

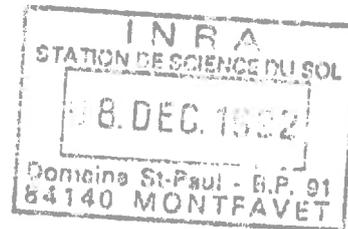
CONSERVATOIRE NATIONAL DES ARTS ET METIERS

Centre Régional Associé du

LANGUEDOC-ROUSSILLON

MEMOIRE

présenté en vue d'obtenir



le DIPLOME D'INGENIEUR C.N.A.M.

en

SCIENCES ET TECHNOLOGIES NUCLEAIRES

par

Pierre MUGLIONI

**UTILISATION DU TRACEUR LINEAIRE BERTHOLD LB 285 POUR LA
CARACTERISATION DES CHEMINS PREFERENTIELS
D'ECOULEMENT DES SOLUTES DANS UN SOL.**

Etude préliminaire de qualification de l'appareil.

Les travaux relatifs au présent mémoire ont été effectués à l'Institut National de la Recherche Agronomique, Unité de Science du Sol, Centre de Recherche Agronomique du Sud-Est (Avignon-Montfavet)

REMERCIEMENTS

Je tiens tout d'abord à remercier Monsieur **Pierre STENGEL**, Chef de Département de Science du Sol et Monsieur **Laurent BRUCKLER**, Directeur de l'Unité de Science du Sol d'Avignon, pour m'avoir accueilli dans leur département.

J'adresse tous mes remerciements à Monsieur le Professeur **Jacques FOOS** pour les conseils et l'attention apportés à l'élaboration de mon mémoire.

Je remercie Madame **Anne-Marie de COCKBORNE**, Ingénieur d'Etude, mon maître de stage pour avoir mis à ma disposition tous les moyens nécessaires au bon déroulement de ce mémoire et m'avoir fait partager ses connaissances en Science du Sol.

J'exprime toute ma gratitude à Monsieur **Jean RODIER** pour la bienveillance et la compréhension qu'il a su m'accorder tout au long de mon cursus.

Je souhaite aussi exprimer mes remerciements à Messieurs **BAUDUIN**, **BONFAND** et **PARREINS** ainsi qu'à l'ensemble des professeurs du centre associé du Languedoc-Roussillon pour la qualité de leur enseignement.

*Je dédie ce mémoire à Catherine pour son soutien constant et sa confiance, et
à mes deux enfants Cyril et Loïc.*

PLAN DU MEMOIRE

	Pages
INTRODUCTION	1
CHAPITRE A : NOTIONS DE BASE	4
A-I-) RAPPELS DE RADIOACTIVITE	4
<i>A-I-1-) Les isotopes</i>	4
<i>A-I-2-) La décroissance radioactive</i>	5
<i>A-I-3-) Radioactivité B</i>	6
<i>A-I-3₁) Interaction des particules B- avec la matière</i>	6
<i>A-I-3₂) Pouvoir d'arrêt</i>	8
<i>A-I-3₃) Parcours et absorption des particules B⁻</i>	9
<i>A-I-3₄) Rétrodiffusion</i>	10
<i>A-I-3₅) Autoabsorption</i>	10
A-II-) NOTIONS DE BASE DE PHYSIQUE DU SOL	11
<i>A-II-1-) Le sol : définitions</i>	11
<i>A-II-2-) Paramètres physiques du sol</i>	11
<i>A-II-2₁) La densité</i>	11
<i>A-II-2₂) Les systèmes de porosité</i>	12
<i>A-II-3-) Paramètres hydriques du sol</i>	13
<i>A-II-3₁) L'humidité massique</i>	13
<i>A-II-3₂) La teneur en eau volumique</i>	13
<i>A-II-4-) Transfert des sels dans un sol</i>	14
CHAPITRE B : PRESENTATION DE L'ANALYSEUR LINEAIRE LB 285	15
B-I-) LE DETECTEUR	15
<i>B-I-1-) Principe général d'un compteur proportionnel</i>	15
<i>B-I-2-) Compteur proportionnel de l'analyseur linéaire</i>	16
<i>B-I-2₁) Localisation d'une particule détectée</i>	16
<i>B-I-2₂) Résolution spatiale du détecteur</i>	17
<i>B-I-2₃) Sensibilité du détecteur</i>	18
B-II-) LA TABLE DE MESURE	18

B-III-) L'ACQUISITION ET LE TRAITEMENT DES DONNEES	19
<i>B-III-1-) Mode monodimensionnel : logiciel CHROMA 1D</i>	19
<i>B-III-2-) Mode bidimensionnel : logiciel CHR2D</i>	20
<i>B-III-2₁) Fonction "mesure"</i>	21
<i>B-III-2₂) Fonction "évaluation"</i>	22
 CHAPITRE C : PROTOCOLE EXPERIMENTAL	 26
C-I-) LES RADIOELEMENTS UTILISES	26
<i>C-I-1-) Choix du radioélément approprié aux études de sol</i>	26
<i>C-I-2-) Autres radioéléments utilisés</i>	27
 C-II-) PREPARATION DES ECHANTILLONS	 28
<i>C-II-1-) Préparation des échantillons radioactifs</i>	28
<i>C-II-2-) Préparation des échantillons de sol</i>	29
 C-III-) PRESENTATION DES ECHANTILLONS SOUS LE DETECTEUR	 30
 CHAPITRE D : QUALIFICATION DU TRACEUR LINEAIRE	 31
D-I-) REPRODUCTIBILITE DE LA MESURE	32
<i>D-I-1-) Généralités</i>	32
<i>D-I-2-) Mode opératoire</i>	32
<i>D-I-3-) Présentation des résultats</i>	33
 D-II-) DETERMINATION DU GAIN	 37
<i>D-II-1-) Généralités</i>	37
<i>D-II-2-) Mode opératoire</i>	37
<i>D-II-3-) Présentation des résultats</i>	38
 D-III-) PRECISION DE LA MESURE	 39
<i>D-III-1-) Généralités</i>	39
<i>D-III-2-) Mode opératoire</i>	40
<i>D-III-3-) Présentation des résultats</i>	41
 D-IV-) DISTANCE ENTRE LE COMPTEUR ET L'ECHANTILLON	 42
<i>D-IV-1-) Généralités</i>	42
<i>D-IV-2-) Mode opératoire</i>	43

D-IV-3-) Présentation des résultats	45
<i>D-IV-3_1) Analyse quantitative</i>	45
<i>D-IV-3_2) Analyse qualitative</i>	50
D-V-) FENTE DE COMPTAGE ET PAS DE SCRUTATION	51
<i>D-V-1-) Généralités</i>	51
<i>D-V-2-) Mode opératoire</i>	52
<i>D-V-3-) Présentation des résultats</i>	53
D-VI-) ORIENTATION DE L'ECHANTILLON SOUS LE DETECTEUR	54
<i>D-VI-1-) Généralités</i>	54
<i>D-VI-2-) Mode opératoire</i>	55
<i>D-VI-3-) Présentation des résultats</i>	55
D-VII-) EFFICACITE DU DETECTEUR. ACTIVITE MINIMALE DETECTABLE	56
<i>D-VII-1-) Généralités</i>	56
<i>D-VII-2-) Mode opératoire</i>	56
<i>D-VII-3-) Présentation des résultats</i>	57
CHAPITRE E : RESULTATS EXPERIMENTAUX DE L'INTERACTION DES PARTICULES β^- AVEC UN MILIEU POREUX	59
E-I-) PROTECTION DE L'ECHANTILLON	59
<i>E-I-1-) Généralités</i>	59
<i>E-I-2-) Mode opératoire</i>	59
<i>E-I-3-) Présentation des résultats</i>	60
E-II-) PARCOURS DES PARTICULES β^-	60
<i>E-II-1-) Généralités</i>	60
<i>E-II-2-) Mode opératoire</i>	61
<i>E-II-3-) Présentation des résultats</i>	62
E-III-) INFLUENCE DE LA DENSITE	65
<i>E-III-1-) Généralités</i>	65
<i>E-III-2-) Mode opératoire</i>	66
<i>E-III-3-) Présentation des résultats</i>	67

E-IV-) INFLUENCE DE L'HUMIDITE	69
<i>E-IV-1-) Généralités</i>	69
<i>E-IV-2-) Mode opératoire</i>	70
<i>E-IV-3-) Présentation des résultats</i>	70
E-V-) INFLUENCE DE LA FISSURATION	70
<i>E-V-1-) Généralités</i>	70
<i>E-V-2-) Mode opératoire</i>	71
<i>E-V-3-) Présentation des résultats</i>	71
CONCLUSION	72
BIBLIOGRAPHIE	75
ANNEXES	

INTRODUCTION

L'Unité de Science du Sol de l'Institut National de Recherche Agronomique (I.N.R.A.) d'Avignon a pour objectif général d'étudier les processus et les phénomènes physiques qui ont lieu dans le sol, ou dont le sol est l'objet.

A cet effet, elle s'intéresse entre autres, aux phénomènes de transferts de masse (eau et solutés) et de chaleur dans le sol ; ce qui implique des études analytiques expérimentales complétées par l'aspect modélisation.

Jusqu'à ces dernières années, les modèles, qui sont la représentation simplifiée des phénomènes rencontrés dans la réalité, rendaient compte des transferts d'eau et de solutés dans un sol isotrope, mais aucun ne permettait d'intégrer l'hétérogénéité du milieu (structure du sol).

A l'heure actuelle, de nombreux modèles ont remédié à ce manque, mais il est alors difficile d'estimer expérimentalement un certain nombre de paramètres dits "paramètres d'entrée du modèle".

Dans le cas de la modélisation des transferts de solutés dans un sol fissuré, un des paramètres d'entrée important est "la porosité fissurale efficace"; c'est à dire la fraction de porosité qui participe, par un ruissellement le long des parois des fissures, à la circulation d'une solution dans un sol.

En effet, si la porosité de fissure ou porosité structurale totale d'un sol peut être estimée quantitativement, il n'est pas possible, dans l'état actuel des connaissances, d'appréhender quantitativement la fraction de la porosité qui est fonctionnelle ou efficace.

Les travaux expérimentaux qui permettent tout au plus de visualiser cette porosité efficace sont actuellement basés sur l'apport au milieu hétérogène d'une solution colorée ([BOU 84], [COC 80]), ou d'une solution contenant un radioélément émetteur β^- en réalisant, dans ce cas une autoradiographie ([COC 80], [MAR 85]).

La première méthode consiste, après avoir fait circuler dans le milieu une solution colorée de permanganate de potassium, à repérer, grâce à des photographies, les zones de fixation de la couleur [COC 80]. La sensibilité au niveau de la coloration est faible et ne donne qu'une appréciation qualitative, en raison probablement des phénomènes de réduction du permanganate de potassium par les matières organiques présentes dans tout échantillon de sol [ROD 84].

L'autoradiographie nécessite, dans un premier temps d'apporter au milieu une solution de chlorure de calcium marquée au chlore 36 (émetteur β^- , d'énergie 0,714 MeV). L'émission du chlore 36 impressionne la pellicule photographique lors de la mise en contact de celle-ci avec le milieu poreux pendant une durée de quinze jours [COC 80]. L'autoradiographie, telle qu'elle est utilisée en science du sol nécessite des temps d'exposition particulièrement longs et ne permet qu'une approche qualitative de la porosité.

Dans ce contexte, l'Unité de Science du Sol souhaite développer une méthodologie permettant de quantifier cette porosité fissurale efficace.

Pour ce faire, elle s'est équipée d'un analyseur linéaire BERTHOLD.

Cet appareil permet de réaliser par balayage une cartographie de l'émission radioactive β^- d'une surface plane.

Conçu initialement pour des applications dans les domaines de la biologie ou de l'histophysiologie (chromatographie sur plaque ou sur papier), il a été adapté aux préoccupations de la science du sol.

Pour aboutir à une utilisation efficace de ce matériel, notre travail a consisté dans un premier temps à établir les performances de l'appareil, à analyser les sources de variations et déterminer les réglages optimaux de détection.

Dans un second temps, nous nous sommes plus particulièrement intéressés à l'interaction de l'émission β avec les caractéristiques intrinsèques d'un échantillon de sol telles que notamment granulométrie, densité et humidité.

CHAPITRE A : NOTIONS DE BASE

A-I-) RAPPELS DE RADIOACTIVITE.

A-I-1-) Les isotopes.

Les isotopes d'un élément ne diffèrent entre eux que par le nombre de neutrons présents dans le noyau, le nombre de protons restant inchangé.

Le nombre d'électrons périphériques est constant d'un isotope à l'autre ; de ce fait, les propriétés chimiques sont presque identiques, d'où leur intérêt dans la technique du traçage.

Deux types d'isotopes peuvent être distingués :

- les isotopes stables, tels que ^{31}P , ^{15}N
- les isotopes instables, ou radioactifs, tels que ^{32}P , ^{90}Sr

Dans ce dernier cas, le noyau de ces isotopes tend à revenir vers un état stable en subissant :

- soit une désintégration par partition, pour laquelle il y a expulsion du noyau d'un ou plusieurs nucléons (désintégration α , fission) ;
- soit une désintégration isobarique, où la masse atomique A reste inchangée (désintégration β^- , β^+ , capture électronique).

Le noyau résultant peut se trouver à l'état fondamental ou dans un état excité, la désexcitation pouvant s'effectuer par une ou plusieurs transitions γ .

Etant donné que les expériences entreprises ont mis en oeuvre uniquement des éléments radioactifs émetteurs β^- , seule la radioactivité β^- sera développée par la suite.

Nombre d'impulsions

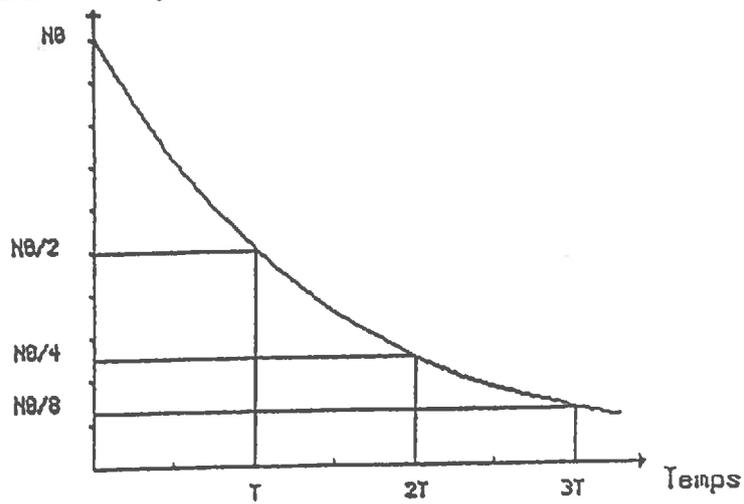


Figure 1 : Loi de décroissance radioactive et Période.

A-I-2-) La décroissance radioactive. [R & C 74]

La loi de décroissance radioactive s'applique à tout radionucléide et se traduit par les relations bien connues :

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

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

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

avec N_0 : nombre d'atomes présents au temps $t = 0$

N : nombre d'atomes présents à l'instant t

λ : constante de décroissance ou constante radioactive :

c'est la probabilité pour qu'un atome quelconque se transforme dans l'unité de temps ; elle est la même pour tous les atomes d'une même espèce et elle s'exprime en seconde⁻¹, minute⁻¹....

$A = \lambda \cdot N$: activité.

Pour caractériser un élément radioactif, le facteur fondamental est la Période. Elle est définie (figure 1) comme l'intervalle de temps nécessaire pour réduire de moitié le nombre d'atomes radioactifs initialement présents :

$$N_{t+T} = \frac{1}{2} \cdot N_t$$

d'où :

$$T = \frac{\text{Ln } 2}{\lambda} = \frac{0,693}{\lambda}$$

T s'exprime en unité appropriée (seconde, minute...).

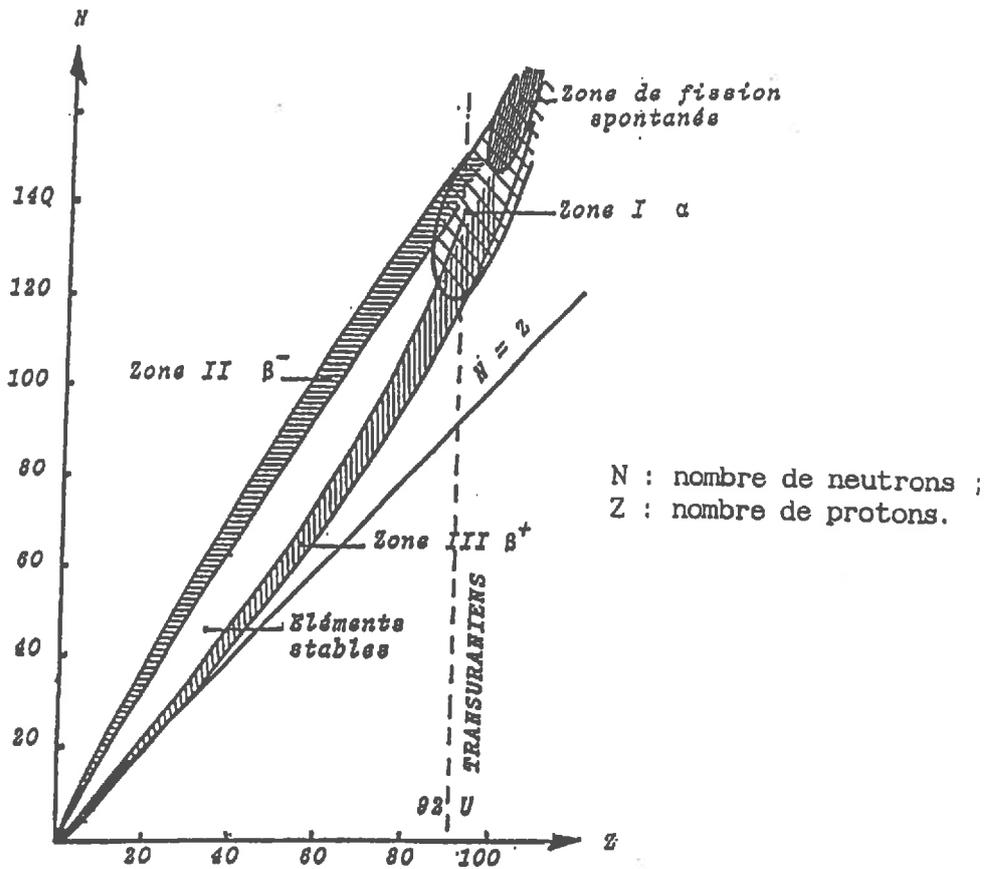


Figure 2 : Diagramme de stabilité des éléments. [R & C 74]

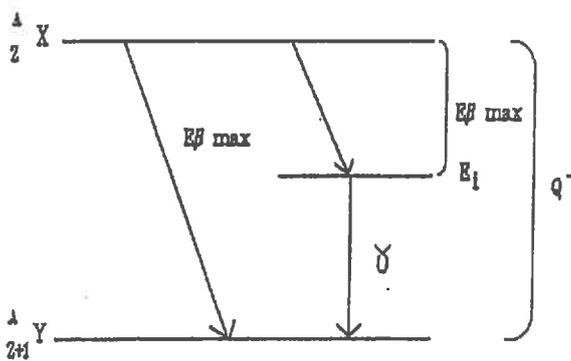


Figure 3 : Energétique de la radioactivité β^- .

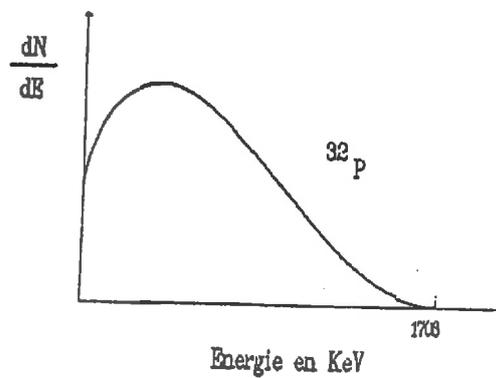


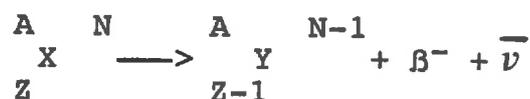
Figure 4 : Spectre des β^- du ^{32}P .

A-1-3-) Radioactivité β .

Le rayonnement β est un rayonnement corpusculaire. Suivant le nombre de neutrons contenus dans le noyau, il peut s'agir soit d'une émission β^+ , soit d'une émission β^- .

Les noyaux des émetteurs β^- présentent un excès de neutrons par rapport au nombre de protons ; ils se trouvent de ce fait, situés au dessus de la courbe de stabilité (figure 2) [S & O 80].

Dans ce type de désintégration, un électron et un antineutrino (de masse nulle) sont émis, résultant de la transformation d'un neutron du noyau en proton:



Au recul du noyau Y près, l'énergie d'une telle transition, correspondant à l'énergie β maximale émise est :

$$E_{\beta\max} = Q^- - E_i$$

avec : Q^- : énergie de la désintégration, égale à la différence des masses atomiques entre les niveaux fondamentaux du parent et du descendant.

E_i : énergie du niveau vers lequel a lieu la désintégration (figure 3).

L'énergie mise en jeu, $E_{\beta\max}$, se répartit entre l'électron et le neutrino avec une distribution continue pour les deux particules, s'étendant de 0 à $E_{\beta\max}$ (figure 4).

A-1-3_1) Interaction des particules β^- avec la matière.

[CEA 73] [BLA 80] [G & G 85]

Les particules β^- perdent leur énergie, donc leur vitesse, par interaction avec les électrons ou les noyaux des atomes du milieu traversé.

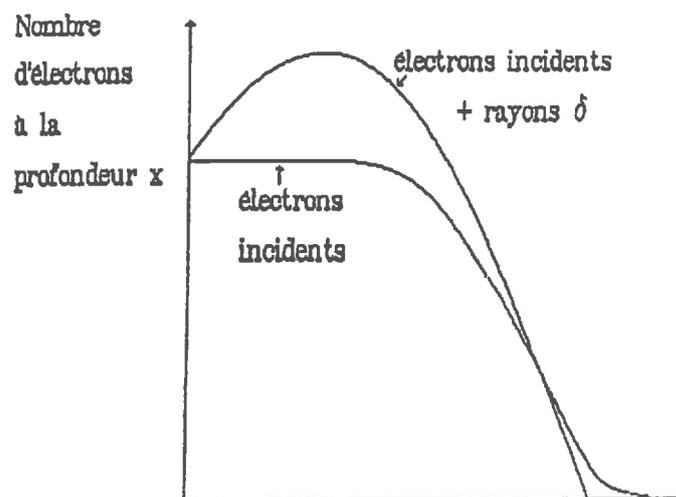


Figure 5 : Participation au flux en profondeur des électrons incidents et des électrons δ .
 (représentation très schématique dans laquelle le nombre de δ est considérablement exagéré)

Dans le premier cas, les électrons périphériques peuvent être déplacés de leur état stable momentanément, c'est l'excitation ou définitivement, c'est l'ionisation.

L'excitation ou l'ionisation peuvent être accompagnées de phénomènes secondaires tels que la modification du réseau cristallin du milieu, la dissociation des molécules...

La particule incidente peut quant à elle être déviée de sa trajectoire initiale.

Les principaux types d'interaction sont :

- collision inélastique avec un électron atomique :

Cet effet est assimilable à un choc élastique "coulombien"* avec un électron périphérique considéré comme libre, c'est à dire ayant une énergie de liaison très inférieure à l'énergie de la particule incidente. Cet électron, considéré au repos acquiert une partie de l'énergie initiale de l'électron incident.

Etant donné l'impossibilité de distinguer après le choc, la particule incidente de la particule cible, il est admis que la particule projectile est celle ayant la plus grande énergie. Avec cette convention, le transfert d'énergie varie de 0 à $E/2$.

Bien que le faisceau incident ait un flux d'énergie constamment décroissant, le nombre d'électrons augmente du fait de la présence des électrons secondaires appelés rayons δ produits et projetés le long de la trajectoire initiale. De ce fait, le spectre β voit sa composante basse énergie (énergie très inférieure à $E_{\beta\max}/2$) augmenter par le flux de rayons δ (figure 5).

- collision inélastique avec un noyau :

C'est l'interaction d'une particule avec le champ coulombien du noyau. La particule chargée passant au voisinage du noyau est soumise à une force d'attraction qui change la direction de la trajectoire et lui communique une accélération. Cette accélération entraînera l'émission d'un rayonnement électromagnétique dont l'énergie est prélevée sur l'énergie cinétique de la particule. Le rayonnement émis (photon X) est appelé "rayonnement de freinage" ou

* La loi coulombienne exprime la force électrique exercée par une charge e sur une autre charge e' située à une distance r d'elle. La force est attractive si les charges sont de signe opposé, répulsive dans le cas contraire.

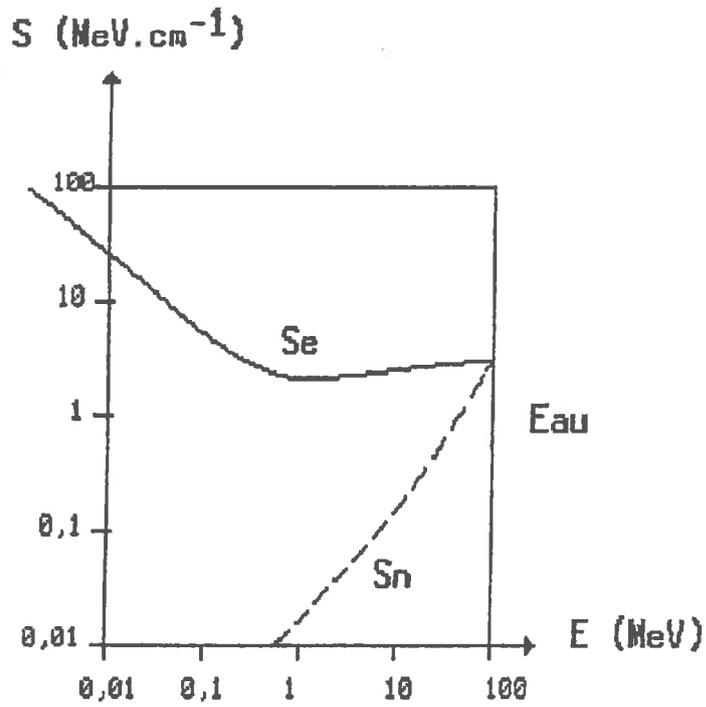


Figure 6 : Variation du pouvoir d'arrêt par interaction avec les noyaux (Sn) et avec les électrons (Se), en fonction de l'énergie cinétique des électrons.

"bremsstrahlung". Sa distribution en énergie varie de 0 à l'énergie initiale de la particule incidente.

- collision élastique avec un noyau :

Compte-tenu du rapport des masses, cette collision n'entraîne pas une perte d'énergie appréciable. Mais, si le matériau traversé a une épaisseur suffisante, la trajectoire de l'électron subit des déviations successives dont l'angle moyen peut atteindre des valeurs importantes. Ces déviations multiples peuvent même aboutir à un retour en arrière ou rétrodiffusion des électrons.

A-1-3) Pouvoir d'arrêt. [BLA 80] [G & G 85]

Pour un électron d'énergie E, le pouvoir d'arrêt (S) d'un matériau donné est défini comme la valeur de la perte d'énergie de la particule (- dE) par unité de longueur (dX).

Il est égal à la somme des pouvoirs d'arrêt par collision (Se) et par rayonnement (Sn) :

$$S = S_e + S_n$$

avec :

$$S_e = \frac{dE}{dX_{coll}} \quad \text{et} \quad S_n = \frac{dE}{dX_{rad}}$$

Pour des particules de faible énergie, le pouvoir d'arrêt par collision est prépondérant et présente un minimum pour une énergie voisine de 1 MeV, les pertes par radiation étant très faibles. Par contre, à très haute énergie, c'est la perte d'énergie par radiation qui est la plus grande. (figure 6)

La participation relative des deux phénomènes est approximativement définie par l'expression:

$$\frac{S_e}{S_n} = \frac{800}{Z \cdot E}$$

E étant exprimée en MeV, Z étant le numéro atomique du matériau traversé.

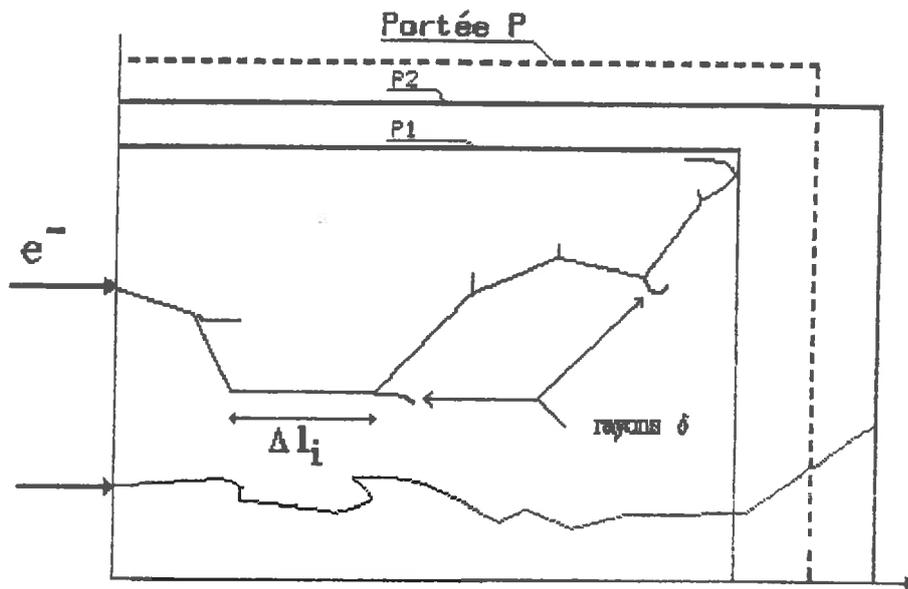


Figure 7 : Trajectoire d'électrons monocinétiques dans un matériau.
 $L = \sum l_i$: Distance parcourue,
 P : Portée,

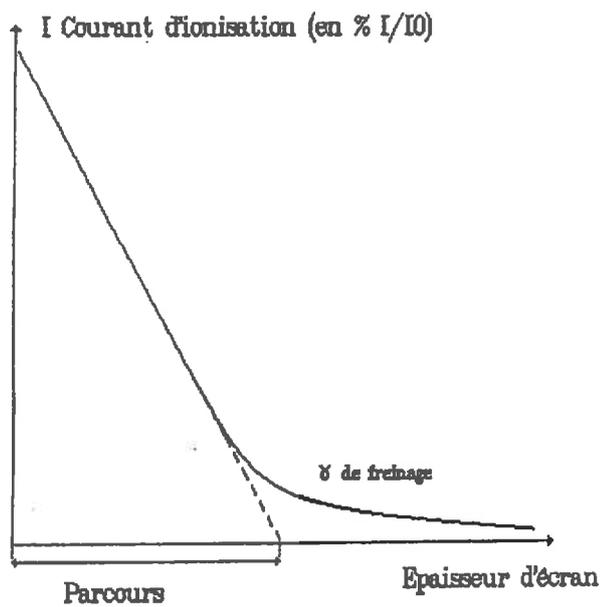


Figure 8 : Loi d'atténuation d'un spectre d'émission β^- .

A-I-3₃) Parcours et absorption des particules β^- .

[CEA 73] [BLA 80] [G & G 85]

La distance totale parcourue par un électron entre son émission et son absorption est difficile, sinon impossible à connaître, étant donné que les trajectoires ne sont pas rectilignes.

Pour un faisceau d'électrons monocinétiques, il existe une différence importante entre la longueur réelle de la trajectoire L (ou distance parcourue) et la portée P définie comme la valeur moyenne des longueurs de pénétration distribuées statistiquement de ces électrons dans la matière. (figure 7).

De façon habituelle et en termes impropres, la portée est appelée "parcours extrapolé R_n " pour un faisceau d'électrons monocinétiques et "parcours maximal R_m " dans le cas d'un rayonnement β .

Pour un faisceau de particules β de différentes énergies, l'atténuation en fonction de l'épaisseur est globalement exponentielle jusqu'à : [PAN 66]

$$\frac{I}{I_0} = 10^{-2}$$

avec I_0 : nombre de particules pénétrantes dans le matériau;

I : Nombre de particules émergentes.

Le parcours maximal R_m (figure 8) est alors déterminé par extrapolation de la partie linéaire de la courbe d'atténuation ; ce "parcours" s'exprime en g/cm^2 .

Il peut également être évalué approximativement en fonction de l'énergie $E_{\beta_{max}}$ (MeV) du rayonnement β^- au moyen de formules empiriques, parmi lesquelles :

- pour $0,01 \leq E$ (MeV) ≤ 3 (KATZ et PENFOLD)

$$R \text{ (mg.cm}^{-2}\text{)} = 412 E^n \text{ avec } n = 1,265 - 0,094 \ln E$$

- pour $0,8 < E$ (MeV) (FEATHER)

$$R \text{ (g.cm}^{-2}\text{)} = 0,543 E - 0,16$$

En faisant l'hypothèse que la densité électronique est constante d'un élément chimique à un autre, le parcours ainsi calculé ne dépend pas de la nature du matériau traversé.

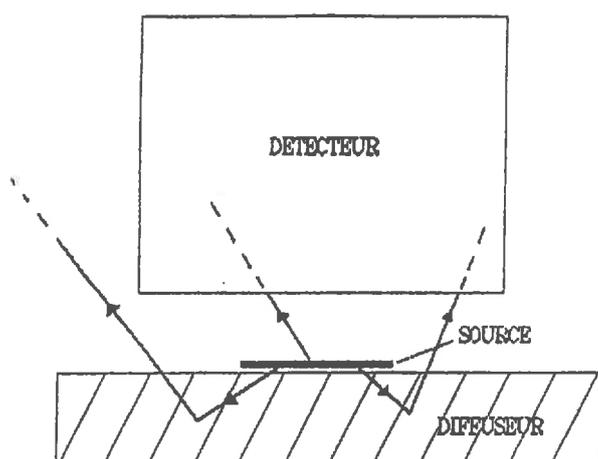
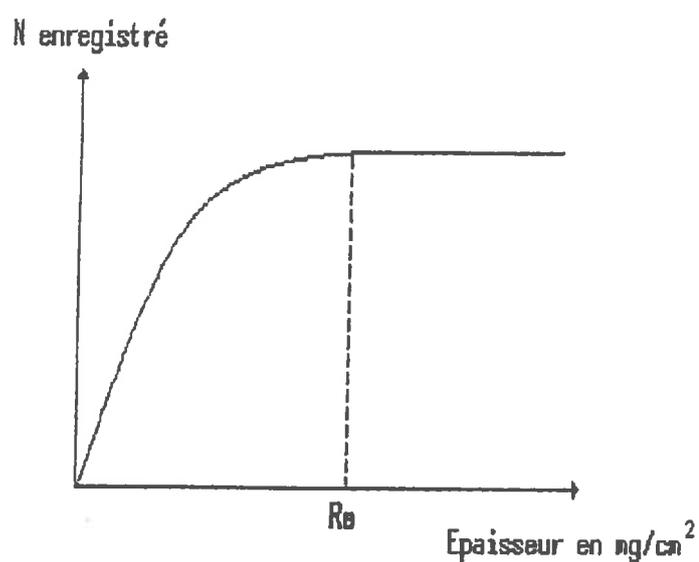


Figure 9 : Rétrodiffusion



R_0 : limite inférieure de l'épaisseur "infinie"

Figure 10 : Autoabsorption ; cas des sources "infinies".

A-I-3₄) Rétrodiffusion. [CEA 73]

Certaines particules initialement dirigées vers le support d'une source mince subissent une rétrodiffusion et sont renvoyées vers le détecteur (figure 9).

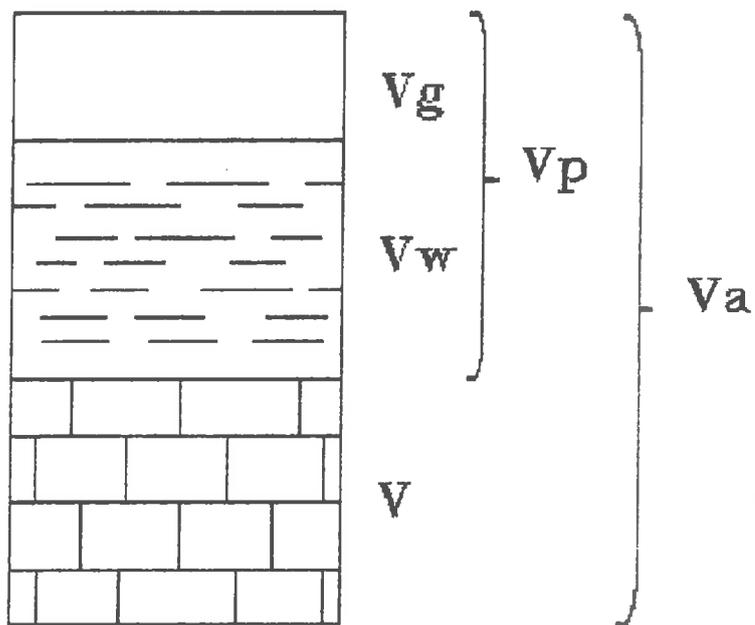
Le phénomène de rétrodiffusion dépend principalement du numéro atomique du matériau diffuseur, ainsi que de l'énergie maximale du rayonnement β^- et des conditions géométriques liant la source, le diffuseur et le détecteur.

A-I-3₅) Autoabsorption. [CEA 73]

L'absorption du rayonnement issu de la source par le matériau dont elle est constituée est un phénomène très important pour des particules β de faible énergie (^{14}C), ayant un faible parcours dans la matière.

Par contre, l'autoabsorption est négligeable pour les rayonnements de forte énergie (^{32}P), à condition que les mesures soient faites sur des sources très minces ou sur des sources épaisses ; c'est à dire, lorsque l'épaisseur est "infinie" par rapport au parcours maximal du rayonnement β considéré.

Dans ce dernier cas, à partir de la limite inférieure de l'épaisseur infinie, l'émission mesurée est indépendante d'une augmentation de l'épaisseur et ne dépend que de l'activité par unité de masse des matériaux constituant la source. (figure 10)



$$V_p = V_s + V_t$$

Figure 11 : Schéma des différentes phases présentes dans un volume de sol .

- V : volume de la phase solide,
- V_g : Volume de la phase gazeuse,
- V_w : volume de la phase liquide,
- V_p : volume des vides (volume poral total),
- V_s : volume poral structural,
- V_t : volume poral textural.

A-II-) NOTIONS DE BASE DE PHYSIQUE DU SOL.

A-II-1-) Le sol : définitions. [COC 80]

Le sol est un système triphasique constitué de solide, liquide et gaz (figure 11).

Les propriétés de la phase liquide et gazeuse, leurs relations avec la phase solide, dépendent de la nature physico-chimique de cette dernière et de son mode d'arrangement.

En particulier, la dynamique de l'eau dans le sol, en tant que vecteur de soluté est étroitement liée à l'architecture de cette phase solide, au travers de deux caractéristiques principales, la texture et la structure :

- la texture est l'expression des proportions relatives des diverses classes de particules solides existant dans le sol (sables, limons, argiles) identifiées par leur dimension moyenne. Elle est définie par l'analyse granulométrique.
- la structure rend compte de la façon dont les particules sont assemblées. Lorsque les éléments constitutifs du sol forment un ensemble homogène sans aucune cavité, ni fente, ni crevasse de quelque dimension que ce soit, cette structure est dite continue et ses propriétés physiques et mécaniques ne dépendent que de la texture.

En l'absence de contrainte ou d'action mécanique interne, certaines propriétés du sol dépendent de la texture, on parle de propriétés texturales. D'autres propriétés dépendent étroitement des facteurs mécaniques, climatiques et biologiques ; ce sont les propriétés structurales du sol.

A-II-2-) Paramètres physiques du sol.

A-II-2-γ) La densité. [MAR 85]

- la densité solide Γ_s .

C'est le rapport de la masse du solide M sur son volume solide V :

$$\Gamma_s = \frac{M}{V}$$

- la densité apparente sèche Γ_d .

C'est le rapport de la masse du solide M sur le volume qu'il occupe en réalité V_a :

$$\Gamma_d = \frac{M}{V_a}$$

- la densité texturale Γ_π .

C'est le rapport de la masse du solide M sur le volume correspondant à l'arrangement textural

V_t :

$$\Gamma_\pi = \frac{M}{V_t}$$

Cette valeur varie avec l'humidité.

A-II-2) Les systèmes de porosité. [COC 80] [STE 83] [MAR 85]

La matière solide n'occupe qu'une partie d'un volume unitaire donné, définissant ainsi un ensemble de volumes vides V_p formant la porosité totale N_t :

$$N_t = \frac{V_p}{V_a} = 1 - \frac{\Gamma_d}{\Gamma_s}$$

La porosité totale est souvent utilisée pour caractériser de façon globale et approximative l'état physique du sol. On peut également distinguer :

- la porosité texturale N_π résultant de l'assemblage des particules élémentaires. Cette porosité est dite unidimensionnelle ou unimodale si elle est composée d'une seule classe de pores (cas d'une population de grains de sable de même dimension). Elle sera bimodale si deux classes de pores coexistent dans le milieu (cas des mélanges sable-argile). Dans un sol, on observe généralement une distribution continue des pores.

Elle a pour expression :

$$N_{\pi} = 1 - \frac{\Gamma_{\pi}}{\Gamma_s}$$

- la porosité structurale N_s résultant de l'histoire hydrique, mécanique, biologique du matériau.

Elle a pour expression :

$$N_s = 1 - \frac{\Gamma_d}{\Gamma_{\pi}}$$

A-II-3) Paramètres hydriques du sol. [GAR 86]

A-II-3₁) L'humidité massique.

Elle se détermine par la méthode gravimétrique. C'est le rapport de la masse d'eau sur la masse du solide (sol) sec.

$$h_p = \frac{(M_w - M)}{M}$$

avec M_w : masse de solide humide

M : masse de solide sec

A-II-3₂) La teneur en eau volumique.

La concentration en eau d'un milieu poreux s'exprime souvent par la teneur en eau volumique h_v , qui est le rapport du volume d'eau V_w au volume de sol sec V :

$$h_v = \frac{V_w}{V}$$

ou encore :

$$h_v = h_p \cdot \Gamma_d$$

L'indice de saturation h_{vs} est défini comme le rapport du volume d'eau présent dans un sol au volume des pores du sol V_p :

$$h_{vs} = \frac{V_w}{V_p} = \frac{h_v}{N_t}$$

On dira qu'un sol est saturé quand $h_v = N_t$

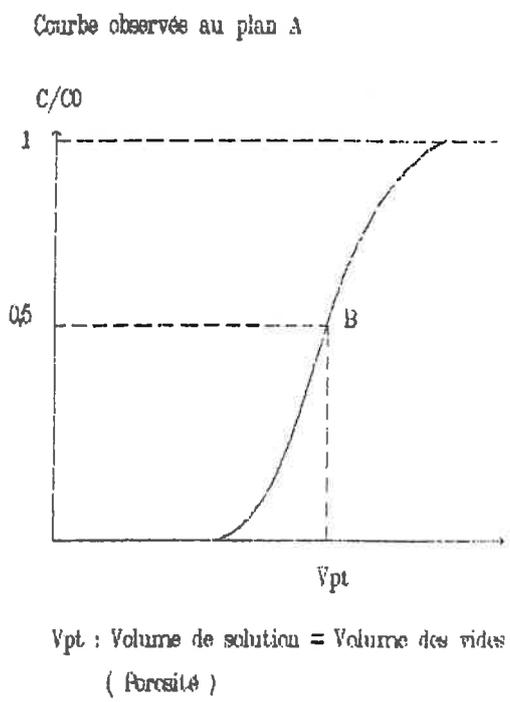
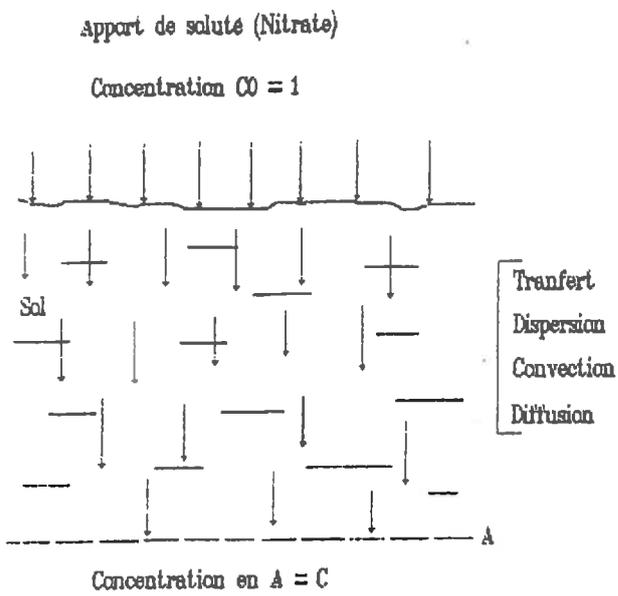


Figure 12 : Circulation d'une solution saline dans un sol homogène (Sable, Limon).

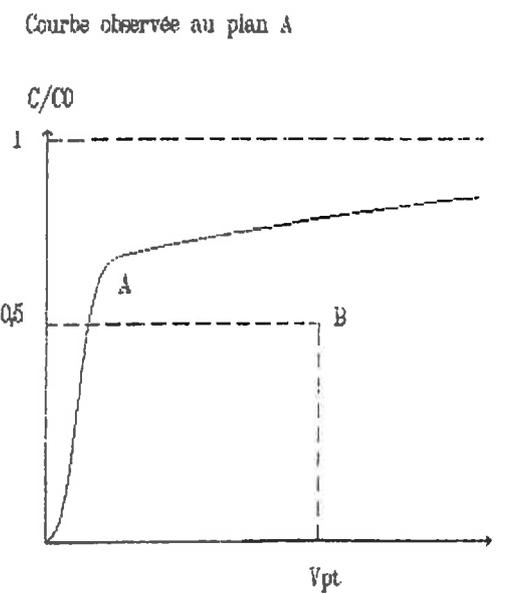
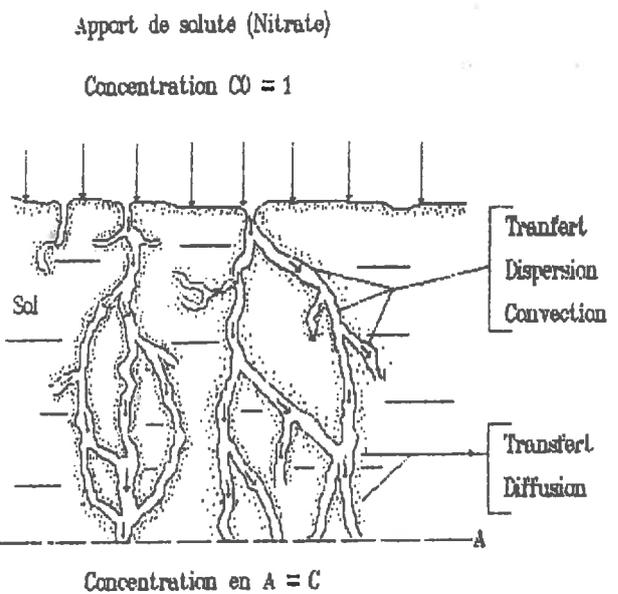


Figure 13 : Circulation d'une solution saline dans un sol fissuré.

A-II-4-) Transfert des sels dans un sol. [COC 80] [MAR 85]

Le déplacement des sels dans un sol, l'eau étant le fluide vecteur est affecté par :

- les phénomènes liés au déplacement propre de la solution saline dans le sol, à savoir : la convection, la diffusion et la dispersion mécanique ;
- les propriétés physico-chimiques relatives à la solution saline ;
- les interactions sol-solution saline (diffusion dans la matrice, précipitation, adsorption...) ;
- l'état physique du sol : composition granulométrique et structure.

La circulation d'une solution saline de concentration donnée (C_0), apportée à la surface d'un sol, conduit, à une profondeur donnée, à recueillir une solution de concentration différente (C) selon que le sol est homogène, ou hétérogène.

L'évolution de la concentration relative C/C_0 en fonction du temps de passage, ou du volume apporté, présente des allures différentes même si la porosité totale est, dans les deux cas, de valeur égale.

Pour un sol homogène, nous sommes en présence d'un seul type de porosité : la porosité texturale ; la variation de la concentration relative, en fonction du volume d'éluat à une cote donnée est caractérisée par une courbe en forme de sinusoïde, avec symétrie de la courbe autour d'une concentration relative de 0,5. Pour cette concentration relative, le volume poral peut être défini à partir du volume d'éluat (figure 12). Cela indique que toute la solution présente dans le sol participe au déplacement (effet piston), donc que toute la porosité du sol est "fonctionnelle".

Pour un sol hétérogène présentant deux types de porosité, une porosité texturale et une porosité structurale, cette dernière tient lieu de chemin préférentiel lors de la circulation de solution dans le milieu. Pour une concentration relative de 0,5, le volume d'éluat est inférieur au volume poral total, mais supérieur au volume poral découlant uniquement de la porosité structurale (figure 13). En effet lors de la circulation de la solution saline dans un tel milieu, intervient en plus des phénomènes d'écoulement liés au déplacement propre de la solution, le phénomène de diffusion du soluté qui s'exerce à partir de la paroi de la fissure vers la porosité texturale.



Figure 14 : Présentation de l'analyseur linéaire BERTHOLD.

CHAPITRE B : PRESENTATION DE L'ANALYSEUR LINEAIRE

Le TRACEMASTER BERTHOLD LB 285 est un analyseur linéaire automatique qui permet d'évaluer quantitativement la distribution en radioactivité d'un échantillon plan (figure 14).

Il est équipé d'un compteur proportionnel à circulation de gaz de haute sensibilité. Cette configuration permet de détecter les particules β^- de très faible énergie comme celles du tritium ($E_{\beta\max} = 18 \text{ keV}$).

A ce matériel, est associé un ordinateur qui contrôle l'acquisition et le traitement des données, et les fonctions de l'unité de mesure (mouvement, positions du compteur).

B-I-) LE DETECTEUR.

B-I-1-) Principe général d'un compteur proportionnel.

[GARD 59] [G & G 85]

Le compteur proportionnel se compose :

- d'un tube de métal rempli de gaz facilement ionisable (mélange d'argon-méthane à 90-10), relié au pôle négatif d'un générateur de courant continu ;
- d'une électrode isolée du tube, reliée au pôle positif.

Entre le tube et l'électrode, une différence de potentiel est établie.

Les ions créés par le passage d'une particule chargée, sont collectés par ces électrodes. Ce déplacement de charges produit une impulsion électrique mesurable dans le circuit, dont l'amplitude est fonction de la différence de potentiel entre les électrodes.

La courbe d'amplitude d'impulsion en fonction de la tension, présente cinq zones différentes (figure 15).

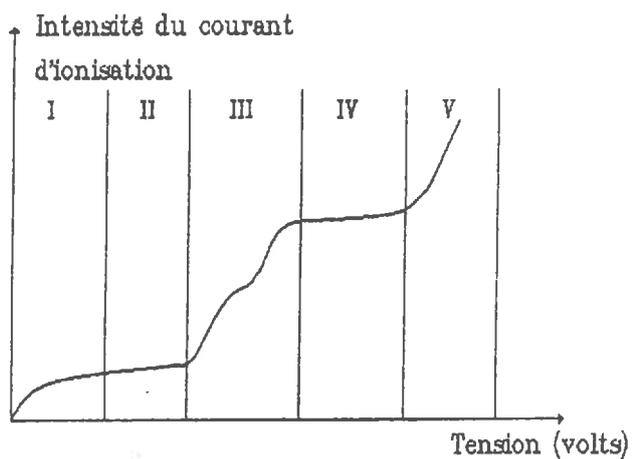


Figure 15 : Intensité d'ionisation en fonction de la tension appliquée.

- Zone I : zone de recombinaison,
- Zone II : zone de chambre d'ionisation,
- Zone III: zone de proportionnalité,
- Zone IV : zone de compteur Geiger-Muller,
- Zone.V : zone de décharge.

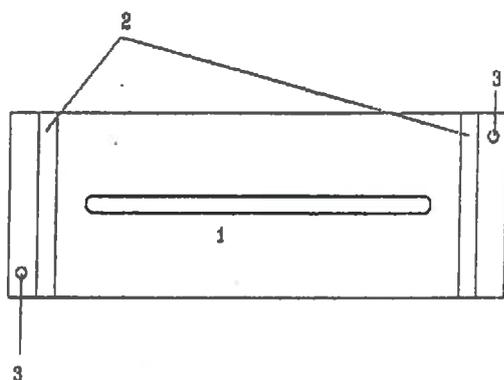


Figure 16 : Vue de détecteur par le dessous.

- 1- Fenêtre,
- 2- Bandes de protection évitant un contact entre l'échantillon et le compteur,
- 3- Orifices d'ajustement du diaphragme.

Le régime proportionnel concerne la zone III. Dans celle-ci, les particules β entrent en collision avec les atomes de gaz, qui sont alors ionisés. Les électrons ainsi libérés, sont suffisamment accélérés par le champ pour provoquer à leur tour des ionisations secondaires avec les molécules de gaz. Par la suite, ces atomes ionisés se trouvent dans un état excité et reviennent à un état stable par émission photonique. Ces photons libèrent alors des électrons dans les parois et le gaz du compteur.

Dans ces conditions, le nombre de charges collectées par les électrodes est supérieur au nombre de charges produites par l'ionisation primaire. Mais l'impulsion électrique ainsi créée a une intensité proportionnelle au nombre d'ions primaires formés et à la tension appliquée.

Le méthane qui sert de tampon, évite que le champ d'ions positifs situé autour de l'électrode positive s'étende à l'électrode négative, créant ainsi un court-circuit qui détruirait le détecteur.

B-I-2-) Compteur proportionnel de l'analyseur linéaire LB 285.

[BER *1]

Le compteur proportionnel de l'analyseur linéaire fonctionne avec une très haute tension de 1380 volts (maximum toléré : 1400 V).

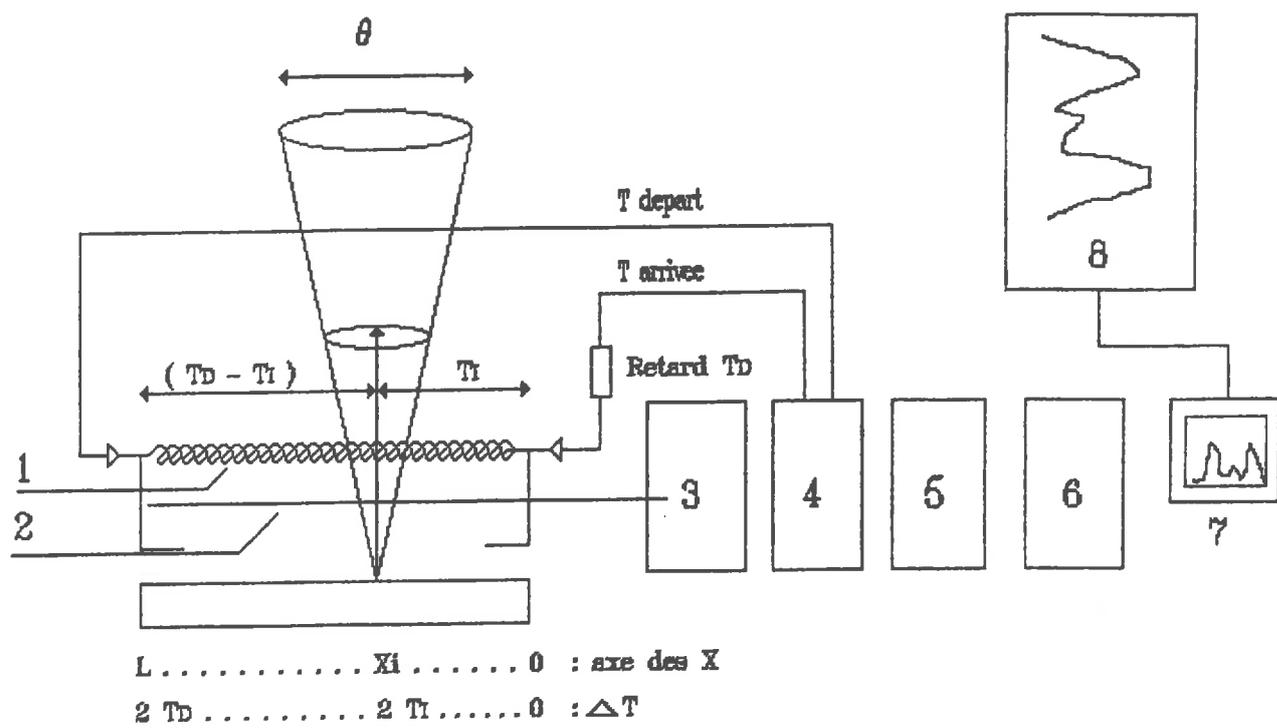
Ce détecteur est muni d'une fenêtre de 250 mm de long et de largeur pouvant être fixée à 2, 4 ou 15 mm suivant le type d'élément à traiter (figure 16). Une feuille de mylar ($0,15 \text{ mg/cm}^2$) peut être disposée devant cette fenêtre, entraînant une diminution de la consommation de gaz de 0,5 l/mn à 0,05 l/mn, mais limitant les performances du détecteur. Au cours de notre travail, le compteur a été utilisé sans feuille de mylar.

Le détecteur analyse simultanément le profil complet des désintégrations émises sur la partie de l'échantillon (appelée piste) en coïncidence avec la fenêtre.

B-I-2.1) Localisation d'une particule détectée.

[BER *2] [FIL 86]

La localisation de la position d'interaction X_i de la particule incidente dans le compteur est résolue par l'utilisation d'une "ligne de retard", calibrée, de durée de parcours total de 500 nanosecondes (T_D) et couplée de façon électromagnétique à l'anode.



- 1- Ligne de retard
- 2- Anode
- 3- Générateur de tension
- 4- Analyseur de temps
- 5- Convertisseur analogique
- 6- Système d'acquisition
- 7- Ecran
- 8- Imprimante

Figure 17 : Principe de la localisation de l'émission grâce à la ligne de retard tel que :

$$\begin{aligned}
 T \text{ départ} &= T_D - T_I \quad \text{avec } T_D = 500 \text{ ns} \\
 T \text{ arrivée} &= T_I + T_D \\
 \Delta T &= 2 \cdot T_I
 \end{aligned}$$

Les impulsions produites au niveau de cette ligne parcourent celle-ci dans les deux directions opposées.

L'arrivée des impulsions à chaque extrémité est détectée par l'électronique et après amplification, ces impulsions sont converties en signaux de sortie rapide, départ et arrivée.

Le signal de départ précède, dans tous les cas, le signal d'arrivée étant donné qu'un temps de retard équivalent au temps de parcours total de la ligne de retard (T_D) est systématiquement ajouté au temps (T_I) de parcours de l'impulsion de la position X_i à 0.

La différence entre les temps de départ et d'arrivée est donc égale à deux fois le temps (T_I) nécessaire à l'impulsion pour aller de la position X_i à 0 (figure 17).

Ce dispositif permet une différence de temps de 10^{-9} à 10^{-6} secondes et une position sur le filament variant de 0,25 mm à 250 mm peut ainsi être définie .

B-1-2) Résolution spatiale du détecteur.

[BER *2][FIL 85] [FIL 86]

L'analyseur d'amplitude des impulsions utilisé pour numériser les impulsions et en assurer le codage comprenant 1024 canaux de comptage, la résolution du compteur est de 0,25 mm (longueur de la fenêtre : 250 mm divisé par le nombre de canaux : 1024) pour un faisceau de particules non divergentes, pénétrant dans le compteur perpendiculairement au filament.

Les sources émettrices β^- étant plus ou moins isotropes, la meilleure résolution possible sera obtenue en positionnant l'échantillon le plus près possible du compteur, afin de diminuer le cône de diffusion.

Pour les radioéléments les plus utilisés avec cet appareil, le constructeur indique les valeurs de résolution suivantes:

-0,5 mm pour le ^3H ,

-1,0 mm pour le ^{14}C et le ^{33}P ,

-2,0 mm pour le ^{32}P .

Nucléide	E β max	Rendement (CPM / DPM)
^3H	18 KeV	2 %
^{14}C	155 KeV	supérieur à 20 %
^{35}S	167 KeV	supérieur à 20 %
^{33}P	200 KeV	supérieur à 20 %
^{32}P	1,7 MeV	supérieur à 40 %

Tableau 1 : Efficacité totale de détection.

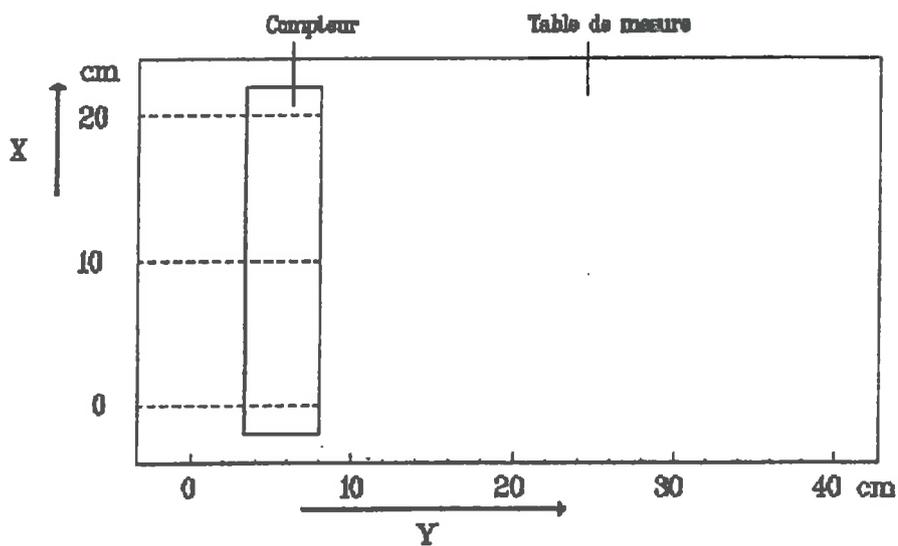


Figure 18 : Position du compteur sur la table de mesure.

Afin d'éviter une contamination du détecteur ou une mauvaise circulation de gaz, des espaceurs situés sous le détecteur permettent qu'une distance minimale de 0,3 mm entre la surface de l'échantillon et la fenêtre du détecteur soit toujours respectée.

B-I-2.3) Sensibilité du détecteur.

Les mesures quantitatives de dépôt radioactif peuvent être influencées par différents facteurs qui risquent d'en limiter la précision. Parmi ces facteurs, nous noterons :

- le rendement de détection. Il est défini comme le rapport du nombre de particules détectées (coups par minute CPM) sur le nombre de particules émises par la source (désintégrations par minute DPM). Ce rapport dépend de l'épaisseur de la source radioactive et du facteur d'efficacité du détecteur.

Pour une source mince de 200 μ m d'épaisseur, le constructeur fournit, pour les radioéléments les plus utilisés le rendement de détection observé (tableau 1) [FIL 85] [FIL 86].

- le mouvement propre du détecteur en l'absence de source radioactive (bruit de fond). Ce mouvement propre est l'effet du rayonnement cosmique (en moyenne une particule par minute et par centimètre carré [CEA 73]) et de la radioactivité parasite provenant du rayonnement ambiant du laboratoire et des matériaux constituant le détecteur et ses protections.

Ce bruit de fond ne change pas, quelle que soit la taille du cône de diffusion, c'est à dire quelle que soit la distance au compteur. Il est d'environ 50 impulsions par minute sur la longueur du filament, soit 0,2 impulsions par minute et par millimètre [FIL 85] [FIL 86].

B-II-) LA TABLE DE MESURE. [BER *1]

L'analyseur linéaire LB 285 est équipé d'une table de mesure de 400 mm de long sur 200 mm de large (figure 18). La tête du détecteur pour un appareil standard peut se déplacer verticalement de 7 mm par rapport à la table de mesure.

Berthold CHROMA Version 6.16 03/88

Main Menu BERTHOLD Chroma

Parameters	1
Single measurement	2
Multiple measurement	3
Evaluation	4
Select / Initialize data-file	5
Calibrate system	6
Handle ASCII-files	7
Exit from program	0

Figure 19-a

Please select corresponding number

Data-file in use for measurement : BDF.DAT

Data-file preparation/evaluation :

Plate - name :	
Comment :	
Comment :	
Comment :	
RF-Start :	0.0
Statistical significance :	3.0
Peak-reject :	100.
Peak-halfwidth run 1 (cm) :	0.20
Peak-halfwidth run 2 (cm) :	0.00
Use peak-fitting [Y/N] :	N
Background-region 1 :	0.00 0.00
Background-region 2 :	0.00 0.00
Subtr.background :	N
Use Y-calibration [Y/N] :	Y
Plot-range of X-axis (cm) :	0.00 to 0.00
Plot-range of Y-axis (counts) :	0.00 to 0.00
Y-axis mode (1:lin,2:sqrt,3:log) :	1
Smooth raw data (n-times) :	0
Plot-mode for chromatogram :	1
Plot-mode for bar representation :	1
Plot-mode for gauss-fits :	1

Figure 19-b

Figure 19 : Programme CHROMA MONODIMENSIONNEL.

Pour une application plus particulière telle le passage d'un échantillon de sol humide, le laboratoire de Science du Sol d'Avignon a demandé au constructeur de porter l'écartement entre la table de mesure et le détecteur à 50 mm.

Ceci a été réalisé par la mise en place de bagues de positionnement sur les tiges de fixation du détecteur.

Pour notre étude, en déplaçant certaines de ces bagues, nous avons ramené l'écart à 30 mm.

B-III-) L'ACQUISITION ET LE TRAITEMENT DES DONNEES.

[BER *1] [FIL *]

Un ordinateur EPSON PC/AX (disque dur de 20 Mo, 640 Ko de mémoire RAM) et une imprimante EPSON LX 800 sont associés à l'analyseur LB285. Ce système permet, grâce à un ensemble de logiciels, de gérer l'acquisition et le traitement des données ainsi que le contrôle du fonctionnement de l'unité de mesure et le mouvement de la tête de lecture.

Suivant le type d'échantillon et l'objectif de l'expérimentation, l'acquisition et le traitement des données peuvent être réalisées en mono ou bidimensionnel.

Dans le premier cas, l'acquisition se fait en mode fixe en un seul endroit de l'échantillon. La position du détecteur sur la table de mesure et le temps de comptage sont déterminés par l'utilisateur.

Dans le second cas, un balayage de l'ensemble de l'échantillon est réalisé suivant un pas de déplacement de la tête du détecteur et un temps de comptage global fixés par l'opérateur.

Chaque mode de fonctionnement est géré par des logiciels particuliers.

B-III-1-) Mode monodimensionnel : logiciel CHROMA 1D [BER *2]

(version 6-16 03/88) (figure 19)

Le menu principal comporte sept fonctions clés (figure 19 - a).

Pour notre étude, le mode monodimensionnel n'a été utilisé que pour des expériences de reproductibilité des mesures. Aucun traitement des comptages n'a été nécessaire.

Report Chroma

Data-file.....:INRA.DAT
Plate ID.....:3H 63
Name of Track.....:
Date of measurement: 9-MAY-91 10:04:21

Background from .0 to .0 and from .0 to .0 Autosb:N Y-Cal:Y
Runtime.....: 0(hours) 0(min)30(sec)
Position= 10.0(cm) RF-Start= 10.00(cm) Front= 20.00(cm) Gain=3
Significance= 3.0 Peak-reject= 100.(cts) Half-width= .2/ .0(cm)

# Name	RF	center	from	to	net	net	S.D.	ROIs	all
		(cm)	(cm)	(cm)	(cts)	(cpm)	(%)	(%)	(%)

		(cts)	(cpm)
Total gross :	316.00	630.14	
Gross in ROIs :	1.0000	1.9941	
Net in ROIs :	1.0000	1.9941	

Figure 20 : Présentation des résultats d'un comptage en mode monodimensionnel.
(Fonction REPORT)

Berthold CHR2D Version 2.04 10/88

Measurement
Evaluation
Parameter-protocol
System parameters
Calibration
Exit from program

Figure 21 : Menu principal du logiciel CHR2D.

Nous ne développons ci-dessous que les spécificités des fonctions d'acquisition : fonctions "PARAMETRES" et "MESURE MULTIPLE".

Avant de pouvoir lancer un comptage, l'utilisateur doit pour l'échantillon à analyser, pré-définir:

- dans un premier temps les paramètres spécifiques relatifs à l'échantillon (figure 19 - b) tels que nom, soustraction de bruit de fond, paramètres de recherche automatique de pic, échelles d'impression de l'axe des X et des Y...
- dans un second temps, les paramètres relatifs aux différentes positions de mesure souhaitées sur l'échantillon tels que position de mesure, pré-temps ou pré-compte, gain et les paramètres relatifs à la sortie des résultats tels que exécution de la recherche de pics, représentation graphique du comptage, transfert des données à un autre ordinateur et impression directe du comptage sur imprimante.

Les résultats d'un comptage sont donnés (figure 20) en :

- coups par minute (CPM)
- impulsions totales (CTS).

Ces deux grandeurs sont reliées par :

$$CPM = \frac{CTS}{T}$$

avec T : temps de comptage (en minutes).

B-III-2-) Mode bidimensionnel : Logiciel CHR2D. [BER *3]

(version 2.04 10/88)

Le menu principal comporte cinq fonctions clés (figure 21).

Nous ne sommes intervenus que sur les fonctions "MESURE" et "EVALUATION".

Plate - name : Gain Ca 45			
Filename			
Comment 1 : Ca 45 Gain 4			
Comment 2 : DC = 2 mm			
Comment 3 : 15/10/90 19H10			
Scan Position Start (cm)	8.0		
Scan Position Stop (cm)	17.0		
Step Width (cm)	0.20		
Slit Width (cm)	0.20		
Resolution-X (Channels)	512		
Resolution-Y (Channels)	360		
Total measuring time (min)	60.0		
Gain (1-4)	4		
RF-Start-X (cm)	2.0	Front-X (cm)	16.0
RF-Start-Y (cm)	8.0	Front-X (cm)	17.0
Use Y-calibration (Y/N) :	n		

You will need 370688 bytes of disk-storage
 You have now 6359040 bytes available out of 21309440
 Mesuring-time per scan-step will be : 39,5 seconds

Figure 22 : Fonction "MESURE" du logiciel CHR2D.

Longueur de l'échantillon. (cm)	Nombre de pas de scrutation	Temps total de mesure (mn)	Temps de mes. par position (seconde)
5	26	15	36
		30	72
		60	144
		120	288
7	36	15	25,7
		30	51,4
		60	102,9
		120	205,7
9	46	15	20
		30	40
		60	80
		120	160

Tableau 2 : * Nombre de pas de scrutation pour un déplacement donné
 * Temps de comptage par position en fonction d'un temps total.

De ce fait, nous ne développons ci-dessous que les caractéristiques de ces deux fonctions.

B-III-2₁) Fonction "MESURE".

Le logiciel installé ne permet de programmer au plus que deux comptages successifs.

Pour chacun d'eux, l'utilisateur doit, après avoir créé un fichier dans lequel seront transférées les données en fin d'acquisition, fournir un certain nombre d'informations (figure 22).

Ces informations sont relatives :

- d'une part à l'échantillon à analyser (nom, position de départ du détecteur Y_d , position d'arrivée du détecteur Y_a),
- d'autre part, aux caractéristiques voulues de détection (largeur de la fenêtre, dimension du pas de scrutation dy , résolution de l'axe des Y et des X, temps de comptage total et gain).

Après avoir validé chaque paramètre, le programme affiche la taille prévue du fichier pour son stockage sur le disque dur et le temps de mesure par position de comptage (figure 22).

Ce temps de mesure (t) est obtenu à partir de la relation:

$$t = \frac{T}{n} = \frac{T \cdot dy}{Y_a - Y_d}$$

avec T : temps de comptage total (en mn),

n : nombre de positions de mesure,

dy : dimension du pas de scrutation (en cm),

Y_d : position de départ du détecteur (en cm),

Y_a : position d'arrivée du détecteur (en cm).

Pour un pas de scrutation de 2 mm, le nombre de positions de mesure et le temps de comptage par position en fonction de longueurs d'échantillon et de temps de comptage globaux variables, apparaissent dans le tableau 2.

Pour augmenter le temps de comptage par position de mesure, l'opérateur peut soit augmenter le temps de comptage total, soit diminuer le nombre de pas de scrutation en limitant le déplacement du compteur suivant l'axe des Y.

Pendant l'acquisition, l'image de l'échantillon se constitue progressivement à l'écran.

B-III-2₂) Fonction "EVALUATION".

Après avoir sélectionné le fichier de l'échantillon à analyser, la représentation du comptage apparaît à l'écran (figure 23) et les possibilités d'évaluation figurent dans la colonne de droite :

- "GRAPHIC" : traitement de l'image
- "INTEGRATION" : traitement quantitatif des données
- "DIRECTORY" : accès à d'autres fichiers
- "PLOT/STORE" : impression de l'image ou sauvegarde de l'analyse
- "PARAMETERS" : accès aux paramètres de mesure
- "BACK TO MAIN MENU" : sortie de la fonction évaluation.

Parmi ces différentes possibilités, seules les fonctions "GRAPHIC", "INTEGRATION" et "PLOT-STORE" se rapportent au traitement de l'image.

Elles sont divisées en sous-menus (figure 24) que nous allons exposer.

Les sous-menus associés à la fonction "GRAPHIC" permettent notamment :

- d'agrandir une zone particulière de l'image du comptage, (fonction "Expand")
- d'effectuer une projection selon les axes X et Y de l'image du comptage (fonction "XY - Projection") (figure 25)
- de définir des polygones sur des zones particulières de l'image, d'en obtenir la répartition de radioactivité et la surface (fonction "Polygone") (figure 26).

- de choisir le mode de présentation du nombre d'impulsions, ou de réduire le bruit de fond (fonction "Z Scale")

- de représenter en trois dimensions l'échantillon ; l'orientation, la compression des axes sont laissées à l'appréciation de l'utilisateur (fonction "3D View) (figure 27).

Les sous-menus associés à la fonction "INTEGRATION" permettent :

- de comparer entre elles ou à l'ensemble de l'échantillon, certaines zones de fixation de la radioactivité obtenues par la définition d'ellipses (fonction "Define Ellipse") (figure 28) ou de rectangles (fonction "Define Rectangle") (figure 29). Le programme calcule les aires des surfaces ainsi définies.

Les fonctions "Ellipse" et "Rectangle" donnent le même type d'information que la fonction "Polygone" mais sur des géométries différentes.

- d'imprimer tous les renseignements relatifs à l'échantillon et à l'analyse quantitative effectuée (fonction "Report") (figure 30).

Les sous-menus de la fonction "PLOT-STORE" permettent notamment d'imprimer l'image de l'échantillon à l'échelle 1:1 (fonction "Plot 1:1") ou l'image de l'écran de l'ordinateur (fonction "Screen dump")

Les résultats obtenus pour un échantillon sont donnés en coups par minute (CPM) et en impulsions (CTS). (figure 30)

Ces deux grandeurs sont reliées par :

$$\text{CPM} \cdot T = \text{CTS} \cdot \frac{Y_a - Y_d}{dy}$$

Le nombre d'impulsions collectées pendant la durée totale de mesure, obtenu en multipliant les coups par minute (CPM) par le temps de comptage total donne une information sur la radioactivité totale de l'échantillon.

Plate ID.....:Gain Ca 45
 Date of measurement:19-AUG-90 17:10:08

Ca 45 Gain 4
 DC=2 mV
 15/10/90 19K10

Runtime:.....: 1(hours) 0(min) 0(sec)
 Position= .0(ca) Gain=4
 RF-Start-Y= 2.00(ca) Front-X= 16.00(ca)
 RF-Start-Y= 8.00(ca) Front-Y= 17.00(ca)

# Name	RF-X	RF-Y	Position		net	net	S.D.	ROIx	ROIy	all
			X(ca)	Y(ca)	(cts)	(cpa)	(%)	(%)	(%)	
1	.52	-.38	9.29	4.62	16539.	25084.66	.32	50.50	94.76	R
2	.52	-.38	9.31	4.62	16209.	24583.33	.32	49.50	92.86	E
unresolved					1.	1.52	#####	.00	.01	
Total gross				(cts)		(cpa)				
				17454.		26472.4				

Figure 30 : Fonction "REPORT".

Les impulsions (CTS) correspondent au comptage moyen observé sur une position de mesure. Cette valeur n'a aucun intérêt pour notre étude puisqu'elle est moyennée sur des zones de radioactivité différente.

Aucune de ces deux valeurs ne renseigne, par conséquent sur la répartition de la radioactivité.

Isotope	Période (seconde)	Modes de désintégration avec leur énergie en MeV	Energie totale en MeV de la désintégration
²⁸ P	0,280	β^+ :11,8 ; γ :1,78;2,6;7,6	13,83
²⁹ P	0,440 E+1	β^+ :3,95.. ; γ :1,28;2,43	4,95
³⁰ P	0,156 E+3	β^+ :3,3.. ; γ :2,24	4,24
³¹ P		Elément stable	
³² P	0,124 E+7	β^- :1,71	1,71
³³ P	0,216 E+7	β^- :0,25	0,25
³⁴ P	0,124 E+2	β^- :5,1;3,025 ; γ :2,1;4,0	5,10

Tableau 3 : Isotopes du phosphore.

CHAPITRE C : PROTOCOLE EXPERIMENTAL

C-I-) LES RADIOELEMENTS UTILISES.

C-I-1-) Choix du radioélément approprié aux études de sol.

S'il existe un nombre certain de radioéléments émetteurs β^- , le choix d'un radioélément approprié aux études de sol est immédiatement limité par le comportement chimique de l'élément considéré en présence des constituants habituels du sol.

En effet, la cartographie effectuée avec le traceur linéaire sur un échantillon de sol après y avoir fait circuler une solution marquée n'a d'intérêt, pour la mise en évidence des chemins préférentiels d'écoulement que si le sel de la solution n'a pas diffusé dans le matériau, mais s'est fixé sur les parois des chemins de circulation à détecter.

Une étude réalisée en octobre 1985 [MAR 85] a montré que l'ion phosphate se trouve rapidement immobilisé dans les sols calcaires par suite du phénomène de précipitation du à la présence du calcium dans le sol.

Les sols du domaine de Saint-Paul (domaine INRA) que nous avons utilisés, étant d'origine alluviale contenant 30 à 40 % de calcium total, la pénétration de l'ion phosphate dans la porosité texturale à partir des macropores sera faible.

Le phosphore apparaît donc être l'élément chimique le plus approprié à notre étude.

Le phosphore dispose de huit isotopes dont sept sont radioactifs (tableau 3).[HAR 72]

L'isotope radioactif à retenir pour notre étude doit répondre au moins à deux critères :

- la période du radioélément doit être suffisamment longue pour permettre la préparation et l'analyse de l'échantillon ;

	³² P	³³ P
Période (jours)	14,3	25,3
Emission	β ⁻	β ⁻
Energie maximale (MeV)	1,71	0,25
% de l'émission	100	100
Parcours maximal (mg.cm ⁻²)	790,47	59,54
Source ponctuelle de 37 MBq		

Exposition externe (cGy.h ⁻¹):		
. à 1 cm	340	pas de risque à distance
. à 10 cm	3,15	
. à 100 cm	0,016	
Ecran de protection (mm):		
. verre	4	0,4
. plexiglas	8	0,8

Tableau 4 : Caractéristiques du ³²P et du ³³P.

	⁴⁵ Ca
Période (jours)	165
Emission	β ⁻
Energie maximale (MeV)	0,257
% de l'émission	100
Parcours maximal (mg.cm ⁻²)	62,10
Exposition externe	Pas de risque à distance
Ecran de protection (mm):	
. verre	0,4
. plexiglas	0,6

Tableau 5 : Caractéristiques du ⁴⁵Ca.

- l'énergie du rayonnement doit être suffisante pour éviter une totale absorption des β dans le sol.

Ces objectifs limitent les possibilités de choix aux seuls isotopes ^{32}P et ^{33}P dont les caractéristiques principales figurent dans le tableau 4. [INR 75]

La différence fondamentale entre les deux radioisotopes réside dans les niveaux énergétiques des transitions β^- qui conditionnent les interactions des particules émises avec la matière traversée.

Le phosphore 32 présente l'avantage d'avoir une émission β d'énergie élevée qui apparaît particulièrement adaptée pour les utilisations sur des échantillons de sol d'épaisseur non négligeable. Les préparations des échantillons nécessitent toutefois la mise en place de dispositifs de protection contre l'exposition externe (écran de plexiglas ou de verre) et interne (ventilation de la zone de travail).

Par contre, le phosphore 33 paraît beaucoup plus adapté pour la mise en évidence de phénomènes de surface d'épaisseur maximale inférieure à 2 mm; il ne nécessite aucune disposition de protection particulière exceptée une ventilation de la zone de préparation.

De plus, le constructeur recommande d'utiliser le ^{33}P au lieu du ^{32}P pour obtenir une meilleure résolution spatiale (cf. Chapitre B paragraphe B-I-2₂). [FIL 86]

Nous aurions aimé définir pour les deux radioisotopes, les limites de l'analyseur linéaire et les interactions entre les particules émises et le sol. Mais, nous n'avons pu nous procurer que des sources de ^{32}P ; le ^{33}P ne semble pas actuellement être commercialisé par les fournisseurs les plus connus tant en France qu'à l'étranger.

Nous avons essayé de tourner la difficulté de la non disponibilité du ^{33}P en utilisant d'autres radioéléments nous permettant de tester la réponse du détecteur pour des émissions β de faible énergie.

C-I-2-) Autres radioéléments utilisés.

Nous avons utilisé, en radioélément de substitution du ^{33}P le ^{45}Ca dont les caractéristiques apparaissent dans le tableau 5. [INRS 75]

La période de ce radioélément (165 jours) nous a conduit à en limiter la consommation afin de ne pas générer une quantité trop importante de déchets contaminés.

Enfin, pour des expériences particulières telles les mesures de reproductibilité en mode monodimensionnel, nous avons utilisé en plus du ^{32}P et du ^{45}Ca , les sources d'étalonnage de ^3H et de ^{14}C fournies avec le traceur linéaire.

C-II-) PREPARATION DES ECHANTILLONS.

C-II-1-) Préparation des échantillons radioactifs.

Les deux radioéléments commandés ont été livrés en solution liquide :

- d'acide phosphorique H_3PO_4 pour le ^{32}P ,
- de chlorure de calcium CaCl_2 pour le ^{45}Ca .

Pour l'objectif que nous nous sommes assignés, nous avons pu nous contenter d'utiliser des sources radioactives seules ou avec un écran intermédiaire constitué par des échantillons de sols ; ce qui n'a pas nécessité de faire circuler de solution radioactive dans le sol.

Pour cela, nous avons donc essayé d'obtenir à partir des solutions mères qui ont été diluées, des dépôts radioactifs reproductibles sur des supports circulaires de papier filtre ou de filtre micropore de diamètre variant de 4 à 8 cm en fonction de l'expérience à réaliser et de la nature du support.

Nous nous sommes particulièrement préoccupés des problèmes de capillarité éventuels et de la meilleure façon d'obtenir une mise en contact homogène de la solution radioactive avec le papier filtre.

Parmi les différentes techniques testées avec le ^{32}P , un dépôt relativement bien réparti sur le support a été obtenu par évaporation à l'étuve d'un précipité formé à partir d'un mélange de solution marquée et de solution de CaNO_3 .

Pour préparer des échantillons de ^{45}Ca , le même protocole a été utilisé mais sans entraîneur.

Après séchage, les supports marqués sont collés sur des papiers filtres de diamètre supérieur afin de permettre une manipulation des échantillons sans risque de contamination.

C-II-2-) Préparation des échantillons de sol.

Nous avons utilisé pour la mise en évidence des interactions des particules β avec la matière, trois types d'échantillon de sol :

a) **des sols secs constitués d'agrégats naturels.** Les agrégats sont calibrés par passage entre des tamis homologués de maillage différent. Nous avons retenu les diamètres d'agrégats suivants pour les expériences :

- * sol de Saint-Paul, 180-300 μm (densité 0,85).
- * sable, 180-300 μm (densité 1,44).
- * sol de Saint-Paul, 2-3 mm (densité 0,83).
- * argile (densité 0,49)..

b) **des sols constitués d'agrégats humides** de diamètre 3 à 5 mm ou de diamètre inférieur à 1 mm (sol de St-Paul). Pour obtenir des agrégats humides, des agrégats secs sont déposés en couche mince d'épaisseur homogène au fond d'une boîte. Un volume d'eau distillée est réparti au moyen d'une pipette sur la surface des agrégats recouverte de ouate de cellulose afin d'éviter l'écrasement des agrégats par l'eau. La boîte est hermétiquement fermée, conservée pendant 72 heures dans une salle climatisée et retournée toutes les 24 heures.

L'humidité pondérale de l'échantillon ainsi préparé est déterminée par la méthode gravimétrique (cf Chapitre A, paragraphe III-3-1) après dessiccation à 100° C à l'étuve pendant 24 heures.

En suivant ce protocole, nous avons préparé :

- * cinq échantillons de sol de Saint-Paul constitués d'agrégats de diamètre 3-5 mm présentant respectivement des humidités pondérales de 13,54 %, 17,63 %, 19,43 %, 22,49 % et 25,26 % ;
- * deux échantillons de sol de Saint-Paul constitués d'agrégats de diamètre inférieur à 1 mm présentant des humidités pondérales de 15,45 % et 21,63 %.

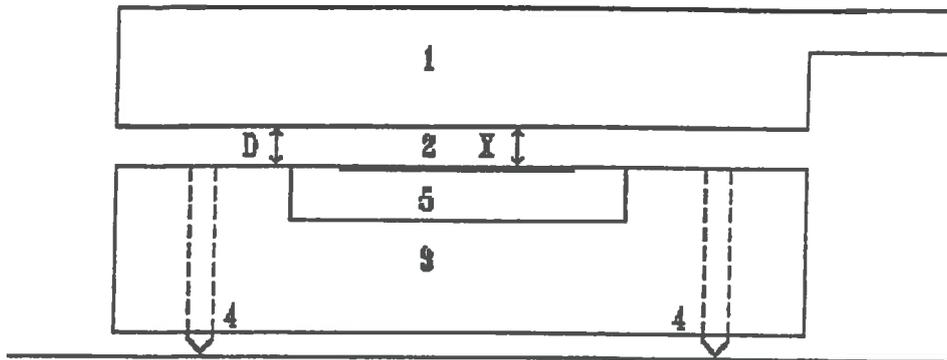


Figure 31 : Positionnement d'un échantillon sous le compteur, à la surface du support.

- 1 : Compteur
- 2 : Echantillon radioactif
- 3 : Support en plexiglas
- 4 : Vis de réglage de la hauteur du support
- 5 : Boite en plexiglas retournée

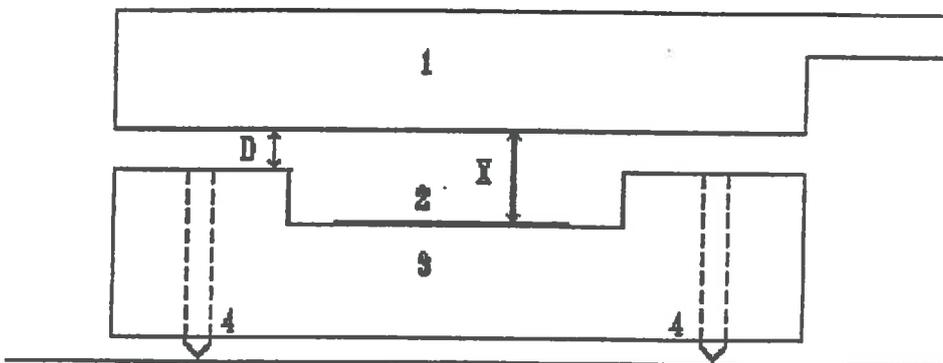


Figure 32 : Positionnement d'un échantillon sous le compteur, dans une coupelle introduite dans la cavité du support.

c) **de la boue** constituée à partir d'agrégats de diamètre quelconque auxquels de l'eau est ajoutée jusqu'à saturation. Le mélange est homogénéisé par passage à l'agitateur mécanique. L'échantillon de boue que nous avons préparé a présenté une humidité pondérale de 41,86 %.

C-III-) PRESENTATION DES ECHANTILLONS SOUS LE COMPTEUR.

Pour toutes les expériences que nous avons effectuées, l'échantillon à analyser a été déposé sur un support en plexiglas (longueur $L = 20$ cm, largeur $I = 13$ cm, hauteur $H = 2$ cm) disposant d'une cavité centrale de 8 cm de diamètre et de 1 cm de profondeur.

Trois vis de réglage permettent de surélever le support de 10 mm au maximum et de garder en permanence un parfait parallélisme entre le compteur et le support.

Pour la présentation d'un échantillon radioactif à la surface du support, l'échantillon a été placé sur le couvercle d'une boîte en plexiglas de même volume que la cavité du support et introduite dans celle-ci. (figure 31)

Pour des mesures avec des échantillons de sol, l'échantillon radioactif a été placé dans une coupelle de profondeur variable logée dans la cavité du support, la profondeur de la coupelle ne pouvant excéder 7,9 mm. (figure 32)

Par ailleurs, dans certains cas, une protection constituée d'un film plastique ou d'un mylar a été installée sur l'échantillon à analyser.

La présence d'une telle protection a trois fonctions :

- l'étude devant porter sur des échantillons de sol non remaniés humides, donc n'ayant subi aucun traitement tel que l'inclusion, il est nécessaire que lors de la mesure, le taux d'humidité reste constant. Le séchage peut provoquer en fonction de la matière, argile notamment, une fissure susceptible d'influencer le taux de comptage.
- les filaments du compteur proportionnel n'étant pas protégés par un diaphragme recouvert de mylar, un environnement trop humide lors du séchage du sol peut provoquer une altération de ces filaments.
- un dépôt radioactif de surface peut entraîner lors d'un contact entre l'échantillon et le diaphragme du compteur, une contamination du détecteur.

CHAPITRE D : QUALIFICATION DU TRACEUR LINEAIRE.

L'information délivrée par le traceur linéaire est le résultat d'un comptage d'un certain nombre d'impulsions proportionnel au nombre N de désintégrations de la source.

N est une variable aléatoire et seules les lois de la statistique permettent d'estimer la valeur de cette grandeur ou l'intervalle dans lequel elle est comprise.

Plusieurs types d'erreur peuvent apparaître :

- les erreurs accidentelles ou parasites ; par exemple, mauvaise manipulation ou dérèglement accidentel de l'appareil. Elles sont facilement repérables et conduisent souvent à des valeurs aberrantes.
- les erreurs systématiques entre la grandeur à mesurer et la valeur trouvée.
- les erreurs aléatoires provenant soit de la nature même de la variable (c'est le cas des désintégrations d'une source radioactive pouvant varier de façon imprévisible dans le temps), soit des résultats même de mesure d'une grandeur fixe lorsqu'ils dépendent de la méthode utilisée, de l'appareillage, de l'opérateur...

Les expériences que nous avons réalisées nous ont permis d'étudier la qualité de la réponse du détecteur (rendement de détection et gain notamment) et d'optimiser les paramètres de mesure en relation avec les types d'échantillon qui seront analysés (fente de comptage, pas de scrutation, positionnement et distance au compteur de l'échantillon).

Chaque fois que cela a été possible, nous nous sommes également intéressés à la reproductibilité des mesures.

D-I-) REPRODUCTIBILITE DE LA MESURE

D-I-1-) Généralités

La loi de distribution :

$$P(N) = \frac{N^{\bar{N}} \cdot e^{-\bar{N}}}{N!}$$

appelée loi de Poisson décrit d'une façon très générale toute distribution de comptages autour d'une valeur moyenne \bar{N} . Les propriétés de cette loi sont telles que l'écart-type est égal à la racine carrée de la moyenne arithmétique \bar{N} :

$$s = \sqrt{\bar{N}}$$

L'objectif de cette étude est de vérifier si la distribution des comptages obtenus avec le traceur linéaire suit la loi de Poisson et éventuellement de déterminer les sources possibles d'erreur.

D-I-2-) Mode opératoire

L'évaluation de la qualité de la réponse du détecteur a été effectuée:

- en mode monodimensionnel (cf.Chapitre B paragraphe B-III) sur des échantillons de ^{32}P et de ^{45}Ca ainsi que sur un échantillon inactif constitué d'un papier filtre ;
- en mode bidimensionnel (cf.Chapitre B paragraphe B-III) sur un échantillon de ^{32}P d'activité 0,8 kBq et sur deux échantillons de ^{45}Ca d'activité respective 3,5 kBq et 4,9 kBq.

Nous nous sommes plus particulièrement intéressés aux variations susceptibles d'apparaître liées :

- aux mouvements d'air sous le détecteur ; le traceur linéaire a été utilisé avec ou sans bâche plastique de protection ;
- aux réglages de débit de gaz de comptage ; des comptages ont été effectués avec des débits variables ;

Expérience	Elément	\bar{N} * (coups)	$\sqrt{\bar{N}}$	σN *	C.V % *
a) Mouvement d'air					

Compteur sans protection	Pap.filtre	19,9	4,5	5,0	24,8
avec bâche	"	19,8	4,4	4,7	23,8
Compteur sans protection	⁴⁵ Ca	1269	36	28	2,2
avec bâche	"	1243	35	30	2,4
Compteur sans protection	³² P	882	30	42	4,8
avec bâche	"	857	29	46	5,3
b) Variation de débit					

0,65 l/mn	⁴⁵ Ca	951	31	65	7,0
0,60 l/mn	"	938	31	55	6,0
0,55 l/mn	"	937	31	42	4,6
0,50 l/mn	"	919	30	25	2,7
b) Bouteille de gaz					

Avant changement	⁴⁵ Ca	865	29	21	2,5
Après changement	"	764	28	26	3,3
1,5 jour après	"	800	28	29	3,6

* voir Annexe n°1 pour la définition des paramètres statistiques.

Tableau 6 : Reproductibilité des mesures en mode monodimensionnel.

- à la bouteille de gaz de comptage elle-même ; des comptages ont été effectués au cours des opérations de changement de bouteille.

a) mode opératoire en monodimensionnel.

Trente comptages de trente secondes pour les échantillons radioactifs et d'une minute pour l'échantillon inactif ont été réalisés dans les différentes configurations du compteur.

L'expérience de variation de débit de gaz pour laquelle nous avons retenu des débits variant de 0,5 l/mn à 0,65 l/mn a été réalisée uniquement sur l'échantillon de ^{45}Ca .

Il en a été de même pour l'expérience entreprise lors du changement de bouteille de gaz où trente comptages ont été effectués avant le changement, trente immédiatement après et trente, un jour et demi après.

Dans tous les cas, la fente de détection a été de 2 mm de large et la distance au compteur de 2 mm

b) mode opératoire en bidimensionnel.

Pour l'échantillon de ^{45}Ca d'activité 4,9 kBq, le traceur linéaire ne disposant d'aucune protection, quarante-huit comptages de quinze minutes, étalés sur quatre jours ont été effectués avec une fente de 2 mm de large, un pas de scrutation de 2 mm et une distance au compteur fixée à 2 mm.

Un changement de bouteille de gaz a été nécessaire le deuxième jour en milieu de journée.

Pour l'échantillon de ^{45}Ca d'activité 3,5 kBq, trente comptages de quinze minutes ont été réalisés, le compteur étant recouvert d'une bâche de protection.

Pour l'échantillon de ^{32}P , trente comptages de trente minutes ont été étalés sur neuf jours, le compteur étant protégé par la bâche.

D-I-3-) Présentation des résultats.

a) En mode monodimensionnel.

Le tableau 6 présentant l'ensemble des résultats, fait ressortir :

Fréquence des comptages

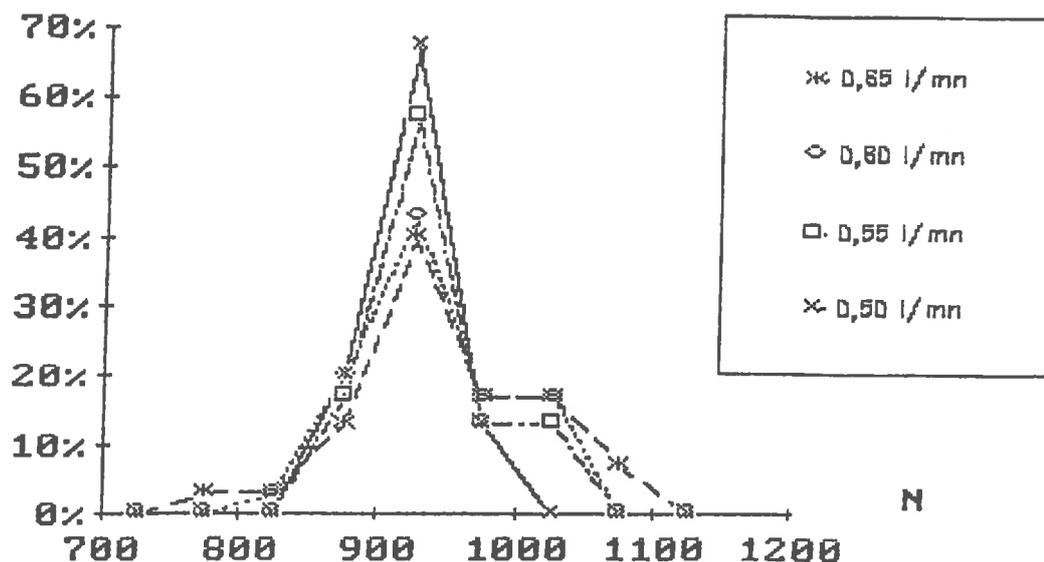


Figure 33 : ^{45}Ca ; Distribution des comptages en fonction du débit de gaz.

Expérience	** n	— * CPM	* σn	* C.V.%	\bar{N} CPM x T	σN	$\sqrt{\bar{N}}$
a) Bouteille de gaz							

^{45}Ca 4,9 kBq	48	54619	4768	8,73	819285	71520	905
Avant changement	17	60585	1680	2,77	908775	25200	953
Après changement	31	51347	1882	3,67	770205	28230	878
1ier jour après	14	53031	1308	2,47	795465	19160	892
3ième jour après	17	49960	763	1,53	749400	11445	866
b) Mouvement d'air							

Compteur avec bâche							
^{45}Ca 3,5 kBq	30	45661	1347	2,95	684915	20205	828
^{32}P 0,8 kBq	30	22658	2094	9,24	673740	62820	824

* voir Annexe n°1 pour la définition des paramètres statistiques.

** n : nombre de comptages réalisés.

Tableau 7 : Reproductibilité des mesures en mode bidimensionnel.

- que la distribution des comptages effectués avec le papier filtre suit effectivement la loi de Poisson, étant donné que l'écart-type peut être considéré du même ordre de grandeur que la racine carrée de la moyenne arithmétique. Nous pouvons estimer qu'il en est de même pour l'échantillon de ^{45}Ca . Avec le ^{32}P , l'écart-type constaté sur le nombre fini de mesures est nettement supérieur à la racine carrée de la moyenne arithmétique. Une explication possible de cet artefact est que la source radioactive utilisée n'est absolument pas une source ponctuelle ; des diffusions multiples peuvent venir à certains moments augmenter le taux de comptage.

- que la présence sur le traceur linéaire d'une bâche de protection se traduit dans tous les cas par une diminution du comptage moyen. Mais, le coefficient de variation augmente sensiblement (de 8 à 10 %) pour les échantillons radioactifs alors qu'il diminue d'environ 4 % avec l'échantillon inactif. De ce fait, aucune conclusion ne peut être énoncée concernant l'importance des mouvements d'air sur la réponse du détecteur.

- que la stabilité de la mesure est fortement influencée par le réglage du débit de gaz s'échappant du compteur (figure 33).

La distribution des comptages ne suit la loi de Poisson que lorsque le débit de gaz correspond à 0,5 l/mn, débit préconisé par le constructeur.

- que le changement de la bouteille de gaz argon-méthane provoque des perturbations dans les mesures. Ces perturbations ne peuvent pas être liées uniquement aux très légères variations de débit provoquées par les opérations de démontage et de remontage du manomètre détendeur. La qualité du gaz semble jouer un rôle important. Toutefois, quelques jours après le changement de bouteille, le taux de comptage paraît revenir à sa valeur antérieure.

b) En mode bidimensionnel.

Les valeurs de l'analyse descriptive des mesures obtenues avec les deux échantillons de ^{45}Ca et avec l'échantillon de ^{32}P sont regroupées dans le tableau 7.

- La répartition des comptages pour les trois échantillons ne suit absolument pas la loi de Poisson.

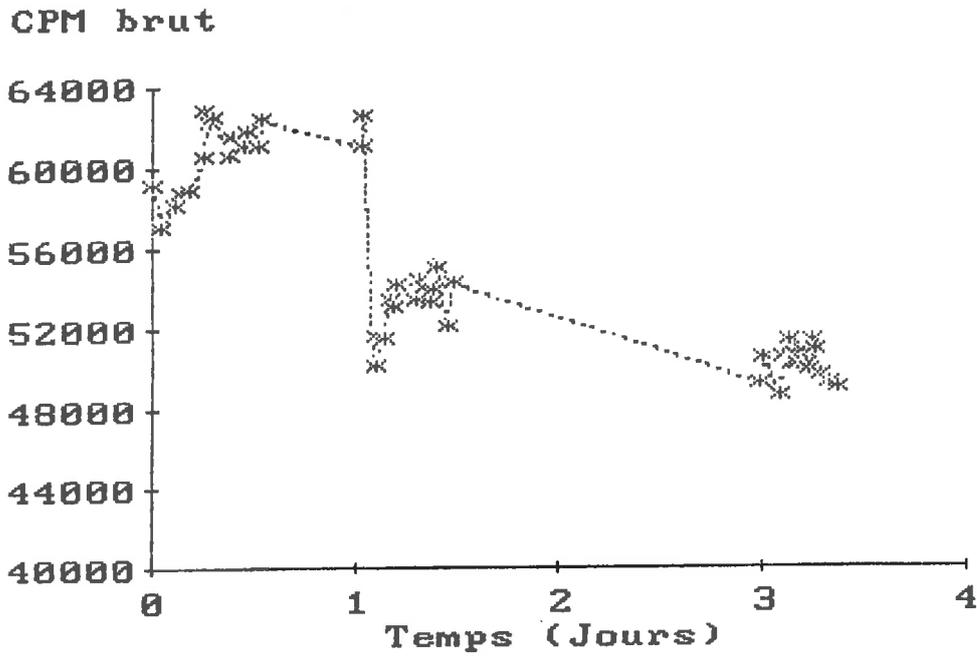


Figure 34 : ^{45}Ca (4,9 kBq) ; Evolution des comptages dans le temps.

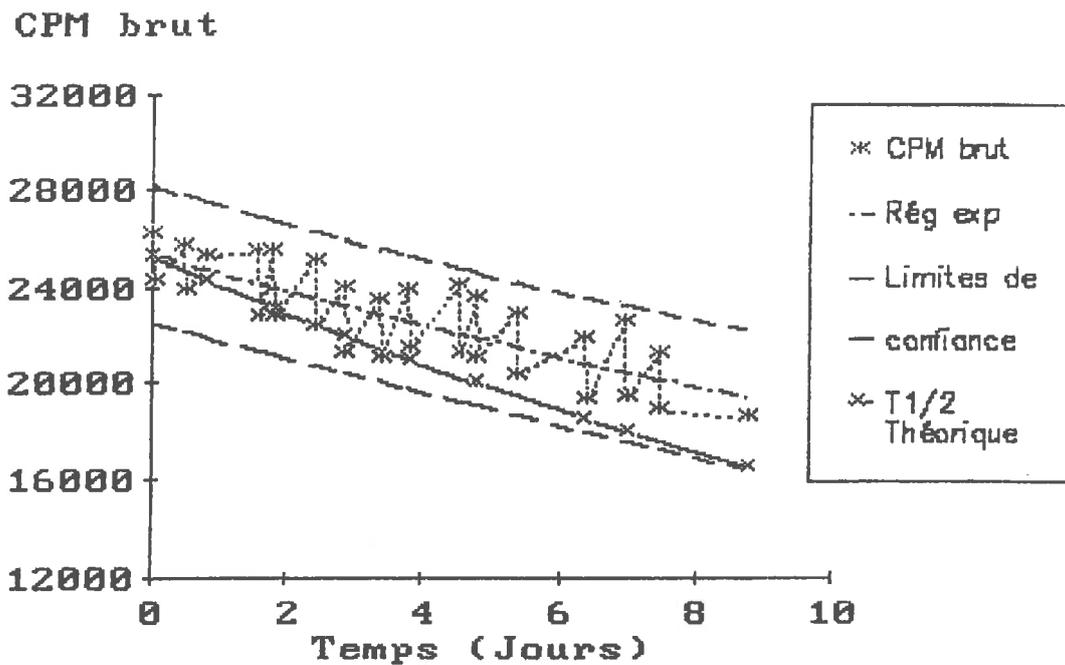


Figure 35 : ^{32}P (0,8 kBq) ; Evolution des comptages dans le temps.

- Pour l'échantillon de ^{45}Ca d'activité 4,9 kBq, l'évolution dans le temps du taux de comptage (figure 34) fait apparaître une perturbation très importante des mesures liée au changement de bouteille de gaz avec une diminution du taux de comptage de l'ordre de 18 %. Comme en mode monodimensionnel, nous avons procédé à un certain nombre de vérifications (contrôle des manomètres...) et nous n'avons pas pu trouver de raisons techniques pouvant expliquer cette perturbation. Peut-être s'agit-il d'une hétérogénéité du mélange d'argon-méthane, d'un problème de détente ou d'impuretés de ce mélange gazeux ? Nous ne pouvons certifier aucun de ces points mais nous avons tenu compte de cette perturbation.
- D'autre part, la chute du taux de comptage (de l'ordre de 6 %) observée entre le deuxième et le quatrième jour ne peut absolument pas être associée à la décroissance radioactive de l'échantillon étant donné que cette décroissance n'entraînerait au maximum qu'une perte de 0,85 % du taux de comptage. Nous n'avons pas pu définir l'origine de cette diminution du taux de comptage.
- Les vérifications que nous avons opérées sur les mouvements d'air sous le compteur, compteur protégé d'une bâche plastique, avec le deuxième échantillon de ^{45}Ca n'ont amené aucun enseignement. Les résultats sont tout à fait en accord du point de vue coefficient de variation avec ceux obtenus en mode monodimensionnel. L'importance de la protection du compteur contre les mouvements d'air reste à démontrer.
- Les fluctuations des taux de comptage et surtout l'importance de la période de ^{45}Ca devant la durée des expériences ne nous ont pas permis de déterminer expérimentalement la période de décroissance des deux échantillons de ^{45}Ca que nous avons utilisés.
- Les comptages effectués avec l'échantillon de ^{32}P montrent que l'évolution des taux de comptage est en dent de scie (figure 35) ; lorsque deux comptages sont effectués à la suite, le deuxième présente toujours un taux de comptage inférieur au premier. Ce phénomène est parfaitement reproductible. Il pourrait laisser supposer qu'avec le ^{32}P , une mise à l'équilibre du système de détection s'effectue dans la première demi-heure de mise sous tension du compteur. En appliquant aux comptages la régression exponentielle $\text{CPM} = A \cdot e^{(B.t)}$, les coefficients suivants au niveau de confiance de $\alpha = 5\%$ [annexe n° 2] ont été obtenus :

- * ordonnée à l'origine A : 25348 CPM
- * intervalle de confiance de A : 0,041 CPM
- * coefficient de régression B : - 0,0308 jour⁻¹
- * intervalle de confiance de B : 0,0091 jour⁻¹

Ces résultats conduisent à une période expérimentale de :

$$T_{1/2 \text{ Exp}} = \frac{\ln 2}{- B} = 22,47 \text{ jours}$$

Cette période calculée, supérieure à la période théorique du ³²P (14,3±0,02 jours) [COU 84] ne peut être acceptée.

L'incertitude sur la pente B est très importante et est à relier à la dispersion des points de mesure. Nous pouvons noter, par conséquent que la période de décroissance théorique s'inscrit entre les intervalles de confiance des valeurs estimées individuelles [annexe n° 2] au niveau de probabilité de 95 %.

En conclusion partielle, nous retiendrons, pour toutes les expériences à effectuer :

- que les perturbations provoquées par le changement de bouteille de gaz argon-méthane nécessitent de n'effectuer aucune mesure pendant la première semaine suivant le changement surtout si l'on veut comparer la mesure à d'autres comptages.
- que l'incidence des mouvements d'air sous le détecteur sur les comptages reste à démontrer mais elle n'est vraisemblablement pas négligeable ; aussi, la mise en place de la protection constituée de la bâche plastique sera maintenue, ne serait-ce que pour limiter les dépôts de poussières sur le détecteur.
- que, lorsque cela sera nécessaire, les corrections de décroissance afin de ramener divers comptages à la même date seront effectuées pour les échantillons de ³²P et pour les échantillons de ⁴⁵Ca avec leur période théorique respective.
- qu'une mesure de bruit de fond (papier filtre ou échantillon de sol) sera obligatoirement effectuée à chaque fois que l'expérience nécessitera l'obtention de valeur nette, ceci afin de tenir compte de la longueur de déplacement du détecteur sur l'échantillon actif.

D-II-) DETERMINATION DU GAIN.

D-II-1-) Généralités.

Pour l'ensemble des détecteurs nucléaires, le gain est défini comme le rapport entre la tension de sortie V_s et la tension d'entrée V_e de l'amplificateur :

$$G = \frac{V_s}{V_e}$$

Le gain est indépendant, dans un certain domaine, de la très haute tension de fonctionnement du détecteur. Mais, comme l'intensité du signal provenant du détecteur est fonction de la haute tension, le signal final sera à relier à la hauteur du signal d'entrée de l'amplificateur et au gain.

Sur le traceur linéaire Berthold, le réglage du gain est étroitement lié aux caractéristiques de fonctionnement du détecteur définies par le constructeur de l'appareil.

L'appareil ne permet la sélection que de quatre positions de gain variant de 1 et 4, présentant des spécificités propres que nous n'avons pas pu examiner.

Ces positions de gain ne semblent pas correspondre à des échelles de gain réels.

Il est donc important de déterminer pour chaque radioélément le gain optimum de comptage qui correspondra pour un temps de mesure donné au taux de comptage le plus important.

D-II-2-) Mode opératoire.

En mode monodimensionnel, l'étude a porté sur un échantillon radioactif de ^{32}P , un de ^{45}Ca , sur les sources d'étalonnage du traceur (^3H et ^{14}C) ainsi que sur un papier filtre.

Pour chaque gain, en utilisant une fente de comptage de 2 mm de large, trente comptages de 30 secondes pour les radioéléments et de 1 minute pour le papier filtre ont été réalisés, la distance au compteur étant fixée à 2 mm.

Echantillon	Gain	Moyenne CPM	Ecart-type $\sigma-1$	C.V.%
Papier filtre	1	21,6	6,1	28,24
	2	15,0	3,1	20,67
	3	8,2	3,2	39,02
	4	18,7	4,0	21,39
³ H	1	528	35	6,63
	2	712	43	6,04
	3	552	39	7,07
	4	868	46	5,30
¹⁴ C	1	745	37	4,97
	2	620	30	4,84
	3	366	29	7,92
	4	835	27	3,23
⁴⁵ Ca	1	2083	108	5,18
	2	1757	102	5,81
	3	1090	76	6,97
	4	2364	180	7,61
³² P	1	2359	132	5,60
	2	1770	126	7,12
	3	1013	93	9,18
	4	2318	153	6,60

Tableau 8 : Gain en mode monodimensionnel.

Nature	Gain	CPM
Papier filtre	1	1125
	2	812
	3	470
	4	1067
Echant. Sol	1	868
	2	646
	3	342
	4	747
Echant. ⁴⁵ Ca	1	20187
	2	19693
	3	12652
	4	26472
Echant. ³² P	1	32534
	2	17547
	3	8361
	4	21892

Tableau 9 : Gain en mode bidimensionnel.

En mode bidimensionnel, des comptages de 1 heure pour chaque gain ont été réalisés sur des échantillons de ^{32}P d'activité 1,4 kBq et de ^{45}Ca d'activité 3,0 kBq, mais aussi sur un échantillon de sol de profondeur 7,9 mm constitué à partir d'agrégats naturels de diamètre 180-300 μm , et sur un papier filtre.

Une analyse d'image a également été effectuée sur ces comptages.

La fente du compteur et la distance de l'échantillon ont été identiques au mode monodimensionnel.

D-II-3-) Présentation des résultats.

L'ensemble des résultats est présenté dans les tableaux 8 et 9.

a) Mode monodimensionnel.

Pour le papier filtre définissant le bruit de fond de l'appareil, le taux de comptage le plus élevé est observé avec le gain 1 mais ce gain présente toutefois un coefficient de variation assez important.

Pour le ^3H , le ^{14}C et le ^{45}Ca , le gain 4 donne le taux le plus important.

Les coefficients de variation sont également les plus faibles avec ce gain sauf pour le ^{45}Ca où le gain 1 permet d'avoir la meilleure stabilité de comptage.

Pour le ^{32}P , les gain 1 et 4 donnent sensiblement les mêmes résultats. Toutefois le gain 1 présente le coefficient de variation le moins élevé observé.

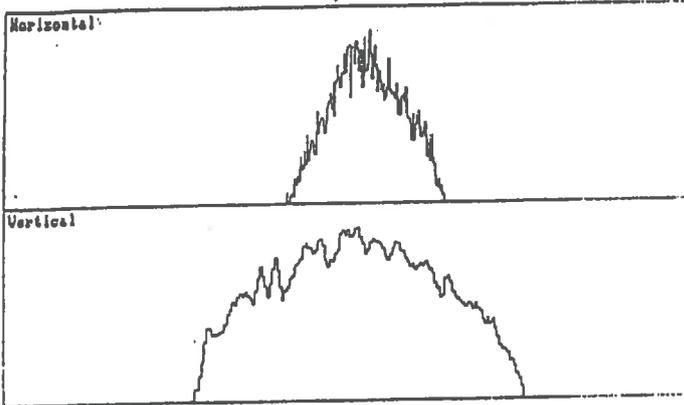
b) Mode bidimensionnel.

Les comptages effectués sur les échantillons radioactifs confirment les résultats des mesures en mode fixe pour le ^{45}Ca mais font clairement apparaître la différence existante entre les gains 1 et 4 pour le ^{32}P .

Les comptages réalisés sur l'échantillon de sol ou sur le papier filtre montrent que la sélection d'un gain affecte les signaux de faible énergie provenant d'un bruit de fond.

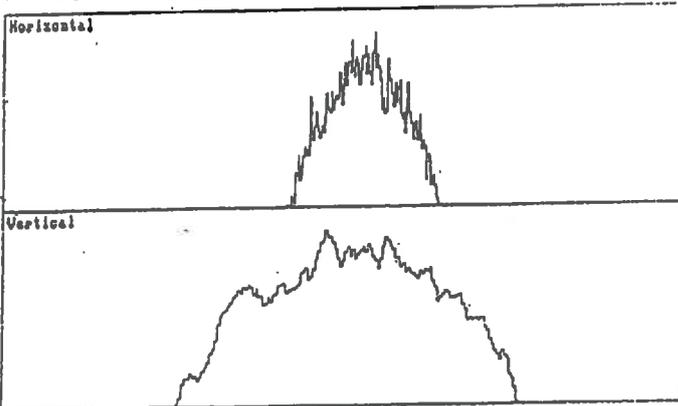
L'analyse qualitative des images des comptages fait apparaître pour la même source radioactive, l'existence d'une relation entre gain et représentation spatiale du comptage.

Press any key to continue, H=Hardcopy



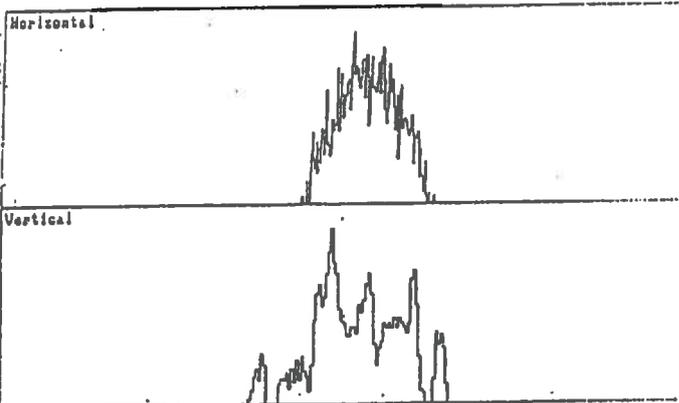
Gain 1

Press any key to continue, H=Hardcopy



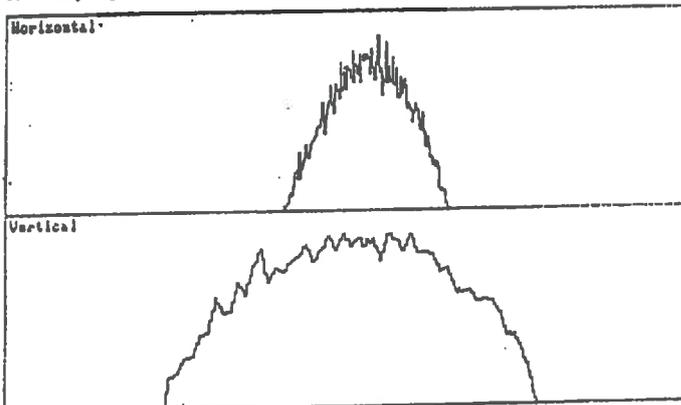
Gain 2

Press any key to continue, H=Hardcopy



Gain 3

Press any key to continue, H=Hardcopy



Gain 4

Figure 36 : ^{45}Ca ; Représentation du comptage pour des gains différents.

La représentation la plus fine selon l'axe des Y correspond au gain donnant le taux de comptage le plus bas. Mais, dans ce cas, l'image ne fait apparaître que des zones de fixation maximale de radioactivité et ceci pour une même source radioactive.

Une image plus correcte est obtenue avec les autres gains comme le prouve la figure 36.

Contrairement à ce que l'on rencontre couramment, la variation du taux de comptage en fonction du gain n'a rien d'une relation linéaire.

La numérotation des gains de 1 à 4 est tout à fait arbitraire.

Les comptages effectués montrent sauf pour le ^3H , un minimum pour le gain 3.

Par conséquent, nous retiendrons pour l'ensemble des expériences suivantes :

- le gain 1 pour le ^{32}P*
- le gain 4 pour le ^{45}Ca .*
- le gain 1 ou 4 pour les échantillons inactifs.*

D-III-) PRECISION DE LA MESURE.

D-III-1-) Généralités.

La distribution des taux de comptage autour d'une valeur moyenne \bar{X} est décrite par une loi de probabilité nommée loi de Poisson. (cf chapitre D paragraphe D-I)

Cette valeur moyenne, appelée également valeur la plus probable de la mesure ne peut être connue que si un grand nombre de comptages est effectué.

Il est toutefois possible de réaliser un seul comptage X qui sera entaché d'une incertitude ΔX en raison des fluctuations régies par la loi de probabilité tel que :

$$X - \Delta X \leq \bar{X} \leq X + \Delta X$$

Le choix de ΔX est arbitraire et l'habitude a été prise de lier sa valeur à un multiple de \sqrt{X} .

ΔX	\sqrt{X}	$\sqrt{(2 \cdot X)}$	$2 \sqrt{X}$
Probabilité	0,68	0,85	0,95

Plus ΔX est grand, plus la probabilité d'encadrer \bar{X} est élevée, par contre la précision statistique (ou erreur statistique relative) varie en sens inverse. Elle est définie par le rapport :

$$P_s = \frac{\Delta X}{X}$$

Pour notre étude, l'incertitude ΔX a été choisie égale à $2\sqrt{X}$, ce qui correspond à une probabilité de 95 % d'obtenir la valeur moyenne réelle.

D-III-2-) Mode opératoire.

La détermination de la précision statistique de mesure en fonction du temps de comptage a été effectuée en mode bidimensionnel pour :

- un échantillon radioactif de ^{32}P , d'activité 0,8 kBq ;
- un échantillon radioactif de ^{45}Ca , d'activité 4,8 kBq ;
- un échantillon de sol d'épaisseur 7,9 mm, constitué d'agrégats naturels de diamètre 180-300 μm
- un papier filtre inactif définissant le bruit de fond de l'appareil.

Les longueurs de déplacement du détecteur ont été :

- de 4,5 cm pour l'échantillon de ^{32}P
- de 6,0 cm pour l'échantillon de ^{45}Ca et le papier filtre
- de 9,0 cm pour l'échantillon de sol

Temps (mn)	³² P		⁴⁵ Ca		Sol		Papier filtre	
	CPM	PS %	CPM	PS %	CPM	PS %	CPM	PS %
15	29202	0,30	43082	0,25	1238	1,47	579	2,15
30	28823	0,22	41429	0,18	1310	1,01	541	1,57
60	26218	0,16	42300	0,13	1246	0,73	588	1,07
120	26599	0,11	39976	0,09	1256	0,52	576	0,76
180	25128	0,09	41709	0,07			585	0,62
300	26151	0,07	39023	0,06				
480	26019	0,06	41277	0,05				
—								
CPM	26877		41257		1263		574	
σ n	1416		1269		29		17	
CV %	5,27		3,08		2,30		2,96	

Tableau 10 : Précision statistique.

Le pas de scrutation du compteur a été dans tous les cas de 2 mm et les temps de comptage totaux que nous avons retenus ont été compris entre 15 mn et 480 mn au maximum.

La précision statistique a été calculée sur le nombre total d'impulsions (PS% CPM) :

$$\text{PS\% CPM} = \frac{2}{(\text{CPM} \times \text{T})^{1/2}} \cdot 100$$

avec T : temps de comptage total (en minutes).

D-III-3-) Présentation des résultats.

L'analyse des résultats obtenus et présentés dans le tableau 10 montre que :

- Les coefficients de variation observés sont pour le ^{45}Ca , l'échantillon de sol et le papier filtre relativement limités.

Par contre, pour le ^{32}P la valeur élevée de ce coefficient pose problème ; plusieurs explications peuvent être avancées :

- * instabilité de la mesure à la mise sous tension du compteur nécessitant une mise à l'équilibre du système de détection.
- * importance des ionisations produites par les particules β^- émises par ce radioélément.

Une autre source de fluctuation aurait pu être constituée par les pertes de comptage liées à la décroissance pendant les comptages de longue durée. Ces pertes n'ont qu'une influence limitée puisque pour un comptage de 8 heures elles ne dépasseraient pas 2 %.

- Un temps de comptage global de 15 minutes permet de maintenir la précision statistique sur le nombre total d'impulsions en dessous de 2,5 %, même pour un échantillon ne présentant aucune radioactivité ajoutée.

Afin que la durée d'acquisition des informations reste un des avantages du traceur linéaire, nous retiendrons pour l'ensemble des expériences, des temps de comptage globaux compris entre 15

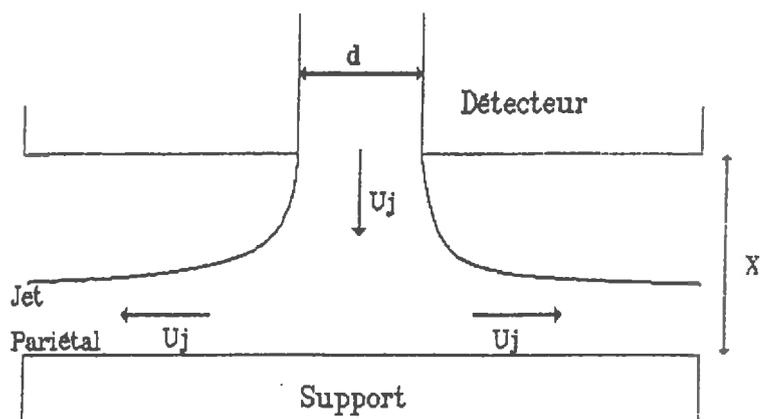


Figure 37 : Schéma-type de l'écoulement du gaz s'échappant du compteur.

Elément	Masse volumique g.l-1	Viscosité cinématique centistokes
Air	1,29	14,2
Argon	1,78	12,4
Méthane	0,74	15,2

Tableau 11 : Masse volumique et viscosité pour différents éléments.

et 60 mn en notant que les échantillons ne nécessiteront pas des déplacements du compteur supérieurs à 10 cm.

D-IV-) DISTANCE ENTRE LE COMPTEUR ET L'ECHANTILLON.

D-IV-1-) Généralités.

Compte-tenu de la forme et de la nature des échantillons de sol qui devront être analysés, ainsi que des modifications apportées sur l'appareil par le constructeur, nous avons étudié l'influence de la position de l'échantillon radioactif par rapport au compteur, sur le taux de comptage ainsi que sur la cartographie associée.

Cette étude a également eu pour objectif d'évaluer l'impact des écoulements de gaz s'échappant du compteur sur les taux de comptage.

En effet, du point de vue de la mécanique des fluides [BEG 80], le détecteur à circulation de gaz, sans protection, peut être schématisé par un jet d'argon majoritaire (mélange argon-méthane 90%-10%) sortant d'une fente de largeur d et de longueur L s'épanouissant sur une plaque située à une distance X de l'orifice, perpendiculairement au débit. (figure 37)

Pour un fonctionnement typique avec un débit de $0,5 \text{ l.mn}^{-1}$, une longueur de diaphragme de 25 cm et une fente de 2 mm, la vitesse d'écoulement U_j est $1,67 \text{ cm.sec}^{-1}$, soit un nombre de Reynolds Re , défini comme étant le rapport des forces d'inertie sur les forces visqueuses égal à :

$$Re = \frac{U_j d}{\nu} = 2,70$$

avec ν : viscosité cinématique = 12,4 centistokes pour l'argon

Compte-tenu du nombre de Reynolds obtenu en sortie de la fente, l'écoulement évolue en régime laminaire qui devient rapidement instable.

La masse volumique du mélange étant légèrement plus élevée que celle de l'air (tableau 11), la gravité a une certaine importance depuis la sortie du détecteur jusqu'à l'interaction avec la plaque

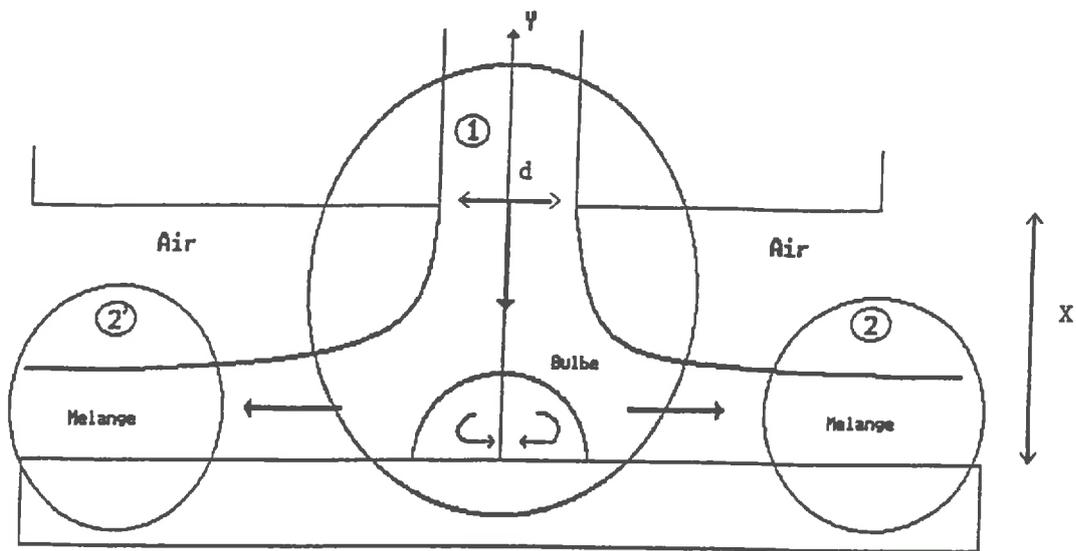


Figure 38 : Schéma de l'écoulement dans un plan médian.

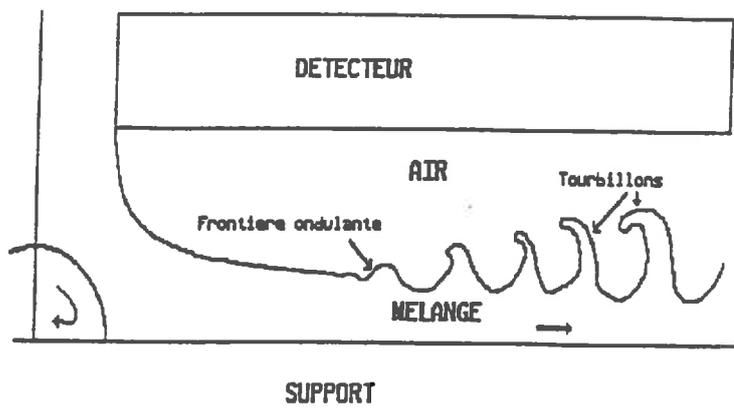


Figure 39 : Phénomène "Vortex Pairing" de l'écoulement.

du support, étant donné que le nombre de Froude N_{fr} , défini comme étant le rapport des forces d'inertie sur les forces de gravité est très inférieur à 1 :

$$N_{fr} = \frac{\rho_{Ar} \cdot U_j^2}{(\rho_{Ar} - \rho_{Air})(h \cdot g)} = \frac{1,78 \cdot (1,67 \cdot 10^{-2})^2}{(1,78 - 1,29)(9,81 \cdot 10^{-3})} = 0,052$$

Ensuite, dès que les forces de gravité sont perpendiculaires aux forces d'inertie, l'influence de la gravité devient négligeable.

Dans un plan médian, l'écoulement peut être considéré bidimensionnel de type "couche mince" (figure 38).

Pour $X = d$, l'écoulement dans les parties 2 et 2' peut être estimé à pression constante et de type "jet pariétal confiné" du fait de l'interaction entre les deux plaques.

Pour $X > d$, le jet pariétal évoluera librement.

Lorsque le jet percute le support de comptage, il crée une zone décollée appelée également bulbe ou eaux mortes, constituée de deux tourbillons contrarotatifs.

La frontière entre l'écoulement et l'air immobile présente vite une instabilité (ou une ondulation) qui déferle assez rapidement comme des vagues sur la mer. Cette frontière, située entre les deux plaques est aussi le siège d'une allée de tourbillons corotatifs, qui se couplent deux à deux (phénomène de "vortex pairing") augmentant d'autant l'interpénétration des deux couches : air et argon. (figure 39)

Un tel écoulement est sensible au changement des conditions géométriques du support de comptage et des conditions extérieures à l'ensemble de comptage (mouvement d'air notamment).

Le détecteur et le support doivent être bien parallèles afin que la symétrie et la stabilité de l'écoulement persistent. La pression du gaz doit être contrôlée et une protection de l'appareil est recommandée (mise sous cloche).

D-IV-2-) Mode opératoire.

La variation de la distance X entre le compteur et l'échantillon a été réalisée :

In CPM net

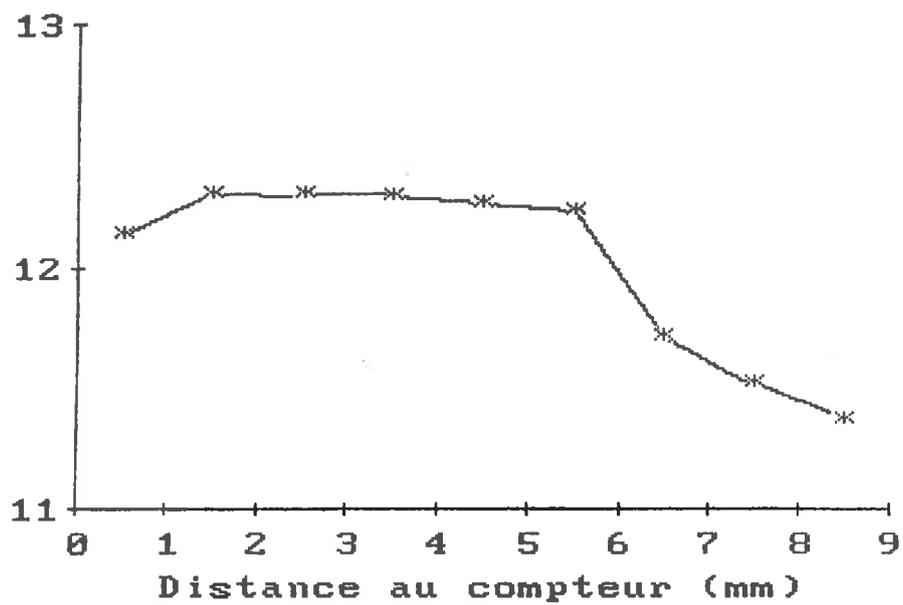


Figure 40 : ^{45}Ca (21,4 kBq) ; Distance au compteur du support.

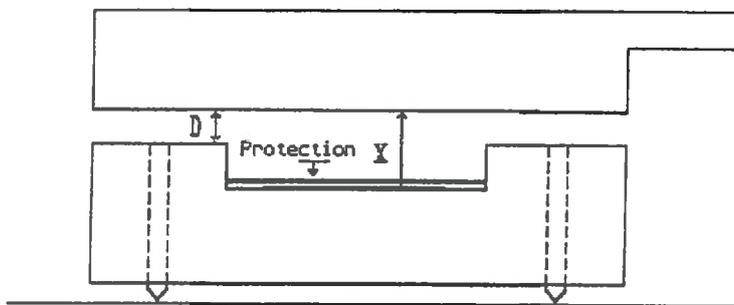


Figure 41 : Présentation d'une protection sur l'échantillon même.

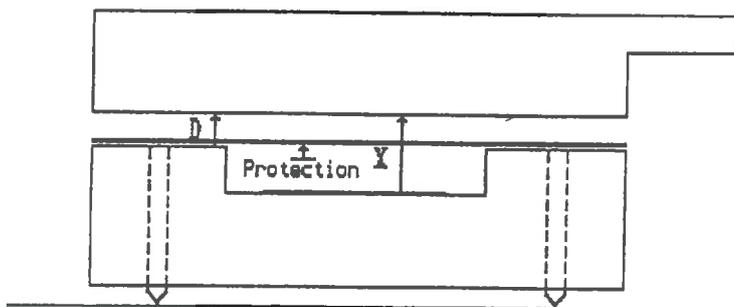


Figure 42 : Présentation d'une protection sur le support.

- par déplacement du support recevant en surface l'échantillon radioactif ;
- par déplacement de l'échantillon positionné dans la cavité du support ; le support reste à une distance fixe du compteur (2 mm) et le déplacement de l'échantillon est possible par utilisation de coupelles de profondeur différente.

Pour ces deux configurations, la distance au compteur n'a jamais été supérieure à 10 mm.

Mais, compte-tenu de la réponse du détecteur obtenue avec certains des échantillons (figure 40) que nous avons utilisés, la variation de la distance X entre l'échantillon et le détecteur a été comprise entre 1,5 mm et 8 mm.

En effet, avec des échantillons de sol, il sera très difficile de définir une distance inférieure à 1,5 mm entre le support et l'échantillon.

Dans la configuration support mobile - échantillon fixe, plusieurs échantillons radioactifs d'activité différente ont été utilisés :

- pour le ^{32}P : 0,5 kBq, 2,7 kBq, 4,3 kBq;
- pour le ^{45}Ca : 0,1 kBq, 1,3 kBq, 12 kBq, 21,4 kBq.

Dans la configuration support fixe - échantillon mobile, l'étude a porté uniquement sur l'échantillon de ^{32}P d'activité 4,3 kBq et sur l'échantillon de ^{45}Ca d'activité 21,4 kBq.

Dans certains cas, une protection constituée d'un film plastique ou d'un mylar a été installée soit directement sur l'échantillon (figure 41), soit en appliquant la protection sur le support (figure 42).

Les relations $\ln \text{CPM} = f(X)$ obtenues pour les différentes activités des deux radioéléments nous ont conduit à appliquer aux résultats la régression (annexe n° 2) $\ln \text{CPM} = A + (B.X)$.

L'analyse des images des comptages a été effectuée dans toutes les configurations que nous serions susceptibles de rencontrer en scrutant des échantillons de sol :

- support mobile avec échantillon en surface,
- support mobile avec film plastique,
- support fixe, échantillon mobile,
- support fixe avec film plastique.

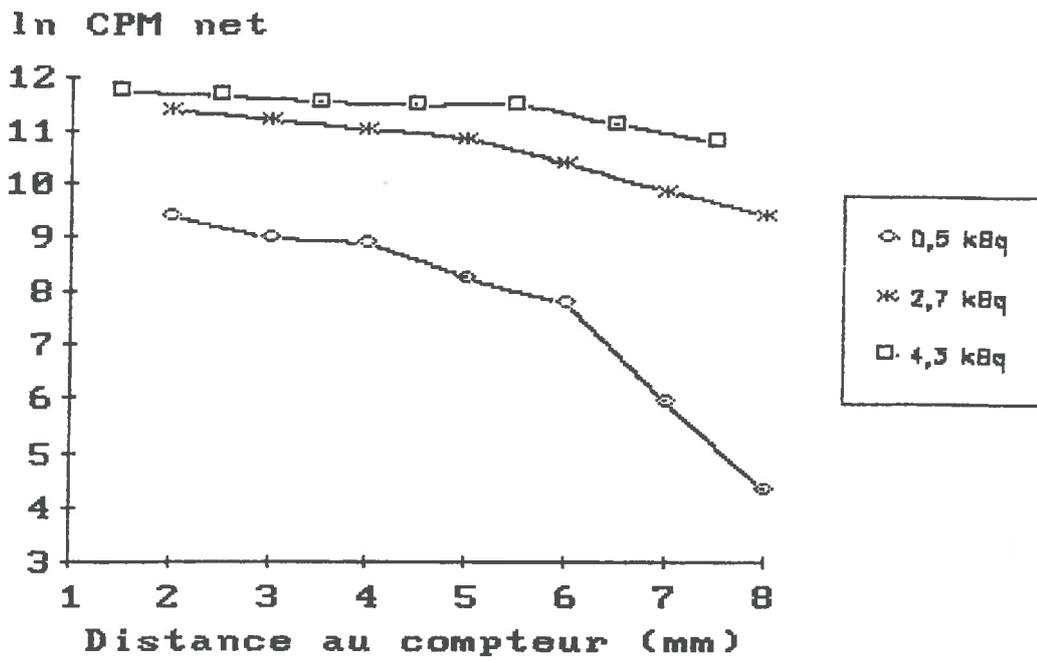


Figure 43 : ^{32}P ; Distance au compteur du support mobile.

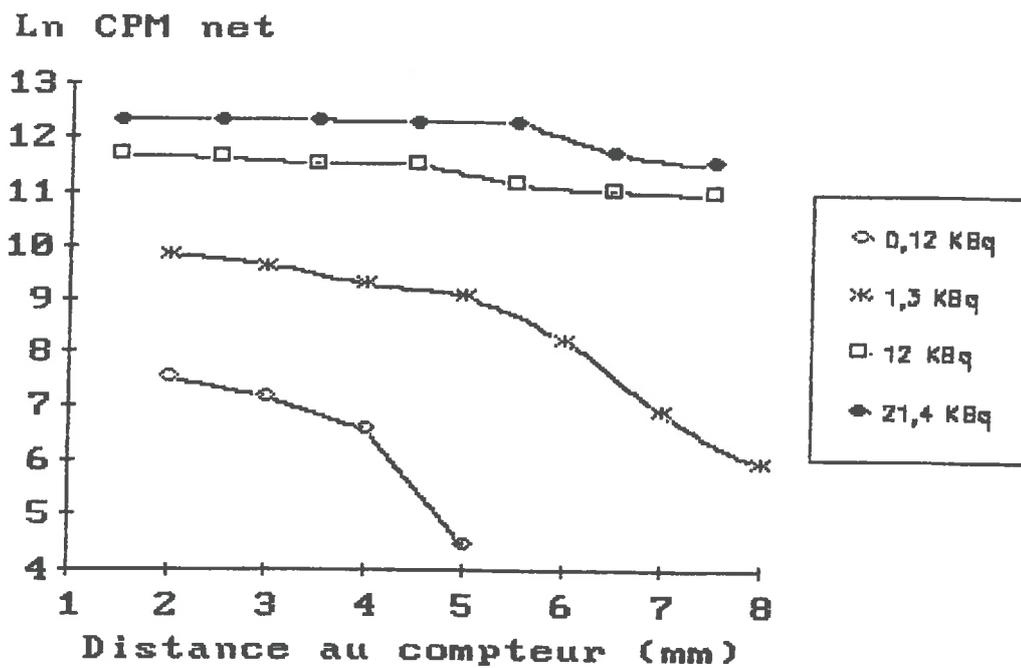


Figure 44 : ^{45}Ca ; Distance au compteur du support mobile.

Cette analyse basée sur l'estimation du rapport de la surface S de l'image apparaissant sur l'écran de l'ordinateur sur la surface réelle S_0 de l'échantillon a été réalisée à ce moment là, uniquement sur les comptages obtenues avec l'échantillon de ^{32}P d'activité 4,3 kBq ($S_0 = 14,2 \text{ cm}^2$) et l'échantillon de ^{45}Ca d'activité 21,4 kBq ($S_0 = 22,1 \text{ cm}^2$).

La détermination de la surface S de l'image obtenue du comptage peut être effectuée de deux façons :

- en imprimant sur papier l'image du comptage à l'échelle 1:1 ; une mesure directe de la surface active est alors possible,
- en se plaçant dans le programme informatique en mode évaluation et en appliquant à chaque image, le traitement par ellipse en essayant de faire coïncider le plus possible l'ellipse à la surface de l'image observée. Dans ce dernier cas, la surface S obtenue par calcul est accompagnée du pourcentage du taux de comptage contenu dans l'ellipse sélectionnée.

D-IV-3-) Présentation des résultats.

D-IV-3.1) Analyse quantitative

a) Configuration support mobile sans protection.

Lorsqu'aucune protection n'est disposée sur l'échantillon, les évolutions des taux de comptage en fonction de la distance au compteur apparaissent sur les figures 43 et 44.

Le tableau 12 présenté page suivante regroupe les valeurs des différents coefficients de la régression que nous avons appliquée aux résultats des comptages. Les ordonnées à l'origine et les coefficients de régression (à l'exception du coefficient pour la plus faible activité de ^{45}Ca) sont dans tous les cas significatifs au niveau de confiance $\alpha = 5\%$

Toutefois, les coefficients de régression paraissent être influencés par l'activité de l'échantillon étant donné que pour les deux radioéléments, le coefficient de régression diminue, en valeur absolue, au fur et à mesure que l'activité augmente.

Nous pouvons noter que les courbes d'évolution des taux de comptage présentent dans certains cas, une inflexion à une distance du compteur voisine de 5 mm. Pour chaque activité

disposant d'un nombre suffisant de positions de mesure, nous avons alors considéré deux zones d'évaluation ; la première comprise entre 1,5 et 5 mm, la seconde au-delà de 5 mm. La régression appliquée à chaque secteur conduit à obtenir les coefficients du tableau 13.

Activité	Secteur mm	Ordonnée à l'origine A	Coefficient de régression B	Coef. de corrélation r
³² P				
0,5 kBq	2 à 8	11,605 ± 1,983	- 0,796 ± 0,368	- 0,9277
2,7 kBq	2 à 8	12,204 ± 0,494	- 0,329 ± 0,092	- 0,9718
4,3 kBq	1,5 à 7,5	12,002 ± 0,327	- 0,141 ± 0,066	- 0,9253
⁴⁵ Ca				
0,1 kBq	2 à 5	9,810 ± 4,630	- 0,973 ± 1,260*	- 0,9201
1,3 kBq	2 à 8	11,618 ± 1,316	- 0,648 ± 0,244	- 0,9501
12 kBq	1,5 à 7,5	11,935 ± 0,214	- 0,136 ± 0,043	- 0,9635
21,4 kBq	1,5 à 7,5	12,665 ± 0,472	- 0,128 ± 0,096	- 0,8387

Tableau 12 : Distance au compteur du support ; Régression : $\ln \text{CPM net} = A + (B.X)$
* Coefficient non significatif $\alpha = 5 \%$

Activité	Secteur mm	Ordonnée à l'origine A	Coefficient de régression B	Coef. de corrélation r
³² P				
0,5 kBq	2 à 5	10,040 ± 1,060	- 0,341 ± 0,289	- 0,9633
	5 à 8	16,420 ± 1,961	- 1,737 ± 0,324	- 0,9991
2,7 kBq	2 à 5	11,695 ± 0,057	- 0,174 ± 0,016	- 0,9996
	5 à 8	12,750 ± 0,593	- 0,483 ± 0,098	- 0,9989
4,3 kBq	1,5 à 5,5	11,792 ± 0,144	- 0,071 ± 0,038	- 0,9599
	5,5 à 7,5	13,312 ± 0,080	- 0,340 ± 0,012	- 1,0000
⁴⁵ Ca				
1,3 kBq	2 à 5	10,358 ± 0,340	- 0,269 ± 0,092	- 0,9937
	5 à 8	14,399 ± 1,941	- 1,061 ± 0,294	- 0,9959
12 kBq	1,5 à 4,5	11,751 ± 0,163	- 0,064 ± 0,051	- 0,9678
	4,5 à 7,5	12,203 ± 1,283	- 0,180 ± 0,210*	- 0,9333
21,4 kBq	1,5 à 5,5	12,336 ± 0,046	- 0,017 ± 0,012	- 0,9288
	5,5 à 7,5	14,161 ± 13,328	- 0,360 ± 1,206*	- 0,9670

Tableau 13 : Distance au compteur du support ; Régression par secteur.
* Coefficient non significatif $\alpha = 5 \%$

In CPM net

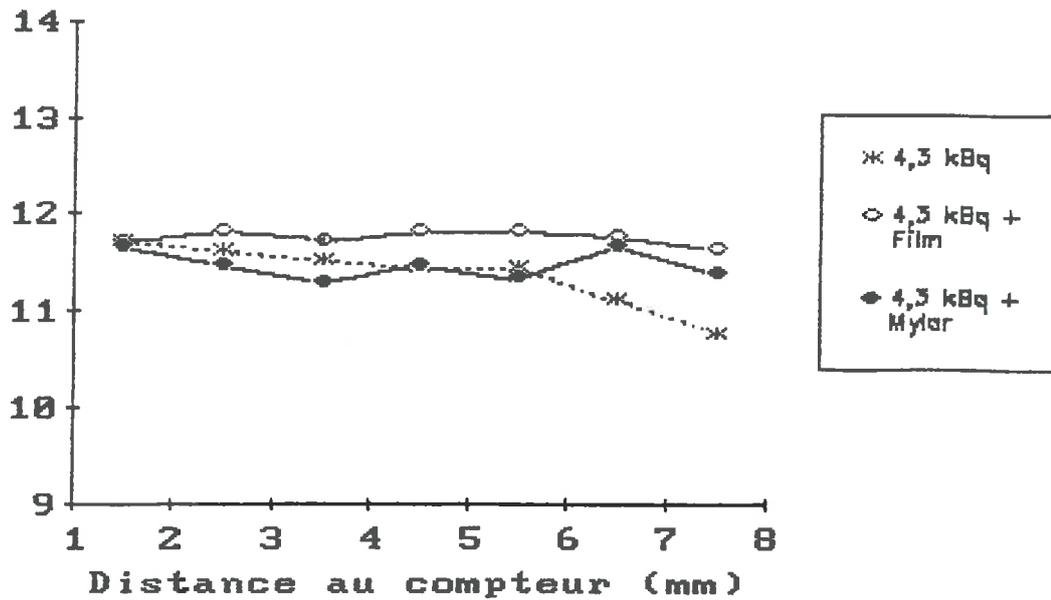


Figure 45 : ^{32}P ; Distance au compteur du support mobile avec protection.

In CPM net

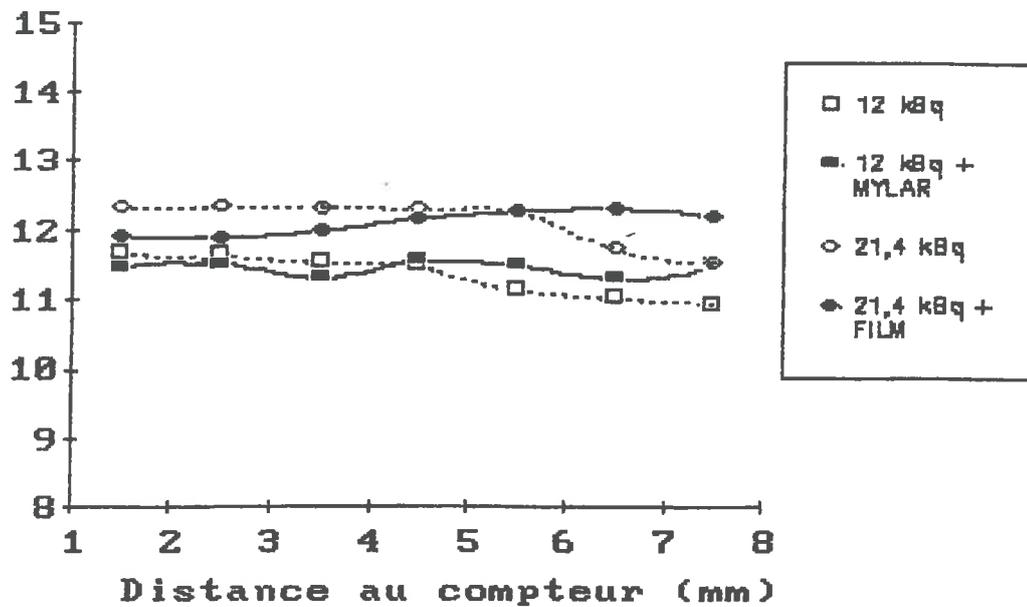


Figure 46 : ^{45}Ca ; Distance au compteur du support mobile avec protection.

Les divers coefficients sont significatifs au seuil de confiance de 5 % à l'exception toutefois des coefficients de régression relevés pour le ^{45}Ca sur l'échantillon d'activité 12 kBq et sur celui d'activité 21,4 kBq.

Nous pouvons également remarquer que les coefficients de corrélation sont nettement améliorés par rapport à ceux observés sur l'ensemble du domaine de variation des distances.

Grâce au test d'égalité des coefficients de régression des deux secteurs d'une même activité effectué conformément à l'annexe 2, au niveau de probabilité de 95 %, la comparaison des t (observé et théorique) conduit à valider l'existence d'un point d'inflexion sauf pour l'activité de 12 kBq de l'échantillon de ^{45}Ca (tableau 14).

Activité	t observé *	t théorique $\alpha = 5 \%$
^{32}P		
0,5 kBq	6,193	2,776
2,7 kBq	28,567	2,776
4,3 kBq	10,604	2,776
^{45}Ca		
1,3 kBq	11,043	2,776
12 kBq	2,310	2,776
21,4 kBq	6,520	2,776

Tableau 14 : Résultats du test d'égalité des coefficients de régression. * Définition du t observé en annexe 2

Il ne semble donc pas exister une loi exponentielle unique d'atténuation caractéristique d'un milieu gazeux. Cela nous conduit à envisager que le mélange de gaz s'échappant par la fente du détecteur à une portée limitée aux cinq premiers millimètres en sortie du compteur.

a) Configuration support mobile avec protection.

La présence sur l'échantillon radioactif d'une protection conduit à des résultats tout à fait différents (figures 45, 46 et tableau 15) de ceux que nous avons observés lorsque l'échantillon était nu.

ln CPM net

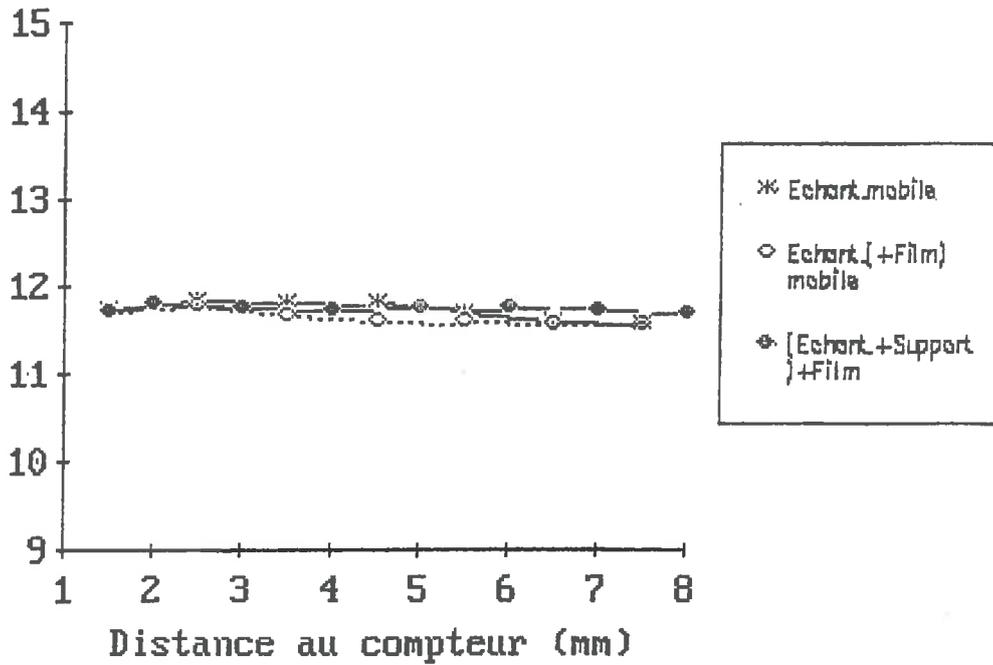


Figure 47 : ^{32}P (4,3 kBq) ; Distance au compteur de l'échantillon mobile.

ln CPM net

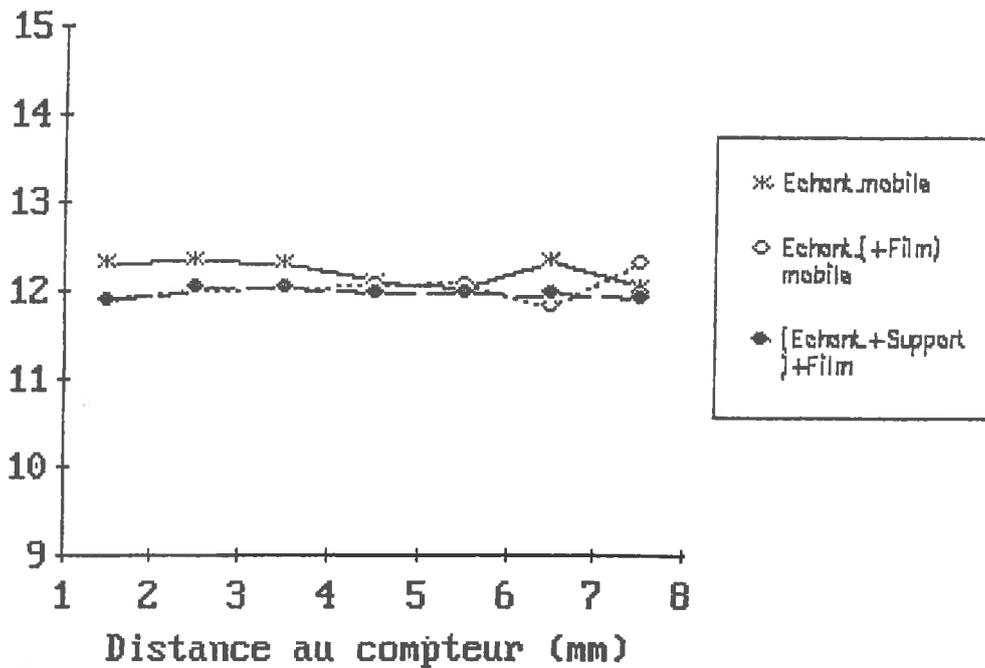


Figure 48 : ^{45}Ca (21,4 kBq) ; Distance au compteur de l'échantillon mobile.

Activité	Secteur mm	Ordonnée à l'origine A	Coefficient de régression B	Coef. de corrélation r
³² P + Mylar + Film	1,5 à 7,5	11,516 ± 0,390	- 0,012 ± 0,079*	- 0,1785
	1,5 à 7,5	11,780 ± 0,017	- 0,007 ± 0,013*	- 0,2193
⁴⁵ Ca 12 kBq +Mylar 21,4 kBq +Film	1,5 à 7,5	11,422 ± 0,270	- 0,0001 ± 0,055*	- 0,0024
	1,5 à 7,5	11,761 ± 0,204	+ 0,071 ± 0,041	+ 0,8904

Tableau 15 : Distance au compteur du support protégé ; Régression : $\ln \text{CPM net} = A + (B.X)$
* Coefficient non significatif $\alpha = 5 \%$

Etant donné que le taux de comptage reste constant ou croît légèrement lorsque l'échantillon couvert s'éloigne du détecteur, nous ne pouvons plus considérer qu'une relation exponentielle d'atténuation existe. Une des explications possibles de cette évolution pourrait être que les particules β produisent dans la protection de l'échantillon des ionisations qui viennent augmenter le taux de comptage et compenser les pertes de comptage liées à l'éloignement de l'échantillon.

c) Configuration support fixe - échantillon mobile.

Les coefficients de la régression appliquée aux résultats des taux de comptage apparaissent dans le tableau 16 ; les évolutions des taux de comptage sur les figures 47 et 48.

Activité	Secteur mm	Ordonnée à l'origine A	Coefficient de régression B	Coef. de corrélation r
³² P Echant. nu Ech. + Film Supp. + Film	1,5 à 7,5	11,873 ± 0,167	- 0,038 ± 0,034	- 0,7905
	1,5 à 7,5	11,790 ± 0,098	- 0,038 ± 0,020	- 0,9124
	1,5 à 7,5	11,761 ± 0,055	- 0,004 ± 0,010*	- 0,6683
⁴⁵ Ca Echant. nu Ech. + Film Supp. + Film	1,5 à 7,5	12,375 ± 0,298	- 0,038 ± 0,059*	- 0,5853
	1,5 à 7,5	11,889 ± 0,357	- 0,031 ± 0,072*	+ 0,4414
	1,5 à 7,5	11,988 ± 0,136	- 0,005 ± 0,028*	- 0,1852

Tableau 16 : Distance au compteur de l'échantillon Régression : $\ln \text{CPM net} = A + (B.X)$
* Coefficient non significatif $\alpha = 5 \%$

Avec le ^{32}P , l'évolution des comptages conduit à considérer qu'il existe une loi exponentielle d'atténuation avec une pente toutefois très faible sauf lorsque le support est recouvert d'une protection.

Nous pouvons également remarquer que, lorsque l'échantillon est directement couvert, la pente est tout à fait identique à celle obtenue avec l'échantillon mobile non couvert .

Par contre avec le ^{45}Ca , aucune loi d'atténuation ne peut être mise en évidence ; quelle que soit la configuration, les taux de comptage apparaissent statistiquement constants en fonction de l'éloignement de l'échantillon du compteur.

Pour expliquer les résultats obtenus, notamment le fait que lorsque l'échantillon radioactif se déplace dans la cavité du support, les coefficients de régression sont très faibles voire statistiquement nuls, trois hypothèses peuvent être émises:

- la présence de la cavité dans le support modifie la géométrie de mesure, la surface de comptage sous le détecteur n'étant plus plane ;
- ayant une densité supérieure à celle de l'air (1 pour l'air, 1,38 pour l'argon), le mélange de gaz argon-méthane s'échappant du compteur proportionnel peut s'introduire dans la cavité du support jusqu'au contact de l'échantillon radioactif. Chassant l'air, il peut entraîner une augmentation du nombre des ionisations ;
- les particules β n'ayant pas une trajectoire rectiligne entre leur émission et leur absorption totale, il est probable qu'un certain nombre de particules émises soit diffusé par les parois de la cavité du support et vienne ainsi engendrer des ionisations secondaires modifiant les taux de comptage.

Les expériences que nous avons effectuées confirment l'importance de la circulation de gaz s'échappant du compteur bien qu'il a été très difficile de connaître parfaitement la mécanique des fluides du système. Nous avons finalement retenu en distance optimale de l'échantillon par rapport au compteur la distance de 2 mm.

Distance (mm)	S/S0 Support mobile		S/S0 Echantillon mobile	
	support nu	avec film	support nu	avec film
³² P				
0	1	1	1	1
1,5	1,77	1,67	1,77	1,67
2			1,80	1,86
2,5	1,79 (85,0)*	1,85 (88,0)		
3			1,77	1,75
3,5	1,66 (82,5)	1,71 (87,8)		
4			1,81	1,80
4,5	1,67 (75,0)	1,70 (84,7)		
5			1,66	1,70
5,5	1,75 (71,8)	1,74 (78,4)		
6			1,72	1,76
6,5	1,82 (70,5)	1,73 (71,9)		
7			1,83	1,82
7,5	1,83 (68,8)	1,80 (69,2)		
⁴⁵ Ca				
0	1	1	1	1
1,5	1,62 (97,6)*	1,58 (97,1)	1,62 (97,6)	1,58 (97,1)
2,5	1,53 (97,5)	1,54 (97,1)	1,55 (96,3)	1,60 (97,2)
3,5	1,43 (96,7)	1,54 (96,2)	1,55 (95,7)	1,55 (96,8)
4,5	1,49 (92,7)	1,54 (93,2)	1,60 (93,3)	1,55 (95,0)
5,5	1,45 (90,3)	1,60 (93,8)	1,59 (91,9)	1,62 (94,0)
6,5	1,44 (89,0)	1,49 (92,8)	1,55 (92,6)	1,59 (93,2)
7,5	1,53 (86,5)	1,46 (89,0)	1,54 (90,3)	1,62 (93,5)

Tableau 17 : Estimation des augmentations de surface.

* La détermination de S a été effectuée par calcul de la surface de l'ellipse et la valeur entre parenthèse est le pourcentage du taux de comptage contenu dans l'ellipse.

D-IV-3₂) Analyse qualitative.

L'estimation de S est tout à fait subjective. Les prises de cote permettant de faire coïncider l'ellipse et la tache de radioactivité sont laissées à l'appréciation de la personne effectuant l'analyse. Une variation même minime dans la détermination des axes X et Y de l'ellipse ou du diamètre de l'image imprimée peut entraîner une augmentation de la surface S non négligeable.

Ainsi, si les axes de l'ellipse sont surévalués de 2 mm, l'augmentation de surface α résultante sera :

$$\alpha \% = \frac{(20 \cdot X) + (20 \cdot Y) + 4}{X \cdot Y}$$

tirée de l'égalité :

$$\frac{\pi \cdot X \cdot Y}{4} \cdot (1 + \alpha) = \frac{\pi \cdot (X + 0,2) \cdot (Y + 0,2)}{4}$$

Pour des dimensions initiales $X = Y = 5$ cm, α sera égal à environ 8 %.

D'autre part, cette analyse d'image est effectuée sur des comptages étalés dans le temps. Une correction de décroissance a été réalisée sur les taux de comptage afin de pouvoir les comparer entre eux ; mais, nous n'avons pas pu quantifier les variations de surface liées à la décroissance.

Les valeurs obtenues du rapport S/S_0 sont par conséquent données dans le tableau 17 avec de nombreuses réserves. L'évolution du rapport S/S_0 ne permet pas de définir une relation entre S/S_0 et la distance au compteur. Pour une distance optimale au compteur fixée à 2 mm, les augmentations de surface sont dans tous les cas supérieures à 50 % et dépendent étroitement du radioélément utilisé. En effet, avec l'échantillon de ^{32}P , en faisant coïncider le plus possible l'ellipse à la tache de radioactivité, la surface ainsi déterminée renferme environ 13 % de particules incidentes comptabilisées de moins qu'avec l'échantillon de ^{45}Ca , à paramètres d'évaluation identiques. Ce point confirme l'importance des diffusions des β^- du ^{32}P .

D'autre part, à partir d'une distance au compteur de 5 mm, l'image du comptage est de plus en plus difficile à cerner ; la valeur de la surface S est alors entachée d'une certaine incertitude, ce que traduisent les pourcentages des taux de comptage contenus dans les ellipses.

Pour les expériences à venir sur des échantillons de sol, les augmentations de surface constatées sur l'image du comptage par rapport à la taille réelle et connue d'un échantillon radioactif, ne permettent pas d'envisager la détermination des dimensions d'une zone quelconque de fixation de radioactivité par la seule analyse qualitative offerte par le traceur linéaire. Par conséquent, si l'appareil semble pouvoir fournir, pour des échantillons de sols, des informations quantitatives sur des taches de fixation de radioactivité, leur localisation et leur dimensionnement paraissent plus difficiles.

D-V-) FENTE DE COMPTAGE ET PAS DE SCRUTATION.

D-V-1-) Généralités.

Le traceur linéaire a été livré avec trois diaphragmes se différenciant par la largeur de la fente de comptage. L'utilisateur a le choix en fonction des objectifs à atteindre pour une expérience donnée, entre une fente de 2 mm, 4 mm ou 15 mm de large. En mode balayage, il faut ensuite pour chaque échantillon à analyser définir la longueur du déplacement du détecteur ΔY et la dimension du pas de scrutation dy .

Par conséquent, le détecteur peut effectuer un balayage de la surface à analyser selon trois possibilités :

- par recoupement ou superposition partielle des positions de mesure si le pas de scrutation est plus petit que la fente de comptage ;
- par juxtaposition des positions de mesure si le pas de scrutation est égal à la fente de comptage ;
- par dissociation des positions de mesure si le pas de scrutation est plus grand que la fente de comptage.

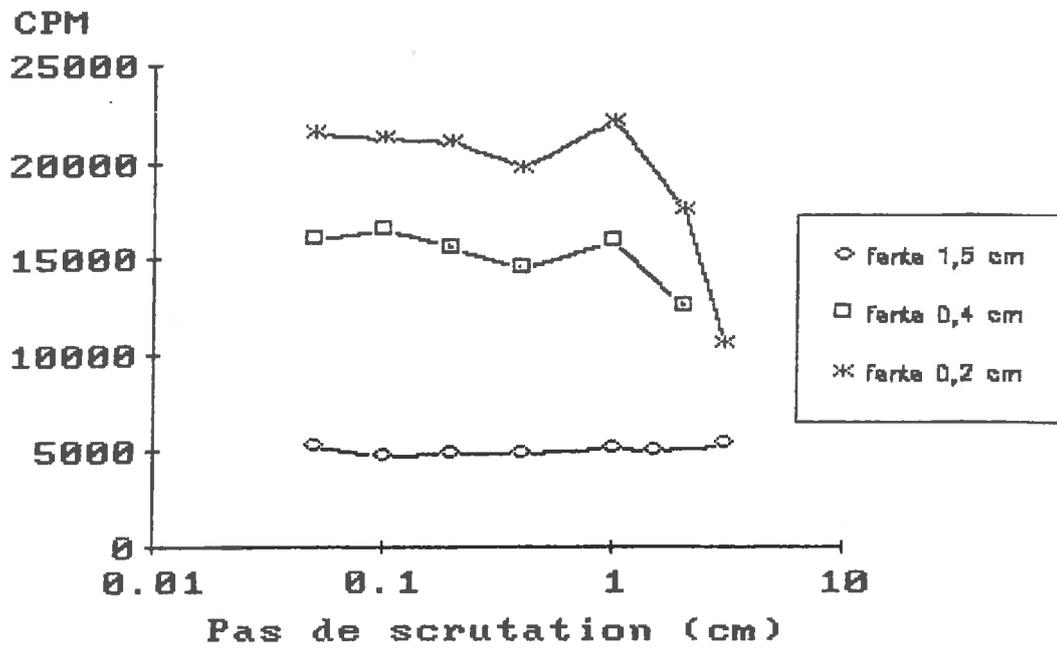


Figure 49 : ^{32}P (1 kBq) ; Variation CPM en fonction du pas, pour une fente donnée.

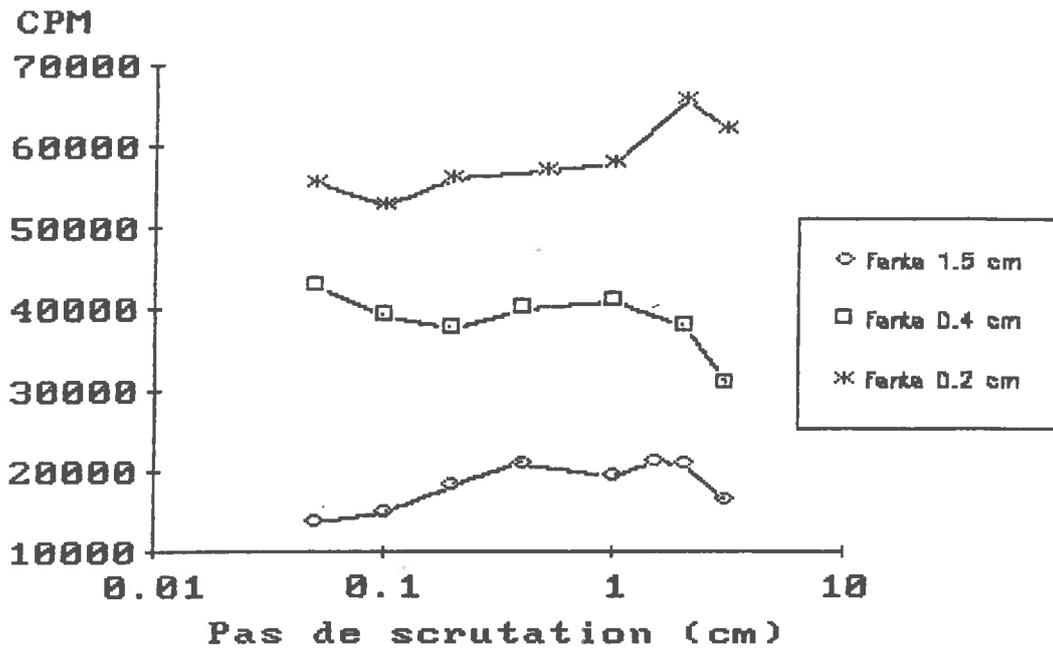


Figure 50 : ^{45}Ca (6,1 kBq) ; Variation CPM en fonction du pas, pour une fente donnée.

La relation qui existe entre le taux de comptage (CPM) et la dimension du pas de scrutation (dy), donnée au chapitre B paragraphe B-III-2₂, est indépendante de la largeur de la fente du diaphragme

Le but de cette expérience a été d'étudier pour une fente de comptage donnée, l'évolution des taux de comptage ou des images obtenues en fonction de pas de scrutation croissant.

D-V-2-) Mode opératoire.

L'étude a porté sur un échantillon de ³²P d'activité 1 kBq et un de ⁴⁵Ca d'activité 6,1 kBq. L'échantillon de ³²P a nécessité un déplacement du détecteur de 5 cm pour un temps de comptage total de 30 minutes, l'échantillon de ⁴⁵Ca un déplacement de 6 cm pour un temps de 15 minutes. Nous avons sélectionné les pas de scrutation suivants : 0,05 cm, 0,1 cm, 0,2 cm, 0,4 cm, 1 cm, 1,5 cm, 2 cm et 3 cm.

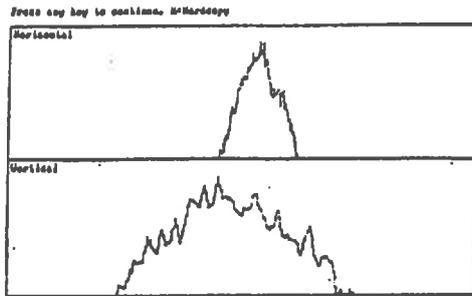
D-V-3-) Présentation des résultats.

Les variations des taux de comptage en fonction du pas de scrutation sont données dans les figures 49 et 50. Nous pouvons observer que l'augmentation de la largeur de la fente du détecteur conduit, pour un pas de scrutation donné, à une diminution du taux de comptage alors qu'il aurait été logique d'observer l'inverse. La seule explication possible que nous pouvons envisager est que le détecteur, à cause de son temps mort, ne peut enregistrer qu'un maximum de coups sans perte de comptage importante. Le temps mort, défini comme l'intervalle de temps entre le moment où une impulsion de comptage est déclenchée et celui où l'impulsion suivante peut apparaître, est étroitement associé sur le traceur linéaire Berthold, à l'analyseur d'amplitude de 1024 canaux. Le temps maximal de parcours d'un événement le long de la ligne de retard étant de 500 nanosecondes, le temps mort d'un canal est au plus de :

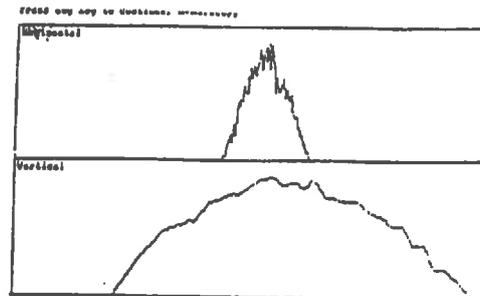
$$\frac{500}{1024} = 0,49 \text{ ns}$$

Radioélément	Fente (cm)	Coefficient de variation (%)
^{32}P	0,2	0,20
	0,4	0,09
	1,5	0,04
^{45}Ca	0,2	0,07
	0,4	0,09
	1,5	0,15

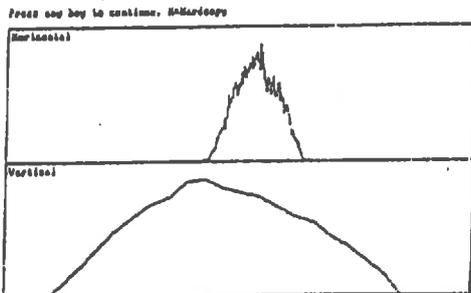
Tableau 18 : Coefficients de variation pour une fente donnée.



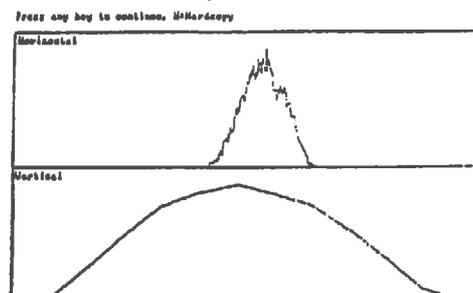
* Pas de 0,05 cm



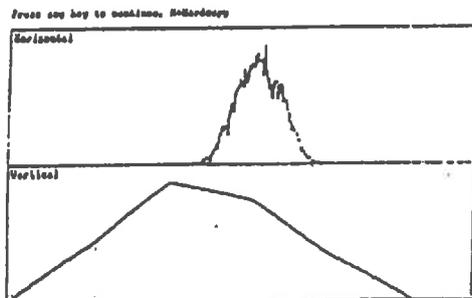
* Pas de 0,1 cm



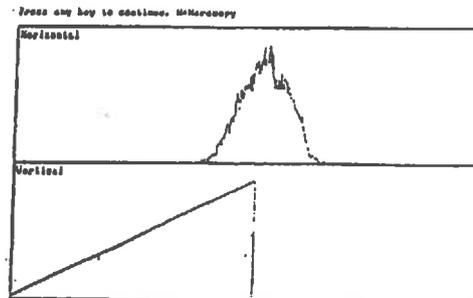
* Pas de 0,2 cm



* Pas de 0,4 cm



* Pas de 1 cm



* Pas de 3 cm

Figure 51 : ^{32}P ; Visualisation des positions de mesure sur les images des comptages.

Pour un échantillon radioactif donné, la fente de comptage apparaît comme un cache limitatif du nombre des impulsions pénétrant dans le compteur pour des sources radioactives de diamètre supérieur à la largeur de la fente. Avec une fente large, une saturation du détecteur est toujours possible alors qu'elle n'a très peu de chance d'être observée avec une fente minimale.

Il est également à noter qu'un représentant du constructeur nous a indiqué que l'ordinateur associé au traceur linéaire n'a pas la capacité suffisante pour saisir dans tous les cas toutes les informations qui pourraient lui être transmises par le détecteur. Berthold a remédié à ce problème en installant une mémoire tampon sur l'interface de l'ordinateur. Malheureusement, cette mémoire tampon n'avait pas pu être mise en place sur notre appareil.

Une fois la fente de comptage fixée, l'augmentation du pas de scrutation conduit à observer des coefficients de variation relativement réduits sur l'ensemble des mesures effectuées (tableau 18). Mais l'évolution des coefficients de variation en fonction du pas de scrutation dépend étroitement du radioélément et aussi du diamètre de la source radioactive.

Avec les trois fentes pour le ^{45}Ca et uniquement deux sur trois pour le ^{32}P , une diminution du taux de comptage est observée à partir d'un pas de scrutation de 3 cm. Ce résultat apparaît tout à fait logique encore qu'il aurait été normal que la chute du taux de comptage se produise dès que le pas de scrutation dépasse la largeur de la fente.

Les images obtenues pour les différents comptages montrent que la représentation graphique selon l'axe des X est très peu perturbée par l'accroissement des pas de scrutation, ceci quelque soit le radioélément. La représentation graphique selon l'axe des Y se traduit quant à elle, par une succession de segments de droite à partir du moment où le pas de scrutation devient supérieur à :

- 0,4 cm pour une fente de 0,2 cm ;
- 1,0 cm pour une fente de 0,4 cm ;
- 1,0 cm pour une fente de 1,5 cm.

Les positions de mesure apparaissent alors clairement et l'image obtenue (figure 51) n'est plus du tout représentative du dépôt radioactif. Le choix d'un pas de scrutation disproportionné par rapport à la largeur de la fente (par exemple : un pas de 3 cm pour une fente de 0,2 cm) aurait du conduire à un représentation discontinue du comptage, ce qui n'est absolument pas le cas.

Le détecteur, lorsqu'il se déplace entre deux positions de mesure continue à être sous tension et donc à comptabiliser les particules qui y pénètrent. De ce fait, comme nous l'avons constaté dans le chapitre D paragraphe D-I, il est logique que le comptage total N d'un échantillon radioactif ne suive pas la loi de Poisson, étant donné que N ne semble pas être uniquement la somme du nombre d'impulsions recueillies dans chaque position de mesure.

En conclusion, nous retiendrons pour l'ensemble des expériences à réaliser, comme pas de scrutation optimal, le pas correspondant à la largeur de la fente en place. N'ayant utilisé que la fente de 0,2 cm, le pas de scrutation a toujours été de 0,2 cm.

D-VI-) ORIENTATION DE L'ECHANTILLON SOUS LE DETECTEUR.

D-VI-1-) Généralités.

Les utilisations courantes pour lesquelles le traceur linéaire a été conçu sont limitées à la présentation sous le détecteur d'échantillons parfaitement délimités et orientés ; la répartition de la radioactivité est à priori connue.

Pour les échantillons de sol qui seront utilisés, il est plus que probable que la présence de fissures conduira à des répartitions très hétérogènes de la radioactivité d'un échantillon à l'autre.

Les analyses d'image effectuées sur un échantillon quelconque seront alors influencées par la résolution selon les axes X et Y qui est un des paramètres à indiquer lors de la programmation du comptage.

Selon l'axe des X, la résolution peut être au maximum de 512 canaux, soit 0,5 mm par canal. Le constructeur recommande de ne pas changer cette valeur.

Selon l'axe des Y, le nombre de canaux ne peut dépasser 360 . La résolution peut être automatiquement ajustée en fonction de la taille de l'échantillon et de la dimension du pas de scrutation. Par exemple, si 100 positions de comptage sont nécessaires pour couvrir l'échantillon, une résolution de 256 canaux apparaîtra suffisante. [BER *2]

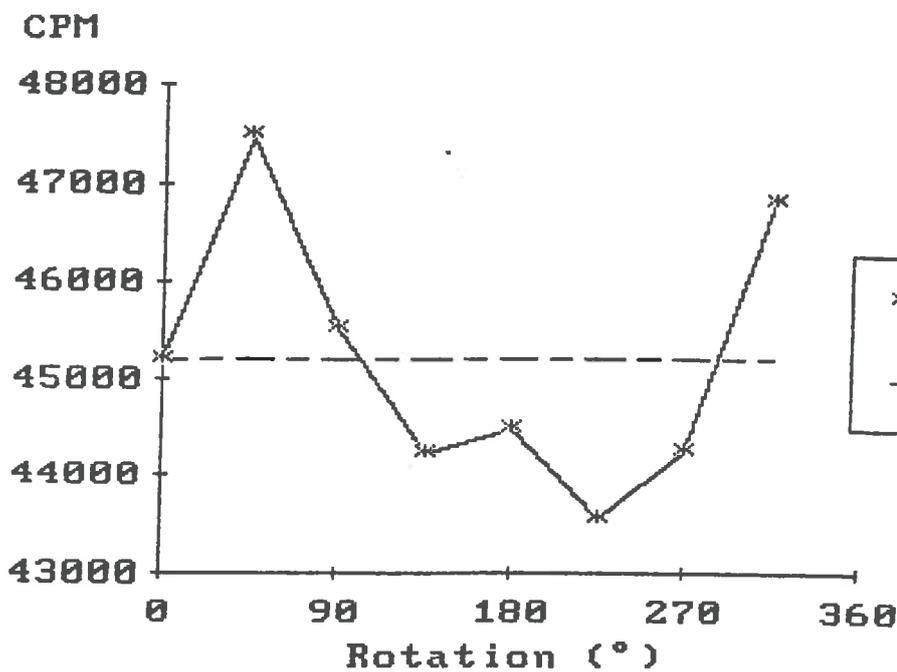


Figure 52 : ^{45}Ca (5,4 kBq) ; Variation CPM pour des orientations différentes de l'échantillon sous le compteur ;

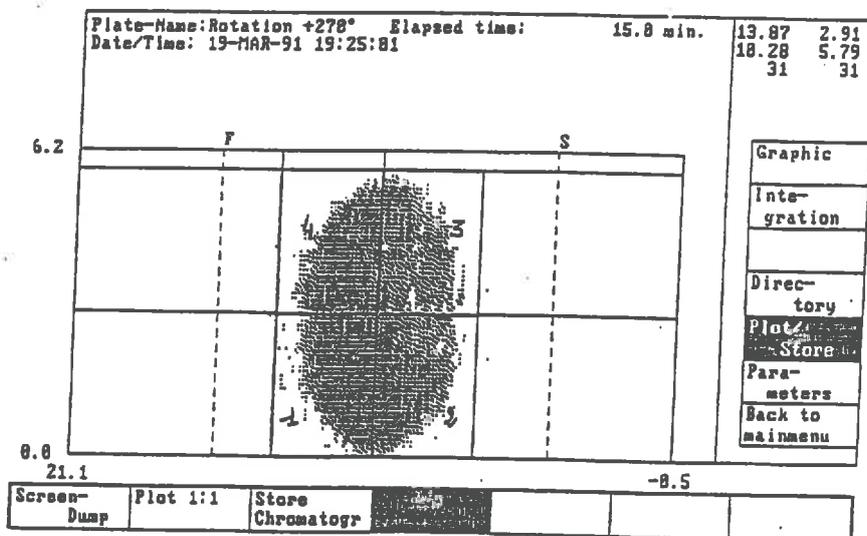


Figure 53 : Analyse d'image : définition des zones d'étude.

% contenu	Total	1	2	3	4
Ref. 0°	98,71	35,49	29,65	18,47	16,46
90°	98,72	18,98	24,97	30,67	25,38
180	98,75	21,77	15,62	30,10	32,62
270	98,86	34,96	23,47	15,73	26,08

Tableau 19 : Analyse d'image ; % contenu dans les rectangles.

Il nous est apparu nécessaire d'évaluer pour un échantillon donné, l'évolution des taux de comptage et des images associées lorsque cet échantillon est présenté sous le détecteur dans des positions différentes.

D-VI-2-) Mode opératoire.

Neuf comptages de 15 minutes ont été effectués sur un échantillon de ^{45}Ca d'activité 5,4 kBq en faisant pivoter à chaque comptage cet échantillon de 45° dans le sens inverse des aiguilles d'une montre.

La longueur du déplacement du détecteur a été dans tous les cas de 6 cm ; le pas de scrutation, la fente du détecteur et la distance au compteur ont été de 2 mm.

L'analyse d'image a été effectuée par la définition de rectangles en mode graphique. De ce fait, elle n'a concerné que les comptages réalisés à 0° , 90° , 180° et 270° .

D-VI-3-) Présentation des résultats.

Pour l'ensemble des comptages, la résolution selon l'axe des Y a été ramenée à posteriori, par le logiciel CHR2D de 360 à 341 canaux, soit 0,2 mm par canal. L'évolution des taux de comptage (figure 52) conduit à obtenir :

- une valeur moyenne de 45196 CPM,
- un écart-type de 1360 CPM.

soit un coefficient de variation de 3,01 % tout à fait en accord avec celui observé lors des mesures de reproductibilité des comptages.

Le déplacement des zones préférentielles de fixation de la radioactivité est parfaitement visible sur les images des comptages. Par contre, les pourcentages contenus dans les rectangles obtenus par l'analyse d'image (figure 53) ne se retrouvent pas systématiquement dans les rectangles contigus après une rotation de 90° (tableau 19). Ceci ne peut s'expliquer que par la difficulté de cerner une zone de fixation de radioactivité lorsque celle-ci se trouve déjà dans un environnement radioactif et par l'influence de la résolution dans la définition des rectangles.

D-VII-) EFFICACITE DU DETECTEUR. ACTIVITE MINIMALE DETECTABLE.

D-VII-1-) Généralités.

L'efficacité totale de détection (ou rendement) est définie comme le rapport du nombre de particules détectées sur le nombre de particules émises par la source (Cf. chapitre B, paragraphe B-I-23). L'efficacité de détection est très étroitement associée à la sensibilité du détecteur et peut être perturbée de façon très importante par la géométrie source - détecteur. Une fois le rendement déterminé, il est intéressant de définir quelle est l'activité minimale qui peut être détectée.

A partir de la limite de détection m_D déterminée conformément à l'annexe n° 3 au niveau de probabilité 95%, l'activité minimale détectable A est donnée par:

$$R = \frac{\text{CPM}}{\text{DPM}} = \frac{m_D \text{ (CPM)}}{A \text{ (kBq)} \cdot 1000 \cdot 60}$$

d'où :

$$A \text{ (kBq)} = \frac{m_D \text{ (CPM)}}{1000 \cdot 60 \cdot R}$$

avec :

$$m_D \text{ (CPM)} = \frac{4}{t_2} + 2 \left[\frac{4}{t_2^2} + 4Bf \left(\frac{1}{t_2} + \frac{1}{t_1} \right) \right]^{\frac{1}{2}}$$

avec Bf : taux de comptage du bruit de fond,

t_1 : temps de comptage du signal brut,

t_2 : temps de comptage du bruit de fond.

D-VII-2-) Mode opératoire.

L'efficacité de détection a été évaluée dans la configuration de l'échantillon par rapport au compteur correspondant aux réglages optimaux de détection développés dans les paragraphes précédents :

- fente : 2 mm

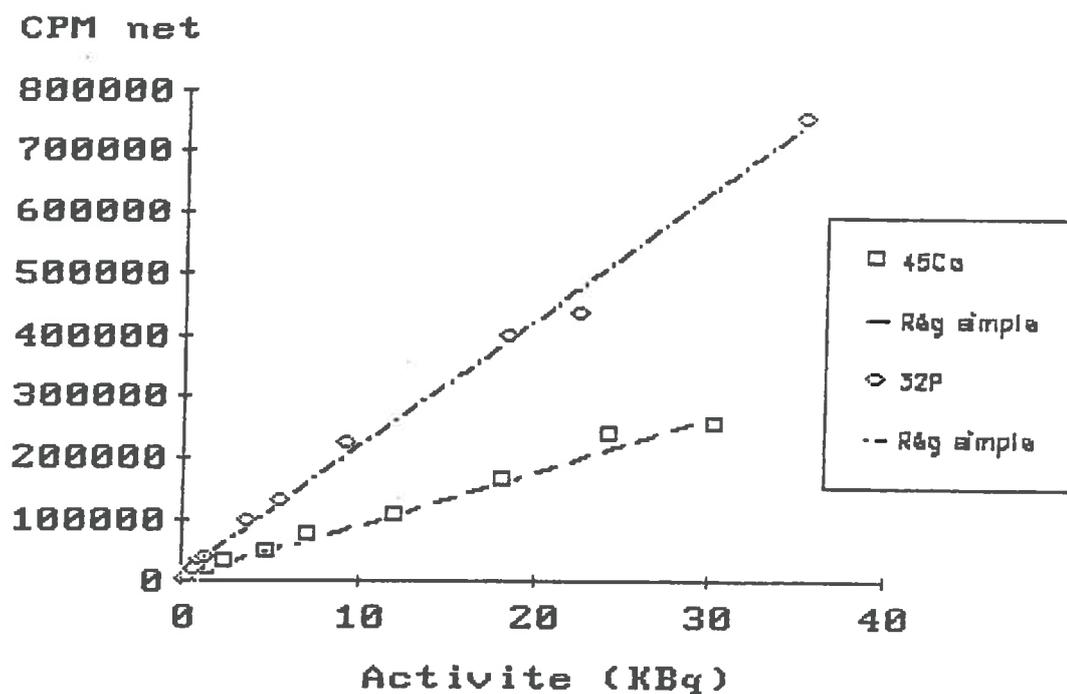


Figure 54 : Gamme d'étalonnage.

Element	Ordonnée à l'origine A	Coefficient de régression B	Coef. de corrélacion r
^{32}P	$7441 \pm 12965^*$	20695 ± 954	0,9979
^{45}Ca	$2319 \pm 6090^*$	8653 ± 500	0,9958

* Coefficient non significatif $\alpha = 5 \%$

Tableau 20 : CPM = f(Activité) ; régression linéaire.

- pas de scrutation : 2 mm
- distance au compteur : 2 mm

Les échantillons suivants ont été utilisés :

- pour le ^{45}Ca , 14 échantillons d'activité variant de 0,02 kBq à 30,36 kBq
- pour le ^{32}P , 12 échantillons d'activité variant de 0,01 kBq et 35,27 kBq.

Les temps de comptage ont été compris :

- pour le ^{45}Ca , entre 15 minutes pour les fortes activités et 6 heures pour les faibles activités ;
- pour le ^{32}P , entre 15 et 60 minutes.

Nous avons appliqué aux résultats la régression linéaire (Annexe 2) $\text{CPM net} = A + (B \cdot \text{kBq})$.

Dans le cas où l'ordonnée à l'origine passe statistiquement par zéro, l'efficacité totale de détection R est obtenue par :

$$R = \frac{\text{CPM}}{\text{DPM}} = \frac{B}{1000 \cdot 60}$$

Les activités minimales détectables ont été déterminées pour un dépôt radioactif de surface à partir des bruits de fond obtenus sur les papiers filtres.

D-VII-3-) Présentation des résultats.

L'évolution des taux de comptage nets en fonction de l'activité des échantillons apparaît sur la figure 54. Le tableau 20 regroupe les valeurs des différents coefficients de la régression appliquée.

Nous pouvons noter que les ordonnées à l'origine ne sont pas statistiquement différentes de 0.

L'efficacité de détection est par conséquent :

- pour le ^{45}Ca $R \% = 14,42 \pm 0,83$
- pour le ^{32}P $R \% = 34,49 \pm 1,59$

Ces rendements sont sensiblement en accord avec ceux donnés par le constructeur (cf. Chapitre B, paragraphe B-1-2₃, tableau 1). La légère différence existant pour le ³²P peut s'expliquer par des conditions de géométrie source-détecteur différentes.

La moyenne des bruits de fond du support que nous avons mesurés est :

- en gain 1 : valeur moyenne 975 CPM, écart-type 59 CPM
- en gain 4 : valeur moyenne 573 CPM, écart-type 21 CPM.

Les activités minimales détectables sont alors en se basant sur les valeurs moyennes :

- pour le ⁴⁵Ca : 0,002 kBq ;
- pour le ³²P : 0,001 kBq.

Les valeurs théoriques de ces activités minimales nous paraissent être trop faibles pour délivrer un signal parfaitement identifiable par le traceur linéaire. Mais, si l'on se base sur les fluctuations des taux de comptage, les activités minimales déterminées par :

$$\text{kBq} = \frac{\text{ECART-TYPE}}{1000 \cdot 60 \cdot R}$$

sont alors :

- pour le ⁴⁵Ca : 0,243 kBq,
- pour le ³²P : 0,285 kBq.

Ces valeurs nous paraissent beaucoup plus proches de la réalité.

CHAPITRE E : RESULTATS EXPERIMENTAUX DE L'INTERACTION DES PARTICULES β AVEC UN MILIEU POREUX.

Dans ce chapitre, nous nous sommes intéressés à l'interaction des particules β avec un milieu poreux et nous avons tenté d'évaluer l'importance de la granulométrie du sol sur la réponse du détecteur, ainsi que l'influence des paramètres intrinsèques d'un sol en place prélevé tels que densité, humidité et fissuration.

E-I-) PROTECTION DE L'ECHANTILLON.

E-I-1-) Généralités.

Comme nous l'avons déjà signalé dans le chapitre C, paragraphe C-III, tous les échantillons humides doivent être obligatoirement recouverts d'une protection. Nous avons eu le choix entre deux types de protection : film étirable (pour contact alimentaire) ou papier mylar.

L'objectif de l'expérience a été d'évaluer les pertes de comptages et les coefficients de variation des séries de mesures entreprises dans les deux configurations : échantillon nu ou échantillon avec protection.

E-I-2-) Mode opératoire

Trente comptages de trente secondes en mode monodimensionnel et huit comptages de quinze minutes en mode bidimensionnel ont été réalisés sur des échantillons de ^{32}P et de ^{45}Ca d'activité respective de 4,3 kBq et 12,2 kBq.

Echantillon	Moyenne CPM	Ecart-type on-1	C.V.%	Perte %
Mode monodimensionnel				
32p				
* Echantillon nu	1713	93,2	5,44	/
* + Film	1512	106,0	7,01	11,77
* + Mylar	1511	93,9	6,22	11,84
45Ca				
* Echantillon nu	2485	61,0	2,45	/
* + Film	1453	89,0	6,13	41,53
* + Mylar	1389	124,7	8,98	44,12
Mode bidimensionnel				
32p				
* Echantillon nu	123222	2755,1	2,24	/
* + Film	122519	2723,4	2,22	0,57
* + Mylar	116503	2113,7	1,81	5,45
45Ca				
* Echantillon nu	106861	5690,8	5,33	/
* + Film	84857	1117,6	1,32	20,59
* + Mylar	93010	1975,0	2,12	12,96

Tableau 21 : Atténuation du taux de comptage par protection de l'échantillon.

E-I-3-) Présentation des résultats

Les coefficients de l'analyse descriptive des résultats obtenus sont donnés dans le tableau 21. Ce tableau regroupe également les pertes de comptage constatées par rapport à la configuration échantillon sans protection.

En mode bidimensionnel, la présence sur l'échantillon d'une protection conduit à observer des coefficients de variation plus faibles que ceux obtenus avec l'échantillon nu.

En mode monodimensionnel, l'inverse est constaté.

Les pertes de comptage sont nettement plus élevées avec le ^{45}Ca qu'avec le ^{32}P ce qui est tout à fait logique étant donné l'écart entre les énergies des particules émises par ces radioéléments.

La différence existant entre les deux types de protection n'a pu être mise en évidence. Nous avons utilisé par conséquent, pour les expériences nécessitant une protection de l'échantillon, le film étirable étant donné que celui-ci est plus facile à mettre en place sur l'échantillon que le papier mylar.

E-II-) DETERMINATION DU PARCOURS DES PARTICULES β

On s'intéressera plus particulièrement à la texture du sol et à la taille des agrégats.

E-II-1-) Généralités.

Un échantillon de sol présente des propriétés variables en fonction de sa constitution physique et de son humidité. Dans ce paragraphe, la détermination du parcours maximal est réalisée pour les deux cas extrêmes suivants :

- l'état sec où la plupart des matériaux sont cohérents ou encore fragiles ; sous l'effet d'une contrainte, les agrégats lorsqu'ils sont de taille suffisante se rompent sans avoir subi de déformation permanente notable ;
- l'état de saturation en eau (boue) où l'échantillon de sol tend à se comporter comme un liquide plus ou moins visqueux.

Le parcours expérimental se détermine par extrapolation de la partie linéaire de la courbe exponentielle d'atténuation. (Cf. Chapitre A, paragraphe A-1-3₃)

E-II-2-) Mode opératoire

La détermination du parcours expérimental a été entreprise sur des sols secs de granulométrie différente ainsi que sur un échantillon de boue. Nous avons pris soin que les échantillons de sol constitués par un type donné d'agrégats présentent tous la même densité.

**** Sols secs***

Avec un échantillon de ^{32}P d'activité 7,1 kBq, trois types de sol secs ont été utilisés :

- un sol constitué d'agrégats de diamètre 180-300 μm de densité 0,85;
- un sol constitué d'agrégats de diamètre 2-3 mm de densité 0,83 ;
- un sable d'agrégats de diamètre 180-300 μm de densité 1,44.

Avec un échantillon de ^{45}Ca d'activité 1,4 kBq, en plus des sols énumérés ci-dessus, un échantillon d'argile de densité 0,49 a également été employé.

Dans tous les cas, le support s'est trouvé à 2 mm du compteur ; la fente et le pas de scrutation ont été de 2 mm. L'échantillon radioactif a été logé dans la cavité du support à une profondeur ne pouvant dépasser 7,9 mm et recouvert d'une quantité de sol parfaitement répartie et de masse connue. Les temps de comptage ont été de trente minutes pour l'échantillon de ^{45}Ca et de une heure pour l'échantillon de ^{32}P .

Aux résultats des comptages obtenus, nous avons appliqué pour chaque épaisseur X de sol la relation :

$$\frac{I}{I_0} = f(X) = \frac{\text{CPM (Source + Sol)} - \text{BDF Sol}}{\text{CPM (Source)} - \text{BDF Support}}$$

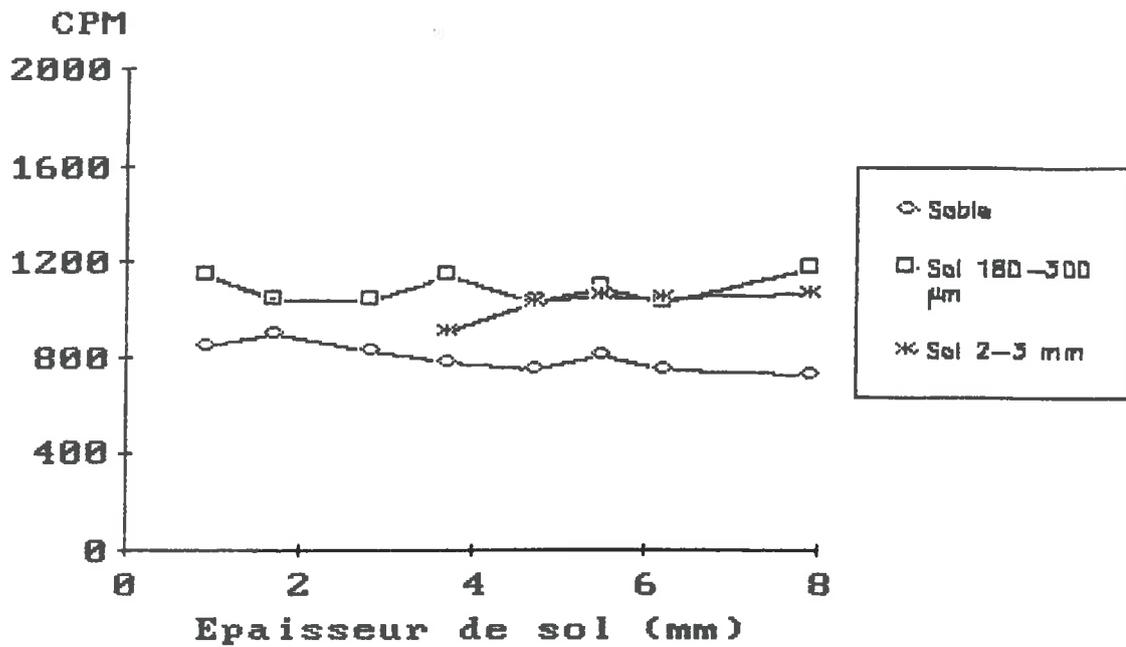


Figure 55 : Evolution des bruits de fond en fonction de l'épaisseur pour différents types de sol en gain 1.

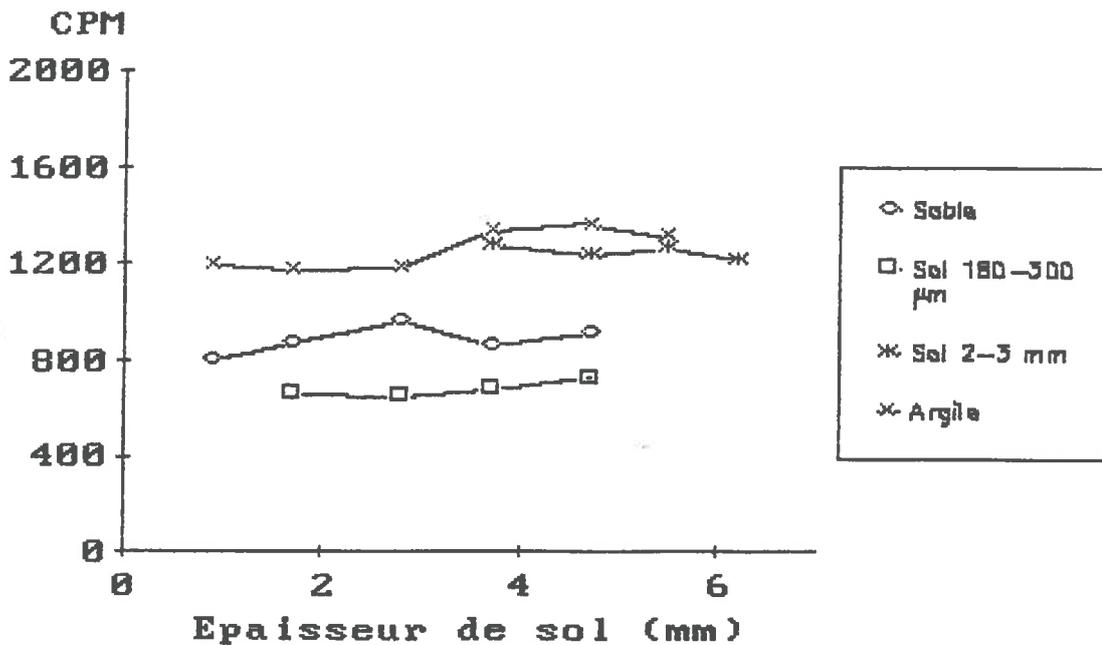


Figure 56 : Evolution des bruits de fond en fonction de l'épaisseur pour différents types de sol en gain 4.

où le terme "source" désigne l'échantillon radioactif.

Le parcours expérimental est extrapolé de la régression exponentielle :

$$\frac{I}{I_0} = A e^{(B \cdot x)}$$

pour une valeur I correspondant à l'écart maximum constaté sur les comptages de bruit de fond effectués pour un sol donné.

Les images des comptages obtenus ont également permis d'estimer jusqu'à quelle épaisseur les contours de l'échantillon radioactif sont visibles et de comparer cette valeur au parcours expérimental.

** Sol humide*

Ne pouvant obtenir des épaisseurs de boues inférieures à 2 mm, l'expérience n'a été effectuée que sur un échantillon de ^{32}P d'activité 5,7 kBq. La boue a présenté une humidité massique de 41,86 % pour une densité moyenne de 1,94 ; les épaisseurs que nous avons appliquées sur l'échantillon radioactif ont été comprises entre 2 et 5 mm. Les temps de comptage ont été de une heure et les résultats des comptages sont présentés sous la même forme qu'avec le sol sec.

E-II-3-) Présentation des résultats

** Sols secs*

Dans un premier temps, nous pouvons remarquer que les variations des bruits de fond en fonction de l'épaisseur d'un échantillon de sol sont limitées (figures 55 et 56) ; cela nous a conduit à considérer les bruits de fond pour un sol donné constants quelle que soit l'épaisseur.(tableau 22).

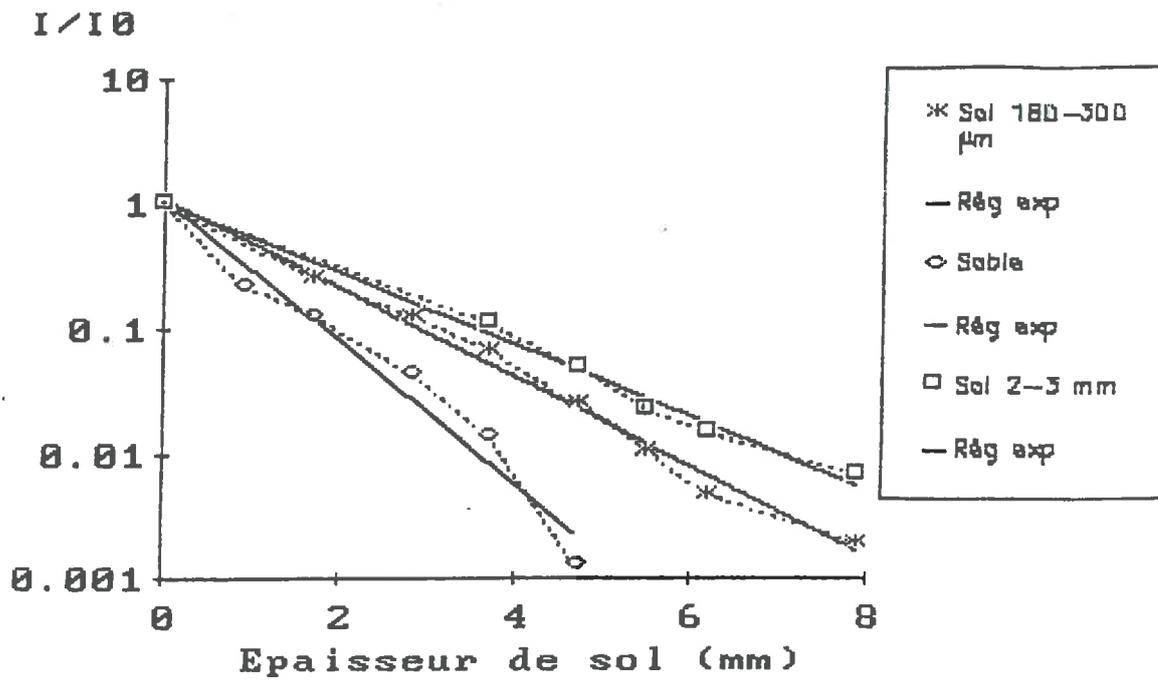


Figure 57 : ^{32}P (7,1 kBq) ; Parcours dans divers sols.

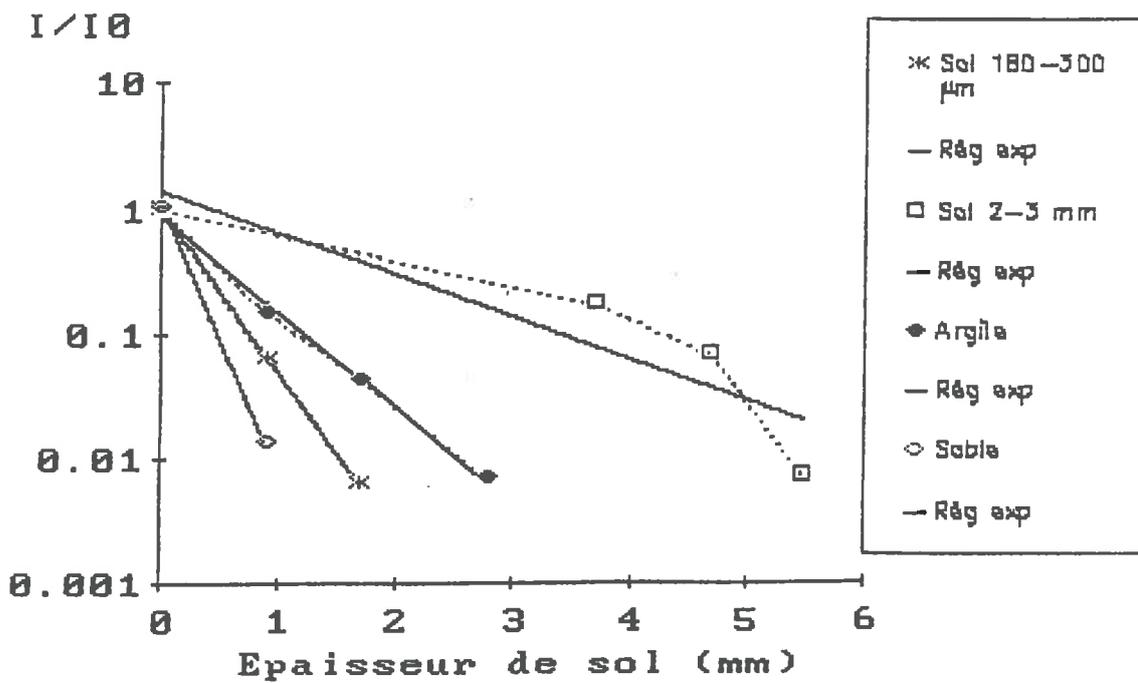


Figure 58 : ^{45}Ca (1,4 kBq) ; Parcours dans divers sols.

Echantillon	— CPM	σ n-1
Sol 180-300 μm		
* Gain 1	1089	58
* Gain 4	675	28
Sable		
* Gain 1	801	58
* Gain 4	881	48
Sol 2-3 mm		
* Gain 1	1026	66
* Gain 4	1245	26
Argile		
* Gain 4	1260	85

Tableau 22 : Bruits de fond mesurés sur les différents sols

Les évolutions du rapport I/I_0 apparaissent sur les figures 57 et 58 et conduisent à observer les coefficients de la régression exponentielle figurant dans le tableau 23.

Echantillon	Ordonnée à l'origine A	Coefficient de régression B	Coef. de corrélation r
³² P 7,1 kBq			
Sol 180-300 μm	1,098 ± 0,360	- 0,826 ± 0,076	- 0,7901
Sable	1,098 ± 0,927	- 1,314 ± 0,330	- 0,7920
Sol 2-3 mm	1,013 ± 0,500	- 0,660 ± 0,094	- 0,8886
⁴⁵ Ca 1,4 kBq			
Sol 180-300 μm	0,981 ± 0,595	- 3,002 ± 0,535	- 0,9054
Sable	1,066	- 4,875*	- 1
Argile	0,859 ± 0,687	- 1,764 ± 0,404	- 0,8250
Sol 2-3 mm	1,405 ± 4,333*	- 0,783 ± 1,066*	- 0,9862

Tableau 23 : Parcours dans différents sols ; Régression exponentielle $I/I_0 = A e^{(BX)}$

* Coefficient non significatif α = 5 %

Les parcours maximaux expérimentaux sont donnés dans le tableau 24 et sont accompagnés :

- des limites de confiance obtenues conformément à l'annexe 2.
- des parcours maximaux théoriques déterminés, pour les densités estimées des sols, à partir des lois empiriques données au chapitre A paragraphe A-1-3₃.

Echantillon	R max Théorique * (mm)	R max Expérimental (mm)	Limites de confiance $\alpha = 5 \%$
³² P 7,1 kBq			
Sol 180-300 μ m	9,0	10,4	10,2 - 10,6
Sable	5,3	6,4	5,2 - 7,5
Sol 2-3 mm	9,3	13,0	11,4 - 14,5
⁴⁵ Ca 1,4 kBq			
Sol 180-300 μ m	0,7	2,3	1,9 - 2,7
Sable	0,4	1,2	/ **
Sol 2-3 mm	0,7	8,7	/ **
Argile	1,2	2,9	2,2 - 3,7

* Déterminé à partir des lois empiriques données au chapitre A paragraphe A-1-3₃.

** Limites de confiance ne pouvant être calculées soit par manque de points de mesure, soit parce que les coefficients de la régression ne sont pas significatifs.

Tableau 24 : parcours maximaux déterminés pour les différents sols et limites de confiance.

Echantillon	Limite de définition de la tache radioactive (mm)
³² P	
Sable	3,7
Sol 180-300 μ m	5,5
Sol 2-3 mm	6,2
⁴⁵ Ca	
Sable	0,0
Sol 180-300 μ m	0,0
Argile	0,9
Sol 2-3 mm	3,7

Tableau 25 : Analyse d'image ; Limite de définition de la tache radioactive.

Les parcours expérimentaux sont tous plus ou moins surévalués par rapport aux parcours théoriques. Ce résultat paraît logique étant donné que les parcours théoriques ne tiennent pas compte de la porosité du milieu traversé, ni des conditions d'arrangement des agrégats dans la coupelle pouvant générer des fluctuations importantes des taux de comptage.

Il est également à noter qu'avec le ^{45}Ca , les parcours théoriques sont, à l'exception de l'argile, inférieurs à 1 mm; les conditions de préparations des échantillons de sol n'ont pas permis d'obtenir des épaisseurs aussi minimales.

Les analyses d'image quant à elles ont permis de montrer que : (tableau 25)

- pour le ^{45}Ca , les contours de l'échantillon radioactif disparaissent au delà de 30 à 40 % du parcours maximal expérimental dans l'argile et dans le sol d'agrégats 2-3 mm. Aucune identification de l'échantillon ne peut être effectuée avec le sable et le sol d'agrégats 180-300 μm même pour les épaisseurs de sols minimales.
- pour le ^{32}P , quelle que soit la nature de l'échantillon de sol, l'image de l'échantillon radioactif est visible jusqu'entre 48 % et 58 % du parcours maximal expérimental.

Ces observations confirment les propos que nous avons développés dans le chapitre C, paragraphe C-1-1 : un radioélément émetteur β de faible énergie est plus approprié pour mettre en évidence des phénomènes de surface car des particules β se trouvant à quelques millimètres de la surface n'influenceront pas le signal arrivant au détecteur.

*** Sol humide**

La régression exponentielle appliquée à la relation $I/I_0 = f(X)$ (figure 59) conduit à observer les coefficients suivants :

- ordonnée à l'origine $A = 1,28 \pm 1,71$ (coefficient non significatif au niveau de probabilité 95 %)
- Coefficient de régression $B = - 1,72 \pm 0,63$
- Coefficient de corrélation $r = -0,9038$

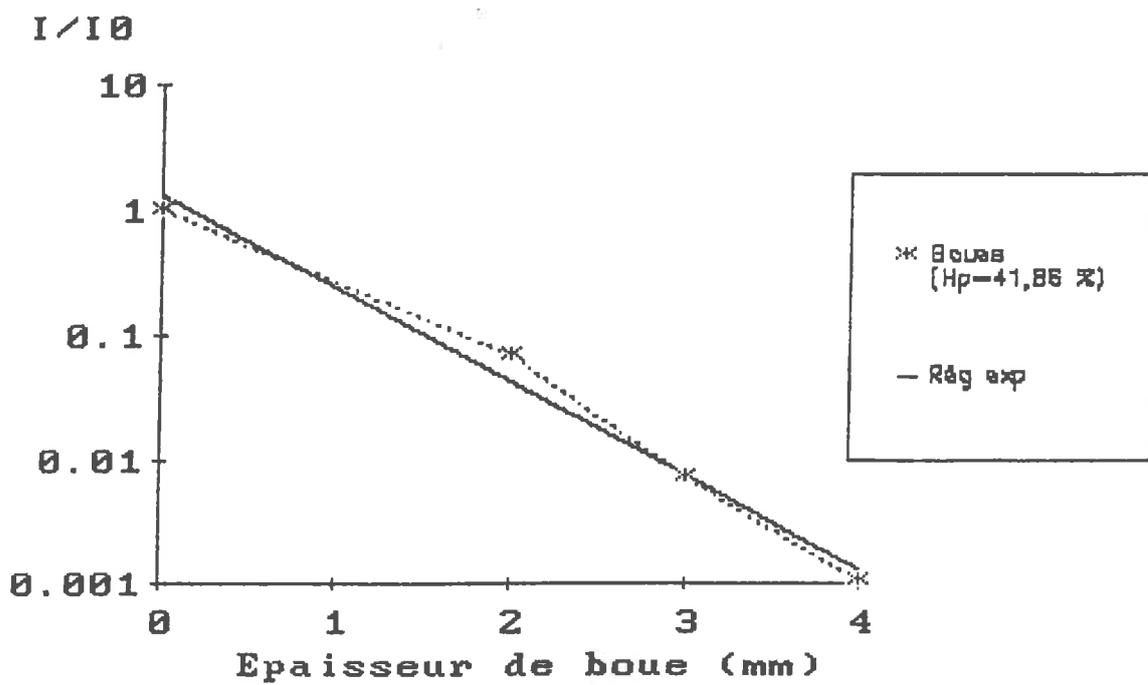


Figure 59 : ^{32}P (10 kBq) ; Parcours dans une boue.

soit un parcours maximal expérimental pour un bruit de fond sur la boue de 893 CPM \pm 59, de 4,4 mm à comparer au parcours théorique de 2,5 mm, déterminé pour une densité de 1,94, à partir des lois données au paragraphe A-1-3₃.

La différence entre les parcours expérimentaux et théoriques est plus importante avec la boue qu'avec le sol sec. Pour expliquer cela, il peut être retenu que l'échantillon de boue, présentant une humidité pondérale corrélée à la densité, peut voir cette humidité évoluer au cours de l'expérience ; de ce fait, la densité initiale estimée de la boue (1,94) n'est probablement pas constante au cours du temps et une augmentation, certes difficilement mesurable, du parcours théorique pourrait être envisagée pendant l'expérience conduisant à diminuer l'écart entre parcours théorique et expérimental.

Les images des comptages obtenus montrent quant à elles, que la reconnaissance de la tache de contamination n'est effective que pour une épaisseur de boue de 2 mm.

E-III-) INFLUENCE DE LA DENSITE.

E-III-1-) Généralités.

Dans la nature, un sol en place peut voir sa densité varier en fonction de l'intervention de facteurs climatiques (pluie, gel, sécheresse), biologiques (racines des végétaux, micro-organismes et macro-organismes) et mécaniques (moyens mis en oeuvre par l'homme pour l'utilisation du sol). Toute variation même minime de la densité peut avoir des conséquences sur le signal parvenant au détecteur, puisque le parcours maximal des particules β sera alors modifié.

L'objectif de l'expérience a donc été de quantifier les modifications apportées par une variation de la densité pour des épaisseurs de sol fixées et pour des humidités massiques connues d'échantillon de sol. En effet, dans le paragraphe précédent, les parcours maximaux que nous avons déterminés l'ont été pour des sols secs ou saturés en eau où il est apparu impossible de faire varier la densité.

E-III-2-) Mode opératoire

L'étude a porté :

- pour l'échantillon de ^{32}P d'activité 5,9 kBq sur trois types de sol:
 - * sol constitué d'agrégats de diamètre inférieur à 1 mm présentant une humidité de 15,45 %
 - * sol constitué d'agrégats de diamètre inférieur à 1 mm présentant une humidité de 21,63 %
 - * sol constitué d'agrégats de diamètre 3 à 5 mm présentant une humidité de 19,43 %
- pour l'échantillon de ^{45}Ca d'activité 61,5 kBq uniquement sur le sol constitué d'agrégats de diamètre inférieur à 1 mm présentant une humidité de 21,63 %

Pour un type de sol donné, une masse de ce sol est déposée sur l'échantillon radioactif et comprimée pour atteindre l'épaisseur souhaitée fixée à 2,5, 3,5, 4 ou 5 mm. Avec le ^{45}Ca , nous n'avons pas dépassé l'épaisseur de sol de 2,5 mm.

En fonction de l'humidité massique (H_p), de la masse déposée (M) de sol et du volume de la coupelle de profondeur déterminée (V), la densité sèche Γ_d (Cf. Chapitre A paragraphe A-II-2) est alors définie par :

$$\Gamma_d = \frac{M}{V \cdot (1 + H_p\%)}$$

Pour une profondeur donnée, les résultats des taux de comptage sont présentés sous la même forme que dans le paragraphe précédent :

$$\frac{I}{I_0} = \frac{\text{CPM (Source + Sol)} - \text{BDF Sol}}{\text{CPM (Source)} - \text{BDF Support}} = f(\Gamma_d)$$

Nous avons appliqué aux points de mesure de la relation $I/I_0 = f(\Gamma_d)$, la régression exponentielle $I/I_0 = A \cdot e^{B \cdot \Gamma_d}$.

A partir des bruits de fond mesurés sur les échantillons de sol, nous avons déterminé la densité limite pour :

$$I = 2 \cdot \left[\frac{\text{BDF}}{t} \right]^{\frac{1}{2}}$$

Echantillon	Ordonnée à l'origine A	Coefficient de régression B	Coef. de corrélacion r
³² P			
Sol 3-5 mm Hp = 19,43 %			
- Z = 2,5 mm	71,63 ± 0,99	- 2,08 ± 0,83	- 0,9696
- Z = 3,5 mm	278,55 ± 1,33	- 4,17 ± 1,15	- 0,9510
- Z = 4,0 mm	4126,28 ± 1,81	- 7,17 ± 1,61	- 0,9884
- Z = 5,0 mm	54595,16 ± 4,74	- 10,68 ± 4,45	- 0,9663
Sol <1 mm Hp = 15,45 %			
- Z = 2,5 mm	156,19 ± 0,33	- 3,10 ± 0,27	- 0,9800
- Z = 3,5 mm	290,03 ± 1,21	- 4,67 ± 1,10	- 0,9481
- Z = 4,0 mm	280,83 ± 1,72	- 5,49 ± 1,75	- 0,9470
- Z = 5,0 mm	3187,09 ± 4,36	- 8,34 ± 4,25	- 0,9949
Sol <1 mm Hp = 21,63 %			
- Z = 2,5 mm	75,94 ± 0,70	- 2,77 ± 0,70	- 0,9976
- Z = 3,5 mm	13123,51 ± 3,46	- 9,49 ± 3,26	- 0,9605
- Z = 4,0 mm	24006,99 ± 1,81	- 10,68 ± 1,72	- 0,9291
- Z = 5,0 mm	80267,03 ± 6,12	- 13,46 ± 6,74	- 0,9830
⁴⁵ Ca			
Sol <1 mm Hp = 21,63 %	*	*	
- Z = 2,5 mm	14112,79 ± 8 E9	- 16,50 ± 8 E62	- 0,9096

* Coefficient non significatif $\alpha = 5 \%$

Tableau 26 : Densité ; régression exponentielle.

* A n'a pas d'unité ;

* B s'exprime en cm^3/g

E-III-3-) Présentation des résultats

La régression exponentielle conduit à observer les coefficients du tableau n° 26. Nous pouvons constater qu'avec le ^{45}Ca , les coefficients de la régression ne sont absolument pas significatifs ; une variation même minime de l'ordre de 20 % de la densité entraîne une atténuation totale du taux de comptage ce qui est tout à fait logique étant donné l'énergie des particules β . Avec le ^{32}P , quels que soient l'échantillon de sol et son épaisseur, les coefficients de la régression sont significatifs au niveau de probabilité de 95 % ;

Les évolutions du rapport I/I_0 en fonction de la densité sèche apparaissent sur les figures 60, 61, 62 et 63.

Nous pouvons remarquer que l'évolution du rapport I/I_0 en fonction de la densité est influencée :

- pour un type de sol donné, par exemple pour le sol d'agrégats de diamètre inférieur à 1 mm (figures 62 et 63), par l'humidité des agrégats ;
- pour deux échantillons de sol différents mais présentant des humidités voisines (figures 61 et 63), par le diamètre des agrégats.

Nous pouvons également noter que les divers tests statistiques de comparaison des coefficients de régression effectués conformément à l'annexe 2, n'ont pas permis d'accepter, au niveau de probabilité de 95 %, l'égalité des coefficients obtenus :

- pour une épaisseur de sol donnée, ce qui confirme l'importance de la granulométrie mais aussi de l'humidité;
- pour un type de sol d'humidité donnée, ce qui montre l'importance de l'épaisseur de sol et de la granulométrie.

A partir des bruits de fond observés sur les échantillons de sol :

- 1104 CPM pour le sol d'agrégats 3 à 5 mm en gain 1

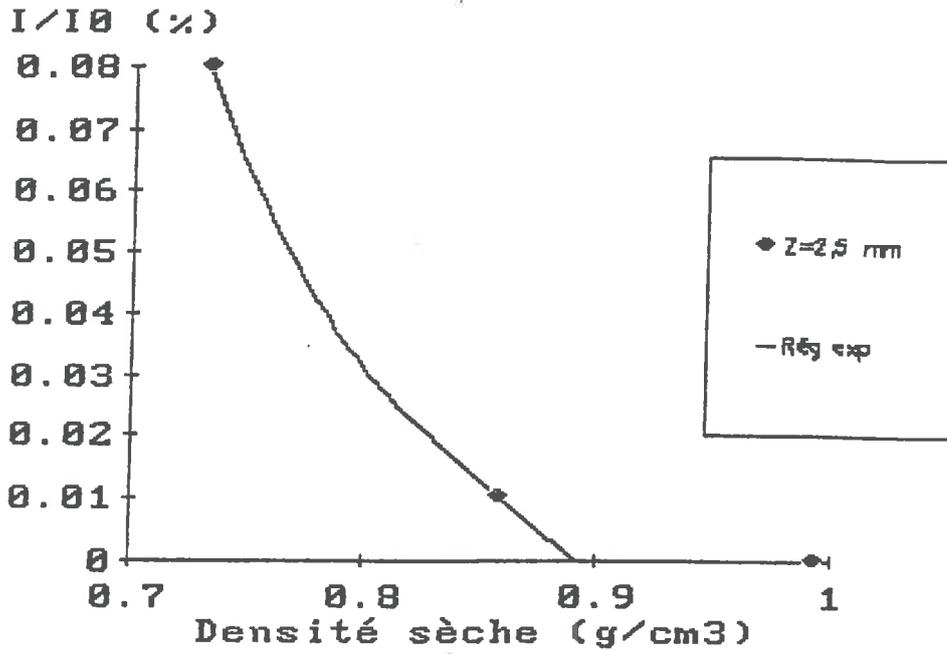


Figure 60 : ^{45}Ca (61,5 kBq) ; I/I_0 en fonction de la densité. Agrégats 1 mm, Humidité 21,63 %.

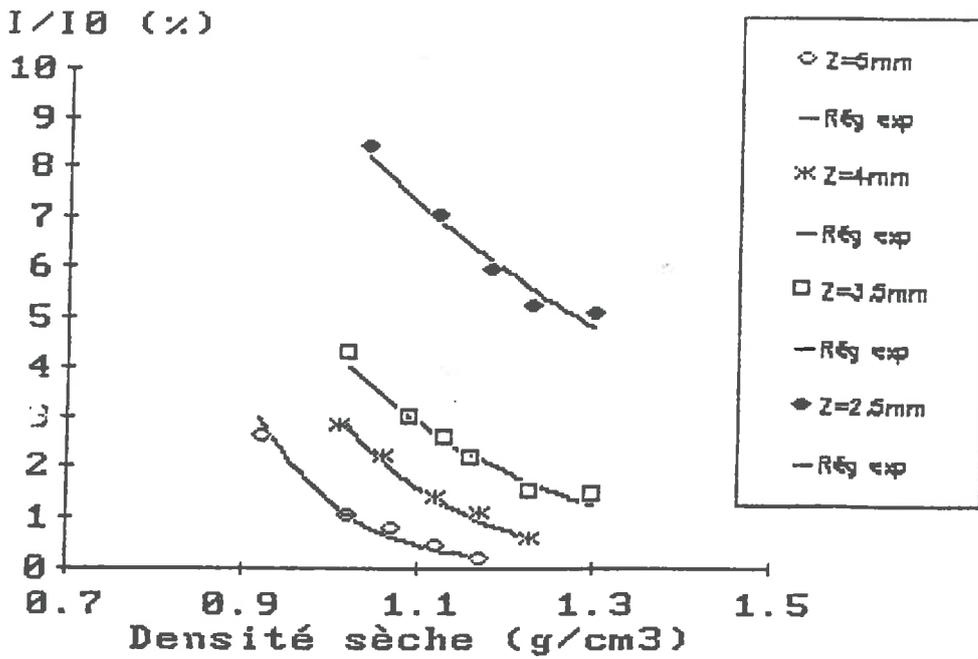


Figure 61 : ^{32}P (5,9 kBq) ; I/I_0 en fonction de la densité. Agrégats 3-5 mm, Humidité 19,43 %.

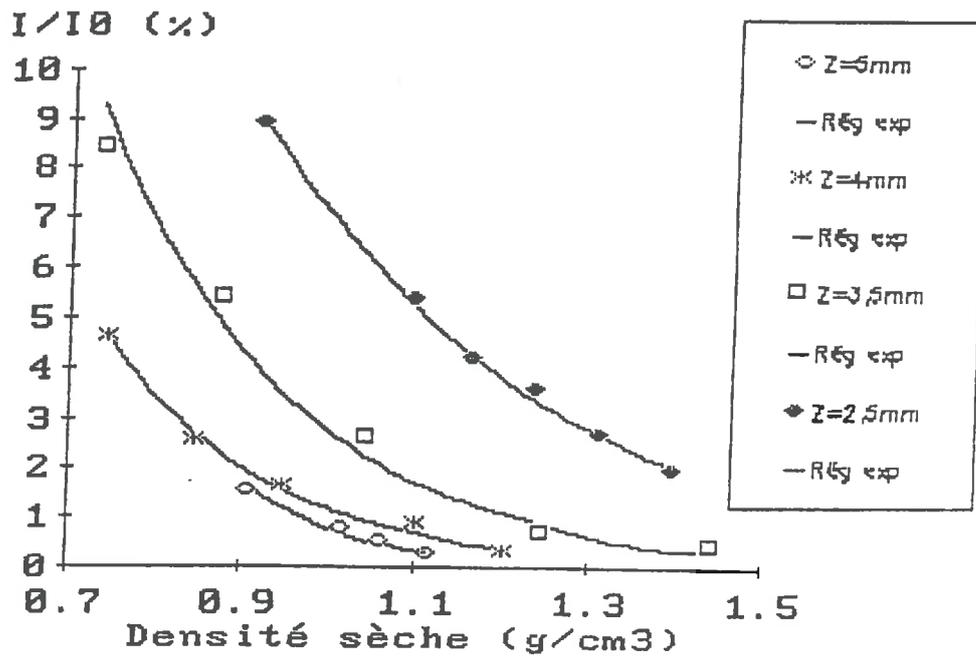


Figure 62 : ^{32}P (5,9 kBq) ; I/I_0 en fonction de la densité. Agrégats 1 mm, Humidité 15,45 %.

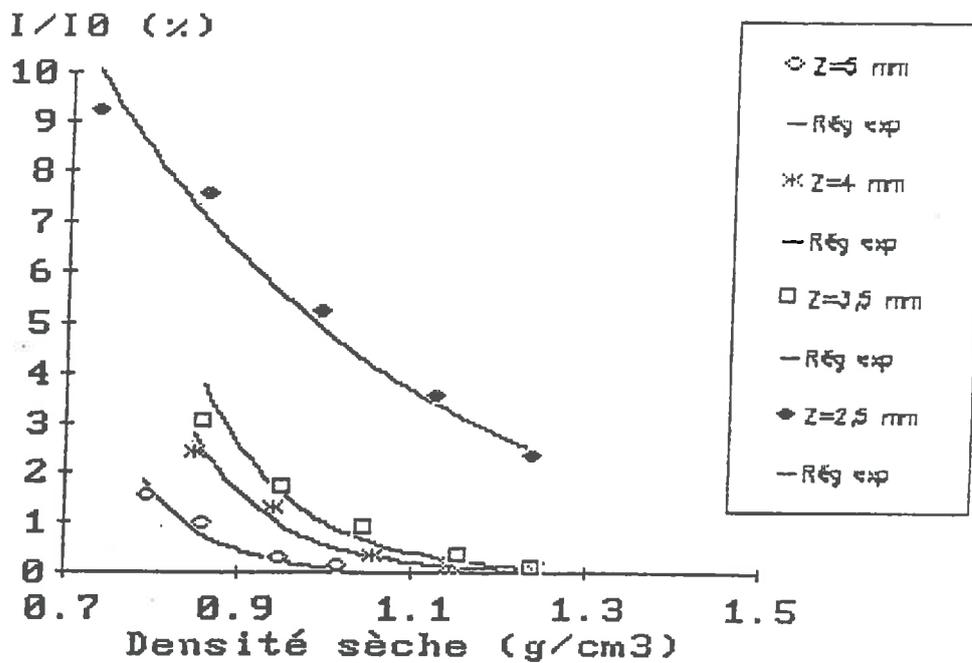


Figure 63 : ^{32}P (5,9 kBq) ; I/I_0 en fonction de la densité. Agrégats 1 mm, Humidité 21,63 %.

Echantillon ³² P	Densité limite g . cm ⁻³	Parcours max. expérimental mm
Sol 3-5 mm Hp = 19,43 %		
- Z = 2,5 mm	6,38	1,2
- Z = 3,5 mm	3,44	2,3
- Z = 4,0 mm	2,37	3,3
- Z = 5,0 mm	1,77	4,5
Sol <1 mm Hp = 15,45 %		
- Z = 2,5 mm	4,31	1,8
- Z = 3,5 mm	2,98	2,7
- Z = 4,0 mm	2,56	3,1
- Z = 5,0 mm	1,97	4,0
Sol <1 mm Hp = 21,63 %		
- Z = 2,5 mm	2,98	2,7
- Z = 3,5 mm	1,93	4,1
- Z = 4,0 mm	1,43	5,5
- Z = 5,0 mm	1,13	7,0

Tableau 27 : Densité limite et parcours maximal correspondant.

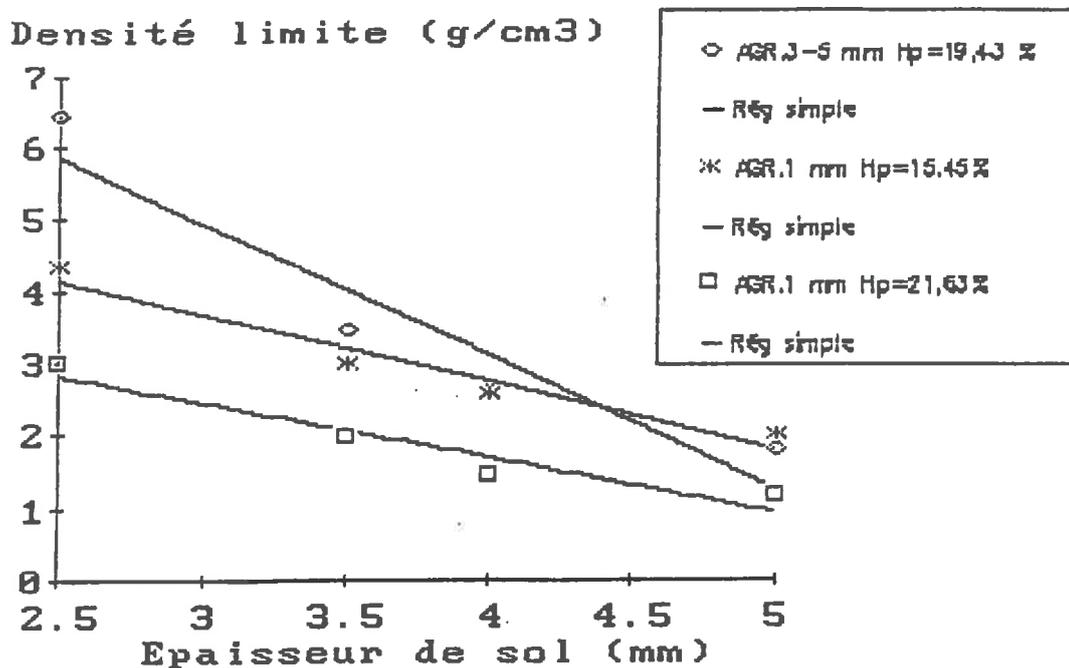


Figure 64 : Densité limite en fonction de l'épaisseur de sol.

Echantillon ³² P	Ordonnée à l'origine A	Coefficient de régression B	Coef. de corrélation r
Sol 3-5 mm Hp = 19,43 %	10,44 ± 6,97	- 1,84 ± 1,81	- 0,9517
Sol <1 mm Hp = 15,45 %	6,45 ± 2,42	- 0,93 ± 0,63	- 0,9764
Sol <1 mm Hp = 21,63 %	4,68 ± 2,50	- 0,75 ± 0,65	- 0,9616

Tableau 28 : Densité limite ; régression linéaire.

- 963 CPM pour le sol d'agrégats inférieurs à 1 mm en gain 1
- 768 CPM pour le sol d'agrégats inférieurs à 1 mm en gain 4.

les densités sèches limites ont été calculées pour chaque épaisseur donnée d'un échantillon de sol et ont permis de définir le parcours maximal expérimental auquel elles conduisent. (tableau 27 et figure 64)

Le tableau 27 montre que les parcours maximaux expérimentaux déterminés à partir des densités limites sont très proches des épaisseurs de sol, sauf pour la plus faible épaisseur (2,5 mm) des agrégats 3-5 mm ; dans ce cas, comme nous l'avons déjà observé dans le chapitre E paragraphe E-II-3, les conditions d'arrangement des agrégats dans la coupelle peuvent perturber les taux de comptage. La figure 64 fait apparaître que pour une épaisseur de sol donnée, la densité limite dépend du diamètre des agrégats mais aussi de leur humidité.

Le test statistique d'égalité (annexe 2) des trois coefficients de la régression linéaire appliquée à la relation densité limite = f(épaisseur) (coefficients donnés dans le tableau 28) n'a pas permis d'accepter le parallélisme des droites ; en effet, le F observé (4,64) est inférieur au F théorique de la distribution de Snedecor au niveau de confiance de $\alpha = 5\%$ (5,14).

Ce résultat confirme de façon précise l'influence sur la densité de la granulométrie et de l'humidité des agrégats constituant le sol.

E-IV-) INFLUENCE DE L'HUMIDITE

E-IV-1) Généralités.

Comme nous l'avons déjà signalé, l'humidité d'un sol, paramètre variable pouvant aller d'environ 1 % (sol sec) à environ 40 % (boue), peut modifier de façon importante la géométrie du système mais aussi la texture par déformation des agrégats. Nous avons par conséquent évalué, pour des profondeurs de sol données, l'atténuation des taux de comptage liée à des variations connues de l'humidité pondérale en maintenant toutefois la densité sèche constante (c'est à dire la masse de sol sec déposée dans chaque coupelle).

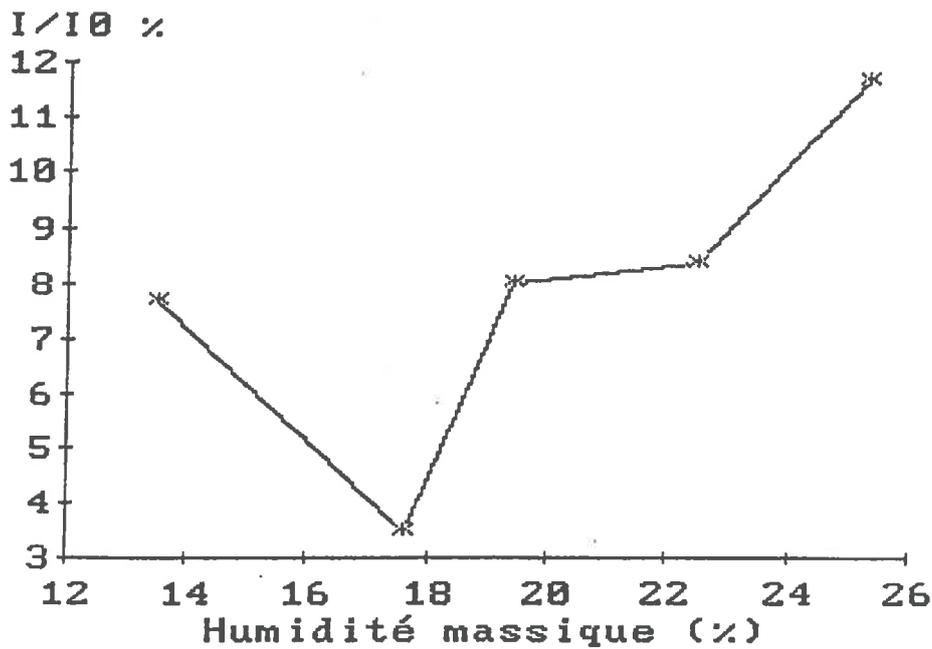


Figure 65 : ^{45}Ca (8,3 kBq) ; I/I_0 en fonction de l'humidité ; Agrégats 3-5 mm.

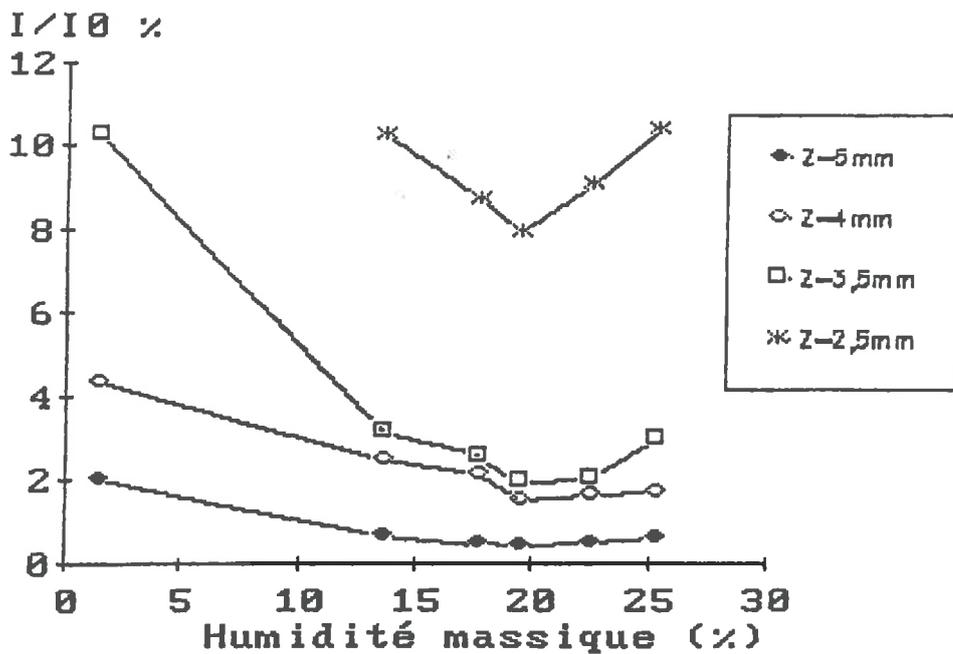


Figure 66 : ^{32}P (6,3 kBq) ; I/I_0 en fonction de l'humidité ; Agrégats 3-5 mm.

E-IV-2) Mode opératoire.

L'étude a porté sur un échantillon de ^{32}P d'activité 6,3 kBq et sur un échantillon de ^{45}Ca d'activité 8,3 kBq. Les agrégats utilisés ont été de diamètre 3 à 5 mm et ont présenté des humidités massiques de 1,38 %, 13,54 %, 17,63 %, 22,49 %, 25,26 %. Les épaisseurs de sol retenues ont été de 2,5 mm, 3,5 mm, 4 mm et 5 mm pour le ^{32}P et uniquement de 2,5 mm pour le ^{45}Ca , la densité sèche étant égale à $1,12 \text{ g.cm}^{-3}$. Dans tous les cas, l'échantillon a été présenté sous le compteur recouvert d'un film plastique et les temps de comptage ont été de 30 minutes.

Pour une profondeur x , l'atténuation I/I_0 est déterminée de la même façon que dans les deux chapitres précédents.

E-IV-3) Présentation des résultats

Les évolutions du rapport I/I_0 en fonction de l'humidité pondérale (figures 65 et 66) font clairement apparaître que l'atténuation ne répond absolument pas à une loi exponentielle mais semblerait plutôt régie par une fonction polynomiale ; de ce fait, quelle que soit l'épaisseur de sol ou la nature du radioélément, le rapport I/I_0 présente un minimum pour une humidité massique comprise entre 17 et 20 %.

Cette observation conduit à formuler des réserves sur les possibilités d'analyse quantitative en présence d'un échantillon humide :

- *toute variation même minime de l'humidité au cours d'un comptage peut introduire une incertitude sur le résultat de l'analyse ;*
- *une comparaison entre deux échantillons ne semble possible que si leur humidité respective est voisine.*

E-V-) INFLUENCE DE LA FISSURATION.

E-V-1) Généralités

Dans les paragraphes précédents, nous avons évalué la réponse du détecteur pour un dépôt radioactif de surface et pour un dépôt à une profondeur donnée. Nous avons notamment montré

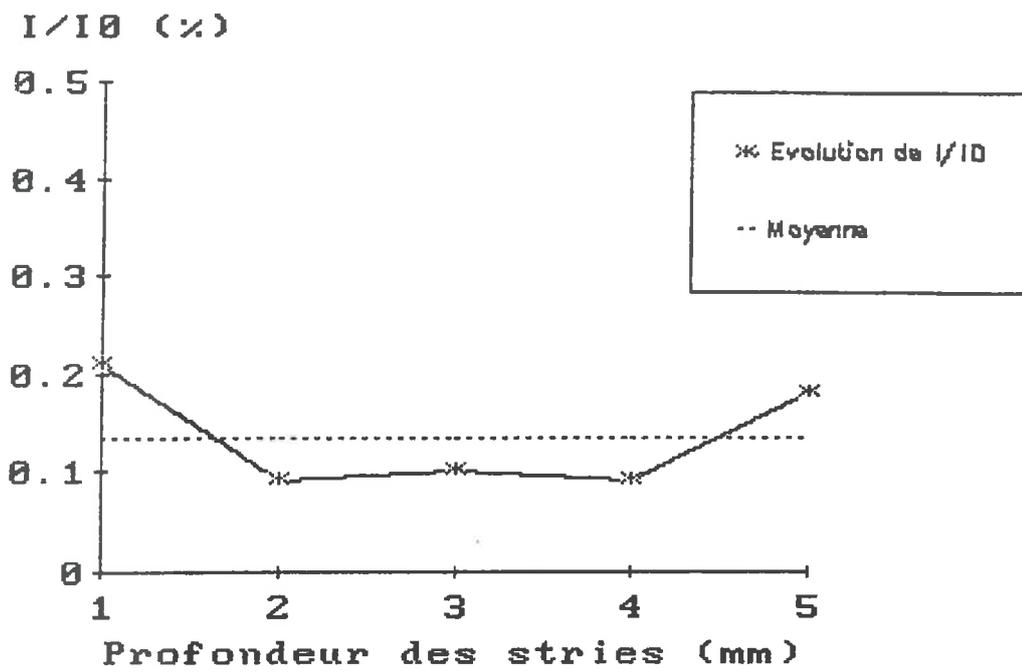


Figure 67 : ^{32}P (5,0 kBq) ; I/I_0 en fonction de la profondeur des stries ; Boue Hp = 36,9 %.

l'importance de la granulométrie de l'échantillon de sol. Dans ce paragraphe, l'objectif est d'évaluer l'influence de la fissuration d'un sol sur le taux de comptage lorsqu'un dépôt radioactif se trouve à une profondeur x .

E-V-2) Mode opératoire

Un échantillon de ^{32}P d'activité 5 kBq et un de ^{45}Ca d'activité 25 kBq ont été respectivement recouverts de 5 mm et de 2,5 mm de boue présentant une humidité massique de 36,9 %. Nous avons réalisé sur la boue, quatre encoches de 2 cm de long, 0,1 cm de large, séparées chacune de 1 cm et de profondeur variant de 0 mm à 5 mm (ou 2,5 mm pour le ^{45}Ca).

Pour une profondeur x de strie, l'atténuation est déterminée de la même façon que dans les paragraphes précédents.

E-V-3) Présentation des résultats.

Avec l'échantillon de ^{45}Ca , aucun signal supérieur au bruit de fond n'a pu être mis en évidence quelle que soit la profondeur de l'encoche. Avec le ^{32}P , les variations observées du coefficient d'atténuation (figure 67) ne peuvent pas être rattachées à la présence de stries sur l'échantillon de boue mais semblent provenir uniquement de l'atténuation par l'épaisseur de boue.

Ces observations peuvent laisser supposer qu'un dépôt radioactif situé à une profondeur x de sol n'apportera une contribution au taux de comptage que dans la limite du parcours maximal des particules β ; cela nous paraît illogique, mais les expériences n'ont pas permis de montrer que la présence de fissures modifie le taux de comptage.

CONCLUSION

Les possibilités de détection offertes par le Traceur Linéaire BERTHOLD laissent entrevoir des perspectives d'utilisation des plus intéressantes pour les travaux de recherche de l'Unité de Science du Sol de l'INRA d'Avignon-Montfavet concernant l'identification des chemins préférentiels de circulation d'eau et de solutés dans les sols.

Les différentes expériences entreprises dans la première partie de notre mémoire ont concerné la définition des conditions d'utilisation optimales de l'appareillage en fonction :

- des niveaux énergétiques des émissions β des radioéléments utilisés ;
- des spécificités de forme et de surface des échantillons de sol qu'il sera prévu d'analyser.

Ces expériences ont montré que :

- le choix des paramètres de programmation n'est pas aussi simple qu'il ne paraît. Si certains paramètres peuvent être fixés une fois pour toutes tels le gain de mesure (en fonction du radioélément), le pas de scrutation et la fente de comptage, par contre le temps de mesure global doit toujours être corrélé à la longueur du déplacement du détecteur pour pouvoir notamment sur des échantillons de taille différente obtenir la même précision de comptage et pouvoir ainsi les comparer.
- la réponse du détecteur est fortement influencée par l'énergie des rayonnements β émis mais aussi par les conditions mêmes de fonctionnement du compteur. Les nombreuses

fluctuations des taux de comptage mises en évidence rendent très délicate toute interprétation des mesures. Elles peuvent dans l'état de nos recherches s'expliquer par des phénomènes de circulation de gaz et de mise en équilibre du système de détection, par les diffusions multiples lorsque l'énergie des particules β émises est très importante (ce qui est le cas avec le ^{32}P), mais aussi par les caractéristiques même de balayage de l'échantillon (juxtaposition de positions de mesure, acquisition au cours du déplacement du compteur entre deux positions de mesure...). Nous n'avons toutefois pas eu la possibilité avec les moyens dont nous avons disposé d'analyser de façon précise la résolution spatiale de l'ensemble de détection. Une partie des perturbations constatées pourrait être minimisée si les dispositions suivantes étaient prises:

- * fente de comptage recouverte d'une feuille de mylar;
- * ensemble de détection mis sous cloche ;
- * utilisation de radioéléments émetteurs β de faible énergie.

- la position et l'orientation de l'échantillon sous le détecteur sont des paramètres très importants. Nous n'avons pas pu concevoir une distance minimale entre l'échantillon et le détecteur inférieure à deux millimètres étant donné les risques de blocage sous le compteur liés à des problèmes de planéité de l'échantillon qui seront obligatoirement aggravés avec des sols prélevés. A cette distance, il ne sera pas possible, sans disposer d'un repérage précis de l'échantillon sur la table de mesure (coordonnées X et Y, surface de référence), d'effectuer une analyse qualitative d'un comptage quelconque pour évaluer la localisation et la dimension des zones de fixation de radioactivité.

De plus, une comparaison de plusieurs échantillons provenant d'un même lot n'aura d'intérêt que si un chaque échantillon aura été présenté et orienté de la même façon sous le détecteur.

Dans la deuxième partie de notre étude, nous nous sommes plus particulièrement intéressés à la détection de particules β en présence de caractéristiques de description permanentes

(granulométrie, morphologie des particules élémentaires) ou contingentes d'un sol (humidité, densité, état de fissuration). Nous avons montré que toute variation même minime de l'une de ces caractéristiques peut entraîner une perturbation du signal provenant d'un dépôt radioactif situé à une profondeur donnée de sol.

De ce fait, il nous paraît nécessaire que l'énergie des particules β soit limitée de manière à ce que le parcours des particules β dans la matière soit le plus faible possible ;

- la détection ne sera alors reliée qu'à la présence de radioactivité en surface ou le long des parois des chemins d'écoulement que nous voulons mettre en évidence ;
- les transferts éventuels de radioactivité dans la matrice de sol à partir des fissures ne sera pas à prendre en compte.

Pour l'ensemble de ces raisons, et malgré le fait que le phosphore est sans aucun doute l'élément chimique adéquat pour les études sur des sols calcaires, le ^{32}P ne nous semble pas être le radioélément le mieux adapté. Le ^{33}P , de part ses caractéristiques énergétiques paraît beaucoup plus intéressant.

Nous rappelons à ce propos que le constructeur recommande à cause des diffusions multiples des β du ^{32}P , d'utiliser préférentiellement le ^{33}P pour obtenir une meilleure résolution spatiale, ce qui rejoint tout à fait notre point de vue.

Les perspectives réellement offertes par le Traceur Linéaire BERTHOLD paraissent dans l'état actuel, assez limitées devant la seule commercialisation du ^{32}P .

Dans l'éventualité d'une commercialisation du ^{33}P qui relancerait l'intérêt de l'utilisation de l'analyseur linéaire, ou en complément des expériences que nous avons réalisés avec le ^{32}P , il restera à définir l'importance de la fixation de radioactivité le long des chemins préférentiels d'écoulement de soluté, mais surtout, à aborder les conditions techniques de prélèvement, de préparation et de découpe des carottages de sol.

BIBLIOGRAPHIE.

- [BEG 80] : BEGUIER C., DEBIEVE J.F., DUSSAUGE J.P., ELENA M., FULACHIER L. et RESH F., *Mécanique des milieux continus*. Fascicule 1-1980. Cours de l'Ecole Supérieure d'Ingénieurs de Marseille-Institut Méditerranéen de Technologie.
- [BER *1] : BERTHOLD, *Les multi-tracemasters LB 284 et LB 285*. Documentation BERTHOLD FRANCE S.A. 68bis rue Sartoris 92250 LA GARENNE-COLOMBES.
- [BER *2] : BERTHOLD, *Operating manual, Linear analyser LB 284/LB 285 ; CHROMA*. Laboratorium Pf Dr BERTHOLD 7547 WILDBAD
- [BER *3] : BERTHOLD, *Operating manual, Two-dimensional Measurements with the Linear analyser LB 284/285*. Laboratorium Pf Dr BERTHOLD 7547 WILDBAD
- [BLA 80] : BLANC D., *Physique nucléaire-2ième édition*. MASSON 1980.
- [BOU 84] : BOUMA J., *Using soil morphology to develop measurement methods and simulation techniques for water movement in heavy clay soil*. ISSS symposium proceedings at ILRI, WAGENINIGEN , The netherlands. 1984
- [CEA 73] : CEA, *Mesures d'activité nucléaire*. MASSON et CIE 1973.
- [CEA 83] : CEA, *Limite de détection d'un signal dans un bruit de fond ; Application aux mesures de radioactivité par comptage*. Groupe de travail "Techniques analytiques"-C.E.N de GRENOBLE ; RAPPORT CEA R 5201-1983.

- [COC 80] : COCKBORNE (de) A.M., *Tranfert des nitrates en milieu poreux saturé en présence d'une porosité structurale*. THESE 25 NOVEMBRE 1980
- [COU 84] : COURSOL N., *Table de radionucléides* ; LMRI, Janvier 1984.
- [DAG 78] : DAGNELIE P., *Théorie et Méthodes Statistiques ; Applications Agronomiques*. Volume II. 1978. Les méthodes de l'inférence statistique. Les Presses Agronomiques de GEMBLoux ; Diffusion VANDER-OYEZ.
- [FIL *] : FILTHUTH H., *Digital autoradiograph. A new detector for radiochromatography and electrophoresis*. LABOR. PROF. DR. BERTHOLD 7547 WILDBAD BDR.
- [FIL 85] : FILTHUTH H., *Direct quantitative measurement of radiochromatograms and electropherograms with Position-Sensitive Wire Chambers*. Synthesis and Applications of Isotopically Labelled Compounds 1985 ; Proceedings of Second International Symposium, Kansas City, USA 3-6 Sept. 1985. R.R MUCCINO (Ed.), 465-472, 1986 Elsevier Science Publishers B.V. Amsterdam.
- [FIL 86] : FILTHUTH H., *Detection of radiochromatograms and electropherograms with Position-Sensitive Wire Chambers*. Analytical and chromatographic techniques in Radiopharmaceutical Chemistry-CHAPTER 4-Edited by Donald M. WIELAND, Michael C. TOBES, Thomas J. MANGNER-1986.
- [GAR 86] : GARCIA M., *Transferts d'eau et de nitrate dans le sol en présence d'une fonction puits racinaire : étude expérimentale*. Mémoire de fin d'année d'études-ENITA BORDEAUX-Promotion 1983-1986
- [GARD 59] : GARDEL R., *La radioactivité ; le point de vue de la protection et des services sanitaires*. FRANCE SELECTION 1959.

- [G & G 85] : GRANIER R. et GAMBINI D.J., *Radiobiologie et radioprotection appliquées*. EDITIONS MEDICALES INTERNATIONALES 1985.
- [HAR 72] : HARALD A. ENGE, *Introduction à la physique nucléaire*. MASSON ET CIE EDITEUR 1972.
- [INR 75] : INRS-SCPRI, 32P *Fiche technique de radioprotection pour utilisation de radioélément*. EDITION INRS n° 908, tiré à part des cahiers de notes documentaires "n° 78-1^{ier} Trimestre 1975".
- [INRS 75] : INRS - SCPRI, 45Ca *Fiche technique de radioprotection pour utilisation de radioélément*. EDITION INRS n° 905, tiré à part des cahiers de notes documentaires "n° 78-1^{ier} Trimestre 1975".
- [MAR 85] : MARSHALL J.C., *Transfert des ions nitrate et phosphate en milieu poreux hétérogène non saturé*. DESS SCIENCE DE L'EAU-OCTOBRE 1985-USTL-ENGREF MONTPELLIER.
- [PAN 66] : PANNETIER R., *Vade-mecum du technicien, contrôle des rayonnements ionisants et mise en oeuvre des techniques de protection*. TOME PREMIER, IMPRIMERIE MAISONNEUVE, SAINTE RUFFINE, 1966.
- [R & C 74] : RODIER J. et CHASSANY J.P., *Manuel de radio-protection pratique*. MALOINE EDITEUR-1974
- [ROD 84] : RODIER J., *L'analyse de l'eau, eaux naturelles, eaux résiduaires, eau de mer*. 7ième édition-DUNOD-1984
- [S & O 80] : SIMONNET G. et ORIA M., *Les mesures de radioactivité à l'aide des compteurs à scintillation liquide*. EYROLLES 1980.
- [STE 83] : STENGEL P., *Analyse de la porosité*. Séminaire CEE-AGRIMED 14-18 MARS 1983

ANNEXES

	Pages
ANNEXE 1 : Calculs statistiques appliqués aux comptages	II
ANNEXE 2 : Equations relatives à la régression	III
ANNEXE 3 : Limites de détection d'un signal	VII

ANNEXE 1 : CALCULS STATISTIQUES APPLIQUES AUX COMPTAGES

X est une variable aléatoire, X_i sont des valeurs particulières de cette variable.

I-) MOYENNE

La moyenne est un paramètre de tendance centrale. Elle est définie par :

$$\bar{X} = \frac{\sum_{i=1}^n X_i}{n}$$

II-) ECART-TYPE

L'écart-type est un paramètre de dispersion. Il est défini

- lorsque la donnée entière d'une population finie est utilisée pour déterminer l'écart-type de la population, par :

$$\sigma_n = \left[\frac{\sum_{i=1}^n (X_i - \bar{X})^2}{n} \right]^{\frac{1}{2}}$$

- lorsque une donnée d'échantillon d'une population est utilisée pour déterminer l'écart-type de la population, par :

$$\sigma_{n-1} = \left[\frac{\sum_{i=1}^n (X_i - \bar{X})^2}{n-1} \right]^{\frac{1}{2}}$$

III-) COEFFICIENT DE VARIATION

Il est défini par le rapport de l'écart-type sur la moyenne :

$$C.V = \frac{\sigma}{\bar{X}}$$

ANNEXE 2 : EQUATIONS RELATIVES A LA REGRESSION

I-) EQUATIONS GENERALES :

La formule de régression pour n couples de valeurs (x_i, y_i) est :

- pour la régression linéaire $Y = a + (b.X)$
- pour la régression exponentielle $Y = a . e^{(b.X)}$

avec : a : terme constant (ou ordonnée à l'origine) :

$$a = \frac{\Sigma Y - (b.\Sigma X)}{n}$$

b : coefficient de régression (ou pente) :

$$b = \frac{(n.\Sigma XY) - (\Sigma X.\Sigma Y)}{(n.\Sigma X^2) - (\Sigma X)^2}$$

Le coefficient de corrélation r caractérisant la représentativité des couples de points par la régression utilisée, est défini par :

$$r = \frac{(n.\Sigma XY) - (\Sigma X.\Sigma Y)}{(\left[(n.\Sigma X^2) - (\Sigma X)^2 \right]. \left[(n.\Sigma Y^2) - (\Sigma Y)^2 \right])^{\frac{1}{2}}}$$

II-) INTERVALLE DE CONFIANCE DES COEFFICIENTS a ET b ET DES VALEURS ESTIMEES INDIVIDUELLES DE LA REGRESSION. [DAG 78]

Ces intervalles sont :

- pour le coefficient de régression b :

$$b' = b + t_{1-\alpha/2} \left[\frac{\sigma^2 XY}{SCE_x} \right]^{\frac{1}{2}} \quad \text{et} \quad b'' = b - t_{1-\alpha/2} \left[\frac{\sigma^2 XY}{SCE_x} \right]^{\frac{1}{2}}$$

┌──────────┐
|
Ecart-type de b

avec $\sigma^2 XY$ estimation de la variance résiduelle définie par :

$$\sigma^2 XY = \frac{SCE_y - (SPE^2 / SCE_x)}{(n-2)}$$

où SCE_x : somme des carrés des écarts de X

$$SCE_x = \sum X^2 - \frac{1}{n} (\sum X)^2$$

SCE_y : somme des carrés des écarts des Y

$$SCE_y = \sum Y^2 - \frac{1}{n} (\sum Y)^2$$

SPE : somme des carrés des écarts du produit XY

$$SPE = \sum XY^2 - \frac{1}{n} (\sum X \cdot \sum Y)^2$$

$t_{1-\alpha/2}$ est la valeur relative à la distribution de Student à n-2 degrés de liberté et pour un niveau de confiance α .

- pour le terme constant a :

$$a' \text{ (ou } a'') = a \pm t_{1-\alpha/2} \left[\underbrace{\sigma^2 XY \left(\frac{1}{n} + \frac{\bar{X}^2}{SCE_x} \right)}_{\text{Écart-type de a}} \right]^{\frac{1}{2}}$$

- pour les valeurs individuelles estimées

$$y' \text{ ou } y''(x_0) = y(x_0) \pm t_{1-\alpha/2} \left[\sigma^2 XY \left(\frac{n+1}{n} + \frac{(x_0 - \bar{X})^2}{SCE_x} \right) \right]^{\frac{1}{2}}$$

III-) TEST DE CONFORMITE DES COEFFICIENTS a ET b. [DAG 78]

Ce test est basé sur la détermination d'un t de Student observé qu'il est nécessaire de comparer à $t_{1-\alpha/2}$ de Student pour n-2 degrés de liberté et pour un niveau de confiance α .

- pour le coefficient de régression :

$$t_{\text{obs}} = \frac{|b|}{\text{Écart-type de b}}$$

b, différent de zéro si t_{obs} est supérieur ou égal à $t_{1-\alpha/2}$.

- pour le terme constant :

$$t_{\text{obs}} = \frac{|a|}{\text{Ecart-type de } a}$$

a est différent de l'ordonnée à l'origine si t_{obs} est supérieur ou égal à $t_{1-\alpha/2}$.

Pour une série de points, les coefficients de la régression, l'écart-type et la valeur du t observé de ces coefficients ainsi que les valeurs individuelles estimées de la régression sont directement accessibles grâce au programme informatique que nous avons utilisé.

IV-) TEST D'EGALITE DE DEUX COEFFICIENTS DE REGRESSION [DAG 78]

Le test d'égalité de deux coefficients de régression qui constitue un test de parallélisme des droites de régression nécessite le calcul de la quantité :

$$t_{\text{obs}} = \frac{|b_1 - b_2|}{\left[\sigma^2_{XY} \left(\frac{1}{\text{SCE}_{X_1}} + \frac{1}{\text{SCE}_{X_2}} \right) \right]^{\frac{1}{2}}}$$

avec

$$\sigma^2_{XY} = \frac{(n_1 - 2) \sigma^2_{XY_1} + (n_2 - 2) \sigma^2_{XY_2}}{n_1 + n_2 - 4}$$

les indices 1 et 2 se rapportent respectivement au premier et deuxième échantillon.

t observé est à comparer à la valeur $t_{1-\alpha/2}$ de Student pour $n_1 + n_2 - 4$ degrés de liberté et pour un niveau de confiance α .

L'hypothèse d'égalité est rejetée lorsque t observé est supérieur ou égal au t théorique.

V-) TEST D'EGALITE DE PLUS DE DEUX COEFFICIENTS DE REGRESSION. [DAG 78]

Ce test nécessite d'établir le tableau d'analyse de la variance suivant :

Sources de variation	Degrés de liberté	Somme des carrés des écarts	Carrés moyens	F
Régression linéaire moyenne	1	SCEl	CMl	F1
Non-parallélisme	p - 1	SCEb	CMb	Fb
Ecart par rapport aux régressions linéaires	n. - 2p	SCExy	CMxy	
Totaux	n. - p	SCEy		

avec :

n. = $\sum ni$: somme des effectifs des échantillons
 p : nombre d'échantillons

et

$$SCEl = \frac{\left[\sum_{i=1}^p (SPE)_i \right]^2}{\sum_{i=1}^p (SCEx)_i}$$

$$SCEl = \sum_{i=1}^p (SCEl)_i - SCEl$$

$$SCExy = \sum_{i=1}^p \left[\frac{(1 - (SPE)_i^2)}{(SCEx)_i} \right]$$

$$SCEy = \sum_{i=1}^p (SCEy)_i$$

L'hypothèse d'égalité des coefficients de régression est rejetée si la valeur Fb observée est inférieure à la valeur $F_{(1-\alpha)}$ de la distribution de Snedecor à p-1 et n.-2p degrés de liberté.

ANNEXE 3 : LIMITES DE DETECTION D'UN SIGNAL [CEA 83]

I-) TAUX DE COMPTAGE NET :

La valeur de S (taux de comptage net) est :

$$S = \frac{N_2}{t_2} - \frac{N_1}{t_1}$$

$$\text{de variance } \sigma_s^2 = \frac{1}{t_2^2} \sigma_{N_2}^2 + \frac{1}{t_1^2} \sigma_{N_1}^2 = \frac{B + S}{t_2} + \frac{B}{t_1}$$

N_1 : comptage du bruit de fond pendant un temps t_1

$$N_1 = B \cdot t_1 \text{ de variance } \sigma_{N_1}^2 = B \cdot t_1$$

N_2 : comptage du signal et du bruit de fond pendant un temps t_2

$$N_2 = (B+S) \cdot t_2 \text{ de variance } \sigma_{N_2}^2 = (B+S) \cdot t_2$$

II-) SEUIL DE DETECTION S_0 :

C'est la valeur du résultat de mesure pour laquelle l'incertitude aléatoire relative est égale à ± 100 % au niveau de probabilité 95 %.[CEA 83]

Lorsque la mesure a donné un résultat égal à S_0 , l'amplitude de l'intervalle de confiance de la mesure au niveau de probabilité 95 % est :

$$S_0 = 2 \cdot \sigma_{S_0} = 2 \cdot \left(\frac{B + S_0}{t_2} + \frac{B}{t_1} \right)^{\frac{1}{2}}$$

La solution de cette équation est :

$$S_0 = \frac{2}{t_2} + \left(\frac{4}{t_2^2} + 4B \left(\frac{1}{t_2} + \frac{1}{t_1} \right) \right)^{\frac{1}{2}}$$

III-) LIMITE DE DETECTION m_D :

C'est la plus petite valeur du signal vrai qui ait une probabilité au moins égale à $1 - \beta = 97,5$ % d'être détectée. [CEA 83]

Elle est égale à :

$$m_D = 2 \cdot S_0 = 4 \cdot \sigma_{S_0}$$