

REPUBLIQUE ALGERIENNE DEMOCRATIQUE ET POPULAIRE  
MINISTRE DE L'ENSEIGNEMENT SUPPERIEUR ET DE LA RECHERCHE  
SCIENTIFIQUE

UNIVERSITE FERHAT ABBAS- SETIF

## **THESE**

Présentée à la faculté des sciences  
Département de Physique  
Pour l'obtention du diplôme de

## **DOCTORAT EN SCIENCES**

OPTION : Physique Nucléaire

Par

**Hamidatou Lylia épouse Alghem**

## **THEME**

Mise au point de la méthode  $k_0$ -NAA en utilisant la  
convention de  $H\phi$ GDAHL et le formalisme de WESTCOTT et  
son application dans la nutrition, la santé et la minéralogie

**Soutenu le : 18/02/2010**

Devant le jury :

Président : M. Maamache Professeur, Université Ferhat Abbas de Sétif  
Rapporteur : M. Ramdhane Professeur, Université Mentouri de Constantine  
Examineur : A. Boucenna Professeur, Université Ferhat Abbas de Sétif  
A. Belafrites Maître de Conférence, Université de Jijel  
H. Ammi, Maître de Recherche, CRNA, COMENA  
Membre invité : P. Vermaercke SCK. CEN, Belgique

## DEDICACE

*A*

*Mon pays, meurtri par l'inconscience, ceux qui ont sacrifié leur vie pour la liberté,  
l'Homme, la prospérité et la sécurité,*

*Mes parents, qui m'ont donné tant de tendresse et d'amour, que Dieu tout puissant  
leurs accorde sa sainte miséricorde et les accueille en son vaste paradis,*

*A mon mari Abdeldjalil et mes enfants : Anis, Fatima zohra, Rania Malak,*

*Mes frères et sœurs : Soumeya, M<sup>ed</sup> Chaouki, Ameer et Amina,*

*A toute ma famille.*

*Je dédie ce travail...*

## REMERCIEMENTS

Ce travail de doctorat a été réalisé dans le département d'analyse par activation neutronique du Centre de Recherche Nucléaire de Birine (CRNB).

En tout premier lieu le tiens à remercier Mr M. Ramdhane, Professeur au département de physique de l'université Mentouri de Constantine d'avoir accepté de diriger ma thèse.

Je remercie Mr M. Maamache Prof. A l'Université de Sétif d'avoir accepté de présider le jury de ce travail.

Je remercie également Mrs : A Boucenna, Professeur à l'université Ferhat Abbas de Sétif, A. Belafrites Maître de Conférence à l'Université de Jijel et Mr H. Ammi Maître de recherche au centre de recherche nucléaire d'Alger CRNA/COMENA d'avoir accepté d'examiner ce travail.

Je remercie également Dr P. Vermaercke responsable du département NAA au centre SCK. CEN, Belgique.

Comment dire merci à Mr Frans De Corte le père de l'activation neutronique et le fondateur de la fameuse méthode  $k_0$ -NAA (ancien professeur à l'université de Gent Belgique). Ses compétences, sa compréhension de la physique mais aussi ses encouragements m'ont été l'un des moteurs de mon travail.

Merci spécialement à mon mari pour la compréhension dont il a fait preuve et son soutien dans des moments que j'avoue parfois très difficiles.

Je remercie également le Prof Mehdioui Hacene pour son aide et sa présence dans les moments difficiles.

Je souhaiterais également remercier Mr N. Boucherit, Maître de recherche au centre de recherche nucléaire de Birine avec lequel il est possible et intéressant de discuter, ses conseils m'ont été un grand recours.

Je suis plus que reconnaissante pour mes collègues, S. Khaled, Z. Boussaad, T. Akhal, M. Mouzai, A. Ararem et H. Slamene pour leurs participations dans les expériences.

Enfin j'exprime ma profonde gratitude à toute ma famille.

Mille excuses pour tous mes manquements durant ces quatre années...

# Sommaire

<b>INTRODUCTION GENERALE</b>	<b>1</b>
1. HISTORIQUE	1
2. INTRODUCTION	2
3. DOMAINES D'INVESTIGATION	3
<b>CHAPITRE II</b>	<b>6</b>
2.1 L'EQUATION D'ACTIVATION	6
2.1.1 Formation directe de radionucléide mesuré sans burn-up	6
2.1.2 Branchement d'activation et la désintégration mère fille	7
2.1.3 Les effets Burn-up	8
2.1.3.1 Burn-up de la cible et / ou du noyau formé directement	8
2.1.3.2 Burn-up du nucléide mère	9
2.1.3.3 Burn-up du nucléide grand-mère	10
2.1.4 Calcul des facteurs de self shielding des neutrons	16
2.2 ANALYSE PAR ACTIVATION ( $n, \gamma$ ) : PRINCIPE DE LA STANDARDISATION	19
2.2.1 La standardisation relative	19
2.2.2 Standardisation d'un seul comparateur (mono standard)	21
2.2.3 Standardisation absolue (paramétrique)	23
2.2.4 La standardisation $k_0$	24
2.2.4.1 Les Concepts de base	24
2.2.4.2 Paramètres de la méthodes $k_0$	26
2.2.4.3 Les incertitudes, la propagation d'erreur et les valeurs moyennes	27
<b>CHAPITRE III</b>	<b>29</b>
3.1 DESCRIPTION DU TAUX DE REACTION ( $n, \gamma$ )	29
3.1.1 Formule générale	29
3.1.2 Fonctions section efficace ( $n, \gamma$ ) et flux neutronique	29
3.2 CONVENTION DE HOGDAHL	33
3.2.1 Choix de la convention	33
3.2.2 Energie effective de coupure du cadmium	33

3.2.3	<i>Taux de réaction et rapport cadmium</i>	36
3.2.4	<i>La contribution de l'activation épithermique</i>	38
3.2.4.1	La distribution du flux $1/E^{1+\alpha}$ et le concept de $\overline{E}_r$	38
3.2.5	<i>Mécanisme de la convention</i>	42
3.2.5.1	Facteurs de correction $G_{th}$ , $G_{epi}$ et $F_{cd}$	43
3.2.5.2	Paramètres spécifiques du flux	44
3.3	LE FORMALISME DE WESTCOTT	48
3.3.1	<i>Le choix du formalisme</i>	48
3.3.2	<i>Mécanisme du formalisme « g+rs »</i>	49
3.3.3	<i>Les paramètres spécifiques du flux neutronique</i>	54
	<b>CHAPITRE IV</b>	<b>59</b>
4.1	DESCRIPTION DU SITE D'IRRADIATION ET DE MESURE	59
4.1.1	<i>Dispositif de mesure</i>	59
4.1.2	<i>Dispositif d'irradiation</i>	61
4.2	CARACTERISATION DES DETECTEURS Ge(HP) B96125 ET GC3520	61
4.2.1	<i>Détermination de l'efficacité de détection</i>	62
4.2.2	<i>Détermination du rapport Pic au Total</i>	64
4.2.3	<i>Correction pour les effets des vraies coïncidences</i>	66
4.3	CARACTERISATION DU FLUX NEUTRONIQUE DU CANAL V15	66
4.3.1	<i>Détermination de <math>\alpha</math> et <math>f(H\phi GDAHL)</math></i>	67
	Méthode rapport Cd d'un multi moniteur	68
	Méthode couverture Cd d'un multi moniteur	70
	La méthode d'un multi moniteur nu	71
	La méthode Bi-isotopique nu (Zr)	72
4.3.2	<i>Détermination de <math>r(\alpha)\sqrt{T_n/T_0}</math> et <math>T_n</math> (Westcott)</i>	73
	<b>CHAPITRE V</b>	<b>75</b>
5.1	SELECTION DE LA METHODE $K_0$ -NAA	75
5.2	DEVELOPPEMENT DE LA METHODE $K_0$ -NAA AU SEIN DU CRNB	77
5.3	VALIDATION	78
5.3.1	<i>Validation interne</i>	78

A. Validation par les SRM, CRM	78
B. Validation en utilisant SMELS	86
5.3.2 <i>Validation externe</i>	92
5.4 APPLICATION DE LA METHODE K <sub>0</sub> -NAA EN ROUTINE	92
<b>CHAPITRE VI</b>	<b>93</b>
6.1. APPLICATION DANS LA NUTRITION	93
6.2.1 <i>Préparation des échantillons</i>	94
6.2.2 <i>Irradiation et mesure</i>	94
6.2.3 <i>Résultats et discussions</i>	95
6.2. APPLICATION DANS LA SANTE	98
6.2.1 <i>Préparation des échantillons</i>	100
6.2.2 <i>Irradiation et mesure</i>	100
6.2.3 <i>Résultats et discussions</i>	102
6.3. APPLICATION DANS LA MINERALOGIE	105
6.3.1 <i>Préparation et échantillonnage</i>	108
6.3.2 <i>Irradiation et mesure</i>	108
6.3.3 <i>Résultats et discussions</i>	108
<b>CONCLUSION ET PERSPECTIVES</b>	<b>110</b>
<b>REFERENCES</b>	<b>113</b>
<b>ANNEXE</b>	<b>117</b>

## Liste des figures

- Figure 3.1: Représentation schématique de la fonction section efficace  $(n,\gamma)$  en fonction de E
- Figure 3.2 : Représentation schématique de la distribution du flux  $\phi'(E)$  en fonction de E
- Figure 3.3 : Non idéalité du spectre épithermique
- Figure 3.4 : (a) Courbe de la section efficace totale du Cd,  $\sigma_{\text{tot,Cd}}(E)$ , (b) fonctions T(E) et t(E) de transmission Cd réelles et idéales des neutrons, en fonction de E
- Figure 3.5 : Contribution de la distribution  $1/E$  et  $1/E^{1+\alpha}$
- Figure 4.1 : Chaîne de spectrométrie gamma utilisée pour  $k_0$ -NAA
- Figure 4.2 : Site d'irradiation étudié pour l'implémentation de la méthode  $k_0$ -NAA
- Figure 4.3 : Courbe d'efficacité du détecteur Ge(HP) DET1
- Figure 4.4 : Courbe d'efficacité du détecteur Ge(HP) DET3
- Figure 4.5 : Définition du rapport P/T du détecteur Ge(HP)
- Figure 4.6 : Courbe expérimentale du P/T du détecteur DET1
- Figure 4.7 : Détermination de alpha dans le canal étudié par la méthode  $R_{\text{Cd}}$
- Figure 4.8 : Détermination de alpha dans le canal étudié par la méthode couverture Cd
- Figure 5.1 : Cycle de vie d'une méthode analytique
- Figure 5.2: Comparaison entre les valeurs mesurées et recommandées AIEA/Soil-7
- Figure 5.3 : Comparaison entre les valeurs mesurées et recommandées AIEA/SI-1
- Figure 5.4 : Comparaison entre les valeurs mesurées et recommandées AIEA-140
- Figure 5.5 : Comparaison entre les valeurs mesurées et recommandées AIEA-405
- Figure 5.6 : Comparaison entre les valeurs mesurées et recommandées AIEA-085
- Figure 5.7 : Comparaison entre les valeurs mesurées et recommandées AIEA-336
- Figure 5.8 : Diagrammes (a - f) montrant le  $u_{\text{-score}}$  des SRM analysés dans ce travail
- Figure 5.9 : Trois types de SMELS utilisés pour la validation de la méthode  $k_0$ -NAA
- Figure 5.10 : Comparaison entre les valeurs mesurées et les valeurs informatives
- Figure 5.11 : Comparaison entre les valeurs mesurées et les valeurs informatives
- Figure 5.12 : Diagrammes montrant le  $E_{\text{n-Score}}$  de SMELS II et SMELS III
- Figure 6.1 : Comparaison des résultats  $k_0$ -NAA et les valeurs recommandées AIEA-153 et IAEA-155
- Figure 6.2 : Comparaison des résultats  $k_0$ -NAA et les valeurs du producteur M1 et M2
- Figure 6.3 : Cancer du poumon chez la femme et l'homme dans le monde



Figure 6.4 : Evaluation de la consommation du tabac en Algérie

Figure 6.5 : Production mondiale de minerai de fer

Figure 6.6 : Différents types du minerai de Fer

Figure 6.7 : Cartographie du potentiel géologique en Algérie.

Figure 6.8 : Composition élémentaire du minerai de fer de Aini

## Liste des tableaux

- Tableau 2.1 : Types de désintégration d'activation et expressions appropriées pour les paramètres impliqués dans  $k_0$ -NAA
- Tableau 3.1 : Résultats de  $f$  des sites d'irradiation selon les techniques précédentes
- Tableau 3.2 : Les résultats de  $Q_0$  avec  $r = {}^{198}\text{Au}$ .
- Tableau 3.3 : Données nucléaires des nucléides et moniteurs
- Tableau 4.1 : Caractéristique physique des détecteurs Ge(HP)
- Tableau 4.2 : Données nucléaires des sources utilisées
- Tableau 4.3 : Caractéristique des moniteurs utilisés dans les expériences
- Tableau 4.4 : données nucléaires des moniteurs utilisés.
- Tableau 4.5 : Paramètres du flux neutronique du canal étudié
- Tableau 4.6 : Les paramètres  $r(\alpha)\sqrt{T_n/T_0}$  et  $T_n$  obtenus par différentes méthodes
- Tableau 4.7 : Paramètres de flux neutronique du canal d'irradiation du réacteur Es-Salam
- Tableau 5.1 : Résultats d'analyse et performances statistiques de SMELS II
- Tableau 5.2 : Résultats d'analyse et performances statistiques du SMELS III
- Tableau 6.1 : Valeurs de concentration ( $\mu\text{g/g}$ ) du lait : M1, M2 et M3
- Tableau 6.2 : Résultats des concentrations obtenus dans AIEA-153 et AIEA-155
- Tableau 6.3 : Données appropriées pour les nucléides utilisés dans  $k_0$ -INAA
- Tableau 6.4 : Valeurs de concentration ( $\text{mg/kg}$ ) obtenues par la méthode  $k_0$ -NAA
- Tableau 6.5 : Comparaison entre nos résultats et ceux rapportés dans la littérature

## Résumé

Soucieuse de la compétitivité de la standardisation  $k_0$  de la méthode d'analyse par activation neutronique, dite  $k_0$ -NAA, avec d'autres techniques de détermination efficaces, on présente dans cette thèse l'implémentation et l'application de la méthode  $k_0$ -NAA au sein du réacteur Es-Salam.

Les bases de la méthode  $k_0$ -NAA sont la convention de Høgdahl et le formalisme de Westcott pour la description physico-mathématique du taux de réaction  $(n,\gamma)$ . On reconnaît pleinement qu'en choisissant la convention de Høgdahl, des réactions  $(n,\gamma)$  avec un facteur  $g$  Westcott s'écartant de l'unité sont en principe à exclure de toute considération. Il est toutefois démontré que les erreurs ainsi suscitées sont minimales voire négligeables, à l'exception de  $^{151}\text{Eu}$   $(n,\gamma)$  et de  $^{176}\text{Lu}$   $(n,\gamma)$  parmi 144 cas intéressants du point de vue analytique.

La méthode  $k_0$  peut être interprétée de deux façons : une standardisation absolue (flexible et simple à appliquer), dans laquelle les données nucléaires absolues ont été remplacées par une seule constante nucléaire composée, à savoir le facteur  $k_0$ , ou comme une technique mono comparateur (exacte et simple à appliquer), rendu flexible à l'égard des conditions expérimentales. Dans le présent travail, l'implémentation de la méthode  $k_0$ -NAA a été réalisée en utilisant toutes les méthodes de calibration liées au spectre de flux des neutrons thermiques et épithermiques. Sachant que les méthodes : rapport cadmium, couverture cadmium, les irradiations nues et du double isotope (Zr) ont été intensivement appliquées pour la caractérisation du site d'irradiation.

Nous avons suivi une méthodologie spécifique à la caractérisation des détecteurs Ge(HP). Elle se fonde sur la détermination expérimentale des valeurs d'efficacité des sources ponctuelles se trouvant à une grande distance du détecteur (faisable avec une exactitude de 1 à 2 % dans le domaine de l'énergie gamma analytiquement valable), suivie de la conversion de ces valeurs dans la configuration géométrique donnée. Cette conversion, qui fait usage d'angles solides « effectifs » et inclut les effets d'atténuation gamma, demande toutefois que le détecteur Ge ainsi que la source aient une forme cylindrique, parfaitement symétrique et que les dimensions de la source et du détecteur soient connus. Cette partie a été résolue par l'utilisation du logiciel Kayzero for windows. Les résultats obtenus des paramètres physiques tels que  $f$ ,  $\alpha$ ,  $\epsilon_p$  et  $T_n$  ont été vérifiés par l'utilisation d'un certain nombre de standards, CRM et SRM (Standard Reference Material). En plus, nous avons utilisé le standard SMELS (Synthetic Multi-Element Standards) qui a été récemment produit par IRMM (Institute for Reference and Measurements Materials) pour le contrôle qualité de la méthode  $k_0$ -NAA.

Dans ce travail, plusieurs applications ont été effectuées dans les domaines de la santé (analyse des éléments de traces et toxiques dans des échantillons de cigarette de tabac algérien et importé), la nutrition (Analyse élémentaire du lait en poudre consommée en Algérie) et la minéralogie (*Analyse d'un minerai de Fer situé au nord est algérien*).

## Introduction générale

### 1. Historique

L'analyse par activation neutronique instrumentale INAA était introduite en 1993 au sein du laboratoire d'analyse par activation neutronique du centre de recherche nucléaire de Birine, Algérie. Au début, toutes les analyses ont été effectuées en utilisant la méthode relative. Pour améliorer l'exactitude et la capacité analytique, nous avons pensé à l'introduction d'un nouveau concept qui est la standardisation  $k_0$ . En effet, en visant les avantages connus de la standardisation  $k_0$ , un projet pour l'implémentation de cette méthode a été conçu en 2002 et exécuté deux années plus tard. Cette méthode est basée sur la co-irradiation de l'échantillon avec le moniteur d'or et l'utilisation des constantes appelées facteurs  $k_0$ . Les travaux de développement effectués durant la période 2002 et 2005 rentrent dans le cadre de notre projet de magister. Nous avons pensé d'introduire un nouveau projet en qualité de thèse de doctorat afin d'approfondir nos connaissances dans le même axe d'investigation. L'objectif principal du présent travail est la mise au point de la méthode  $k_0$ -NAA au sein du réacteur Es-Salam et son utilisation dans différents domaines. Ceci est traduit par l'introduction d'une nouvelle procédure d'analyse allant de la préparation, l'irradiation et la mesure exigeant l'utilisation des données spécifiques aux canaux expérimentaux et à la chaîne de mesure

Dans le présent travail, nous avons utilisé le réacteur Es-Salam pour le développement de cette nouvelle technique. Cette étude a impliqué la mise en place de la méthode  $k_0$ -NAA dans deux canaux d'irradiation du réacteur Es-Salam, en utilisant la convention de HOGDAHL et le formalisme de WESTCOTT. Les travaux réalisés durant les dernières années incluent tous les aspects théoriques et expérimentaux. L'un des canaux est destiné pour le dosage des éléments de longue et moyenne périodes, et l'autre pour des irradiations de courtes périodes. Ceci nous permet d'analyser un maximum d'éléments en utilisant deux canaux. La méthode  $k_0$ -NAA est connue par sa dépendance aux instruments de mesure et aux sites d'irradiation appliqués dans le processus d'analyse. Grâce à cette technique, plusieurs applications ont été effectuées dans le domaine de la nutrition, géologie et la santé.

## 2. Introduction

La méthode NAA (Neutron Activation Analysis) est une méthode d'analyse multi d'élément (en bloc), la relation entre la concentration de l'élément et le signal mesuré est indépendant de la matrice. Les qualités de la méthode NAA sont augmentées par sa excellente sensibilité (inférieure au ppm, ppb ou même au niveau de ppt). Ceci confère à cette méthode d'être classifiée comme un outil analytique extrêmement puissant pour laquelle toutes les sources de variation systématique ou aléatoire sont identifiables et prévisibles aux limites de la détection. Chaque pièce de monnaie a deux côtés, et NAA n'est pas une exception. Certains de ses inconvénients comme la dépendance de l'installation d'irradiation (un réacteur nucléaire) et le seuil imposé par des règles de sécurité légales pour la manipulation des matériaux radioactifs.

L'obstacle additionnel à son utilisation réside dans la lenteur de la procédure d'analyse. En effet, l'analyse des traces des radionucléides de longue période, la durée d'irradiation peut prendre plusieurs heures également pour la mesure et ceci pour un seul échantillon. La seule manière de remédier à ces inconvénients, consiste à l'utilisation des échantillons volumineux à des flux plus élevés et des dispositifs de comptage plus efficaces. Non seulement la présence de l'échantillon et standard, mais aussi le temps exploité pour leur préparation, comptage et calcul, qui est particulièrement l'ennui en cas d'analyse de routine. Tout ceci rend NAA une méthode chère mais précise et sensible. L'identification des inconvénients de la méthode NAA n'est pas nouveau, des efforts considérables ont été fournis pour son développement afin de simplifier rigoureusement la procédure de standardisation.

Durant les dernières années une variante de la méthode ; absolue et simple comparateur ont été proposées et appliquées dans beaucoup de domaines. Les idées, ont conduit à une procédure rassemblant les caractères de la simplicité expérimentale, la grande précision, l'excellente flexibilité (conditions d'irradiation et de mesure) et l'automatisation appropriée. Ces aspects étaient réellement les principaux sujets évoqués depuis 1974, dont le souci est la standardisation  $k_0$ .

Actuellement,  $k_0$ -NAA est implémentée et utilisée dans plusieurs laboratoires à travers le monde. L'Algérie fait partie de l'ensemble des pays appliquant cette technique. Le développement de la méthode  $k_0$ -NAA au sein du réacteur Es-Salam était un défi réel, et nous avons pu le relever. Après son développement, l'idée de la mise au point de la méthode mûrissait et elle a fait l'objet du travail actuel.

### 3. Domaines d'investigation

Le développement et l'implémentation des techniques nucléaires autour du réacteur Es-Salam est une nécessité impérieuse dans toute installation nucléaire afin d'exploiter la source neutronique pour des applications pratiques. Tous les travaux réalisés sont liés au développement de la méthode et son application dans divers domaines. La faisabilité de l'implémentation était la première partie du travail. La stabilité du flux neutronique durant l'irradiation reste une condition nécessaire afin de permettre la mesure expérimentale des paramètres de flux. La convention la plus simple de Høgdahl est adoptée pour la plupart des réactions  $(n,\gamma)$ , seulement  $^{152}\text{Eu}$  et  $^{176}\text{Lu}$ , qui violent sérieusement la dépendance  $1/v$ , elles sont alors exclues du traitement. Pour bien mener le travail expérimental, une étude approfondie a été effectuée sur les principes fondamentaux de l'activation neutronique basée sur  $k_0$  et tous les moyens matériels nécessaires dans les mesures.

Dans le chapitre 2, nous avons traité d'une manière explicite les types de désintégration d'activation et les expressions appropriées pour les paramètres impliqués dans  $k_0$ -NAA, le calcul de self-shielding des neutrons thermiques  $G_{th}$  et épithermiques  $G_e$ . Il est bien de connaître le principe de la standardisation des différentes techniques issues de l'analyse par activation neutronique, à savoir ; la standardisation relative, mono-standard (un seul comparateur), l'absolue et  $k_0$ . Nous avons décrit rigoureusement les concepts de base et les paramètres introduits dans la méthode  $k_0$ -NAA comme les paramètres alpha,  $f$ ,  $Q_0$ ,  $E_r$ ,  $\epsilon_p$  et les facteurs  $k_0$ .

Le chapitre 3 est consacré pour la description du taux de réaction  $(n,\gamma)$  qui signifie la contribution du flux thermique et épithermique. Sachant que le flux rapide n'est pas considéré dans la réaction  $(n,\gamma)$ . La spécificité de la méthode  $k_0$  réside dans l'introduction des facteurs  $k_0$  qui sont des constantes nucléaires, mesurés expérimentalement et tabulés dans la littérature. Aussi l'identification de toutes les sources d'erreurs et par conséquent, améliorer d'une manière significative la qualité des résultats obtenus. La contribution de la composante épithermique et l'introduction de la correction alpha de la distribution du flux épithermique donnée par la forme  $1/E^{1+\alpha}$  a rendu la méthode  $k_0$  très complète (De Corte / Simonits). Tous les aspects de la INAA (Instrumental Neutron Activation Analysis) sont pris en considération ainsi que l'élaboration des calculs est indispensable. De nos jours les moyens de calcul sont

disponibles pour faciliter à l'analyste le travail analytique. Toutes les données  $k_0$  basées sur une expérience de deux décennies sont à la portée de tous les utilisateurs  $k_0$  permettant l'analyse de tous types d'échantillons. Cependant, l'analyse panoramique d'un échantillon inconnu prend moins d'une demi heure en utilisant le logiciel Kayzero for Windows. La convention de HOGDAHL et le formalisme de WETCOTT sont décrits également dans le chapitre 3 afin de définir la base sur laquelle les chercheurs ont construit la méthode  $k_0$ -NAA.

Les chapitres 4, 5 et 6 constituent la partie expérimentale de notre travail. Dans le chapitre 4, nous avons commencé tout d'abord, par la description des installations et dispositifs utilisés dans ce travail et la caractérisation du spectre neutronique du réacteur Es-Salam dans les canaux d'irradiation et les détecteurs  $G_e(HP)$ . Dans cette partie, nous avons effectué un grand nombre d'expériences pour la caractérisation des canaux d'irradiation en utilisant toutes les méthodes adoptées par les laboratoires spécialisés. Les méthodes Rcd, Couverture Cd et les irradiations nues, présentent toutes les possibilités de mesure pour un spectre thermique et épithermique. Certains laboratoires utilisent une seule méthode pour la caractérisation de leurs sites d'irradiation, et ceci dépend du type du réacteur. La curiosité du savoir et l'enthousiasme nous ont conduit à utiliser tous les moyens d'analyse ; tels que les procédures, les moniteurs de flux et les sites d'irradiation choisis. La calibration des détecteurs a été effectuée selon la méthodologie  $k_0$ .

Il est important de souligner que la caractérisation des canaux d'irradiation a été réalisée pour différentes puissances afin d'étudier la dépendance des paramètres de flux :  $\alpha$ ,  $f$  et  $T_n$  en fonction de l'augmentation de la puissance.

Le chapitre 5 présente la partie validation de l'implémentation de la méthode  $k_0$ -NAA au sein du réacteur Es-Salam, qui a été effectuée par différents moyens ; l'utilisation des standards de référence matériel (SRM) : AIEA (Agence Internationale à l'Energie Atomique), Chinois et d'un Standard Synthétique Multi Eléments SMELS (spécifique à la méthode  $k_0$ ).

Pour mettre en épreuve cette technique et pour pouvoir ainsi constater ses performances et dont conclure ses limites, le chapitre 6 comporte toute les applications effectuées dans ce travail visant les domaines de la nutrition, la santé et la minéralogie.

L'analyse par la méthode  $k_0$  de trois marques de lait en poudre les plus consommées en Algérie a fait l'objet d'une première application utilisant une matrice biologique. Nous avons pensé, en premier lieu, à l'analyse des éléments nutritionnels et de traces dans différents

aliments, mais le choix a été effectué sur le lait, étant donné que cette matière est de consommation quotidienne. Il est clair, que le lait est un aliment indispensable pour le corps humain spécialement pour la croissance des bébés et des enfants. La malnutrition est provoquée chez l'enfant avant même sa naissance ; ceci s'explique par l'état de santé de la mère avant et pendant la grossesse. Cependant, l'avenir nutritionnel d'un enfant commence avant sa conception, en fonction de l'état nutritionnel de la mère avant la grossesse.

D'après les statistiques données par GLOBOCAN 2002, l'Algérie occupe la 11<sup>ème</sup> place dans le monde pour le cancer du poumon chez la femme et l'homme. 30 000 nouveau cas de cancer par an, 20 000 décès par an, 15 000 décès liés au tabac et 4000 décès par cancer du poumon. Malgré des campagnes contre le tabac, il y a une grande fraction de la population du monde qui persiste avec l'habitude du tabagisme. Le cancer du poumon et d'autres maladies du système respiratoire, sans aucun doute, ont un rapport avec le tabagisme. Le tabagisme et la mastication du tabac conduisent ensemble à un grand nombre de décès chaque année. Ces habitudes sont pratiquées par des personnes de toutes les couches sociales à différents âges dans toutes les populations du monde.

En raison du transfert possible de certains éléments à partir du tabac au tabac fumé pendant le processus de combustion, et de la formation possible des composés toxiques, cancérigènes, il est souhaitable d'étudier la concentration de divers éléments actuels dans les cigarettes de tabac.

L'essentiel du potentiel géologique se trouve au Sud-Ouest du pays avec 3.5 milliards de tonnes de Fe 57 %. Il s'agit des gisements de Mecheri Abdelaziz et de Gara Djébilet, situés à 250 km à l'Est de Tindouf. Le potentiel localisé au nord du pays est évalué à environ 70 millions de tonnes, réparti entre les gisements de Ouenza et Boukhadra (60 millions de tonnes) et l'indice de Djebel Hanini – Sétif (12 millions de tonnes).

Afin d'élargir le champ d'application, nous avons choisi une matrice géologique pour l'analyse des éléments majeurs, mineurs et de traces d'un minerai de fer.

Cet échantillon est prélevé de la mine « Anini » de Sétif qui fait partie des sites de gisement de fer situés au nord algérien. Ce gisement découvert au 19<sup>ème</sup> siècle (en 1878 par l'ingénieur français Tissot) est situé à Ain Roua à 35 Km au Nord Ouest de la ville de Sétif.



## CHAPITRE II

### 2.1 L'Equation d'activation

#### 2.1.1 Formation directe de radionucléide mesuré sans burn-up

La relation entre le taux de réaction et le nombre de coups ( $N_p$ ) appelé pic plein d'énergie est comme suit 1 :

$$R = \frac{N_p / t_m}{SDCw} \quad (2.1)$$

où

$$R_e = \frac{\left( \frac{N_p / t_m}{SDCw} \right)_{Cd}}{N_A \theta \epsilon_p \gamma / M} \quad (2.2)$$

$N_p$  = nombre de coups du plein, corrigé par la perte d'impulsions (temps mort et les vraies coïncidences);  $t_m$  = temps de mesure (s);  $S = 1 - e^{-\lambda t_{irr}}$  facteur de saturation;  $\lambda = (\ln 2) / T$  constante de décroissance avec  $T$  demi vie,  $t_{irr}$  temps d'irradiation avec  $t_{irr}$  la même unité que  $T$ ;  $D = e^{-\lambda t_d}$  facteur de décroissance,  $t_d$  = temps de décroissance avec  $t_d$  la même unité que  $T$ ;  $C = (1 - e^{-\lambda t_m}) / \lambda t_m$  facteur de mesure avec  $t_m$  la même unité que  $T$ ;  $W$  = masse de l'élément irradié (g);  $\theta$  : l'abondance isotopique (fraction);  $\epsilon_p$  : l'efficacité de détection du pic plein, incluant la correction pour l'atténuation gamma;  $\gamma$  : l'intensité absolue gamma (probabilité d'émission gamma).

Les équations (2.1) et (2.2) sont valables à condition que le radionucléide mesuré soit formé directement par  $(n, \gamma)$ , et que la disparition [par la réaction  $(n, \gamma)$ ] de la cible et le noyau est négligeable, i.e. pas d'effets de burn-up.

Dans le présent travail

$$A_{sp} = \frac{N_p / t_m}{SDCw} \quad (2.3)$$

est dénotée comme taux de comptage spécifique ( $s^{-1} g^{-1}$ ).

L'équation d'activation est donnée par (dans les conditions stables  $\phi_s, \phi_e$  et  $\alpha$  durant  $t_{irr}$ ):

$$A_{sp} = \frac{N_A \theta \gamma}{M} [G_{th} \phi_s \sigma_0 + G_e \phi_e I_0(\alpha)] \epsilon_p \quad (2.4)$$

où

$$(A_{sp})_{Cd} = \frac{N_A \theta \gamma}{M} G_e F_{Cd} \phi_e I_0(\alpha) \epsilon_p \quad (2.5)$$

si dans les Eqs (2.4) et (2.5) la même valeur est impliquée, on a :

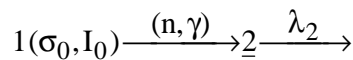
$$A_{sp} - (A_{sp})_{Cd} / F_{Cd} = \frac{N_A \theta \gamma}{M} G_{th} \phi_s \sigma_0 \epsilon_p \quad (2.6)$$

Ce qui est dans ce travail désigné sous le nom de soustraction Cd. Finalement, le rapport Cd mesuré expérimentalement est simplement obtenu comme (si les conditions mentionnées précédemment sont accomplies en respectant  $\epsilon_p$ ) :

$$R_{Cd} = \frac{A_{sp}}{(A_{sp})_{Cd}} \quad (2.7)$$

### 2.1.2 Branchement d'activation et la désintégration mère fille

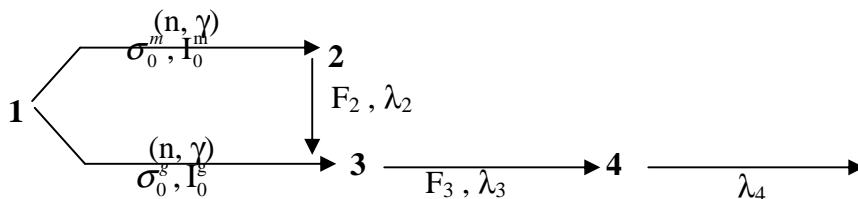
Les Eqs (2.1) à (2.7) réfèrent au schéma suivant :



ou le radionucléide mesuré (souligné) est directement formé par (n,γ). Suivant cette notation

$A_{sp,2}$  devrait être écrit comme :  $A_{sp} = \frac{N_{p,2} / t_m}{S_2 D_2 C_2 w}$  et  $\gamma$  peut être dénoter comme  $\gamma_2$  dans les

Eqs (2.4) – (2.6). Il est, cependant, possible que l'embranchement d'activation soit impliqué avec la formation des états stables et fondamentaux (indices supérieurs m et g, respectivement) et que le radionucléide intéressant analytiquement est le nucléide fille ou la grande fille directement forme un (s), comme par exemple dans le schéma :



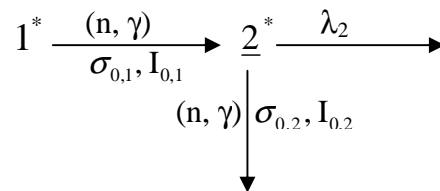
ou  $F_2$  et  $F_3$  la décroissance fractionnelle du nucléide 2 à 3 et le nucléide 3 à 4, respectivement. En général, la définition de  $A_{sp,4}$  est plus complexe dans ces cas, et les Eqs (2.4), (2.6) contiennent les paramètres  $\sigma_0^m, I_0^m(\alpha), \sigma_0^g, I_0^g(\alpha), \lambda_2, \lambda_3, \lambda_4, F_2, F_3$ , et  $\gamma_4$ . Puisque dans ces cas, les termes des expressions appropriées pour  $A_{sp}$  comme une fonction des données nucléaires et des conditions expérimentales [Eqs (2.4) et (2.5)] sont strictement liées à la définition et utilisent les facteurs  $k_0$ .

### 2.1.3 Les effets Burn-up

Dans ce travail, le burn-up est défini comme une disparition significative par la réaction  $(n, \gamma)$  de la cible et / ou du noyaux formé, de sorte que,  $A_{sp}$  ne peut pas être décrit par Eq (2.3).

#### 2.1.3.1 Burn-up de la cible et / ou du noyau formé directement

Pour le cas ci-dessous, l'effet du burn-up est référé par \* :



Le taux de comptage spécifique mesuré du radionucléide 2 (souligné) peut être écrit comme :

$$A_{sp,2} = \frac{N_{p,2}/t_m}{S_2 D_2 C_2 w} / F_{burn}$$

avec

$$F_{burn} = \frac{\lambda_2 e^{-(\phi\sigma_1)t_{irr}} [1 - e^{-[(\phi\sigma_1) - (\phi\sigma_2) - \lambda_2]t_{irr}}]}{[(\phi\sigma_2) + \lambda_2 - (\phi\sigma_1)] [1 - e^{-\lambda_2 t_{irr}}]}$$

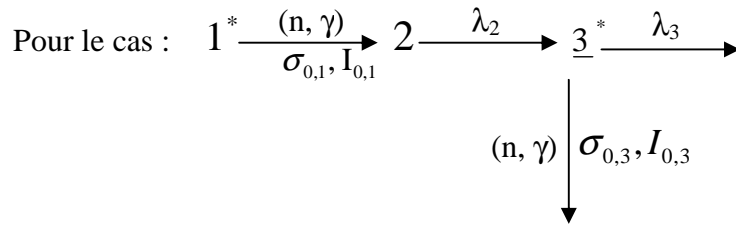
et

$$(\phi\sigma) = G_{th} \phi_s \sigma_0 + G_e \phi_e I_0(\alpha)$$

(2.8)

De l'Eq (2.8) le burn-up devient plus grand pour l'augmentation de  $(\phi\sigma)$ ,  $\lambda$  et  $t_{irr}$ . Si  $(\phi\sigma)$  et /ou  $t_{irr}$ ,  $F_{burn} \approx 1$ , les équations appropriées du burn-up sont obtenues en posant  $(\phi\sigma) = 0$  ou  $(\phi\sigma_1) = 0$ , respectivement.

### 2.1.3.2 Burn-up du nucléide mère



Le taux de comptage spécifique mesuré du radionucléide  $3^*$  peut être écrit comme :

$$A_{sp} = \frac{N_{p,3} / t_m}{(SDC)_{burn} w}$$

avec

$$(SDC)_{burn} = \frac{\lambda_3}{\lambda_3 - \lambda_2} S_2 D_2 C_2 + \left( \frac{\lambda_3 (\wedge_3 S_2 - \lambda_2 \Sigma_3)}{\wedge_3 (\wedge_3 - \wedge_2)} - \frac{\lambda_3 S_2}{\lambda_3 - \lambda_2} \right) D_3 C_3 \quad (2.9)$$

et

$$\begin{aligned}
 \wedge &= \lambda + (\phi\sigma) \\
 \Sigma &= 1 - e^{-\wedge t_{irr}}
 \end{aligned}$$

En comparant ceci à l'expression pour l'effet négligeable du burn-up :

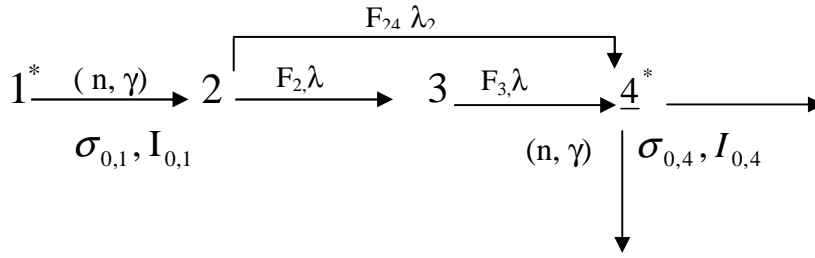
$$A_{sp} = \frac{N_{p,3} / t_m}{(SDC) w}$$

$$(SDC) = \frac{\lambda_3 S_2 D_2 C_2 - \lambda_2 S_3 D_3 C_3}{\lambda_3 - \lambda_2}$$

Le facteur  $F_{burn-up}$  qui est dans la pratique est négligeable selon  $T_d$  et  $t_m$ , peut être défini comme :  $F_{burn} = (SDC)_{burn} / (SDC)$

2.1.3.3 Burn-up du nucléide grand-mère

Pour le cas :



Le taux de comptage spécifique mesuré du radionucléide 4 peut être écrit comme :

$$A_{sp,4} = \frac{N_{p,4} / t_m}{(SDC)_{burnup} w}$$

avec

$$\begin{aligned}
 (SDC)_{burnup} = & \frac{\lambda_4}{\lambda_4 - \lambda_2} \left( \frac{\lambda_3}{\lambda_3 - \lambda_2} + \frac{F_{24}}{F_2 F_3} \right) S_2 D_2 C_2 \\
 & - \frac{\lambda_2 \lambda_4}{(\lambda_3 - \lambda_2)(\lambda_4 - \lambda_3)} S_3 D_3 C_3 \\
 & - \frac{(\lambda_4 - \lambda_2) \lambda_4}{(\lambda_4 - \lambda_2)(\lambda_4 - \lambda_2)} \left( \frac{\lambda_3}{\lambda_3 - \lambda_2} + \frac{F_{24}}{F_2 F_3} \right) S_2 D_4 C_4 \\
 & + \frac{\lambda_2 \lambda_4 (\lambda_4 - \lambda_2)}{(\lambda_3 - \lambda_2)(\lambda_4 - \lambda_3)(\lambda_4 - \lambda_3)} S_3 D_4 C_4 \\
 & + \frac{\lambda_2 \lambda_4}{\lambda_4 (\lambda_4 - \lambda_2)} \left( \frac{\lambda_3}{\lambda_4 - \lambda_3} + \frac{F_{24}}{F_2 F_3} \right) S_4 D_4 C_4
 \end{aligned} \tag{2.10}$$

En comparant ceci à l'expression pour l'effet négligeable du burn-up :

$$A_{sp,4} = \frac{N_{p,4} / t_m}{(SDC)w}$$

avec

$$\begin{aligned}
 (SDC) = & S_2 D_2 C_2 \frac{\lambda_4}{\lambda_4 - \lambda_2} \left( \frac{\lambda_3}{\lambda_3 - \lambda_2} + \frac{F_{24}}{F_2 F_3} \right) \\
 & - S_3 D_3 C_3 \frac{\lambda_2 \lambda_4}{(\lambda_3 - \lambda_2)(\lambda_4 - \lambda_3)} \\
 & + S_4 D_4 C_4 \frac{\lambda_2}{\lambda_4 - \lambda_2} \left( \frac{\lambda_3}{\lambda_4 - \lambda_3} + \frac{F_{24}}{F_2 F_3} \right)
 \end{aligned}$$

Le facteur  $F_{burn-up}$  peut être défini comme :  $F_{burn-up} = \frac{(SDC)_{burn-up}}{(SDC)}$

Tableau 2.1 : Types de désintégration d'activation et expressions appropriées pour les paramètres impliqués dans  $k_0$ -NAA

Activation-decay type	Activation-decay scheme	$\frac{\theta \sigma_0 \gamma''}{M}$ in $k_0$ -definition [Eq. (I.3-14)]	$Q_0''$ in Eqs (I.3-18) (I.3-20) (I.3-21)	$\frac{N}{t}''$ in Eqs (I.3-18) - (I.3-21), to be divided by $w$ for obtaining $A_{sp}$ in Eqs (I.3-18) - (I.3-21)
I	$1 \xrightarrow[n_1, \gamma]{\sigma_0, I_0} 2 \xrightarrow{\lambda_2} 3$ <p>[e.g. <math>^{75}\text{As}(n, \gamma)^{76}\text{As}</math>]</p>	$\frac{\theta \sigma_0 \gamma_2}{M}$	$\frac{I_0}{\sigma_0}$	$\frac{N_{p,2}/t_m}{S_{D_2} C_2}$
II/a	$1 \xrightarrow[n_1, \gamma]{\sigma_0, I_0} 2 \xrightarrow{F_2, \lambda_2} 3 \xrightarrow{\lambda_3} 4$ <p>[e.g. <math>^{101}\text{Tc}</math> from <math>^{100}\text{Mo}(n, \gamma)</math>]</p>	$\frac{\theta \sigma_0 F_2 \gamma_3}{M}$	$\frac{I_0}{\sigma_0}$	$\frac{N_{p,3}}{t_m} \cdot \frac{(\lambda_3 - \lambda_2)}{\lambda_3 S_{D_2} C_2 - \lambda_2 S_{D_3} C_3}$
II/b	Special case : $\lambda_2 \gg \lambda_3$ and $D_2 = 0$ [e.g. $^{233}\text{Pa}$ from $^{232}\text{Th}(n, \gamma)$ ]	"	"	$\frac{N_{p,3}/t_m}{S_{D_3} C_3}$
II/c	Special case : $\lambda_2 < \lambda_3$ and $D_3 = 0$	"	"	$\frac{\lambda_3 - \lambda_2}{\lambda_3} \cdot \frac{N_{p,3}/t_m}{S_{D_2} C_2}$
II/d *	Special case : measurement of the 140.5 keV line of $^{99}\text{Mo}/^{99m}\text{Tc}$ [from $^{98}\text{Mo}(n, \gamma)$ ]	"	"	$\frac{N_{p,2+3}/t_m}{\lambda_3 S_{D_2} C_2 - \lambda_2 S_{D_3} C_3} + \frac{\gamma_2}{F_2 \gamma_3} S_{D_2} C_2$
III/a	$1 \xrightarrow[n_1, \gamma]{\sigma_0, I_0} 2 \xrightarrow{F_2, \lambda_2} 3 \xrightarrow{F_3, \lambda_3} 4 \xrightarrow{\lambda_4} 5$ <p>[e.g. <math>^{97}\text{Nb}</math> from <math>^{96}\text{Zr}(n, \gamma)</math>]</p>	$\frac{\theta \sigma_0 F_2 F_3 \gamma_4}{M}$	$\frac{I_0}{\sigma_0}$	$(N_{p,4}/t_m) \cdot \left[ \frac{S_{D_2} C_2}{\lambda_3 - \lambda_2} \left( \frac{\lambda_4}{\lambda_3 - \lambda_2} + \frac{F_{24}}{F_2 F_3} \right) - S_{D_3} C_3 \frac{\lambda_2 \lambda_4}{(\lambda_4 - \lambda_3)(\lambda_3 - \lambda_2)} + S_{D_4} C_4 \frac{\lambda_2}{\lambda_4 - \lambda_2} \left( \frac{\lambda_3}{\lambda_4 - \lambda_3} - \frac{F_{24}}{F_2 F_3} \right) \right]^{-1}$

Tableau 2.1 : (suite)

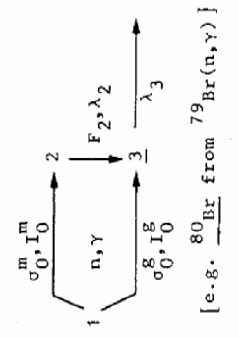
Activation-decay type	Activation-decay scheme	$\frac{\theta \sigma_0 \gamma^m}{M}$ in k <sub>0</sub> -definition [Eq. (I.3-14)]	Q <sub>0</sub> in Eqs (I.3-18) (I.3-20) (I.3-21)	$\frac{N}{\tau}$ "SDC" in Eqs (I.3-18) - (I.3-21), to be divided by w for obtaining $\Lambda_{sp}$ in Eqs (I.3-18) - (I.3-21)
III/b	Special case : F <sub>24</sub> = 0	$\frac{\theta \sigma_0 F_2 F_3 \gamma_4}{M}$	$\frac{I_0}{\sigma_0}$	$(N_{p,4}/\tau)^m \cdot \left[ \frac{S_2 D_2 C_2}{2 \lambda_4 - \lambda_2} \frac{\lambda_4 \lambda_3}{(\lambda_3 - \lambda_2)} - S_3 D_3 C_3 \frac{\lambda_2 \lambda_4}{(\lambda_4 - \lambda_3)(\lambda_3 - \lambda_2)} + S_4 D_4 C_4 \frac{\lambda_2 \lambda_3}{(\lambda_4 - \lambda_2)(\lambda_4 - \lambda_3)} \right]^{-1}$
III/c	Special case : $\lambda_3 \gg \lambda_2$ and $\lambda_4, D_3 = 0$ F <sub>3</sub> = 1, F <sub>2</sub> + F <sub>24</sub> = 1 [e.g. <sup>105</sup> Rh from <sup>104</sup> Ru(n,γ)]	$\frac{\theta \sigma_0 \gamma_4}{M}$	"	$(N_{p,4}/\tau)^m \cdot \frac{\lambda_4 - \lambda_2}{\lambda_4 S_2 D_2 C_2 - \lambda_2 S_4 D_4 C_4}$
IV/a	 Special case : $\lambda_2 \gg \lambda_3$ and $D_2 = 0$ [e.g. <sup>60</sup> Co from <sup>59</sup> Co(n,γ)]	$\frac{\theta \sigma_0 \gamma_3}{M}$	$\frac{I_0^g}{\sigma_0^g}$	$(N_{p,3}/\tau)^m \cdot \left[ \frac{F_2 \sigma_0^m}{\sigma_0^g} \frac{f + Q_0^m(\alpha)}{f + Q_0^g(\alpha)} \frac{\lambda_3 S_2 D_2 C_2 - \lambda_2 S_3 D_3 C_3}{\lambda_3 - \lambda_2} + S_3 D_3 C_3 \right]^{-1}$ $= (N_{p,3}/\tau)^m \cdot \left[ \frac{k_0^m}{k_0^g} \frac{f + Q_0^m(\alpha)}{f + Q_0^g(\alpha)} \frac{\lambda_3 S_2 D_2 C_2 - \lambda_2 S_3 D_3 C_3}{\lambda_3 - \lambda_2} + S_3 D_3 C_3 \right]^{-1}$
IV/b	Special case : $\lambda_2 \gg \lambda_3$ and $D_2 = 0$ [e.g. <sup>60</sup> Co from <sup>59</sup> Co(n,γ)]	$\frac{\theta (F_2 \sigma_0^m + \sigma_0^g) \gamma_3}{M}$	$\frac{F_2 I_0^m + I_0^g}{F_2 \sigma_0^m + \sigma_0^g}$	$\frac{N_{p,3}/\tau^m}{S_3 D_3 C_3}$
IV/c	Special case : $\lambda_2 < \lambda_3$ and $D_3 = 0$	$\frac{\theta F_2 \sigma_0^m \gamma_3}{M}$	$\frac{I_0^m}{\sigma_0^m}$	$\frac{\lambda_3 - \lambda_2}{\lambda_3} \frac{N_{p,3}/\tau^m}{S_2 D_2 C_2}$

Tableau 2.1 : (suite)

Activation-decay type	Activation-decay scheme	$\theta \sigma_0^g \gamma^m$ in k <sub>0</sub> -definition [Eq. (I.3-14)]	Q <sub>0</sub> <sup>m</sup> in Eqs (I.3-18) (I.3-20) (I.3-21)	$\frac{N_p}{t^m}$ in Eqs (I.3-18) - (I.3-21), to be divided by w for obtaining A <sub>sp</sub> in Eqs (I.3-18) - (I.3-21)
IV/d	<p>Activation-decay scheme</p> <p>Special case : measurement of the 112.9 keV and 208.4 keV lines of <math>^{177m}\text{Lu}/^{177}\text{Lu}</math> [from <math>^{176}\text{Lu}(n,\gamma)</math>]</p>	$\frac{\theta \sigma_0^g \gamma_3}{M}$	$\frac{I_0^g}{\sigma_0^g}$	$(N_{p,2+3}/t^m) \cdot \left[ \frac{\sigma_0^m \gamma_2}{\sigma_0^g \gamma_3} \frac{f+Q_0^m(\alpha)}{f+Q_0^g(\alpha)} (S_{2,2}^D C_2) + \frac{F_2 \gamma_3}{\gamma_2} \frac{\lambda_3 S_{2,2}^D C_2 - \lambda_2 S_{3,3}^D C_3}{\lambda_3 - \lambda_2} + S_{3,3}^D C_3 \right]^{-1}$
V/a	<p>Special case : <math>\lambda_4 \ll \lambda_2</math> and <math>\lambda_3</math> [e.g. <math>^{199}\text{Au}</math> from <math>^{198}\text{Pt}(n,\gamma)</math>]</p>	$\frac{\theta \sigma_0^g F_3 \gamma_4}{M}$	$\frac{I_0^g}{\sigma_0^g}$	$(N_{p,4}/t^m) \cdot \left\{ \frac{k_0^m f+Q_0^m(\alpha)}{k_0^g f+Q_0^g(\alpha)} \left[ S_{2,2}^D C_2 \frac{\lambda_4 \lambda_3}{(\lambda_4 - \lambda_2)(\lambda_3 - \lambda_2)} - S_{3,3}^D C_3 \frac{\lambda_2 \lambda_4}{(\lambda_4 - \lambda_3)(\lambda_3 - \lambda_2)} + S_{4,4}^D C_4 \frac{\lambda_2 \lambda_3}{(\lambda_4 - \lambda_2)(\lambda_4 - \lambda_3)} \right] + \frac{\lambda_4 S_{3,3}^D C_3 - \lambda_3 S_{4,4}^D C_4}{\lambda_4 - \lambda_3} \right\}^{-1}$
V/b	<p>Special case : <math>\lambda_4 \ll \lambda_2</math> and <math>\lambda_3</math> [e.g. <math>^{199}\text{Au}</math> from <math>^{198}\text{Pt}(n,\gamma)</math>]</p>	$\frac{\theta (F_2 \sigma_0^m + \sigma_0^g) F_3 \gamma_4}{M}$	$\frac{F_2 I_0^m + I_0^g}{F_2 \sigma_0^m + \sigma_0^g}$	$\frac{N_{p,4}/t^m}{S_{4,4}^D C_4}$
V/c	<p>Special case : <math>\lambda_3 \ll \lambda_2</math> and <math>\lambda_4</math> <math>D_2 = D_4 = 0</math> [e.g. <math>^{113m}\text{In}</math> from <math>^{112}\text{Sn}(n,\gamma)</math>]</p>	"	"	$\frac{N_{p,4}/t^m}{S_{3,3}^D C_3}$



Tableau 2.1 : (suite)

Activation-decay type	Activation-decay scheme	$\theta \sigma_0 \gamma^m$ in k <sup>0</sup> -definition [Eq. (I.3-14)]	Q <sub>0</sub> <sup>m</sup> in Eqs (I.3-18) (I.3-20) (I.3-21)	$\frac{N_i/t^m}{S_{4,4} C_4}$ " SDC to be divided by w for obtaining $\Lambda_{sp}$ in Eqs (I.3-18) - (I.3-21)
VI	Special case : measurement of <sup>124</sup> Sb [from <sup>123</sup> Sb(n,γ)] after long decay time (D <sub>2</sub> = D <sub>3</sub> = 0) 	$\theta \left[ F_3 (\sigma_0^m1 + \sigma_0^m2) + \sigma_0^g \right] \gamma_4$	$F_3 \left( \frac{m_1}{\sigma_0^m1 + \sigma_0^m2} + \frac{I_0^g}{\sigma_0^g} \right) + I_0^g$	$\frac{N_{p,4}/t^m}{S_{4,4} C_4}$
VII/a		$\theta \frac{F_3 \sigma_0^g \gamma_4}{M}$	$\frac{I_0^g}{\sigma_0^g}$	$(N_{p,4}/t^m) \cdot \left\{ \frac{\sigma_0^m F_2}{\sigma_0^g F_3} \frac{F + Q_0^m(\alpha)}{F + Q_0^g(\alpha)} \frac{\lambda_4 S_3 D_3 C_3 - \lambda_3 S_4 D_4 C_4}{\lambda_4 - \lambda_3} + \frac{\lambda_4 S_3 D_3 C_3 - \lambda_3 S_4 D_4 C_4}{\lambda_4 - \lambda_3} \left[ \frac{\sigma_0^m F_2}{\sigma_0^g} \frac{F + Q_0^m(\alpha)}{F + Q_0^g(\alpha)} \frac{S_2 D_2 C_2}{\lambda_4 - \lambda_2} + \frac{\lambda_2 \lambda_3}{(\lambda_4 - \lambda_2)(\lambda_3 - \lambda_2)} \right]^{-1} - S_3 D_3 C_3 \frac{\lambda_2 \lambda_4}{(\lambda_4 - \lambda_3)(\lambda_3 - \lambda_2)} + S_4 D_4 C_4 \frac{\lambda_2 \lambda_3}{(\lambda_4 - \lambda_2)(\lambda_4 - \lambda_3)} \right\}^{-1}$
VII/b	Special case : F <sub>2</sub> = 0 [ e.g. <sup>125</sup> Sb from <sup>124</sup> Sn(n,γ) ]	"	"	$(N_{p,4}/t^m) \cdot \left[ \frac{\sigma_0^m F_2}{\sigma_0^g F_3} \frac{F + Q_0^m(\alpha)}{F + Q_0^g(\alpha)} \frac{\lambda_4 S_3 D_3 C_3 - \lambda_3 S_4 D_4 C_4}{\lambda_4 - \lambda_3} + \frac{\lambda_4 S_3 D_3 C_3 - \lambda_3 S_4 D_4 C_4}{\lambda_4 - \lambda_3} \right]^{-1}$

Tableau 2.1 : (suite)

Activation-decay type	Activation-decay scheme	$\frac{\theta \sigma_0 \gamma''}{M}$ in $k_0$ -definition [Eq.(I.3-14)]	$Q_0''$ in Eqs (I.3-18) (I.3-20) (I.3-21)	$\frac{N}{\tau}''$ in Eqs (I.3-18) - (I.3-21), to be divided by $w$ for obtaining $A_{sp}$ in Eqs (I.3-18) - (I.3-21)
VIII	<p>[e.g. <math>^{117}\text{In}</math> from <math>^{116}\text{Cd}(n,\gamma)</math>]</p>	$\frac{\theta F_2 F_3 F_4 \sigma_0^g \gamma_5}{M}$	$\frac{I_0^g}{\sigma_0^g}$	$\frac{N}{\tau}'' = \frac{P_{SDC}^m}{SDC} \left[ \frac{1}{F_{24}} \left[ S_{33}^D C_3 \frac{\lambda_5}{\lambda_5 - \lambda_3} \left( \frac{\lambda_4}{\lambda_4 - \lambda_3} + \frac{F_{35}}{F_{34}} \right) - S_{44}^D C_4 \frac{\lambda_3 \lambda_5}{(\lambda_5 - \lambda_4)(\lambda_4 - \lambda_3)} + S_{55}^D C_5 \frac{\lambda_3}{\lambda_5 - \lambda_3} \left( \frac{\lambda_4}{\lambda_5 - \lambda_4} - \frac{F_{35}}{F_{34}} \right) + \frac{\sigma_0^m F + \sigma_0^m(\alpha)}{\sigma_0^g F + \sigma_0^g(\alpha)} \left[ S_{22}^D C_2 \frac{\lambda_5}{\lambda_5 - \lambda_2} \left( \frac{\lambda_4}{\lambda_4 - \lambda_2} + \frac{F_{25}}{F_{24} F_4} \right) - S_{44}^D C_4 \frac{\lambda_2 \lambda_5}{(\lambda_5 - \lambda_4)(\lambda_4 - \lambda_2)} + S_{55}^D C_5 \frac{\lambda_2}{\lambda_5 - \lambda_2} \left( \frac{\lambda_4}{\lambda_5 - \lambda_4} - \frac{F_{25}}{F_{24} F_4} \right) \right] \right]^{-1}$
<p>* <math>\gamma_2</math> : 140.5 keV (<math>^{99}\text{Mo}</math>)</p> <p><math>\gamma_3</math> : 140.5 keV (<math>^{99m}\text{Tc}</math>)</p> <p><math>\gamma_2/F_2 \gamma_3 = 0.0675</math></p>	<p>** <math>\frac{\theta \sigma_0 \gamma''}{M}</math> in definition of</p> <p><math>k_0^g : \frac{\theta \sigma_0^g \gamma_3}{M}</math></p> <p><math>k_0^m : \frac{\theta F_2 \sigma_0^m \gamma_3}{M}</math></p>	<p>*** <math>\frac{\theta \sigma_0 \gamma''}{M}</math> in definition of</p> <p><math>k_0^g : \frac{\theta \sigma_0^g \gamma_4}{M}</math></p> <p><math>k_0^m : \frac{\theta F_2 \sigma_0^m \gamma_4}{M}</math></p>		

### 2.1.4 Calcul des facteurs de self shielding des neutrons

Comme s'est décrit dans la partie "principe de la standardisation 3" (Eqs 2.12, 2.16), les facteurs ( $G_{th}$  et  $G_e$ ) de self shielding des neutrons thermiques et épithermiques sont définis comme des termes de correction multipliés par  $\phi_s \sigma_0$  et  $\phi_e I_0(\alpha)$ , respectivement, afin d'obtenir les taux de réaction observés pour les échantillons réels [voir Eq (2.12)].

Historiquement, ceci a été interprété en terme de flux thermique moyen  $[\bar{\phi}_s = G_{th} \phi_s]$  à l'intérieur d'un échantillon ou en terme d'intégrale de résonance effective  $[I_{eff}(\alpha) = G_e I_0(\alpha)]$  d'un matériel qui n'est pas infiniment dilué. La meilleure manière de résoudre le problème de self-shielding est en l'évitant, par exemple en employant des fils ou les feuilles minces, en diluant les poudres fines avec les matériaux inertes (c-à-d faible section efficace d'absorption), ou en dissolvant les substances chimiques dans les dissolvants inertes suivis de micropipette et de sécher des taches sur le porteur inerte. Cependant, on devrait juger si le self-shielding est négligeable, mais si l'échantillon occupe un grand volume donc la correction est inévitable dans ce cas. Pour cela il est nécessaire de disposer des formules appropriées pour le calcul des paramètres  $G_{th}$  et  $G_e$ .

Sur la base sur le travail de F De Corte et al. 1,  $G_{th}$  est considéré comme une distribution du flux neutronique Maxwellien homogène et isotropique, elle peut être calculée dans un cas d'échantillons de forme simple.

- Pour une sphère :

$$G_{th, sphère} = 1 - \frac{9}{8} \xi \quad (\text{si } \xi \leq 0.003) \quad (2.11)$$

$$G_{th, sphère} = \frac{3}{4y^3} \left[ y^2 - \frac{1}{2} + \left( \frac{1}{2} + y \right) e^{-2y} \right] \quad (\text{si } \xi > 0.003) \quad (2.12)$$

avec  $y = \frac{3}{2} \xi$  et  $\xi = \frac{2V}{S} \sum_i N_i \bar{\sigma}_{abs,i}$

$V = \frac{4}{3} \pi r^3$ ;  $\text{cm}^3$ , volume de l'échantillon;  $r$ : rayon de la sphère (cm);  $S = 4\pi r^2$ ;  $\text{cm}^2$ ;  $2V/S = \frac{2}{3} r$ : surface de l'échantillon;  $N_i$ : densité atomique de l'élément  $i$  ( $\text{cm}^{-3}$ );  $\bar{\sigma}_{abs} = \frac{\sigma_{abs}}{2} \sqrt{\frac{29359\pi}{T_n}}$ : section efficace d'absorption moyenne,  $\sigma_{abs}$ : section efficace d'absorption de l'élément ( $\text{cm}^2$ ) à 2200 m/s.

- Une feuille infinie:

$$G_{th,foil} = \frac{1}{2\xi} \left( 1 - e^{-\xi} + \xi e^{-\xi} - \xi^2 \int_{\xi}^{\infty} \frac{e^{-u}}{u} du \right) \quad (2.13)$$

avec  $\xi$  défini comme précédemment [ou  $h = 2V/S$  : l'épaisseur de la feuille, cm]

et

$$\int_{\xi}^{\infty} \frac{e^{-u}}{u} du = - \left( C + \ln \xi + \sum_{n=1}^P \frac{(-\xi)^n}{n \cdot n!} \right)$$

$C =$  constante d'Euler = 0.577215...

$P = 5$  si  $\xi < 0.1$

$P = 10$  si  $0.1 < \xi < 1$

$P = (\text{int } 5 \xi) + 5$  si  $\xi > 1$

- Pour un cylindre infinie (fil) [comme approximation solide] :

$$G_{th,fil} = 1 - \frac{4}{3} \xi \quad (2.14)$$

avec  $\xi$  défini comme précédemment [ou  $r = 2V/S$  : rayon du fil, cm].

- Pour un cylindre fini (par exemple fil court, feuille épaisse) :

$$G_{th,cyl} = G_{th,feuille} + \left( 8\xi^{1.4} e^{-3.7\xi} + 0.4e^{8\xi} \right) (G_{th,sphère} - G_{th,feuille}) \quad (2.15)$$

ou  $G_{th, sphère}$  et  $G_{th, feuille}$  sont respectivement calculés des Eqs (2.1-11), (2.1-12) et (2.1-13), avec l'introduction de  $(2V/S)_{cyl.} = rh/(r+h)$  [ $r$  = rayon du cylindre, cm;  $h$  = longueur cylindre, cm].

Dans ce qui précède,  $\bar{\sigma}_{abs}$  peut être calculée de  $\sigma_{abs}$  comme compilée dans le tableau 2.3-1; en posant arbitrairement  $T_n = 333.15$ ,  $k$  (= 60 °C), l'erreur maximale dans  $\bar{\sigma}_{abs}$  est ~ 6.5% dans une gamme de température 20-100 C<sup>0</sup>, et l'effet de cette erreur est rigoureusement réduit dans toutes les formules pour le calcul de  $G_{th}$ .

Les Eqs (2.11)–(2.15) sont obtenues en supposant que la diffusion des neutrons dans l'échantillon et dans l'entourage du matériel est négligeable, car la dépendance  $\sigma(v) \sim 1/v$  dans la gamme d'énergie thermique, tous les nucléides d'un mélange homogène subissent le même effet de self-shielding thermique, et la même valeur  $G_{th}$  (calculé à partir de tous les éléments du mélange) devrait être appliquée à toutes les réactions (n,γ) considérées. En général, l'erreur

dans le calcul des effets de self-shielding est estimée à environ de 10% de la limite de correction, qui est,

$$s_{G_{th}} \approx 0.1(1 - G_{th}) \quad (2.16)$$

Le calcul du self shielding des neutrons épithermiques est considérablement plus difficile. En cas d'une résonance dominante à l'énergie  $\bar{E}_r$ , l'utilisation peut être faite des approximations décrites par Chernick et Vernon 2.

$$G_e = \left[ 1 + \frac{\sigma(E_r)}{\sigma_p(\eta+1)} \left( 1 - \frac{\Gamma_n}{\Gamma(\eta+1)} \right) \right]^{-1/2} \quad (2.17)$$

si  $\Gamma[\sigma(E_r)/\sigma_p]^{1/2} < (1-\beta)E_r$ ,

où

$$G_e = \left[ 1 + \frac{\sigma(E_r)}{\sigma_p} \frac{\Gamma_\gamma}{\eta \Gamma} \right]^{-1/2} \quad (2.18)$$

si  $\Gamma[\sigma(E_r)/\sigma_p]^{1/2} > (1-\beta)E_r$

Dans les équations précédentes :

$\beta = \left( \frac{A-1}{A+1} \right)^2$ ; A: la masse atomique du nucléide;  $\eta = \frac{\delta S}{4N\sigma_{p,m}}$ ;  $\delta$ : densité de l'échantillon ( $\text{g.cm}^{-3}$

); S : surface de l'échantillon ( $\text{cm}^2$ ); N : densité du noyau du shielding ( $\text{cm}^{-3}$ )  $\sigma_p \approx 4\pi R'^2$ : section efficace de diffusion ( $\text{cm}^2$ ); R' : rayon du potentiel de diffusion (cm); m : masse de l'échantillon (g);  $\sigma(E_r) = \frac{2.608 \cdot 10^6}{E_r} \left( \frac{A+1}{A} \right)^2 \frac{g\Gamma_n}{\Gamma}$ : section efficace (n, $\gamma$ ) du pic de résonance ( $\text{cm}^2$ );

$E_r$  = énergie de résonance (eV);  $g = (2J+1)/[2(2J+1)]$ : facteur du poids statistique ; J: spin de l'état de résonance; I: spin du noyau cible;  $\Gamma$ : largeur totale de résonance (eV);  $\Gamma_\gamma$ : largeur de résonance radiative (eV);  $\Gamma_n$ : largeur de résonance du neutron (eV).

Puisque le paramètre de shielding épithermique est principalement provoqué par les grandes sections efficaces de résonance (la queue 1/v fondamentale étant d'importance mineure), il reste spécifique pour le nuclide particulier, à moins que les résonances de plusieurs nuclides recouvrent. En général, si des facteurs précis de self shielding des neutrons sont exigés, il est conseillé de se consacrer sur la détermination expérimentale plutôt que le calcul.

## 2.2 Analyse par activation (n,γ) : principe de la standardisation

Dans l'analyse par activation (n,γ), la masse de l'élément à déterminer (i.e. l'élément analysé, indexé par a) dans l'échantillon est obtenue des Eqs (2.4) et (2.5), respectivement :

Pour un échantillon irradié dans un spectre neutronique, la masse de l'élément est donnée par :

$$w_a = \frac{M_a}{N_A \theta_a \gamma_a} \frac{\left( \frac{N_p / t_m}{SDC} \right)_a}{\left[ G_{th,a} \phi_s \sigma_{0,a} + G_{e,a} \phi_e I_{0,a}(\alpha) \right] \varepsilon_{p,a}} \quad (2.19)$$

et si l'échantillon est irradié sous couverture en Cd, la masse de l'élément est par :

$$w_a = \frac{M_a}{N_A \theta_a \gamma_a} \frac{\left[ \left( \frac{N_p / t_m}{SDC} \right)_{Cd} \right]_a}{G_{e,a} F_{Cd,a} \phi_e I_{0,a}(\alpha) \varepsilon_{p,a}} \quad (2.20)$$

Dans les Eqs (2.19)-(2.20), le terme SDC devrait être modifié dans le cas de l'embranchement d'activation et la décroissance mère-fille. La détermination réelle de  $w_a$  peut être basée sur de diverses méthodes de standardisation.

### 2.2.1 La standardisation relative

Dans la méthode de standardisation relative, le standard (indexé s) dont on connaît sa composition, sa masse  $w_s$  est co-irradié avec l'échantillon, et les deux sont ensuite mesurés dans la même configuration géométrique (détecteur Ge). On peut réécrire les Eqs (2.19)-(2.20) pour le standard, et la combinaison mène à (pour NAA et ENAA, respectivement) :

$$w_a = \frac{\left( \frac{N_p / t_m}{DC} \right)_a}{\left( \frac{N_p / t_m}{DCw} \right)_s} \cdot \frac{G_{th,s} f + G_{e,s} Q_{0,s}(\alpha)}{G_{th,a} f + G_{e,a} Q_{0,a}(\alpha)} \frac{\varepsilon_{p,s}}{\varepsilon_{p,a}} \quad (2.21)$$

$$w_a = \frac{\left[ \left( \frac{N_p / t_m}{DC} \right)_{Cd} \right]_a \cdot G_{e,s} \cdot \frac{\epsilon_{p,s}}{\epsilon_{p,a}}}{\left[ \left( \frac{N_p / t_m}{DCw} \right)_{Cd} \right]_s \cdot G_{e,s}} \quad (2.22)$$

Puisque  $S_a = S_s$ ,  $M_a = M_s$ ,  $\gamma_a = \gamma_s$ ,  $\sigma_{0,a} = \sigma_{0,s}$ ,  $I_{0,a} = I_{0,s}$  et  $\theta_a = \theta_s$

Dans ce qui précède, on suppose que le gradient de flux entre l'échantillon et standard dans le récipient d'irradiation est négligeable. En outre, il devrait être noté que  $\epsilon_p$  figure toujours dans les Eqs (2.21)-(2.22) afin d'expliquer la différence de l'atténuation gamma dans l'échantillon et standard. Seulement dans le cas de grande énergie gamma et grande séparation source-détecteur, on peut considérer le passage gamma de la source comme une normale parallèle de faisceau vers la face du détecteur de sorte que  $\epsilon_{p,s} / \epsilon_{p,a}$  peut être remplacé par  $F_{p,s} / F_{p,a}$  (avec : facteur de correction de l'atténuation gamma) sans l'introduction de l'efficacité de détection.

En plus, dans l'Eq (2.21) on peut se débarrasser du facteur f seulement si :

$$G_{e,s} Q_{0,s}(\alpha) \ll G_{th,s} f \quad \text{et} \quad G_{e,a} Q_{0,a}(\alpha) \ll G_{th,a} f;$$

où

$$G_{th,s} = G_{th,a} = G_{e,s} = G_{e,a} = 1$$

Dans le dernier cas et à condition que  $F_{att,s} = F_{att,a} = 1$ , on obtient des expressions bien connues (pour NAA et ENAA, respectivement) :

$$w_a = \frac{\left( \frac{N_p / t_m}{DC} \right)_a}{\left( \frac{N_p / t_m}{DCw} \right)_s} \quad (2.23) \qquad \rho_{a,ppm} = \frac{\left( \frac{N_p / t_m}{DCW} \right)_a \cdot 10^6}{\left( \frac{N_p / t_m}{DCw} \right)_s} \quad (2.5)$$

$$w_a = \frac{\left[ \left( \frac{N_p / t_m}{DC} \right)_{Cd} \right]_a}{\left[ \left( \frac{N_p / t_m}{DCw} \right)_{Cd} \right]_s} \quad (2.24) \qquad \rho_{a,ppm} = \frac{\left[ \left( \frac{N_p / t_m}{DCW} \right)_{Cd} \right]_a \cdot 10^6}{\left[ \left( \frac{N_p / t_m}{DCw} \right)_{Cd} \right]_s} \quad (2.26)$$

et dans les termes des concentrations W est la masse de l'échantillon (g).

Notant que  $N_p$  dans les Eqs (2.21)- (2.22) ne devrait pas être corrigé pour les effets des vraies coïncidence, puisque l'échantillon et standard sont mesurés à la même distance source-détecteur.

La standardisation relative peut être exécutée au moyen de différents standards mono élément, ou par l'utilisation des standards multi élément naturels ou synthétiques. On suppose qu'en conditions favorables son exactitude est de l'ordre de 1-2 %. En particulier, il devrait être remarqué que l'exactitude de la standardisation ne peut pas être meilleure que l'exactitude dans  $w_s$ ; dans ce contexte, on ne devrait pas sous-estimer des erreurs possibles provoquées par la non stoechiométrie de l'élément standard dans la substance chimique choisie, ou par les manipulations telles que dilution et micropipette, souvent inévitable de réduire ou d'éliminer les problèmes de self-shielding des neutrons. L'inconvénient évident de la standardisation relative classique se situe dans l'analyse multi-élémentaire de routine, où la préparation, la mesure et l'évaluation du spectre des standards est pénible et ennuyeux.

### 2.2.2 Standardisation d'un seul comparateur (mono standard)

Dans son concept, la méthode d'un seul comparateur NAA se sert des facteurs  $k_0$ , qui sont déterminées expérimentalement par la co-irradiation du standard et le seul comparateur (mono-standard; indexé c) :

$$k_c(s) = \frac{A_{sp,s}}{A_{sp,c}} \quad (2.27)$$

$k_c(s)$  en fait est défini comme :

$$k_c(s) = \frac{M_c \theta_s \gamma_s \sigma_{0,c}}{M_s \theta_c \gamma_c \sigma_{0,s}} \cdot \frac{G_{th,s} f + G_{e,s} Q_{0,s}(\alpha)}{G_{th,c} f + G_{e,c} Q_{0,c}(\alpha)} \cdot \frac{\epsilon_{p,s}}{\epsilon_{p,c}} \quad (2.28)$$

Cependant, la concentration de l'élément peut être obtenue par la co-irradiation de l'échantillon et le mono comparateur :

$$\rho_{a, ppm} = \frac{\left( \frac{N_p / t_m}{SDCW} \right)_a}{A_{sp,c}} \cdot 10^6 / k_c(s) \quad (2.29)$$

à condition que  $\theta_a = \theta_s$ , et :



- Le self-shielding du neutron est essentiellement le même pour l'analyse respectivement comparateur et standard, comparateur dans des conditions d'irradiation de l'analyse et de la détermination  $k_c(s)$ . La solution la plus franche est de prendre dans tout les cas  $G_{th} = G_e = 1$ ;
- $f$  et  $\alpha$  ne montrent aucune différence significative dans les conditions d'irradiation de l'analyse et la détermination de  $k_c(s)$ . Ainsi, l'application de la méthode est liée à la position d'irradiation ou  $k_c(s)$  est déterminé. En outre, il est clair de l'Eq (2.28) que la variation de  $f$  [au moment de la détermination de  $k_c(s)$ ] causera des erreurs négligeables si  $Q_{0s} \equiv Q_{0c}$ , cette observation serait naturellement non adaptée en cas de l'analyse multiélément par activation neutronique.
- L'efficacité de détection, incluant l'atténuation gamma, est essentiellement la même pour l'analysé / comparateur et standard/comparateur dans des conditions de mesure de l'analyse et la détermination de  $k_c(s)$ , respectivement. Ainsi, l'application de la méthode est liée à la position géométrique de comptage de  $k_c(s)$  (notant que  $\epsilon_{p,a}$  et  $\epsilon_{p,s} \neq \epsilon_{p,c}$  est ignoré) ;
- Tous les paramètres de flux ( $\phi_s$ ,  $f$  et  $\alpha$ ) restent constants durant l'irradiation.

Notant que, comme dans la standardisation relative, les valeurs  $N_p$  ne sont pas corrigés par rapport aux effets des vraies coïncidences.

Evidemment, la méthode d'un seul comparateur peut être étendue aussi bien à ENAA, et la définition de  $k_c(s)$  est donc donnée par l'Eq (2.28) avec  $f = 0$  et en multipliant les termes  $G_e \cdot Q_0(\alpha)$  par le facteur  $F_{Cd}$  correspondant.

A l'extrême, si une excellente stabilité à long terme du flux du réacteur, on peut omettre l'utilisation d'un mono-comparateur, et à priori  $A_{sp,s}$  déterminé est égale à  $A_{sp,a}$ ; c'est le cas dans le réacteur SLOWPOKE. <sup>23, 29</sup>

Pour la détermination expérimentale de  $k$ , plusieurs chercheurs suggèrent de faire la conversion des facteurs  $k$  en respectant les conditions d'irradiation ( $f$  et  $\alpha$ ), ou en respectant les conditions de mesure (exige la détermination de  $\epsilon_p$ ). Si l'exécution est faite correctement, l'exactitude de la standardisation d'un seul comparateur peut être estimée à 3 % ou moins. Son évident avantage est la simplicité expérimentale, à condition que les facteurs  $k_0$  seront déterminés a priori; son utilisation est très sollicitée dans l'analyse de routine d'une longue série d'échantillons semblables.

### 2.2.3 Standardisation absolue (paramétrique)

L'échantillon analysé est co-irradié avec le moniteur de flux, la concentration peut être déterminée comme suivant :

$$\rho_{a,\text{ppm}} = \frac{\left(\frac{N_p}{t_m}\right)}{A_{\text{sp,m}}} \cdot \frac{M_c \theta_s \gamma_s \sigma_{0,s}}{M_s \theta_c \gamma_c \sigma_{0,c}} \cdot \frac{G_{\text{th,s}} f + G_{\text{e,s}} Q_{0,s}(\alpha)}{G_{\text{th,c}} f + G_{\text{e,c}} Q_{0,c}(\alpha)} \cdot \frac{\epsilon_{p,s}}{\epsilon_{p,c}} \cdot 10^6 \quad (2.30)$$

à condition que  $\Phi_s$ ,  $f$  et  $\alpha$  restent constants durant l'irradiation.

La méthode de standardisation absolue, expérimentalement très facile, exige la connaissance exacte des paramètres  $M$ ,  $\theta$ ,  $\gamma$ , et  $\sigma_0$  pour l'élément analysé et moniteur. En principe, ces données nucléaires peuvent être trouvées dans la littérature, mais ceci pourrait mener à la détérioration de la traçabilité des résultats analytiques.

En effet,  $\sigma_0$ ,  $\gamma$  et  $\theta$  (par ordre d'importance décroissant) peuvent être les sources d'erreurs considérables ou des incertitudes. Les considérations précédentes étaient fortement étudiées pour l'élaboration de la méthode de standardisation  $k_0$ .

En plus de l'introductions des corrections de  $G_{\text{th}}$  et  $G_{\text{e}}$  dans toutes les méthodes d'étalonnage, la standardisation absolue exige non seulement la connaissance de  $M$ ,  $\theta$ ,  $\gamma$ , et  $\sigma_0$ , mais aussi les valeurs  $N_p$ ,  $f$ ,  $Q_0(\alpha)$  et  $\epsilon_p$ , doivent être corrigées pour les effets des vraies coïncidences. Ces paramètres supplémentaires sont essentiellement les mêmes dans la standardisation  $k_0$ . Plusieurs chercheurs ont rendu compte de l'application de la méthode absolue en cas du spectre neutronique fortement thermalisé ( $f$  élevé), qui fait disparition des termes  $G_{\text{e}} \cdot Q_0(\alpha)$  dans l'Eq (2.30).

D'autre part, l'extension de la méthode à ENAA est possible; donc, l'Eq (2.30) devrait être modifiée en mettant  $f = 0$  et en multipliant  $G_{\text{e}} \cdot Q_0(\alpha)$  par les facteurs correspondants de  $F_{\text{cd}}$ .

## 2.2.4 La standardisation $k_0$

### 2.2.4.1 Les Concepts de base

Le concept de la méthode de standardisation  $k_0$  de l'analyse par activation neutronique lancée en 1975, peut être approché de deux manières différentes :

1. Si les facteurs  $k$  déterminés expérimentalement par la méthode d'un seul comparateur doivent être normalisés aux conditions d'irradiation ( $f, \alpha$ ) et de mesure ( $\epsilon_p$ ), on obtient :

$$\begin{aligned} k_{0,c}(s) &= k_c(s) \cdot \frac{G_{th,c} f + G_{e,c} Q_{0,c}(\alpha)}{G_{th,s} f + G_{e,s} Q_{0,s}(\alpha)} \cdot \frac{\epsilon_{p,c}}{\epsilon_{p,s}} \\ &= \frac{A_{sp,s}}{A_{sp,c}} \cdot \frac{G_{th,c} f + G_{e,c} Q_{0,c}(\alpha)}{G_{th,s} f + G_{e,s} Q_{0,s}(\alpha)} \cdot \frac{\epsilon_{p,c}}{\epsilon_{p,s}} \end{aligned} \quad (2.31)$$

De l'Eq (2.30), les facteurs  $k_{0,c}(s)$  sont définis comme un composé de constantes nucléaires qui sont actuellement tabulés et publiés dans la littérature : <sup>11</sup>

$$k_{0,c}(s) = \frac{M_c \theta_s \gamma_s \sigma_{0,s}}{M_s \theta_c \gamma_c \sigma_{0,c}} \quad (2.32)$$

Supposant maintenant que l'échantillon est co-irradié avec le moniteur (m), pour que la facteur  $k_{0,c}(m)$  déterminé expérimentalement soit disponible [s remplacé par m dans l'Eq (2.31) et dans la définition de (2.32)]. Puis, par conversion  $k_{0,c}(s)/k_{0,c}(m) = k_{0,m}(s)$  aux conditions d'analyse d'irradiation ( $f, \alpha$ ) et de mesure ( $\epsilon_p$ ), la concentration de l'analysé peut être obtenue comme  $k_{0,c}(s) = k_{0,c}(a)$  à condition que  $\theta_a = \theta_s$  (aucune variabilité isotopique):

$$\rho_{a,ppm} = \frac{\left( \frac{N_p}{t_m} \right)}{A_{sp,m}} \cdot \frac{k_{0,c}(m)}{k_{0,a}(a)} \cdot \frac{G_{th,m} f + G_{e,m} Q_{0,m}(\alpha)}{G_{th,a} f + G_{e,a} Q_{0,a}(\alpha)} \cdot \frac{\epsilon_{p,m}}{\epsilon_{p,a}} \cdot 10^6 \quad (2.33)$$

Notant que dans les Eqs (2.31) et (2.33) les paramètres  $f, \alpha$  et  $\epsilon_p$  réfèrent clairement aux conditions expérimentales de la détermination de  $k_0$  et de l'élément analysé, respectivement.

Selon le raisonnement ci-dessus, la méthode  $k_0$  peut être interprétée comme la standardisation d'un seul comparateur, ce qui la rendu complètement souple en ce qui concerne les conditions d'irradiation et de mesure.

2. Si dans la méthode de standardisation absolue l'ensemble des données nucléaires  $[M_m \theta_a \gamma_a \sigma_{0,a} / M_a \theta_m \gamma_m \sigma_{0,m}]$  de l'Eq (2.31) est remplacé par un seul composé nucléaire constant  $k_{0,m}(a)$ , on obtient :

$$\rho_{a,ppm} = \frac{\left( \frac{N_p / t_m}{SDCW} \right)_a}{A_{sp,m}} \cdot \frac{1}{k_{0,m}(a)} \cdot \frac{G_{th,m} f + G_{e,m} Q_{0,m}(\alpha)}{G_{th,a} f + G_{e,a} Q_{0,a}(\alpha)} \cdot \frac{\epsilon_{p,m}}{\epsilon_{p,a}} \cdot 10^6 \quad (2.34)$$

avec  $k_{0,m}(a) = k_{0,c}(a) / k_{0,c}(m)$  [de la définition (2.32)], ceci mène à l'Eq (2.33), et l'Eq (2.31) permet la détermination expérimentale de  $k_{0,c}(a) = k_{0,c}(s)$  et  $k_{0,c}(m)$  [pour le dernier, remplaçant  $s$  par  $m$  dans l'Eq (2.31)].

On devrait remarquer que, ces équations sont seulement prises à condition que tous les paramètres de flux appropriés ( $\phi_s$ ,  $f$  et  $\alpha$ ) restent constants durant l'irradiation. Comme dans la méthode absolue, toutes les valeurs  $N_p$  impliquées devraient être corrigées par les effets de coïncidence.

Selon le raisonnement ci-dessus, la méthode  $k_0$  peut être interprétée comme la standardisation absolue avec la substitution des données nucléaires absolues pour la détermination expérimentale des facteurs  $k_0$ . Ceci élimine les erreurs systématiques dues au manque de fiabilité et l'incertitude des données nucléaires, à condition que les facteurs déterminés expérimentalement sont précis, afin d'atteindre une exactitude meilleure de 2%.

Des données sont publiées par un certain nombre de compilations, avec plusieurs extensions et mises à jour au cours des dernières années. <sup>7, 31</sup>

Ces ensembles de données partielles sont assemblées et insérées dans des tables de base de données électronique. <sup>24, 54</sup>

Evidemment, la méthode  $k_0$  peut être appliquée à ENAA, en mettant simplement  $f = 0$  dans l'Eq (2.33) [ou l'Eq (2.34)] et multipliant  $G_e Q_0(\alpha)$  par le facteur  $F_{Cd}$  correspondant.

En résumé, les principes fondamentaux de la méthode  $k_0$  sont :

$$\text{NAA : } \rho_{a,\text{ppm}} = \frac{\left(\frac{N_p}{t_m}\right)_a}{A_{\text{sp},m}} \cdot \frac{k_{0,c}(m)}{k_{0,a}(a)} \cdot \frac{G_{\text{th},m}f + G_{e,m}Q_{0,m}(\alpha)}{G_{\text{th},a}f + G_{e,a}Q_{0,a}(\alpha)} \cdot \frac{\varepsilon_{p,m}}{\varepsilon_{p,a}} \cdot 10^6 \quad (2.35)$$

$$\text{ENAA : } \rho_{a,\text{ppm}} = \frac{\left[\left(\frac{N_p}{t_m}\right)_{\text{Cd}}\right]_a}{A_{\text{sp},m}} \cdot \frac{k_{0,c}(m)}{k_{0,a}(a)} \cdot \frac{F_{\text{Cd},m}G_{e,m}Q_{0,m}(\alpha)}{F_{\text{Cd},a}G_{e,a}Q_{0,a}(\alpha)} \cdot \frac{\varepsilon_{p,m}}{\varepsilon_{p,a}} \cdot 10^6 \quad (2.36)$$

[a : l'élément analysé dans l'échantillon, avec  $k_{0,c}(a) = k_{0,c}(s)$  ; m : moniteur co-irradié, avec la détermination expérimentale  $k_{0,c}(m)$ ; si  $m = c$ ,  $k_{0,c}(m) \cong 1$ ].

### 2.2.4.2 Paramètres de la méthodes $k_0$

A partir des Eqs (2.31) et (2.36), il suit que, pour le développement et l'application de la méthode de standardisation  $k_0$ , les matières suivantes doivent être traitées :

- A.** Détermination expérimentale des facteurs  $k_0$  dont les prochains points (B –C), tous les paramètres concernant la préparation, l'irradiation et la mesure des standards (comme dans la méthode relative) doivent être prises en considération, ceci inclus par exemple le calcul ou la détermination expérimentale des facteurs  $G_{\text{th}}$  et  $G_e$ .
- B.** Contribution de l'activation épithermique, incluant :
  1. Détermination expérimentale de  $f$  ;
  2. Détermination expérimentale de  $\alpha$  ;
  3. Calcul ou détermination expérimentale de  $\bar{E}_f$  [pour la conversion  $Q_0 \rightarrow Q_0(\alpha)$ ];
  4. Evaluation ou détermination expérimentale de  $F_{\text{Cd}}$  ;
  5. Evaluation ou détermination expérimentale de  $Q_0$
- C.** Détermination expérimentale et la conversion de  $\varepsilon_p$ , incluant l'atténuation gamma.
- D.** Correction de  $N_p$  pour :
  1. Les effets des vraies coïncidences ;
  2. Les effets de burn-up;
  3. Interférences primaires [les neutrons rapides induits par les réactions  $(n, n')(n, 2n)$ ];
  4. Les petites déviations de  $g(T_n)$  par rapport à l'unité ;
  5. Paramètres de flux ( $\phi_s, f, \alpha$ ) constants durant l'irradiation.

### 2.2.4.3 Les incertitudes, la propagation d'erreur et les valeurs moyennes

Le système de métrologie international inclut la condition que chaque résultat analytique devrait être rapporté avec son incertitude correspondante. En raison de l'évaluation de la méthode  $k_0$ -NAA, il est essentiel d'attribuer les incertitudes des paramètres mentionnés précédemment et de considérer la propagation de ces incertitudes vers des quantités dérivées de ces paramètres tels que les facteurs  $k_0$  et les résultats analytiques. L'incertitude doit être comprise comme meilleure estimation d'inexactitude possible, due à l'erreur aléatoire et systématique.

En général, la quantité à déterminer ( $Q$ ) dépend du nombre des paramètres ( $p_j$ ), chacun est associé avec l'inexactitude ( $s_{p_j}$ ) qui s'est propagée vers cette quantité.

Ces paramètres et incertitudes peuvent être classifiés comme suit <sup>6</sup> :

- Les paramètres avec l'incertitude aléatoire peuvent être décrit par les lois probabilistes. Ces paramètres influencent la précision de la détermination. L'exemple typique dans NAA est le nombre de coups collectés sous le pic, sauf en prenant en compte l'incertitude du comptage statistique;
- Les paramètres avec l'incertitude systématique ne peuvent pas être réduit en aucun cas. Ces paramètres influencent l'exactitude intrinsèque de la détermination. Un exemple évident dans la standardisation  $k_0$ -NAA (du point de vue de l'analyste) est le facteur  $k_0$  avec son incertitude citée;
- Les paramètres avec l'incertitude systématique peuvent être réduit. Ces paramètres influencent l'exactitude expérimentale de la méthode. Par exemple, dans  $k_0$ -NAA et à partir des équations (2.38) et (2.39), l'incertitude induite par le rapport des efficacités de détection  $\epsilon_{p,m}/\epsilon_{p,a}$  peut être réduite au minimum par la mesure de l'échantillon et le moniteur à la même distance du détecteur.

Notant qu'un paramètre peut avoir une incertitude aléatoire et systématique, par exemple, le nombre de coups collectés sous le pic est associé à l'incertitude aléatoire pour les comptages statistiques et à l'incertitude systématique pour l'évaluation de la surface du pic.

La fonction qui relie  $Q$  et  $P_j$  peut être écrite implicitement comme :

$$F(Q, P_j) = 0 \quad (2.37)$$

La dérivée partielle de l'Eq (2.37) est :

$$\frac{\delta F}{\delta Q} dQ + \frac{\delta F}{\delta p_j} dp_j = 0 \quad (2.38)$$

en exprimant les incertitudes en termes différentielles, on obtient :

$$Z_Q(p_j) = \left| \frac{dQ}{Q} / \frac{dp_j}{p_j} \right| = \left| \frac{p_j}{Q} \frac{\delta F}{\delta p_j} / \frac{\delta F}{\delta Q} \right| \quad (2.39)$$

ou  $Z_Q(p_j)$  dénote le facteur de la propagation d'erreur "partiel" pour  $Q$ , on respectant l'incertitude relative dans  $p_j$  pour obtenir l'incertitude relative associée dans  $Q$ , i.e:

$$s_Q(p_j), \% = Z_Q(p_j) \cdot s_{p_j}, \% \quad (2.40)$$

Si  $Q$  peut être écrit comme une fonction explicite de  $p_j$  :

$$Q = F(p_j) \quad (2.41)$$

Les précédentes deviennent :

$$Z_Q(p_j) = \left| \frac{p_j}{Q} \cdot \frac{\delta Q}{\delta p_j} \right| \quad (2.42)$$

Il devrait être noté que la validité des Eqs (2.39) et (2.42) est en principe limitée pour modérer les valeurs  $s_{p_j}$ . A l'aide des équations (2.40) et (2.39) [ou (2.42)], il est possible de calculer les contributions de l'incertitude  $s_Q(p_j), \%$  de la quantité à déterminer, qui sont de nature aléatoire ou systématique.

L'incertitude totale dans la quantité  $Q$  est :

$$s_Q, \% = \left\{ \sum_j \left[ Z_{Q^*}(p_j) \cdot s_{p_j} \right]^2 \right\}^{1/2} \quad (2.43)$$

Dans tous ces cas, l'incertitude citée sur la moyenne pesée est la plus grande des erreurs internes et externes, auxquelles des incertitudes systématiques communes sont quadratiquement ajoutées, comme expliqué ci-dessus.

### CHAPITRE III

#### 3.1 Description du taux de réaction (n,γ)

##### 3.1.1 Formule générale

Pour un nucléide irradié dans un réacteur neutronique, le taux de réaction (n,γ) par noyau (en s<sup>-1</sup>) est donné par :

$$R = \int_0^{\infty} \sigma(v) \varphi'(v) dv = \int_0^{\infty} \sigma(E) \varphi'(E) dE \quad (3.1)$$

avec  $\sigma(v)$ : section efficace (n,γ) (en cm<sup>2</sup>; 1 barn (b) = 10<sup>-24</sup> cm<sup>2</sup>) à la vitesse du neutron  $v$  (cm.s<sup>-1</sup>);  $\sigma(E)$  : section efficace (n,γ) (en cm<sup>2</sup>) à l'énergie  $E$  du neutron (en eV);  $\varphi'(v)$  : flux des neutrons par unité d'intervalle (en cm<sup>-3</sup>) à la vitesse  $v$  du neutron;  $n'(v) v$ , avec  $n'(v)$  densité neutronique par unité d'intervalle (en cm<sup>-4</sup>.s) à la vitesse  $v$  du neutron;  $\varphi'(E)$  : flux des neutrons par unité d'intervalle (en cm<sup>-2</sup> s<sup>-1</sup> eV<sup>-1</sup>) à l'énergie  $E$  du neutron.

Dans l'Eq (3.1),  $\sigma(v) = \sigma(E)$  avec  $E$  (en erg = 6.2415.10<sup>11</sup> eV) =  $\frac{1}{2} m_n v^2$  [ $m_n$  : excès de masse du neutron = 1.6749.10<sup>-24</sup> g]. Par définition  $\varphi'(v) dv = \varphi'(E) dE$  (les deux en cm<sup>-2</sup> s<sup>-1</sup>).

##### 3.1.2 Fonctions section efficace (n,γ) et flux neutronique

Les fonctions dans l'Eq (3.1) sont complexes et dépendent de la réaction (n,γ) et du site d'irradiation, respectivement. Heureusement, l'introduction de certaines caractéristiques qui sont généralement valides, rapporte la possibilité d'éviter l'intégration et d'écrire exactement le taux de réaction d'une façon relativement simple par les supposer formalismes ou conventions.

Ces caractéristiques sont:

- La section efficace  $\sigma(v)$  en fonction de  $v$  est interprétée comme une dépendance  $\sigma(v) \sim 1/v$ , ou  $\sigma(E)$  en fonction de  $E$  comme la dépendance  $\sigma(E) \sim 1/E^{1/2}$ .
- Log  $\sigma(E)$  en fonction de log  $E$  est linéaire avec une pente -1/2, dont plusieurs résonances sont superposées (Fig 3.1).



- Les résonances et la queue  $1/v$ , sont décrites par l'équation de Breit-Wigner.<sup>1</sup>

Seulement quelques réactions  $(n,\gamma)$  d'intérêt dans NAA montrent une déviation significative de la dépendance  $1/v$  dans la région d'énergie inférieure à 1,5 eV (due à la basse résonance). Pour la description du taux de réaction, quelques conventions basées sur la transformation de l'Eq (3.1).

- Les déviations qui dépendent de la température  $T_n$ , sont comptées à travers l'introduction du facteur  $g(T_n)$  de Westcott ( $\neq 1$  dans ces cas).
- La Distribution du flux neutronique, c à d.  $\phi'(E)$  en fonction de  $E$ , peut être divisée en trois composants (Fig 3.2) : <sup>1, 18</sup>

**1.** Spectre des neutrons rapides ou de fission, montre un maximum à l'énergie  $\sim 0.7$  MeV du neutron, l'énergie la plus probable, est fréquemment décrite par la représentation semi empirique de Watt. Puisque  $\sigma(v)$  devient très petite dans la région de MeV, la contribution du taux de réaction  $(n,\gamma)$  induite par les neutrons rapides peut être négligée. Aussi puisque pour les conditions pratiques d'irradiation dans NAA, la composante du flux rapide dans la plupart des cas est relativement petite donc elle n'est pas dominante.

**2.** Un spectre de neutrons de faible énergie, se conduit à l'équilibre thermique avec l'environnement (modérateur) après ralentissement ou modération. Ce spectre peut être décrit par la distribution de Maxwell-Boltzmann. Dans la représentation  $\phi'(E)$  en fonction de  $E$  ou  $n'(v)$  en fonction de  $v$ , le maximum de la courbe (l'énergie ou la vitesse la plus probable) est situé à  $E(T_n) = kT_n$  ou  $v(T_n) = [2E(T_n)/m_n]^{1/2} = [2kT_n/m_n]^{1/2}$ , respectivement. ( $k$  constante de Boltzmann =  $1.3080 \cdot 10^{-16}$  erg  $K^{-1}$ ;  $T_n$  = température neutronique, en K). Dans les conditions standards:  $T_0 = 297.59$  K,  $E_0 = 0.0253$  eV,  $v_0 = 2.200 \cdot 10^5$  cm  $s^{-1} = 2200$  m  $s^{-1}$ ; la valeur  $\sigma(v_0) = \sigma_0$  réfère à la section efficace à 2200m  $s^{-1}$ ;

**3.** Le spectre des neutrons épithermiques indexé par 'e' (intermédiaire, modération, ralentissement) peut être décrit par la dépendance  $\phi'_e(E) \sim 1/E$ . Dans les sites d'irradiation, le spectre peut être remplacé par la dépendance  $\phi'_e(E) \sim 1/E^{1+\alpha}$ , avec  $\alpha$  ( $>$  ou  $<$  0) étant une première approximation indépendante de l'énergie du neutron. Pour cela, on peut assumer un arrêt pointu du flux épithermique à  $5E(T_n)$ . Les valeurs positives et négatives

de  $\alpha$  correspondent à l'appauvrissement et le renforcement du spectre épithermique, par rapport à l'idéal ( $\alpha = 0$ ), ceci est illustré dans la figure 3.3. 11

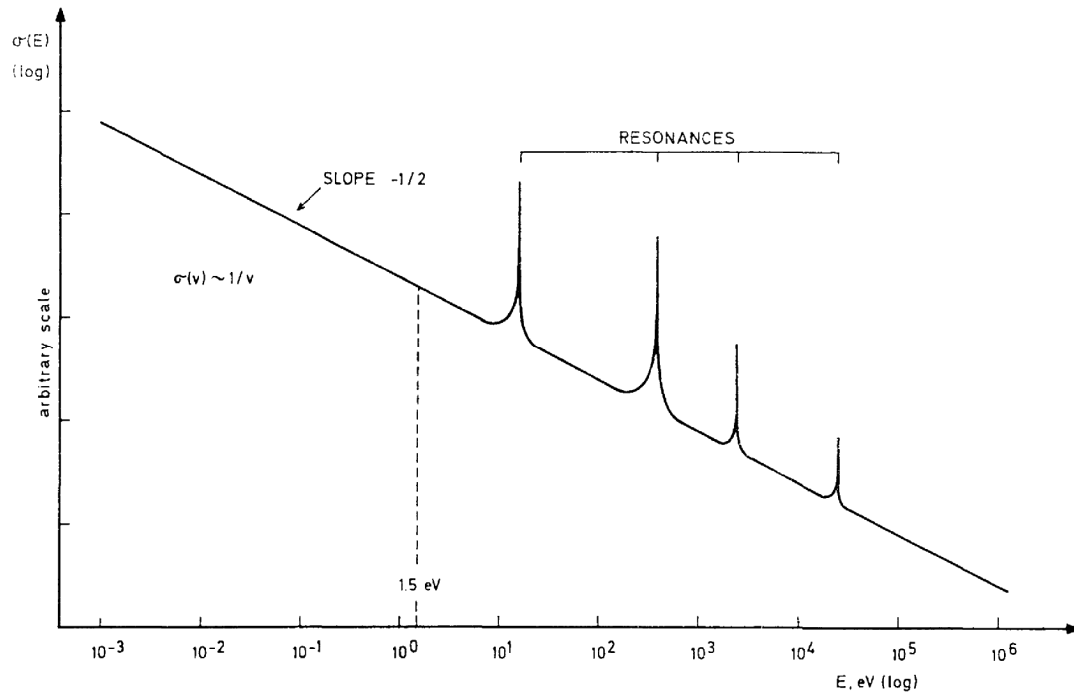


Figure 3.1: Représentation schématique de la fonction section efficace  $(n,\gamma)$  en fonction de E

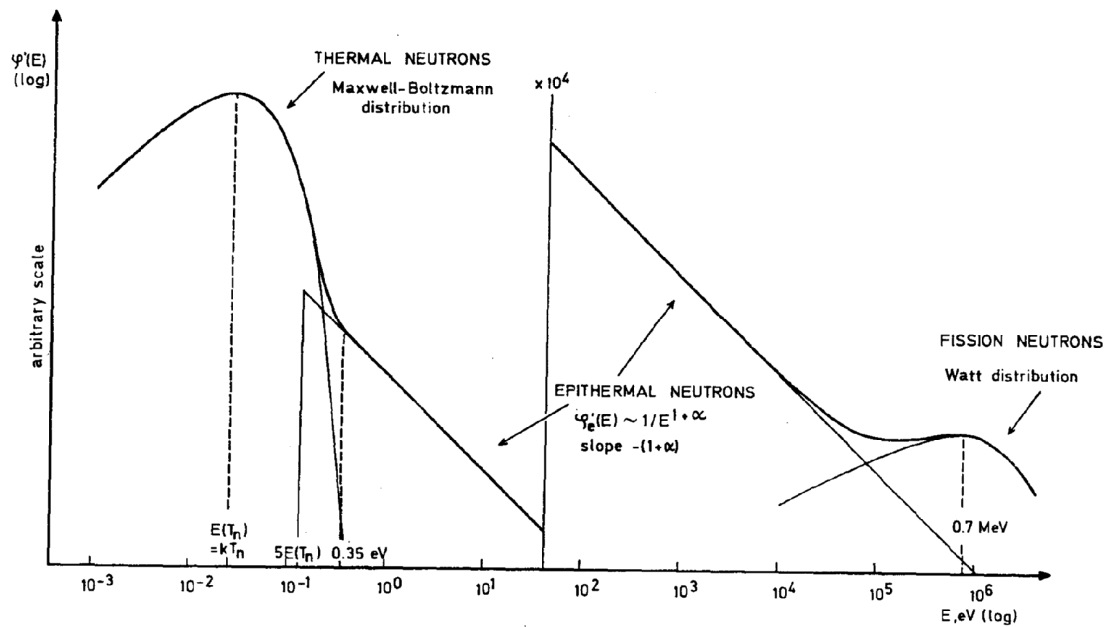
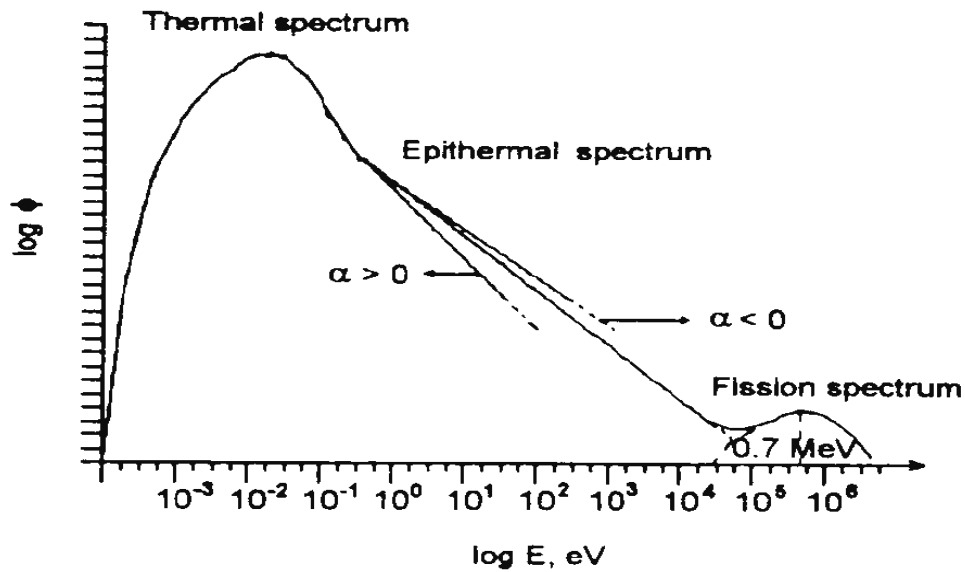


Figure 3.2 : Représentation schématique de la distribution du flux  $\phi'(E)$  en fonction de E



**Figure 3.3 :** Non idéalité du spectre épithermique

En raison des considérations relatives à l'énergie effective de coupure du Cd, il est important de remarquer que le flux Maxwellien de neutron n'affecte pratiquement pas le flux épithermique au-dessus de l'énergie  $\sim 0,35 \text{ eV}$ . En pratique, ceci pourrait se produire pour le spectre maxwellien chaud ( $T_n$  élevée), mais la perturbation est empêchée car pour les conditions pratiques de NAA, le degré de thermalisation est faible (rapport de flux thermique à épithermique faible).

## 3.2 Convention de HOGDAHL

### 3.2.1 Choix de la convention

Parmi les conventions généralement adoptées, celles du Westcott et du Stoughton et du Halperin sont les plus appliqués<sup>9</sup>, puisqu'elles tiennent compte de la déviation possible de la dépendance  $\sigma(v) \sim 1/v$  dans la région de basse énergie. Ceci implique la connaissance des facteurs du Westcott  $g(T_n)$  et par conséquent une surveillance de température neutronique est exigée. Puisque,  $g(T_n) = 1$  (indépendant de la température de neutron) pour la grande majorité des réactions  $(n, \gamma)$  d'intérêt analytique. Par conséquent, La convention la plus simple de Høgdahl est adoptée pour la plupart des réactions  $(n, \gamma)$ , seulement  $^{152}\text{Eu}$  et  $^{176}\text{Lu}$ , qui violent sérieusement la dépendance  $1/v$ , elles sont alors exclues d'être traité.

### 3.2.2 Energie effective de coupure du cadmium

Avant d'évoquer la convention de Høgdahl, il est nécessaire de considérer le concept de l'énergie effective de coupure du Cd. En irradiant un nucléide sous Cd, le taux de réaction  $(n, \gamma)$  est rigoureusement réduit dans la région de basse énergie, car les neutrons sont largement absorbés par le Cd due à sa très grande section efficace  $(n, \gamma)$  et plus précisément causé par la résonance du  $^{113}\text{Cd}$   $(n, \gamma)$  à 0,178 eV [voir Fig 3.4a].

La fonction  $T(E)$  de la transmission du cadmium de 1mm d'épaisseur est montrée dans la Fig 3.4b, et elle est calculée comme :

$$T(E) = e^{-\sigma_{\text{tot}, \text{Cd}}(E) \delta N_A l_0 / M} \quad (3.2)$$

avec  $\delta$ : densité du Cd = 8.642 g/cm<sup>3</sup>,  $N_A$ : nbre d'Avogadro 6.0221.10<sup>23</sup> mol<sup>-1</sup>,  $l_0$ : épaisseur du Cd : 0.1cm,  $M$ : masse molaire du Cd :112.41 g mol<sup>-1</sup>,  $\sigma_{\text{tot}, \text{Cd}}(E)$ : fonction de la section efficace ( Fig. 3.2-1a), en cm<sup>2</sup>, ou  $T(E) \cong 0$  pour  $E < 0.2$  eV et  $T(E) \cong 1$  à  $E > 2$  eV.

Quelques simplifications ont été faites pour obtenir la courbe  $T(E)$  de Fig 3.4b, par exemple:

Les effets de géométrie causés par l'échantillon et le Cd ont été négligés; un faisceau de neutrons considéré monodirectionnel, frappe la feuille de Cd de 1mm d'épaisseur dans une direction normale à sa surface. Il est possible de considérer une transmission réelle de fonction  $t(E)$  [voir Fig 3.4b], situé à l'énergie effective de coupure  $E_{Cd}$  [ $t(E) = 0$  à  $E < E_{Cd}$  et  $t(E) = 1$  à  $E > E_{Cd}$ ], de sorte que le taux de réaction  $R_e$  peut être écrit sous la forme:

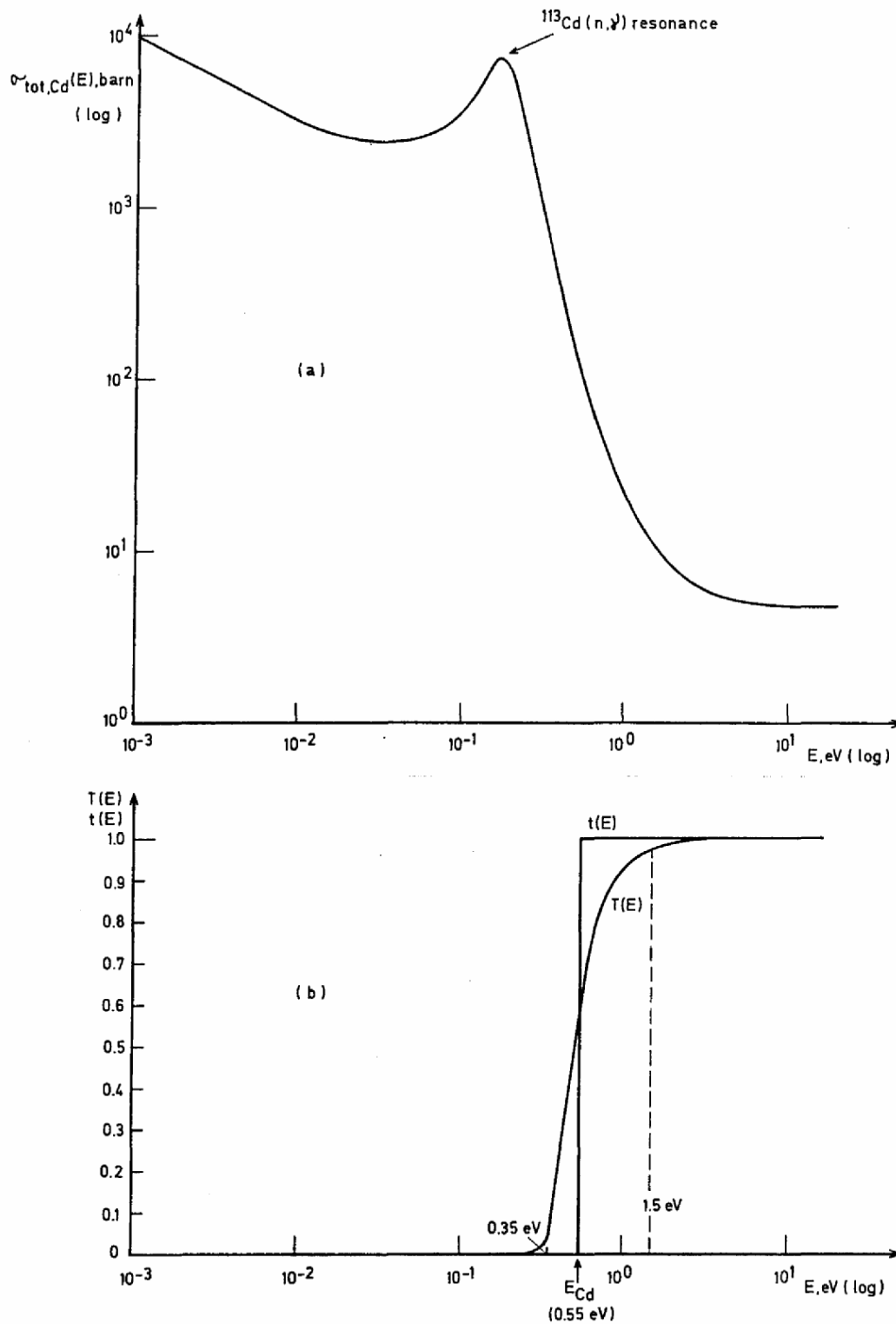
$$\begin{aligned} R_e &= \int_0^{\infty} \sigma(E) \phi'(E) T(E) dE \\ &= \int_0^{\infty} \sigma(E) \phi'(E) t(E) dE \\ &= \int_{E_{Cd}}^{\infty} \sigma(E) \phi'(E) dE \end{aligned} \quad (3.3)$$

La valeur de  $E_{Cd} = 0.55$  eV est acceptée universellement selon les conditions suivantes :

Le nucléide ayant la dépendance  $\sigma(v) \sim 1/v$  supérieure à 1.5 eV [ou  $T(E)$  s'approche de l'unité, voir Fig 3.4b]. Les petites déviations ne font pas différer  $E$  de manière significative de 0,55 eV; par exemple,  $^{197}\text{Au} (n,\gamma)$ , avec  $g(293.59 \text{ K}) = 1.005$ ,  $E_{Cd} = 0.56$  eV. Les réactions  $^{151}\text{Eu} (n,\gamma)$  et  $^{176}\text{Lu} (n,\gamma)$  ne remplissent pas cette condition.

Le flux neutronique devrait être homogène et isotropique, avec la distribution du flux épithermique suivant la loi  $1/E$  inférieur à  $\sim 0.35$  eV [ou  $T(E)$  s'approche de 0] ; (voir Fig 3.4b). La perturbation épithermique par le flux neutronique Maxwellien au-dessus de 0.35 eV doit être arrêté, particulièrement en cas de  $T_n$  élevée ou d'une grande thermalisation. Cependant, il apparaît qu'à  $T_0 = 293.59 \text{ K}$  ( $E_0 = 0.0253$  eV), la valeur  $E_{Cd}$  ramené est 0,546 eV ne change pas avec le rapport de flux thermique et épithermique.

Le matériel à irradier devrait avoir un volume relativement petit et devrait être placé approximativement au centre d'une boîte cylindrique de cd avec des parois de 1mm d'épaisseur et un rapport de hauteur / diamètre = 2.



**Figure 3.4 :** (a) Courbe de la section efficace totale du Cd,  $\sigma_{\text{tot,Cd}}(E)$ , (b) fonctions  $T(E)$  et  $t(E)$  de transmission Cd réelles et idéales des neutrons, en fonction de  $E$

### 3.2.3 Taux de réaction et rapport cadmium

Selon la convention de HOGDAHL, l'Eq 3.1 avec l'introduction du concept  $E_{Cd}$  est utilisée :

$$R = \int_0^{v_{Cd}} \sigma(v)\phi'(v)dv + \int_{E_{Cd}}^{\infty} \sigma(E)\phi'(E)dE \quad (3.4)$$

avec  $v_{Cd} = (2 E_{Cd}/m_n)^{1/2}$ .

A partir de  $\sigma(v) \sim 1/v$  jusqu'à  $v_{Cd}$  (en fait, jusqu'à  $\sim 1.5$  eV), on peut écrire dans le coté gauche de l'intégrale  $\sigma(v) = \sigma_0 v_0/v$ , ou l'ensemble  $v_0$  et  $\sigma_0$  est arbitrairement choisi. Puisqu'on peut supposer  $\phi'(E) \sim 1/E^{1+\alpha}$  non perturbé [ou  $\phi'(E) \sim 1/E$ , si  $\alpha = 0$ ] le spectre épithermique au-dessous de  $E_{Cd}$  (en fait, au-dessous  $\sim 0.35$  eV), on peut être sommé par :

**Pour un spectre 1/E**

$$\phi'_e(E) = \phi'_e(1\text{eV}) \cdot 1\text{eV}/E$$

**Pour un spectre 1/E<sup>1+α</sup>**

$$\phi'_e(E) = \phi'_e(1\text{eV})^{1+\alpha} \cdot 1\text{eV}/E^{1+\alpha}$$

avec  $1 \text{ eV} =$  énergie de référence choisi arbitrairement. Par définition le flux des neutrons épithermiques ( $\text{cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ ) comme  $\phi_e = \phi'_e(1\text{eV}) \cdot 1\text{eV}$ , nous obtenons :

$$\phi'_e(E) = \phi_e / E \quad (3.5a)$$

flux des neutrons épithermiques par unité d'intervalle  $\ln E$ , l'intégration rapporte

$$\phi_e = \frac{\int_{E_1}^{E_h} \phi'_e(E) dE}{[\ln(E_h / E_1)]}$$

avec  $E_h$ ,  $E_l$  la borne supérieure et inférieure

$$\phi'_e(E) = \phi_e \cdot 1\text{eV}/E^{1+\alpha} \quad (3.5b)$$

Ici,  $\phi_e$  est le vrai flux épithermique par unité d'intervalle  $(-\frac{E^{-\alpha}}{\alpha}) \cdot 1\text{eV}^\alpha$  donc l'intégration

$$\text{rapporte } \phi_e = \frac{\int_{E_1}^{E_h} \phi'_e(E) dE}{\text{eV}^\alpha [-E^{-\alpha}/\alpha]}$$

avec  $E_h$  et  $E_l$  la borne supérieure et inférieure

Rappelant que  $\phi'(v) = n'(v)v$ , l'Eq (2.1-4) peut être transformée comme :

$$R = \sigma_0 v_0 \int_0^{v_{Cd}} n'(v) dv + \phi_e \int_{E_{Cd}}^{\infty} \sigma(E) dE / E$$

$$= \sigma_0 v_0 n_s + \phi_e I_0 \quad (3.6a)$$

$$= \phi_e \sigma_0 + \phi_e I_0$$

$$\text{avec } I_0 = \int_{E_{Cd}}^{\infty} \sigma(E) dE / E \quad (3.7a)$$

L'intégrale de résonance pour  $1/E$  ( $\text{cm}^2$ )

$$R = \sigma_0 v_0 \int_0^{v_{Cd}} n'(v) dv + \phi_e 1 e V^{\alpha} \int_{E_{Cd}}^{\infty} \sigma(E) dE / E^{1+\alpha}$$

$$= \sigma_0 v_0 n_s + \phi_e I_0(\alpha) \quad (3.6b)$$

$$= \phi_e \sigma_0 + \phi_e I_0(\alpha)$$

$$\text{avec } I_0(\alpha) = 1 e V^{\alpha} \int_{E_{Cd}}^{\infty} \sigma(E) dE / E^{1+\alpha} \quad (3.7b)$$

L'intégrale de résonance pour  $1/E^{1+\alpha}$  ( $\text{cm}^2$ )

et  $n_s = \int_0^{v_{Cd}} n'(v) dv$  densité subcadmium du neutron ( $\text{cm}^{-3}$ );  $\phi_s = v_0 n_s$  flux neutronique (thermique)

subcadmium conventionnel ( $\text{cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ ). La relation entre  $I_0$  et  $I_0(\alpha)$ , et la nécessité d'introduction de  $\bar{E}_r$ . Notant que la détermination expérimentale directe du taux de réaction épicaadmium  $R_e$  est possible en irradiant le nucléide sous couverture de cadmium dans les conditions standards mentionnés ci-dessus.  $R_e$  est simplement décrit par :

$$R_e = \phi_e I_0(\alpha) \quad \text{ou} \quad R_e = \phi_e I_0 \quad (3.8)$$

Le taux de réaction subcadmium  $R_s$  est donc la différence entre les valeurs  $R$  et  $R_e$  déterminés expérimentalement.

$$R_s \text{ est décrit par : } R_s = \phi_s \sigma_0 \quad (3.9)$$

Une autre quantité utile est la mesure expérimentale du rapport Cd :

$$R_{Cd} = \frac{R}{R_e} = \frac{\phi_s \sigma_0 + \phi_e I_0(\alpha)}{\phi_e I_0(\alpha)} = [f / Q_0(\alpha)] + 1 \quad (3.10)$$

ou

$$R_{Cd} = \frac{R}{R_e} = \frac{\phi_s \sigma_0 + \phi_e I_0}{\phi_e I_0} = [f / Q_0] + 1 \quad (3.11)$$

Avec  $f = \phi_s / \phi_e$  : rapport de flux subcadmium thermique à épithermique;  $Q_0(\alpha) = I_0(\alpha) / \sigma_0$  et  $Q_0 = I_0 / \sigma_0$  : rapport de l'intégrale de résonance et section efficace à 2200 m s<sup>-1</sup>. Il est clair que  $R$  et  $R_e$  du nucléide mesuré ne peuvent pas être irradiés simultanément en irradiant le nucléide nu et couvert de Cd, puisque le Cd cause des dépressions significatives de flux dans sa proximité.<sup>2</sup>



### 3.2.4 La contribution de l'activation épithermique

#### 3.2.4.1 La distribution du flux $1/E^{1+\alpha}$ et le concept de $\bar{E}_r$

a. Le besoin de la correction pour la distribution non  $1/E$

Dans le présent travail, nous considérons la distribution non  $1/E$  afin de préserver l'exactitude de la méthode  $k_0$ -NAA. Pour cela plusieurs procédures pratiques ont été développées pour les rendre applicables dans les laboratoires d'analyse par activation neutronique et aussi pour tenir compte de la distribution non  $1/E$  du flux épithermique.

Ceci peut être illustré au moyen de deux exemples frappants :

1. Le premier exemple est lié à la détermination expérimentale de  $f$  en utilisant deux méthodes différentes, nommées : Mesure du rapport Cd, en négligeant la déviation de la distribution  $1/E$ , l'Eq (2.15) peut être réécrite comme :

$$f = (F_{Cd,r} R_{Cd,r} - 1) \cdot G_{e,r} Q_{0,r} / G_{th,r} \quad (3.12)$$

avec  $r$  = rapport du flux en connaissant la valeur  $Q_0$  et la méthode moniteur bi isotopique pour  $f$  et en négligeant la déviation de la distribution  $1/E$ , on peut trouver  $f$  comme :

$$f = \frac{G_{e,1} \cdot \frac{k_{0,Au}(1)}{k_{0,Au}(2)} \cdot \frac{\epsilon_{p,1}}{\epsilon_{p,2}} \cdot Q_{0,1} - G_{e,2} \cdot \frac{A_{sp,1}}{A_{sp,2}} \cdot Q_{0,2}}{G_{th,2} \cdot \frac{A_{sp,1}}{A_{sp,2}} - G_{th,1} \cdot \frac{k_{0,Au}(1)}{k_{0,Au}(2)} \cdot \frac{\epsilon_{p,1}}{\epsilon_{p,2}}} \quad (3.13)$$

Les valeurs  $Q_0$  et les facteurs  $k_0$  des deux isotopes 1 et 2 sont connus dans la littérature (base de données et les compilations de  $k_0$ ). Les résultats obtenus de  $f$  par les deux méthodes (rapport Cd de Au et le moniteur Zr nu) sont affichées dans le tableau 3.1, en supposant la dépendance  $\phi'_e(E) \sim 1/E$  ( $\alpha=0$ ).

**Tableau 3.1** : Résultats de  $f$  des sites d'irradiation selon les techniques précédentes

f corrigé	f ( $\alpha = 0$ )	
	Méthode $R_{Cd,Au}$	Méthode bi isotopique Zr nu
20.50	20.82	27.93
28.83	28.51	15.36

Evidemment, nous remarquons une grande différence entre les deux résultats à cause de la distribution 1/E du flux épithermique.

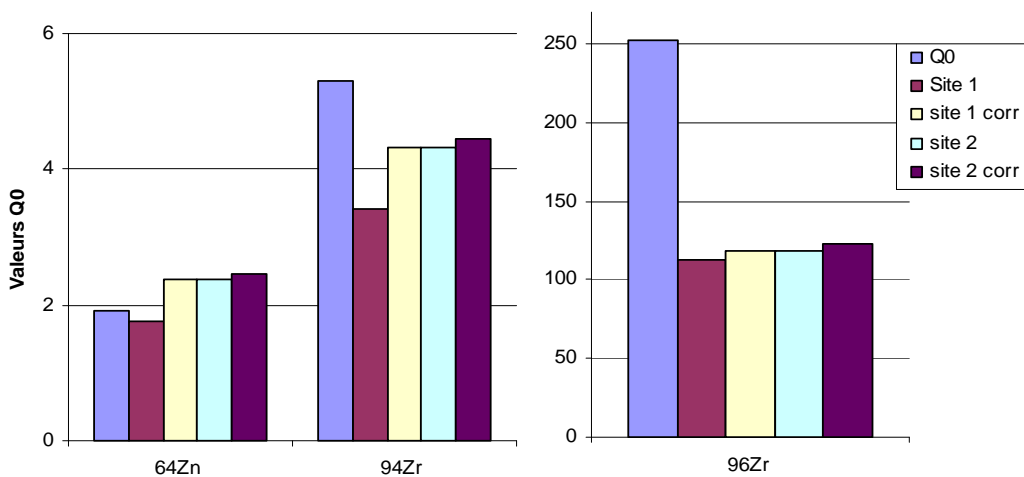
2. Le second exemple est lié à la détermination expérimentale de  $Q_0$  pour les mesures du  $R_{Cd}$ . En négligeant encore la déviation de la distribution non 1/E, ceci mène à

$$Q_0 = \frac{F_{Cd,r} R_{Cd,r} - 1}{F_{Cd} R_{Cd} - 1} \cdot \frac{G_{th}}{G_{th,r}} \cdot \frac{G_{e,r}}{G_e} Q_{0,r} \quad (3.14)$$

**Tableau 3.2** : Les résultats de  $Q_0$  avec  $r = {}^{198}\text{Au}$ .

Réaction	$Q_0$ tabulé	Mesure avec $R_{Cd}$ ( $\alpha = 0$ )	
${}^{64}\text{Zn} (n,\gamma) {}^{65}\text{Zn}$	1.908	1.77	2.56
${}^{94}\text{Zr} (n,\gamma) {}^{95}\text{Zr}$	5.306	3.41	4.65
${}^{96}\text{Zr} (n,\gamma) {}^{97}\text{Zr}$	251.6	112.94	128.0

D'après les résultats de  $Q_0$  données dans le tableau 3.2, les anomalies sont énormes dans le cas de la distribution 1/E du flux épithermique donc sans l'introduction du paramètre  $\alpha$ . Nous constatons aussi que la différence (entre la valeur calculée en utilisant la méthode rapport cadmium et la valeur tabulée) augmente dans le cas de  $Q$  élevé. Donc si la contribution du flux épithermique est consistante la correction devient importante.



**Figure 3.5** : Contribution de la distribution 1/E et  $1/E^{1+\alpha}$

b. Introduction de la distribution  $1/E^{1+\alpha}$  et  $\bar{E}_r$

Le taux de réaction par noyau peut être exprimé comme (2.1); en éliminant ( $G_{th}$  et  $G_e$ ):

$$R = \phi_s \sigma_0 + \int_{E_{cd}}^{\infty} \phi'_e(E) \sigma(E) dE \quad (3.15)$$

Comment peut on traiter l'Eq (3.15) pour la forme non  $1/E$  épithermique ? Ceci peut être résolu par l'une des approches suivantes <sup>1</sup> :

- L'évaluation rigoureuse du terme d'intégrale est effectuée par l'introduction des fonctions  $\sigma(E)$  et  $\phi'_e(E)$ . Ces dernières peuvent être obtenues par les codes de calcul pour le déploiement du spectre du réacteur, basé sur la technique d'activation de plusieurs feuilles. Il est clair que cette méthodologie, implique l'irradiation et la mesure de certains détecteurs d'activation (incluant des irradiations avec Cd) est loin d'être appropriée à la pratique quotidienne de l'analyse par activation neutronique :

- Remplacement de l'intégrale par une simple expression de la forme  $\phi_e \cdot I_0$  (non- $1/E$ ) ou  $I_0$  (non- $1/E$ ), est l'intégrale de résonance dans la distribution épithermique non  $1/E$ . Pour réaliser ce but, le bénéfice peut être pris des résultats à plusieurs reprises rapportés qu'une distribution réelle de flux des neutrons épithermiques peut être rapprochée comme :

$$\phi'_e(E) \sim 1/E^{1+\alpha}, \text{ i.e. } \phi'_e(E) = \phi_e \cdot 1eV/E^{1+\alpha} \quad (3.16)$$

avec  $\alpha$  indépendant de l'énergie du neutron, et ou  $1 \text{ eV}$  – négligé dans les équations suivantes – représente l'énergie de référence. Ceci permet l'introduction de :

$$I_0 = \int_{E_{cd}}^{\infty} \sigma(E) dE / E^{1+\alpha} \quad (3.17)$$

et

$$Q_0(\alpha) = I_0(\alpha) / \sigma_0 \quad (3.18)$$

qui peut être écrite comme :

$$R = \phi_s \sigma_0 + \phi_e I_0(\alpha) \quad (3.19)$$

Cependant, les valeurs  $Q_0$  dans les Eqs (3.12) et (3.13) doivent être remplacées par  $Q_0(\alpha)$  :

$$f = (F_{Cd,r} R_{Cd,r} - 1) \cdot G_{e,r} Q_{0,r}(\alpha) / G_{th,r} \quad (3.20)$$

$$f = \frac{G_{e,1} \cdot \frac{k_{0,Au}(1)}{k_{0,Au}(2)} \cdot \frac{\varepsilon_{p,1}}{\varepsilon_{p,2}} \cdot Q_{0,1}(\alpha) - G_{e,2} \cdot \frac{A_{sp,1}}{A_{sp,2}} \cdot Q_{0,2}(\alpha)}{G_{th,2} \cdot \frac{A_{sp,1}}{A_{sp,2}} - G_{th,1} \cdot \frac{k_{0,Au}(1)}{k_{0,Au}(2)} \cdot \frac{\varepsilon_{p,1}}{\varepsilon_{p,2}}} \quad (3.21)$$

$$Q_0(\alpha) = \frac{F_{Cd,r} R_{Cd,r} - 1}{F_{Cd} R_{Cd} - 1} \cdot \frac{G_{th,r}}{G_{th}} \cdot \frac{G_{e,r}}{G_e} Q_{0,r}(\alpha) \quad (3.22)$$

Evidemment, maintenant le problème a été décalé à la détermination expérimentale de  $\alpha$  et le calcul de  $Q_0(\alpha)$ . Donc, il est plus encourageant de calculer  $Q_0(\alpha)$  d'une manière relative, i.e. par la conversion de l'évaluation et la compilation des valeurs  $Q_0$  avec l'introduction de  $\alpha$  et du paramètre de résonance, cependant, il est utile d'introduire le concept de l'énergie effective de résonance  $\bar{E}_r$ . Cette dernière est l'énergie d'une résonance simple hypothétique (équivoque) qui donne le même taux d'activation de résonance que les résonances réelles pour l'isotope. A partir de cette description,  $\bar{E}_r$  doit dépendre de la distribution du flux des neutrons épithermiques : c.à.d dans le paramètre  $\alpha$ , et devrait être dénoté comme  $\bar{E}_r(\alpha)$ .

En effet selon la définition:

$$[\bar{E}_r(\alpha)]^{-\alpha} = I'_0(\alpha) / I'_0 \quad (3.23)$$

et, dans les termes de l'expression de Breit-Wigner :

$$[\bar{E}_r(\alpha)]^{-\alpha} = \frac{1}{\sum_i w_i} \cdot \sum_i w_i E_{r,i}^{-\alpha} \quad (3.24)$$

avec  $I'_0$  et  $I'_0(\alpha)$  les intégrales de résonance réduits (soustraction de la partie  $1/v$ );  $w_i = (g \Gamma_\gamma \Gamma_n / \Gamma)_i / E_{r,i}^2$ ;  $g$  : facteur de poids statistique;  $\Gamma_\gamma, \Gamma_n, \Gamma$  largeur de la résonance du gamma du neutron, et totale respectivement. Il a été montré que  $\bar{E}_r(\alpha)$  peut être approximée raisonnablement par la valeur  $\bar{E}_r$  indépendamment de  $\alpha$ , calculée de :

$$\ln \bar{E}_r = \frac{1}{\sum_i w_i} \cdot \sum_i w_i \ln E_{r,i} \quad (3.25)$$

En utilisant les équations (3.7a) et (3.7b), on peut déduire la relation entre  $I_0(\alpha)$  et  $I_0$  :

$$I_0(\alpha) = (I_0 - 0.429)\sigma_0(\bar{E}_r)^{-\alpha} + \sigma_0 C_\alpha \quad (3.26)$$

ou

$$C_\alpha = \frac{0.429}{(2\alpha+1)(0.55)^\alpha} \quad (3.27)$$

Analogiquement, la formule de conversion pour le rapport de l'intégrale de résonance et la section efficace dénoté par

$$Q_0(\alpha) = \frac{I_0}{\sigma_0} \quad \text{et} \quad Q_0(\alpha) = \frac{I_0(\alpha)}{\sigma_0}$$

peut être écrit comme :

$$Q_0(\alpha) = (Q_0 - 0.429)(\bar{E}_r)^{-\alpha} + C_\alpha \quad (3.2-27)$$

Notant que les formules de conversion ci-dessus sont seulement valides pour  $E_{cd} = 0.55$  eV.

En effet, la forme la plus générale de l'Eq (3.18) s'écrit :

$$Q_0(\alpha) = (Q_0 - 0.429) \cdot \bar{E}_r^{-\alpha} + 0.429 / \left[ (2\alpha + 1)(0.55)^\alpha \right] \quad (3.28)$$

avec  $E_0 : 0.0253$  eV, ainsi que la conversion  $Q_0(\alpha) \longrightarrow Q_0$

$$Q_0 = \left( Q_0(\alpha) - 0.429 / \left[ (2\alpha + 1)(0.55)^\alpha \right] \right) \cdot \bar{E}_r^\alpha + 0.429 \quad (3.29)$$

### 3.2.5 Mécanisme de la convention

Avant de donner un aperçu sur ce mécanisme, il est intéressant de remarquer que  $\phi_s$  est lié à la somme de neutrons maxwelliens jusqu' à  $E_{cd}$  et de neutrons épithermiques au-dessous de  $E_{cd}$ . Cependant, pour le raisonnement ci-dessus, en plus et si toutes les conditions sont réunies, ceci apparaît être approprié.

Le mécanisme de la convention de Høgdahl est le suivant :

1. D'abord, nous trouvons les valeurs  $\sigma_0$  et  $I_0$  (pour une norme finale de la section efficace) par des méthodes indépendantes de l'activation neutronique. La norme la plus commune est  $^{197}\text{Au} (n,\gamma) ^{198}\text{Au}$ , avec les données recommandées suivantes : 18

$\sigma_0 = 98.65 \pm 0.09$  barn ( $\pm 0.09$  %);  $I_0 = 1550 \pm 28$  barn ( $\pm 1.8$  %) et  $Q_0 = 15.71 \pm 0.28$  ( $\pm 1.8$ %).

2. Ensuite, par la mesure de  $R_{Au}$  et  $R_{e,Au}$ , on peut déterminer  $\phi_s$ ,  $\phi_e$  et  $f$ , pour chaque site d'irradiation, des Eqs (3.8), (3.9) et (3.10), respectivement, à condition que  $I_{0,Au}$  soit converti en  $I_{0,Au}(\alpha)$ .
3. Appliquant les mêmes équations, on peut finalement déterminer  $\sigma_0$ ,  $I_0$  et  $Q_0$  de la mesure de  $R$  et  $R_e$  pour les autres réactions  $(n,\gamma)$  après avoir converti  $I_0(\alpha)$  en  $I_0$ . Les données évaluées de  $\sigma_0$  et  $I_0$ , provenant la plupart du temps de telles déterminations, peuvent être trouvées dans plusieurs compilations. <sup>7,2</sup>

### 3.2.5.1 Facteurs de correction $G_{th}$ , $G_{epi}$ et $F_{cd}$

Avant de lier le taux de réaction au signal obtenu à partir de l'activation  $(n,\gamma)$  du réacteur, il est nécessaire d'introduire quelques facteurs de correction dans les équations décrivant  $R$  et  $R_e$ . Ces facteurs sont :

- $G_{th}$  ( $\leq 1$ ), calcul de self-shielding du neutron thermique qui dépend de la densité de nucléons (nombre de nucléide par  $cm^3$ ; l'épaisseur ciblée, cm) et de  $\sigma_0$ .  $G_{th}$  doit être multiplié par  $\phi_s \sigma_0$  pour le calcul de  $G_{th}$ .
- $G_{epi}$  ( $\leq 1$ ), calcul de self shielding du neutron épithermique qui dépend de la densité de nucléon et des paramètres de résonance.  $G_e$  doit être multiplié par  $\phi_e I_0(\alpha)$  (ou  $\phi_e I_0$ ) pour le calcul de  $G_e$ .
- $F_{Cd}$ , facteur de transmission Cd des neutrons épithermiques est égal à l'unité, pour la plupart des nucléides; pour certains est  $< 1$  et exceptionnellement il peut être  $> 1$ .
- $F_{Cd}$  doit être multiplié par  $\phi_e I_0(\alpha)$  (ou  $\phi_e I_0$ ), mais seulement dans le cas d'irradiation sous cadmium.

En raison de ce qui précède, les Eqs (3.6b), (3.8), (3.9) et (3.10) doivent être réécrites comme suit :

$$R = G_{th} \phi_s \sigma_0 + G_e \phi_e I_0(\alpha) \quad (3.29)$$

$$R_e = G_e F_{Cd} \phi_e I_0(\alpha) \quad (3.30)$$

$$R_s = G_{th} \phi_s \sigma_0 \quad (\text{seulement si } F_{Cd} = 1) \quad (3.31)$$

$$F_{Cd} R_{Cd} = [G_{th} f / G_e Q(\alpha)] + 1 \quad (3.32)$$

Ces équations restent similaires pour  $\alpha = 0$ .

### 3.2.5.2 Paramètres spécifiques du flux

Les méthodes expérimentales pour la détermination de  $\alpha$  sont classifiées en trois groupes basées sur les mesures :  $R_{Cd}$ , couverture Cd et irradiation nue (sans Cd), respectivement. L'utilisation des procédures de calcul mathématique exige la programmation et la connaissance des techniques d'analyse numérique compliquées. C'est grâce à l'approche itérative de régression linéaire qui a été décrite, que la détermination du paramètre  $\alpha$  est devenue plus simple et facile. <sup>12</sup>

Les différentes étapes de calcul sont décrites explicitement dans la partie expérimentale. Dans ce travail, nous adoptons trois types de méthodes citées ci-dessus pour la détermination de  $\alpha$ . Par contre la détermination du paramètre  $f$  est liée à la valeur de  $\alpha$  (voir les chapitres précédents) et par conséquent  $Q_0(\alpha)$  Eq (3.22). En effet, le paramètre  $f$  peut être obtenu par l'Eq (3.20) pour la méthode  $R_{Cd}$  et l'Eq (3.21) pour la méthode du moniteur bi isotopique nu en utilisant Zr.

#### a. Méthode d'un multi moniteur couvert par du Cd

Cette méthode est essentielle pour la détermination de  $\alpha$  dans ENAA. Un ensemble de N moniteurs d'activation, chacun d'entre eux caractérisé par l'énergie de résonance effective  $\bar{E}_{r,i}$ , sont irradiés simultanément sous couverture Cd dans un canal du réacteur ou la valeur  $\alpha$  doit être déterminée. Les activités induites sont mesurées à la position de Référence (voir chapitre 4) dans un détecteur calibré (la courbe de l'efficacité de détection est connue). Le paramètre  $\alpha$  est obtenu comme une pente ( $-\alpha$ ) de la ligne droite en traçant :

$$\text{Log} \frac{(\bar{E}_{r,i})^{-\alpha} (A_{s,p})}{k_{0,Au}(i) \cdot \epsilon_{p,i} \cdot F_{Cd,i} \cdot Q_0(\alpha) \cdot G_{e,i}} \text{ en fonction de } \log \bar{E}_{r,i} \quad (3.33)$$

ou "i" dénote l'isotope 1, 2,3,...., N; Le terme gauche de l'Eq (3.33) soit une fonction de  $\alpha$ , et ainsi une procédure itérative devrait être appliquée, avec l'analyse de régression de moindre carré pour adapter les données expérimentales aux lignes droites de chaque étape itérative. Mathématiquement, le résultat final de  $\alpha$  pour cette procédure d'itération est identique avec la solution de  $\alpha$  à partir de l'équation :

$$\alpha + \frac{\sum_i^N \left\{ \left[ \log \bar{E}_{r,i} - \frac{\sum_i^N \log \bar{E}_{r,i}}{N} \right] \left[ \log T_i - \frac{\sum_i^N \log T_i}{N} \right] \right\}}{\left[ \sum_i^N \left[ \log \bar{E}_{r,i} - \frac{\sum_i^N \log \bar{E}_{r,i}}{N} \right] \right]^2} = 0 \quad (3.34)$$

avec

$$T_i = \log \frac{(\bar{E}_{r,i})^{-\alpha} (A_{s,p})}{k_{0,Au}(i) \cdot \epsilon_{p,i} \cdot F_{Cd,i} \cdot Q_0(\alpha) \cdot G_{e,i}} \quad (3.35)$$

Notant que le minimum des moniteurs est de deux ( $N = 2$ ), conduit à la méthode ‘‘ duel moniteur couvert par Cd’’.

*b. Méthode rapport Cd d'un multi moniteur*

Cette méthode peut être employée a priori pour la surveillance de  $\alpha$  à condition que les caractéristiques du flux neutronique sont connues afin de contrôler leurs stabilité en fonction du temps. Un ensemble de  $N$  moniteurs est irradié avec et sans couverture Cd, et les activités induites sont mesurées dans un détecteur calibré. Si tous les moniteurs ont une dépendance  $\sigma(v) \sim 1/v$  supérieure à  $\sim 1.5$  eV, et par l'énergie de résonance effective  $\bar{E}_r$ , le paramètre  $\alpha$  peut être obtenu comme une pente ( $-\alpha$ ) de la ligne droite en traçant :

$$\log \frac{(\bar{E}_{r,i})^{-\alpha}}{(F_{Cd,i} R_{Cd,i} - 1) \cdot Q_0(\alpha) \cdot G_{e,i} / G_{th,i}} \text{ en fonction de } \log \bar{E}_{r,i} \quad (3.36)$$

ou ‘‘i’’ dénote l'isotope 1, 2, 3, ...,  $N$  ; Le terme gauche de l'Eq (3.36) dépend de  $\alpha$ , et donc la procédure itérative devrait être appliquée (chapitre 4). Mathématiquement, le résultat final de  $\alpha$  pour cette procédure d'itération est identique avec la solution de  $\alpha$  a partir de l'équation :



$$\alpha + \frac{\sum_i^N \left\{ \left[ \log \bar{E}_{r,i} - \frac{\sum_i^N \log \bar{E}_{r,i}}{N} \right] \left[ \log T_i - \frac{\sum_i^N \log T_i}{N} \right] \right\}}{\left[ \sum_i^N \left[ \log \bar{E}_{r,i} - \frac{\sum_i^N \log \bar{E}_{r,i}}{N} \right] \right]^2} = 0 \quad (3.37)$$

avec

$$T_i = \log \frac{(\bar{E}_{r,i})^{-\alpha}}{(F_{Cd,i} R_{Cd,i} - 1) \cdot Q_0(\alpha) \cdot G_{e,i} / G_{th,i}} \quad (3.38)$$

*c. La méthode d'un multi moniteur nu*

Cette méthode est essentielle pour la détermination de  $\alpha$  dans NAA. Un ensemble de N moniteurs, avec le moniteur "référence", sont irradiés sans couverture de cadmium, ensuite les activités induites sont mesurées dans un détecteur ou la courbe de l'efficacité de détection est connue. Si tous les moniteurs ont une dépendance  $\sigma(v) \sim 1/v$  supérieure à  $\sim 1.5$  eV,  $\alpha$  peut être obtenue comme une pente ( $-\alpha$ ) en traçant la ligne droite :

avec

$$\log \left\{ (\bar{E}_{r,i})^{-\alpha} A_i \right\} \text{ en fonction de } \log \bar{E}_{r,i} \quad (3.39)$$

$$A_i = \frac{A_{sp,i} / k_{0,Au}(i) \epsilon_{p,i} - A_{sp,ref} / k_{0,Au}(ref) \epsilon_{p,ref}}{Q_{0,i}(\alpha) G_{e,i} / G_{th,i} - Q_{0,ref}(\alpha) G_{e,ref} / G_{th,ref}}$$

ou l'index "ref" dénote moniteur de l'isotope référence.

Analogiquement aux méthodes précédentes,  $\alpha$  peut être obtenu de l'équation suivante :

$$\alpha + \frac{\sum_i^N \left\{ \left[ \log \bar{E}_{r,i} - \frac{\sum_i^N \log \bar{E}_{r,i}}{N} \right] \left[ \log \left\{ (\bar{E}_{r,i})^{-\alpha} A_i \right\} - \frac{\sum_i^N \log \left\{ (\bar{E}_{r,i})^{-\alpha} A_i \right\}}{N} \right] \right\}}{\left[ \sum_i^N \left[ \log \bar{E}_{r,i} - \frac{\sum_i^N \log \bar{E}_{r,i}}{N} \right] \right]^2} = 0 \quad (3.40)$$

(‘ref’ n’est pas inclus dans les séries i). Notant que le nombre minimale des moniteurs est trois ( $N = 2$ , plus la référence), ceci mène à la méthode ‘triple moniteur nu’.

*d. La méthode d’un triple moniteur nu*

Alors,  $\alpha$  peut être déterminé à partir de l’équation suivante :

$$(a-b) \frac{Q_{0,1}(\alpha)G_{e,1}}{G_{th,1}} - a \frac{Q_{0,2}(\alpha)G_{e,2}}{G_{th,2}} + b \frac{Q_{0,3}(\alpha)G_{e,3}}{G_{th,3}} = 0 \quad (3.41)$$

avec :

$$a = \left[ 1 - \frac{A_{sp,2}}{A_{sp,1}} \cdot \frac{k_{0,Au}(1)}{k_{0,Au}(2)} \cdot \frac{\epsilon_{p,1}}{\epsilon_{p,2}} \right]^{-1} \quad (3.42)$$

$$b = \left[ 1 - \frac{A_{sp,3}}{A_{sp,1}} \cdot \frac{k_{0,Au}(1)}{k_{0,Au}(3)} \cdot \frac{\epsilon_{p,1}}{\epsilon_{p,2}3} \right]^{-1}$$

Dans ce travail, nous avons aussi choisis la méthode d’un triple moniteur nu pour plusieurs raisons que nous citons:

1. En tenant compte des considérations pratiques telles que le calcul de la propagation d’erreur, il est préconisé d’appliquer la méthode ‘triple moniteur nus’ avec  $^{198}\text{Au}$ ,  $^{95}\text{Zr}$  et  $^{97}\text{Zr}$ .
2. En pratique, nous avons utilisés des fils (0.1% Au–Al) de 1mm de diamètre, les paramètres de self shielding ( $G_{th}, G_e$ ) = 1 et aussi des feuilles minces de Zr de 127  $\mu\text{m}$  d’épaisseur, avec  $G_{th}=1$ ,  $G_e = 0.983$  pour  $^{94}\text{Zr}(n,\gamma)$  et  $G_e = 0.973$  pour  $^{96}\text{Zr}(n,\gamma)$ .
3. En plus pour des considérations de précision et d’exactitude qui présentent des avantages pratiques, nous utilisons la combinaison Au+Zr ou les effets des vraies coïncidences ne sont pas produits. (Concernant les raies gamma appropriées ( $^{198}\text{Au}$  : 411.8 keV ;  $^{95}\text{Zr}$  : 724.2 et 756.7 keV ;  $^{97}\text{Zr}/^{97m}\text{Nb}$  : 743.3 keV).
4. En plus que les raies de  $^{95}\text{Zr}$ , d’énergie 724.2 + 756.7 keV sont différentes d’une manière significative de la raie gamma d’énergie 743.3 keV de  $^{97}\text{Zr}/^{97m}\text{Nb}$ , ceci donne la possibilité d’utiliser la procédure du double comptage de Zr. Cependant les temps de mesure peuvent être laissé courts.

Notant,  $^{97}\text{Zr}/^{97m}\text{Nb}$  (743.3 keV) = 1,  $^{95}\text{Zr}$  (724.2 + 756.7 keV)=2 et  $^{198}\text{Au}$  (411.8 keV) = 3.

### 3.3 Le formalisme de WESTCOTT

#### 3.3.1 Le choix du formalisme

L'introduction du formalisme Westcott a été proposé dans la méthode de standardisation  $k_0$  afin de permettre la manipulation des réactions  $(n,\gamma)$  non  $1/v$  qui sont très important sur le plan analytique. Plusieurs interprétations sont données à la méthode  $k_0$  basée sur WESTCOTT : la boîte noire du formalisme “g+rs” est ouverte ; les procédures et les formules sont données pour la détermination expérimentale des paramètres ainsi que l'état des données nucléaires. 9

La standardisation  $k_0$  de la méthode NAA est basée sur l'équation fondamentale pour le calcul du taux de réaction. Lorsque la méthode  $k_0$  a été proposée pour la première fois en 1975, elle était formulée selon la convention STOUGHTON–HALPERIN. Au lieu de cela, la convention HØGDAHL a été adoptée en traitant les aspects pratiques et expérimentaux. Ceci a été fait dans le but de maintenir les formules aussi simples que possible, mais il est exigé que la section efficace  $(n,\gamma)$  varie comme  $1/v$  jusqu'à  $\sim 1.5$  eV.

Ce formalisme a été bien étudié ceci exclut six réactions non  $1/v$  de la manipulation<sup>51</sup>, mais il a été discuté que ceci ne peut être considéré comme une limitation sérieuse de la méthode  $k_0$ . Néanmoins, il a été conclu que l'applicabilité de la méthode  $k_0$  pour n'importe qu'elle réaction  $(n,\gamma)$  est un problème troublant. Des améliorations ont été effectuées pour résoudre ce problème. Dans ce contexte, il a été proposé d'utiliser la convention de Westcott et la formule de base de la méthode  $k_0$  a été donnée en conséquence. Le problème a été évoqué encore dans l'article intitulé “l'exactitude et l'applicabilité de la standardisation  $k_0$ ” présenté à MTAA-7.<sup>50</sup> Bien que l'introduction de la convention de WESTCOTT n'a pas été exécutée, il a été suggéré d'explorer la possibilité d'une surveillance précise de la température du neutron maxwellien  $T_n$  d'une manière absolue c.à.d, sans l'utilisation de position de référence pour l'irradiation. Il est bien de noter que  $T_n$  est un paramètre essentiel pour la détermination de la valeur  $g(T_n)$  de WESTCOTT, ce qui est une mesure de la déviation du comportement non  $1/v$  de la section efficace dans la région d'énergie thermique du neutron. Des résultats satisfaisants ont été présentés à MTAA-8 concernant la vérification de la température absolue  $T_n$  ainsi que l'utilisation du formalisme de WESTCOTT modifié a été proposée.

En conséquence, les résultats expérimentaux des facteurs  $k_0$  mesurés à INW (Gent) et LNETI (Sacavém) ont été aussi données [comme recommandation la donnée de  $^{151}\text{Eu} (n,\gamma)^{152}\text{Eu}$ ] <sup>7</sup>.

L'objectif de ce développement est de mettre l'utilisateur  $k_0$  en adaptation avec la méthode  $k_0$  basée sur le formalisme de WESTCOTT.

Premièrement, ce challenge a été pris en charge en 1993 par F. De Corte et al. <sup>9</sup> : la boîte noire de Westcott a été ouverte. Ensuite, des procédures et des formules ont été données pour la détermination expérimentale des paramètres spécifiques du flux.

Dans cette partie, nous allons étudier minutieusement le formalisme de WESTCOTT puisque la détermination expérimentale exige une connaissance approfondie sur le fondement théorique, les aspects et les formules de ce formalisme.

### 3.3.2 Mécanisme du formalisme « g+rs »

Le formalisme original g+rs de WESTCOTT est modifié afin de tenir compte de la distribution non idéale du flux de neutrons épithermiques, c.à.d non  $1/E$ , approximée par la forme  $1/E^{1+\alpha}$  avec  $\alpha$  indépendant de l'énergie. Ceci est fait selon la convention de RYVES. En introduisant aussi la correction des facteurs d'autoprotectons on obtient le taux de réaction  $(n,\gamma)$  par noyau ( $R$ , en  $s^{-1}$ ) :

$$R = nv_0 \cdot \sigma_0 \left[ G_{th} g(T_n) + G_r \cdot r(\alpha) \sqrt{T_n/T_0} \cdot s(\alpha) \right] \quad (3.43)$$

si on irradie l'élément sous couverture de Cd, le taux de réaction épicaadmium est :

$$R_{epiCd} = nv_0 \cdot \sigma_0 \cdot r(\alpha) \sqrt{T_n/T_0} \left[ \frac{g(T_n)(1eV)^\alpha}{K(1+2\alpha)E_{Cd}^\alpha} - \frac{2}{\sqrt{\pi}} W'(\alpha) + G_r \cdot s_0(\alpha) \right] \cdot F_{Cd} \quad (3.44)$$

1. Flux neutronique conventionnel :  $nv_0$  [ $\text{cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ ] avec 'n' la densité totale du neutron ( $\text{cm}^{-3}$ ) et  $v_0$  vitesse du neutron  $2200 \text{ ms}^{-1}$ , correspondance à  $E_0 = kT_0 = 0.0253 \text{ eV}$  avec  $T_0 = 293.6 \text{ K}$  ( $20.4^\circ\text{C}$ ) et  $k$  constante de BOLTZMANN.
2. Section efficace  $\sigma_0$  : section efficace  $(n,\gamma)$  (en  $\text{cm}^2$ ) pour une vitesse  $2200 \text{ ms}^{-1}$ .
3. Facteur de correction self shielding  $G_{th}$ ;  $G_r$  : facteurs de corrections des neutrons thermiques (MAXWELL-BOLTZMANN) et des neutrons de résonance, respectivement. Précisément, on doit considérer la composante épithermique plutôt que résonance.

Donc, R est donné par :

$$R = nv_0 \cdot \sigma_0 \left( [G_{th}(1-\eta) + G_e \eta] g(T_n) + G_e \cdot r(\alpha) \sqrt{T_n/T_0} \cdot s(\alpha) \right) \quad (3.45)$$

ou  $\eta = n_e/n$  avec  $n_e$  la densité du neutron épithermique.

La relation entre  $G_r$  et  $G_e$  est :  $G_r = G_e - \varepsilon(1 - G_e)$  avec la prétention que seulement les résonances (et pas la queue fondamental  $1/v$ ) causent l'auto absorption, et ou  $\varepsilon$  est la fraction de  $1/v$ , i.e non résonance, contribution dans l'activation épithermique :

$$\varepsilon = \left[ 1 + s_0(\alpha) \cdot \frac{\sqrt{\pi\mu} \sqrt{\frac{kT_n}{E_0}} (1 + 2\alpha) (\mu k T_n)^\alpha}{4g(T_n) \cdot (1eV)^\alpha} \right]^{-1} \quad (3.46)$$

En pratique, l'Eq (3.43) est suffisamment correcte. Le paramètre  $G_{th}$  pour une distribution du flux neutronique de MAXWELL-BOLTZMANN homogène et isotropique peut être calculé dans le cas des cibles de forme simple telle que : sphère, feuille, fil et cylindre. Le calcul de  $G_r$  est considérablement plus difficile. On a (pour  $\alpha = 0$ ) :

$$G_r = \frac{\sum_{i=1}^N G_{r,i} I'_{0,i} + I'_{0,rest}}{I'_0} \quad (3.47)$$

avec  $I'_0$  : l'intégrale de résonance réduit ou le calcul de  $G_{r,i}$  et  $I'_{0,i}$  pour tous les N des résonances appropriées est basé sur l'équation BREIT-WIGNER. Les méthodes pour calculer  $G_{r,i}$  sont par exemple donnés par ROE pour une sphère, feuille, et cylindre et par LOPES pour feuille et fil. ROE prend en compte l'élargissement DOPPLER des résonances, mais la dispersion du neutron n'est pas considérée. <sup>9</sup>

**4. Facteur de Westcott  $g(T_n)$  :** facteur de WESTCOTT est définit comme :

$$g(T_n) = \frac{1}{v_0 \sigma_0} \cdot \int_0^\infty \rho'_M(v) \cdot v \cdot \sigma(v) \cdot dv \quad (3.48)$$

Ou  $\rho'_M$  est la fonction de distribution de MAXWELL-BOLTZMANN de la densité du neutron par unité d'intervalle de vélocité :

$$\rho'_M(v) = \frac{4}{\sqrt{\pi}} \frac{v^2}{v_{T_n}^3} e^{-\left(\frac{v}{v_{T_n}}\right)^2} \quad (3.48)$$

Les précédentes équations (3.48) et (3.49), ou  $T_n$  est la température du neutron, sont le cœur du formalisme WESTCOTT : le comportement de la section efficace non  $1/v$  est mis dans le facteur  $g(T_n)$  et on suppose que le spectre des neutrons thermique suit la distribution de MAXWELL-BOLTZMANN.

Notant que pour les réactions  $(n,\gamma) 1/v$ ,  $g(T_n)$  est l'unité et indépendant de la température du neutron. Selon WESTCOTT, les « safe limits » pour utiliser son formalisme sont  $T_n/T_m < 1.07$  (pour la modération du graphite :  $< 1.25$ ) et  $\Sigma_a/(\xi\Sigma_s) < 0.1$ , ou  $T_m$  est la température du modérateur,  $\Sigma_a$  et  $\Sigma_s$  sont les sections efficaces d'absorption macroscopique et de diffusion, respectivement, et  $\xi = [1 + (A-1)^2/4A] \cdot \ln[(A-1)/(A+1)]^2$  avec  $A$  la masse du modérateur est la moyenne de la décroissance logarithmique de l'énergie.

**5.** L'index spectral modifié  $r(\alpha)\sqrt{T_n/T_0}$  : l'index spectral modifié, obtenu à partir des expériences, est défini comme :

$$r(\alpha)\sqrt{T_n/T_0} = r\sqrt{T_n/T_0} (1 + 2\alpha)(\mu k T_n)^\alpha (1eV)^{-\alpha} \quad (3.50)$$

ou  $r = \eta\sqrt{\pi\mu}/4$ , avec  $\eta = n_e/n$  la fraction de densité du neutron épithermique (voir ci-dessous la définition de  $\mu$ ).

**6.** Section efficace  $S_0(\alpha)$  : La mesure de la section efficace épithermique au thermique.

On a :

$$s_0(\alpha) = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \cdot \frac{I'_0(\alpha)}{\sigma_0} \quad (3.51)$$

avec

$$I'_0(\alpha) = I'_0 \cdot (\bar{E}_r)^{-\alpha} (1eV)^\alpha \quad (3.52)$$

En effet, l'Equation (3.52) est la définition de l'énergie de résonance effective  $\bar{E}_r$ . Bien que  $\bar{E}_r$  est une fonction de  $\alpha$ , il a été prouvé que dans la pratique,  $\alpha$  peut être considéré comme une constante nucléaire indépendante. La même conclusion est trouvée pour  $\bar{E}_r$  comme une fonction de  $G_e$ .

ainsi on a :

$$\text{Ln}\bar{E}_r = \frac{\sum_i w_i \ln E_{r,i}}{\sum_i w_i} \quad (3.53)$$

n'est pas sensiblement différent de

$$\text{Ln}\bar{E}_e(\alpha; G_r) = \frac{\sum_i w_i G_{e,i} \ln E_{r,i}}{\sum_i w_i G_{e,i}} + \delta(\alpha; G_{e,i}) \quad (3.54)$$

Avec  $w_i = (g\Gamma_\gamma\Gamma_n/\Gamma)_i/E_{r,i}^2$  ;  $g$  : facteur statistique du poids,  $\Gamma_\gamma$  : largeur radiative ;  $\Gamma_n$  : largeur de résonance du neutron;  $\Gamma$  : largeur totale de résonance. Dans l'équation (3.52),  $I_0'$  est l'intégrale de résonance réduit définie comme :

$$I_0' = \int_0^\infty \left[ \sigma(E) - \frac{g(T_n)\sigma_0 v_0}{v} \right] \frac{\Delta(E)dE}{E} \quad (3.55)$$

$\Delta(E)$  est une la fonction associée au spectre du réacteur, qui décrit l'arrêt de la faible énergie des neutrons épithermiques. En terme de fonctions de distribution densité - vitesse du neutron, sa définition est :

$$\rho_e'(v) = \rho_e'^*(v)\Delta(v) \quad (3.56)$$

où  $\rho_e'^*(v) \propto 1/v^2$ , correspond à la distribution  $1/E$  du flux épithermique, c à d,  $\alpha$  prend la valeur zéro. WESTCOTT préfère la fonction  $\Delta_4$ , donnée par :

$$\Delta_4(E) = \left[ 1 - \frac{0.26}{1 + [E/(16.4kT_n)]^5} + \left( \frac{4.75kT_n}{E} \right)^7 \right]^{-1} \quad (3.57)$$

ce qui s'est concentré sur  $5kT_n$ . Habituellement la valeur équivalente au cut-off  $\mu kT_n$  est introduite, le coefficient  $\mu$  du point joignant est définit comme :

$$n_e = n_e \int_0^{\infty} \rho_e'^*(v) dv = n_e \int_v^{\infty} \rho_e'^*(v) dv \quad (3.58)$$

[avec  $\Delta = 1$ ]

Pour  $\Delta_4(E)$ , ceci rapporte  $\mu = 3.7$ . Selon Westcott, les prises ci-dessus donnent de bonnes approximations pour les deux modérateurs  $D_2O$  et le graphite. Pour le modérateur  $H_2O$ , la valeur de  $\mu = 2.1$  a été calculée. L'Equation (3.55) devient :

$$I'_0 = \int_{\mu k T_n}^{\infty} \left[ \sigma(E) - \frac{g(T_n) \sigma_0 v_0}{v} \right] \frac{dE}{E} \quad (3.59)$$

Il est clair que  $I'_0$ , ainsi  $s_0$ , est en principe en fonction de  $T_n$ , et par conséquent ne peut pas être considéré comme une véritable constante nucléaire, à moins que  $g(T_n)$  soit approximativement l'unité. D'une autre manière, si  $g(T)$  est largement différent de l'unité, comme pour  $^{176}\text{Lu} (n,\gamma)$  [ $g(20^\circ\text{C}) = 1.746$ ] et  $^{151}\text{Eu} (n,\gamma)$  [ $g(20^\circ\text{C}) = 0.901$ ],  $s_0$  est plutôt petit. Il devrait être noter que pour les réactions  $1/v$  (avec WESTCOTT  $g = 1$ ),  $s_0$  peut être calculé comme :

$$s_0 = \frac{2}{\sqrt{\pi}} Q_0 - 0.484 \quad (3.60)$$

ou  $Q_0 = I_0/\sigma_0$  (comme dans la convention de HOGDAHL). Finalement, il est important de remarquer que les valeurs de « s » doivent être multipliées par  $\sqrt{T_n/T_0}$  afin d'obtenir  $s_0$ .

**7. Facteur K :** Ce terme est défini comme  $K = \frac{1}{4} \sqrt{\frac{\pi E_{Cd}}{E_0}}$  avec  $E_{Cd}$  l'énergie de coupure effective du cadmium.

La valeur standard acceptée à l'échelle internationale  $E_{Cd} = 0.55$  eV pour 1 mm d'épaisseur du Cd et liée à la condition que la réaction suit la loi  $\sigma(v) \propto 1/v$  jusqu'à  $\sim 1.5$  eV.

Les petites déviations ne font pas différer  $E_{Cd}$  de manière significative de 0,55 eV, mais  $^{176}\text{Lu} (n,\gamma)$  et  $^{151}\text{Eu} (n,\gamma)$  n'accomplissent pas à toute cette condition. Cependant, dans ces cas l'équation (2) ne décrit pas exactement le taux de réaction épicaadmium.

Bien que pour la définition précédente, on obtient  $K = 2.07$  (avec  $E_{Cd} = 0.55$  eV) selon WESTCOTT. Il est déclaré que la meilleure approximation est obtenue par la variation réelle



de la section efficace du cadmium en fonction de l'énergie. Pour une épaisseur de 1 mm de Cd et l'incidence isotopique ils obtiennent  $K = 2.29$ .

**8.** Facteur de correction  $W'(\alpha)$  : Facteur de correction du comportement des sections efficaces non  $1/v$  entre  $\mu kT_n$  et  $E_{Cd}$ , approximé par :

$$W'(\alpha) = W' \cdot (\bar{E}_e)^{-\alpha} (1eV) \quad (3.61)$$

avec  $W'$  définit comme :

$$W' = \frac{1}{\sigma_0 \mu kT_n} \int_{E_{Cd}}^{E_{Cd}} \left[ \sigma(E) - \frac{g(T_n) \sigma_0 v_0}{v} \right] \frac{dE}{E} \quad (3.62)$$

En principe, le terme  $(2/\sqrt{\pi})W'(\alpha)$  dans l'équation (3.44) doit être multipliée par le facteur de comptage "partiel"  $G_r$  pour le self shielding causé par les résonances entre  $\mu kT_n$  et  $E_{Cd}$ . En pratique, cette compilation n'est pas appropriée à partir des cibles « fortement non  $1/v$  » et par conséquent l'irradiation ne doit pas se faire sous cadmium.

**9.** Facteur de transmission du cadmium  $F_{Cd}$  : facteur de transmission du cadmium pour les neutrons épithermiques.

### 3.3.3 Les paramètres spécifiques du flux neutronique

Dans les termes du formalisme de Westcott, l'équation de calcul de concentration selon la méthode  $k_0$  est la suivante :

$$\rho_{a,ppm} = \frac{\left( \frac{N_p/t_m}{SDCW} \right)_a}{\left( \frac{N_p/t_m}{SDCW} \right)_m} \cdot \frac{1}{k_{0,m}(a)} \cdot \frac{G_{th,m} g(T_n) + G_{e,m} \cdot r(\alpha) \sqrt{T_n/T_0}}{G_{th,a} g(T_n) + G_{e,a} \cdot r(\alpha) \sqrt{T_n/T_0}} \cdot \frac{s_{0,m}(\alpha)}{s_{0,a}(\alpha)} \cdot \frac{\varepsilon_{p,m}}{\varepsilon_{p,a}} \cdot 10^6 \quad (3.63)$$

avec  $\rho_a$  : concentration de l'élément analysé;  $N_p$  : surface du pic mesuré ;  $S = 1 - \exp(-\lambda t_{irr})$  avec  $\lambda$  la constante de décroissance et  $t_{irr}$  temps de d'irradiation ;  $D = \exp(-\lambda t_d)$  avec  $t_d$  temps de décroissance;  $C = [1 - \exp(-\lambda t_m)] / \lambda t_m$  avec  $t_m$  temps de mesure;  $W$ : la masse de l'échantillon;  $w$  la masse du moniteur;  $\varepsilon_p$  : l'efficacité de détection du pic.

Comme l'indique l'Eq (3.63), les paramètres de flux mentionnés sont :  $\alpha$ ,  $r(\alpha)\sqrt{T_n/T_0}$  et  $T_n$ . Analogiquement à la solution donnée dans les termes de la convention de HOGDAHL,  $\alpha$  peut être déterminé à partir de la pente ( $-\alpha$ ) de la ligne droite en traçant  $\log T_i$  en fonction de  $\log(\bar{E}_{r,i}/1\text{eV})$ , qui devient de même la solution implicite de l'équation :

$$\alpha + \frac{\sum_{i=1}^N \left\{ \left[ \log \bar{E}_{r,i} - \frac{\sum_i \log \bar{E}_{r,i}}{N} \right] \left[ \log T_i - \frac{\sum_i \log T_i}{N} \right] \right\}}{\left[ \sum_{i=1}^N \left[ \log \bar{E}_{r,i} - \frac{\sum_i \log \bar{E}_{r,i}}{N} \right] \right]^2} = 0 \quad (3.64)$$

ou N est le nombre des moniteurs co-irradiés et  $T_i$  est donné par les expressions mentionnées ci-dessous.

*a. La méthode Rapport Cd pour multi moniteur*

$$T_i = \frac{G_{th,i} \cdot g_i(T_n) \cdot (1\text{eV})^\alpha \cdot (\bar{E}_{r,i})^{-\alpha}}{F_{Cd,i} R_{Cd,i} \left[ \frac{(1\text{eV})^\alpha g_i(T_n)}{K(1+2\alpha)(E_{Cd})^\alpha} - \frac{2}{\sqrt{\pi}} W_i'(\alpha) + G_{r,i} \cdot s_{0,i}(\alpha) \right] - G_{r,i} \cdot s_{0,i}(\alpha)} \quad (3.65)$$

ou  $R_{Cd}$  : rapport cadmium

*b. La méthode Couverture Cd d'un multi moniteur*

$$T_i = \frac{\frac{(A_{sp,i})_{epiCd}}{k_{0,Au}(i)\epsilon_{p,i}} (1\text{eV})(\bar{E}_{r,i})^{-\alpha}}{R_{Cd,i} \left[ \frac{(1\text{eV})^\alpha g_i(T_n)}{K(1+2\alpha)(E_{Cd})^\alpha} - \frac{2}{\sqrt{\pi}} W_i'(\alpha) + G_{r,i} \cdot s_{0,i}(\alpha) \right] - G_{r,i} \cdot s_{0,i}(\alpha)}} \quad (3.66)$$

avec  $A_{sp} = (N_p/t_m)/SDCw$

c. La méthode Multi moniteur nu

$$T_i = \frac{\left[ G_{th,ref} \cdot \frac{k_{0,Au}(ref)}{k_{0,Au}(i)} \cdot \frac{\epsilon_{p,ref}}{\epsilon_{p,i}} \cdot g_{ref}(T_n) - G_{th,i} \cdot \frac{A_{sp,ref}}{A_{sp,i}} \cdot g_i(T_n) \right] (1eV)^\alpha (\bar{E}_{r,i})^{-\alpha}}{G_{r,i} \cdot \frac{A_{sp,ref}}{A_{sp,i}} \cdot s_{0,i}(\alpha) - G_{r,ref} \cdot \frac{k_{0,Au}(ref)}{k_{0,Au}(i)} \cdot \frac{\epsilon_{p,ref}}{\epsilon_{p,i}} \cdot s_{0,ref}(\alpha)} \quad (3.67)$$

avec “ref” est le moniteur référence co-irradié.

Précédemment, il est préférable d'utiliser les moniteurs “1/v”, donc  $g(T_n) = 1$ . D'une autre manière, la procédure itérative peut être suivie.

Ensuite, l'index spectral modifié est obtenu à partir de la méthode  $R_{Cd}$  :

$$r(\alpha)\sqrt{T_n/T_0} = \frac{g(T_n)G_{th}}{F_{Cd}R_{Cd} \left[ \frac{(1eV)^\alpha g(T_n)/K}{(1+2\alpha)(E_{Cd})^\alpha} - \frac{2}{\sqrt{\pi}} W'(\alpha) + G_r \cdot s_0(\alpha) \right] - G_r \cdot s_0(\alpha)} \quad (3.68)$$

ou à partir de la méthode dual moniteur nu :

$$r(\alpha)\sqrt{T_n/T_0} = \frac{G_{th,1} \cdot \frac{k_{0,Au}(1)}{k_{0,Au}(2)} \cdot \frac{\epsilon_{p,1}}{\epsilon_{p,2}} \cdot g_1(T_n) - G_{th,2} \cdot \frac{A_{sp,1}}{A_{sp,2}} \cdot g_2(T_n)}{G_{r,2} \cdot \frac{A_{sp,1}}{A_{sp,2}} \cdot s_{0,2}(\alpha) - G_{r,1} \cdot \frac{k_{0,Au}(1)}{k_{0,Au}(2)} \cdot \frac{\epsilon_{p,1}}{\epsilon_{p,2}} \cdot s_{0,1}(\alpha)} \quad (3.69)$$

Ici aussi il est recommandé d'utiliser les moniteurs “1/v” avec  $g(T_n) = 1$ .

Enfin,  $T_n$  est déterminé par la co-irradiation du Lutétium et un moniteur “1/v” [ $g(T_n)=1$ ] :

$$\frac{\left[ \frac{A_{sp,Lu}}{k_{0,Au}(Lu) \epsilon_{p,Lu}} \right]}{\left[ \frac{A_{sp,1/v}}{k_{0,Au}(1/v) \epsilon_{p,1/v}} \right]} = \frac{g_{Lu}(T_n) \cdot G_{th,Lu} + G_{r,Lu} \cdot r(\alpha)\sqrt{T_n/T_0} \cdot s_{0,Lu}(\alpha)}{g_{1/v}(T_n) \cdot G_{th,1/v} + G_{r,1/v} \cdot r(\alpha)\sqrt{T_n/T_0} \cdot s_{0,1/v}(\alpha)} \quad (3.70)$$

L'équation ci-dessus donne  $g_{Lu}(T_n)$  et à partir des valeurs de  $g_{Lu}(T_n)$  en fonction de  $T_n$  on peut déduire la valeur de  $T_n$ .

**Tableau 3.3** : Données nucléaires des nucléides et moniteurs<sup>9</sup>

Nucléide cible	g(Tn, °C)	W'	F <sub>cd</sub>	$\bar{E}_r, eV$	S <sub>0</sub>	Nucléide formé (Activation type)	Demi-vie T	Notes
<sup>103</sup> Rh	1.025 (20) 1.044 (100)	-	-	1.45	7.26*	<sup>104</sup> Rh (IV/a)	42.3 s	k <sub>0</sub> dans la Ref <sup>28</sup> via la convention de HØGDAHL; * : from Ref <sup>6</sup>
<sup>115</sup> In	1.020 (20) 0.036 (100)	-	0.93	1.56	18.5*	<sup>116m</sup> In (IV/b)	54.15 min	k <sub>0</sub> dans la Ref <sup>28</sup> via la convention de HØGDAHL; * : calc. from Ref <sup>6</sup>
<sup>151</sup> Eu	0.901 (20) 0.831 (100)	-	-	0.448	1.20* 1.25*	<sup>152m</sup> Eu (I) <sup>152</sup> Eu (I)	9.32 h 13.51 a	k <sub>0</sub> dans la Ref <sup>8</sup> via la convention de WESTCOTT; * : from Ref <sup>31</sup>
<sup>164</sup> Dy	0.988 (20) 0.978 (100)	-	1	224	-0.20* -0.27*	<sup>165m</sup> Dy (I) <sup>165</sup> Dy (IV/b)	1.258 min 2.334 h	k <sub>0</sub> dans la Ref <sup>28</sup> via la convention de HØGDAHL; * : calc. from Q <sub>0</sub>
<sup>168</sup> Yb	1.050 (20)* 1.092 (100)	-	-	0.61	5.0**	<sup>169</sup> Yb (IV/b)	32.02 d	k <sub>0</sub> dans la Ref <sup>8</sup> via la convention de WESTCOTT; * : only à 20 et 100 °C from Ref <sup>32</sup> ; ** : valeur Exp
<sup>175</sup> Lu	0.977 (20) 0.957 (100)	-	-	16.1	38.8*	<sup>176m</sup> Lu (I)	3.635 h	k <sub>0</sub> dans la Ref <sup>28</sup> via la convention de HØGDAHL; * : calc. from Q <sub>0</sub>
<sup>176</sup> Lu	1.746 (20) 2.344 (100)	-	-	0.158	1.67*	<sup>177</sup> Lu (I)	6.71 d	k <sub>0</sub> théorique (voir Ref. <sup>8</sup> ); * : 1.67 à 20°C, -0.12 à 100°C, voir Ref. <sup>6</sup>
<sup>191</sup> Ir	1.033 (20)* 1.043 (100)	-	-	1.1	5.8**	<sup>192</sup> Ir (IV/b)	73.83 d	
<sup>193</sup> Ir	1.022 (20)* 1.040 (100)	-	-	2.21	13.1**	<sup>194</sup> Ir (IV/b)	19.15 h	k <sub>0</sub> dans la Ref <sup>28</sup> via la convention de HØGDAHL; * : from Ref. <sup>33</sup> ; ** : calc. from Q <sub>0</sub>
<sup>197</sup> Au	1.007 (20) 1.011 (100)	0.055	0.991	5.65	17.24*	<sup>198</sup> Au (I)	2.695 d	
<sup>238</sup> U	1**	0	1	16.9	116.2*	<sup>239</sup> Np (II/b)	2.355 d	** Ref. <sup>30</sup> . 1.004 (20°C) 1.006 (100°C)

---

$^{232}\text{Th}$	1	0	1	54.4	12.53*	$^{233}\text{Pa}$ (II/b)	27.0 d
$^{59}\text{Co}$	1	0	1	136	1.765*	$^{60}\text{Co}$ (IV/b)	5.271 a
$^{98}\text{Mo}$	1	0	1	241	59.4*	$^{99}\text{Mo}/$ $^{99\text{m}}\text{Tc}$ (II/d)	65.94 h 6.01 h
$^{96}\text{Zr}$	1	0	1	338	279*	$^{97}\text{Zr}/$ $^{97\text{m}}\text{Nb}$ (II/a)	16.74 h 60s
$^{55}\text{Mn}$	1	0	1	468	0.704*	$^{56}\text{Mn}$ (I)	2.5785 h
$^{100}\text{Mo}$	1	0	1	672	20.77*	$^{101}\text{Mo}/$ $^{101}\text{Tc}$ (II/a)	14.6 min 14.2 min
$^{64}\text{Zn}$	1	0	1	2560	1.669*	$^{65}\text{Zn}$ (I)	243.9 d
$^{94}\text{Zr}$	1	0	1	6260	5.21*	$^{95}\text{Zr}$ (I)	64.03 d

---

## CHAPITRE IV

### Implémentation et mise au point de la méthode $k_0$ -NAA

L'implémentation de la méthode  $k_0$ -NAA exige la connaissance précise des paramètres physiques liés au flux neutronique et au détecteur utilisés. En plus de la détermination expérimentale des paramètres physiques, la stabilité du flux neutronique et de la chaîne de mesure reste une condition nécessaire pour préserver l'applicabilité de la méthode  $k_0$ -NAA.

Dans ce chapitre, nous allons décrire d'une manière explicite les installations et les équipements utilisés dans le cadre des travaux de cette thèse de doctorat. Ces deux moyens présentent l'outil d'activation et de mesure des échantillons étudiés. D'une manière générale, le processus d'analyse par activation neutronique contient des étapes principales allant de la préparation des échantillons, le conditionnement, l'irradiation, la mesure et enfin l'interprétation des résultats. Nous décrivons ci-dessous deux étapes liées directement à l'installation nucléaire et au spectromètre gamma.

#### 4.1 Description du site d'irradiation et de mesure

##### 4.1.1 Dispositif de mesure

De nos jours les procédures d'activation neutronique multi élémentaire sont basées sur la mesure des raies gamma émises par les radionucléides produits par les réactions  $(n,\gamma)$ . Les isotopes sont identifiés par les énergies de leurs raies gamma caractéristiques et quantifiés par les surfaces des pics dans le spectre. La quantité de l'élément détecté dépend rigoureusement de plusieurs facteurs ; à savoir la section efficace, la demi-vie de l'isotope produit et l'abondance des raies gamma émises. L'introduction des détecteurs des raies gamma Ge(HP) de haute pureté fait une bonne différenciation entre les radio-isotopes. Plusieurs logiciels ont été développés pour améliorer la qualité des résultats allant de la collection, la déconvolution des spectres et le calcul de concentrations. Les dispositifs de mesure utilisés dans le cadre de ce travail sont deux chaînes de spectrométrie gamma. Chaque dispositif est constitué d'un

détecteur Ge(HP) et un inspecteur (chaîne compactée) exploité par le logiciel Génie 2k. Les caractéristiques géométriques et physiques des détecteurs sont dans le tableau 4.1. <sup>56, 57</sup>

**Tableau 4.1** : Caractéristique physique des détecteurs Ge(HP)

Spécifications	Fournisseur	CANBERRA			
	Détecteur	DET3	DET1		
Caractéristiques	Géométrie	Closed-end coaxial	Closed one open end		
	Diamètre (mm)	58.1	59		
	Longueur (mm)	55.5	63		
Résolution et efficacité	Isotope	Co <sup>57</sup>	Co <sup>60</sup>	Co <sup>57</sup>	Co <sup>60</sup>
	Energie(keV)	122	1332	122	1332
	FWHM(keV)	1,03	1,87	1.73	
	FHTM(keV)	1,91	3,47	3.28	
	Peak/Compton		57,5	72.4	
	Eff relative (%)		36	37.8	

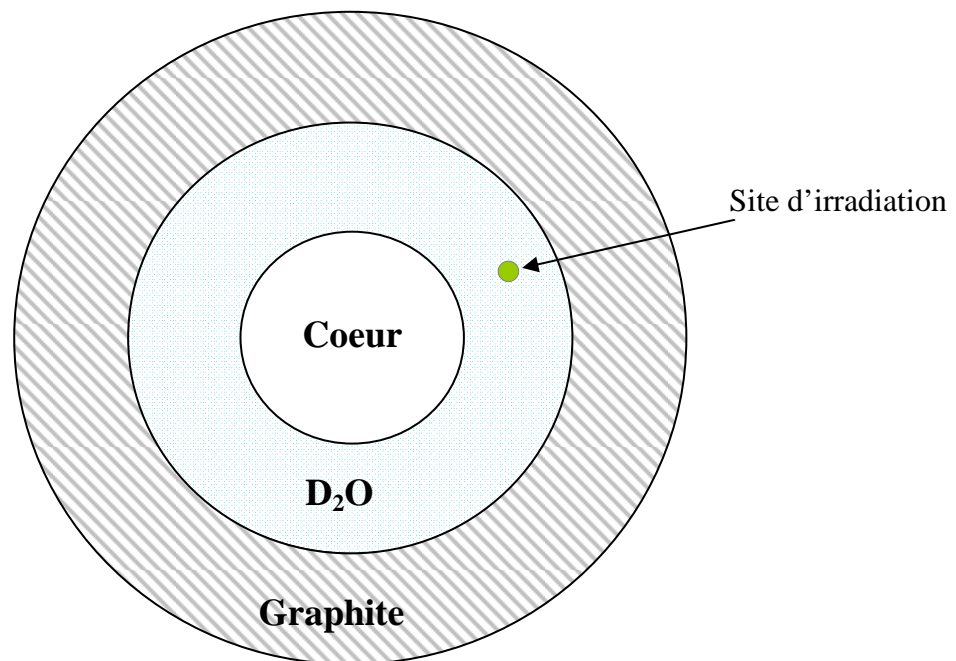


**Figure 4.1** : Chaîne de spectrométrie gamma utilisée pour  $k_0$ -NAA

L'inspecteur Génie 2k est un spectromètre de haute performance basé sur la technologie DSP (Digital Signal Processing), il inclut tous les détecteurs : Ge(HP), NaI et Cd(Zn)Te. La chaîne de mesure est illustrée dans la figure 4.1.

### 4.1.2 Dispositif d'irradiation

La source neutronique utilisée dans ce travail est le réacteur de recherche Es-Salam situé à 200 km de la capitale (Alger). Ce réacteur est la deuxième installation que possède l'Algérie. Le réacteur Es Salam est un réacteur de recherche nucléaire MHWRR à neutrons thermiques de type réservoir de puissance nominale 15 MW. Il est refroidi et modéré à eau lourde ( $D_2O$ ) et utilise l'oxyde d'uranium ( $UO_2$ ) faiblement enrichi comme combustible. Il dispose de canaux expérimentaux horizontaux et verticaux. Les canaux d'irradiation du réacteur Es-Salam utilisés pour l'implémentation de la méthode  $k_0$ -NAA sont V15. Ce dernier est illustré dans la figure 4.2.



**Figure 4.2 :** Site d'irradiation étudié pour l'implémentation de la méthode  $k_0$ -NAA

## 4.2 Caractérisation des détecteurs Ge(HP) Det1 et Det 3

La calibration des détecteurs a été effectuée selon la méthodologie  $k_0$ . Les étapes essentielles de la caractérisation sont données comme suivant : La détermination de l'efficacité de détection pour différentes géométries et sources, détermination du rapport Pic au Total, la correction des effets des vraies coïncidences. <sup>1, 21, 28</sup>

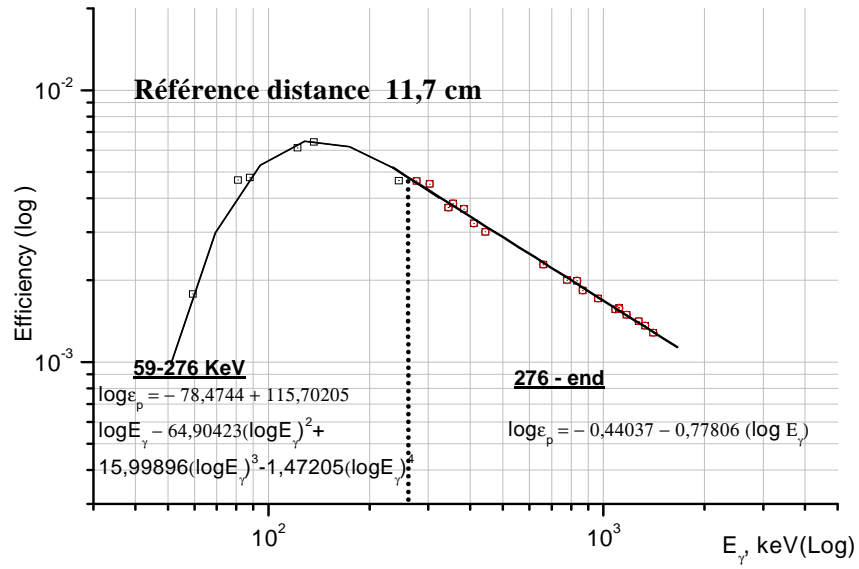


### 4.2.1 Détermination de l'efficacité de détection

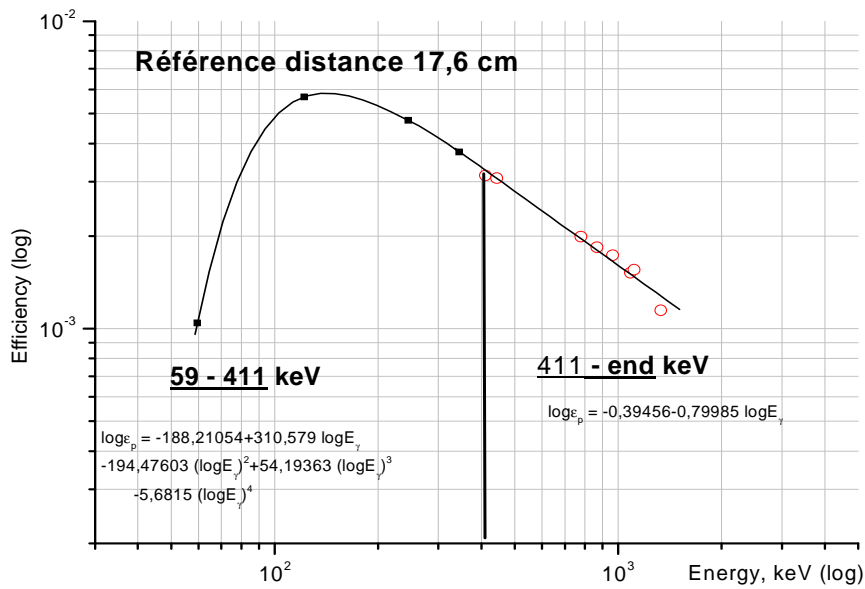
L'efficacité de détection du pic ( $\epsilon_p$ ) est utilisée pour la détermination de concentration et des paramètres  $f$  et  $\alpha$ . Comme a été décrit <sup>28</sup>, l'intervalle énergétique des sources gamma utilisées s'étend de 55 à 1408 keV. Cependant, la courbe de l'efficacité de détection peut être construite aisément en mesurant un certain nombre de sources étalons multi et mono énergétique. Tous les radionucléides ainsi que leurs données nucléaires ( $E_\gamma$ ,  $T_{1/2}$ , et  $\gamma$ ) sont classées dans le tableau 4.2. On obtient un meilleur ajustement pour les points expérimentaux dans les régions distinctes par les polynômes  $\log \epsilon_p = a_0 + a_1 \log E_\gamma + \dots + a_n (\log E_\gamma)^n$ . Les courbes obtenues de l'efficacité en fonction de l'énergie sont illustrées dans les figures 4.3 et 4.4.

**Tableau 4.2:** Données nucléaires des sources utilisées <sup>18</sup>

Radionuclide	$T_{1/2}$	$E_\gamma$ , keV	$\gamma$ , %	Radionuclide	$T_{1/2}$	$E_\gamma$ , keV	$\gamma$ , %
<sup>241</sup> Am	432.2 a	59.54	35.30	<sup>152</sup> Eu	13.5 a	121.8	28.21
<sup>133</sup> Ba	10.54 a	53.1	2.20			244.7	7.423
		81.0	36.94			344.3	26.41
		276.40	7.12			411.3	2.301
		302.84	18.3			443.98	3.077
		356.01	62.1			778.89	13.00
		383.85	8.92			867.32	4.161
<sup>109</sup> Cd	461.9 j	88.03	3.61			964.01	14.48
<sup>57</sup> Co	271.73 j	122.06	85.54			1085.78	11.84
<sup>60</sup> Co	5.271 a	136.48	10.66			1112.02	13.55
		1173.22	99.88			1408.95	20.71
		1332.5	99.98	<sup>54</sup> Mn	312.2 j	834.82	99.98
<sup>137</sup> Cs	30.18 a	661.6	84.62	<sup>22</sup> Na	2.604 a	1274.5	99.95



**Figure 4.3 :** Courbe d'efficacité du détecteur Ge(HP) DET1



**Figure 4.4 :** Courbe d'efficacité du détecteur Ge(HP) DET3

### 4.2.2 Détermination du rapport Pic au Total

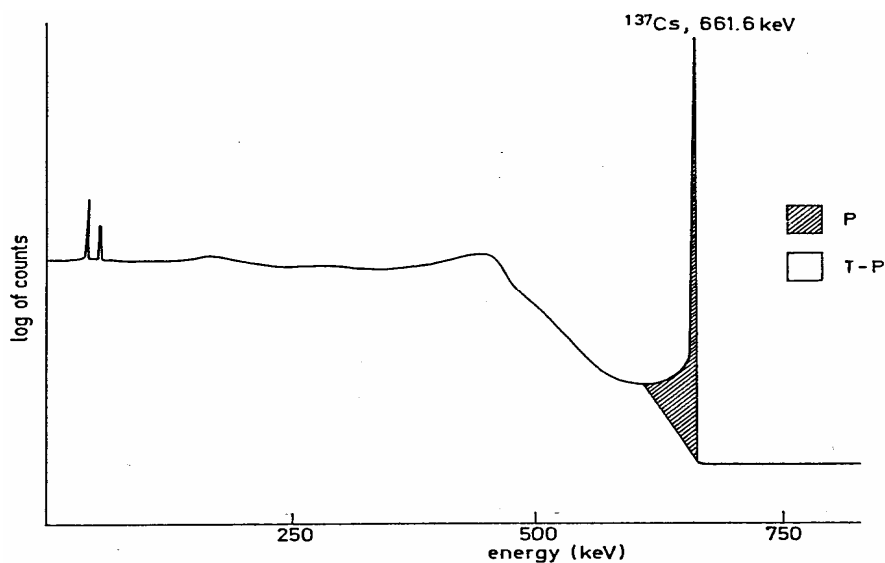
Afin de calculer le facteur de correction, l'efficacité de détection du pic à l'énergie totale ( $\epsilon_p$ ) et l'efficacité de détection totale pour les raies gamma d'intérêt doivent être connues. Les deux sont des caractéristiques du détecteur.

De ce fait, l'efficacité de détection totale est obtenue en déterminant le rapport P/T qui est une quantité expérimentalement mesurable et peut être déterminée via le rapport P/T :

$$\frac{\epsilon_p}{\epsilon_t} = \frac{P}{T} \quad (4.1)$$

P/T est le rapport du comptage, du pic et du spectre. Tous les deux provenant de la même transition, enregistrés par le détecteur (voir figure 4.5).

Ce dernier dépend des paramètres suivants : l'énergie du photon ; la distance source détecteur ; la composition et la géométrie de la source et la présence des matériels absorbants et diffusants. Suivant la procédure suggérée par De Corte, 10 nous avons déterminé  $P/T = f(E_\gamma)$  en utilisant le logiciel Génie2k pour le détecteur DET1.



**Figure 4.5 :** Définition du rapport P/T du détecteur Ge(HP)

La procédure de calibration du P/T est basée sur l'utilisation d'un ensemble de sources ponctuelles comme  $^{109}\text{Cd}$ ,  $^{57}\text{Co}$ ,  $^{113}\text{Sn}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{54}\text{Mn}$  et  $^{65}\text{Zn}$ . Ces radionucléides sont choisis afin d'avoir des énergies gamma dominantes, qui couvrent la gamme d'intérêt et ne causent pas les effets de la sommation cascade. Faisant la collection de la première source  $^{109}\text{Cd}$  à la

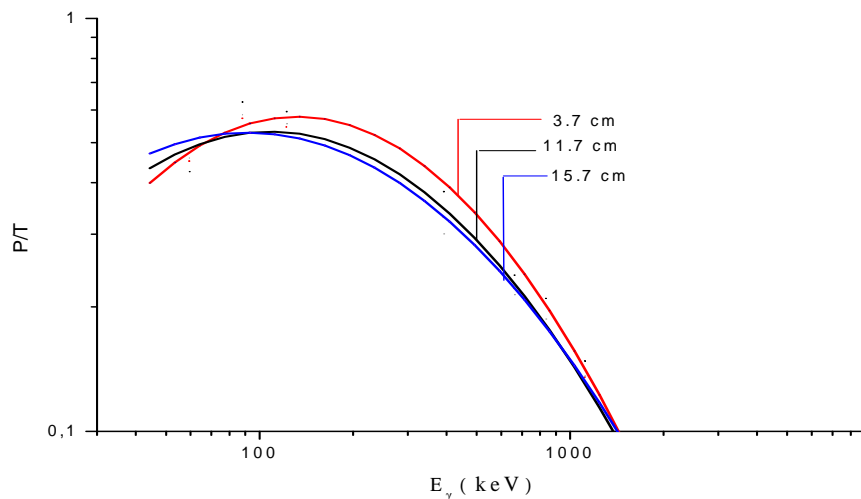
distance référence (11.7 cm). Le temps de comptage déterminé correspond à la réduction maximale de l'incertitude statistique du pic (1 %).

De la même manière, on effectue la collection des autres sources en gardant toujours la même géométrie /distance. Après la collection et l'analyse des spectres induits par ces radionucléides  $^{109}\text{Cd}$ ,  $^{57}\text{Co}$ ,  $^{113}\text{Sn}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{54}\text{Mn}$  et  $^{65}\text{Zn}$ , on effectue la mesure du bruit de fond du détecteur pour durée de 27 heures afin de corriger la surface de chaque pic présenté dans les spectres par la soustraction du bruit de fond.

Les corrections suivantes doivent être faites pour tous les spectres mesurés :

1. Soustraction du bruit de fond;
2. Extrapolation de l'énergie zéro, les énergies inférieures à 30 keV sont filtrés par les discriminateurs ;
3. Soustraction des pics qui sont originaires des énergies de photons autres que les dominantes, c à d la raie 136.5 keV du pic  $^{57}\text{Co}$  et le pic d'annihilation 511 keV du  $^{65}\text{Zn}$ .

Les courbes  $P/T = f(E_\gamma)$  sont obtenues par le logiciel Génie 2K, version 2.0 et elles sont illustrées dans la figure 4.5.



**Figure 4.6 :** Courbe expérimentale du P/T du détecteur DET1

En effet, les courbes de l'efficacité du détecteur présentées dans la figure 4.5 sont tracées pour trois distances 3.7, 11.7 et 15.7 cm. Nous constatons un croisement des trois courbes dans la région de faible énergie (inférieure à 100 keV).

Actuellement, notre laboratoire est doté d'un logiciel spécifique à la technique  $k_0$  appelé KAYZERO for WINDOWS. Ce logiciel a été développé sous DOS entre 1987 jusqu'au 2002 par F De Corte au centre DSM (NL), ensuite le programme a été développé par Robbert Van Sluijs sous Windows portant le nom Kayzero for Windows (KayWin). La version démonstration est disponible sur le site web [www.kayzero.com](http://www.kayzero.com).

La base de données IUPAC 2002 est introduite dans le logiciel Kayzero et elle est disponible sur site web <http://www.iupac.org>

Kayzero for Windows est un logiciel très important pour la mise en application de la méthode  $k_0$ -NAA comme technique de routine. Il nous permet le calcul de concentrations des éléments dosés avec toute les corrections possibles à savoir : correction de l'efficacité de détection selon la géométrie de l'échantillon mesuré, correction des effet des vraies coïncidences.

#### 4.2.3 Correction pour les effets des vraies coïncidences

La correction de la sommation des vraies coïncidences est un élément essentiel dans la méthode  $k_0$ -NAA, et elle devient importante quand les échantillons sont mesurés avec un détecteur de grande efficacité. Ceci peut être le cas où les échantillons sont mesurés dans ou à la proximité du détecteur, afin de réaliser les basses limites de détection en même temps que le flux du réacteur. Pour la détermination des facteurs de correction, plusieurs programmes de calcul ont été développés et évalués au cours de ces dernières années. <sup>53, 55</sup>

### 4.3 Caractérisation du flux neutronique du canal étudié

La méthode  $k_0$ -NAA était introduite dans le réacteur Es-Salam en 2004 mais seulement en utilisant la convention de HOGDAHL dans un canal d'irradiation. Dans le présent travail, nous avons développé la technique  $k_0$  en utilisant deux différentes approches ; la convention de HOGDAHL et le formalisme de WESTCOTT. En effet, pour une générale applicabilité de la méthode  $k_0$ -NAA, les deux formalismes sont pris en considération afin de traiter la réaction  $(n,\gamma)$   $1/v$  et non  $1/v$  des nucléides, respectivement. Dans la convention de Høgdahl les paramètres du spectre neutronique comme  $\alpha$  et  $f$  sont mesurés par trois différentes méthodes  $R_{Cd}$ , Couverture-Cd et triple moniteurs nus. En plus, la méthode bi isotopique nus

avec Zr est aussi utilisée pour le calcul de  $f$ . Selon le formalisme de Westcott, l'index spectral modifié  $r(\alpha)\sqrt{T_n/T_0}$  et le facteur de Westcott  $g(T_n)$  sont mesurés en employant le Lutétium comme un moniteur "non-1/v" et  $^{197}\text{Au}$ ,  $^{96}\text{Zr}$  et  $^{94}\text{Zr}$  comme des moniteurs "1/v". L'intégrale de résonance réduit du Lutétium  $s_{0,\text{Lu}}$  est aussi calculé dans ce travail. Afin d'évaluer l'applicabilité de  $k_0$ -NAA dans notre système analytique, nous avons analysé plusieurs SRMs. La validation de la technique  $k_0$  par les standards SRM est traitée dans le chapitre 5.

### 4.3.1 Détermination de $\alpha$ et $f$ (H $\phi$ GDAHL)

#### Expérimental

Trois méthodes rapport cadmium, couverture cadmium pour un multi moniteur et triple moniteur nus sont appliquées pour déterminer les paramètre alpha et  $f$ . La liste des matériels utilisés dans l'expérience, leurs compositions et dimensions est présentée dans le tableau 4.3. Les données nucléaires utilisées dans ce travail sont présentées dans le tableau 4.4. La sélection des moniteurs est basée sur leurs caractéristiques physiques, feuilles et fils, métalliques ou dilués avec  $\bar{E}_r$  variant de 5 à 6000 eV. Ceci permet de vérifier la linéarité de la courbe  $\log(T_i)$  en fonction de  $\log(\bar{E}_r)$  ainsi démontrant que  $\alpha$  est constante sur toute la région d'énergie épithermique du canal d'irradiation étudié.

**Tableau 4.3** : caractéristique des moniteurs utilisés dans les expériences

Matériau	Fournisseur	Dimension
Au 0.1%-Al fil	IRMM	Diam = 0.5 mm; longueur = 10 mm
Co 0.1%-Al fil	IRMM	Diam = 0.5 mm; longueur = 10 mm
Zr 99.5% feuille	Alfa Aesar	Diam = 6mm, épaisseur = 0.127 mm
Lu 99.9% feuille	Alfa Aesar	Diam = 6mm, épaisseur = 0.1mm
Zn 99.999% chute	IGEE	Forme libre

**Tableau 4.4** : données nucléaires des moniteurs utilisés.

Moniteur	$E_r$ , eV	$Q_0$	demi-vie	$E_\gamma$ , keV	$k_{0,Au}$
$^{197}\text{Au}(n,\gamma)^{198}\text{Au}$	5.65	15.71	2.695 j	411.8	1 ( $F_{Cd}=0.991$ )
$^{59}\text{Co}(n,\gamma)^{60}\text{Co}$ ( $G_e = 0.95$ )*	136	1.99	5.271 a	1173.2	1.32
$^{96}\text{Zr}(n,\gamma)^{97m}\text{Zr}$ ( $G_e = 0,9728$ )**	338	248	16.9 h	743.3	1.30E-5
$^{68}\text{Zn}(n,\gamma)^{69m}\text{Zn}$	590	3.19	13.76 h	438.6	3.98E-04
$^{64}\text{Zn}(n,\gamma)^{65}\text{Zn}$	2560	1.908	244 j	1115.5	5.72E-3
$^{94}\text{Zr}(n,\gamma)^{95}\text{Zr}$ ( $G_e = 0,982$ ) **	6260	5	64.02 d	724.2	9.32E-5

### Méthode rapport Cd d'un multi moniteur

Deux lots d'échantillons Au, Co, Zr, Zn sont préparés en six exemplaires selon les géométries mentionnées dans le tableau 4.3. Chaque échantillon est pesé avec une microbalance de haute précision de 0.01 mg ensuite conditionné dans une enveloppe en aluminium ultra pure. Le premier lot est introduit dans une capsule en aluminium pour une irradiation sans cadmium. Le second lot couvert par du cadmium est introduit dans la capsule pour une irradiation sous cadmium. Pour éviter les perturbations causées par le cadmium, on irradie la capsule nue et la capsule couverte par du cadmium séparément pendant une heure et 30 minutes respectivement dans un flux thermique  $3.8 \cdot 10^{13} \text{ c/cm}^2\text{s}$ . Après 2 à 3 jours de refroidissement pour les moniteur Zn et Zr, les activités induites par radionucléides sont mesurées pendant 100 minutes à l'aide des détecteurs Ge(HP). La mesure des autres moniteurs Au et Co est effectuée pour un temps variant entre 900 et 2000 secondes.

Afin de corriger le comptage perdu en utilise l'équation suivante <sup>5</sup> :

$$N_{\text{corr}} = \frac{N_{\text{obs}}}{1 - \left(\frac{DT}{100}\right)} \quad (4.2)$$

$N_{\text{corr}}$  : nombre de coups dans la surface du pic corrigé par le comptage perdu ;  $N_{\text{obs}}$  : nombre de coups dans la surface du pic enregistré dans le temps réel T; DT : temps mort partiel. Le

calcul de correction de self-shielding  $G_e$  des neutrons épithermiques est effectué à partir des équations 4.3 pour les moniteurs de zirconium (voir tableau 4.4) <sup>13</sup>.

$$\begin{aligned} G_e(^{97}\text{Zr}) &= 1 - 2.327 \cdot 10^{-4} \cdot d + 1.487 \cdot 10^{-7} \cdot d^2 \\ G_e(^{95}\text{Zr}) &= 1 - 1.543 \cdot 10^{-4} \cdot d + 1.143 \cdot 10^{-7} \cdot d^2 \end{aligned} \quad (4.3)$$

où « d » est l'épaisseur de la feuille Zr en  $\mu\text{m}$ .

L'approche de régression linéaire itérative pour le calcul de  $\alpha$  est effectué comme suit 13 :

- ◆ Introduire les paramètres appropriés ( $\bar{E}_r$ ,  $Q_0$ , et les facteurs  $k_{0,\text{Au}}$ ) pour chaque moniteur ;
- ◆ Calcul de l'activité spécifique pour chaque moniteur ( $A_{\text{sp}}$ ) ;
- ◆ Calcul des rapports Cd ;
- ◆ Tracer  $\log(T_i)$  en fonction de  $\log(\bar{E}_{r,i})$  ;
- ◆ Calcul de la pente ( $-\alpha$ ).

Le processus itérative est stoppé si on n'observe aucune variation significative dans  $\alpha$  [ $\alpha(n-1) \cong \alpha(n)$ ].

Le résultat de la dernière itération, dérivée de la méthode  $R_{\text{Cd}}$  est présenté graphiquement dans la figure 4.6. La pente de la ligne droite est ajustée à partir des points expérimentaux en utilisant tous les radionucléides énumérés dans le tableau 4.4 ( $^{198}\text{Au}$ ,  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{69\text{m}}\text{Zn}$ ,  $^{97\text{m}}\text{Nb}$ ,  $^{69\text{m}}\text{Zn}$  et  $^{95}\text{Zr}$ ).

En remplaçant la valeur de  $\alpha$  dans l'Eq (3.20) en obtient la valeur de  $f$ . Évidemment, cette méthode est la seule qui a l'avantage d'éviter l'introduction des facteurs  $k_0$  et permet des mesures simples sur un détecteur Ge(HP) sans besoin de la courbe d'efficacité de détection. D'autre part, en raison des deux types d'irradiations exigées, aucune surveillance instantanée de la distribution de flux des neutrons épithermiques n'est possible. Il est important de noter que la description précédente de la méthode "Rapport Cd d'un multi moniteur" rapporte en plus le paramètre  $f$ , puisqu'il est évident à partir de la figure 4.6.

Le paramètre  $f$  peut être obtenu d'une valeur appropriée de  $\log(1/f)$  à  $\log E_r = 0$ .



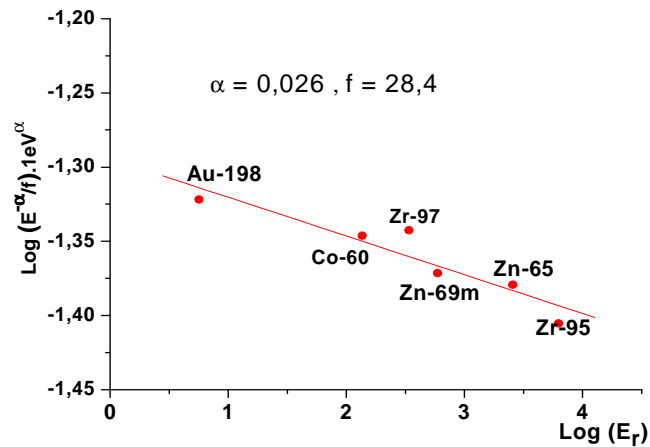


Figure 4.7 : Détermination de alpha dans le canal étudié par la méthode  $R_{Cd}$

**Méthode couverture Cd d'un multi moniteur**

Pour la détermination  $\alpha$  et  $f$ , les mêmes étapes de calcul (l'approche de régression linéaire itérative) sont appliquées. Le résultat de la dernière itération, dérivée de la méthode  $R_{Cd}$  est présenté graphiquement dans la figure 4.7.

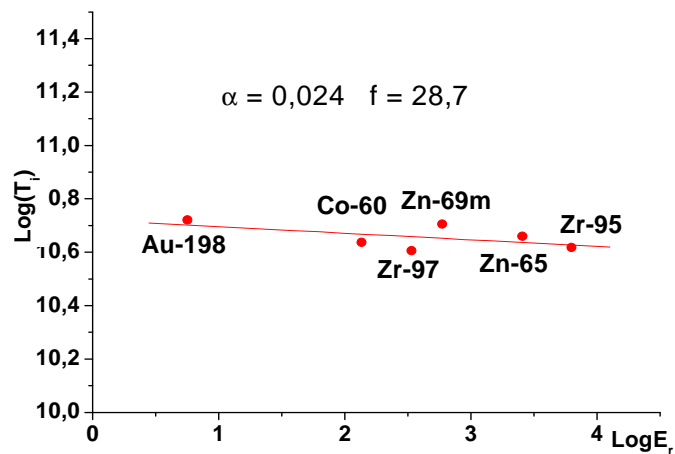


Figure 4.8 : Détermination de alpha dans le canal étudié par la méthode couverture Cd

### La méthode d'un multi moniteur nu

Dans ce travail, nous avons aussi choisis la méthode d'un triple moniteur nu pour plusieurs raisons que nous citons:

En tenant compte des considérations pratiques telles que le calcul de la propagation d'erreur, il est préconisé d'appliquer la méthode "triple moniteur nus" avec  $^{198}\text{Au}$ ,  $^{95}\text{Zr}$  et  $^{97}\text{Zr}$ .

En pratique, nous avons utilisé des fils (0.1% Au – Al) de 1 mm de diamètre pour les quels les paramètres de self-shielding  $G_{\text{th}} = G_e=1$  et aussi des feuilles minces de Zr de 127  $\mu\text{m}$  d'épaisseur, avec  $G_{\text{th}}=1$ , et  $G_e=0.983$  pour le  $^{94}\text{Zr}(n,\gamma)$  et  $G_e=0.973$  pour  $^{96}\text{Zr}(n,\gamma)$ .

En plus pour des considérations de précision et d'exactitude qui présentent des avantages pratiques, nous utilisons la combinaison Au+Zr ou les effets des vraies coïncidences ne sont pas produits. (Concernant les raies gamma appropriées ( $^{198}\text{Au}$  : 411.8 keV ;  $^{95}\text{Zr}$  : 724.2 et 756.7 keV ;  $^{97}\text{Zr}/^{97\text{m}}\text{Nb}$  : 743.3 keV). En plus que les raies de  $^{95}\text{Zr}$ , d'énergie 724.2+756.7 keV sont différentes d'une manière significative de la raie gamma d'énergie 743.3 keV de  $^{97}\text{Zr}/^{97\text{m}}\text{Nb}$ . Ceci donne la possibilité d'utiliser la procédure du double comptage de Zr. Cependant les temps de mesure peuvent être laissé courts. Notant,  $^{97}\text{Zr}/^{97\text{m}}\text{Nb}$  (743.3 keV) = 1,  $^{95}\text{Zr}$  (724.2 + 756.7 keV) = 2 et  $^{198}\text{Au}$  (411.8 keV) = 3.

Même procédure de préparation, d'irradiation et de mesure citée dans la méthode rapport cadmium mais pour l'irradiation nue des moniteurs Au et Zr.

Pour le calcul la procédure appliquée est comme suivant:

1. Le calcul du facteur «b» de l'Eq (3.42b) est basé sur la mesure de la feuille de Zirconium (moniteur 1 :  $^{97}\text{Zr}/^{97\text{m}}\text{Nb}$  743.3 keV) avec un temps de refroidissement très court et du fil Au 0.1% -Al (moniteur 3 :  $^{198}\text{Au}$  411.8 keV) à la distance de référence dont les efficacités  $\epsilon_{p,1}$  et  $\epsilon_{p,3}$  sont exactement connues.
2. Le calcul du facteur «a» de l'Eq (3.42a) est basé sur la mesure de la feuille Zr (pour le moniteur 1 et 2), après 2-3 jours. La spécificité du moniteur Zr réside dans ces deux isotopes, dont les énergies des raies gamma sont très proches, donc on peut considérer que  $\epsilon_{p,1}/\epsilon_{p,2} = 1$ , ceci permet dans ce cas, de faire la collection des spectres avec une courte géométrie (distance source détecteur).

Comme dans la méthode d'un multi moniteur couvert par Cd, les valeurs des efficacités doivent être précises pour la mesure des moniteurs et les effets des vraies coïncidences sont négligeables. En prenant en compte toutes ces considérations et en appliquant les équations 3.42a et 3.42b, la valeur obtenue du paramètre  $\alpha$  est 0.030. Cependant, pour le calcul du paramètre f nous remplaçons  $\alpha$  dans l'Eq 3.20 ou la valeur obtenue est égale à 28.6.

### La méthode Bi-isotopique nu (Zr)

Cette méthode est utilisée pour la détermination du paramètre f. En se basant sur l'Eq 3.21 et à partir des activités spécifiques, les facteurs  $k_0$  et les efficacités de détection des radio-isotopes suivants :  $^{97}\text{Zr}/^{97\text{m}}\text{Nb}$  (743.3 keV),  $^{95}\text{Zr}$  (724.2 + 756.7 keV), la valeur obtenue de f est égale à 29.5.

### Analyse et discussions

La méthode Rapport cadmium est utilisée pour le contrôle de  $\alpha$  à condition que les caractéristiques du spectre neutronique sont connues c.à.d vérifier leurs stabilités en fonction du temps. L'isotope  $^{197}\text{Au}$  combiné avec les deux isotopes Zr est un cas favorable car Zr peut servir comme un moniteur de rapport de flux. En plus des avantages cités précédemment, aucun des moniteurs  $^{197}\text{Au}$ - $^{94}\text{Zr}$ - $^{96}\text{Zr}$  n'émettent des raies gamma en cascade, par conséquent, aucun effet de coïncidence ne devrait être corrigé pour de petites distances.

Le tableau 4.5 regroupe tous les résultats de f et  $\alpha$  obtenus par les quatre méthodes, Rcd, couverture Cd, triple moniteur nu et bi-isotopique (Zr).

**Tableau 4.5** : Paramètres du flux neutronique du canal d'irradiation

Méthode	$\alpha$	f ( $\phi_{\text{th}}/\phi_{\text{epi}}$ )
Rapport cadmium	$0.026 \pm 0.012$	$28.4 \pm 1.6$
Couverture cadmium	$0.024 \pm 0.010$	$28.7 \pm 2.1$
Triple moniteur nu	$0.030 \pm 0.008$	$28.6 \pm 1.8$
Bi-isotopique (Zr)	-	$29.5 \pm 2.5$
<b>Moyenne</b>	<b><math>0.027 \pm 0.010</math></b>	<b><math>28.8 \pm 2.0</math></b>

La comparaison des résultats obtenus par les différentes méthodes montre une bonne concordance entre les valeurs. Nous constatons que les valeurs de  $\alpha$  et  $f$  obtenues par les différentes méthodes sont étroitement proches dont la valeur moyenne est 0.027 et 28.8 de  $\alpha$  et  $f$  respectivement. La valeur de  $\alpha$  pour ce site d'irradiation est positive indiquant un spectre de neutrons épithermiques doux. La valeur mesurée de  $f$  montre que les neutrons dans ce canal ne sont pas bien thermalisés ( $f = 28.83$ ).

La caractérisation du canal d'irradiation par le formalisme de Westcott est traitée ci-dessous.

### 4.3.2 Détermination de $r(\alpha)\sqrt{T_n/T_0}$ et $T_n$ (Westcott)

Le paramètre  $r(\alpha)\sqrt{T_n/T_0}$  est déterminé en utilisant les méthodes "rapport cadmium" et "monitor double nus" selon les équations 3.68 et 3.69, respectivement (voir chapitre 3). Les moniteurs utilisés dans cette expérience sont donnés dans le tableau 'Au, Co, Zn et Zr). Le paramètre de Westcott  $T_n$  est mesuré par les méthodes Rapport cadmium (Eq 3.65) et bi-isotopique nu en utilisant zirconium (Eq 3.67). Le moniteur  $1/v$  est l'Au avec Lu dont les facteurs de Westcott  $g(T_n)$  sont tabulés en fonction de la température du neutron,  $g(T_n)$  pour Lu doit être obtenu après la mesure des moniteurs irradiés. La température peut être obtenue directement des valeurs  $[g(T_n)]_{Lu}$  en fonction de  $T_n$ .

**Tableau 4.6 :** Les paramètres  $r(\alpha)\sqrt{T_n/T_0}$  et  $T_n$  obtenus par différentes méthodes

Paramètre	Rapport Cd	Double isotopes nus	Moyenne
$r(\alpha)\sqrt{T_n/T_0}$	$0.038 \pm 0.004$	$0,036 \pm 0.003$	<b><math>0.037 \pm 0.003</math></b>
$T_n$	$33.8 \pm 1.2$	$34.2 \pm 2.4$	<b><math>34.0 \pm 1.8</math></b>

Le tableau 4.6 présente les résultats  $r(\alpha)\sqrt{T_n/T_0}$  et  $T_n$  mesurés avec deux méthodes. Les valeurs de  $r(\alpha)\sqrt{T_n/T_0}$  sont calculées par les méthodes rapport cadmium et double isotopes 0.038 et 0.036, respectivement. La moyenne de ces valeurs est trouvée satisfaisante.

**Tableau 4.7** : Paramètres de flux neutronique du canal d'irradiation du réacteur Es-Salam

Paramètre	Ce travail (2007) <sup>48</sup>	Résultats (1996) <sup>65</sup>	Résultats (1993) <sup>66</sup>
$\alpha$	$0.027 \pm 0.010$	-	-
f	$28.8 \pm 2.0$	-	-
T <sub>n</sub> (°C)	$34 \pm 1.8$	39	32.5
R <sub>Cd</sub> (Au)	$2.93 \pm 0.32$	2.74	2.527
$r(\alpha)\sqrt{T_n/T_0}$	$0.037 \pm 0.003$	0.0321	0.037

Les paramètres  $\alpha$ , f, T<sub>n</sub>, R<sub>cd</sub> et  $r(\alpha)\sqrt{T_n/T_0}$  présentés dans tableau 4.7 sont obtenus dans le cadre de ce travail et aussi des travaux expérimentaux réalisés en 1996 et 1993. <sup>65, 66</sup>

Les résultats obtenus sont comparables avec les résultats effectués dans les deux périodes 1993 et 1996. La contribution du spectre des neutrons épithermiques pour la réaction (n,gamma) est tout à fait significative et par conséquent la valeur de alpha est aussi important pour le calcul des concentrations . Ce travail a été communiqué lors de la 12<sup>ième</sup> conférence internationale sur les tendances modernes dans l'analyse par activation (MTAA-12), 16-22 Septembre 2007, Tokyo, Japon.<sup>37</sup>

Tous les travaux réalisés dans ce chapitre sont publiés dans le journal international JNRC : Radioanalytical and Nuclear Chemistry. <sup>48</sup>

## CHAPITRE V

La méthode  $k_0$ -NAA est un moyen analytique visant le dosage des éléments de trace. En effet, l'objectif principal de cette technique réside dans l'analyse des échantillons inconnus en utilisant seulement les moniteurs d'or. La quantification des concentrations est basée sur plusieurs paramètres physiques tels que : le flux neutronique, l'efficacité du détecteur Ge(HP), les facteurs  $k_0$  et aussi l'activité spécifique du moniteur et l'élément dosé.

La mise en œuvre de la méthode  $k_0$ -NAA est composée en quatre grandes phases : (voir figure 5.1): 61

- ♦ La phase de sélection et définition des objectifs et conditions opératoires initiales;
- ♦ La phase de développement, avec ou sans optimisation au moyen de plans d'expériences;
- ♦ La phase de validation (Validation Interne/Externe), précédé d'une phase de pré validation;
- ♦ La phase d'application en routine (Usage en routine), incluant le plus souvent une validation en routine et parfois une validation partielle ou une revalidation.

### 5.1 Sélection de la méthode $k_0$ -NAA

La sélection est considérée le point de départ d'une méthode analytique, c'est à partir d'elle-même que dépendent les autres étapes et plus particulièrement les décisions qui seront prises. De ce fait, elle nécessite de bien cerner la problématique en vue de définir clairement les objectifs pour proposer des solutions appropriées, matérialisées en termes de conditions opératoires. Les méthodes d'analyse utilisées dans le laboratoire sont les méthodes relative et absolue. L'amélioration de qualité de service en terme de résultats d'analyse reste l'objectif principal du laboratoire. L'introduction d'une nouvelle méthode d'analyse qui est  $k_0$ -NAA permet de trouver des solutions appropriées aux problèmes rencontrés dans l'application des méthodes relative et absolue.

Les limites et les difficultés de ces dernières sont citées comme suivant :

1. Nombre limité des matériels références appropriés (relative),
2. Difficultés rencontrées en exécutant l'analyse panoramique (relative),
3. L'indisponibilité de déterminer les éléments inattendus (relative),
4. Limitations inhérentes (absolue),
5. Faible exactitude (absolue).

En se basant sur les cinq points mentionnés précédemment, la méthode  $k_0$  a été mise en évidence pour éliminer les inconvénients en tenant en compte de la flexibilité de la méthode absolue avec l'exactitude de la méthode relative.

Les solutions proposées dans la méthode  $k_0$  constituent une meilleure approche dans le processus d'analyse, c.à.d éliminer l'utilisation des standards de référence comme dans la méthode relative et par conséquent la phase de la préparation et la mesure sont exécutées seulement pour l'échantillon à analyser. En plus, en utilisant la méthode  $k_0$ -NAA, nous pouvons analyser tous les pics existants dans le spectre collecté contrairement dans la méthode relative. La détermination des concentrations des éléments existants dans l'échantillon est conditionnée par la présence de ces derniers dans le standard utilisé. Il est bien de mentionné que chaque échantillon analysé doit être associé à un standard de même matrice que l'échantillon, cette situation est difficilement réalisée dans le laboratoire vue la diversité des matrices et des natures des échantillons étudiés. Les problèmes liés à la méthode absolue ont été résolue dans la méthode  $k_0$  en introduisant un nouveau facteur appelé facteur  $k_0$  qui regroupe quatre paramètres physiques :  $\sigma$  (la section efficace pour les neutrons thermiques),  $I_\gamma$  (probabilité d'émission de la raie gamma d'énergie  $E_\gamma$ ,  $\theta$  (abondance isotopique) et  $M$  (masse atomique). Les facteurs  $k_0$  sont devenus universel et peuvent être utilisés dans les méthodes  $k_0$ -NAA et  $k_0$ -PGNAA. Ces facteurs ont été mesurés expérimentalement dans plusieurs laboratoires spécialisés à travers le monde. La faible exactitude de la méthode absolue résulte sur les valeurs trouvées dans la littérature des paramètres  $\sigma$ ,  $I_\gamma$ ,  $\theta$  et  $M$ . Chacun de ces paramètres est associé à une erreur donnée, ceci conduit à une limitation inhérente. En concluant, l'analyse élémentaire basée sur la standardisation  $k_0$  permet la détermination exacte de plusieurs éléments sans les standards de référence, qui convient à l'analyse par activation neutronique avec moins d'influence des différences géométriques et de matrices avec les échantillons.

La sélection de la méthode étant faite, il est indispensable d'effectuer des expériences complémentaires en vue de s'assurer le bon fondement de la méthode et la capacité de sa mise en œuvre par le laboratoire par rapport à l'usage requis.

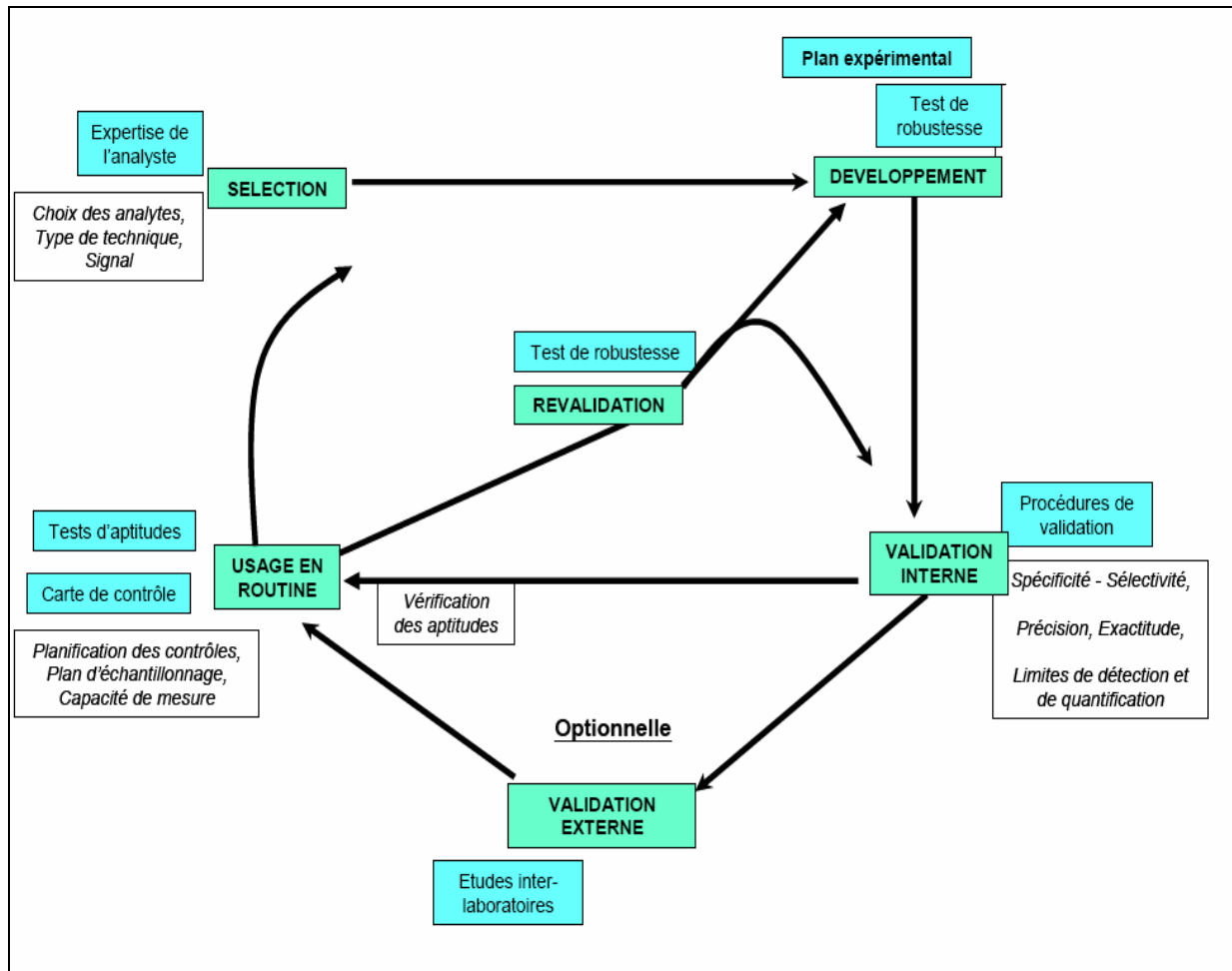


Figure 5.1 : Cycle de vie d'une méthode analytique

## 5.2 Développement de la méthode $k_0$ -NAA au sein du CRNB

La réalisation de cette phase a été effectuée dans le cadre d'un projet de recherche inscrit au sein du Centre de Recherche Nucléaire Birine. En effet, un plan de travail a été mis pour exécution depuis l'année 2002 et l'implémentation de la méthode  $k_0$  a été réalisée en 2004. Le développement de la méthode est basé sur la caractérisation expérimentale des sites d'irradiation (flux neutronique) et la calibration de la chaîne de mesure (détecteur GeHP) selon la méthodologie  $k_0$ . La méthode  $k_0$ -NAA est une méthode puissante et très complète où tous les aspects sont pris en compte. La mise en place de cette technique exige des calculs très complexes et des connaissances approfondies dans le domaine neutronique et l'instrumentation.



### 5.3 Validation

La validation est une étape indispensable en vue de prouver qu'une procédure est suffisamment exacte et fiable pour avoir confiance dans les résultats fournis pour l'usage prévu. Plusieurs procédures ont été élaborées à cet effet. La validation a été effectuée en terme de validation interne et externe. En ce qui concerne la validation interne, nous avons utilisé des SRM et CRM de différentes matrices ainsi un nouveau standard synthétique multi élément SMELS. SMELS a été réalisé pour la validation et le contrôle qualité de la méthode  $k_0$ -NAA. La validation externe a été effectuée par la participation de notre laboratoire au test de compétence inter laboratoire à l'échelle internationale, ce travail rentre dans le cadre du projet AFRA IV-12 project, RAF4/020. <sup>64</sup>

Dans ce chapitre, nous décrivons la validation interne et externe (inter-laboratoires).

#### 5.3.1 Validation interne

##### A. Validation par les SRM, CRM

La validation d'une méthode implémentée à savoir  $k_0$ -NAA est une partie très importante afin d'évaluer la qualité des résultats obtenus. Selon la norme ISO 17025, les standards de référence matériels peuvent être utilisés pour la validation. <sup>62</sup>

Il est important d'étudier et évaluer la qualité des résultats obtenus par la technique  $k_0$ -NAA en utilisant des standards de référence matériels avec différentes matrices biologiques et géologiques.

##### *Préparation des standards*

Un ensemble de SRM sélectionnés pour cette expérience été choisis afin de couvrir sur la base de leurs matrices . Les SRM analysés sont Soil7 (sol), S11 (Sédiment de Lake), AIEA-405 (Sédiment Estuarien), AIEA-140/TM (Plantes de Mer), AIEA-085 (Cheveux humains) et AIEA-336 (Lichen). La masse moyenne des standards est 150 mg. Les moniteurs d'or préparés sont de forme de fils (10mm de longueur et 0,5mm de diamètre) et la masse moyenne est 6,82 mg. Chaque type de standard est préparé en trois exemplaires ou les masses sont présentées dans le tableau 5.1. Tous les échantillons pesés sont conditionnés dans des enveloppes en aluminium et placés dans la capsule d'irradiation. Il est bien de noter que les

standards biologiques et géologiques sont irradiés séparément dans deux capsules différentes afin d'éviter l'effet de matrice. Les moniteurs d'or sont placés en sandwich avec les standards pour avoir une meilleure détermination du flux.

### *Irradiation et mesure*

Les capsules d'irradiation sont exposées durant 8 heures à un flux neutronique ou les caractéristiques sont connues  $\alpha = 0,027$  et  $f = 28.8$ . 48

Après 8 jours de refroidissement, les échantillons irradiés sont transférés dans des capsules en polyéthylène pour les mesures par spectrométrie gamma. L'acquisition et l'analyse des spectres sont effectuées par le logiciel Génie 2k ainsi que le calcul des concentrations est exécuté par notre programme élaboré en MS-Excel.

Les paramètres de performances tels que U-score et le Bias sont utilisés dans notre travail afin de valider les résultats d'analyse. Ces paramètres sont définis comme suivant :

$$E_{n\text{-score}} = \left| \frac{x - c}{\sqrt{u_x^2 + u_c^2}} \right| \quad (5.1)$$

$$\begin{array}{ll} E_{n\text{-score}} \leq 1 & \text{acceptable} \\ > 1 & \text{rejetée} \end{array}$$

$$\text{Bias} \leq \frac{X - C}{C} \quad (5.2)$$

ou  $x$  est le résultat d'analyse;  $c$  est la valeur certifiée;  $u_x$  est l'incertitude du résultat d'analyse et  $u_c$  est l'incertitude de la valeur certifiée.

### *Résultats et discussions*

Les résultats obtenus sont illustrés dans les figures 5.1 - 5.6. Les valeurs des concentrations mesurées dans les standards Soil7, 140, S11, 405, 085 et 336 concordent parfaitement avec les valeurs recommandées. D'après ces figures, nous constatons que la majorité des éléments sont dans l'intervalle  $\pm 10$  %. Pour tous les standards, la valeur de concentration donnée est la moyenne de trois mesures distinctes avec son erreur. Dans le cas du standard Soil7, onze éléments possèdent des incertitudes inférieures à 2 % tels que Ca, Ce, Cr, Cs, Fe, K, Hf, Rb, Th, U et Zn. Les éléments suivants As, Mn, La, Sb et Yb se trouvent

dans l'intervalle 2 – 4%. Entre 4 et 10 % d'incertitude on trouve les éléments Co, Eu, Na et Ta avec l'incertitude supérieure à 10%.

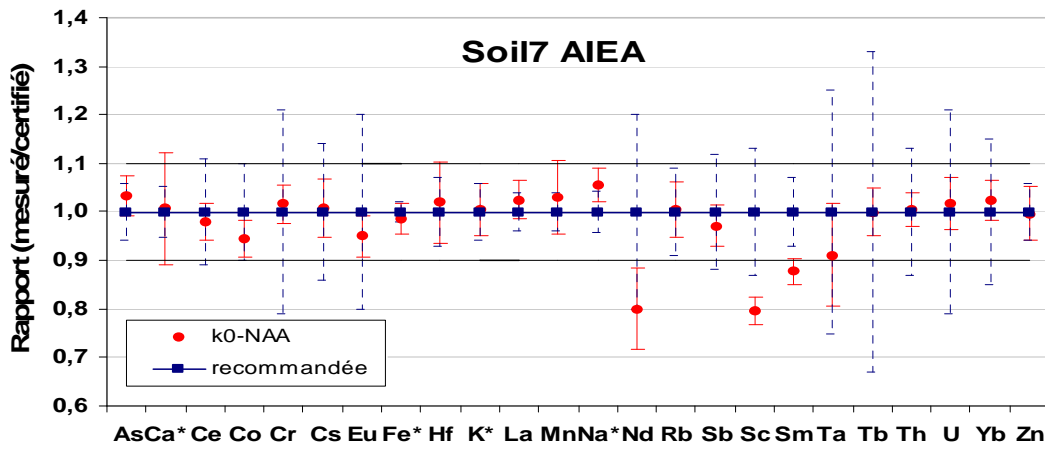


Figure 5.2: Comparaison entre les valeurs mesurées et recommandées AIEA/Soil-7

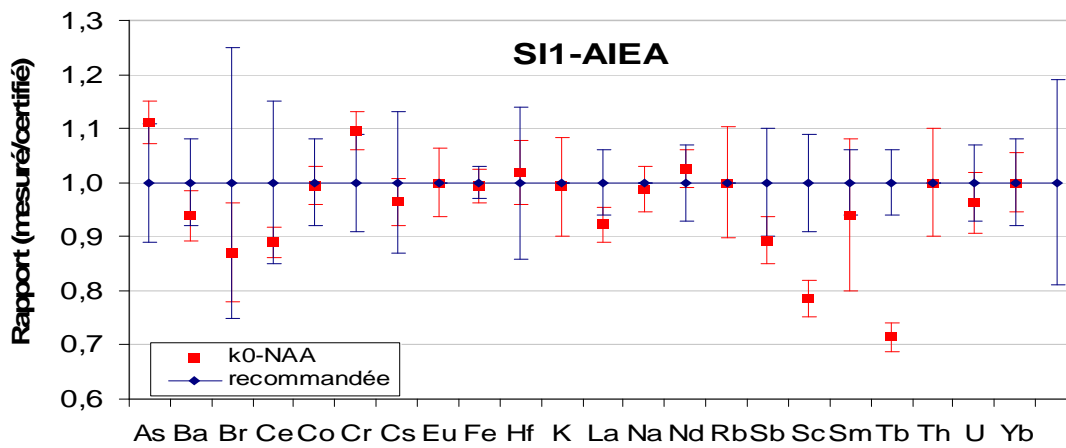


Figure 5.3 : Comparaison entre les valeurs mesurées et recommandées AIEA/SI-1

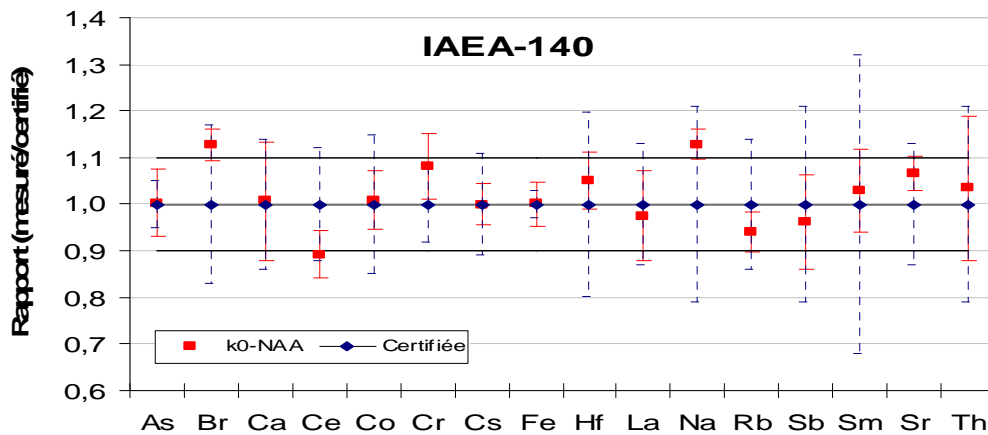


Figure 5.4 : Comparaison entre les valeurs mesurées et recommandées AIEA-140

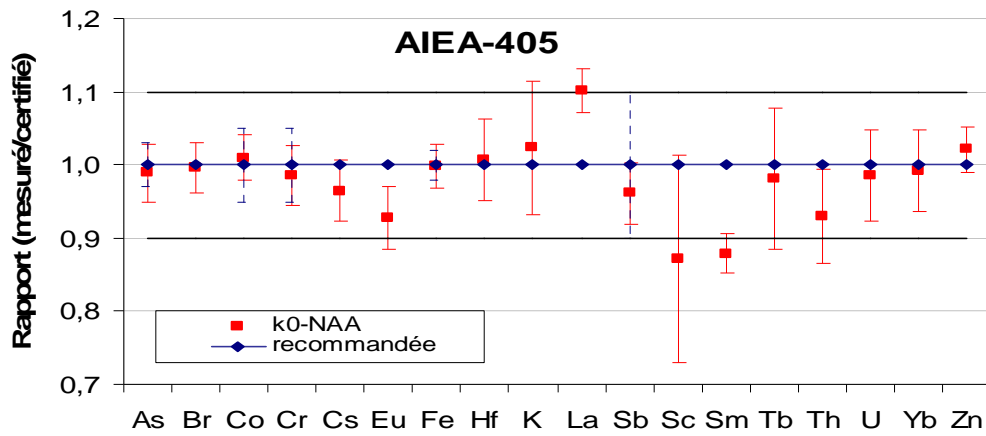


Figure 5.5 : Comparaison entre les valeurs mesurées et recommandées AIEA-405

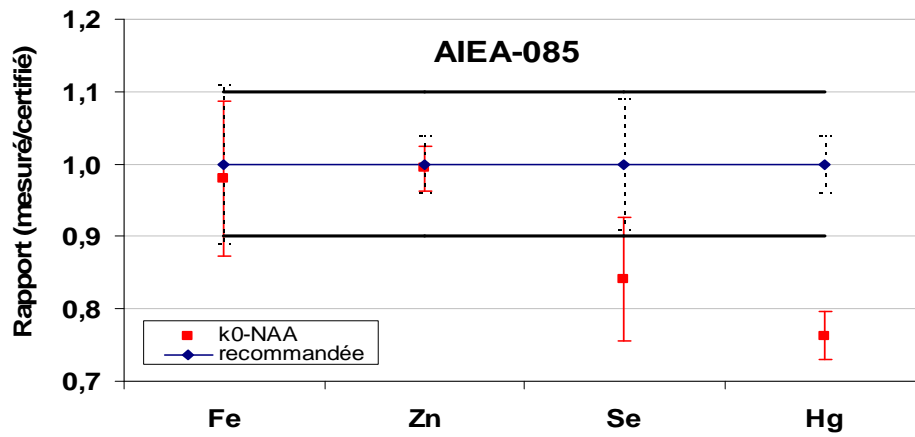


Figure 5.6 : Comparaison entre les valeurs mesurées et recommandées AIEA-085

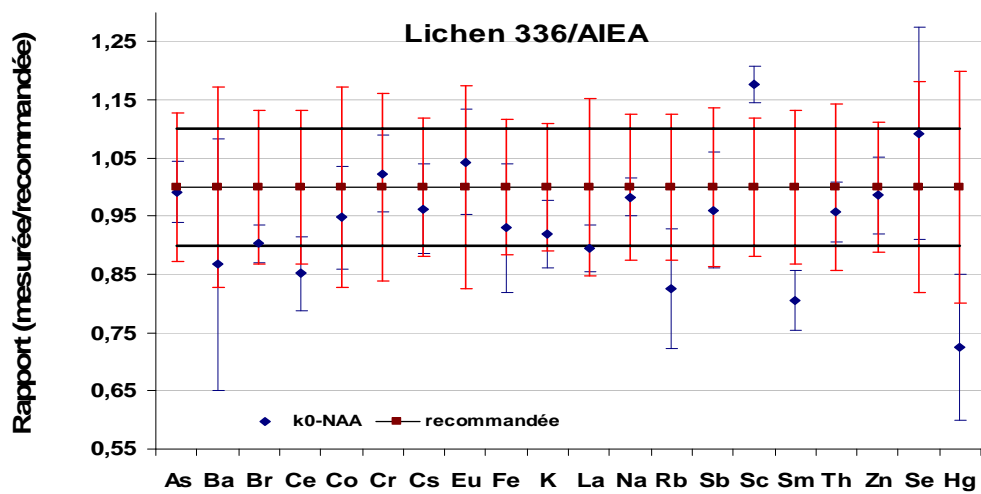


Figure 5.7 : Comparaison entre les valeurs mesurées et recommandées AIEA-336

Nous pouvons évaluer l'exactitude de nos résultats à travers le paramètre de performance statistique  $E_{n-score}$ . Par définition ces paramètres indiquent les propriétés de la mesure d'un standard de référence par une méthode dont on connaît les valeurs et les incertitudes.

La valeur mesurée de Nd est loin de la valeur exacte, où l'interférence entre la raie 530 keV et la raie 530,6 keV de Ca est la cause principale de cette différence. Sachant que la concentration de Ca 163000 ppm (16,3%) de la matrice totale est largement supérieure de la concentration de Nd qui se présente comme un élément de trace par rapport au Ca qui est un élément majoritaire pour cette raison la contribution au nombre de coups de l'énergie 531 KeV du Nd  $^{147}$  est négligeable par rapport à la contribution de la raie 530,6 keV du Ca $^{47}$ . En plus la valeur de Sm est située dans l'intervalle [-20, +20%] à cause de la non correction des interférences causées par l'élément Th pour la raie 103 keV.

Il est bien de noter que pour les résultats du fournisseur l'incertitude des éléments Tb, Ta, Nd, Eu, Cr est supérieure à 20 %.

Le standard SL1 la valeur de Tb est un peu loin de la valeur exacte à cause de l'interférence de la raie 879,4 keV avec la raie 880,5 keV de l'élément Ce, sachant que ce dernier représente comme un élément majoritaire par rapport au Tb qui est un élément mineur.

Le standard IAEA-40 la valeur mesurée de l'élément Na est loin de la valeur de fournisseur ou la cause principale est l'enveloppe d'Aluminium.

Le standard IAEA-405 la valeur mesurée de Sm est un peu loin de la valeur certifiée à cause de l'interférence de la raie 103 avec les raies 104 de Th. En plus la valeur mesurée de La est supérieure de la valeur certifiée à cause de l'interférence avec Yb.

D'après la figure 5.6, la concentration du Hg est relativement éloignée par rapport à la valeur donnée par le fournisseur pour des raisons analytiques : les raies énergétiques du Se et Hg sont 279.5 et 279.2 keV, respectivement. Sauf pour certains éléments, où les valeurs mesurées sont un peu loin des valeurs certifiées, cette différence est causée par l'interférence entre les raies d'énergie voisine, pour ce la on mentionne les remarques suivantes pour chaque type de standard :

Dans le cas du standard AIEA-085, 9 éléments seulement sont donnés par le fournisseur. Parmi ces éléments on trouve trois éléments de courte période qui n'ont pas pu être dosés par le système pneumatique. Les éléments dosés par la technique  $k_0$ -NAA sont : Fe, Zn, Hg, Sc et Se. La valeur du Sc donnée par le fournisseur est égale à 0.009 ppm. Cette valeur est de l'ordre de ppb, chose qui est difficile à mesurer. D'après la figure 5.5, la concentration du Hg

est relativement éloigné par rapport à la valeur donnée par le fournisseur pour des raisons analytiques : Sélénium et le mercure ont une énergie de 279.5 et 279.2 keV, respectivement. Il est difficile de séparer entre ces deux pics qui sont situés dans la même zone dans le spectre. En plus la concentration du Hg est supérieure de 20 fois par rapport à la concentration du sélénium. La contribution du pic 279.5 keV appartenant au Se est presque négligeable en comparant avec le Hg. la surface du pic 264.7 keV est égale à 368 présente un comptage très faible et par conséquent l'erreur statistique du pic est considérable.

A travers l'étude effectuée sur les cinq standards, nous avons pu déterminer 24 éléments dans Soil-7, 23 éléments dans SL-1, 16 éléments dans IAEA-140/TM, 18 éléments dans IAEA-405, 4 éléments dans IAEA-085 et 20 éléments dans IAEA-336.

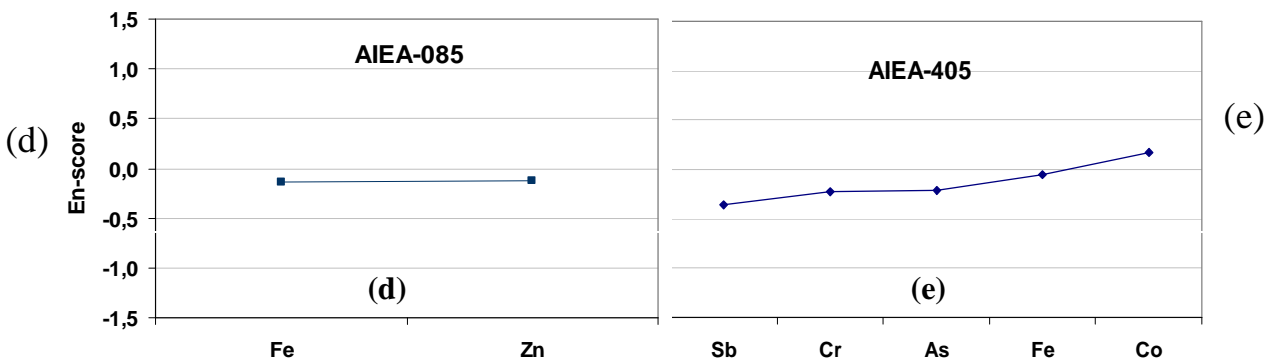
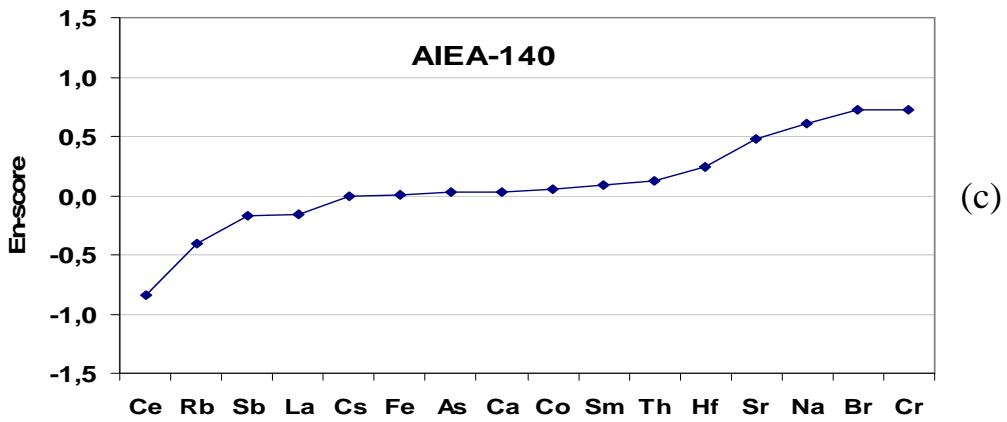
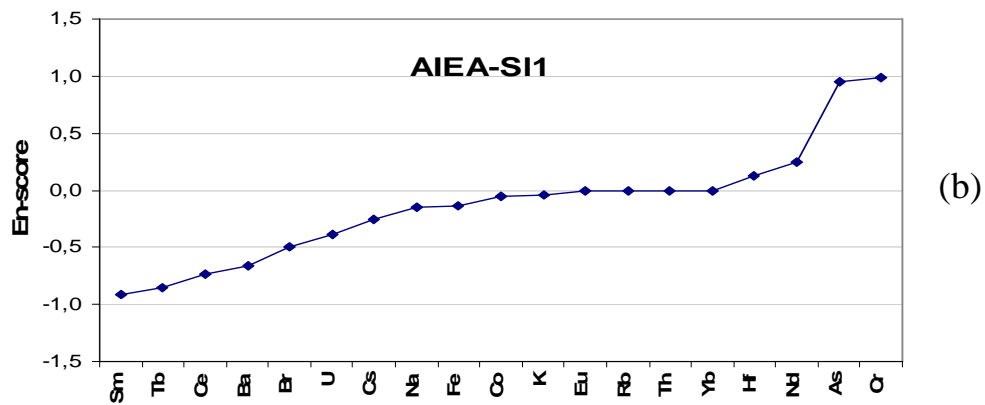
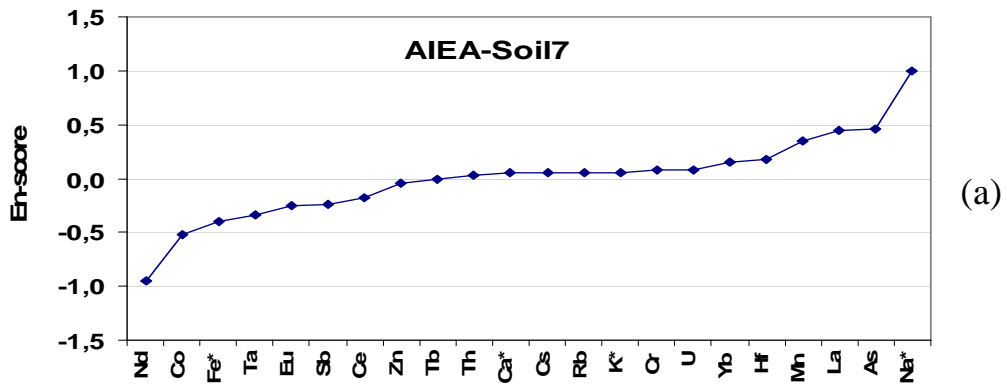
L'évaluation des résultats obtenus par la technique  $k_0$  basée sur l'incertitude des valeurs mesurées et celle du fournisseur,  $E_n$ . Nous constatons que l'intervalle de l'incertitude pour le fournisseur est plus large que l'intervalle de l'incertitude des résultats obtenus, c'est-à-dire que les résultats mesurés sont plus exacts que ceux certifiés, en plus  $E_n$  est inférieur ou égal à 1 pour la majorité des éléments dosés dans les différents SRM.

Pour le Soil7, l'incertitude varie de 3 à 11 % et 4 à 33 % pour nos résultats et du fournisseur, respectivement. Dans la figure 5.8a, 22 éléments sont considérés acceptables car la valeur  $E_n \leq 1$ , sauf pour Na, Sc, Sm. En plus le samarium interfère avec le thorium. Nous constatons aussi que les éléments K, Tb, Zn,  $E_n = 0$  c.à.d que la valeur mesurée est identique avec celle certifiée.

L'incertitude dans SI-1 varie de 3 à 11 % et 4 à 25 % pour nos résultats et du fournisseur, respectivement. Dans la figure 5.8b, 19 éléments sont considérés acceptables puisque la valeur  $E_n \leq 1$ .

Dans IAEA-140, 3 - 16% et 3 à 32 % sont les intervalles des incertitudes des valeurs obtenus par  $k_0$ -NAA et du fournisseur. Tous les éléments (16) dosés dans ce standard sont acceptables ou  $E_n \leq 1$  (fig 5.8c).

Dans le standard IAEA-085 l'incertitude des résultats mesurés et recommandés varie de 3 à 11% et 4 à 11%.  $E_n > 1$  pour Se et Hg due à l'interférence entre ces deux éléments (Fig 5.8 d). Dans IAEA-405 peu d'éléments Sb, Cr, As Fe et Co sont donnés avec leurs incertitudes dans le certificat du standard. Les incertitudes sont comparables entre nos résultats et ceux du fournisseur. En plus,  $E_n \leq 1$  pour tous les éléments (fig 5.8e).



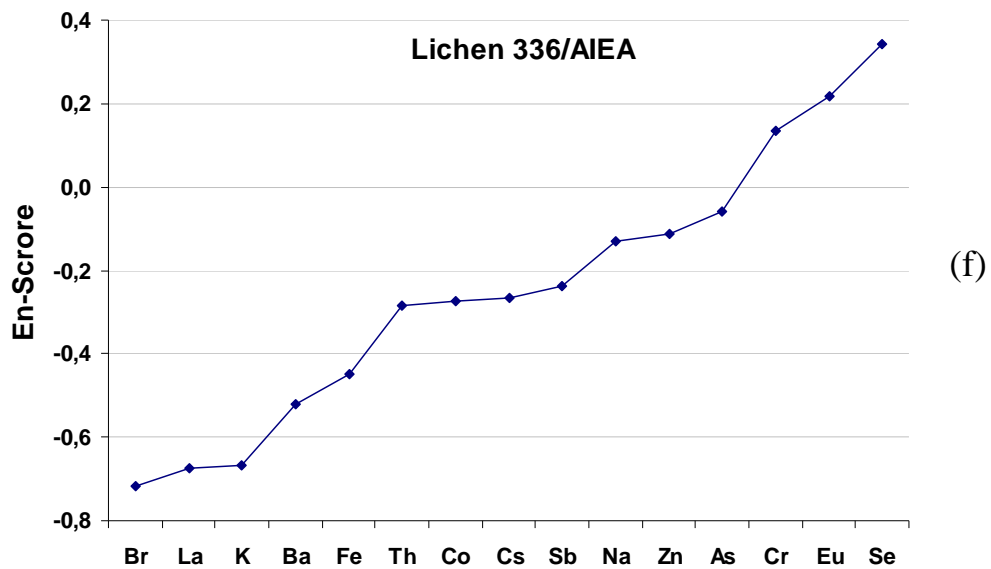


Figure 5.8 : Diagrammes (a - f) montrant le  $E_{n-score}$  des SRM analysés dans ce travail

Dans IAEA-336 peu d'éléments tels que Sm, Hg, Rb, Ce, Sc ont des valeurs légèrement supérieures à 1 voire fig 5.8f. L'incertitude des résultats mesurés et recommandés varie de 3 à 18% et 11 à 20 %, respectivement. Egalement on constate que l'incertitude des valeurs recommandées sont supérieures aux valeurs mesurées.

D'une manière générale, la validation par les standards SRM montre que la méthode  $k_0$ -NAA implémentée dans le réacteur Es-Salam est fiable et disponible pour des applications pratiques.



## B. Validation en utilisant SMELS

Le besoin de démontrer la qualité analytique d'une méthode, devient de plus en plus important. La norme ISO/IEC 17025:2005 exige la validation des méthodes nucléaires telles que l'analyse par activation neutronique  $k_0$ -NAA. L'objectif de ce travail est d'introduire un nouveau protocole de CQ/AQ au sein du laboratoire. Dans cette partie, on s'intéresse à l'utilisation d'un standard spécifique appelé SMELS, Synthetic Multi Element Standards.

L'idée du standard synthétique multi éléments a été proposé pour la première fois par INW et KFKI-AEKI<sup>6869</sup>, afin d'étudier le facteur CQ/AQ de la méthode  $k_0$ -NAA. Ce matériel a été développé comme une matrice inerte dopée avec un certain nombre d'éléments qui sont analytiquement intéressants en tenant en compte de l'homogénéisation à des niveaux de concentrations raisonnables. Ainsi, avoir un comptage statistique suffisant pour différents réacteurs et configurations et une bonne température avec une stabilité de radiation à des fluences élevées.

Les études de faisabilité réalisées par INW et IRMM, ont mené à la production du matériel SMELS qui est basé sur une résine de formaldéhyde de phénol (réellement, le polymère basilié de resol) qui a été dopés avec 33 (26 différents) éléments<sup>67</sup>.

Trois types de matériels sont : 71

Type I : 8 éléments de courte période, sauf Au : Au, Cl, Cu, I, La, Cs, Mn et V.

Type II : 10 éléments de moyenne période : As, Au, Br, Ce, Mo, Pr, Sl, T, Yb et Zn.

Type III : 15 éléments de long période sauf Au (2,7jour) : Au, Co, Cr, Cs, Fe, In, Sb, Sc, Se, Sr, Th , Tm, Yb, Zn et Zr.

Ce matériel a été analysé par 9 laboratoires à travers le monde à savoir : la Belgique (3 : IRMM, INW, SCK-CEN), Canada (1 : Ecole polytechnique, montreal), Slovénie (1 : Josef Stefan Institute, Japon (1 : Japan Atomic Energy Research Institute), l'Allemagne (1 : institut de radiochimie, université de munich), Hollande (1 : Université Delft de Technologie) et République tchèque (1 : institut de physique nucléaire, académie des sciences).

Le standard SMELS est utilisé aussi pour la calibration des canaux d'irradiation par la détermination des paramètres  $f$  et  $\alpha$ .<sup>70</sup>

### *Préparation des échantillons de SMELS*

Les standards SMELS sont présentés dans la figure 5.7. Dans ce travail nous avons analysé deux types de SMELS II et III en utilisant le canal vertical 15. L'étude du standard SMELS I est prévue dans le futur proche en utilisant le canal H1 destiné pour le dosage des éléments de courtes périodes. Les échantillons SMELS II et III ont été préparés en six exemplaires avec les moniteurs de flux (0,1% Au-Al). La masse recommandée est d'environ 50 mg pour chaque échantillon SMELS ainsi la masse moyenne du moniteur d'or est 5,78 mg.



**Figure 5.9** : Trois types de SMELS utilisés pour la validation de la méthode  $k_0$ -NAA

Le conditionnement des échantillons est effectué dans des feuilles en Aluminium qui servent comme un support pour les échantillons préparés. Ces derniers sont placés dans deux capsules d'irradiation afin d'être irradiés.

### *Irradiation et mesure*

Les deux capsules sont irradiées séparément dans le canal V15 du réacteur Es-Salam pendant 1800 minutes et 4 heures pour SMELS II et SMELS III respectivement. Après 12 heures de refroidissement, les échantillons SMELS II ont été transférés dans des capsules propres en polyéthylène pour mesurer les activités émises par les radionucléides par le détecteur Ge(HP). La collection des spectres a été effectuée durant 1300 secondes. Les échantillons SMELS III ont été récupérés après 3 – 4 jours de refroidissement. Le temps de mesure s'étend de 1800 et 3600 secondes des échantillons irradiés.

**Résultats et interprétations**

Les figures 5.7 et 5.8 montrent que tous les résultats obtenus par la méthode  $k_0$ -NAA sont en parfaite concordance avec les valeurs données par le fournisseur. Ces concentrations sont les valeurs moyennes de six mesures distinctes calculées avec leurs erreurs. Nous constatons à partir des Figs 5.7 et 5.8, que nos résultats concordent parfaitement avec les valeurs assignées.

La contribution en nombre de coups de raie 415,8 keV est égale à 3820 cps qui est comparable avec 36000 cps de la raie 411,8 keV, nous constatons donc qu'il y a un problème d'interférence entre les pics voisins 411 et 415 keV. Ceci est illustré dans SMELS III. Th est un élément de trace donc la contribution de Th par la raie 415,8 keV est négligeable. On remarque le même problème pour la valeur de Se dans SMELS III, où l'interférence des raies est la cause essentielle de l'écart entre ces valeurs. Mais ça n'empêche pas de dire, que cette valeur se trouve dans l'intervalle de confiance où son incertitude est inférieure à 10%. En outre, l'élément Pr n'a pas été déterminé à cause de son absence dans le spectre. A travers notre étude effectuée sur le matériel synthétique multi standard, nous avons pu déterminer 9 éléments dans type II et 15 éléments dans type III. Les valeurs de concentrations SMELS II, SMELS III sont présentées dans les tableaux 5.2 et 5.3.

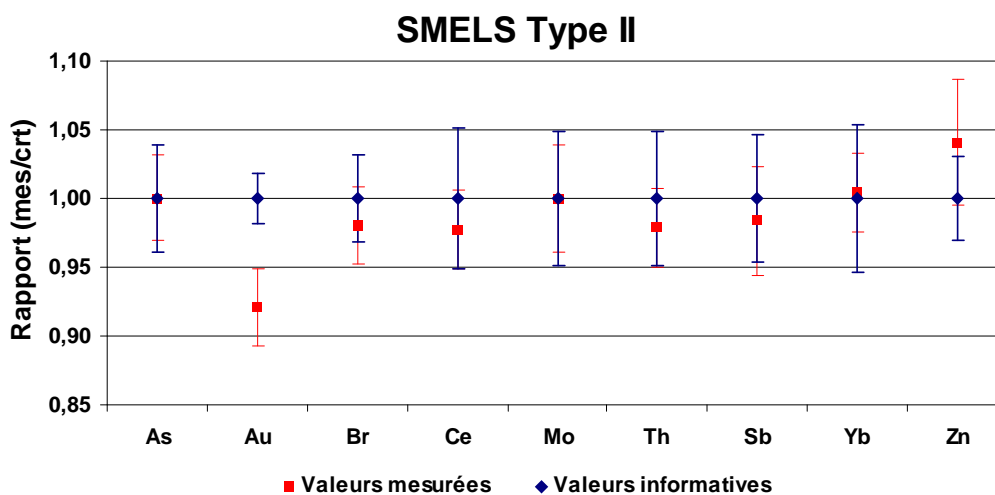
La comparaison entre les résultats obtenus par la technique  $k_0$ -NAA et les valeurs données par le fournisseur est illustrée ci-dessous :

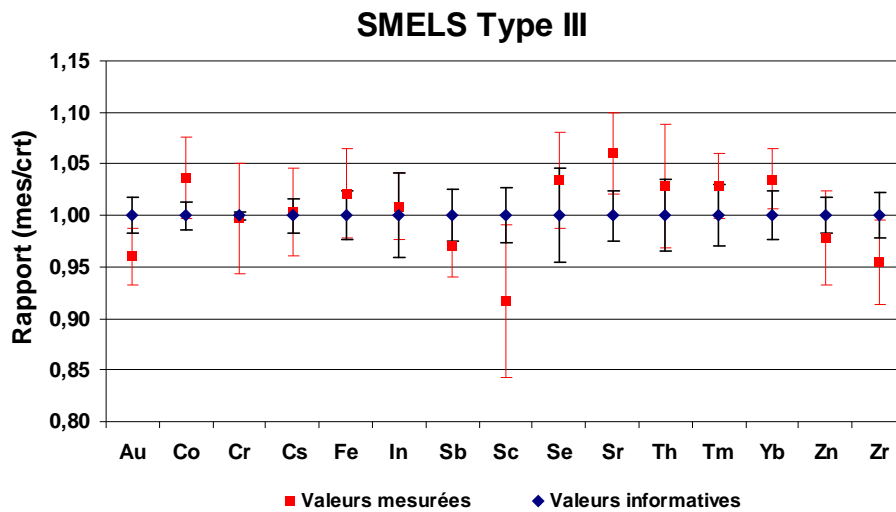
**Tableau 5.1** : Résultats d'analyse et performances statistiques de SMELS II

Elément	$k_0$ -NAA (mg/kg)	Incertitude (%)	Informative (mg/kg)	Incertitude (%)	En-score $ E_n $	Bias (%)
As	92,3	3	92,3	4	0,01	0,05
Au	3,62	3	3,93	2	2,56	7,94
Br	154	3	157	3	0,47	2,00
Ce	15242	3	15600	5	0,39	2,29
Mo	5170	4	5170	5	0,01	0,04
Th	3590	3	3670	5	0,37	2,11
Sb	169	4	172	5	0,27	1,63
Yb	188	3	187	5	0,08	0,47
Zn	6840	5	6570	3	0,73	4,08

**Tableau 5.2** : Résultats d'analyse et performances statistiques du SMELS III

Elément	k <sub>0</sub> -NAA (mg/kg)	Incertitude (%)	Informative (mg/kg)	Incertitude (%)	En-score $ E_n $	Bias (%)
Au	0,865	3	0,901	2	1,26	3,99
Co	25,2	4	24,3	1	0,85	3,62
Cr	86,4	1	86,7	0	0,26	0,31
Cs	20,9	4	20,8	2	0,07	0,31
Fe	8400	4	8200	2	0,43	2,13
In	466	3	462	4	0,17	0,87
Sb	49,7	3	51,2	3	0,77	2,97
Sc	1,05	7	1,14	3	1,13	8,33
Se	136	5	131	5	0,52	3,44
Sr	8646	4	8159	2	1,23	5,97
Th	26,95	6	26,20	3	0,41	2,88
Tm	24,0	3	23,3	3	0,64	2,87
Yb	21,4	3	20,7	2	0,93	3,56
Zn	604	5	618	2	0,46	2,20
Zr	4370	4	4580	2	1,00	4,54

**Figure 5.10** : Comparaison entre les valeurs mesurées et les valeurs informatives

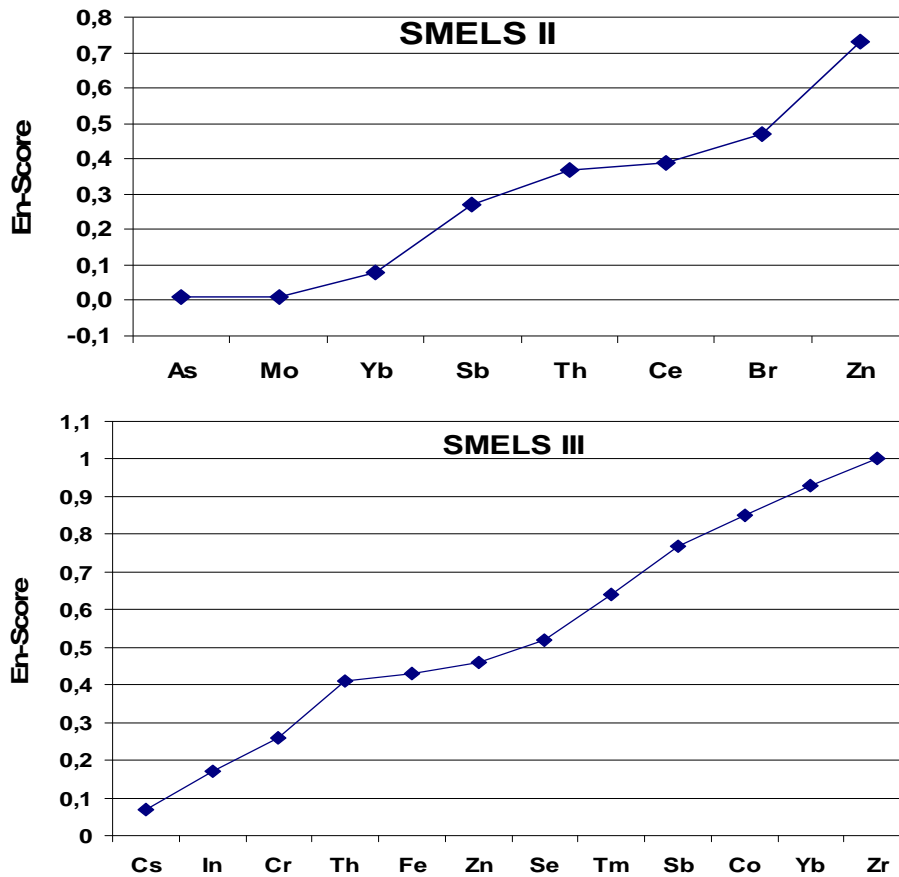


**Figure 5.11** : Comparaison entre les valeurs mesurées et les valeurs informatives

Nous remarquons que l'intervalle des incertitudes dans SMELS II s'étend entre 3 et 5 % qui est comparable avec celui donné par le fournisseur 2 à 5 %. Même discussion pour SMELS III ou l'incertitude varie entre 1 et 7 % pour nos résultats et entre 0 et 5 % pour les valeurs certifiées. Nous pouvons évaluer nos résultats en se basant sur la traçabilité illustrée dans les figures 5.8 et 5.9.

L'évaluation des résultats obtenus indique que nos résultats sont très satisfaisants et par conséquent, la validation de la méthode  $k_0$  par le standard SMELS montre que les valeurs des paramètres du flux alpha et f et l'efficacité de détection sont mesurés avec une grande précision. D'une autre manière, nous pouvons également utiliser les résultats des paramètres de performance statistique dans l'interprétation des résultats. La valeur du paramètre  $E_n$  indique l'exactitude du résultat obtenu par rapport à la valeur assignée.

Dans le cas de SMELS II, toutes les valeurs de  $E_n$  sont inférieures à 1 sauf pour l'Au qui a une valeur égale à 1,26. De même pour le bias, la valeur varie de 0,04 à 7,94 %. Cette situation est due à la surface du pic de l'Au. Dans la région d'énergie 411.8 – 415.8 keV on trouve deux pics adjacents dans le spectre, le premier et celui de l'Au (411.8 keV) le deuxième et celui du Pa233 de l'élément du Th avec l'énergie 415.8 keV. Sachant que la concentration du thorium dans SMELS II est très élevée par rapport à la concentration de l'or. Ceci conduit que tous les pics du Th sont présents dans le spectre et affecte la présence du pic 411.8 keV. Même interprétation pour l'or dans SMELS III ou la présence du thorium est significative.



**Figure 5.12 :** Diagrammes montrant le  $E_n$ -Score de SMELS II et SMELS III

Dans SMELS III, l'incertitude du résultat mesurée varie de 1 à 7 % et celle du fournisseur varie de 0 à 5 %. En comparaison, les deux intervalles interfèrent parfaitement entre eux. La valeur de  $E_n$  est inférieure ou égale à 1 sauf pour les éléments : Au, Sr, Sc.

A travers ce chapitre, nous avons procédé à la validation et le contrôle qualité de la méthode  $k_0$ -NAA en utilisant SRM et SMELS. L'analyse des éléments de courtes périodes du standard SMELS n'a pas été effectuée pour des raisons techniques.

Les résultats obtenus pour les deux parties de validation avec SRMs et SMELS sont très satisfaisants. Nous pouvons conclure que la méthode  $k_0$ -NAA implémentée dans le réacteur Es-salam est une méthode fiable et disponible pour des travaux d'analyse de n'importe qu'elle matrice. Cette technique est très avantageuse car elle permet l'analyse des échantillons inconnus sans l'utilisation des standards.

### 5.3.2 Validation externe

Dans cette partie, le laboratoire  $k_0$ -NAA a participé dans le cadre du projet AFRA IV-12 au test de compétence inter laboratoire des pays africains. L'étude a pour but d'évaluer les compétences des laboratoires en terme de technique, procédure et qualité des résultats. Ce travail consiste à la détermination des éléments essentiels et toxiques de cinq échantillons inconnus de type : aliments, plantes médicinales, bio-moniteurs aquatiques. Les résultats obtenus ont été présentés lors d'un meeting au Maroc avec la participation des laboratoires africains.

L'évaluation des résultats des participants a été effectuée par des experts de l'AIEA. Notre laboratoire a occupé une bonne place acceptable sachant que cette participation est la première dans son genre pour la méthode  $k_0$ -NAA.

### 5.4 Application de la méthode $k_0$ -NAA en routine

L'application de la méthode comme technique routinière est présentée dans le chapitre 6.

## CHAPITRE VI

### 6.1. Application dans la nutrition

#### *Analyse élémentaire du lait en poudre consommée en Algérie*

Tout comme les effets préjudiciables de la malnutrition, les bienfaits d'une nutrition adéquate peuvent se transmettre d'une génération à l'autre. Donner à un enfant des solides bases nutritionnelles se répercute sur son développement physique, mental et social.

Les problèmes de la nutrition s'inscrivent dans le cadre d'un cycle intergénérationnel de pauvreté, de croissance inadéquate et de potentiel gaspillé. L'UNICEF s'efforce d'améliorer la situation nutritionnelle de la mère aussi bien que de l'enfant selon une approche globale, en accordant une attention particulière à la grossesse, à l'allaitement et à la période vulnérable que constituent les trois premières années de la vie.

Plusieurs organisations mondiales considèrent que la nutrition est un droit fondamental, consacré dans de nombreux instruments relatifs aux droits de l'homme, qu'il s'agisse de la convention relative aux droits de l'enfant ou de la déclaration universelle des droits de l'homme. La malnutrition est provoquée chez l'enfant avant même sa naissance, ceci s'explique par l'état de santé de la mère avant et pendant la grossesse. Cependant, l'avenir nutritionnel d'un enfant commence avant la conception, en fonction de l'état nutritionnel de la mère avant la grossesse. Si chaque nouveau né était immédiatement placé sur le sein de sa mère, peau contre peau, cela permettrait d'éviter les cas d'hypothermie, et de sauver ainsi 200 000 vies par ans. Si tous les nouveaux-nés étaient exclusivement nourris au sein pendant les six premiers mois, environ 1.3 million de vies supplémentaires seraient sauvées chaque année et que des millions d'autres seraient améliorées, sur le plan de la santé. Le lait maternel est l'aliment parfait : il contient tous les nutriments et micronutriments dont le nourrisson a besoin pour grandir normalement pendant les six premiers mois.

Dans ce travail, nous n'allons pas étudier le lait maternel car ceci demande des moyens matériels importants mais nous avons comme même analysé le lait en poudre le plus consommé en algérie. La question qui se pose est la suivante : Quel type de lait consomme les algériens ?

Pour répondre à cette question nous avons procédé à l'analyse de trois marques de lait en poudre les plus consommées en Algérie. Ce travail consiste à l'analyse des éléments majeurs



et des oligo-éléments dans les différents échantillons. Ensuite comparer la composition nutritionnelle entre les trois marques d'une part et avec la littérature d'autre part.

L'importance nutritionnelle est traduite par un apport nutritif pour le sodium supérieur à 20 mg ainsi que pour le potassium supérieur à 40 mg.

En outre leur rôle dans la formation osseuse et dentaire, le calcium et le phosphore jouent un rôle métabolique. Par contre pour les oligo-éléments tels que : fer, zinc, cuivre, sélénium n'existent dans le lait qu'en faibles concentrations (traces).

### 6.2.1 Préparation des échantillons

Trois marques de lait en poudre sont achetées des supermarchés locaux. Les échantillons de lait sont extraits de chaque boîte, ensuite préparés en trois exemplaires. Les échantillons sont pesés à l'aide d'une microbalance. Les quantités sont pesées avec une grande précision des fils d'or de 5  $\mu\text{g/g}$  (0.1% Au-Al), diamètre 0.5mm, 10mm de longueur et du lait en poudre M1, M2, M3 ainsi que deux standards SRMs AIEA-155 and AIEA-153.

La gamme de masse est de 100-120 mg. Les échantillons de lait sont pressés avec un appareil approprié afin d'obtenir des géométries uniformes. Tous les échantillons sont placés dans une capsule propre en aluminium de forme cylindrique. Chaque paire d'échantillon (Lait et SRM) est irradiée avec un moniteur d'Or fourni par IRMM (Institute for Reference Materials and Measurements, Belgium). Le fil d'Or sert comme comparateur.

### 6.2.2 Irradiation et mesure

La capsule préparée a été introduite dans le canal pendant 4 heures d'irradiation dans le canal 15 que nous avons caractérisé.<sup>48</sup>

Les mesures sont effectuées dans un spectromètre de raie gamma en utilisant un détecteur CANBERRA et un Inspecteur 2k fonctionné par le logiciel Génie 2k. Les échantillons de lait sont mesurés pendant 1-4 heures pour différents temps de refroidissement, variant de 4 jours à 4 semaines. Le temps mort de tous les spectres est gardé inférieur à 5% et les coïncidences aléatoires étaient négligeables. Les nucléides, les énergies gamma avec les facteurs  $k_0$  sont utilisés pour l'analyse du lait.<sup>18</sup>

### 6.2.3 Résultats et discussions

Le tableau 6.1 montre la concentration des éléments obtenus par la méthode  $k_0$  pour les échantillons M1, M2 et M3 ainsi les valeurs de concentration pour le calcium, potassium et le sodium des producteurs. Les résultats obtenus des standards AIEA du lait et du petit lait portant les références AIEA-155 et AIEA-153 sont présentés et comparés avec les valeurs recommandées disponibles dans le tableau 6.1.

Les résultats des trois marques de lait sont comparés avec les valeurs des producteurs. Dans ce travail, nous avons déterminé six éléments dans les trois types de lait et pour les deux standards utilisés. Les éléments Br, Ca, K, Na, Rb and Zn sont déterminés dans chaque marque des trois échantillons de lait. Pour évaluer la qualité des résultats d'analyse obtenus par  $k_0$ -NAA, les deux SRMs sont choisis avec la même matrice. La Figure 6.1 montre la comparaison des résultats obtenus par  $k_0$ -NAA avec les valeurs recommandées des deux standards AIEA-153 et AIEA-155.

D'après cette figure, nous observons que dans le cas du Br, Ca, K, Na, Rb et Zn, le rapport entre les valeurs mesurées et recommandées est dans l'intervalle 10 %, sauf pour le Rb présentant une déviation standard de 20 %. Pour le potassium, la valeur obtenue présente une déviation standard de 15%, sachant que la valeur du fournisseur est informative. Nous pouvons dire que les concentrations de K et Rb déterminées par  $k_0$ -NAA sont à l'extérieur de l'intervalle  $\pm 10$  % pour AIEA-155.

**Tableau 6.1** : Valeurs de concentration ( $\mu\text{g/g}$ ) du lait : M1, M2 et M3

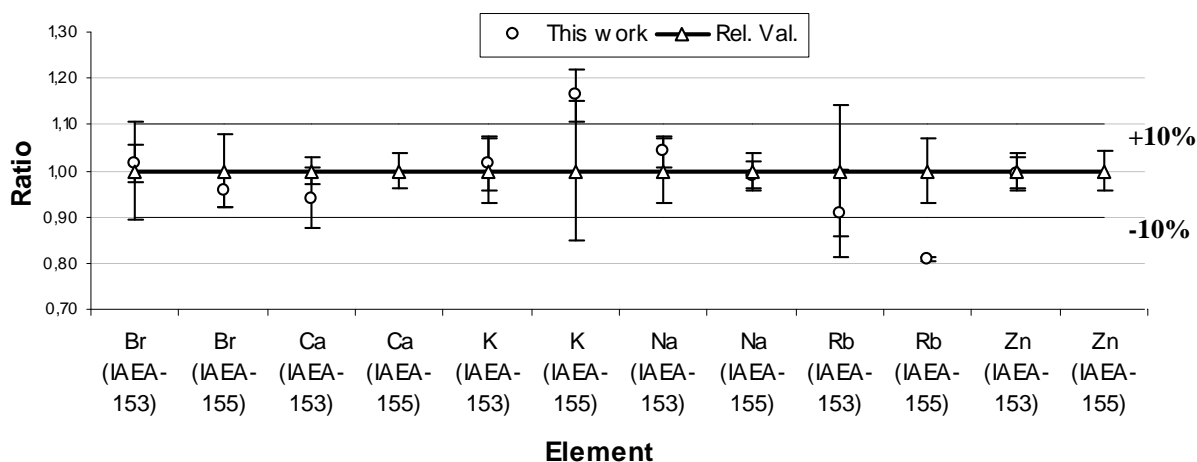
Elément	code désigné		
	M1	M2	M3
Br	$12.74 \pm 0.81$	$38.9 \pm 1.26$	$72.73 \pm 0.56$
Ca	$9040 \pm 150$ (9300)	$9560 \pm 820$ (9600)	$9210 \pm 130$
K	$12970 \pm 780$ (12000)	$12700 \pm 700$ (12600)	$12700 \pm 500$
Na	$3280 \pm 100$ (3500)	$3900 \pm 100$ (4400)	$41400 \pm 130$
Rb	$12.03 \pm 0.08$	$14.7 \pm 0.7$	$8.2 \pm 0.8$
Zn	$48.03 \pm 0.08$	$42.7 \pm 0.2$	$42.4 \pm 0.2$

NB : (Valeur): valeur de concentration du producteur

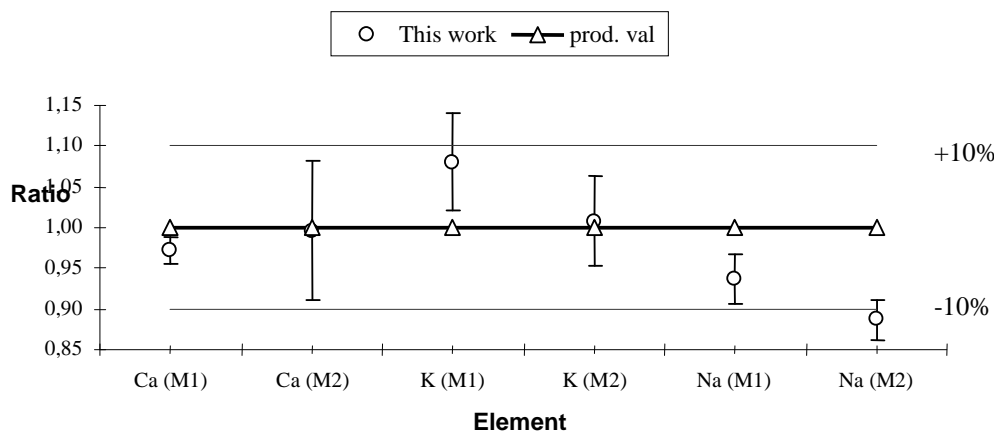
**Tableau 6.2 :** Résultats des concentrations obtenus dans AIEA-153 et AIEA-155

Elément	AIEA-153		AIEA-155	
	Ce travail	Valeur recommandée	Ce travail	Valeur recommandée
Br	12.5 ± 0.5	12.3 ± 1.3	37.47 ± 1.48	39.1 ± 3.1
Ca	12100 ± 800	12870 ± 386	-	*42100 ± 1684
K	17920 ± 1040	17620 ± 1233	48500 ± 2700	*41700 ± 6255
Na	4350 ± 140	4180 ± 293	15600 ± 500	15800 ± 632
Rb	12.7 ± 1.2	14.0 ± 2.0	31.7 ± 0.2	39.2 ± 2.7
Zn	39.35 ± 1.48	39.6 ± 1.6	47.9 ± 0.2	34.3 ± 1.4

NB: \*, valeur informative



**Figure 6.1 :** Comparaison des résultats  $k_0$ -NAA et les valeurs recommandées AIEA-153 et IAEA-155



**Figure 6.2 :** Comparaison des résultats  $k_0$ -NAA et les valeurs du producteur pour M1 et M2

Dans ce cas, la comparaison entre nos résultats avec des valeurs non certifiées n'est pas appropriée. La majorité des valeurs déterminées dans les standards sont en bon accord avec leurs valeurs recommandées correspondantes.

Dans les trois marques de lait analysé, la plupart des valeurs déterminées dans chaque échantillon sont étroites. Les résultats déterminés par  $k_0$ -NAA ont été également comparés aux valeurs de concentration des producteurs voir tableau 6.2. Les éléments Ca, K et Na ont été mentionnés seulement dans les emballages de M1 et de M2. La figure 6.2 montre une bonne concordance entre nos résultats et les valeurs de producteurs. Il est bien de noter que pour les trois marques de lait, leurs compositions élémentaire sont pratiquement similaires entre elles sauf pour l'élément Br qui présente les valeurs de 12.74, 38.9 ,72.73 mg/kg dans M1, M2 et M3 respectivement. Nous constatons également que la concentration du Br dans l'échantillon M1 est semblable au standard du lait en poudre AIEA-153.

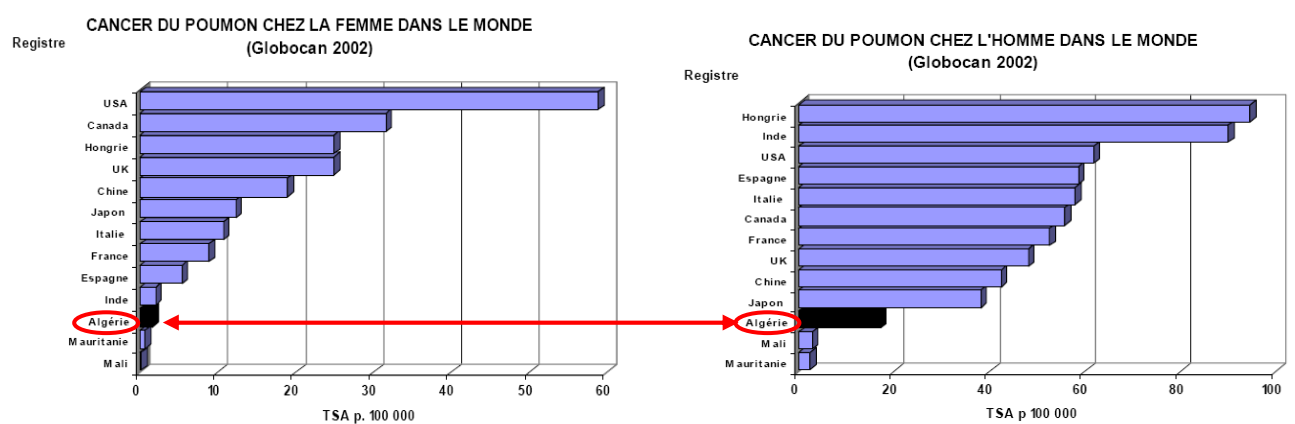
Dans cette étude, nous avons appliqué la méthode  $k_0$ -NAA en utilisant une matrice organique telle que le lait en poudre.

Nous concluons que les marques de lait consommé par la population algérienne ont été analysées par la méthode  $k_0$ -NAA. Les éléments déterminés dans les échantillons de lait Br, Ca, K, Na, Rb et Zn sont comparés avec ceux donnés par les producteurs. Les résultats obtenus concordent parfaitement avec ceux fournis par les producteurs. IL est d'une grande importance d'utiliser les techniques analytiques basées sur l'activation neutronique pour l'étude des produits alimentaires. L'objectif principal est d'avoir des informations au sujet de l'augmentation ou de la diminution des éléments nutritifs dans le corps humain. Cette étude est considérée la première application dans notre laboratoire en utilisant la technique  $k_0$ -NAA. Nous avons présenté ce travail à TANCA-01 au Maroc ainsi publié cette année (2009).<sup>35, 49</sup>

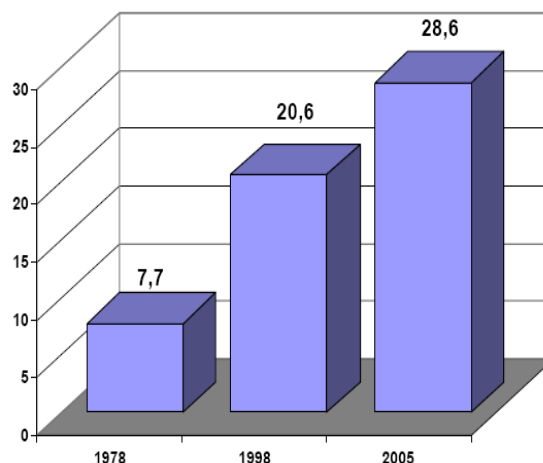
## 6.2. Application dans la santé

### *Analyse des éléments de traces dans les cigarettes de tabac consommées en Algérie*

Les éléments de trace ont un rôle important dans les processus physiologiques dans les organismes vivants. Sans compter que les éléments essentiels, nécessairement exigés pour leur existence et leur croissance appropriée, les plantes peuvent également prendre un certain nombre d'éléments toxiques du sol. Le tabagisme et la mastication du tabac conduisent ensemble un grand nombre de décès chaque année. Ces habitudes sont pratiquées par des personnes de toutes les couches sociales à différents âges dans toutes les populations du monde. La problématique est située dans le taux de mortalité causé par le tabagisme dans le monde et particulièrement en Algérie. D'après le Centre International de Recherche sur le Cancer, le projet GLOBOCAN 2002 estime l'incidence et la provenance et de mortalité de 27 cancers pour tous les pays dans le monde en 2002. L'Algérie occupe la onzième place dans le monde pour le cancer du poumon chez la femme et l'homme voir figure 6.3. Les statistiques indiquent 30 000 nouveaux cas de cancer par an, 20 000 décès par an, 15 000 décès liés au tabac et 4000 décès par cancer du poumon. La figure 6.4 présente l'évaluation de la consommation du tabac en Algérie : augmentation de 50 % entre 1986 à 2000.



**Figure 6.3 :** Cancer du poumon chez la femme et l'homme dans le monde



**Figure 6.4 :** Evaluation de la consommation du tabac en Algérie

Le tabac a été cultivé dans le monde entier pendant des siècles et le tabagisme est devenu très commun dans la société moderne. L'utilisation répandue des cigarettes et d'autres produits de tabac. Le tabac est considéré en tant qu'un des produits les plus importants pour la consommation humaine. Nous savons que la prise de certains oligoéléments ou de leurs composés par les organismes peuvent, dans certaines conditions, atteindre un niveau opposé avec la santé des personnes. Le tabac, si fumé, mâché ou reniflé, contient la nicotine, qui provoque fortement une dépendance, et elle contient plus de 19 carcinogènes et 4000 produits chimiques. Un grand nombre de travaux ont été effectués sur le tabac et la santé durant les dernières années.<sup>42, 46</sup>

Malgré des campagnes contre le tabac, il y a une grande fraction de la population du monde qui persiste avec l'habitude du tabagisme. Le cancer de poumon et d'autres maladies de système respiratoire aucun doute ont un rapport avec le tabagisme. La recherche sur le contenu arsenical du tabac a une longue histoire, alors que plus récemment la prise de cadmium du tabac a été considérablement plus haute pour des fumeurs que non-fumeurs.<sup>36</sup>

Elle est bien connue, presque toute la nicotine est d'abord accumulée dans des racines de tabac et est ensuite transportée aux feuilles. Elle suit une faible production de nicotine corrélée directement avec un petit système de racine. D'une part, le tabac lui-même et sa fumée contiennent beaucoup d'oligoéléments comme F, Si, V, Cr, Mn, Fe, Co, Ni, Cu, I Se, Mo, Sn, Zn et d'autres toxiques. Plusieurs investigations ont montré des effets toxiques sur des processus de la vie de plusieurs des éléments comme As, Be, Cd, Hg, Pb et Ti même aux niveaux très bas.

En raison du transfert possible de certains éléments à partir du tabac au tabac fumé pendant le processus de combustion, et de la formation possible des composés toxiques, cancérigènes, il est souhaitable d'étudier la concentration de divers éléments actuels dans les cigarettes de tabac. Dans ce travail, nous utilisons la méthode  $k_0$ -INAA pour la détermination des éléments toxiques et de traces dans différentes marques de tabac les plus consommées en Algérie.

### 6.2.1 Préparation des échantillons

Le tabac soumis pour l'analyse a été pris de cinq paquets, deux marques de tabac algériens nommées T1 et T2 et trois marques de tabac américains nommées T3, T4 et T5. A cette fin, trois cigarettes ont été aléatoirement choisies des paquets. Les échantillons de tabac extraits à partir de chaque cigarette ont été pesés avant et après le séchage. Tous les échantillons ont été séchés à 104 C° pendant 4 heures selon le guide Eurachem<sup>61</sup> pour évaluer le taux d'humidité. Le tabac de 3 cigarettes a été alors mélangé pour améliorer la homogénéité. Le taux moyen de la masse et d'humidité de tabac est environ 120 - 200 mg et 21 %, respectivement. Un standard de référence a été utilisé pour évaluer la précision des résultats.

### 6.2.2 Irradiation et mesure

Les échantillons de tabac sont pressés dont le but d'obtenir une géométrie uniforme des échantillons. Tout les échantillons, les moniteurs et les standards sont placés dans une fiole cylindrique propres en aluminium pour une longue irradiation. Un alliage Au 0.1%-Al sous forme de fils, de 0.5 mm de diamètre est placé entre deux échantillons (tabac et standard). Ce matériel serre comme un moniteur d'or. Le temps d'irradiation était 4 heures pour un flux neutronique caractérisé par les paramètres  $f = 28.8 \pm 2.0$ ,  $\alpha = 0.027 \pm 0.010.48$

Toutes les mesures ont été exécutées dans un spectromètre de raies gamma en utilisant un détecteur Canberra et un inspecteur 2k. La collection et la déconvolution des spectres sont effectuées à l'aide des logiciels Génie 2k et HyperLab 2005, respectivement.<sup>52, 60</sup>

Les surfaces des pics sont introduites dans notre propre programme en utilisant MS-Excel pour la détermination des concentrations élémentaires.<sup>48</sup>

**Tableau 6.3 :** Données appropriées pour les nuclides utilisés dans k<sub>0</sub>-INAA <sup>18</sup>

Moniteur	Q <sub>0</sub>	Er (eV)	Radionucléide	Demi vie	Energie (keV)	k <sub>0</sub>
As	13.6	106	As 76	26.24 h	559.1 657.1	4,83E-2 (1,6) 6,61E-3
Ba	24.8	69.9	Ba 131	11.50 d	496.3	6,48E-5 (1,4)
Br	19.3	152	Br 82m	35.30 h	554.3 698.08 776.5	2,38E-2 (1,1) 9,38E-3 (0,9) 9,38E-3 (0,8)
Ca	1.3	1	Ca 47	4.536 d	1297.1	9,54E-9 (1,7)
Ce	0.83	7200	Ce 141	32.508 d	145.4	3,66E-3 (0,9)
Co	1.993	136	Co 60	5.2714 y	1173.2 1332.5	1,32 (0,4) 1,32 (0,4)
Cr	0.53	7530	Cr 51	27.7025 d	320.1	2,62E-3 (0,5)
Cs	12.7	9.3	Cs 134	2.0648 y	604.7 795.8	4,76E-1 (2) 4,15E-1 (2)
Eu	0.68	0,4	Eu 152	13.537 y	121.78 344.28 1408.01	12,8 (0,8) 11,9 (0,9) 9,36 (0,6)
Fe	0.975	637	Fe 59	44.5 d	1099.3 1291.6	7,77E-5 (0,4) 5,93E-5 (0,4)
Hf	2.52	115	Hf 181	42.39 d	133 345.9 482.2	2,37E-2 (0,6) 7,93E-3 4,56E-2 (0,9)
K	0.97	2960	K 42	12.360 h	312.76 1524.7	7,46E-4 9,46E-4 (0,6)
La	1.24	76	La 140	40.27 h	487.02 815.8 1596.21	6,37E-2 (0,9) 3,32E-2 (0,6) 1,34 E-1 (1,1)
Na	0.59	3380	Na 24	14.9590 h	1368.6	4,68E-2 (0,6)
Rb	14.8	839	Rb 86	18.631 d	1077	7,65E-4 (1)
Sb	28.8	28.2	Sb 124	60.20 d	1691	1,41E-2 (1,1)
Sc	0.43	5130	S c 46	83.83 d	889.3 1120.5	1,22 (0,4) 1,22 (1,1)
Sm	14.4	8.5	Sm 153	46.50 h	103.2	2,31E-1 (0,4)
Ta	33.3	10.4	Ta 182	114.4 d	1221.4	6,45E-2 (0,8)
Tb	17.9	18.1	Tb 160	72.3 d	879.4	9,42E-2 (0,9)
Th	11.5	54.4	Pa 233	26.967 d	300.1 311.9	4,37E-3 (0,3) 2,52E-2 (0,5)
Zn	1.908	2560	Zn 65	244.26 d	1115.5	5,72E-3 (0,4)
Se	10.8	29.4	Se 75	119.8 d	264.7	7,11E-3 (0,7)
Sr	13.2	469	Sr 85	64.84 d	514	9,15E-5 (0,9)



Il est bien de noter que les échantillons irradiés sont mesurés à la distance référence 17.6 cm pour laquelle les effets des vraies coïncidences sont négligeables. Les échantillons du tabac et standards sont mesurés à différents temps de refroidissement, s'étendant de 4 jours à 4 semaines et le temps de comptage s'étend de 1h - 24 h. Pour toutes les mesures le temps mort est inférieur à 5 % et les coïncidences aléatoires sont négligeables. Les nuclides, les énergies gamma et les facteurs  $k_0$  appropriés utilisés dans l'analyse du tabac sont pris de la littérature. Les données nucléaires utilisées dans cette recherche sont données dans le tableau 6.3.

### 6.2.3 Résultats et discussions

Les concentrations obtenues par la technique  $k_0$ -NAA dans les cinq marques de cigarettes sont présentées dans le tableau 6.4.

Dans cette étude, 24 éléments sont déterminés dans tous les échantillons de tabac algériens et américains. Les résultats rapportés en mg/kg (et en % pour Ca et K). Les valeurs de concentration de As, Ba, Ce, Co, Cs, Eu, Hf, K, La, Sc, Ta, Sm sont approximativement comparables dans toutes les marques. L'élément Se est déterminé seulement dans l'échantillon T1. Dans le tableau 6.5, nous pouvons constater, les concentrations élémentaires mesurées de différentes marques de tabac de cigarettes algérien et américain sont en bon accord avec les valeurs rapportées. Un grand nombre d'articles traitent et étudient le tabac avec de diverses données de tabac de cigarettes dans différents pays tels que la Turquie, l'Iran, le Brésil et le Mexique. Il est intéressant de comparer nos résultats analytiques à ceux obtenus en littérature.<sup>38-41</sup>

En effet, nous remarquons un accord entre nos résultats et la littérature pour la plupart des éléments sauf pour Ba, Cr, Na et Zn ayant des concentrations relativement élevées.

La procédure d'analyse multi élémentaire basée sur la méthode  $k_0$ -NAA développée dans le réacteur Es-Salm permet la détermination de 24 éléments (As, Ba, Br, Ca, Ce, Co, Cr, Cs, Eu, Fe, Hf, K, La, Na, Rb, Sb, Sc, Se, Sm, Sr, Ta, Tb, Th, Zn). Les éléments Al, V, Ti, et Mg peuvent être analysés en utilisant un système pneumatique (destiné pour le dosage des éléments de courtes périodes). La détermination des éléments toxiques et de traces dans les cigarettes de tabac est importante sur le point de vue des études de santé liées au tabagisme et aux aspects de l'absorption des oligoéléments par les plantes. En raison de sa grande sensibilité, la méthode de  $k_0$ -NAA est très appropriée à la détermination des métaux lourds

comme Sb, Se et Zn. L'exactitude des résultats a été vérifiée par l'analyse des standards de référence et une bonne concordance a été obtenue avec les valeurs de la littérature. Les résultats du tabac algérien sont comparés aux analyses du tabac de la Turquie, l'Iran, Mexique et le Brésil.

**Tableau 6.4 :** Valeurs de concentration (mg/kg) obtenues par la méthode  $k_0$ -NAA

Element	code désigné				
	T1	T2	T3	T4	T5
As	4,05 ± 0,16	6,4 ± 0,24	2,16 ± 0,09	2,42 ± 0,09	4,27 ± 0,28
Ba	101,3 ± 5,5	100,3 ± 5,8	112,4 ± 6,5	83,1 ± 4,4	120,0 ± 7,7
Br	136,9 ± 4,6	119,6 ± 3,9	72,9 ± 2,4	54,1 ± 1,7	68,7 ± 2,3
Ca %	3,77 ± 4,55	3,14 ± 0,39	1,50 ± 0,21	2,11 ± 0,26	2,39 ± 0,31
Ce	1,44 ± 0,07	2,6 ± 0,1	1,98 ± 0,11	1,01 ± 0,05	1,81 ± 0,11
Co	0,66 ± 0,02	0,73 ± 0,02	0,81 ± 0,03	0,51 ± 0,02	0,78 ± 0,03
Cr	4,44 ± 0,19	29,3 ± 1,0	2,96 ± 0,20	2,37 ± 0,11	2,80 ± 0,22
Cs	0,25 ± 0,01	0,51 ± 0,02	0,22 ± 0,01	0,191 ± 0,008	0,42 ± 0,02
Eu	0,022 ± 0,002	0,039 ± 0,002	0,023 ± 0,002	0,021 ± 0,001	0,032 ± 0,002
Fe	656 ± 72	823 ± 90	675 ± 74	384 ± 13	664 ± 24
Hf	0,127 ± 0,007	0,224 ± 0,015	0,24 ± 0,02	0,144 ± 0,014	0,143 ± 0,010
K %	3,67 ± 1,79	3,75 ± 0,20	3,7 ± 0,2	2,92 ± 0,14	3,38 ± 0,18
La	0,74 ± 0,04	1,53 ± 0,06	1,50 ± 0,06	1,082 ± 0,043	1,68 ± 0,06
Na	1028 ± 34	804 ± 27	616 ± 20	653 ± 22	575 ± 19
Rb	24 ± 2	36,8 ± 1,4	26,3 ± 1,9	14,33 ± 0,59	25,4 ± 1,6
Sb	0,089 ± 0,014	0,180 ± 0,020	0,036 ± 0,007	0,127 ± 0,015	0,346 ± 0,037
Sc	0,258 ± 0,037	0,362 ± 0,051	0,272 ± 0,008	0,165 ± 0,023	0,264 ± 0,037
Se	0,29 ± 0,04	ND	ND	ND	ND
Sm	0,092 ± 0,004	0,18 ± 0,01	0,142 ± 0,005	0,095 ± 0,004	0,152 ± 0,005
Sr	203,2 ± 7,8	136,88 ± 7,4	101,7 ± 4,7	82,37 ± 3,62	106,80 ± 5,39
Ta	0,021 ± 0,003	0,043 ± 0,006	0,023 ± 0,004	0,029 ± 0,004	0,023 ± 0,004
Tb	0,018 ± 0,004	0,021 ± 0,003	0,014 ± 0,004	0,008 ± 0,002	0,018 ± 0,004
Th	0,159 ± 0,009	0,32 ± 0,02	0,195 ± 0,014	0,153 ± 0,012	0,19 ± 0,02
Zn	68,06 ± 2,11	42,8 ± 1,4	40,24 ± 1,30	27,53 ± 0,89	42,99 ± 1,38

**Tableau 6.5 :** Comparaison entre nos résultats et ceux rapportés dans la littérature

Elément	Algérie (k <sub>0</sub> -NAA)	Turquie <sup>38</sup>	Iran <sup>39</sup>	Mexique <sup>40</sup>	Brésil <sup>41</sup>
As	4.05 – 6.4	1.0	-	< 0.55 – 3.24	-
Ba	100.3 – 101.3	64.6	1.15 ± 0.01	64 – 251	45.8 – 99.7
Br	119.6 – 136.9	59.2	137 ± 2	49 -136	-
Ca %	3.14 – 3.77	-	-	-	-
Ce	1.44 – 2.6	-	1.19 ± 0.02	< 0.3 -1.7	1.2 – 8.3
Co	0.66 – 0.73	0.77	0.21 ± 0.01	0.29 – 0.55	0.70 – 1.2
Cr	4.44 – 29.3	7.1	3.14 ± 0.14	< 0.8 – 2.4	-
Cs	0.25 – 0.51	0.20	0.17 ± 0.02	0.091 – 0.4	-
Eu	0.022 – 0.039	0.034	0.045 ± 0.010	< 0.03	0.036 -0.037
Fe	656.2 – 823.2	1000	649 ± 6	420 – 680	710 – 4100
Hf	0.127 – 0.224	0.15	0.09 ± 0.01	< 0.03 – 0.13	0.15 – 0.87
K %	3.67 – 3.75	2.6	0.220 ± 0.005	1.83 – 4.03	-
La	0.74 – 1.53	1.0	0.62 ± 0.02	< 0.2 – 0.66	1.9 – 4.8
Na	804.2 – 1028	394	347 ± 18	309 – 566	-
Rb	24.0 - 36.8	17.7	22.6 ± 3.6	19 – 50	30.3 – 45.0
Sb	0.089 – 0.180	0.10	0.68 ± 0.03	< 0.7	0.079 – 0.47
Sc	0.258 – 0.362	0.35	0.43 ± 0.03	0.13 – 0.22	0.23 – 1.50
Se	0.29	0.18	-	< 0.7	-
Sm	0.092 – 0.180	-	0.88 ± 0.01	0.07 – 0.14	0.24 – 0.60
Sr	136.88 – 203.20	-	-	227 – 472	-
Ta	0.021 – 0.043	-	-	-	-
Tb	0.018 – 0.021	-	0.034 ± 0.002	-	-
Th	0.159 – 0.320	0.32	0.177 ± 0.010	< 0.1 – 0.17	0.34 – 4.00
Zn	42.80 – 68.06	35	12.6 ± 0.4	14 - 56	-

Nous concluons que la méthode possède des avantages considérables pour l'analyse multi élémentaire due au grand nombre d'éléments qui peuvent être déterminés en une seule irradiation. En outre, la méthode est plus flexible car elle est non destructive et n'exige pas l'utilisation des standards.

### 6.3. Application dans la minéralogie

#### *Analyse d'un minerai de Fer situé au nord est algérien*

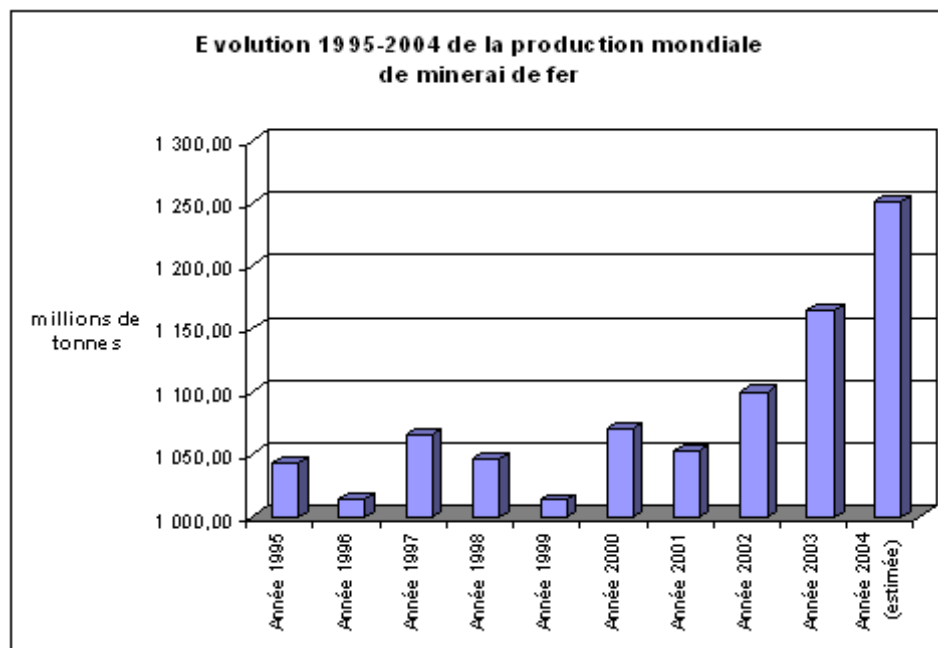
Dans la plupart des pays industriels, le métal le plus utilisé est le fer et ses alliages (fonte et acier), car son importance technique est justifiée par les statistiques de la production comme le montre la figure 6.5.

L'Algérie possède un éventail de ressources qui ne sont pas entièrement exploités. L'essentiel du potentiel géologique se trouve au Sud-Ouest du pays avec 3.5 milliards de tonnes de Fe 57 %. Il s'agit des gisements de Mecheri Abdelaziz et de Gara Djébil, situés à 250 km à l'Est de Tindouf. Le potentiel localisé au nord du pays est évalué à environ 70 millions de tonnes réparties entre les gisements de Ouenza et Boukhadra (60 millions de tonnes) et l'indice de Djebel Hanini – Sétif (12 millions de tonnes).

Parmi les sites de gisement de fer situés au nord algérien, on trouve la mine de Anini. Ce gisement découvert au 19<sup>ième</sup> siècle (en 1878 par l'ingénieur français Tissot) est situé à Ain Roua à 35 Km au Nord Ouest de la ville de Sétif. Les réserves sont estimées à 3 millions de tonnes en fer, intéresse divers secteurs industriels comme : Les cimenteries, l'industrie de la peinture et les forages pétroliers.

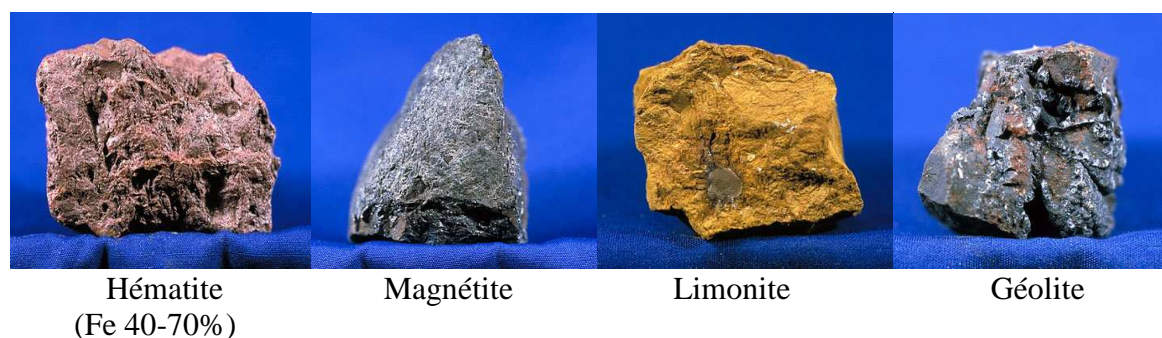
**FERPHOS** est considérée l'une des unités stratégiques de business pour la production de minerai de fer, de l'hématite dense et d'oxyde de Fer. La teneur en fer dans ce gisement est estimée supérieure à 60 %.

Le gisement de Anini est caractérisé par la présence des roches du crétacé et du Quaternaire; il est associé au flanc Sud d'un anticlinal en dômes représenté par le faciès du Cénomaniens et Turonien, qui constitue un autochtone relatif entouré des formations de la nappe de Djemila. L'assise des calcaires crétacés est constituée de faisceaux de calcaires péliomorphes, localement recristallisés, alternant avec des calcaires bioclimatiques, d'épaisseur supérieure à 10 m. Le processus de production du minerai de fer est le suivant : foration, abattage, chargement, transport et concassage. Dans le présent travail, nous avons déterminé les éléments majeurs, mineurs et de traces du minerai de fer prélevé de la mine de Anini.



(Sources : Mining Journal, annual review ; Raw Material Data)

**Figure 6.5 :** Production mondiale de minerai de fer



**Figure 6.6 :** Différents types de minerai de Fer

Nous présentons ici les caractéristiques du fer et du minerai de et son utilisation dans différents domaines. La figure 6.6 présente quatre types du minerai de fer comme l'Hématite dont la concentration du fer est dans l'intervalle 40-70%. Les autres types sont la magnétite, la Limonite et la Géolite.

Environ 98 % du minerai de fer sont utilisés pour faire l'acier, tandis que les autres utilisations du minerai de fer et du fer sont seulement une très petite quantité consommation. Ils fournissent d'excellents exemples de l'ingéniosité et la multitude d'utilisations que l'homme peut créer de nos ressources naturelles. Fer en poudre : utilisé dans les produits de métallurgie, aimants, cœurs de haute fréquence, pièces auto, catalyseur. Le fer radioactif  $^{59}\text{Fe}$

dans la médecine (médicament) serre comme élément traceur dans la recherche biochimique et la métallurgique. Le fer bleu dans des peintures, imprimant des encres, des plastiques, la cosmétique (le fard à paupières), des couleurs d'artiste, la blanchisserie bleue, de papier teignant, l'ingrédient d'engrais, l'émail cuit finit pour des autos et des appareils, des fins industrielles. L'oxyde de fer noir: comme pigment, dans polissage de composés, métallurgie, médecine (médicament), encres magnétiques, dans ferrites pour l'industrie électronique. Les plus importants producteurs au monde sont l'Autriche, Brésil, Chine, Russie et l'Inde.

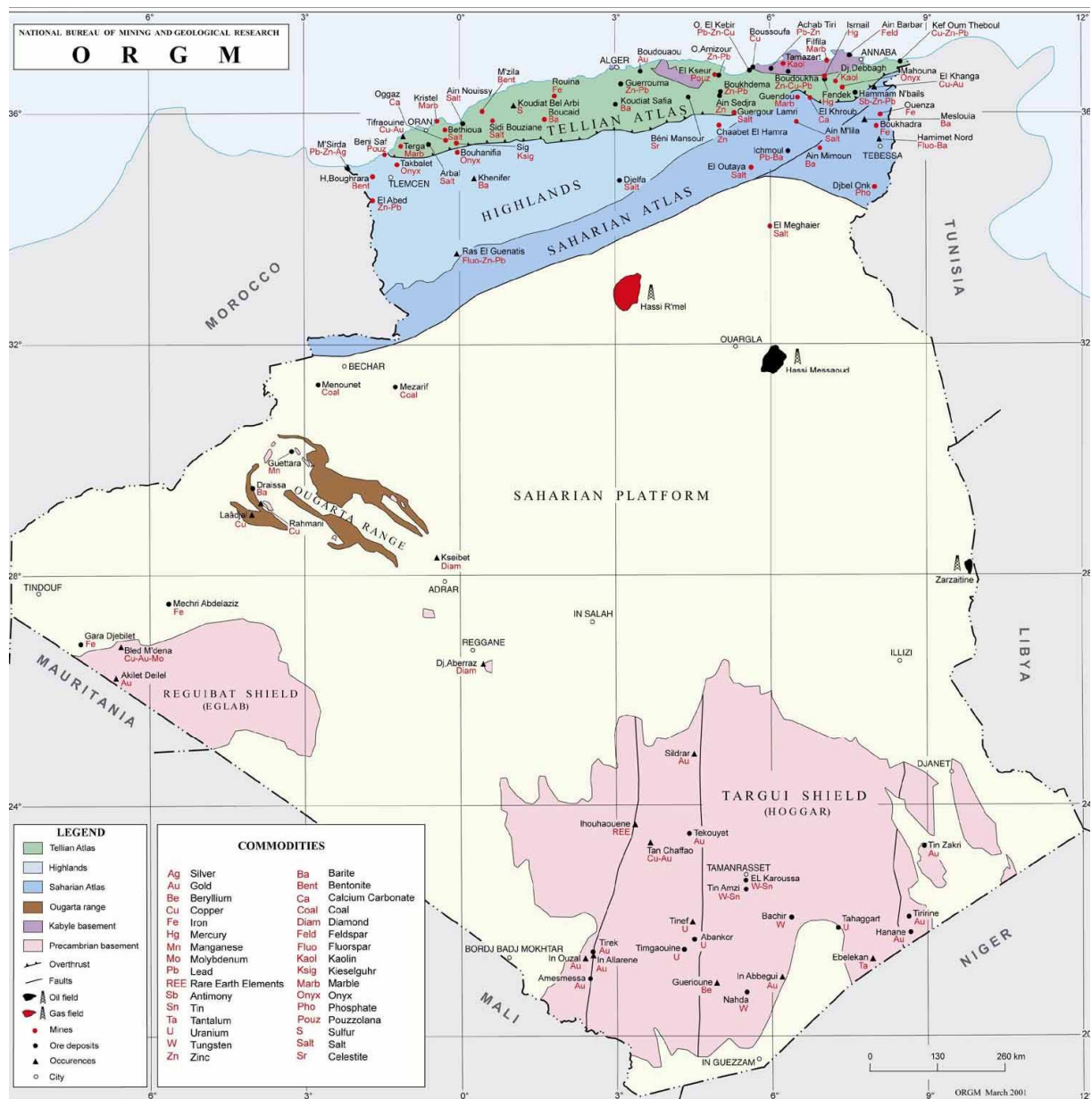


Figure 6.7 : Cartographie du potentiel géologique en Algérie.

### 6.3.1 Préparation et échantillonnage

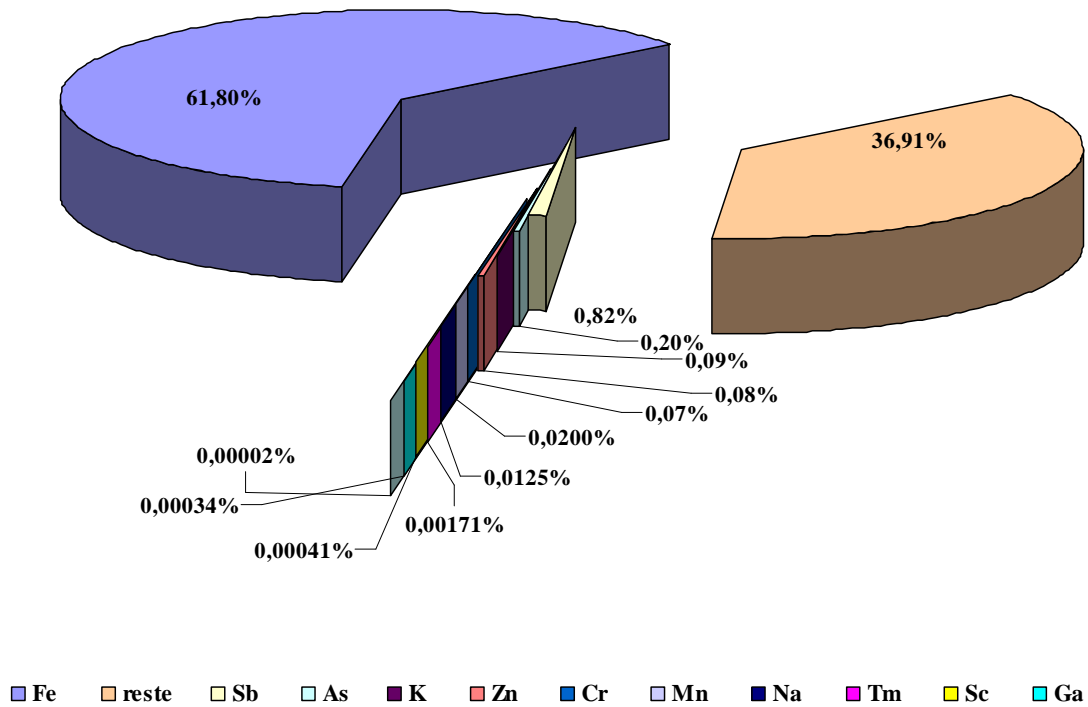
Les échantillons de minerai de fer ont été prélevés de la mine de Anini de la région de Ain Roua. Une de 800 mg a été broyée, tamisée et homogénéisée. Un ensemble d'échantillons de masse moyenne 150 mg ont été soigneusement pesés à l'aide d'une micro balance de grande précision (0.01 mg). Le conditionnement des échantillons, des standards et des moniteurs d'Au est effectué dans des enveloppes en aluminium de haute pureté. Les standards AIEA (Soil-7 et SI-1) utilisés dans cette expérience sont de matrice géologique similaire à la matière étudiée (minerai de fer). Les résultats des standards analysés sont présentés dans la partie validation.

### 6.3.2 Irradiation et mesure

Tous les échantillons de minerai de fer, les moniteurs et les standards sont irradiés pendant deux heures dans un flux de  $4.10^{12}$  n/cm<sup>2</sup>.s. Après 8 jours de refroidissement, les échantillons irradiés sont transférés dans des capsules en polyéthylène pour des mesures par spectrométrie gamma. Le rayonnement émis par les échantillons irradiés est mesuré par le détecteur Ge(HP) ainsi le calcul de concentration est effectué par notre programme.

### 6.3.3 Résultats et discussions

A travers notre étude, nous avons déterminé les éléments majeurs, mineurs et de traces par la méthode d'analyse  $k_0$ -INAA. La figure 6.2 illustre la composition élémentaire du minerai de fer étudié. D'après cette figure, le fer est l'élément dominant dans cette matrice dont sa quantité est 61.8 %. Ce résultat est très satisfaisant en comparant avec la valeur donnée par le producteur FERPHOS. Egalement, Sb et As sont aussi des éléments majeurs de concentration 0.82% et 0.2%, respectivement. Les éléments mineurs et de traces sont Eu, Ga, K, Sc, Tm, Mn, Cr, Na et Zn avec des concentrations allant de 950 à 0.17 ppm.



**Figure 6.8 :** Composition élémentaire du minerai de fer de Aini

La répartition chimique et la couleur rouge vif de ce minerai indiquent que c'est de l'hématite. Cette roche possède une dureté qui peut aller de 5,5 à 6,5. C'est la forme de roche la plus répandue à la surface de la terre et la plus employée dans l'industrie.



## Conclusion et perspectives

L'analyse par activation neutronique (AAN) est une technique compétitive, elle nous permet donc d'analyser - avec précision - simultanément un grand nombre d'élément. Depuis plusieurs années, notre laboratoire utilise la méthode relative qui nécessite l'emploi des standards de référence. Cette obligation est considérée comme un désavantage, puisque ces standards sont chers et ne sont pas toujours disponibles. En plus, la détermination des éléments est conditionnée par les éléments existants dans le standard, alors que d'autres éléments (pics) présentés dans le spectre gamma de l'échantillon irradié ne peuvent être dosés à cause de l'absence de ces pics dans le standard. Pour toutes ces raisons, nous avons opté pour implémenter la méthode  $k_0$ -NAA. En effet, cette méthode n'exige pas l'utilisation des standards et elle permet le dosage de tous les pics existants dans le spectre. Les paramètres  $\alpha$ ,  $f$  et  $Q_0(\alpha)$  liés à la méthode  $k_0$ -NAA, sont déterminés expérimentalement dans le réacteur Es-Salam, en plus la détermination de la courbe l'efficacité de détection  $\epsilon_p$  du détecteur Ge(HP), en utilisant un ensemble de sources gamma de calibration.

Après la détermination des paramètres, nous avons validé les résultats obtenus par les standards de référence. La comparaison entre les valeurs des concentrations certifiées et celles calculées par  $k_0$ -NAA montre une grande concordance. Cependant, nous estimons sur la base de l'évaluation des résultats obtenus, que l'implémentation de la méthode de standardisation est fiable (donne des résultats acceptables) et disponible pour des applications pratiques. L'exactitude et la précision des résultats sont des pré requis pour les utilisateurs  $k_0$ . Notre étude a pour but, la mise en place d'une nouvelle technique de haute qualité au sein du laboratoire NAA du centre de recherche nucléaire de Birine. En plus de la méthode relative qui existait depuis 1993, la méthode  $k_0$ -NAA est actuellement appliquée dans notre laboratoire. Nous avons eu l'opportunité de participer dans le cadre du projet AFRA IV-12 portant sur le thème : "Les études liées à la nutrition et la santé en utilisant les réacteurs de recherche" au test de compétence inter laboratoire des pays africains, sous l'égide de l'agence internationale à l'énergie atomique (AIEA).

L'Algérie à participer par ces deux techniques d'analyse INAA et  $k_0$ -NAA, comme étant deux laboratoires indépendants. Ce travail concerne l'analyse des éléments essentiels et toxiques dans cinq échantillons inconnus (denrées alimentaires, plantes médicinales et bio-moniteurs aquatiques). Nous avons présenté nos résultats d'analyse obtenus par la technique  $k_0$ -NAA en présence des experts de l'AIEA lors du premier meeting au Maroc. L'évaluation des résultats est très satisfaisante et honorable surtout que cette validation est considérée comme étant la première dans son genre pour notre technique. Mes travaux réalisés sont publiés dans des revues internationales et présentés dans des manifestations scientifiques internationales.

Dans le cadre de notre projet inscrit pour la période 2008-2009 au niveau du CRNB et avec la contribution des membres du groupe nous avons réalisé un certain nombre de travaux liés à la mise en place de deux logiciels HyperLab et Kayzero Win. L'installation des deux logiciels a été effectuée avec succès et leur utilisation est maîtrisée.

La caractérisation du spectre neutronique dans plusieurs canaux d'irradiation (déjà caractérisés expérimentalement pour la méthode  $k_0$ ) par simulation avec le code MNCP-5. Cette étude a permis la comparaison des résultats expérimentaux et ceux obtenus par simulation. Les résultats sont très satisfaisants. Dans la partie application, nous visons les domaines de la santé et la minéralogie.

Le premier concerne l'étude des pathologies cancéreuses (cancer du poumon). Cette étude est basée sur le dosage des éléments de trace dans les cheveux et les ongles des personnes saines et les sujets atteints par le cancer du poumon. Ce travail est en cours de réalisation en collaboration avec le professeur A. Djemaa chef de service Onco-Radiothérapie du CHU Constantine. Il est bien de noter, que ce travail demande des moyens matériels importants surtout pour la préparation des échantillons. En plus, cette étude est basée sur les statistiques en termes de sexe (homme ou femme) age (enfant, adulte et âgé).

Dans le domaine de la minéralogie, nous travaillons en collaboration avec l'ENOR l'Entreprise d'Exploitation des mines d'Or. L'activation neutronique est très sollicitée dans le domaine de la géologie en particulier l'exploration minière.

Espérant dans le futur proche participer aux campagnes de certification des standards à l'échelle internationale et aussi aux tests de compétence inter laboratoire.

Ce travail est d'une grande importance sur le plan analytique d'une part afin d'améliorer la qualité des résultats. D'une autre part pour la préparation de notre laboratoire dans l'implémentation du système qualité défini par la norme ISO 17025 : 2005 nous ouvrira des horizons pour se mettre en accordance avec les orientations dictées par ces normes. Les conséquences ne pourront qu'être bénéfiques à notre laboratoire, par l'instauration d'une méthodologie adéquate englobant les procédures, documentation, la traçabilité des résultats. Tout cela contribuera dans l'adéquation des méthodes appliquées avec les normes en vigueur.

## Références

1. F De Corte, the  $k_0$  Standardization Method: a Move to the Optimization of NAA, Aggregate thesis (1987), University Gent.
2. F De Corte, S Van Lierde, J. Radioanal. Nucl. Chem., 248, N°1 (2001) 103-107.
3. AIEA Technical Reports Series, Neutron fluence measurements N°107 (1970).
4. I bugassa, S Sarmani, S Samat, Applied Radiation and isotopes, 50 (1999) 989-994.
5. I Abugassa, S Sarmani, S Samat. J. Fiz. Mal. 17, (1996) 77-79.
6. F De Corte, S El Hammami, L Moents, A Simonits, A De Wispeleare, J Hoste, J. Radioanal. Nucl. Chem., 62, N°1-2 (1981) 209-255.
7. F De Corte, A Simonits, A De Wispeleare, A Elek, J. Radioanal. Nucl. Chem. 133, N°1 (1989) 3-41.
8. F De Corte, M Carmo Freits, J. Radioanal. Nucl. Chem. 160, N°1 (1992) 253-267.
9. F De Corte, F Bellemans, P De Neve, A Simonits, J. Radioanal. Nucl. Chem., 179, N°1 (1994) 93-103.
10. F De Corte, A Simonits, Vade Mecum for  $k_0$ -users published by DSM Research, Geleen (NL) R94/11492, December 1994.
11. O Diaz Rizo, E Herrera Peraza, M C Lopez reyes, I Alrez Pello, M V Manso Guevara, M Ixquiac Cabrera, J. Radioanal. Nucl. Chem., 220, N°1 (1997) 95-97.
12. Dung Ho Manh et Sasajima Fumio, J. Radioanal. Nucl. Chem., 257, N°3, (2003) 509-512.
13. H Manh Dung, D Yeon Cho, J. Radioanal. Nucl. Chem, 257, N°3 (2003) 573-575.
14. H Manh Dung, D Hien Phan, J. Radioanal. Nucl. Chem., 257, N°3 (2003) 643-647.
15. M Eguskiza, P Robouch, Watjen, F De Corte, J. Radioanal. Nucl. Chem., 257, N°3 (2003) 669-676.
16. M C Freitas et Al, J. Radioanal. Nucl. Chem., 257, N°3 (2003) 621-625
17. S M Hossain, F De Corte, D Vandenberghe, P Van den Haute, J. Radioanal. Nucl. Chem., 257, N°3 (2003) 639-642.
18. R Jacimovic, Aggregate thesis : Analyse Uporabe dans le réacteur TRIGA MARK II par la Méthode  $k_0$ -NAA, 2003 Université Ljubljana.
19. R Jacimovic, M Horvat, J. Radioanal. Nucl. Chem. 259, N°3 (2004) 385-390.

20. Z Jeran, R Jacimovic, U Sansone, M Belli, J. Radioanal. Nucl. Chem, 257, N°3, (2003) 633-637.
21. S Jovanovic, B Smodis, R Jacimovic, P Vucotic, P Stegnar, Vestn. Slov. Kem. Drus 35, N°4 (1988) 409-424.
22. KAYZERO LIBRARY, Version 4.0
23. G Kennedy, J St-Pierre, J. Radioanal. Nucl. Chem, 257, N°3 (2003)501-508.
24. V Kolotov, F De Corte, J. Radioanal. Nucl. Chem., 257, N°3 (2003) 475-480.
25. Lin Xilei, R Henkelmann, J. Radioanal. Nucl. Chem., 257, N°3, (2003) 615-620.
26. M A Menezes, C Sabino, A M Amaral, M Pereira, J. Radioanal. Nucl. Chem., 245, N°1 (2000) 173-178.
27. M A Menezes, C Sabino, M B Franco, G F Kastner, R Montoya, J. Radioanal. Nucl. Chem., 257, N°3 (2003) 627-632.
28. L Moens, J De Donder, Lin Xilei, F De Corte F, A De Wispelaere, A Simonits, J Hoste, Nucl. Instr. Methods, 187, (1981) 451-472.
29. B J B Nyarko, E H K Akaho, Y Serfor-Armah, J. Radioanal. Nucl. Chem. 257, N°2 (2003) 361-366.
30. Panayi, Spyrou N M, Part P, J. Radioanal. Nucl. Chem. 249, N°.2, (2001) 437-441.
31. Révay Zs, Molnar G L, Belgya T, Kasztovszky Zs, J. Radioanal. Nucl. Chem. 257, N° 3, (2003) 561-564.
32. S Sarmani, I Abugassa, A Hamzah, J. Radioanal. Nucl. Chem. 234, (1998) 17-20.
33. A Simonits, L Moens, F De Corte, A De Wispelaere, A Elek, J Hoste, J. Radioanal. Nucl. Chem. 60 (1980) 461-516.
34. L Alghem, M Ramdhane, S Khaled, T Akhal., Nucl. Instr. and methods., 556 (2006) 386–390
35. L Alghem Hamidatou, S Khaled, B Zouranen, M Mouzai, A Ararem, International workshop on analytical techniques, nuclear and conventional, and their applications (TANCA-01), 8-9 December 2006, Rabat, Morocco.
36. M Dernelj, V Ravnik, A R Byrne, Vakselj, Microchimika Acta [Wien] 1978 I, 261- 270
37. L Alghem Hamidatou, Internacional conference on Modern Trends on Activation Analysis (MTAA-12), 16-22 September 2007, Tokyo, Japan.
38. M C Gülovali, G Gunduz, J. Radioanal. Chem., 78 (1983) 189-198.
39. Z Abedinzadeh, M Razechi, B Parsa, J. Radioanal. Chem. 35 (1977) 373-379.

40. H R Vega-Carrillo, F Y Iskander, E Manzanres-Acuna, J. Radioanal. Nucl. Chem. Lett. 200 (1995)137-145.
41. C S Munita, B P Mazzillil, J. Radioanal. Nucl. Chem. Lett. 108 (1986) 217-227.
42. L Giordani, E Rizzio, A Brandone, J. Radioanal. Nucl. Chem, Vol 263, N° 3 (2005) 739-744.
43. R Dybczynski, H Olkowsha-Motrenko, Z Samczynski, Z Szopa., Fresenius J Anal Chem (1998) 360: 384-387
44. I Othman, O A Aknale, S J Ramsbosttom, N M Spyrou, J. Radioanal. Chem. 195 N° 1 (1995) 195-202.
45. Z Abedinzadeh, B Parsa, J Radioanal. Chem. 14 (1973) 139-145.
46. B Smodis, M Dermelj, R Jacimovic, J. Radioanal. Chem. 190, N°1 (1995) 3-11.
47. J H Zaidi, I Fatima, M Arif, I H Querschi, J. Radioanal. Nucl. Chem. 267 (2006) 109.
48. L A Hamidatou, M Ramdhane., J. Radioanal. Nucl. Chem. Vol. 278, No.3 (2008) 627–630.
49. L A Hamidatou, S Khaled, M Mouzai, B Zouranen, A Ararem, A Alghem, M Ramdhane, Journal of Physical and Chemical News 45 (2009) 44-47.
50. F De Corte, A Simonits, J Hoste, J. Radioanal. Nucl. Chem. 113, (1987) 145.
51. A Simonits, F De Corte, L Moens, J Hoste, J. Radioanal. Nucl. Chem. 72 (1982) 209.
52. Logiciel Genie 2K, Version 2, CANBERRA Industries 2000.
53. Logiciel Kayzero for Windows
54. V P Kolotov, F De Corte, Pure Appl.Chem., Vo76, N°10 (2004) 1921.
55. R Van Sluijs, D Bossus, J Swagten, A De Wispelaere, F De Corte, Seventh International Conference on Methods and Applications of Radioanalytical Chemistry-MARC VI, KAILUA-KONA, HAWAII, USA, April 3-7, 2006.
56. Manuel d'utilisation du détecteur Canberra Ge(HP) b96125
57. Manuel d'utilisation du détecteur Canberra Ge(HP) GC3520
58. S Bensaada, Thèse doctorat 2005, l'université El-Hadj lakhdar Batna.
59. FERPHOS, Unité stratégique de business, Mine de Anini.
60. HyperLab 2005 System, Installation and Quick Start Guides, HyperLabs Software, Budapest, Hungary (2005).
61. EURACHEM/CITAM guide: Quantifying uncertainty in analytical measurement 2° edition Quam : 2000.P1.

62. ISO/IEC 17025, general requirements for the competence of testing and calibration laboratories, Geneva, Switzerland (2005).
63. Mining Journal, annual review; Raw Material Data, Extrait de la revue ECOMINE, par J. M. Eberlé, BRGM, février 2005.
64. L. Alghem Hamidatou, S. Khaled, B. Zouranen, Meeting on the first results inter-laboratory Comptency Test AFRA IV-12 project, RAF4/020, 14-18 July 2008; Kenitra, Morocco.
65. Rapport scientifique : Caractérisation des Faisceaux neutroniques du réacteur Es-Salam, 1996.
66. Rapport de caractérisation des canaux expérimentaux 1993.
67. P.Vermaercke, P. Robouch, M. Eguskiza, F. De Corte, G. Kennedy, B. Smodis, R. Jacimovic , C. Yonezawa, H. Matsue, X. Ling, M. Blaauw, J. Kucera, Journal of Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, A 564, (2006) 675–682.
68. M. Eguskiza, P.Robouch, U.Watjen, F.De Corte Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 257 (2003) 669-676.
69. J. Kucera, M.Eguskiza, F.De Corte, P.Robouch, Journal of Radio analytical and Nuclear Chemistry. 257 (2003) 677-682.
70. P Vermaercke, P Robouch, L Sneyers, F De Corte, Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 276 (2008) 235-241.
71. Certificate of analysis SMELS, assigned values, 1.10.2007.

## Annexe

### Articles publiés / en cours de publication

1. L. Alghem, M. Ramdhane, S. Khaled, T. Akhal, The development and application of  $k_0$ -standardization method of neutron activation analysis at Es-Salam research reactor. *Journal of Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A* **556** (2006) **386–390**.
2. L. A. Hamidatou, M. Ramdhane. Characterization of neutron spectrum at Es-Salam Research Reactor using Høgdahl convention and Westcott formalism for the  $k_0$ -based neutron activation analysis., *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, **Vol. 278, No.3** (2008) **627–630**.
3. L A Hamidatou, S Khaled, M Mouzai, B Zouranen, A Ararem, A Alghem, M Ramdhane. Instrumental neutron activation analysis of milk samples using  $k_0$ -standardization method at Es-Salam research reactor. *Journal of Physical and Chemical News* **45** (2009) **44-47**.
4. L A Hamidatou, S. Khaled, T. Akhal, M. Ramdhane., Determination of trace elements in cigarette tobacco with the  $k_0$ -based NAA using Es-Salam research Reactor. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, **Vol. 281** (2009) **535-540**.

### Conférences internationales

1. L. Alghem Hamidatou, S. Khaled, B. Zouranen, M. Mouzai, A. Ararem., International workshop on analytical techniques, nuclear and conventional, and their applications (TANCA-01), **8-9 December 2006, Rabat, Morocco**. Oral presentation: Instrumental neutron activation analysis of Milk samples using the  $k_0$ -standardization method at Es-Salam research reactor.
2. L. Alghem Hamidatou, M. Ramdhane, International conference on Modern Trends on Activation Analysis (MTAA-12), **16-22 September 2007, Tokyo, Japan**. Oral présentation: Characterization of neutron spectrum at Es-Salam Research Reactor using Høgdahl convention and Westcott formalism for the  $k_0$ -based Neutron Activation Analysis.



3. L. Alghem Hamidatou, S. Khaled, T. Akhal, M. Ramdhane, 9<sup>th</sup> International Conference on Nuclear and Analytical Methods in the Life Sciences (**NAMLS-9**), **7-12 september 2008, Lisbon, Portugal** .Oral presentation: Determination of trace elements in cigarette tobacco using  $k_0$ -based and relative NAA methods using Es-Salam research reactor.
4. L. Alghem Hamidatou, S. Khaled, B. Zouranen, Meeting on the first results inter-laboratory Comptency Test AFRA IV-12 project, RAF4/020, 14-18 July 2008; Kenitra, Morocco.

### Récompenses et prix internationaux

J'ai reçu le prix du jeune scientifique (**Young scientist Award appreciation**) durant ma participation à la 9<sup>ième</sup> Conférence internationale sur les méthodes nucléaires et analytiques dans les sciences de la vie (**NAMLS-9**), **7-12 Septembre 2008, Lisbonne, Portugal**.

Le prix est publié dans le site Web : [http://www.namls9.itn.pt/general\\_information.htm](http://www.namls9.itn.pt/general_information.htm)

**Superviseur : Projet de développement de la technique d'analyse  $k_0$ -NAA  
Au sein du réacteur Es-salam**

Mise au point de la méthode  $k_0$ -NAA en utilisant la convention de HØGDAHL et le formalisme de WESTCOTT et son application dans les domaines de la santé, l'environnement et le bio-monitoring (**2008-2009**).