



CONTRIBUTION A L'ETUDE DE LA RADIOACTIVITE DES FEVES DU CACAO A MADAGASCAR, CAS DE LA PLAINE DU SAMBIRANO – AMBANJA

| Arnoldy Antonjara^{1*} | Martin Rasolonirina² | et | Frédéric Asimanana¹ |

¹Université d'Antsirana | Département de physique | Laboratoire de Métrologie Nucléaire et Environnement | Diego-Suarez | Madagascar |
²INSTN-Madagascar | Département de ATN | Laboratoire d'Analyse et Technique Nucléaire | Antananarivo | Madagascar.

|Received | 28 October 2016|

|Accepted | 12 November 2016|

|Published 15 November 2016 |

RESUME

Contexte : A Madagascar, la culture du cacao occupe une place très importante pour le développement socio-économique du pays. Depuis quelques temps, les cultivateurs ont remarqués des énormes réductions en termes de production. **Objective :** Ce travail a pour but d'étudier les activités des éléments radioactifs présents dans la fève du cacao par la méthode de spectrométrie gamma. **Méthode :** Des échantillons de la fève du cacao ont été prélevés et analysés pour identifier les activités spécifiques du potassium-40, des familles de l'Uranium-238 et du Thorium-232. Ces échantillons ont été analysés dans un laboratoire d'analyse et technique nucléaire sur une chaîne de spectrométrie gamma, muni d'un détecteur NaI(Tl) et du logiciel Scinti-vision. Le traitement des spectres a été réalisé en utilisant la méthode de Rybach. **Résultats :** Après l'analyse, les résultats suivants ont été obtenus : les activités spécifiques du potassium-40 de la fève varie de (712 ± 49) Bq.kg⁻¹ à (1086 ± 62) Bq.kg⁻¹, avec une valeur moyenne 902 Bq.kg⁻¹. Les activités spécifiques de la famille de l'uranium-238 varie de $(120 \pm 7,48)$ Bq.kg⁻¹ à $(237 \pm 9,67)$ Bq.kg⁻¹ avec une moyenne de 178 Bq.kg⁻¹. Et le troisième radionucléide naturel étudié c'est le thorium-232. Son activité spécifique dans la fève du cacao varie de (499 ± 21) Bq.kg⁻¹ à (809 ± 32) Bq.kg⁻¹, avec une moyenne de 640 Bq.kg⁻¹. **Conclusion :** Les valeurs moyennes des activités spécifiques des trois radionucléides naturels étudiés sont supérieures à la valeur moyenne mondiale.

Mot clés : radionucléide naturels, spectrométrie gamma, activité, dose absorbée

ABSTRACT

Background: In Madagascar, cocoa culture occupies a very important place for socio-economic development. Recently, farmers have noticed huge cuts in production. **Objective:** This work aims to study the activities of radioactive elements in the bean cocoa by the method of gamma spectrometry. **Methods:** Samples of the cocoa bean were collected and analyzed to identify the specific activities of potassium-40, families of uranium-238 and thorium-232. These samples were analyzed in a laboratory for analysis and nuclear gamma spectrometry technique on a chain, with a NaI (Tl) detector and Scinti-vision software. The processing of the spectra was performed using the method of Rybach. **Results:** After the analysis, the following results were obtained: the specific activities of potassium-40 bean varies from (712 ± 49) Bq.kg⁻¹ to (1086 ± 62) Bq.kg⁻¹, with a mean value 902 Bq.kg⁻¹. The specific activities of the family of uranium-238 ranges from (120 ± 7.48) Bq.kg⁻¹ to (237 ± 9.67) Bq.kg⁻¹ with an average of 178 Bq.kg⁻¹. And the third studied natural radionuclide is thorium-232. Its specific activity in the cocoa bean varies from (499 ± 21) Bq.kg⁻¹ to (809 ± 32) Bq.kg⁻¹, with an average of 640 Bq.kg⁻¹. **Conclusion:** The mean values of the specific activities of the three natural radionuclides studied are higher than the global mean value. **Keywords:** natural radionuclide, gamma spectrometry, activity, absorbed dose

1.INTRODUCTION

A Madagascar, la culture du cacao occupe une place très importante pour le développement socio-économique du pays. Depuis quelques temps, les cultivateurs ont remarqués des énormes réductions en termes de production. Le changement climatique peut être l'un de facteur Comme toute spéculation. Il entraîne des pertes économiques pour les cultivateurs alors que sa cause exacte reste encore méconnue.

La radioactivité est omniprésente dans notre environnement. Sa teneur varie d'un milieu à un autre et d'une profondeur à une autre. Cette variation dépend des caractères pédologiques et géologiques du milieu considéré et parfois de l'influence des expériences et accidents nucléaires. L'écorce terrestre est en grande partie responsable de la formation et du support des éléments émetteurs de la radioactivité naturelle, en ce qui concerne les éléments telluriques.

Le but de cette recherche est focalisé sur les activités des éléments radioactifs présents dans la fève du cacao. Pour y parvenir, nous tenons compte de trois éléments majeurs responsables de la radioactivité naturelle, à savoir le Potassium-40, la famille de l'uranium-238 et celle du Thorium-232.

2. MATERIELS ET METHODOLOGIE

Les analyses quantitative et qualitative des échantillons nécessitent une méthodologie adéquate pour de meilleures précisions. Les chaînes de spectrométrie gamma au détecteur NaI(Tl) ont des résolutions assez limitées mais qu'elles compensent par une efficacité en énergie d'une très bonne qualité sur tout le spectre. Ce qui leur permet une utilisation indéfectible sur les analyses des échantillons environnementaux.

1. Etalonnage

En spectrométrie gamma, il existe deux types d'étalonnage tels que l'étalonnage en énergie et en efficacité.

1-1. Etalonnage en énergie

Pour identifier les radionucléides, la chaîne de mesure doit être étalonnée en énergie. Cela consiste à établir une relation entre le numéro de canal et l'énergie déposée du radionucléide. Pour se faire, on utilise les matériaux de références comme étalons. A partir du spectre obtenu, on relève le numéro de canal C représentant le centroïde du pic et son énergie E correspondante.

Etant donné que la relation est linéaire, l'équation est donnée sous forme de :

$$E = aC + b \quad (1)$$

Les coefficients a et b sont déterminés par la méthode des moindres carrés. Ainsi, on a une formule de la forme:

$$a = \frac{\sum(C_i - \bar{C})(E_i - \bar{E})}{\sum(C_i - \bar{C})^2} \quad \text{et} \quad b = \bar{E} - a \cdot \bar{C} \quad (2)$$

D'après les données du tableau suivant, l'équation d'étalonnage devient :

$$E = 3,83C - 27,349 \quad (3)$$

A l'aide de cette équation, les énergies calculées avec leurs écarts relatives sont aussi présentées dans le tableau 1 :

Tableau 1 : Le tableau montre le résultat d'étalonnage en énergie.

Famille	Radionucléide	Numéro de canal	Energie donnée (keV)	Energie calculée (keV)	Ecart relative (%)
U - 238	^{214}Pb	99	351,9	352,3	0,12
K - 40	^{40}K	388	1461,0	1460,71	0,02
U - 238	^{214}Bi	467	1764,5	1763,68	0,05
Th - 232	^{208}Tl	689	2614,5	2614,5	0,00

A partir de l'équation (2), on a une représentation graphique de cette droite qui est montrée sur la figure 1.

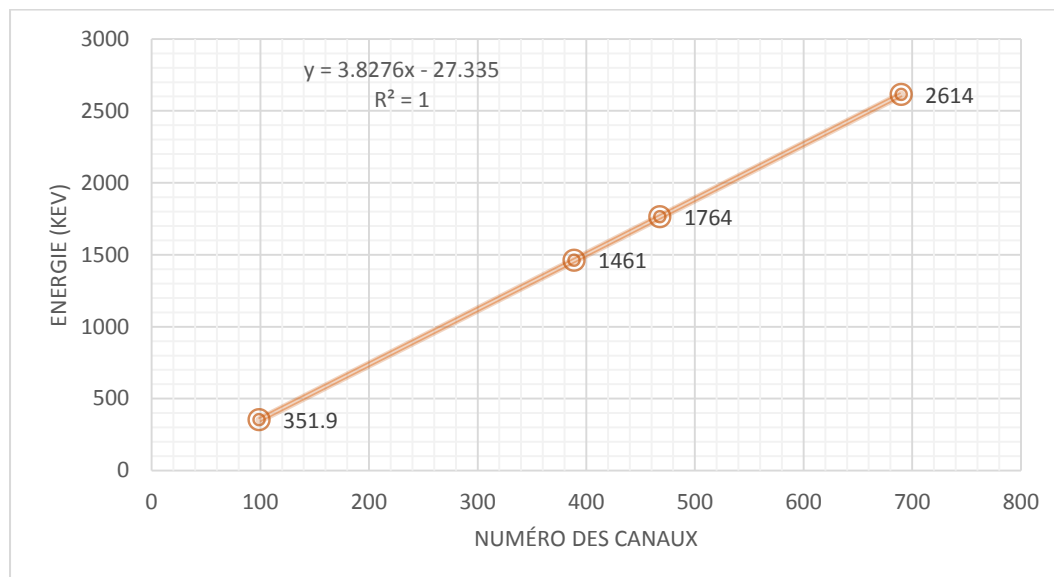


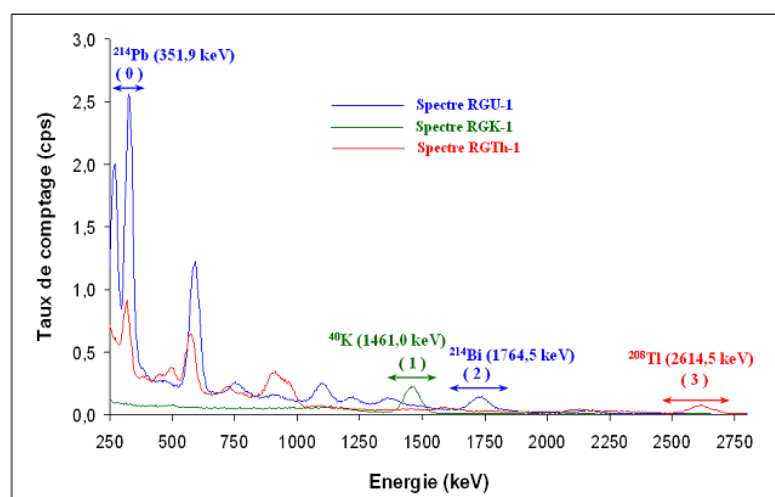
Figure 1: Etalonnage en énergie

1.2. Etalonnage en efficacité

L'étalonnage en efficacité utilise la méthode développée par RYBACH, 1971 et 1988 [2,3].

Il a suggéré que la largeur des régions d'intérêt devrait être égale à 10% de l'énergie du radionucléide caractéristique [1,3].

La figure suivante illustre les régions d'intérêt s'étendant sur une plage d'énergie allant de 0 keV à 3000 keV. Mais pour bien récupérer la surface du pic entier, nous avons élargies cette région jusqu'à 15 % de l'énergie [4]. Dans ce travail, nous avons exploités 4 régions des radionucléides ^{214}Pb (351,9 keV), ^{40}K (1461,0 keV), ^{214}Bi (1764,5 keV) et ^{208}Tl (2614,5 keV) [8]. L'activité de l'uranium est obtenue à partir de la moyenne du ^{214}Pb et du ^{214}Bi et son incertitude est représentée par l'écart-type. L'activité du thorium est donnée par le ^{208}Tl .



Source : laboratoire de l'INSTN-Madagascar

Figure 2 : spectre d'étalon représentant les 04 régions d'intérêt

La région (0) représente le plomb-214, issu de la famille de l'uranium-238.

La région (1) représente le potassium-40.

La région (2) est pour le bismuth-214, issu de la famille de l'uranium-238.

La région (3) est pour le thallium-208, des séries de désintégration de la famille du thorium-232.

Il est noté qu'il y a une contribution des autres radionucléides à l'intérieur de chaque région d'intérêt.

Le taux de comptage net $R_{i,j}$ est proportionnel aux activités $A_{k,j}$. Les indices i (0 à 3), j (1 à 3) et k (1 à 3) sont respectivement pour les régions d'intérêt, étalons et radionucléides. Ces étalons sont représentés par les matériaux de référence RGK-1, RGU-1 et RGTh-1. Les radionucléides sont le ^{40}K , ^{238}U et le ^{232}Th .

$$R_{i,j} = \sum_{k=1}^3 \epsilon_{i,k} A_{k,j} \tag{4}$$

Qui est donné par la relation suivante:

$$R_{i,j} = \frac{N_{i,j}}{t_j} - R_{ib} \tag{5}$$

Les constantes d'étalonnage $\epsilon_{i,k}$ sont déterminées à partir des activités des matériaux de référence et des taux de comptage des régions d'intérêt spécifiées. Les taux de comptage nets sont obtenus en retranchant du bruit de fond. Ainsi, à l'aide de la relation (4) on obtient un système d'équation linéaire de la forme $i \times j$ (4×3).

Les concentrations de l'uranium et du thorium dans le RGK-1 sont négligeables. De même pour les concentrations du potassium et du thorium dans le RGU-1 sont aussi négligeables. Par contre, les concentrations de trois éléments sont considérées dans le RGTh-1. En effet, les douze constantes d'étalonnage $\epsilon_{i,k}$ sont réduites à 9 et données par les relations (5).

$$\begin{cases} R_{U'} = \epsilon_{0,2} A_{U'} + \epsilon_{0,2} A_{Th} \\ R_K = \epsilon_{1,1} A_K + \epsilon_{1,2} A_U + \epsilon_{1,3} A_{Th} \\ R_U = \epsilon_{2,2} A_U + \epsilon_{2,3} A_{Th} \\ R_{Th} = \epsilon_{3,2} A_U + \epsilon_{3,3} A_{Th} \end{cases} \tag{6}$$

Avec

$R_{U'}, R_K, R_U$ et R_{Th} : taux de comptage des éléments considéré dans la région correspondante,

$A_{U'}, A_K, A_U$ et A_{Th} : Activité des éléments considéré dans la région correspondante

1-3 Valeurs des constantes d'efficacités obtenues

Les constantes d'efficacité calculées à l'aide des équations (5) à (6) sont représentées dans le tableau 4.

Tableau 2: Valeurs calculées des constantes d'efficacités

Désignation	Constane d'efficacité
$\epsilon_{0,2}$	$(5,08 \pm 0,09).10^{-3}$
$\epsilon_{0,3}$	$(1,69 \pm 0,05).10^{-3}$
$\epsilon_{1,1}$	$(2,07 \pm 0,06).10^{-3}$
$\epsilon_{1,2}$	$(0,99 \pm 0,08).10^{-3}$
$\epsilon_{1,3}$	$(0,01 \pm 0,02).10^{-3}$
$\epsilon_{2,2}$	$(2,94 \pm 0,08).10^{-3}$
$\epsilon_{2,3}$	$(0,02 \pm 0,02).10^{-3}$
$\epsilon_{3,2}$	$(0,01 \pm 0,02).10^{-3}$
$\epsilon_{3,3}$	$(3,86 \pm 0,11).10^{-3}$

Détermination des activités de l'échantillon

En sachant les taux de comptage nets des quatre régions d'intérêt ($R_{U'}$, R_K , R_U et R_{Th}) ainsi que les efficacités du comptage, les activités inconnues du ^{40}K (A_K), de ^{238}U (A_U) et du ^{232}Th (A_{Th}) des échantillons peuvent être calculées à l'aide du système d'équation (4). Ainsi, les activités sont données par le système d'équation (5). L'activité de l'uranium est la moyenne de $A_{U'}$ et A_U .

$$\begin{cases} A_{U'} = a_{0,1}R_{U'} & + a_{0,3}R_U + a_{0,4}R_{Th} \\ A_K = & a_{1,1}R_K + a_{1,2}R_U + a_{1,3}R_{Th} \\ A_U = & a_{2,2}R_U + a_{2,3}R_{Th} \\ A_{Th} = & a_{3,2}R_U + a_{3,3}R_{Th} \end{cases} \quad (7)$$

2. Incertitude et limite de détection

2.1. Calcul des incertitudes

Comme la désintégration radioactive est un phénomène aléatoire dans le temps, le nombre de coup enregistré est variable. En effet, la valeur obtenue est une valeur moyenne de comptage avec son incertitude. Cette incertitude est meilleure si le comptage est suffisant, c'est-à-dire, l'incertitude de mesure est inférieure à 1%. Ainsi, cette incertitude est nécessaire pour chaque mesure. Dans la statistique, l'incertitude de comptage $\cdot n$ est définie par la relation

$$\sigma_N = \sqrt{N} \quad (8)$$

Considérant qu'une fonction u dépend de plusieurs variables (x, y, z, \dots). La propagation des incertitudes de cette fonction, en terme du carré de l'écart type est de la forme de :

$$\sigma_u^2 = \left(\frac{\partial u}{\partial x}\right)^2 \sigma_x^2 + \left(\frac{\partial u}{\partial y}\right)^2 \sigma_y^2 + \left(\frac{\partial u}{\partial z}\right)^2 \sigma_z^2 \dots \quad (9)$$

2.2. Limite de détection

La limite de détection LD_n de chaque nucléide n dépend du taux de comptage du bruit de fond, du temps d'acquisition et de la constante d'étalonnage. Elle n'est donc pas la même sur tout le spectre et est donnée par la relation :

$$LD_n = \frac{2\sqrt{2}}{\epsilon_{i,k}} \sqrt{\frac{B_i}{t}} \quad (10)$$

3. Matériels

La chaîne spectrométrie gamma utilisée est composée d'un détecteur NaI(Tl) de marque ORTEC et de model 905-4, et qui comporte un photomultiplicateur, un générateur à haute tension, un préamplificateur-amplificateur et un MCA intégrés. Le signal délivré par la chaîne est ensuite véhiculé par un câble USB vers un micro-ordinateur dans lequel est installé le logiciel Scinti-Vision qui sert à dépouiller les données.

3. RESULTAT

1 Activités spécifiques

Après avoir tenu compte de ces valeurs pour l'analyse individuelle de chaque échantillon prélevée sur le terrain, les activités spécifiques du potassium-40, de la famille de l'uranium-238 et de la famille du thorium-232 sont présentées dans le Tableau suivant, ainsi que leur limite de détection.

Tableau 3 : Activité et limite de détection des échantillons de fève du cacao dans les quatre zones d'étude.

CODE	Potassium – 40		Famille de l'U – 238		Famille du Thorium – 232	
	Activité (Bq.Kg ⁻¹)	LD _K (Bq.Kg ⁻¹)	Activité (Bq.Kg ⁻¹)	LD _U (Bq.Kg ⁻¹)	Activité (Bq.Kg ⁻¹)	LD _{Th} (Bq.Kg ⁻¹)
AR2T	638 ± 62	79,39	147 ± 9,65	21,08	398 ± 28,62	31,80
AR1F	678 ± 59	60,46	65 ± 8,55	16,06	387 ± 27,07	24,22
OC1F	475 ± 68	64,22	117 ± 9,14	17,05	327 ± 25,96	25,72
OC2C	523 ± 65	64,63	88 ± 7,92	17,16	281 ± 24,12	25,89
OC3T	408 ± 54	63,26	99 ± 9,14	16,80	331 ± 26,17	25,34
SC3F	532 ± 49	59,87	59 ± 7,48	15,90	173 ± 24,74	23,98
SC4T	642 ± 50	59,68	97 ± 8,54	15,85	298 ± 22,28	23,91
SC5T	623 ± 49	56,30	138 ± 8,50	14,95	294 ± 20,92	22,55

SC21C	839 ± 69	67,71	134 ± 10,99	17,98	337 ± 28,39	27,2
--------------	----------	-------	-------------	-------	-------------	------

4. DISCUSSION

1. Activités spécifique de trois principaux radionucléides naturels de la fève du cacao

Le Cacao est le fruit du cacaoyer, Les principales variétés de cacao sont : les Criollo, les Forastero et les Trinitario.

L'activité spécifique du potassium-40 est les plus abondants par rapport aux autres radionucléides naturels. On n'a constaté que les fèves à forte tendance trinitario sur un site d'Antanimena (AR2T) à la valeur d'activité spécifique du potassium-40 le plus élevé, qui est (1390 ± 62) Bq. kg⁻¹. C'est dans le même site que la famille de l'Uranium-238 est dominant par rapport aux autres sites.

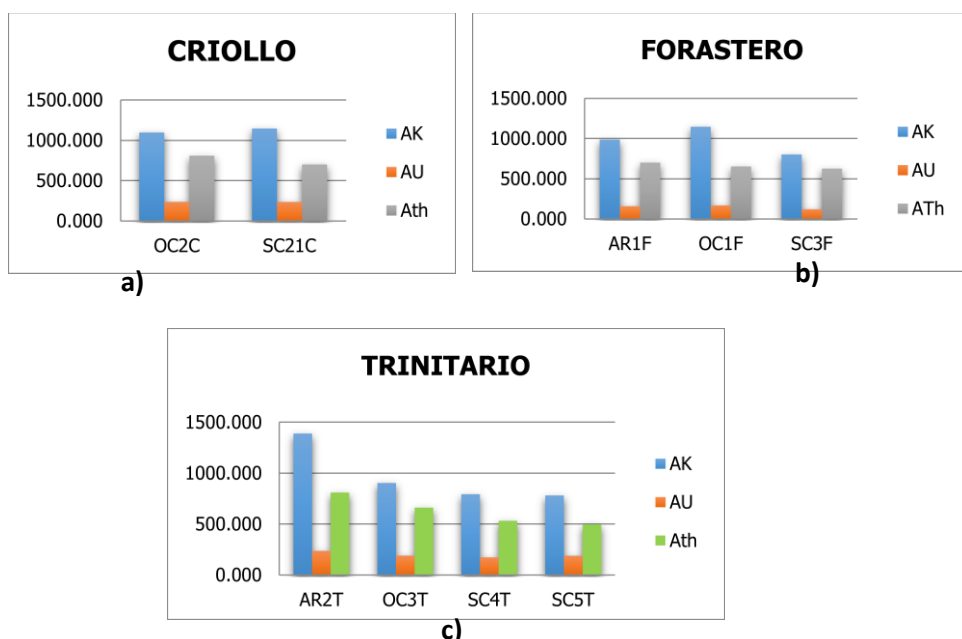


Figure 3: Activités spécifiques des trois radionucléides naturels dans les échantillons de la fève du cacao analysés

2. Impact dosimétrique

L'impact dosimétrique est déterminé en évaluant les doses de rayonnements gamma reçues par une population exposée. Il s'exprime en Sievert (Sv). On emploie souvent un sous-multiple, le milli-Sievert (1 mSv = 10⁻³ Sv). Par ailleurs, la limite de dose maximale annuelle admissible pour le public étant 1 milli-Sievert par an (1 mSv.an⁻¹) [10].

2-1. Evaluation de l'exposition externe

2-2. Estimation de la dose absorbée

La dose absorbée du rayonnement gamma dans l'air à 1 mètre au-dessus du sol est exprimé par la relation ci-après [10, 9].

$$Da = C_K A_K + C_U A_U + C_{Th} A_{Th} \quad (11)$$



Figure 3 : Dose absorbé du ^{40}K , de la famille de l' ^{238}U et de la famille du ^{232}Th

Estimation de la dose efficace annuelle

Pour estimer la dose efficace annuelle dans l'air libre, il faut considérer le coefficient de conversion (Q) $0,7 \text{ Sv.Gy}^{-1}$ (en sievert par gray) de la dose absorbée à la dose efficace.

Ensuite, On suppose qu'un individu passe environ de 20% de son temps à l'extérieur d'un bâtiment. Alors, le taux d'occupation (Q_{τ}) moyen est équivalent à 0,2. Ainsi, la dose efficace annuelle dans l'air libre est donnée par la relation suivante [9]:

$$De = Da \cdot Q_{\tau} \cdot Q \cdot T \cdot 10^{-6} \quad (12)$$

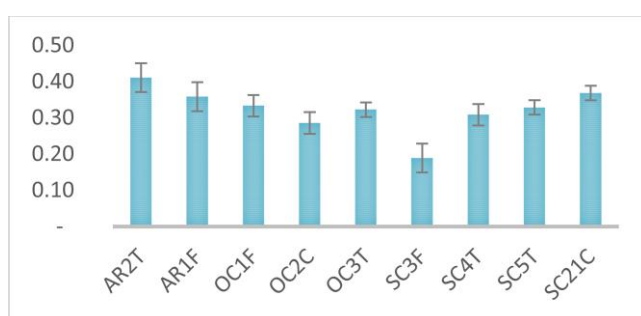


Figure 4 : Estimation de la dose efficace annuelle

On a constaté que la dose absorbée de toute les site considéré varie de $(153 \pm 26) \text{ nGy.h}^{-1}$ à $(335 \pm 34) \text{ nGy.h}^{-1}$. La moyenne vaut $(263 \pm 31) \text{ nGy.h}^{-1}$. On remarque qu'aucune des valeurs de dose absorbée sont inférieures à la moyenne mondiale 57 nGy.h^{-1} [11]. Dans le cas de la dose efficace annuelle, sa moyenne mondiale reçue par un individu à l'air libre est de $0,07 \text{ mSv.an}^{-1}$ [11].

4. CONCLUSION

Madagascar est l'un des pays producteur du cacao, ayant la meilleure qualité mais de faible quantité. La présente étude nous a permis d'évaluer le niveau des radionucléides telluriques dans le cacao longeant la plaine du Sambirano et qui regroupe trois localités, dont Ambalavelona, Ankatafahely et Antanimena. Elle a permis de déterminer les activités spécifiques du Potassium-40, de la famille de l'Uranium-238 et celle du Thorium-232. Les analyses quantitatives ont été faites à l'aide d'un spectromètre gamma avec un détecteur NaI(Tl) de marque ORTEC, au Département d'Analyses et Techniques Nucléaires de l'INSTN-Madagascar. Des mesures de longue durée ont été effectuées pour avoir des résultats suffisamment fiables car les statistiques de comptage influencent beaucoup sur les résultats d'analyse. Les valeurs moyennes des activités spécifiques des trois radionucléides naturels étudiés sont supérieures à la valeur moyenne mondiale. Le flux de potassium joue un rôle important dans le contrôle des mouvements des cellules. C'est celui qui assure l'équilibre acido-basique. Il favorise également la photosynthèse, diminue la transpiration et réduit les risques de flétrissement en cas de sécheresse.

5. REFERENCE

- [1] Briant KALL, Theogène TOMBO. Contribution à l'étude de dose due à la radioactivité gamma du sol sur la rive de la baie des Français, Antsiranana, Madagascar. Afrique SCIENCE, ISSN 1813-548X, 11, 1(2015)122-135. <http://www.afriquescience.info/document.php?id=4238>. ISSN 1813-548X
- [2] Rybach, L., Radiometric techniques, In: Wainerdi, R. E., Uken, E. A., (Eds), Modern Methods of Geochemical Analysis, Plenum Press, New York, 1971.
- [3] Rybach, L. Determination of the heat production rate, In: R. Haenel, L. Rybach, L. Stegena (Eds), Handbook of Terrestrial Heat-Flow Density Determination, Kluwer Academic Publishers, Dordrecht, 1988.
- [4] Andrianjafitrimo. Etablissement d'un dispositif d'analyse spectrométrique au NaI(Tl): application à la caractérisation de la radioactivité des sols. Thèse de 3^e cycle, Université d'Antananarivo. 2010. P : 26
- [5] Frédéric ASIMANANA. Détermination des radionucléides dans le repas. Application aux arts culinaire de Madagascar. Afrique science 2014, Vol.10, N°3 : <http://www.afriquescience.info/document.php?id=3661>. ISSN 1813-548X.

- [7] NGANGUE LATTA T. Armand. Détermination des caractéristiques physicochimique et évaluation des teneurs en poly-phénols totaux des fèves de théobroma cacao de la localité de Mbalmayo. 2011.
- [8] Mehra, R., Singh, M., Measurement of Radioactivity of ^{238}U , ^{226}Ra , ^{232}Th and ^{40}K in Soil of Different Geological Origins in Northern India, *Journal of Environmental Protection*, 2011. p: 960-966.
- [9] Nursama H. A. et al. Activity concentration of ^{238}U , ^{232}Th and ^{40}K based on soil types in Perak State, Malaysia; *Earth Science Research*; 2013, Vol. 2, No. 2; ISSN 1927-0542, E-ISSN 1927-0550, Published by Canadian Center of Science and Education. <http://www.ccsenet.org/journal/index.php/esr/article/viewFile/25262/16072>
- [10] Al-Sulaiti, H. A. Determination of Natural Radioactivity Levels in the State of Qatar Using High-Resolution Gamma-ray Spectrometry. Thesis, University of Surrey, Guildford GU2 7XH, United Kingdom, 2011.
- [11] UNSCEAR. Sources and Effects of Ionizing Radiation: Exposures from natural radiation sources. Report to the General Assembly, Annex B, United Nations, New York, 2010.

Arnoldy ANTONJARA, Martin R., et Frédéric A. Contribution à l'étude de la radioactivité des fèves du cacao à Madagascar, cas de la plaine du Sambirano – Ambanja. *American Journal of Innovative Research and Applied Sciences*. 2016; 3(3): 520-528.

This is an Open Access article distributed in accordance with the Creative Commons Attribution Non Commercial (CC BY-NC 4.0) license, which permits others to distribute, remix, adapt, build upon this work non-commercially, and license their derivative works on different terms, provided the original work is properly cited and the use is non-commercial. See: <http://creativecommons.org/licenses/by-nc/4.0/>.