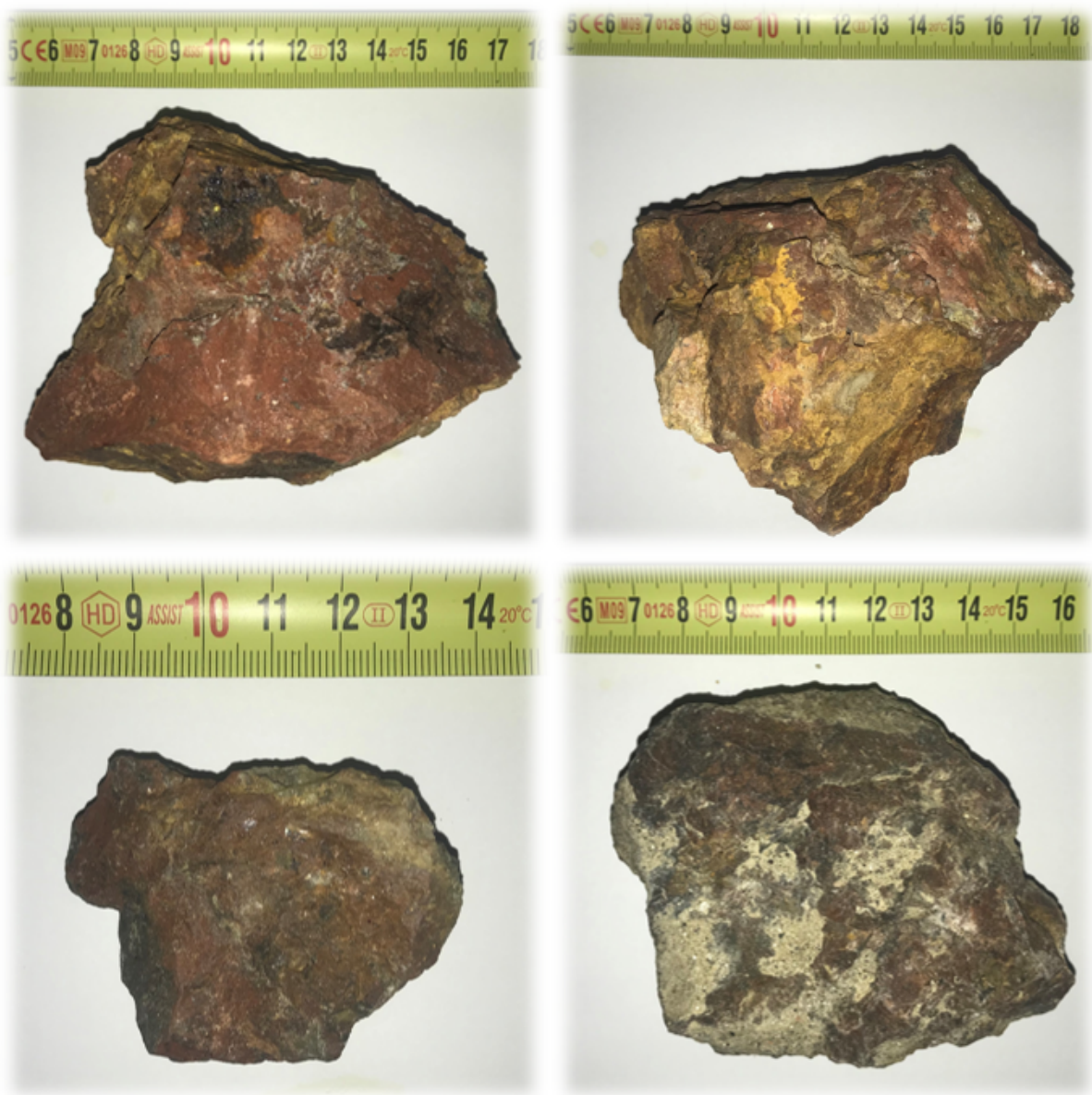


FIGURE 6 – Différents échantillons prélevés dans l'ancienne mine (prélèvement en surface, sur critère d'activité). En haut à gauche et à droite, le plus gros échantillon récupéré, analysé dans ce rapport. En bas, deux autres échantillons légèrement moins colorés, et de plus petite taille.

3.2 Les radioisotopes recherchés

La première question soulevée concerne les radioéléments recherchés, c'est à dire les éléments radioactifs que l'on s'attend à retrouver dans une telle roche, et à pouvoir mesurer à l'aide d'un détecteur de rayonnements γ (détecteur HPGe dans notre cas).

Étant donné la localisation et l'activité de la roche au compteur *Geiger* (plus de 100 coups par seconde à certains endroits), on s'attend à mesurer une activité de plusieurs centaines à plusieurs milliers de becquerels au détecteur HPGe. Les séries naturelles sont soupçonnées en être la cause, soit celles de l' ^{238}U , de l' ^{235}U et peut-être du thorium, en plus faible quantité. Étant donné l'abondance naturelle de l' ^{235}U de 0.7202%, on s'attend à retrouver principalement de l'isotope 238. Cependant, ayant une demi-vie plus courte, l' ^{235}U est proportionnellement plus actif que son homologue.

Les séries de l' ^{238}U et de l' ^{235}U ont été passées en revue, à l'aide de l'outil en ligne du Laboratoire National *Henri Becquerel* [8], à la recherche des émissions γ caractéristiques des éléments composant ces séries. Du fait de l'activité attendue, les intensités ont été prises en compte jusqu'à un pourcentage de 0.1% environs. Pour chaque pic, les bornes d'intégration ont permis de sélectionner les émissions γ à considérer. Le site *Universal Decay Calculator* a également été utilisé pour estimer l'activité de chaque élément [15]. On retrouve dans les Tableaux 12 et 13, les données utilisées.

Tous ces éléments sont donc recherchés dans le spectre de l'échantillon de roche. L'objectif est donc d'essayer de quantifier les ordres de grandeur des masses mises en jeu ici, et de donner une estimation de l'abondance isotopique de l' ^{235}U .

3.3 Protocole

L'analyse proposée ici a pour but de déterminer la quantité d'uranium qui se trouve dans la roche. Cela permettra d'avoir une idée de la quantité qu'il est possible d'extraire. L'analyse réalisée permettra également de déterminer l'abondance isotopique de l'uranium 235, qui sera un indice de la pertinence de la méthode employée. Il est possible de résumer le protocole d'analyse comme suit :

- Étude du facteur géométrique de l'efficacité. Cette étape consiste à déterminer la proportion des photons qui quittent la pierre en fonction de l'énergie de ces derniers afin de quantifier l'influence de la géométrie de détection (figure 7). Pour cela, une simulation est réalisée via le logiciel de simulation Monte-Carlo développé par le

Série	U238						
Élément	Pa234m	Th230	Ra226	Po218	Pb214	Bi214	TOTAL
Activité	100%	100%	100%	100%	99.98%	100%	
185.917		0.00880	3.55500			0.00125	3.56505
241.956					7.26800		7.26800
294.882					18.41400	0.02550	18.43950
350.921					35.60000	0.12300	35.72300
609.324						45.58000	45.58000
665.364						1.58400	1.58400
702.723						0.70090	0.70090
742.158	0.10580					0.08080	0.18660
768.102	0.32300				0.05300	4.89200	5.26800
785.744	0.05360				1.06400	0.32500	1.44260
806.499						1.26200	1.26200
838.67				0.00110	0.58700	0.03500	0.62310
934.144						3.17600	3.17600
964.239						0.37310	0.37310
1001.599	0.84700						0.84700
1120.942						14.95600	14.95600
1156.226						1.63500	1.63500
1208.114						0.45400	0.45400
1239.247						5.83800	5.83800
1281.795						1.44800	1.44800
1378.307						4.77170	4.77170
1409.44						3.71900	3.71900
1510.103	0.01308					2.13520	2.14828
1584.822						0.70700	0.70700
1663.692						1.11000	1.11000
1731.147	0.02140					2.84400	2.86540
1766.431						15.31090	15.31090
1849.452	0.01759					2.36800	2.38559
1875.396						0.21200	0.21200
2121.346						1.24200	1.24200
2207.48						4.95100	4.95100
2296.728						0.31060	0.31060
2451.355						1.55741	1.55741

TABLEAU 12 – Éléments d'intérêt dans la chaîne de l'²³⁸U, et leurs intensités cumulées en pourcent.

Série	U235								
Elément	U235	Th231	Pa231	Th227	Ra223	Rn219	Pb211	Bi211	TOTAL
Activité	100	100	100	98.62	100	100	100	100	
185.917	58.02000	0.03690		0.04130	0.20100				58.29920
241.956	0.16700	0.01051	0.06460	13.07600					13.31811
294.882	0.05270		4.93040	7.40700	0.16210	0.07500			12.62720
350.921			0.27550	0.47510	0.26110			13.00000	14.01170
609.324					0.05700				0.05700
702.723							0.47000		0.47000
768.102							0.62000		0.62000
838.670							3.50000		3.50000
1120.942							0.11600		0.11600

TABLEAU 13 – Éléments d'intérêt dans la chaîne de l' ^{235}U , et leurs intensités cumulées en pourcent. Les cases vides représentent des valeurs d'intensités inférieurs à $10^{-2}\%$.

CERN [16].

- Calibration en énergie. Cette étape permet de traduire le numéro du canal en une énergie grâce à une droite de régression (figure 10).
- Détermination de l'efficacité en fonction de l'énergie. Cette étape se base sur des pics et des activités connues de l'étalon afin de déterminer l'évolution de l'efficacité absolue en fonction de l'énergie du photon (figure 11). Il est important de noter ici que cette efficacité ne prends pas en compte le facteur géométrique cité plus haut, d'où son importance.
- Calcul de l'activité de la série de l' ^{238}U dans la roche. Cette étape quantifie les isotopes présent dans la roche grâce aux analyse précédentes. La figure 12 montre la droite de régression prenant ces effets en compte. Elle est réalisée à l'aide des pics propres à la série, en excluant les quatre pics appartenant aux deux séries (en rouge sur le graphique).
- Une fois l'activité de la série de l' ^{238}U connue, il est possible de retrouver la proportion des coups mesurés qui ne proviennent pas de cette série, pour les quatre pics communs. Les coups supplémentaires sont attribués à l' ^{235}U et à sa série.
- Enfin, partant du nombre de coups mesurés, il est possible de retrouver l'activité des isotopes de la série de l' ^{235}U , et donc de calculer les masses mises en jeu et le rapport isotopique.

3.4 Analyse

Du fait de l'impossibilité d'accéder au laboratoire, il n'a pas été possible de faire subir un traitement particulier aux échantillons de roche pour les préparer à la mesure d'activité (concassage, dilution, séparation, etc.). La roche doit donc être mesurée telle quelle, avec sa géométrie particulière.

Le détecteur sélectionné est l'HPGe, du fait de sa très bonne résolution énergétique. Il est étalonné à l'aide d'une source de ^{226}Ra sous forme d'un canister rouge, le plus proche possible de la géométrie particulière de la roche à mesurer (volume d'environ 250 mL).

Une grande différence subsiste néanmoins : la composition. Du fait de sa composition minérale (principalement granitique), la roche ne peut être considérée comme une source sans masse, même pour des γ de haute énergie. Ainsi, les rayonnement émis à l'intérieur de la roche, auront d'autant plus de difficulté à atteindre le détecteur qu'ils sont profonds et de faible énergie. Une partie des coups sera donc absent du pic d'absorption totale, et contribuera fond *Compton* (ou ne sera pas mesuré). Le principal problème est que cette atténuation dépend de plusieurs facteurs qu'il est très difficile d'évaluer, comme la répartition des radioéléments dans la roche, l'influence de l'énergie, la géométrie de la roche et sa constitution précise.

Afin d'estimer l'influence de ce phénomène, une simulation sur le programme Monte-Carlo développé par le CERN [16] a été réalisée. Dans cette simulation, une sphère de granite de 10 cm de diamètre est entourée d'un détecteur fictif (détection 4π). Le détecteur est créé de tel manière qu'il possède une efficacité de 100%. Il est constitué d'une sphère creuse de germanium de 9 mètre de diamètre, dont les parois font 4.44 mètre. La sphère de granite est donc positionnée au centre du détecteur.

Comme la constitution chimique de l'échantillon n'est pas connue avec précision, il a été décidé de réaliser la simulation sur une sphère de granite. Les éléments dans la suite radioactive de l'uranium n'ont pas été considérés ici car leur proportion n'est pas connue. Il est évident que ces approximations entraînent des incertitudes importantes, mais le but est ici de donner une tendance, afin d'expliquer le phénomène. Les proportions indiquées sont les proportions atomiques [17].

- Oxygène : 49.5%.
- Silicium : 35%.
- Aluminium : 7%.

- Sodium : 7%.
- Fer : 1.5%.

L'oxygène et le silicium proviennent du quartz, tandis que les autres minéraux proviennent de feldspaths ou son présents en faible quantité. La densité est de 2.7 g.cm^{-3} .

Tous les γ qui sortent de la roche seront donc enregistrés (exception faite des rétro-diffusés sur la paroi interne du détecteur).

Ensuite, pour chaque énergie entre 1 et 1999 keV, 10^5 γ sont simulés. Ils apparaissent de manière aléatoire dans la sphère de granite, avec une direction également aléatoire.

L'efficiencia du pic d'absorption totale est ensuite calculée. On considère pour ce calcul les énergie totales déposées E_{dep} qui satisfont la relation suivante :

$$E_{\gamma} - 0.01 \text{ MeV} < E_{dep} \leq E_{\gamma}$$

Avec E_{γ} et E_{dep} en MeV. Le facteur 0.01 MeV a été choisis pour refléter le phénomène d'étalement du pic dans un détecteur réel, qui rends impossible la distinction entre de faibles différences d'énergie. Les coups ayant déposé une énergie quasi-totale dans le détecteur participeront donc au pic d'absorption totale, et donc à l'efficiencia de détection. Les résultats obtenus ont été portée en graphique (Figure 7).

On remarque sans surprise que plus l'énergie augmente, plus l'efficiencia augmente, car les photons de plus haute énergie ont une plus grande probabilité de quitter la roche sans interagir. On distingue deux zones sur le graphique : en dessous de 100 keV environ, l'efficiencia est très fortement réduite, et tends vers zéro pour les très faibles énergies. Au dessus de 100 keV, la progression est plus lente, et pourrait être approximée par une droite, en acceptant une certaine incertitude.

Le comportement en deux étapes de l'efficiencia est expliqué par les contributions variables des effets photo-électriques et de diffusion *Compton*. En regardant la Figure 8 page 26, on remarque que la dominante change justement dans les environ de 100 keV.

Le spectre de la roche est visible sur la Figure 9.

On retrouve les principaux pics de la série du ^{226}Ra , ainsi que quatre pics communs à cette série et à celle de ^{235}U . Ces quatre pics vont nous permettre d'estimer l'activité et l'abondance isotopique de cet isotope.

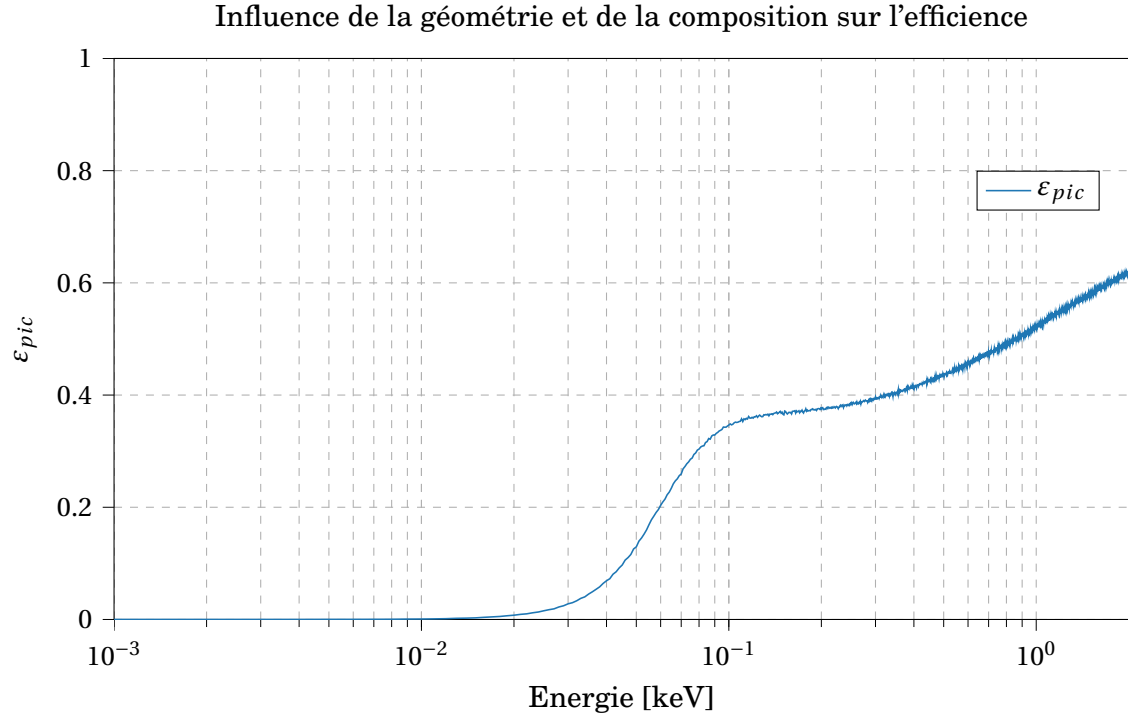


FIGURE 7 – Efficacité du pic de pleine énergie en fonction de l'énergie des γ , dans une sphère de granite de 10 cm de diamètre. 10^5 γ simulés pour chaque énergie.

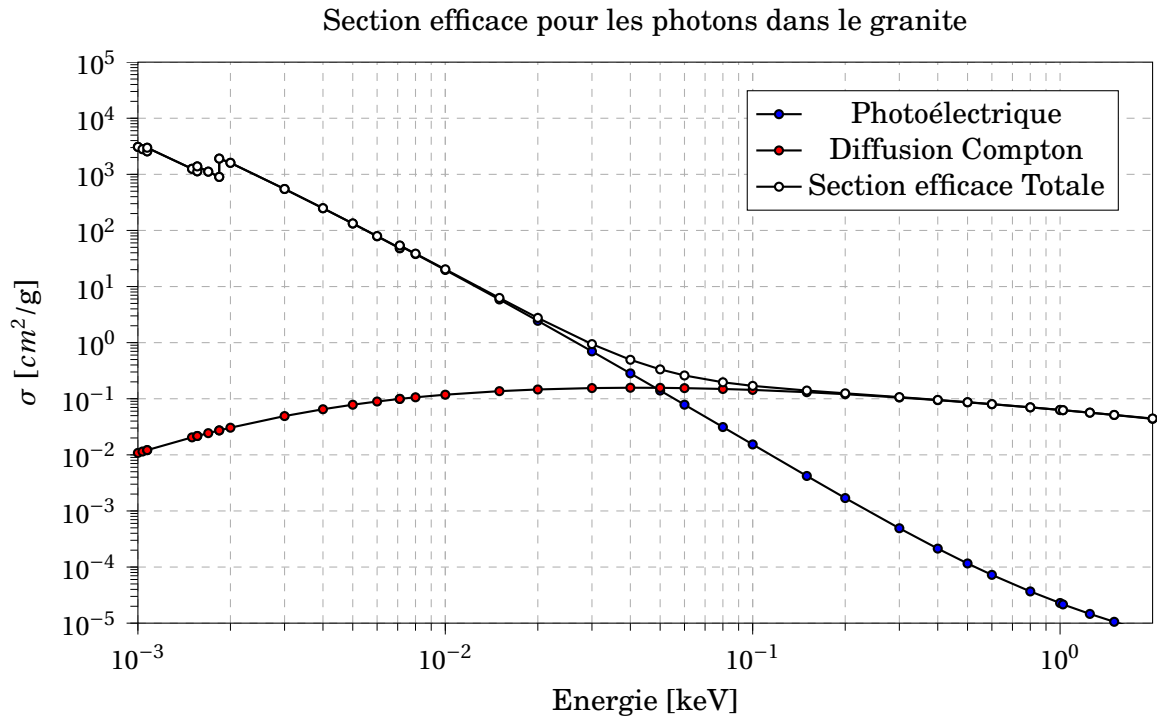


FIGURE 8 – Contribution des effets photoélectrique et de diffusion Compton dans la section efficace totale pour le granite. Données issues de [1].

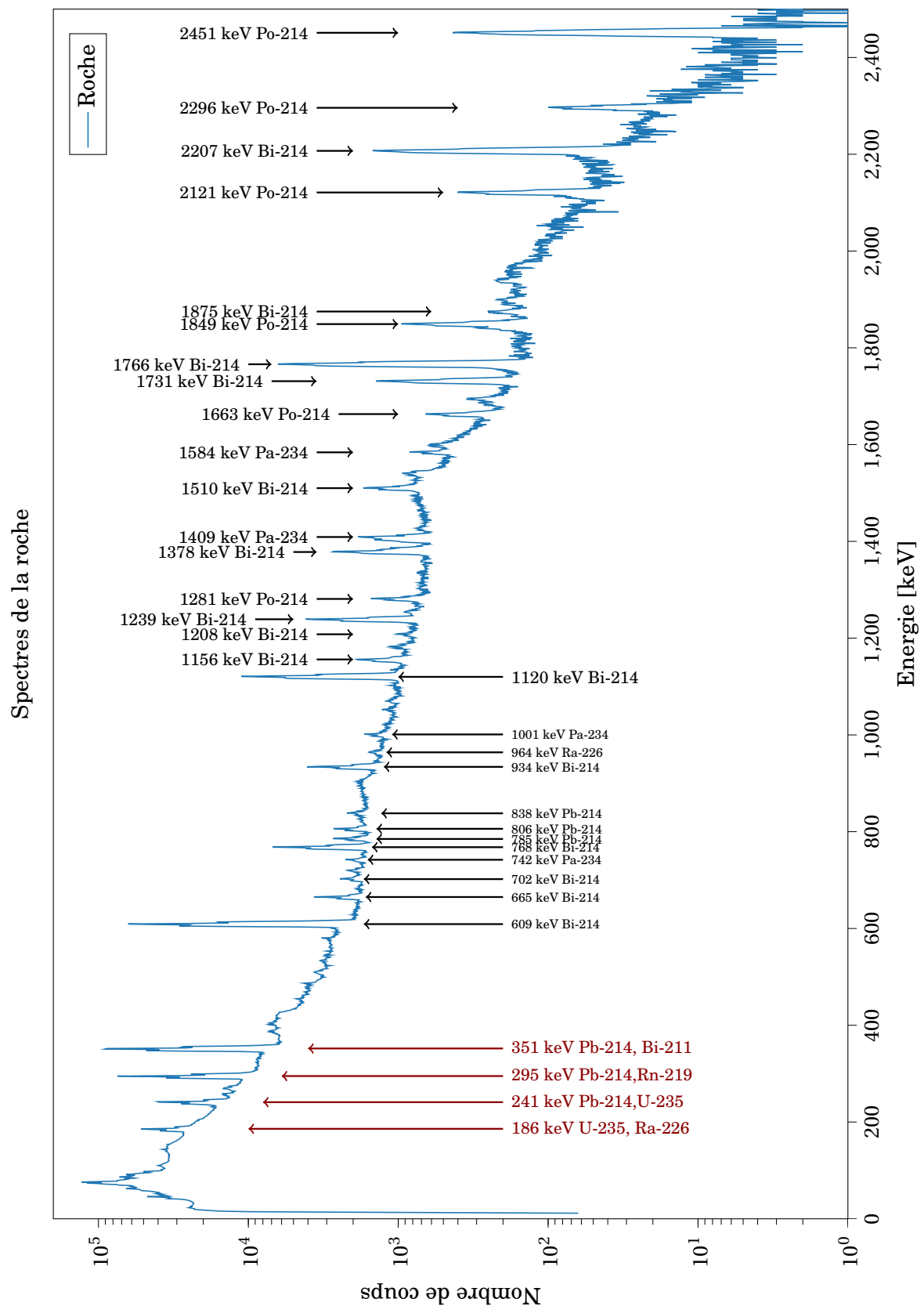


FIGURE 9 – Spectre de l'échantillon de minerais d'uranium, acquisition de une heure au détecteur HPGe.

3.5 Étalonnage en énergie et en efficacité

La calibration en énergie et en efficacité de détection a été réalisé exactement de la même manière que dans la première partie de ce rapport. L'ensemble des calculs ne sera donc pas exposé.

La droite de calibration en énergie est la suivante :

$$N_{canal} = 0.9642 \times E - 1.838$$

Les incertitudes calculées sur la droite sont les suivante ⁸ :

$$m = 0.9642 \pm 0.0009$$

$$p = -1.8 \pm 0.4$$

La droite de calibration ainsi que les points mesurés sont visible sur la Figure 10.

De même, l'efficacité de détection en fonction de l'énergie est visible sur la Figure 11.

Les mêmes calculs d'incertitudes ont été appliqués. Cependant, une incertitude de 10% sera appliquée à l'efficacité de détection, du fait de la différence de géométrie.

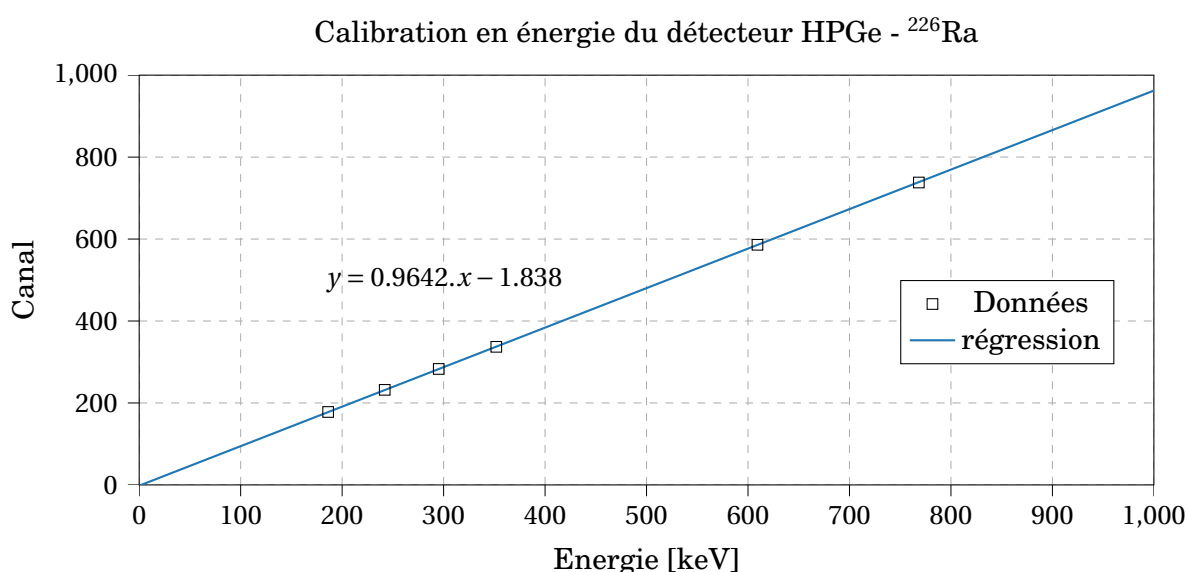


FIGURE 10 – Droite d'étalonnage de l'HPGe, à l'aide de la source étalon de ²²⁶Ra.

8. Les incertitudes selon chaque axe ont été prise de la même façon que pour la première partie.

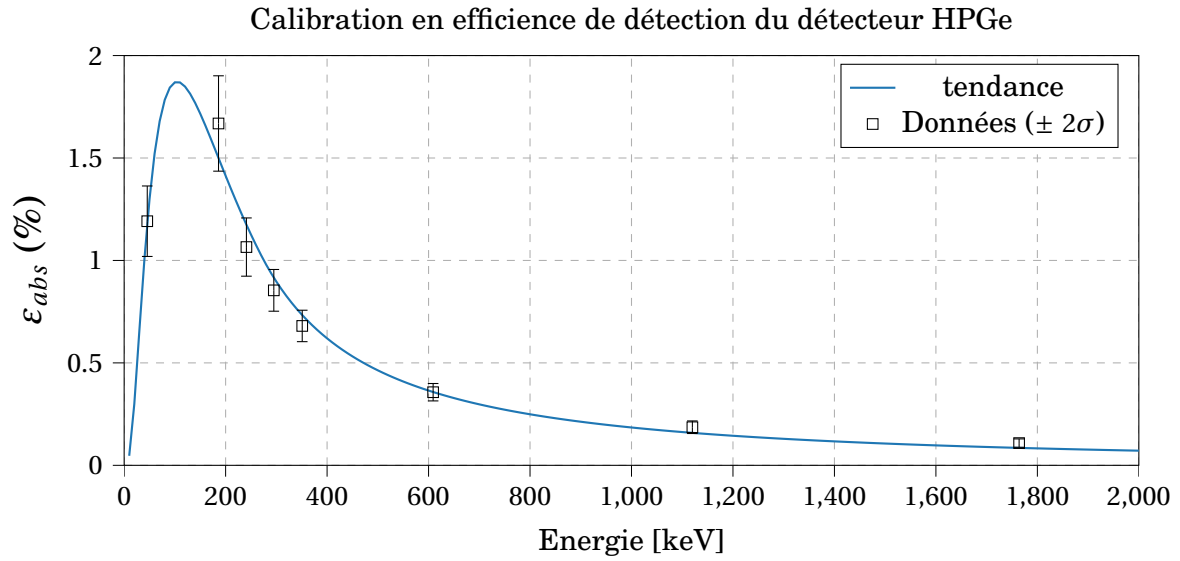


FIGURE 11 – Évolution de l'efficacité absolue en énergie , pour $E < 2 \text{ MeV}$.

Les coefficients de la courbe théorique sont les suivants⁹ :

$$\begin{aligned}
 \varphi &= -4.58 \\
 \vartheta &= +1.27 \\
 \varrho &= +270 \text{ [keV}^{-1}\text{]} \\
 \Upsilon &= -0.67 \text{ si } E < \varrho \\
 \Upsilon &= -0.03 \text{ si } E > \varrho
 \end{aligned}$$

Ils ont été calculé de façon à minimiser l'écart entre les points de mesure et la courbe théorique grâce à un programme itératif réalisé en python.

3.6 Analyse du spectre de la roche

Au total, 35 pics ont été identifiés sur le spectre de l'échantillon de roche. Parmi ces derniers, on retrouve plusieurs catégories :

- 4 pics communs aux deux séries de l'uranium
- 3 pics de la série de l' ^{238}U , avec un nombre de coups important (choisis pour la régression linéaire)

9. Ces coefficients font référence à l'équation :

$$\ln(\varepsilon_{abs}) = \varphi + \vartheta \ln\left[\frac{E}{\varrho}\right] + \Upsilon \ln^2\left[\frac{E}{\varrho}\right]$$

- 24 pics de la série de l' ^{238}U , avec un nombre de coups faible
- 2 pics de très faible importance, qui n'ont pas pu être attribués, et ont donc été rejetés.

La calcul de l'activité prend en compte tout les effets exposés précédemment. La simulation a montré qu'il y avait une effet non négligeable du fait de la géométrie de l'échantillon. Dès lors il n'est pas surprenant de retrouver une droite à pente ascendante sur le graphique 12. Cela montre que l'activité calculée augmente avec l'énergie. La simulation montre bien cet effet. Ces activités mesurées ne sont donc pas les activités réelles des différents isotopes. Afin de retrouver l'activité réelle, il est nécessaire de compenser à l'aide du facteur géométrique. Cependant, ce dernier n'a pu être établis de manière précise, du fait des inconnues subsistant quant à la composition et la forme précise de la roche.

Dans cette situation, il est toujours possible de calculer l'abondance isotopique, car le facteur géométrique est le même pour les deux séries sur un même pic. Le quotient de leur activité reste donc le même.

Ensuite, pour chaque énergie, l'efficience de détection est calculée grâce à l'équation de la courbe d'efficience de la figure 11. La prise en compte de cette courbe est obligatoire pour espérer avoir de bons résultats car l'efficience de détection d'un détecteur HPGe est dépendante de l'énergie de la particule incidente. Le dernier effet pris en compte pour le calcul de l'activité est évidemment le rapport d'embranchement de chaque énergie.

On retrouve les activité calculées pour ces différents groupes de pics, dans la Figure 12 ci-dessous.

Attention : il est très important de noter ici, que les activités ont été calculées uniquement avec les intensités de la série du 238, et ce afin de faire apparaître la contribution de la série du 235.

Le tableau 14 page 31 reprend les valeurs calculées pour chaque pic en ne considérant que les intensités α de l'uranium 238.

On remarque immédiatement que les quatre pics communs aux deux séries de l'uranium (en rouge sur la Figure) sont au-dessus de la courbe de tendance, qui plus est dans des proportions similaires à leurs intensités respectives (revoir le Tableau 13 page 23).

Il est donc possible de retrouver l'activité de la série du 235, en soustrayant l'activité du 238.

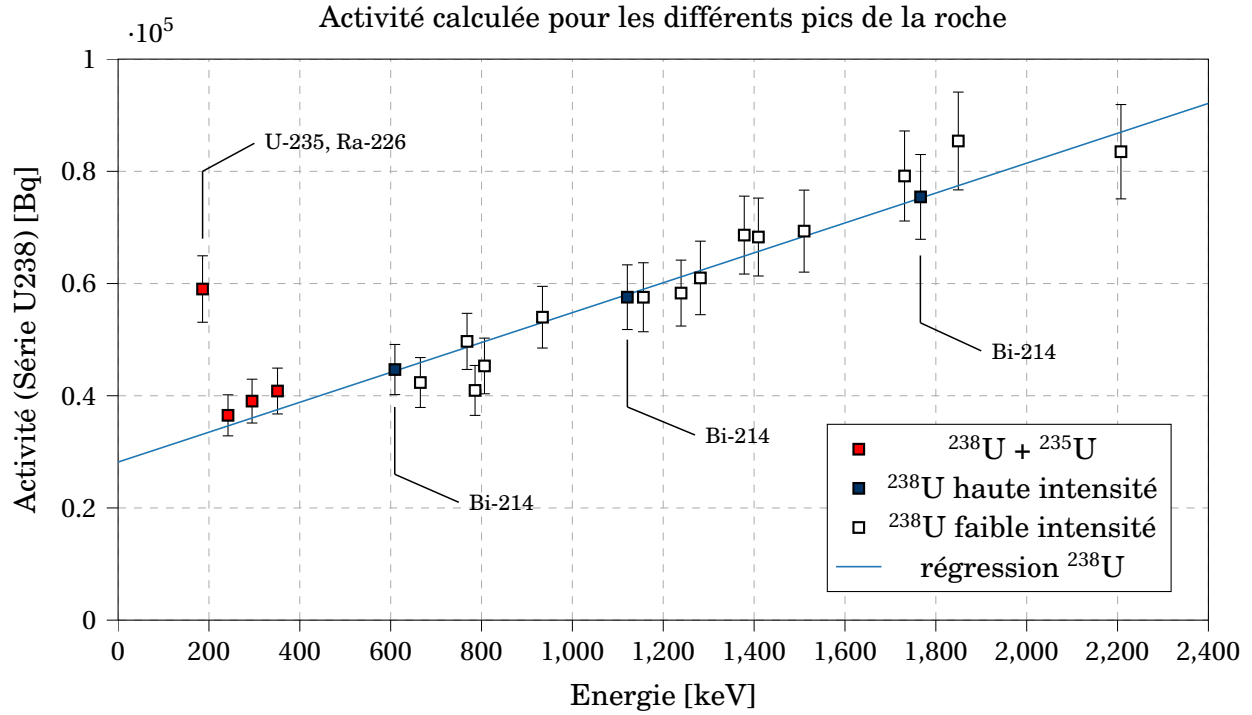


FIGURE 12 – Activité calculée pour les 21 pics retenus dans le spectre de la roche.

Activité U238					
E_{pic} [keV]	ε	σ_{ε}	A (^{238}U) [Bq]	σ_A [Bq]	σ_A (%)
609,32	0,358%	0,036%	44670	4468,111	10,00%
665,36	0,318%	0,032%	42357	4450,3185	10,51%
768,10	0,263%	0,026%	49686	5001,8351	10,07%
785,74	0,255%	0,026%	40947	4449,1525	10,87%
806,50	0,246%	0,025%	45312	4959,37	10,94%
934,14	0,202%	0,020%	53999	5498,2331	10,18%
1120,94	0,158%	0,016%	57567	5767,6445	10,02%
1156,23	0,152%	0,015%	57556	6148,4224	10,68%
1239,25	0,138%	0,014%	58299	5873,9217	10,08%
1281,80	0,132%	0,013%	61001	6551,9525	10,74%
1378,31	0,119%	0,012%	68636	6944,1691	10,12%
1409,44	0,116%	0,012%	68290	6942,6152	10,17%
1510,10	0,105%	0,011%	69342	7307,7966	10,54%
1731,15	0,087%	0,009%	79171	8024,2871	10,14%
1766,43	0,085%	0,008%	75441	7557,2011	10,02%
1849,45	0,080%	0,008%	85410	8715,7472	10,20%
2207,48	0,062%	0,006%	83500	8405,8543	10,07%

TABLEAU 14 – Activités calculés en considérant les intensités de l'uranium 238.

3.7 Préalable théorique

On retrouve ci-dessous le calcul pour retrouver l'abondance isotopique de l' ^{235}U .

Soit $N_{cps,tot}$, le nombre total de coups comptés pour un pic commun aux deux isotopes de l'uranium.

On a :

$$N_{cps,tot} = N_{cps,238} + N_{cps,235} = A_{238} \cdot \alpha_8 \cdot t \cdot \varepsilon_E + A_{235} \cdot \alpha_5 \cdot t \cdot \varepsilon_E \quad (8)$$

Avec A_i l'activité de l'isotope i et α_i l'intensité totale de la série de l'isotope i pour cette énergie E . L'efficacité ε_E est l'efficacité de détection et elle ne prend pas en compte l'efficacité géométrique. Cela n'est pas nécessaire à cette étape.

Soit, en utilisant l'équation de la droite de régression de la Figure 12 pour calculer A_{238} :

$$A_{235} = \frac{N_{cps,tot}}{\alpha_5 \cdot t \cdot \varepsilon_E} - A_{238} \frac{\alpha_8}{\alpha_5} \quad (9)$$

Avec son incertitude (incertitudes sur le temps et l'intensité négligées) :

$$\sigma_{A_{235}} = \sqrt{\left(\frac{\sigma_{N_{cps,tot}}}{\alpha_5 \cdot t \cdot \varepsilon_E}\right)^2 + \left(\frac{N_{cps,tot} \cdot \sigma_{\varepsilon_E}}{\alpha_5 \cdot t \cdot \varepsilon_E^2}\right)^2 + \left(\frac{\alpha_8}{\alpha_5} \cdot \sigma_{A_{238}}\right)^2} \quad (10)$$

Connaissant A_{238} et A_{235} , il est aisé de retrouver le nombre d'atomes responsables de chaque activité, à l'aide des constantes de désintégration :

$$N_i = \frac{A_i}{\lambda_i} \quad (11)$$

Avec son incertitude (incertitude sur la constante de désintégration négligée) :

$$\sigma_{N_i} = \frac{\sigma_{A_i}}{\lambda_i} \quad (12)$$

On obtient enfin l'abondance isotopique de l' ^{235}U :

$$Abd = \frac{N_{235}}{N_{tot}} \quad (13)$$

Avec $N_{tot} = N_{238} + N_{235}$.

Ainsi que son incertitude :

$$\sigma_{Abd} = \sqrt{\left(\frac{\sigma_{N_{235}}}{N_{tot}}\right)^2 + \left(\frac{N_{235}}{(N_{tot})^2} \cdot \sigma_{N_{tot}}\right)^2} \quad (14)$$

3.8 Application numérique

En remplaçant par les valeurs expérimentales obtenues, on est en mesure d'obtenir une estimation de l'abondance isotopique de l' ^{235}U , et ce pour les quatre pics communs. Les valeurs calculées sont visibles dans le Tableau 15 ci-dessous¹⁰ : On obtient finalement une

Énergie pic [keV]	A_{238} [kBq]	A_{235} [kBq]	$N_{238} (\times 10^{21})$	$N_{235} (\times 10^{19})$	Abondance [%]
185.92	33.1 ± 1.7	1.58 ± 0.38	6.74 ± 3.37	5.08 ± 1.21	$0.75^{+0.18}_{-0.18}$
241.96	34.6 ± 1.7	1.03 ± 2.2	7.04 ± 3.52	3.30 ± 7.08	$0.47^{+1.00}_{-0.47}$
294.88	36.0 ± 1.8	4.40 ± 6.28	7.33 ± 3.66	1.41 ± 2.01	$1.92^{+2.75}_{-1.92}$
350.92	37.5 ± 1.9	8.46 ± 11.5	7.63 ± 3.82	2.71 ± 3.67	$3.55^{+4.82}_{-3.55}$

TABLEAU 15 – Calcul de l'abondance isotopique de l' ^{235}U . Incertitudes de $\pm 1\sigma$. Moyenne calculée via les formules de la première partie de ce même rapport.

valeur d'abondance de $0.75 \pm 0.18\%$, soit un intervalle allant de 0.57% à 0.93% . Cet intervalle contient effectivement la valeur réelle de 0.7202% . L'erreur est donc de :

$$Err. = \frac{0.75 - 0.7202}{0.7202} \times 100 = 4.1\% \quad (15)$$

Enfin, on peut donner un ordre de grandeur approximatif de la quantité massique d'uranium dans la roche, en se servant de la simulation de l'efficacité du pic d'absorption totale (facteur géométrique de la roche), et du nombre d'atomes calculés plus haut.

On a ainsi :

$$m_{238} = \frac{N_{238} \times MM_{238}}{N_A \times \epsilon_{geom}} \quad \text{et} \quad m_{235} = \frac{N_{235} \times MM_{235}}{N_A \times \epsilon_{geom}} \quad (16)$$

En reprenant les valeurs d'efficacité¹¹ ϵ_{geom} de la simulation (Figure 7), on a pour le pic de 186 keV :

$$m_{238} = \frac{6.74 \cdot 10^{21} \times 238}{N_A \times 0.32791} = 8.12 \text{ g} \quad (17)$$

Et,

$$m_{235} = \frac{5.08 \cdot 10^{19} \times 235}{N_A \times 0.32791} = 0.06 \text{ g} \quad (18)$$

10. Certaines valeurs sont très importantes mais ont été conservées dans le tableau par honnêteté.

11. L'efficacité du détecteur est déjà prise en compte dans le calcul de N à l'équation 8, il ne reste plus qu'à prendre en compte le facteur géométrique de la source.

Les valeurs obtenues ici sont conformes aux attentes. L'abondance isotopique a été évaluée avec une erreur respectable au vue des conditions expérimentales. On note que les trois autres estimations de l'abondance isotopiques possèdent des incertitudes relatives supérieures à 100%, du fait de la faible intensité de la série du 235 comparée à celle de la série du 238 sur ces pics.

Toutes les estimations sont cependant en accord avec l'abondance naturelle, à plus ou moins un écart-type près.

Les masses calculées, bien que très approximatives, nous donnent néanmoins un ordre de grandeur. Les masses respectives de l' ^{238}U et de l' ^{235}U sont pondérables, et les échantillons récupérés se prêtent donc à l'extraction.

4 Extraction de l'uranium

4.1 Risques liés à l'extraction de l'uranium

Lors du traitement des minerais dans le but de l'extraction de l'uranium, il faut considérer plusieurs types de risques, tels que des risques radiologiques, des risques environnementaux et des risques chimiques. Parmi les risques radiologiques, on peut noter [18] :

- Les irradiations directes : les irradiations émises par les minerais sont principalement des rayonnements gamma, provenant de deux radio isotopes principaux, le ^{214}Bi et ^{214}Pb . Il faut noter que dans des minerais contenant 0.1% de l'uranium, le débit de dose peut atteindre $5 \mu \text{ Gy/h}$, mais cela dépend de la proportion d'uranium dans les minerais recherchés. Par conséquent, il faut faire attention à ne pas excéder la dose annuelle permise pour les travailleurs.
- Les poussières : les poussières peuvent directement être inhalés et être absorbées par les poumons, ou peuvent être déposés sur des aérosols qui peuvent rentrer dans l'organisme humains et causer le dégâts. Dans ce cas, le risque provient des émetteurs alpha se trouvant dans la chaîne de désintégration de l'uranium dans les minerais. Les radio-isotopes concernés sont : ^{238}U , ^{234}U , ^{230}Th , ^{226}Ra et le ^{210}Po . Ces risques se produisent principalement lors du concassage des minerais.
- Le radon : le ^{226}Ra , est un gaz noble, qui n'interagit pas facilement avec son environnement. C'est un émetteur alpha, donc il présente un risque lors de l'inhalation, ses descendants étant des émetteurs bêta, comme les deux indiqués précédemment, et des émetteurs alpha.

Les risques environnementaux, quant à eux, sont liés à l'utilisation de produits chimiques, ainsi qu'à la dissémination de résidus de minage, parfois radioactifs. Ces terres polluées vont représenter un problème pour les générations futures, étant données les très longues périodes radioactives de leurs constituants.

Pour ce qui est des risques chimiques, il est lié à l'utilisation de nombreux produits corrosifs, acides voir inflammables. Comme nous allons le voir plus loin, l'extraction, la purification et l'enrichissement de l'uranium font usage de multiples réactions chimiques, parfois in-situ, ce qui pose de nouveau de problèmes environnementaux.

4.2 Concassage et broyage

Afin d'extraire l'uranium des roches, il est d'abord nécessaire de les broyer en de petits morceaux, dont la taille varie selon le type de roche, et le type de lessivage. Dans notre cas, pour de la pechblende lessivée par acide, les recommandations sont d'obtenir des tailles de grains de l'ordre de 0.4 à 0.6 mm [19]. Le but de cette étape est de permettre un accès et une meilleure surface d'échange lors de l'étape suivante de l'extraction, le lessivage. Il est possible de conserver des roches plus grandes, mais l'efficacité du lessivage diminue d'autant, à moins d'utiliser des solutions de plus forte concentration.

4.3 Lessivage

Premièrement, il faut noter que l'uranium est présent dans la nature sous plusieurs états d'oxydation. Les plus commun étant l'état tétravalent, et l'hexavalent. L'uranium sous forme hexavalent, est plus soluble que l'uranium dans l'état tétravalent. Par conséquent, en utilisant de l'uranium sous sa forme hexavalent, il devient possible de le dissoudre dans des solutions acides ou dans des carbonate (alcalins). En outre, si l'uranium se présente sous forme tétravalent, il est possible de l'oxyder afin de le transformer en uranium hexavalent, afin de la dissoudre dans des solutions différentes.

Il existe deux voies possibles pour le lessivage [20] : les solutions alcalines, et les solutions acides. La dissolution dans des alcalins est souvent plus lente que celle dans des acides, elle est cependant plus économique lorsque la roche contenant l'uranium possède de grandes quantité de carbonates, qui sinon nécessitent de grandes quantités d'acides.

Le lessivage par des acides se fait principalement par l'acide sulfurique, pour des raisons économiques et environnementales. En effet, les acides nitrique et chlorhydriques, sont plus chères que l'acide sulfurique, mais aussi l'acide chlorhydrique présente des difficultés par la suite. Cependant, en dehors de toute considération environnementale et économique, l'acide nitrique sera favorisé pour l'étape suivante (extraction liquide-liquide).

La quantité d'acide utilisée varie de 15-50 kg/tonne de pierre.

Le lessivage par acide se fait dans des gammes de pH entre 1.5 et 2. Après cette étape il est possible de retrouver un certain nombre d'ions métalliques dans la solution, telles que du fer, calcium et du magnésium.

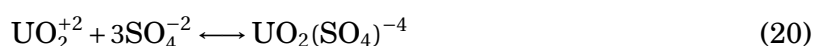
D'autres types d'ions peuvent être retrouvés, mais ces derniers doivent être enlevés, puis-

qu'ils peuvent causer des problèmes, tels que de l'arsenic, le molybdène, le zirconium et le silicium.

Le temps du lessivage par acide peut durer entre plusieurs heures jusqu'à 4 jours dans certains cas.

Afin d'augmenter l'efficacité d'extraction de l'uranium il faut augmenter les agents oxydants dans la solution, tels que (MnO_2), de l'oxygène, (H_2SO_5), peroxydes d'hydrogène, chlorate (ClO^{-3}).

Les réactions mises en jeu lors du lessivage sont :



4.4 Extraction

Une fois que l'uranium est en solution aqueuse, il reste à l'extraire afin d'augmenter sa concentration avant de le mettre dans des packages.

Normalement, l'uranium est présent sous forme d'un cation métallique, mais suite au lessivage par l'acide, il se trouve sous forme d'un complexe anionique. Afin de l'extraire, il y a deux voies possibles : l'échange liquide-liquide et l'échange solide-liquide.

4.4.1 Échange par solvant

L'échange par solvant consiste en une séparation-purification basée sur la différence entre la solubilité des différents composants dans les solvants aqueux et organiques. Cette technique peut être utilisée en conjonction avec le lessivage par acide.

La solution aqueuse est couplée à un solvant organique. Grâce à l'ajout de tributylamine (par exemple), suite à un lessivage à l'acide nitrique, l'uranium va former un complexe stable et neutre, qui va alors sélectivement se diriger vers le solvant organique, en laissant tous les ions métalliques (cations) en solution aqueuse. Il faut noter que dans cette étape, des amines tertiaires dilués au kérosène sont généralement utilisés, et les réactions sont les suivantes :



Le solvant organique est ensuite séparé, puis remis en contact avec une solution aqueuses faiblement concentrée en acide, afin de déplacer l'équilibre de la formation du complexe.

L'uranium repasse alors de nouveau en phase aqueuse, ce qui complète la séparation de l'uranium des autres ions métalliques. Cette étape peut être répétée plusieurs fois, afin d'augmenter la concentration de l'uranium et ainsi diminuer la concentration des impuretés.

4.4.2 Échange ionique

Cette étape peut être utilisée après un lessivage par acide ou alcalin. Comme dans l'échange par solvant, l'uranium se trouve sous forme d'un complexe anionique. La solution contenant le complexe de l'uranium est passée dans une résine anionique, dans lequel l'uranium est absorbé et les ions (cations) restants, descendent sans interactions.

La résine est éluée plusieurs fois, ce qui donne par conséquent une solution hautement concentrée en uranium avec peu d'impuretés.

La résine peut être régénérée par une solution différente de celles utilisées précédemment, afin de la réutiliser dans l'absorption de l'uranium.

4.5 Précipitation

Le but final de l'extraction de l'uranium est de produire le "yellow cake" afin de l'utiliser pour préparer les combustibles des réacteurs nucléaires. Pour ce faire, il faut être attentif aux caractéristiques du produit final désiré. Par exemple, pour du combustible, il est nécessaire d'avoir le moins d'impuretés possibles, surtout pour certains éléments. En effet, le cadmium et le bore sont des éléments indésirables puisqu'ils sont des absorbeurs de neutrons. Les halogènes, sont des éléments qui causent de la corrosion, et il existe d'autres types d'éléments indésirables comme le fer, le vanadium etc.

Après l'étape de l'extraction, par l'échange ionique ou l'échange par solvant, il faut passer par la précipitation de l'uranium pour le récupérer et le déshydrater.

La précipitation de l'uranium peut se faire sur une gamme étendue de pH, cela en fonction du type de la solution et du précipitant utilisé. En effet, il existe plusieurs types de précipitant qui peuvent être utilisés tels que le peroxyde d'hydrogène, l'ammoniaque, l'hydroxyde de magnésium et l'hydroxyde de sodium.

Après la précipitation, il reste à déshydrater l'oxyde d'uranium. Tout d'abord il faut rincer le précipité avec de l'eau. On procède ensuite au séchage. La température du séchage peut varier, par exemple, à une température de 700°, pour donner de l'oxyde d'uranium U_3O_8 .

Il est possible, pour des raisons d'augmentation de l'efficacité de récupération de l'uranium,

de passer plus d'une fois dans l'étape de l'extraction afin d'augmenter l'uranium récupéré.

Bien que l'extraction soit possible avec les échantillons récupérés au Portugal, il n'a pas été possible de la réaliser du fait de la situation sanitaire. Les échantillons sont toutefois toujours disponibles pour extraction l'année prochaine, par d'autres étudiants.

Annexes

A Droite de régression linéaire et incertitudes

Les coefficient de la droite de régression linéaire d'équation $y = mx + p$ sont déterminés grâce aux formules suivantes.

$$m = \frac{N \sum_{i=0}^N x_i y_i - \sum_{i=0}^N x_i \sum_{i=0}^N y_i}{N \sum_{i=0}^N x_i^2 - (\sum_{i=0}^N x_i)^2} \quad p = \frac{\sum_{i=0}^N y_i \sum_{i=0}^N x_i^2 - \sum_{i=0}^N x_i \sum_{i=0}^N x_i y_i}{N \sum_{i=0}^N x_i^2 - (\sum_{i=0}^N x_i)^2} \quad (23)$$

Pour calculer les incertitudes il est nécessaire de calculer dans un premier temps les incertitudes sur chaque somme et ensuite faire une propagation des incertitudes pour chacun des coefficients. Il y a 4 somme différentes, afin de rendre la lecture plus facile ces sommes seront renommées A, B, C et D . Dès lors :

$$A = \sum_{i=0}^N x_i y_i \quad (24)$$

$$B = \sum_{i=0}^N x_i \quad (25)$$

$$C = \sum_{i=0}^N y_i \quad (26)$$

$$D = \sum_{i=0}^N x_i^2 \quad (27)$$

Les facteur m et p peuvent dès lors être reformulés comme étant :

$$m = \frac{NA - BC}{ND - B^2} \quad p = \frac{CD - BA}{ND - B^2} \quad (28)$$

Pour calculer les incertitudes sur chaque somme il suffit d'utiliser la formule classique. À savoir : $\sigma_\Sigma = \sqrt{\sum_{i=0}^N \sigma_i^2}$. Dès lors les incertitudes pour chaque coefficients sont données par :

$$\sigma_A = \sqrt{\sum_{i=0}^N (y_i \sigma_{x_i})^2 + (x_i \sigma_{y_i})^2} \quad (29)$$

$$\sigma_B = \sqrt{\sum_{i=0}^N \sigma_{x_i}^2} \quad (30)$$

$$\sigma_C = \sqrt{\sum_{i=0}^N \sigma_{y_i}^2} \quad (31)$$

$$\sigma_D = \sqrt{\sum_{i=0}^N (2x_i \cdot \sigma_{x_i})^2} \quad (32)$$

Il est désormais possible de calculer les propagations des incertitudes sur les deux facteur :

$$\sigma_m = \sqrt{\left(\frac{\partial m}{\partial A}\right)^2 \sigma_A^2 + \left(\frac{\partial m}{\partial B}\right)^2 \sigma_B^2 + \left(\frac{\partial m}{\partial C}\right)^2 \sigma_C^2 + \left(\frac{\partial m}{\partial D}\right)^2 \sigma_D^2} \quad (33)$$

Avec :

$$\begin{aligned} \frac{\partial m}{\partial A} &= \frac{N}{ND - B^2} \\ \frac{\partial m}{\partial B} &= \frac{2ANB - C(DN + B^2)}{(DN - B^2)^2} \\ \frac{\partial m}{\partial C} &= \frac{-B}{ND - B^2} \\ \frac{\partial m}{\partial D} &= \frac{-(NA - BC)N}{(ND - B^2)^2} \end{aligned}$$

Pour le facteur p les équations sont :

$$\sigma_p = \sqrt{\left(\frac{\partial p}{\partial A}\right)^2 \sigma_A^2 + \left(\frac{\partial p}{\partial B}\right)^2 \sigma_B^2 + \left(\frac{\partial p}{\partial C}\right)^2 \sigma_C^2 + \left(\frac{\partial p}{\partial D}\right)^2 \sigma_D^2} \quad (34)$$

Avec :

$$\begin{aligned} \frac{\partial p}{\partial A} &= \frac{-B}{ND - B^2} \\ \frac{\partial p}{\partial B} &= \frac{2CDB - A(DN + B^2)}{(DN - B^2)^2} \\ \frac{\partial p}{\partial C} &= \frac{D}{ND - B^2} \\ \frac{\partial p}{\partial D} &= \frac{B(AN - BC)}{(ND - B^2)^2} \end{aligned}$$

B Calcul de l'activité de l'étalon

Les données à notre disposition sont les suivantes :

- activité initiale de l'étalon : $A_0 = 799.2 \pm 13.3$ Bq au premier janvier 1989.
- les isotopes d'intérêt dans la série du ^{226}Ra sont : le ^{226}Ra , le ^{214}Pb , le ^{214}Bi et le ^{210}Pb .
- les rapports de branchement, les constantes de désintégration ainsi que leurs incertitudes sont récupérées sur le site du *Laboratoire National Henri Becquerel* [8].
- la date d'acquisition du spectre est le 28 avril 2020, soit 11465 jours après l'émission du certificat.

Étant donné les demi-vies des isotopes dans la chaîne de désintégration du ^{226}Ra , ils sont tous considérés à l'équilibre avec ce dernier, exception faite du dernier radioélément, le

^{210}Pb , du fait de sa demi-vie non négligeable (22.23 ans) au regard de la période de temps considérée et de la demi-vie du ^{226}Ra (1600 ans).

Les valeurs utilisées sont reprises dans le Tableau 16 ci-dessous :

Él.	A_0	σ_{A_0}	α	λ	σ_λ	N_0	σ_{N_0}	$N(t)$	$\sigma_{N(t)}$	$A(t)$	$\sigma_{A(t)}$
Ra226	799.2	13.3	1.00000	1.37×10^{-11}	6.0×10^{-14}	5.82×10^{13}	1.0×10^{12}	5.82×10^{13}	9.9×10^{11}	788.4	13.1
Pb214	799.2	13.3	0.99978	4.29×10^{-4}	2.0×10^{-7}	1.86×10^6	3.1×10^4	NA	NA	788.2	13.1
Bi214	799.2	13.3	0.99999	5.84×10^{-4}	2.9×10^{-7}	1.37×10^6	2.3×10^4	NA	NA	788.4	13.1
Pb210	799.2	13.3	1.00000	9.88×10^{-10}	5.0×10^{-12}	8.09×10^{11}	1.4×10^{10}	8.05×10^{11}	1.01×10^{10}	795.3	10.8

TABLEAU 16 – Valeurs des activités et leurs incertitudes, dans la série du ^{226}Ra .

Détail des calculs : les calculs ayant permis de remplir le Tableau ci-dessus, sont détaillés ici :

Calcul de N_0 pour tous les éléments :

$$N_0 = \frac{A_0}{\lambda}$$

Et,

$$\sigma_{N_0} = \sqrt{\left(\frac{\sigma_{A_0}}{\lambda}\right)^2 + \left(\frac{A_0 \cdot \sigma_\lambda}{\lambda^2}\right)^2}$$

Calcul de N_t et A_t pour le ^{226}Ra :

$$N_t = N_0 \cdot e^{-\lambda \cdot t}$$

Avec,

$$\sigma_{N_t} = \sqrt{(\sigma_{N_0} \cdot e^{-\lambda \cdot t})^2 + (\lambda \cdot N_0 \cdot \sigma_\lambda \cdot e^{-\lambda \cdot t})^2}$$

Et,

$$A_t = A_0 \cdot e^{-\lambda \cdot t}$$

Avec,

$$\sigma_{A_t} = \sqrt{(\sigma_{A_0} \cdot e^{-\lambda \cdot t})^2 + (\lambda \cdot A_0 \cdot \sigma_\lambda \cdot e^{-\lambda \cdot t})^2}$$

Calcul de A_t pour le ^{214}Pb et le ^{214}Bi :

$$A_t = A_t(\text{Ra}) \cdot \alpha$$

Avec,

$$\sigma_{A_t} = \sigma_{A_t(Ra)} \cdot \alpha$$

Calcul de N_t pour le ^{210}Pb (équation de Bateman, négligeant les intermédiaires du fait de leur demi-vie négligeable) :

$$N_t = N_0(Ra) \cdot \frac{\lambda_{Ra}}{\lambda_{Pb} - \lambda_{Ra}} \cdot (e^{-\lambda_{Ra} \cdot t} - e^{-\lambda_{Pb} \cdot t}) + N_0(Pb) \cdot e^{-\lambda_{Pb} \cdot t}$$

Et, en négligeant l'incertitude sur les λ ,

$$\sigma_{N_t} = \sqrt{(\sigma_{N_0(Ra)} \cdot C)^2 + (\sigma_{N_0(Pb)} \cdot D)^2}$$

Avec :

$$C = \frac{\lambda_{Ra}}{\lambda_{Pb} - \lambda_{Ra}} \cdot (e^{-\lambda_{Ra} \cdot t} - e^{-\lambda_{Pb} \cdot t})$$

$$D = e^{-\lambda_{Pb} \cdot t}$$

Références

- [1] Nationa Institute of Standars and Technology. Xcom : Photon cross sections database.
- [2] M. Husa, K. Kosutic, and S. Lulic. Radioactive contamination of wood and its products. *Journal of Environmental Radioactivity*, 55 :179–186, 2001.
- [3] Institut de Radioprotection et de sûreté Nucléaire. L'accident de tchernobyl et ses conséquences pour l'environnement et la santé : le panache radioactif.
- [4] J. Melin ; L. Wallberg ; J. Suomela. Distribution and retention of cesium and strontium in swedish boreal forest ecosystems. *The Science of the Total Environment*, 157 :93–105, 1994.
- [5] Miglena Zhiyanskia ; Maria Sokolovskaa ; Jaume Bechb ; Alexandros Clouvasc ; Ilia Penevd ; Viktor Baduline. Cesium-137 contamination of oak (*quercus petrae Liebl.*) from sub-mediterranean zone in south bulgaria. *Journal of Environmental Radioactivity*, 101-10 :864–868, 2010.
- [6] On n'est pas des pigeons. Du bois de chauffage radioactif vendu en belgique.
- [7] Daniel BEAUFILS. Bulletin de l'union des physiciens.
- [8] Laboratoire National Henri Becquerel. Nucléide - lara - library for gamma and alpha emissions.
- [9] M.S. Diasa, V. Cardosoa, V.R. Vaninb, and M.F. Koskinasa. Combination of nonlinear function and mixingmethod for fitting hpge efficiency curve in the 59–2754 keV energy range. *Applied Radiation and Isotopes*, 60 :683–687, 2004.
- [10] Glenn Knoll. *Radiation detection and measurement*. John Wiley, Hoboken, N.J, 2010.
- [11] Marlene G. Berg. Using wood ashes in the home garden. *OREGON STATE UNIVERSITY EXTENSION SERVICE*, 1982.
- [12] Stewart A. Farber and Andrew D. Hodgdon. Cesium-137 in wood ash results of nationwide survey. *Presented at the Annual Meeting of the Health Physics Society, Washington, DC*, 1991.
- [13] A. B. Burrows and T. C. Chalmers. Cesium-137/potassium-40 ratios in firewood ashes as a reflection of worldwide radioactive contamination of the environment. *Annals of the New York Academy of Sciences*, 609(1) :334–337, 1990.

- [14] Pedro Gabriel de Almeida. Field guide - technical visit : Mining complex of quarta-feira. *University of Beira Interior - Civil Engineering and Architecture Department*, 1.
- [15] WISE Uranium Project. Universal decay calculator.
- [16] CERN. Geant4, a simulation toolkit.
- [17] W. Schumann. *Guide des pierres et minéraux - Roches, gemmes et météorites*. Delachaux et Niestlé, 1989.
- [18] IAEA. *Uranium extraction technology*. VIC library cataloguing, 1993.
- [19] International Atomic Energy Agency. *Uranium Extraction Technology (Technical Reports (International Atomic Energy Agency))*. International Atomic Energy Agency, 1993.
- [20] Ian Hore-Lacy. *Uranium for nuclear power : resources, mining and transformation to fuel*. Woodhead Publishing, 2016.