N^0 d'ordre : 15/2007-D/PH

REPUBLIQUE ALGERIENNE DEMOCRATIQUE ET POPULAIRE
MINISTERE DE L'ENSEIGNEMENT SUPERIEUR ET DE LA RECHERCHE SCIENTIFIQUE
Université des Sciences et de la Technologie Houari Boumediènne

Faculté de Physique



THESE

Présentée pour l'Obtention du diplôme de DOCTORAT
en PHYSIQUE

Spécialité: Sciences Nucléaires

par Rachid Khelifi

Optimisation de l'Analyse par Gamma Prompts d'échantillons en masse au moyen d'une source de neutrons $^{241}Am - Be$ et par simulation avec le code MCNP

Soutenue publiquement le 06 - 12- 2007 devant le Jury composé de:

Mme M. ALLAB	Professeur USTHB	Présidente
Mr A. AMOKRANE	Professeur USTHB	Directeur de thèse
Mr M. BELGAID	Professeur USTHB	Examinateur
Mr M. BENTAIBA	Professeur U. Blida	Examinateur
Mme N. ALIOUI	M. C. USTHB	Examinatrice
Mr S. TOBBECHE	M. C. U. Batna	Examinateur

Remerciements

Je tiens à exprimer mes vifs remerciements à Madame M. ALLAB, professeur à l'USTHB d'avoir accepté d'être présidente du jury de thèse.

J'exprime mes remerciements à mon Directeur de thèse Monsieur A. Amokrane, professeur à l'USTHB qui m'a accueilli au sein de son équipe de Microanalyse et Interaction Rayonnements Matière et encadré tout au long de mon travail.

Je remercie Mme N. ALIOUI-BENDJABALLAH, Maître de Conférence à l'USTHB, Mr S. TOBBECHE, Maître de Conférence à l'Université de Batna, Mr M. BENTAIBA, professeur à l'Université de Blida et Mr M. BELGAID, professeur à l'USTHB, qui ont accepté de rapporter et de juger cette thèse.

Je tiens également à remercier tous les membres du groupe Analyse par Activation Neutronique au CRNA (COMENA) qui ont contribué de près ou de loin à l'élaboration de ce travail, tout particulièrement S. BEDDEK, S.A. BOUKANDOURA et L. Omari.

Enfin, je voudrais remercier ma famille qui m'a encouragé dans la poursuite de mon travail de thèse.

A la mémoire de mon père
et de mon frère Lounes.

Table des matières

Introduction **1**

1 Rappels théoriques sur l'interaction rayonnement-matière **5**
1.1 Introduction 5
1.2 Interaction des rayonnements électromagnétiques avec la matière . 5
1.2.1 Effet photoélectrique 6
1.2.2 Effet Compton 7
1.2.3 Création de paires 8
1.2.4 Coefficients d'atténuation d'un faisceau de photons 8
1.3 Interaction des neutrons avec la matière 10
1.3.1 Propriétés des neutrons 10
1.3.2 Différents types de réactions induites par les neutrons . . . 11
1.3.3 Corrections dûes à l'atténuation des rayons gamma et à la perturbation du flux de neutrons à l'interieur d'échantillons volumineux 15

2 Dispositif experimental **21**
2.1 Introduction 21
2.1.1 Avantages de l'utilisation des échantillons en masse 21
2.1.2 Echantillon de forme irrégulière 23
2.2 Sources de neutrons 24
2.2.1 Source isotopique de neutrons 24
2.2.2 Générateur de neutrons 25
2.2.3 Réacteurs 26
2.3 Dispositif experimental en PGNAA associé à une source $^{241}Am - Be$ 27
2.3.1 système d'irradiation 27

2.3.2 Détecteur GeHP 28
2.3.3 Chaîne de détection gamma 32
2.3.4 Mesure de l'efficacité du détecteur 32
2.4 Mesures expérimentales par la PGNAA 34
2.4.1 Taux de réaction 34
2.4.2 Détection des gammas prompts 35
2.4.3 Détermination de la concentration des éléments dans l'échantillon analysé 38
2.5 Limites de Détection 39

3 Code Monte Carlo et simulation numérique 41
3.1 Intoduction au code Monte Carlo 41
3.2 Principe de la méthode Monte Carlo 42
3.2.1 Variables aléatoires 43
3.2.2 Fonctionnement du code MCNP 45
3.2.3 Les besoins du code MCNP 46
3.2.4 Remarque 47
3.3 Code Mc-Gamma 48

4 Applications de la PGNAA aux échantillons volumineux 53
4.1 Détermination du flux de neutrons dans un échantillon 54
4.1.1 Introduction 54
4.1.2 Source $^{241}Am - Be$ 55
4.1.3 Détermination du flux de neutrons $\phi(E)$ à partir du spectre 57
4.1.4 Exemples d'application du code CITATION 58
4.1.5 Dispositif d'irradiation utilisé 58
4.1.6 Calcul de la distribution du flux 59
4.1.7 Mesure du flux thermique 61
4.1.8 Résultats 63
4.1.9 Conclusion 64
4.2 Limite de détection des polluants dans l'eau 65
4.2.1 Introduction 65
4.2.2 Simulation par Monte Carlo 65
4.2.3 Résultats et discussion 66
4.2.4 Conclusion 70

4.3 Salinité de l'eau 72
4.3.1 Introduction 72
4.3.2 Simulation du dispositif experimental de la PGNAA par le code MCNP 72
4.3.3 Résultats et discussion 74
4.3.4 Conclusion 79
4.4 Détermination du Cadmium dans un échantillon d'eau 80
4.4.1 Introduction 80
4.4.2 Calcul de concentration 80
4.4.3 Calibration et calcul préléminaire au dosage du Cadmium . 83
4.4.4 Résultats et discussion 84
4.4.5 Détermination de la concentration du cadmium dans l'échantillon 86
4.5 Contrôle de la qualité du ciment au moyen d'une source de neutrons 89
4.5.1 Introduction 89
4.5.2 Procédure experimentale 89
4.5.3 Résultats et discussion 91
4.5.4 Conclusion 96

Conclusion générale **97**

Références **105**

Annexes **106**

Table des figures

1.1 Principaux processus d'interaction photon- matière 6
1.2 Section efficaces d'absorption massique, respectivement de l'eau et du plomb [1] 9
1.3 Schéma de voies de sortie possibles des réactions neutroniques . . 12
1.4 Schéma de la réaction de capture radiative (n, γ) 14
1.5 Schéma du signal de surface A d'un pic d'énergie E_γ 15

2.1 Résidu d'usine d'incinération 22
2.2 Exemple d'échantillon voumineux 23
2.3 Spectres des sources de neutrons $^9Be(\alpha$,n)[2] 26
2.4 Dispositif d'irradiation et mesure par gamma prompts des polluants dans l'eau 27
2.5 Spectre gamma prompt avec un detecteur GeHP 30
2.6 Spectre gamma prompt avec un detecteur NaI(Tl) 31
2.7 Schéma d'un détecteur GeHP de rayonnements gamma (Ortec) . . 31
2.8 Schéma du dispositif de spectrometrie γ 32
2.9 Efficacité du detecteur en fonction de l'énergie 33
2.10 Capture radiative d'un neutron par un noyau cible 35

3.1 Exemple d'application de la méthode Monte Carlo 43
3.2 Historique et traçabilité d'une particule dans un milieu ralentisseur 44
3.3 Dispositif expérimental de l'analyse par gamma prompts, 0 est la source $^{241}AmBe$, 1 est l'échantillon, 2 est le Plexiglas, 3 est l'air, 4 est le détecteur GeHP, 5 est du polyéthylène, 6 est le composé $^6LiCO_3$, 7 est le collimateur et 8 est la paraffine 48

3.4 Schéma de production d'un point d'émission et d'une direction d'incidence 49

4.1 Spectre énergetique de la source d' $^{241}Am - Be$ [3] 56
4.2 Schéma de la réaction $^{9}Be + \alpha \rightarrow ^{12} C + n$ 56
4.3 Distribution du flux à l'intérieur et l'extèrieur d'un échantillon cylindrique entouré de graphite et calculé par CITATION. La courbe A représente un échantillon de graphite et la courbe B représente un échantillon d'eau. 59
4.4 Dispositif d'irradiation et de mesure du flux de neutrons 60
4.5 Distribution du flux de neutrons en fonction de la profondeur . . . 60
4.6 Distribution transversale du flux thermique à differentes profondeurs (x,y,0) 61
4.7 Distribution du flux thermique selon (x,y,0) 62
4.8 Distibution du flux thermique en fonction de la profondeur dans l'échantillon 63
4.9 Flux thermique en fonction de la profondeur suivant l'axe central de l'échantillon d'eau 66
4.10 Efficacité relative du détecteur en fonction de l'énergie des γ 68
4.11 Spectre gamma prompts de chlorure d'Ammonium collecté pendant 7200 s. 69
4.12 Variation de la sensibilité en fonction de la longueur du collimateur 76
4.13 Variation de la sensibilité en fonction de la longueur de l'échantillon 77
4.14 Variation de la sensibilité en fonction du diamètre du collimateur . 77
4.15 PGNAA gamma ray spectrum for 6 g of NaCl 78
4.16 Taux de comptage de la raie gamma 6110 keV en fonction de la quantité de chlore 79
4.17 Dispositif éxpérimental 81
4.18 Dispositif expérimental simulé par MCNP 84
4.19 Comparaison de $\varepsilon(r)/\varepsilon_{ref}$ pour les raies gamma du Cd (558 KeV) et de l'hydrogène (2223 KeV). Les efficacités ont été calculées par MCNP 85
4.20 Comparaison de $\varepsilon(r)/\varepsilon_{ref}$ pour 2 positions différentes de la source (5 et 8 cm suivant l'axe du détecteur) ; les efficacités ont été calculées par MCNP 85

4.21 Distribution du flux thermique dans l'échantillon en fonction de la profondeur 86
4.22 Spectre du Cadmium dissout dans l'eau obtenu avec une source $^{241}Am - Be$ 87
4.23 Dispositif expérimental d'analyse par gamma prompts pour une brique de béton au moyen d'une source $^{241}Am - Be$. 90
4.24 Spectre des gamma prompts émis par le béton pendant 16 heures d'irradiation et comptage 92
4.25 Spectre des gamma prompts émis par le béton pendant 16 heures d'irradiation et comptage 93

Liste des tableaux

1.1 Classification des neutrons en fonction de leur énergie 10
1.2 Gamma prompt induit par réaction de capture [4]. 17
1.3 Principales raies de capture pleine énergie du chlore (Cl^{35}), [4, 5] . 18

2.1 Caracteristiques des sources$^{9}Be(\alpha, n)$ 25

4.1 Intervalle des 5 groupes d'énergie 58
4.2 Limite de detection des polluants dans l'eau par la méthode PGNAA 70
4.3 Résultats avec MCNP pour différents matériaux (Collimateurs de neutrons de longueur 10 cm et diamètre intérieur 3 cm) 75
4.4 Surfaces des pics , intensités des raies γ du Si et du Ca, efficacités et sections efficaces 91
4.5 Determination du Ca et du Si dans le ciment, le sable et le béton par des méthodes chimiques. Tableau des concentrations en $\%$ . . . 95

Introduction

L'objectif de l'étude décrite dans cette thèse est le développement de la méthode d'analyse par activation neutronique au moyen de gamma prompts, PGNAA (Prompt Gamma Neutron Activation Analysis) d'éléments présents dans des échantillons volumineux. Cette méthode est complémentaire à celles existantes à savoir, l'analyse par activation neutronique conventionnelle, la fluorescence X, la PIXE. La méthode est notamment indiquée pour le dosage des élements légers H, B, C, N, Si, P, S et Cl et aussi bien pour les élements lourds à savoir le Cd, le Sm, le Gd et le Hg. Le grand pouvoir de penétration des neutrons permet, à l'inverse des autres méthodes, l'investigation d'échantillons volumineux, donc représentatifs de la réalité [6, 7, 8, 9]. Elle est non destructive, ne nécessite pas de préparation préleminaire de l'échantillon.

Divers échantillons provenant de domaines très variés tels que l'archéologie, la géologie [10], la médecine [11], l'industrie minière [12] et science des matériaux, ont été analysés étudiés avec cette technique. La PGNAA s'est révélée particulièrement efficace pour l'analyse de l'hydrogène et du Bore [13] qui sont difficilement mesurables avec d'autres techniques.

Les différents travaux cités présentent la particularité de correspondre à un besoin spécifique (caractérisation du sol, du charbon, du béton,.). La méthode consiste à linéariser un problème non linéaire par l'utilisation de mesures relatives [14], ou au calcul et l'extraction d'informations en prenant certaines hypothèses (par exemple, pour une énergie donnée, l'attenuation des photons varie peu avec la densité du milieu).

Dans le but d'avoir l'information sur la dépression du flux de neutrons à l'intérieur de l'échantillon, plusieurs auteurs ont utilisé des codes de transports [15, 16, 17, 18]. Cela suppose la connaissance approximative de la composition élémen-

taire de l'échantillon afin de procéder au transport de neutrons. D'autres ont eu recours à la théorie de diffusion pour déterminer les paramètres de diffusion [19]. Toutefois la variation du flux avec la composition élémentaire est ignorée. Pour la correction de l'atténuation gamma, des mesures de transmission ont été utilisées [20] pour certaines raies gamma évitant ainsi la non linéarité du problème.

La réalisation de la technique PGNAA pour les échantillons volumineux, avec une source de neutrons $^{241}Am - Be$ a été conçue, construite et testée au Laboratoire des Techniques Nucleaires, du Commissariat à l'Energie Atomique (Comena, Alger). Ce travail propose une approche analytique, nommée méthode absolue qui permet la determination des concentrations dans divers types d'échantillons sans recourir aux échantillons standards. Les corrections dûes à la dépression du flux de neutrons et à l'atténuation gamma dans l'échantillon, reposent sur la simulation totale du dispositif expérimental au moyen du code Monte Carlo de transport des neutrons et des photons.

Le présent manuscript est structuré en quatre parties. Dans le premier chapitre, nous rappelons les bases théoriques nécessaires à la compréhension des mécanismes d'interaction des rayonnements électromagnétiques ainsi que les neutrons avec la matière.

Ensuite, dans le deuxième chapitre, sont présentés les différents types d'échantillons volumineux et l'importance de les analyser en l'état. Nous décrivons également la procédure experimentale du travail, le principe de la spectoscopie par gamma prompts, le détecteur GeHP utilisé et les diverses méthodes de quantification d'élements.

Le troisième chapitre relate une description générale des méthodes de simulation Monte Carlo. L'accent sera mis sur les codes mis en oeuvre dans ce travail à savoir le code MCNP (Monte Carlo N - Particles) developpé par le Laboratoire National de Los Alamos et le code MC-gamma pour le calcul du rendement de détection.

Les applications de la méthode PGNAA sur des échantillons volumineux sont décrites dans le quatrième chapitre.

La première application est consacrée à l'utilisation du code CITATION, basé sur la diffusion des neutrons pour la simulation de la variation du flux dans un échantillon volumineux avec une source de neutrons $^{241}Am - Be$.

Dans une deuxième application, les limites de détection des polluants ont été

estimées dans 125 litres d'eau. Le code MCNP a été utilisé pour la simulation du flux de neutrons et le rendement de détection gamma a été mesuré.

Par la suite, un dispositif experimental a été optimisé pour une meilleure sensibilité d'analyse et calibré pour le contrôle de la salinité dans l'eau potable.

En utilisant le même dispositif experimental, la concentration du cadmium dans l'eau a été determinée par simulation du flux de neutrons et de l'efficacité du détecteur.

Une autre application, a été mise au point pour le contrôle de la qualité du béton en mesurant le rapport de concentration Silicium sur Calcium.

1

Rappels théoriques sur l'interaction rayonnement-matière

1.1 Introduction

La technique PGNAA (Prompt Gamma Neutron Activation Analysis) consiste à caractériser les matériaux en utilisant les gammas prompts émis lors de la réaction de capture radiative (n, γ). Par ailleurs, la sélection des gammas fait appel aux effets produits par ceux-ci dans les interactons. A cet effet, nous décrirons l'interaction des rayonnements avec la matière.

1.2 Interaction des rayonnements électromagnétiques avec la matière

Le terme "photon" s'applique aux rayonnements électromagnétiques émis soit dans les transitions nucléaires "rayons γ ", soit dans une transition atomique 'les rayons X, Laser, excitation et désexcitation résonante '. Lors de la traversée d'un

milieu matériel quelconque, tout photon a une certaine probabilité d'interagir avec ce milieu. Cette interaction peut être classée selon :

– la nature de l'interaction : photon - électron ou photon - noyau,

– le type de l'effet produit : l'absorption, la diffusion ou la production de paires.

D'autres processus d'interaction moins importants peuvent se produire avec un photon, en l'occurrence la diffusion Rayleigh avec un électron lié, la diffusion Thomson avec un électron libre ou la diffusion Delbrück avec le champ Coulombien du noyau.

Dans les principaux processus (figure 1.1), il y a émission d'électrons. Le ralentissement de ces électrons le long de leurs parcours à travers la matière se traduit par la création de paires de charges électron- trou ou électron- ion. C'est la détection de ces charges qui permet de déduire l'énergie du photon impliqué dans l'interaction.

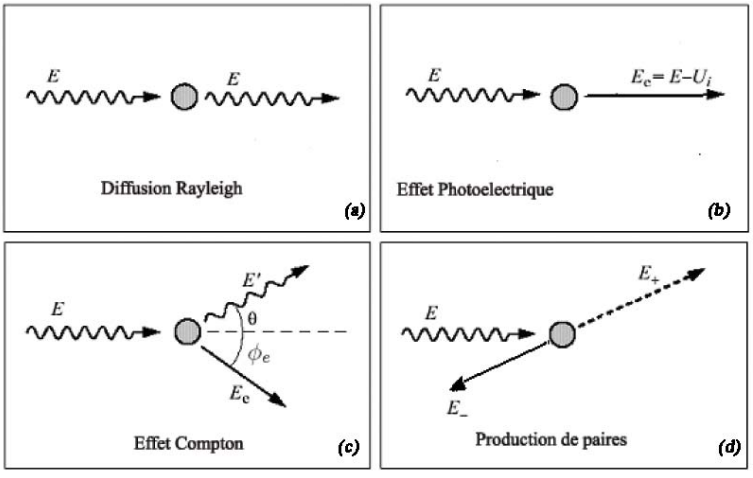


FIGURE ***1.1*** *Principaux processus d'interaction photon- matière*

1.2.1 Effet photoélectrique

Au cours de l'effet photoélectrique, le photon interagit avec un électron du cortège du noyau, il lui cède totalement son énergie $E = h\nu$ et disparaît. L'électron cible est ejecté de sa couche avec une énergie égale à l'énergie du photon diminuée de son énergie de liaison U_L (équation 1.1). Après cet évenement, l'atome subit

un réarrangement au cours duquel, soit un photon de fluorescence est émis, soit un nouvel électron est éjecté avec une énergie cinétique E_e (effet Auger). L'effet photoélectrique n'a lieu que si $h\nu \geq U_L$ (effet seuil).

$$E_e = E - U_L \tag{1.1}$$

1.2.2 Effet Compton

Le photon interagit avec un électron que l'on peut considérer comme libre et au repos (l'energie de liaison étant négligeable devant l'énergie du photon). Apres la diffusion inélastique, le photon est dévié selon l'angle θ par rapport à la direction du photon incident, l'électron reculant selon l'angle ϕ_e (figure 1.1.c). La conservation de l'énergie s'écrit :

$$h\nu = h\nu' + E_e \tag{1.2}$$

Dans ce processus, une partie de l'énergie initiale est transmise à l'électron au cours de l'interaction. Le photon diffusé d'énergie $E' = h\nu'$ pourra éventuellement donner lieu à d'autres diffusions Compton.

La conservation de la quantité de mouvement donne :

$$p = p' \cos\theta + p_e \cos\phi_e \tag{1.3}$$

$$0 = -p' \sin\theta + p_e \sin\phi_e \tag{1.4}$$

L'énergie du photon diffusé est alors :

$$E' = \frac{E_0}{1 + \alpha(1 - \cos\theta)} \tag{1.5}$$

avec $\alpha = h\nu/m_0c^2$ et

$E_0 = m_0c^2$= 0,511 MeV étant l'énergie au repos de l'électron.

Dans le cas où les photons incidents sont de haute énergie $(E \gg E_0)$ pour tous les angles de diffusion, sauf près de 0^0, l'énergie du photon diffusé est

$$E' = \frac{h\nu}{1 + (h\nu/m_0c^2)(1 - \cos\theta)} \approx m_0c^2/1 - \cos\theta \tag{1.6}$$

A partir de l'equation 1.2, on déduit l'énergie de l'électron Compton :

$$E_e = h\nu \frac{2\alpha}{1 - 2\alpha + (1+\alpha)^2 \tan^2 \phi_e} \tag{1.7}$$

Les angles de diffusion de l'électron et du photon sont reliés par la relation suivante :

$$-\cot \phi_e = \frac{\tan \frac{\theta}{2}}{(1+\alpha)} \tag{1.8}$$

1.2.3 Création de paires

L'effet de matérialisation se produit à énergie élevée ($E \geq 2m_0c^2$). Le photon pénétrant dans le champ Coulombien d'un noyau se matérialise sous forme d'une paire électron -positron (e^-, e^+). L'électron et le positron sont ralentis dans la matière environnante. A la fin de son parcours, le positron interagit avec un électron et s'annihile ce qui engendre l'émission de deux photons de 511 keV. La conservation de l'énergie s'écrit :

$$h\nu = 2m_0c^2 + E_e^- + E_e^+ \tag{1.9}$$

E_e^- et E_e^+ sont respectivement les énergies cinétiques de l'électron et du positron.

Les lois de conservation du moment cinétique font que ces deux photons sont émis dans des directions opposées (figure 1.1.d).

1.2.4 Coefficients d'atténuation d'un faisceau de photons

L'absorption des photons dans la matière dépend de la nature du milieu ainsi que de leur énergie. La loi d'atténuation d'un faisceau de photons monoénergétique et parallèle dans un milieu homogène est donnée par la relation :

$$I(x) = I_0 e^{-\mu x} \tag{1.10}$$

I_0 : flux de photons incidents ; $I(x)$: flux de photons sortant d'un milieu absorbant d'épaisseur x ; μ : coefficient d'atténuation linéaire proportionnel à la section efficace totale d'interaction σ_{tot} :

$$\mu = n\sigma_{tot} \tag{1.11}$$

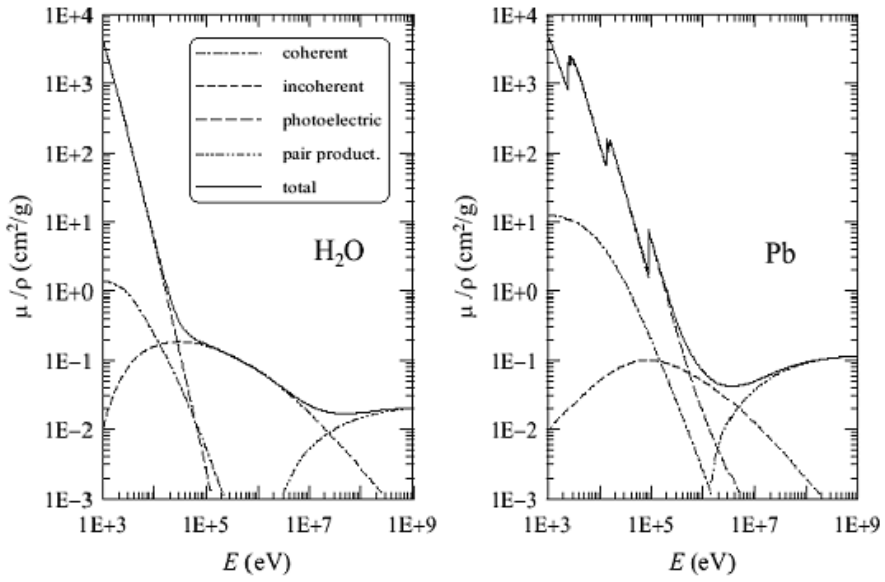


FIGURE *1.2* *Section efficaces d'absorption massique, respectivement de l'eau et du plomb [1]*

n est le nombre d'électrons atomiques par cm^3. Les valeurs des coefficients massiques μ/ρ exprimés en cm^2/g sont disponibles dans la littérature [1].

La figure 1.2 représente la variation du coefficient d'atténuation massique en fonction de l'énergie dans l'eau et dans le plomb.

A titre d'exemple, pour réduire d'un facteur 10 l'intensité d'un faisceau de photons γ dont l'énergie est comprise entre 1 et 3 MeV, il faut une épaisseur :

$$\bar{X} \simeq \frac{35}{\rho} cm \tag{1.12}$$

ρ étant la masse volumique de la matière irradiée en g/cm^3. Pour atténuer le faisceau d'un facteur 10^n, l'épaisseur de la matière irradiée doit être égale à $n\bar{X}$.

On déduit le libre parcours moyen R des photons dans un milieu par :

$$R = \frac{1}{\mu} = 1,14 X_{1/2} \tag{1.13}$$

$X_{1/2}$ représente l'épaisseur de la matière dans laquelle la moitié des photons incidents a disparu.

1.3 Interaction des neutrons avec la matière

1.3.1 Propriétés des neutrons

Le neutron est une particule de charge nulle de masse au repos 939.5 MeV/c^2. Il est instable lorsqu'il n'est pas lié, avec une demi-vie de 12 minutes. Le neutron fait partie des particules indirectement ionisantes. Il interagit avec le noyau sans être gêné par le champ Coulombien. Il est généralement classé en fonction de son énergie, qui peut s'étendre depuis le neutron froid jusqu'au neutron de plusieurs centaines de MeV. Le tableau 1.1 reprend la classification des neutrons.

Neutron	Energie
Thermiques	$E_n \leq 0,4eV$
epithermiques	$0,4eV < E_n \leq 500keV$
relativistes	$E_n \geq 50MeV$

TABLE *1.1* *Classification des neutrons en fonction de leur énergie*

Neutrons thermiques

Il s'agit des neutrons qui ont une énergie cinétique telle qu'à la température ambiante, ils se trouvent en équilibre thermique, et le nombre des neutrons est donné par l'expression de Boltzmann :

$$N = N_0 \; exp \; (-\frac{E_i}{kT}) \tag{1.14}$$

où :

– N_0 est nombre de neutrons thermiques,

– k est la constante de Boltzmann,

– T est la température absolue.

L'énergie cinétique moyenne des neutrons thermiques est alors :

$$\bar{E} = \int E_i dn_i = kT \tag{1.15}$$

A 20^0C, cette énergie est de 0,0253 eV. A cause de la distribution de la vitesse en fonction de la température du milieu dans lequel ils interagissent, il est évident

que les neutrons n'ont pas tous la même énergie cinétique. Leur énergie cinétique moyenne se situe autour de la valeur la plus probable. On convient de définir une limite supérieure au dessous de laquelle ils sont considérés comme des neutrons thermiques. Cette valeur est de 0,4 eV, une valeur correspondante au changement remarquable qui est observé pour la section efficace d'absorption du cadmium (Cd).

Neutrons intermédiaires

Les neutrons intermédiaires résultent de la collision élastique entre des neutrons rapides et un noyau cible léger d'un matériau ralentisseur. Ces neutrons se situent dans la gamme d'énergie de 0,4 eV à 200 keV, et donnent un spectre $f(E_n)$, proportionnel à 1/ E_n.

Neutrons rapides

Les neutrons sont considérés comme rapides si leur énergie est supérieure à 500 keV. Quand l'énergie des neutrons est supérieure à 50 MeV, ils sont considérés comme relativistes.

1.3.2 Différents types de réactions induites par les neutrons

Lors de l'interaction d'un neutron avec un noyau cible, il se forme un noyau composé dans un état fortement excité. Cet état instable, d'une durée de vie de l'ordre de 10^{-14} s, peut se désexciter selon plusieurs voies, en émettant (figure 1.3) :

- Les particules massiques associées ou non à des rayonnements γ
- un neutron : on a alors une réaction de diffusion,
- plusieurs neutrons : $(n, 2n), (n, 3n), (n, xn)$,
- une particule chargée légère :$(n, p), (n, d), (n, t), (n,^3 He), (n,^4 He)$
- les fragments de fission associés à des neutrons et des gamma : réaction (n,f),
- les rayonnements gamma : réaction (n, γ), réaction d'activation.

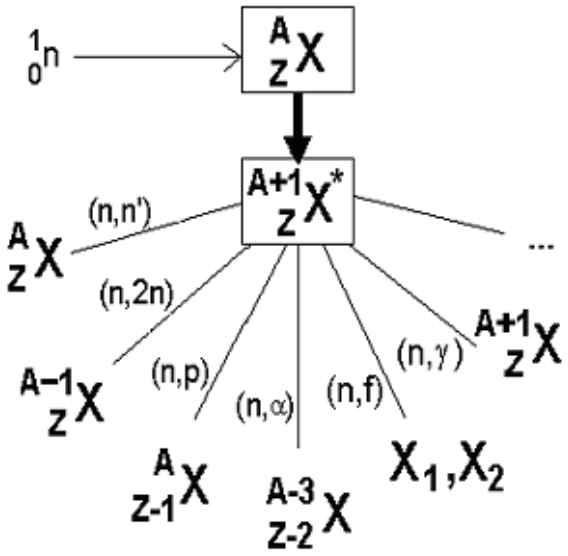


FIGURE *1.3* *Schéma de voies de sortie possibles des réactions neutroniques*

– X : noyau cible
– Z : nombre de protons
– A : nombre de nucléons
– N : nombre de neutrons
– γ : gamma émis

Réactions de diffusion neutronique $(n, n'\gamma)$

La diffusion peut être élastique ou inélastique. Les réactions de diffusion sont à l'origine des capacités de modération de certains matériaux. Elles modifient l'énergie et la direction du neutron incident, mais ne le font pas disparaître comme c'est le cas pour les réactions d'absorption.

Lors d'une diffusion élastique, l'énergie totale du système neutron noyau est conservée. Une partie de l'énergie cinétique du neutron est emportée sous forme d'énergie de recul par le noyau cible. Le neutron perd donc de l'énergie : c'est cet effet de modération qui est recherché dans les échantillons en masse afin de thermaliser les neutrons rapides (en moyenne 4.5 MeV) émis par la source $^{241}Am-Be$ sans les absorber.

Lors de la diffusion inélastique, une partie de l'énergie cinétique du neutron incident est transferée au noyau cible sous forme d'énergie d'excitation. Celui ci

se désexcite ensuite par émission de rayonnement gamma. La réaction est notée $(n, n'\gamma)$. Les réactions de diffusion inélastiques sont des réactions à seuil. Elles nécessitent parfois des neutrons d'énergie supérieure à quelques MeV.

Réaction de fission

L'absorption d'un neutron par un noyau fissile conduit à la formation d'un noyau composé. La fission d'un noyau produit généralement deux fragments de masse plus faible dans un état excité et s'accompagne de l'émission de neutrons et de rayonnement gamma. Les fragments de fission présentent une distribution du nombre de masse A centrée autour de 100 et 140. Une fission produit également un dégagement d'énergie de l'ordre de 200 MeV.

La réaction de fission (n, f) est favorisée dans le cas des noyaux fissiles par les neutrons thermiques qui apportent l'énergie nécessaire pour surmonter la barrière de potentiel. C'est le cas des noyaux ^{235}U, ^{239}Pu ou ^{241}Pu. La fission peut également être provoquée par un neutron rapide d'énergie de l'ordre du MeV et plus. Le neutron rapide apporte alors son énergie cinétique qui permet de franchir la barrière de potentiel. C'est le cas des noyaux tels que ^{238}U ou ^{240}Pu.

Moins de 10^{-13} s après l'interaction, des neutrons et des gammas prompts sont émis. De cent millisecondes à 55 secondes après, certains produits de fission, appelés précurseurs, se désexcitent par radioactivité β^- et émettent des gammas et des neutrons retardés. Le nombre de gamma prompts émis lors d'une fission varie de 7 à 10, et leur énergie totale moyenne est comprise entre 7 et 9 MeV.

Ces rayonnements sont inexploitables en mesure gamma active, en raison du bruit de fond élevé induit par les très nombreux noyaux fils se désexcitant dans un laps de temps très court. Le nombre de gamma retardés émis lors d'une fission varie de 6 à 8 en moyenne. Leur énergie moyenne est de l'ordre du MeV. Ces rayonnements retardés sont exploitables par la spectrométrie gamma.

Réaction de capture radiative

La réaction de capture neutronique radiative se produit selon la réaction :

$$^{A}_{Z}X +^{1}_{0} n \rightarrow^{A+1}_{Z} X + \gamma$$

avec γ : gamma émis

Le plus souvent, la probabilité de capture radiative d'un neutron est la plus élevée pour des neutrons thermiques. Les gammas de capture sont émis quasi-simultanément ($10^{-14}10^{-16}$ s après l'absorption du neutron) et emportent le surplus d'énergie. En effet, on a :

$$Q = m(^{A}_{Z}X)c^2 + m(^{1}_{0}n)c^2 - m(^{A+1}_{Z}X)c^2 \tag{1.16}$$

Q est presque toujours positif pour la capture neutronique et vaut l'énergie de liaison du neutron absorbé (entre 2 et 10 MeV) dans le noyau formé $^{A+1}_{Z}X$ (figure 1.4).

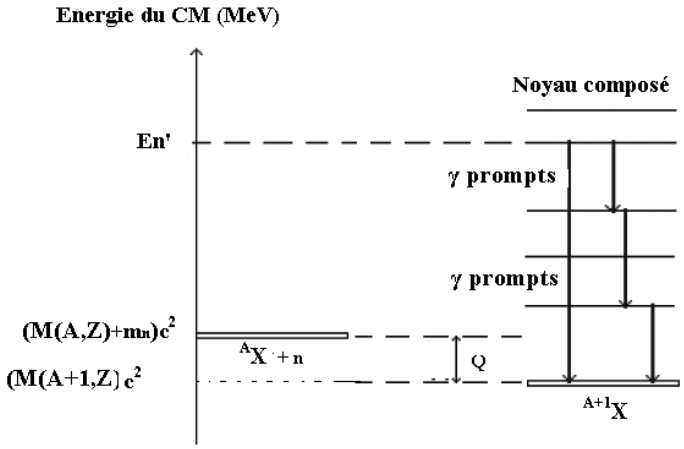


FIGURE *1.4* *Schéma de la réaction de capture radiative* (n, γ)

Toutes choses égales par ailleurs, l'aire nette A sous un pic d'énergie (figure 1.5), contrairement au cas de l'activation neutronique, ne dépend pas d'une période radioactive mais de la durée de la mesure, réalisée pendant l'irradiation neutronique.

Le taux de captures $N_(n, \gamma)$ sur un élément est donné par l'équation :

$$N_(n, \gamma) = \frac{\varrho m N_a}{M_a}[\int \sigma(E_n)\varphi(E_n)dE_n] \tag{1.17}$$

Avec :

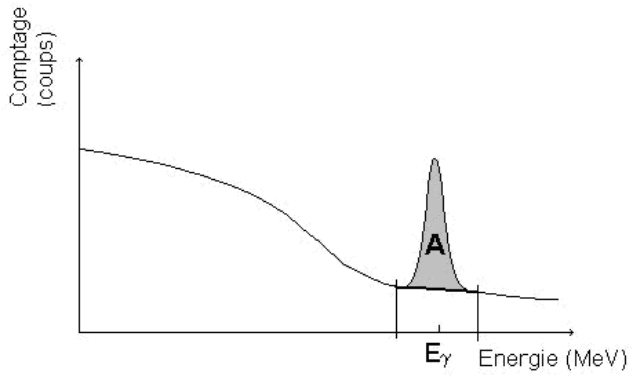


FIGURE *1.5* *Schéma du signal de surface A d'un pic d'énergie E_γ*

- ϱ : teneur isotopique de l'isotope d'intérêt (%)
- m : masse de l'élément d'intérêt (g)
- M_a : Masse atomique de l'élément mesuré (g/mol)
- N_a : nombre d'Avogadro ($6,023.10^{23}$ atomes/mol)
- $\sigma(E_n)$: Section efficace de capture neutronique (cm^2) à l'énergie E_n
- $\varphi(E_n)$: flux de neutrons ($cm^{-2}.s^{-1}$) à l'énergie E_n

La relation entre l'aire A sous un pic et la masse de matière ayant donné naissance à ce pic est donnée par l'équation :

$$A(E_\gamma) = N_(n,\gamma)I(E_\gamma)\varepsilon(E_\gamma)t \tag{1.18}$$

- Avec E_γ : énergie du gamma émis (keV)
- $I(E_\gamma)$: intensité de la raie gamma d'énergie E_γ)
- $\varepsilon(E_\gamma)$: rendement de détection à l'énergie E_γ)
- t : durée de l'irradiation-mesure (s).

1.3.3 Corrections dûes à l'atténuation des rayons gamma et à la perturbation du flux de neutrons à l'interieur d'échantillons volumineux

Le signal mesuré dépend dans un premier temps des paramètres de capture neutronique de l'élément d'intérêt (section efficace de capture, spectre du flux

neutronique interrogateur) et dans un second temps des paramètres liés à la détection du photon d'énergie E_γ émis (intensité d'émission et rendement de détection à cette énergie). D'autre part, il augmente avec la quantité de matière et la durée de l'irradiation.

La déduction de la masse d'un élément d'un échantillon à partir d'un signal utile A, nécessite la connaissance du flux de neutrons et du rendement de détection du dispositif de mesure. La mesure absolue du flux de neutrons est délicate et a conduit à réaliser des mesures relatives en comptant des raies de capture de différents éléments produits pendant la même irradiation (même flux de neutrons).

La détermination du rendement de détection peut être effectuée en utilisant des rayonnements gamma de capture présentant des raies sur une large gamme d'énergie (par exemple celles du chlore, très bien connues). Ceci permet une comparaison à basse énergie avec des sources isotopiques. L'utilisation d'un code de transport des neutrons et des photons (de type Monte Carlo N- Particle) permet également d'appréhender le rendement de détection à haute énergie.

En tenant compte des 2 phénomènes, le flux de particules qui n'a pas interagit à une profondeur x dans l'échantillon, $\varphi(x)$ est introduit sous forme différentielle :

$$\frac{\partial\varphi(x)}{\partial x} = -\Sigma_t\varphi(x), \qquad pour\ \ les\ neutrons \tag{1.19}$$

$$\frac{\partial\varphi(x)}{\partial x} = -\mu_t\varphi(x), \qquad pour\ \ les\ photons \tag{1.20}$$

où :

– x est la profondeur dans l'échantillon (m)
– Σ_t est la section efficace macroscopique (m^-1)
– μ_t est le coefficient d'atténuation gamma (m^-1)

Par intégration des équations 1.19 et 1.20 sur toute la profondeur x de l'échantillon, on obtient :

$$\varphi(x) = \varphi(0)e^{-\Sigma_t x}, \qquad pour\ \ les\ neutrons \tag{1.21}$$

$$\varphi(x) = \varphi(0)e^{-\mu_t x}, \qquad pour\ \ les\ photons \tag{1.22}$$

Le tableau 1.2 présente des éléments susceptibles d'émettre des rayonnements de capture dans les échantillons volumineux (H, B, C, Al, Fe, Cl, Cd, Pb,.) ainsi que dans les matrices concernées par cette étude. Les principales raies du chlore sont présentées dans le tableau 1.3. Cependant, les raies les plus intenses, susceptibles d'être détectées facilement, sont listées dans le tableau 1.2. Les intensités associées à ces émissions ont fait ultérieurement l'objet d'études particulières de la part de [21].

Elements	$\sigma_{th}(b)$	E_γ (keV)	$I_\gamma(\%)$	Elements	$\sigma_{th}(b)$	E_γ (keV)	$I_\gamma(\%)$
^{1}H	0,332	2223	100	^{55}Mn	13,3	7243	12,1
^{7}Li	0,036	2032	89,3	^{56}Fe	2,55	7631	28,5
^{10}B	755	477	93	^{59}Co	37,2	6876	8,21
^{14}N	0,0747	10829	14,1	^{58}Ni	4,43	8533	16,9
^{32}S	0,520	5424	59,1	^{63}Cu	3,79	7636	15,7
^{35}Cl	33,2	6110	20	^{67}Zn	1,10	1077	18,9
^{40}Ar	0,678	4745	55	^{73}Ge	2,30	596	33,1
^{39}K	2,10	770	51,4	^{75}As	4,30	1534	7,18
^{40}Ca	0,43	1942	72,5	^{81}Br	6,80	776	4,13
^{45}Sc	2,65	8174	11,8	^{83}Kr	25	881	84,0
^{48}Ti	6,10	1381	69,1	^{87}Sr	1,21	1836	57,8
^{51}V	5,04	6517	17,8	^{113}Cd	2450	558	72,7
^{53}Cr	3,10	8884	26,9	^{207}Pb	0,17	7367	94,0

TABLE *1.2* *Gamma prompt induit par réaction de capture [4].*

La raie de 2223 keV de l'hydrogène n'est pas une raie de capture au sens défini dans ce paragraphe. En effet, elle ne résulte pas de la désexcitation d'un noyau excité, comme représenté sur la figure 1.4, mais de la relaxation de l'énergie de fusion $^{1}H +^{1} n \rightarrow^{2} D$ + 2223 keV, le deutérium étant formé à l'état fondamental. Par abus de langage, cette raie à 2223 keV est dénommée dans ce mémoire sous le terme : raie de capture de l'hydrogène.

Il est intéressant d'observer que le spectre des rayonnements gamma de capture du chlore s'étend jusqu'à près de 8 MeV avec des raies d'intensité supérieure à 10%. Les raies les plus intenses sont celles à 1164,9 keV $(27,20\%)$ et 6110,8

Energie γ(keV)	Intensité (%)
517,1	24,30
786,3	10,52
788,4	16,32
1131,2	1,91
1164,9	27,20
1601,1	3,48
1951,1	19,39
1959,4	12,58
2676,3	1,57
2863,8	5,77
2975,2	1,04
3061,9	3,52
4440,4	1,04
4979,7	3,61
5517,2	1,68
5715,2	5,31
5902,7	1,01
6110,8	20,58
6619,6	7,83
6627,8	4,69
6977,8	2,29
7414,0	10,52
7790,3	8,31
8578,6	2,73

TABLE *1.3* *Principales raies de capture pleine énergie du chlore (Cl^{35}), [4, 5]*

keV ($20,58\%$). L'intensité du chlore en capture radiative réside dans sa section efficace de capture élevée (33,2 barns), ainsi que dans la présence de raies intenses inférieures à 1,5 MeV qui peuvent permettre de comparer l'étalonnage avec des sources classiques ($^{60}Co,^{137}Cs$ par exemple). En effet, les sources isotopiques disponibles usuellement pour étalonner les systèmes de détection dépassent rarement 1,5 MeV. La méthode employée pour étalonner la chaîne de spectrométrie à des énergies de plusieurs MeV repose sur des raies de capture identifiables dans la plupart des spectres de bruit de fond actif : raies du fer (doublets à 7631 et 7645 keV), de l'aluminium (7723 keV) ou du carbone (4945 keV). La raie gamma provenant de la diffusion inélastique (n,n') sur le carbone (4438 keV) est également utilisée.

2

Dispositif experimental

2.1 Introduction

L'analyse par PGNAA (Prompt Gamma Activation Analysis) est une méthode nucléaire qui consiste à détecter les rayons gamma prompts émis par l'échantillon à la suite des réactions de captures neutroniques. Lors de l'irradiation de l'échantillon par les neutrons, les nucléides stables ${}^{A}_{Z}X$ capturent les neutrons thermiques selon ${}^{A}_{Z}X(n,\gamma){}^{A+1}_{Z}X$, le noyau composé ${}^{A+1}_{Z}X$ est produit dans un état excité et va donc retourner dans son état fondamental avec émission de rayons de haute énergie qui sont émis dans un laps de temps très court, de l'ordre de 10^{-11} à 10^{-12} s. C'est sur la détection (" on-line") de ces γ prompts qu'est basé ce genre d'analyse.

2.1.1 Avantages de l'utilisation des échantillons en masse

Dans beaucoup de cas, des déchets qui contiennent les substances dangereuses peuvent contaminer les eaux souterraines ou se repandre dans l'atmosphère. Par conséquent, une classification appropriée des déchets est exigée afin d'assurer la disposition sure pour leurs traitements et leurs réutilisation. Les rejets de maté-

riaux de construction, domestiques et électroniques et de compost sont considérés fortement hétérogènes et donc des procédures de prélèvement raffinées sont exigées pour l'analyse de ces déchets. La méthode PGNAA a été efficacement employée pour analyser des échantillons volumineux [22], du sol [23, 24], des matériaux électroniques [25].

Ce sont les matériaux où les sous prélèvements (échantillonage) et l'homogénéisation sont très difficiles et ont un coût très élevé, qui sont des étapes non exigées dans la PGNAA. Un exemple typique est l'analyse élémentaire de composition de 20 kilogrammes de résidu d'une usine d'incinération (figure 2.1).



FIGURE *2.1* *Résidu d'usine d'incinération*

Ce genre d'échantillons ne peut pas facilement être homogénéisé et analysé par d'autres techniques analytiques. Cependant, une partie d'un kilogramme de ce résidu a été analysée en employant la PGNAA sans homogénéisation [26].

Il y a deux raisons majeures à analyser des échantillons en grandes proportions (volumineux, en masses) : (1) une meilleure sensibilité pourrait, en principe, être obtenue si une grande masse est employée dans l'analyse. (2) une meilleure représentativité de l'échantillon est réalisée si de grands échantillons sont pris (figure 2.2).



FIGURE 2.2 *Exemple d'échantillon voumineux*

2.1.2 Echantillon de forme irrégulière

L'analyse par activation neutronique conventionnelle a été utilisée pour vérifier l'authenticité des objets d'art et l'étude de leur provenance. Toutefois, le sou prélèvement des objets archéologiques et d'héritage culturel est interdit et ces derniers doivent être conservés en l'état. La PGNAA présente l'avantage d'être une technique non destructive pour les échantillons en masses. En comparaison, d'autres méthodes non destructives aussi à savoir, la fluorescence X (XRF) ou l'analyse basée sur l'irradiation au moyen de particules chargées (PIXE, IBA) permettent d'analyser l'échantillon uniquement en surface. Ils donnent une analyse tronquée de l'échantillon volumineux.

L'application des techniques analytiques dans le domaine de l'art où les objets archéologiques fournit aux historiens, les informations quantitatives qui peuvent les aider à comprendre la façon de vivre des cultures étudiées.

D'autre part l'information analytique peut être employée pour vérifier l'authenticité des objets commercialisés et aider à identifier la fraude ou les objets du trafic illicite [27]. Dans le monde des musées cette connaissance est également nécessaire pour préparer et effectuer la restauration appropriée des objets d'art endommagés.

L'avantage particulier de la technique PGNAA, est sa capacité d'analyser les objets encombrants en général, sans dommages visuels aux objets d'acquis culturel.

2.2 Sources de neutrons

Les sources de neutrons utilisées en analyse par activation sont de trois types :
- source isotopique,
- générateur de neutrons,
- réacteur de recherche.

2.2.1 Source isotopique de neutrons

La source isotopique la plus utilisée est le californium 252 (^{252}Cf), qui par fission spontanée donne un flux de neutrons de $2,34.10^{12}$ n/s/g et d'énergie moyenne 2,14 MeV. Elle a une période de 2,646 ans.

D'autres sources utilisent la réaction (α,n) ; c'est le cas par exemple de l'américium -béryllium $^{241}Am-Be$ et de l'américium - lithium $^{241}Am-Li$ pour lesquelles l'américium est émetteur alpha et le béryllium ou le lithium, est le siège de la réaction (α,n).

Ce type de source possède cependant une intensité moins élevée de l'ordre de quelques 10^6 n/s/Ci. Sa période est par contre plus grande (458 ans) pour l'^{241}Am.

Un certain nombre de radio émetteurs alpha est utilisé dans les sources de neutrons. Une étude de leurs caractéristiques est donnée dans la tableau 2.1 [2].

Le spectre de neutrons est calculé à partir des données nucléaires, à savoir, l'énergie des alphas, le pouvoir d'arrêt dans le béryllium, le diagramme des niveaux d'énergie. L'intensité et l'énergie dépendent du mode de fabrication de la source, par exemple sa géométrie cylindrique, sa composition, la présence des radios émetteurs descendants, etc.

L'intensité des neutrons par $10^6\alpha$ donnée dans la table 2.1, est calculée à partir de la relation [2] :

$$Y = 0.95 + 0.152E_{\alpha}^{3.65} \quad (n/10^6\alpha) \tag{2.1}$$

Les spectres de neutrons des sources ^9Be (α,n) sont illustrés par la figure 2.3

Un certain nombre de considérations est pris en compte pour le choix de la source appropriée pour l'analyse par activation, à savoir sa période, le flux de neutrons, son coût et enfin sa disponibilité.

Les sources isotopiques de neutrons sont toujours entourées par un matériau modérateur pour ralentir les neutrons rapides en neutrons thermiques. Dans ce

Nucléide	Période	E_α (MeV)	Intensité ($n.s^{-1}$) par 10^6 α	Intensité ($n.s^{-1}$ Ci^{-1})	Energie moyenne des neutrons (MeV)
^{238}Pu	89 années	5,5	-	2,8 10^6	4,0
^{239}Pu	24119 années	5,14	65	1,6 10^6	4,59
^{210}Po	138 jours	5,30	73	2,5 10^6	4,54
^{241}Am	432,2 années	5,48	82	2,2 10^6	4,46
^{244}Cm	18,1 années	5,79	100	3,0 10^6	4,31
^{242}Cm	163 jours	6,10	118	4,0 10^6	4,16
^{226}Ra	1620 années	7,69	502	1,1 10^6	3,94
^{227}Ac	22 années	7,36	702	1,5 10^6	3,87

TABLE *2.1* *Caracteristiques des sources* $^9Be(\alpha, n)$

but, l'eau, la paraffine, le béryllium et le graphite sont utilisés. Les sources isotopiques de neutrons $^9Be(\alpha, n)$ possèdent un spectre d'énergie continu avec une énergie moyenne autour de 4 MeV.

2.2.2 Générateur de neutrons

Une autre façon de produire des neutrons est la réaction nucléaire avec des noyaux légers. Les deux réactions les plus utilisées sont :

- La réaction Deutérium -Deutérium (D-D) : $^2H +^2 H \rightarrow^3 He + n$
- La réaction Deutérium-Tritium (D-T) : $^2H +^3 H \rightarrow^4 He + n$

Ces réactions sont employées dans les générateurs de neutrons dans lesquels des ions deutérium sont accélerés sous une tension de 100 à 300 KV. Les réactions D-D et D-T, produisent respectivement des neutrons de 2.45 MeV et 14 MeV. Des intensités de 10^8 n/s à 10^{11} n/s peuvent être atteintes en fonctionnement continu. L'émission de neutrons par un générateur peut être arrêtée à tout moment.

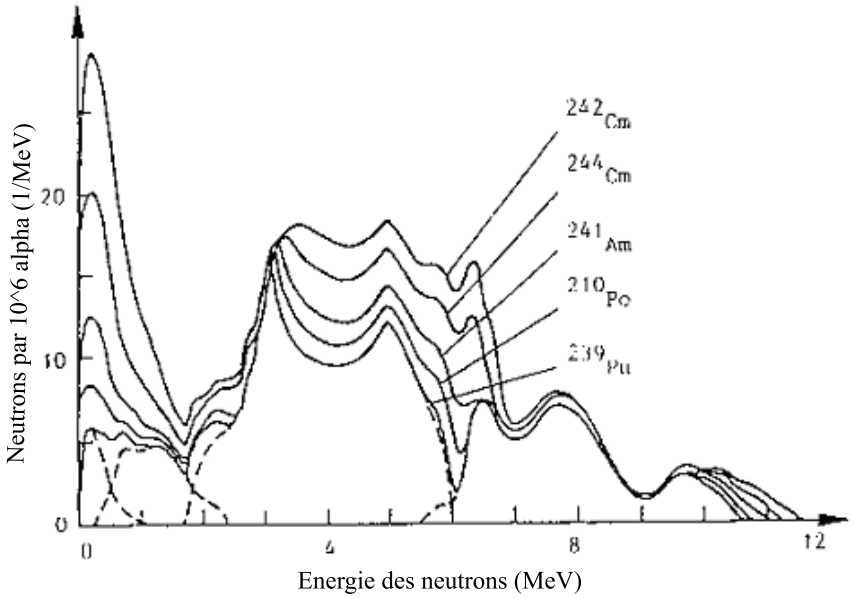


FIGURE 2.3 *Spectres des sources de neutrons* $^{9}Be(\alpha,n)$*[2]*

2.2.3 Réacteurs

Avec un réacteur nucléaire un faisceau de neutrons d'un flux $> 10^6\ cm^{-2}s^{-1}$ est possible en analyse par gamma prompts sur les échantillons en masse. La production des neutrons a lieu lors de la fission d'un noyau ${}^{A}_{Z}M$ selon :

$$ {}^{A}_{Z}M + {}^{1}_{0}\,n \rightarrow {}^{A_1}_{Z_1}\,F_1 + {}^{A_2}_{Z_2}\,F_2 + \nu\ {}^{1}_{0}n $$

avec :

$A + 1 = A_1 + A_2 + \nu$; $Z = Z_1 + Z_2$ F_1 et F_2 sont respectivement les fragments produits ; ν est un nombre de neutrons, compris entre 2 et 3.

Avec un réacteur, cette méthode présente une flexibilité pour le choix de la masse de l'échantillon. Toutefois, on doit prendre en compte le fait qu'une grande masse de l'échantillon peut affecter les mesures car le bruit de fond en dépend.

2.3 Dispositif experimental en PGNAA associé à une source $^{241}Am-Be$

2.3.1 système d'irradiation

La configuration du système d'irradiation et de mesure pour la technique PGNAA est schématisée sur la figure 2.4.

Le dispositif consiste en une source de neutrons $^{241}Am-Be$ d'activité, 37 G.Bq (1Ci), délivrant 2.2 $10^6 n.s^{-1}$. Elle est placée à l'intérieur d'un bloc cubique de paraffine en position d'irradiation et un détecteur portable HPGe (Ortec), ayant une résolution de 1,9 keV et une efficacité relative de 20% pour la raie γ d'énergie 1332 keV.

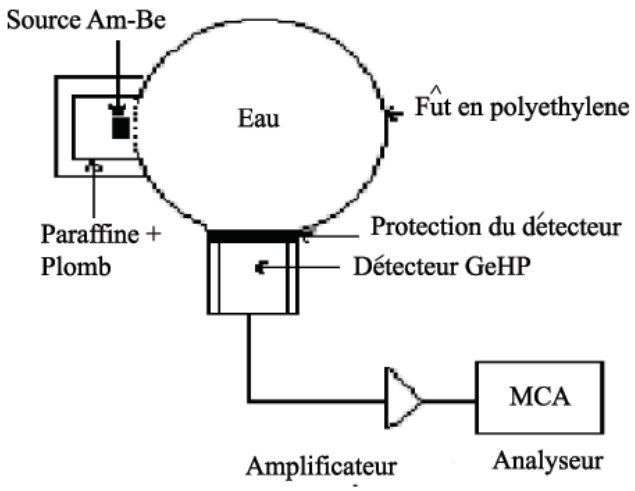


FIGURE 2.4 *Dispositif d'irradiation et mesure par gamma prompts des polluants dans l'eau*

Le détecteur, monté perpendiculairement à la direction du rayonnement incident provenant de la source, est protégé des neutrons et des gammas issus directement de la source. Un écran en brique de plomb de 10 cm d'épaisseur, est placé entre la source et le détecteur afin d'atténuer la raie gamma d'énergie 4,43 MeV caractéristique des sources de neutrons $^9Be(\alpha,n)^{12}C$.

Dans le but de réduire la dose de neutrons qui atteint le détecteur, ce dernier

est entouré d'un cylindre creux en polyéthylène borée de 2,5 cm d'épaisseur. La face du détecteur est protégée par un disque de carbonate de lithium (Li_2CO_3) ayant une épaisseur de 1,5 cm et 10 cm pour diamètre.

L'échantillon est de l'eau déminéralisée dans un volume de 0.125 m^3, contenue dans un récipient cylindrique en polyéthylène de 0.3 cm d'épaisseur et de 49 cm de diamètre. Ce volume d'eau joue également un rôle essentiel pour la protection du détecteur contre les neutrons rapides.

2.3.2 Détecteur GeHP

Un spectromètre gamma muni d'un détecteur est placé en face de l'échantillon afin de recueillir les gammas prompts émis par l'échantillon.

Anciennement, la détection des gamma se faisaient avec un cristal de scintillation activé au thalium (NaI(Tl)) dont la résolution etait de 6 $\%$ à l'énergie de 661 KeV. Par la suite on a developpé des détecteurs au germanium dopés au lithium, Ge(Li) qui necessitent un refroidissement permanent pour éviter la diffusion du lithium. Enfin les détecteurs au germanium hyperpur Ge(HP), possèdent la qualité de n'être refroidis qu'en cours de manipulation. Ils ont un excellent avantage pour la détection des particules de haute énergie. S'il faut 20 eV au minimum d'énergie déposée pour créer un photon dans un scintillateur et environ 30 eV dans un gaz pour créer une paire électron-ion, environ 3 eV sont suffisants pour créer une paire électron-trou dans un semi- conducteur. Les semi-conducteurs sont donc des détecteurs sensibles pour la spectrométrie. La résolution de ces détecteurs atteint le keV.

Le système d'analyse mis en oeuvre pour la réalisation de la partie expérimentale est composé d'un détecteur germanium hyperpur GeHP. La section efficace de l'effet photoélectrique depend de Z^2 , alors la détection des rayonnements gamma s'effectue avec une meilleure éfficacité si l'on utilise le germanium (Z=34). Son avantage réside dans le fait qu'il fonctionne sur une large gamme d'énergie allant de 50 keV à 10 MeV. Sa résolution en énergie est de 1.95 keV et son efficacité relative au gamma du ^{60}Co est de 20 $\%$. Ce détecteur est très éfficace pour la détection des rayonnements électomagnétiques de faible énergie. Il est maintenu dans une enceinte sous vide de 10^{-3} Pa.

Le détecteur est maintenu à une température très basse (environ -196 ^0C) au moyen d'azote liquide afin de diminuer le courant de fuite de la diode et le niveau

du bruit électronique du détecteur et de l'amplificateur (figure2.7). Son volume peut aller jusqu'à 200 cm^3, la haute tension de polarisation de ce détecteur va de 1500 V à 4000 V.

Le principe de détecter des rayonnements est basé sur leurs interactions avec la matière constituant le détecteur, soit par ionisation ou par excitation atomique. Le signal électrique fourni par le détecteur a une amplitude proportionnelle à l'énergie du photon.

L'évolution de la technologie des détecteurs à semi conducteur améliore les capacités multi élémentaires de l'analyse par activation neutronique.

De volumineux détecteurs au germanium existent actuellement sur le marché (volume du cristal entre 400 et 800 cm^3).

Pour la mesure des énergies de rayons gamma au-dessus de 100 keV, il y a seulement deux catégories de détecteurs d'importance majeure ; le détecteur inorganique de scintillation et le détecteur semi conducteur [28].

Le choix du détecteur, lors d'une application donnée en analyse par gamma prompt repose sur le compromis d'un bon rendement de détection et d'une bonne résolution spectrale en énergie.

Les détecteurs à scintillation et semi conducteurs ont été intensivement utilisés dans les dispositifs d'analyse par gamma prompts PGNAA en analyse quantitative. Les détecteurs semi-conducteurs possèdent une très bonne résolution en énergie ; les plus utilisés sont les détecteurs au germanium de très grande pureté (HPGe).

Une bonne résolution en énergie permet non seulement de séparer les pics voisins mais aussi de détecter les pics de faibles intensité sur la distribution Compton du spectre (figure 2.5).

Cette proprieté est particulièrement importante pour l'analyse multi élémentaire quand des centaines de gamma prompts sont émis simultanément après capture neutronique par les éléments composant l'échantillon. Bien que le détecteur GeHP présente une bonne résolution en énergie, il a l'inconvénient d'avoir un faible rendement de détection en comparaison avec les détecteurs à scintillation.

En effet les détecteurs à scintillation, iodure de sodium activé au thallium (NaI (Tl)), figure (2.6) et le germinate de bismuth (BGO) ont une très grande efficacité de détection. Cet avantage est dû aux matériaux composant ces détecteurs (nombre atomique élevé et grande densité), qui donnent une importante probabilité d'interaction gamma.

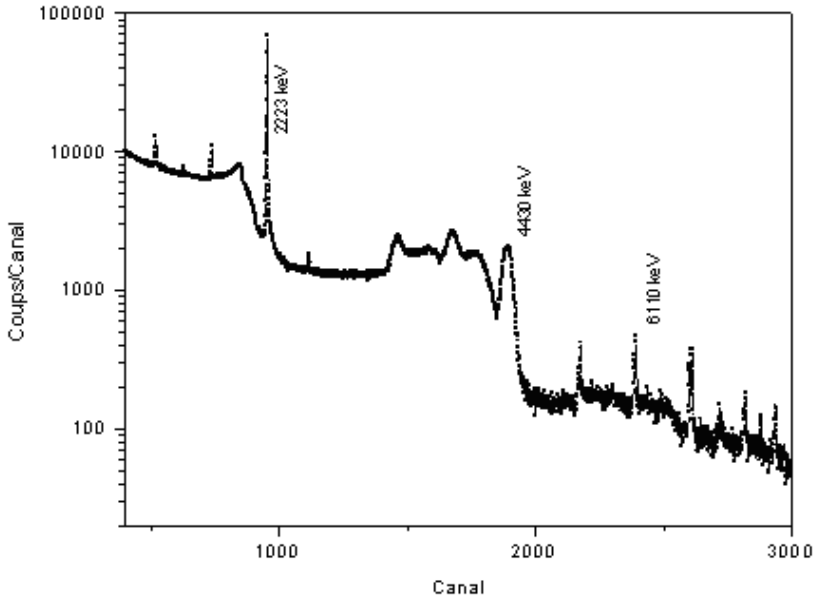


FIGURE 2.5 *Spectre gamma prompt avec un detecteur GeHP*

Bien que les détecteurs NaI(Tl) soient disponibles en grande géométrie, le détecteur lui-même peut devenir radioactif durant l'activation neutronique car le sodium et l'iode dans le scintillateur peuvent être activés pour former les radioisotopes ^{24}Na de période 15 heures et ^{128}I de période 25 minutes, respectivement, par les réactions (n, γ).

Le scintillateur BGO a une densité de 7,13 g/cm^3 contre 3,67 g $/cm^3$ pour le détecteur NaI (Tl), il n'est pas contaminé durant l'irradiation. Son efficacité excède celle du NaI(Tl) par un facteur de 10 pour une énergie $E_\gamma > 8$ MeV.

Par contre la résolution du détecteur BGO est très faible à l'énergie 10 MeV avec 5 $\%$, comparé à 0,05 $\%$ pour le détecteur HPGe. La faible résolution du scintillateur de BGO est compensée par sa résistance aux chocs, le caractère peu sensible à la température et un rendement de détection gamma élevé, font de ce scintillateur un choix idéal pour différentes applications.

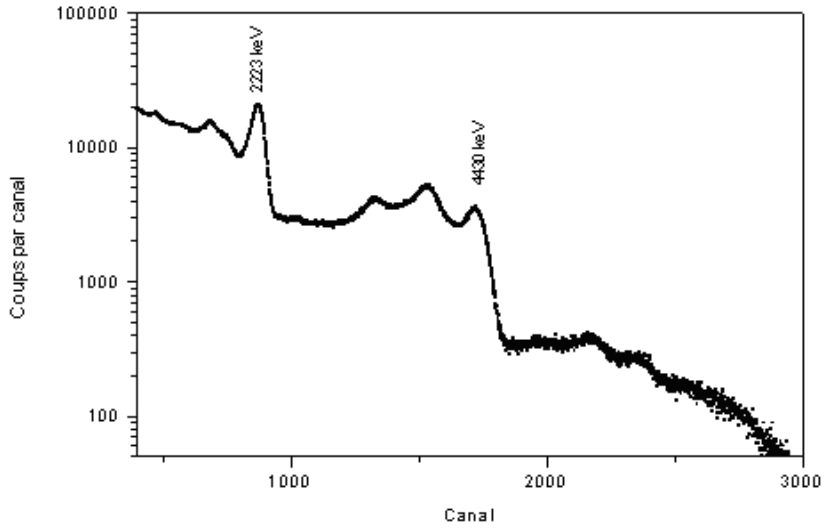


FIGURE 2.6 *Spectre gamma prompt avec un detecteur NaI(Tl)*

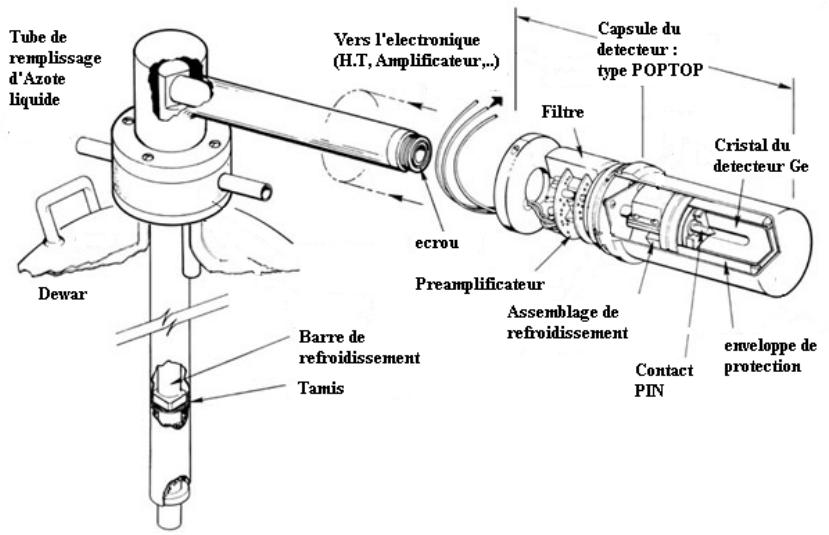


FIGURE 2.7 *Schéma d'un détecteur GeHP de rayonnements gamma (Ortec)*

2.3.3 Chaîne de détection gamma

La chaîne électronique associée au détecteur permet de réaliser le traitement du signal (figure 2.8). Elle se compose d'un préamplificateur, d'un amplificateur, d'un convertisseur analogique- numérique et d'un analyseur multi canaux. Ce dernier est une carte d'acquisition, modèle $EG\&G$ 916 de 4096 canaux servant à la collecte du spectre γ prompts. Il permet le stockage des impulsions (précédemment codées) de même amplitude dans un canal. On obtient ainsi un spectre qui représente le nombre de coups reçus en fonction de l'énergie. Enfin, un ordinateur muni d'une carte d'acquisition et un logiciel "Maestro", permettent de recueillir le spectre en temps réel .

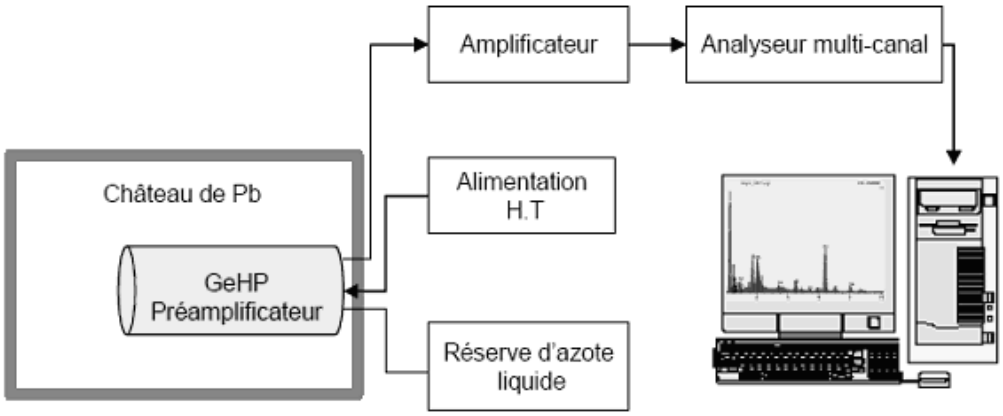


FIGURE 2.8 *Schéma du dispositif de spectrometrie γ*

2.3.4 Mesure de l'efficacité du détecteur

Dans un spectre γ, les photons de même énergie donnent lieu à un pic, dont l'abscisse représente l'énergie des photons, sa surface, proportionnelle aux taux d'émission photonique, permet de connaître l'intensité relative ou absolue de la raie γ.

On obtient l'efficacité du détecteur par la relation :

$$\varepsilon(E) = \frac{N_{detectes}(E)}{N_{emis}(E)} \tag{2.2}$$

Avec :

– $N_{dtects}(E)$: nombre de photons détectés,

– $N_{mis}(E)$: nombre de photons émis par l'échantillon.

Pour la calibration en efficacité du détecteur, un standard donnant des gammas de différentes énergies et d'intensités connues a été utilisé dans les mêmes conditions expérimentales que les échantillons. Ce standard est une source point d'^{152}Eu ayant une activité connue, placée à une distance de 5 cm du détecteur GeHP à l'intérieur de la station de comptage (figure 2.8). Un temps de mesure de 7200 s a été utilisé pour collecter le spectre gamma de la source.

Pour tous les pics, l'aire est mesurée et l'efficacité calculée à partir de la relation définie par :

$$\varepsilon(E) = \frac{A}{aIt_c} \tag{2.3}$$

Avec

– A : aire sous le pic gamma donnant le nombre de photons détectés,

– a : l'activité de la source d'^{152}Eu,

– I : Intensité de la raie gamma en $\%$ de l'^{152}Eu

– t_c : le temps de comptage.

La courbe d'efficacité expérimentale caractérisant notre détecteur en fonction de l'énergie E_γ est représentée sur la figure 2.9.

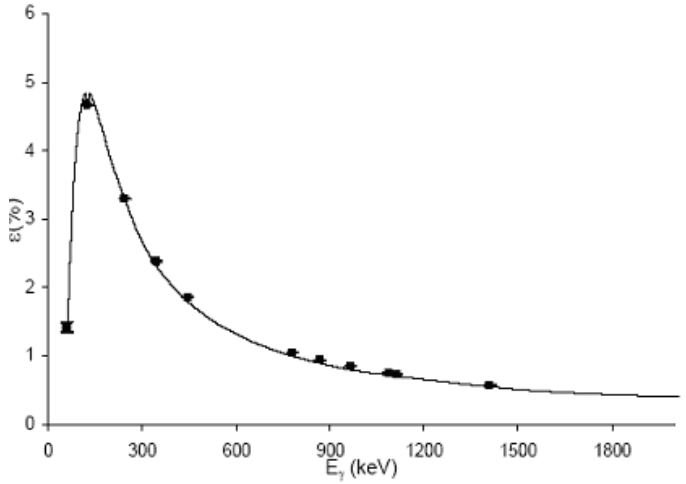


FIGURE 2.9 *Efficacité du detecteur en fonction de l'énergie*

2.4 Mesures expérimentales par la PGNAA

Le principe de la méthode d'analyse par activation au moyen de gammas prompts se résume en trois phases :

- l'échantillon à analyser est irradié par des neutrons,
- la réaction nucléaire induite par l'interaction des neutrons avec l'échantillon produit un spectre de raies gamma caractéristiques, et
- les rayons gammas prompts sont mesurés à l'aide d'un spectromètre.

2.4.1 Taux de réaction

L'échantillon à analyser est soumis à un flux de neutrons et des raies gamma sont émises après capture de neutrons suivant la réaction :

$$^{A}_{Z}X(n,\gamma)^{A+1}_{Z}X$$

où X est l'élément d'intérêt.

L'émission de gamma prompts provient des états nucléaires excités, ceux ci ont des périodes de 10^{-12} à 10^{-14} s. Les gammas prompts possèdent des énergies de 50 keV à 10 MeV et les spectres sont en général très complexes. Le principe de la capture neutronique est représenté sur la figure 2.10.

Si l'échantillon est irradié par un flux φ de neutrons par unité de surface et de temps ; on associe à chaque noyau cible une surface σ , selon laquelle pour chaque neutron entrant dans σ, il apparaît une réaction.

La quantité σ est définie comme la section efficace de réaction, représentant la probabilité d'interaction.

Comme σ et φ dépendent de l'énergie des neutrons incidents, le taux de réaction R par unité de temps produisant un noyau composé s'écrit :

$$R = \int \frac{mN_a}{M}\varphi(E)\sigma(E)dE = \frac{mN_a}{M}\ \bar{\phi}\ \bar{\sigma} \tag{2.4}$$

où M est la masse atomique de l'élément d'intérêt et N_a le nombre d'Avogadro.

m est la masse de l'élément à analyser et (m N_a/ M) est le nombre de noyaux cible.

Afin de simplifier, on utilise les valeurs moyennes du flux de neutrons $\bar{\phi}$ et de la section efficace $\bar{\sigma}$ pour calculer l'intégrale en énergie.

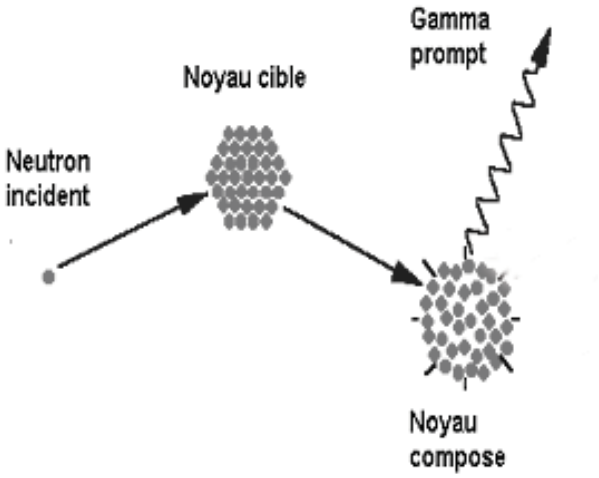


FIGURE *2.10* *Capture radiative d'un neutron par un noyau cible*

Les raies gamma prompts servent à l'identification et au dosage des éléments de l'échantillon. Il existe, dans la littérature pour l'analyse par gamma prompt, des données compilées [4]. Les données sur les éléments dosables par la technique des gammas prompts sont représentées dans la table 1.2. Les sections efficaces de capture, l'énergie des gammas prompts et les intensités recommandées sont tabulées. Le taux d'émission pour une raie gamma prompt donnée, après capture d'un neutron s'écrit :

$$S_\gamma(E_\gamma) = \frac{RI_\gamma(E_\gamma)}{100} = \frac{mN_a}{M}\frac{\bar{\sigma}\bar{\phi}I_\gamma(E_\gamma)}{100} \tag{2.5}$$

où $I(E_\gamma)$ est l'intensité de la raie gamma à l'énergie E_γ en terme de photons par 100 neutrons capturés.

2.4.2 Détection des gammas prompts

Le taux de comptage pour une raie gamma prompts s'écrit :

$$dC(E_\gamma)/dt = \varepsilon(E_\gamma)S_\gamma(E_\gamma) \tag{2.6}$$

Pour une durée de comptage T_c, prédéterminée, où le flux ne change pas durant l'irradiation, la masse m (g) de l'élément d'intérêt est évaluée par la combinaison

des équations 2.5 et 2.6 :

$$m = \frac{100CM}{N_a \varepsilon(E_\gamma) T_c I(E_\gamma) \bar{\phi} \bar{\sigma}} \tag{2.7}$$

L'équation 2.7 relie le taux de comptage mesuré de l'isotope d'intérêt à la concentration de l'élément dans un échantillon irradié. Les trois variables principales dans l'équation, (la fluence de neutrons, la section efficace de capture et l'efficacité du détecteur) sont des fonctions très complexes ayant beaucoup de paramètres tels que la distribution de l'énergie des neutrons en position d'irradiation, la géométrie source détecteur, la composition et la densité de l'échantillon, l'énergie du rayonnement gamma émis et les variables telles que les sections efficaces macroscopiques thermiques, épithermiques et totales de l'élément étudié et de tous les autres éléments dans l'échantillon.

Il existe trois méthodes principales d'utilisation de l'équation 2.7 pour traduire les résultats de l'irradiation et de la mesure en termes de concentration. La première méthode, appliquée pour la première fois par [29] dans son deuxième travail sur l'analyse par activation est la méthode comparative.

Les échantillons avec des diamètres et des longueurs de plusieurs centimètres ressentirront largement la variation du flux de neutrons dans leurs différentes parties. Une calibration des dimensions et de la composition semblable devrait être employée pour estimer une moyenne du flux dans l'échantillon.

La préparation de standards d'un échantillon de plusieurs grammes est une partie du processus analytique. Plusieurs normes comparatives sont décrites au delà de la gamme du gramme. Parmi les nombreuses variantes de l'application des méthodes comparatives, il ya quelques petites différences sous la forme de comptabilité des coefficients de correction pour des différences dans le flux, la densité, des teneurs en eau, les mesures de routine etc..

Le deuxième groupe de méthodes est basé sur la modélisation théorique des processus d'irradiation et de mesure. L'utilisation des réacteurs pour l'analyse par activation permet l'irradiation de beaucoup d'échantillons très petits, en petit volume qui présentent une faible variation de flux. De même en ce qui concerne le comparateur, beaucoup de méthodes légèrement différentes ont été développées. On citera entre autres : le monostandard comparateur, le double comparateur, le comparateur triple, la méthode paramétrique, les méthodes absolues, et les méthodes K_0.

L'application directe de ces méthodes pour de grands échantillons est très difficile du fait des perturbations du flux et de l'atténuation de rayons gamma. Récemment, on a décrit plusieurs manières de surmonter ces limitations[30, 31, 32].

L'irradiation est exécutée dans une colonne thermique du flux de neutrons. L'échantillon est irradié ainsi que plusieurs moniteurs de flux (jusqu'à 28) constitués de petits morceaux de zirconium ou de cuivre.

En appliquant la théorie de transport de neutrons, la modélisation de la distribution du flux de neutrons dans un échantillon peut être exécutée et les facteurs de correction pour les échantillons volumineux peuvent être estimés.

Les expériences de mesure de transmission gamma avec la rotation de l'échantillon pendant les mesures l'utisation de collimateurs de faisceau, permettent la correction des déviations de la géométrie et l'attenuation gamma.

En dépit de cette limitation, le caractère exceptionnel de cette méthode doit être soumis à une contrainte. Ce sont les seules méthodes d'analyse appliquées aux échantillons de l'ordre du kilogramme, même fortement non homogène, d'échantillons, n'exigeant pas la préparation pré-irradiation. Par conséquent aucune contamination n'est présentée avant l'irradiation et la mesure.

Pour le troisième groupe, Il y a diverses approches pour les calculs, allant du pur modèle théorique, (modèle de Monte Carlo), en utilisant des informations disponibles a priori sur la composition témoin, vers des évaluations empiriques disponibles des facteurs de correction [33].

La modélisation sera évitée quand, par exemple pour des applications courantes, un standard d'échantillon en masse représentatif est disponible.

Il est relativement facile d'établir des corrections dues à l'atténuation des gamma, une fois que les coefficients d'atténuation linéaires sont disponibles, par calcul à partir de la composition élémentaire approximative.

L'efficacité volumineuse du photopeak peut être déterminée par Monte Carlo par modélisation mais ceci exige des informations précises sur la géométrie intérieure de la configuration du cryostat et du détecteur (y compris l'épaisseur de la couche inerte).

Des courbes empiriques peuvent être déterminées en utilisant des sources standard dans l'eau alors que l'auto-atténuation peut simplement être soustraite de l'efficacité mesurée.

2.4.3 Détermination de la concentration des éléments dans l'échantillon analysé

La mesure de la masse élémentaire dans l'équation (2.7) exige la connaissance de $\varepsilon(E_\gamma)$, $\bar{\phi}$ et $\bar{\sigma}$, tandis que $I(E_\gamma)$ est obtenue à partir des références étalons [4]. Etant donnée la distribution en énergie des neutrons incidents, très peu d'expériences ont été faites pour la détermination absolue de $\bar{\phi}$ et $\bar{\sigma}$ pour l'analyse des éléments d'intérêt.

Un comparateur avec des concentrations standards connues des éléments d'intérêt avec une matrice témoin identique à l'échantillon est employé pour la calibration, permettant la détermination quantitative des éléments d'intérêt dans l'échantillon.

Supposant qu'un comparateur, contenant l'élément d'intérêt avec une masse connue m(R), est analysé par gamma prompts, le nombre total de coups C(R) collectés durant le temps d'irradiation T_c s'écrit :

$$C(R) = m(R)\ N_a\ \varepsilon(E_\gamma)\ T_c\ (\bar{\phi}\bar{\sigma})_R\ \frac{I(E_\gamma)}{100M} \tag{2.8}$$

Ainsi, la masse inconnue de l'élément dans l'échantillon est déterminée par la combinaison des équations 2.7 et 2.8 :

$$m = m(R)\frac{100\ C\ \varepsilon(E_\gamma)\ T_c\ (\bar{\phi}\ \bar{\sigma})_R\ I(E_\gamma)\ M\ N_a}{100C(R)\ \varepsilon(E_\gamma)\ T_c\ (\bar{\phi}\ \bar{\sigma})\ I(E_\gamma)\ M\ N_a} \tag{2.9}$$

$$m = m(R)\ \frac{C(\bar{\varphi}\ \bar{\sigma})_R}{C(R)(\bar{\phi}\ \bar{\sigma})} \tag{2.10}$$

Si l'intensité du flux et l'énergie des neutrons restent inchangés durant l'irradiation pour l'échantillon et le comparateur, la détermination quantitative se résume à :

$$m = \frac{m(R)\ C}{C(R)} \tag{2.11}$$

Pour cela un moniteur de flux à savoir un détecteur de neutrons est généralement positionné avec le dispositif pour donner sur place et en temps réel l'intensité du flux. Cela permet de procéder à une correction si les conditions d'irradiation changent durant l'expérience.

La spectrométrie des rayonnements gamma de capture se différencie de la spectrométrie gamma classique notamment par des énergies élevées mises en jeu, pour lesquelles le rendement de détection d'un détecteur germanium GeHP est faible. Des particularités sont également liées à l'utilisation d'une source de neutrons comme source d'irradiation.

En effet, les neutrons rapides sont responsables d'une émission significative de rayonnement gamma par réaction de diffusion inélastique. Ces rayonnements constituent une source importante de bruit de fond parasite.

D'autre part, les matériaux du dispositif expérimental et de l'environnement répondent à l'action des neutrons. Tous les matériaux possédant une section efficace de capture importante (Cd, ou B par ex.), ou présents en grande quantité (C ou H par ex.) émettent des rayonnements gamma de capture qui constituent un bruit de fond pour la mesure des éléments d'intérêt de l'échantillon.

Le nombre de gamma produit dans l'ensemble des matériaux irradiés est très important. Il est donc nécessaire de disposer d'une chaîne de spectrométrie gamma capable de traiter les forts taux de comptage (plusieurs dizaines de milliers de coups stockés et mémorisés par seconde). Il est également nécessaire de s'assurer de la gestion correcte d'un temps mort variable temporellement.

2.5 Limites de Détection

Dans un spectre gamma, un pic est situé sur un bruit de fond dû à la radioactivité naturelle et à l'effet Compton des gammas d'énergies supérieures.

Si le pic est peu intense, il ne peut être que le résultat des fluctuations statistiques du bruit de fond. Le problème en analyse par activation est d'évaluer une limite à partir de laquelle un pic devient détectable.

D'après [34], la limite de détection est calculée à partir de la distribution statistique du bruit de fond gênant la mesure du pic photoélectrique. Lorsque le bruit de fond B enregistré est supérieur à environ 100 coups, cette statistique suit une loi normale. La limite de détection est donnée alors par :

$$L_D = \frac{u}{S}\sqrt{\frac{dB}{dt}/T_c} \tag{2.12}$$

où u prend les valeurs 1,645 ; 1,960 ; 3 correspondant respectivement à une probabilité de 95 $\%$; 97,5 $\%$ et 99,86 $\%$.

dB/dt est le taux du bruit de fond en coups par seconde (cps/s) et S la sensibilité du comptage donnée en cps/s.g.

La sensibilité élémentaire du comptage est donnée par

$$S = \frac{C}{T_c m} \tag{2.13}$$

avec T_c et m, respectivement le temps de comptage et la masse de l'élément d'interêt.

Et combinant les équations 2.7, 2.12 et 2.13, on obtient :

$$L_D = \frac{u100M\sqrt{(dB/dt)/T_c}}{N_a\varepsilon(E_\gamma)\bar{\phi}\bar{\sigma}I(E_\gamma)} \tag{2.14}$$

3

Code Monte Carlo et simulation numérique

3.1 Intoduction au code Monte Carlo

La méthode de simulation Monte Carlo doit son nom à Metropolis et Ulam dans les années 1940 [35], qui l'ont décrite pour la premiére fois pour des applications militaires.

Cette technique est aujourd'hui introduite dans de nombreux champs d'applications. Elle implique la génération de nombres pseudo aléatoires qui sont mis en forme selon certaines fonctions de densité de probabilité que l'on associe à un modèle. Ce dernier est souvent un système physique réel, mais peut être, par exemple un système mathématique ou un monde imaginaire quelconque gouverné par des lois qu'il est possible d'exprimer en des termes discrets utilisables sur une machine de calcul. Il faut différencier ces méthodes de simulation statistiques des méthodes conventionnelles de discrétion numérique qui sont dans la plupart des cas appliquées aux équations différentielles décrivant un système.

Dans beaucoup d'applications du code Monte Carlo, le système simule directement le phénomène et n'a donc pas besoin de telles équations. La seule véritable contrainte est que ce système puisse être décrit en termes de fonction de densité de probabilité.

Le grand avantage de la méthode est sa simplicité. Elle permet entre autres de visualiser l'effet de différents paramètres et de donner ainsi des orientations qui auraient été a priori écartées et de trouver facilement des structures que l'on n'aurait pas pu aussi bien optimiser par les méthodes analytiques.

Le recours aux simulations numériques est très important dans l'étude du transport des neutrons et de photons dans la matière. Cela permet d'analyser une large gamme de dispositifs d'irradiation sans avoir à recourir à de très lourdes contraintes expérimentales.

3.2 Principe de la méthode Monte Carlo

L'approche, permet de simuler " l'histoire " d'une particule individuelle dans un milieu atténuateur, en tenant compte du caractère probabilisable des différents phénomènes physiques pouvant être rencontrés lors de sa traversée. Cette historique prend en compte les éventuelles particules secondaires et s'arrête dès lors que l'énergie de la particule est en dessous d'un niveau seuil ou que celle-ci atteint une zone de réjection. La méthode de Monte Carlo peut se décomposer en différentes étapes :

- Construction d'un processus statistique que l'on appelle jeu,
- attribution d'un score numérique à une certaine réalisation du jeu,
- Calcul d'une moyenne de ces scores et d'une dispersion statistique (écart type) permettant d'estimer la précision des résultats.

Sur la figure 3.1, le jeu consiste en la réalisation de la trajectoire de la particule et le score est de 1 chaque fois qu'une particule traverse la surface. On peut alors calculer la moyenne du nombre de particules ayant traversé la surface d'un détecteur.

Une histoire commence par la naissance de la particule (émission à partir d'une source) et se termine par sa mort (absorption ou fuite). La Figure 3.2 représente un organigramme simplifié de la construction d'une histoire.

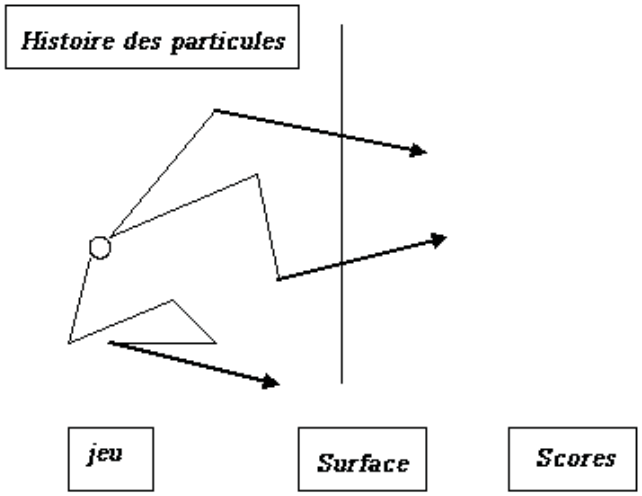


FIGURE *3.1* *Exemple d'application de la méthode Monte Carlo*

3.2.1 Variables aléatoires

Pour appliquer la méthode de Monte Carlo, on génère des nombres aléatoires de différentes manières :

- tables de nombres aléatoires établies à partir de certains phénomènes physiques (roulette),
- Générateurs de nombre aléatoires : cette méthode fait appel aux ordinateurs. Les nombres obtenus doivent constituer une série non reproductible, mais le test de non reproductibilité est difficile à réaliser. De plus, le stockage des résultats au cours du calcul, encombre la mémoire de l'ordinateur. Pour contourner ces difficultés, on utilise actuellement des nombres pseudo aléatoires.
- Les nombres pseudo aléatoires différents des nombres aléatoires par le fait que lorsque le premier est arbitrairement choisi, toute la suite est complètement déterminée et reproductible. Par cet effet, on peut appliquer des tests de qualité et vérifier le programme dans lesquel ils sont utilisés. Une des formules les plus utilisées pour engendrer des nombres pseudo aléatoires à distribution uniforme, est :

$$X_i = aX_{i-1} + c \quad (modulo \ \ m) \tag{3.1}$$

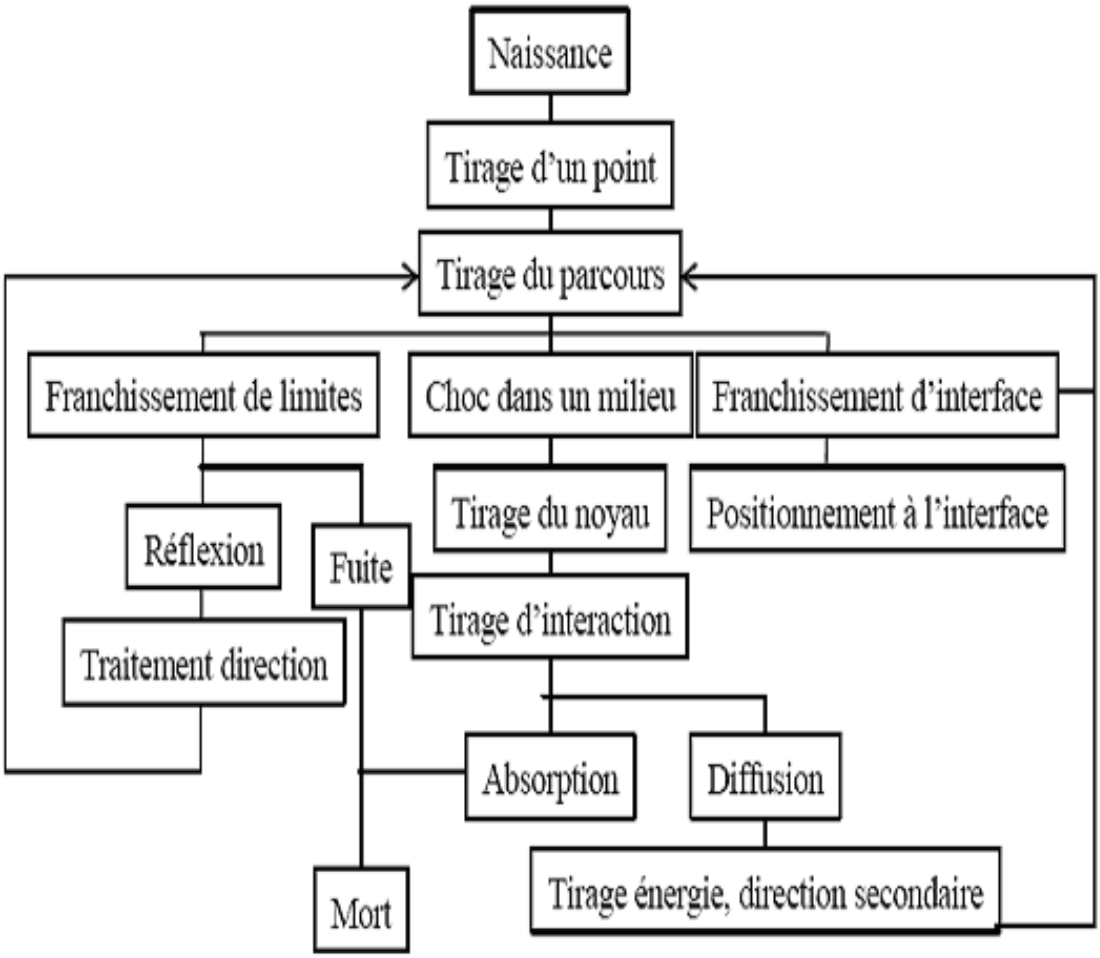


FIGURE 3.2 *Historique et traçabilité d'une particule dans un milieu ralentisseur*

Cependant, la périodicité de la séquence limite la validité du générateur de variables aléatoires. On a donc intérêt à ce que cette période soit très grande. Pour cela, on prend c = 0 et m = 2^N ou N est généralement de l'ordre de 30 ou 40.

Les nombres obtenus ont une distribution uniforme. Pour obtenir ces nombres dans l'intervalle [0,1], on divise les Xi par (m-1) et on obtient la relation d'échantillonnage suivante :

$$\varepsilon_i = \frac{X_i}{m-1} = \frac{a}{m-1} X_{i-1}, \varepsilon_i \in [0,1] \tag{3.2}$$

3.2.2 Fonctionnement du code MCNP

Le principe fondamental du fonctionnement MCNP est de calculer le comportement d'un vaste ensemble de particules, en suivant l'histoire de chacune d'elles de son apparition à sa disparition. En partant de la naissance de la particule, MCNP détermine successivement : la position de la prochaine interaction, le noyau sur lequel l'interaction se fait, et enfin le type de réaction. Pour la première étape, MCNP calcule le libre parcours moyen, à partir des sections efficaces d'interaction des matériaux en présence ainsi que leur composition, par la relation :

$$R(E) = \frac{1}{\sum^{tot}(E)} = \frac{1}{\sum_i N_i \sigma_i(E)} \tag{3.3}$$

Avec R(E) le libre parcours moyen, $\sum^{tot}(E)$ la section efficace macroscopique totale d'interaction, N_i et $\sigma_i(E)$ le nombre de noyaux par cm^3 et les sections efficaces microscopiques d'interaction en cm^2 des éléments i constituant le matériau.

Une fois le point d'interaction déterminé, l'élément cible et la réaction (diffusion élastique, fission, capture,.) sont choisis aléatoirement, en fonction des proportions Ni et des sections efficaces σ_i. Le precessus entier est réitéré jusqu'à ce que la particule disparaisse par absorption par un noyau ou s'échappe du système. La première partie du calcul MCNP consiste à propager les neutrons et à relever les coordonnées de chaque interaction. Celle-ci marquant le point de départ des nouvelles particules, cette étape du calcul permet de créer une source tridimensionnelle de particules utilisée par la suite.

Dans notre travail la particule représente le neutron.

3.2.3 Les besoins du code MCNP

Pour effectuer ces opérations, MCNP requièrt un certain nombre d'informations (voir Annexe I). La géométrie du système, découpée en un nombre très variable de "cellules", associée aux caractéristiques (éléments, proportions,.) des matériaux présents dans chaque cellule, constitue la base du fichier d'entrée de MCNP

Un fichier d'entrée MCNP comprend :

- La définition du milieu correspondant à la structure de l'ensemble à simuler. Cette partie inclut la géométrie de l'ensemble crée par la conjugaison de formes géométriques prédéfinies dans le logiciel MCNP, ainsi que la définition des compositions des matériaux présents dans les " cellules" (objets tridimensionnels délimités par un ensemble de surfaces). Ces matériaux sont définis par la composition isotopique des différents éléments qui les composent.
- Les sections efficaces d'interaction avec les noyaux présents dans les matériaux.

Les sources de ces sections efficaces sont des évaluations au format ENDF (Evaluated Nuclear Data File). Des programmes, tels NJOY, convertissent ces évaluations dans un format lisible par MCNP. Différentes bases de données sont disponibles. Les principales, ENDF-B-IV (américaine), JENDL-3.3 (japonaise) et JEF-F3.1 (européenne), constituent la plupart des sections efficaces de nombreuses réactions nucléaires sur un ensemble complet de noyaux. Il existe néanmoins quelques différences dans les évaluations entre ces bases sur certains noyaux, d'où l'importance du choix de la base de données pour un noyau.

Les grandeurs physiques à extraire de la simulation dans le fichier de sortie généré par le calcul MCNP, correspondent à l'évaluation d'une observable physique, telle qu'un flux, un taux de réaction ou une perte d'énergie, associée à une erreur statistique qui dépend du nombre d'histoires successives réalisées pour sa détermination. Cette dernière peut être exprimée en fonction de l'énergie et/ou du temps de la particule transportée.

MCNP donne accès à des scores obtenus par les particules d'intérêt (" tally"). Les paramètres actuellement accessibles avec MCNP sont les suivants :

- Nombre de particules traversant une surface (tally F1),
- Fluence de particules à travers une surface (tally F2),
- libre parcours moyen dans une cellule (tally F4),

– Fluence en un point ou sur un anneau (tally F5),
– dépôt d'énergie dans une cellule (tally F8).

D'autre part, des modificateurs permettent d'utiliser ces " tallies" pour obtenir d'autres paramètres, comme le nombre de réactions d'un certain type sur un matériau d'intérêt. Cela autorise par exemple le calcul des rendements de détection neutronique (en calculant le nombre de réaction (n,p) sur l'hélium d'un compteur) ou le nombre de réactions (n, γ) sur le chlore dans un échantillon.

Ce code de calcul utilisé depuis longtemps dans le domaine de la physique nucléaire permet de résoudre de nombreux problèmes, avec une grande confiance dans les résultats. Sa qualification a été réalisée dans de très nombreuses configurations. Cependant, MCNP possède des limites, liées à la complexité des cas à traiter. Dans le cas de géométries complexes pour lesquelles les particules ont une faible probabilité de parvenir à la zone où est calculé le "tally", des difficultés de convergences apparaissent.

Des solutions permettant de palier cet inconvenient de façon à faire converger des calculs complexes et ainsi réduire la variance des résultats obtenus, ont été implémentées par les développeurs du code, mais ne répondent pas à tous les cas de figure. Notamment, les versions 4C et 4C2 de MCNP ne permettent pas de biaiser les résultats du "tally" F8 (dépôt d'énergie), ce qui n'est pas sans poser des problèmes quand le volume de détection est très faible devant le volume total de la géométrie modélisée.

C'est le cas du calcul du dépôt d'énergie des rayonnements gamma dans le volume de détection de la diode germanium (de l'ordre de la centaine de cm^3) auprès des cellules du dispositif d'irradiation et mesures, dont les dimensions sont de l'ordre du m^3. Il est dans ce cas obligatoire d'avoir recours à des astuces de calcul reposant sur des hypothèses adéquates, notamment l'emploi de calculs en plusieurs étapes avec description d'une source secondaire.

3.2.4 Remarque

Une géométrie parfaite serait une description exhaustive et complète de l'ensemble du dispositif expérimental, incluant la totalité des objets présents et des différents matériaux. Cependant, l'ajout de chaque nouvel objet à la simulation numérique a pour conséquence d'alourdir les tests liés aux calculs donc d'augmenter le temps de calcul pour une statistique identique. Il convient alors de bien repérer

les constituants essentiels jouant un rôle principal et éventuellement secondaire dans le ralentissement des neutrons afin d'obtenir un fichier source MCNP optimisé, et de limiter le temps de calcul.

Ainsi, l'ensemble du dispositif d'irradiation et de mesure, la protection en plomb, ainsi que le système de détection ont été décrits avec précision. Par contre, des objets d'influence négligeable sur le flux de neutrons (l'extérieur du dispositif ralentisseur (table servant de support en fer, murs clôturant le laboratoire), seront ignorés. La figure 3.3, représente le dispositif expérimental et les objets pris en considération pour notre étude au sein du Laboratoire d'analyse par activation neutronique du CNRA d'Alger (COMENA).

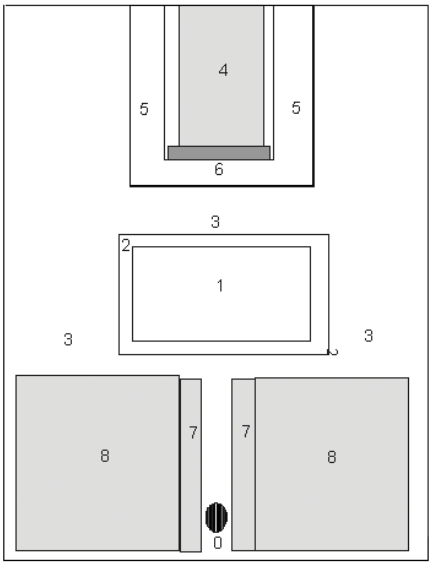


FIGURE 3.3 *Dispositif expérimental de l'analyse par gamma prompts, 0 est la source $^{241}AmBe$, 1 est l'échantillon, 2 est le Plexiglas, 3 est l'air, 4 est le détecteur GeHP, 5 est du polyéthylène, 6 est le composé $^{6}LiCO_3$, 7 est le collimateur et 8 est la paraffine*

3.3 Code Mc-Gamma

Le code MC-Gamma est un produit du laboratoire " Radiation Isotopes and Health", de Delft (Pays Bas). Il a pour but la description des détecteurs et la simulation des passages des particules élémentaires à travers la matière [36]. Le code

que nous avons utilisé pour fournir les efficacités absolues du détecteur, l'efficacité totale et le rapport pic photoélectrique sur bruit est constitué de quatre parties :

Partie 1 : définition des matériaux qui constituent le système de détection (source-détecteur) tout en introduisant la composition, la forme, et les dimensions de chaque élément du système. Dans notre cas le système est composé d'un détecteur GeHP type coaxial de diamètre Φ= 5,1 cm et de longueur 4,2 cm, et d'une source étalée (échantillon radioactif) ainsi que tous les objets intermédiaires.

Partie 2 : cinématique de la particule (gamma) reposant sur le générateur Monte Carlo. Cette étude se réalise à partir d'un point d'émission S, généré aléatoirement, et d'une direction tenant compte de l'angle solide de détection (figure 3.4). Pour ce dernier, nous avons utilisé le calcul proposé par Wielopolski [37], soit un point d'émission S à une distance P de l'axe de symétrie d'un détecteur de type coaxial, comme nous le montre la figure 3.4.

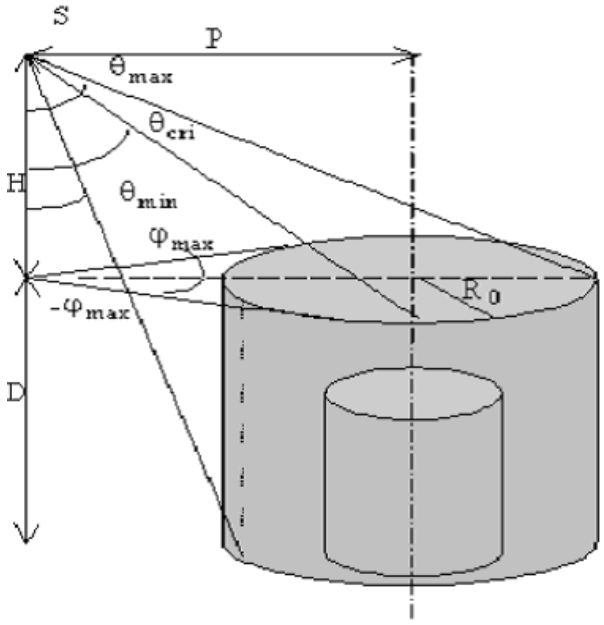


FIGURE 3.4 *Schéma de production d'un point d'émission et d'une direction d'incidence*

A partir du point d'émission S et d'une direction tenant compte de l'angle solide donné par :

$$d\Omega = \sin\theta d\theta d\varphi \tag{3.4}$$

La génération des angles θ et φ, respectivement angle longitudinal et angle transversal, se fait d'une manière aléatoire dans tout le volume de la source suivant la position du point d'émission par rapport à l'axe de symétrie du détecteur. La distribution de la probabilité pour une émission isotrope est :

$$P(\varphi,\theta)d\varphi d\theta = \frac{d\Omega}{4\pi} \tag{3.5}$$

Avec

$$P(\theta)d\theta = \frac{1}{2}\sin\theta d\theta : \quad 0 \leq \theta \leq \pi \tag{3.6}$$

$$P(\varphi)d\varphi = \frac{1}{2\pi}d\varphi : \quad 0 \leq \varphi \leq 2\pi \tag{3.7}$$

Le tirage aléatoire des angles est obtenu après l'application de la relation d'échantillonnage aux résultats précédents :

$$x = \frac{\int_{-\varphi_{max}}^{\varphi} \frac{d\varphi}{2\pi}}{\int_{-\varphi_{max}}^{\varphi_{max}} \frac{d\varphi}{2\pi}}, \qquad avec \qquad \varphi = \varphi_{max}(2x-1) \tag{3.8}$$

$$x' = \frac{\int_{0}^{\theta} \frac{1}{2}\sin\theta d\theta}{\int_{\theta_{min}}^{\theta_{max}} \frac{1}{2}\sin\theta d\theta}, \qquad avec \qquad \theta = \arccos(1 - x'(\cos\theta_{min} - \cos\theta_{max})) \tag{3.9}$$

x et x' sont des nombres aléatoires compris entre 0 et 1. Les facteurs de pondérations W1 et W2 des angles sont respectivement :

$$W_1 = \frac{\int_{-\varphi_{max}}^{\varphi_{max}} \frac{d\varphi}{2\pi}}{\int_{0}^{2\pi} \frac{d\varphi}{2\pi}} \tag{3.10}$$

$$W_2 = \frac{\int_{\theta_{min}}^{\theta_{max}} \frac{1}{2}\sin\theta d\theta}{\int_{0}^{\pi} \frac{1}{2}\sin\theta d\theta} \tag{3.11}$$

et donc l'angle solide Ω sera :

$$\Omega = W_1\ W_2\ 4\pi \tag{3.12}$$

Avec

- $W_1 = \frac{\varphi_{max}}{\pi}$
- $W_2 = \frac{1}{2}(\cos\theta_{min} - \cos\theta_{max}\ )$

Ainsi la direction du gamma incident sera à l'intérieur de l'angle solide Ω .

Partie 3 : suivi du transport du gamma à travers les différentes régions du détecteur, en tenant compte des différents effets physiques intervenants.

Partie 4 : stockage des informations obtenues par le suivi pour faire le comptage. Seule le gamma absorbé dans le germanium sera compté comme particule détectée.

4

Applications de la PGNAA aux échantillons volumineux

Ce travail présente une méthode absolue pour l'analyse des échantillons volumineux en utilisant la simulation numérique. L'approche a été de vérifier en premier lieu les codes utilisés pour la distribution du flux de neutrons (CITATION, MCNP) et l'efficacité du détecteur (MC_gamma). A cet effet, le flux de neutrons a été mesuré par la méthode de feuilles d'activation neutronique pour être comparé avec les codes CITATION et MCNP. De même, une mesure du rendement de détection gamma été faite pour valider le code MC _ gamma. Plusieurs applications sont réalisées pour illustrer l'utilisation du code MCNP dans le cadre de l'analyse par PGNAA, en utilisant des échantillons volumineux. En utilisant la simulation numérique, les limites de détection des polluants dans l'eau ont été estimées et le dispositif expérimental optimisé pour déterminer la salinité dans l'eau. Le dosage du Cadmium dans l'eau a permis de valider la méthode PGNAA par simulation de la distribution du flux de neutrons et de l'atténuation des γ. Enfin, une simple méthode pour le contrôle de la qualité du béton par PGNAA a été mise au point.

4.1 Détermination du flux de neutrons dans un échantillon

4.1.1 Introduction

L'Analyse par gamma prompts (PGNAA) pour les échantillons volumineux, a montré un grand potentiel d'investigation dans une très large gamme d'application à savoir ; l'archéologie, l'environnement et l'industrie minière en utilisant la spectrométrie gamma de haute résolution [22]. L'analyse quantitative d'éléments nécessite la connaissance de la distribution du flux de neutrons dans l'échantillon. La mesure du flux à l'aide de moniteurs étant très laborieuse dans les échantillons volumineux, l'utilisation de la technique de manière routinière, nécessite souvent des standards ou la calibration du système d'irradiation. Pour pallier ces difficultés, des modèles de calculs sont développés pour simuler le dispositif expérimental [38, 39, 40].

Le but de ce chapitre est la possibilité de déterminer le flux de neutrons avec le code de diffusion CITATION [41] pour un système composé d'un échantillon volumineux d'eau et d'une source $^{241}Am - Be$ sans recourir à des mesures expérimentales très laborieuses [42].

A cet effet, le spectre de neutrons de la source $^{241}Am - Be$, converti en cinq groupes d'énergie est introduit comme donnée d'entrée pour le code par l'estimation de la fluence neutronique par unité d'énergie $\phi(E)$. Le fichier d'entrée pour le code, en plus du spectre de neutrons, contient la composition élémentaire de l'échantillon, les objets constituants le dispositif d'irradiation, leurs géométries et les coordonnées de chaque objet. Le tableau 4 (voir annexes) représente un fichier d'entrée selon un format particulier pour le code CITATION. Les sections efficaces macroscopiques de diffusion et d'absorption sont introduites dans le cas d'échantillons où la concentration élémentaire est inconnue.

Dans ce travail, les sections efficaces microscopiques sont utilisées car il s'agit de calculer le flux dans un échantillon d'eau. Le code est utilisé pour le calcul de la distribution du flux en volume pour les 5 groupes d'énergie.

4.1.2 Source $^{241}Am - Be$

La source $^{241}Am-Be$ produit des neutrons par la réaction nucléaire (α, n). Elle est constituée d'un mélange de l'isotope radioactif ^{241}Am (émetteur α , $T_{\frac{1}{2}}$ = 438 ans) et d'une poudre de Béryllium ^{9}Be en vue de produire la réaction nucléaire exothermique :

$$^{9}Be + \alpha \rightarrow^{12} C + n, \quad avec \qquad Q = 5.65MeV.$$

Le flux de neutrons produit est de 2.2 10^6 n/s par Ci de $^{241}Am - Be$. Le débit d'équivalent de dose est de 22 Sv/h à 1 m. Si on désigne par M , Mn et Mc respectivement les masses des particules α, des neutrons et de ^{12}C, l'énergie cinétique du neutron émis dans la direction θ est donnée par l'expression :

$$\sqrt{T_n} = \frac{\sqrt{M_n M_\alpha T_\alpha}}{M_C + M_n}\cos\theta + \sqrt{\frac{M_\alpha M_n T_\alpha}{(M_n + M_C)^2}\cos^2\theta + \frac{M_C Q + T_\alpha(M_C - M_\alpha)}{M_n + M_C}} \quad (4.1)$$

Pour T_α= 5.44 MeV, l'énergie cinétique maximale correspondant à θ= 0 est $T_n(max)$ = 10.9 MeV. En réalité, le spectre des neutrons est complexe et variable d'une source à une autre, la figure 4.1 montre la distribution en énergie des neutrons émis par la source $^{241}Am - Be$ utilisée.

Les faits suivants expliquent la complexité de ce spectre :

- Les particules α ne participent pas uniquement à la formation du ^{12}C dans son état fondamental. Il existe d'autres voies competitives (figure 4.2) conduisant à la formation du ^{12}C dans des états excités.
- Le noyau ^{12}C est laissé dans un état excité et le neutron est alors émis avec une énergie inférieure à la valeur prévue, on trouve alors dans le spectre plusieurs groupes de neutrons, chacun correspondent à un état excité de ^{12}C.
- En général, la cible de ^{9}Be , même lorsqu'elle est pulvérisée , garde une épaisseur assez grande par rapport au parcours (environ 28 μm) des α incidents dans le béryllium par conséquent, les particules α peuvent donc perdre une partie de leurs énergie avant d'interagir avec un noyau de ^{9}Be. Les neutrons émis vers l'avant auront des énergies comprises entre le maximum et une valeur correspondante à une particule d'énergie nulle

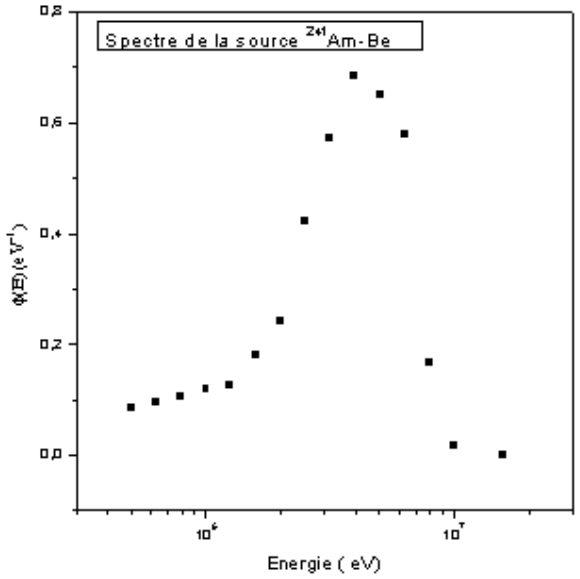


FIGURE 4.1 *Spectre énergetique de la source d'* $^{241}Am - Be$ *[3]*

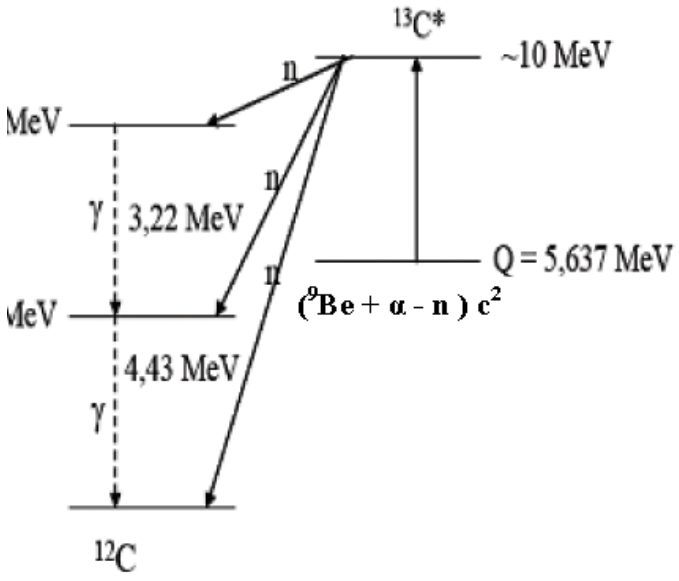


FIGURE 4.2 *Schéma de la réaction* $^{9}Be + \alpha \rightarrow^{12} C + n$

4.1.3 Détermination du flux de neutrons $\phi(E)$ à partir du spectre

De récents travaux décrivant les spectres de neutrons relatifs aux sources isotopiques ont été publiés [3]. La table 4.1 montre cinq groupes d'énergie utilisés pour la source $^{241}Am - Be$. Les quatre premiers groupes d'énergie correspondent aux neutrons rapides et le dernier groupe représente les neutrons thermiques affecté d'une valeur égale à zéro. Le spectre énergétique des neutrons, représente la distribution du flux de neutrons $\phi(E)$, où E est l'énergie du neutron. A partir du graphe 4.1, on a :

$$\phi(E) = \Delta E \;\; F_N, \qquad (MeV^{-1}) \tag{4.2}$$

où ΔE représente un intervalle d'énergie et F_N la valeur correspondante du flux sur le spectre. Le spectre est donné en fluence par intervalle d'énergie et une grille standard par intervalle d'énergie est utilisée. Chaque intervalle est défini par sa limite inferieure E_i, et sa limite supérieure E_{i+1}. Les intervalles d'énergie au nombre de 25 ont été utilisés avec E_1=19.64 MeV et E_{26}=0.5 MeV. Le flux correspondant au i^{me} intervalle d'énergie est donné par :

$$\phi = \int_{E_i}^{E_{i+1}} F_N dE \tag{4.3}$$

Toutefois, les valeurs du spectre de neutrons $\phi(E)$ [3], représentent une fluence sur un intervalle d'énergie ln $E_{i+1} - lnE_i$ (appelé léthargie) et sont normalisés :

$$\phi = \sum_{i=1}^{l} \phi_i \tag{4.4}$$

ou l est égale à 25 et la valeur $\phi(E)$ est par définition donnée en MeV $^{-1}$.

Dans le but de tenir compte, des énergies inferieures à 0.5 MeV, la distribution suivante est utilisée à partir du spectre 4.1 :

$$\phi(E) = C\sqrt{E}, \quad pour \;\; E \leq 0,5MeV \tag{4.5}$$

et

$$\phi(E_0) = \phi(0,5MeV) = 0.086 \;\; MeV^{-1} \tag{4.6}$$

Alors,

$$C = 1.2\ 10^{-4}$$

Pour l compris entre 26 à 50,

$$\int_{E_i}^{E_{i+1}} \phi(E)dE = C \int_{E_i}^{E_{i+1}} \sqrt{E}dE \tag{4.7}$$

Les résultats obtenus pour un spectre normalisé sont donnés dans le tableau 4.1

Groupe	Energie des neutrons (eV)	Spectre de neutrons normalisé
1	(6,065 - 20) 10^6	0,2772
2	(2,019 - 6,065) 10^6	0,5027
3	(0,111 - 2,019) 10^6	0,1905
4	0,5 - 0,111 10^6	0,0036
5	0 - 0,5	0

TABLE *4.1* *Intervalle des 5 groupes d'énergie*

4.1.4 Exemples d'application du code CITATION

La dépression du flux de neutrons et sa thermalisation dans l'échantillon sont caracterisées par la section efficace macroscopique d'absorption Σ_a et le coefficient de diffusion D du milieu à analyser. Si la composition élementaire est connue, la section efficace macroscopique d'absorption et le coefficient de diffusion de l'échantillon peuvent être calculés en utilisant les valeurs données par [43]. A l'aide de ces informations, la distribution du flux de neutrons en trois dimensions peut être calculée en utilisant la solution numérique de l'équation de diffusion au moyen du code CITATION. Le précédent code n'est utilisé que dans le cas d'analyse d'échantillon contenant des élements ayant une faible absorption aux neutrons. Un exemple de calcul avec CITATION est donné par la figure 4.3, qui représente la distribution du flux de neutrons autour d'un échantillon cylindrique.

4.1.5 Dispositif d'irradiation utilisé

Le dispositif d'irradiation pour la technique PGNAA est représenté par la figure 4.4. Il consiste en une source isotopique de neutrons $^{241}Am - Be$, qui délivre 2.2 10^6 ns^{-1}, d'activité 37 GBq (1 Ci) et située dans un bloc cubique de paraffine dans sa position d'irradiation. Un échantillon d'eau de volume 0.125 m^3 est

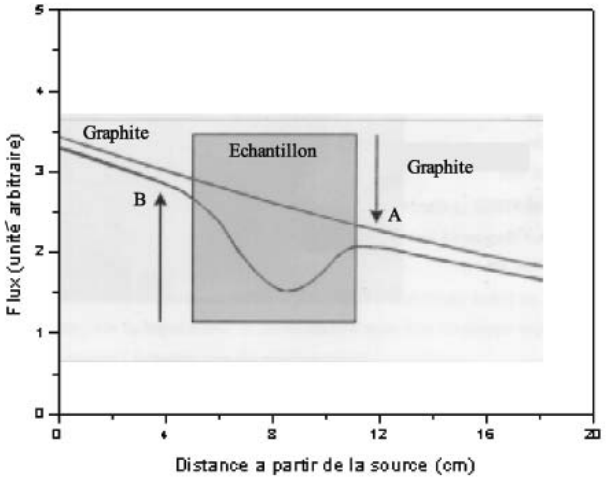


FIGURE *4.3* *Distribution du flux à l'intérieur et l'extèrieur d'un échantillon cylindrique entouré de graphite et calculé par CITATION. La courbe A représente un échantillon de graphite et la courbe B représente un échantillon d'eau.*

contenu dans un fût cylindrique en polyéthylène, d'épaisseur 0.3 cm et de 49 cm de diamètre. L'eau joue un rôle essentiel dans le ralentissement et la radioprotection contre les neutrons rapides et des raies gamma d'énergie 4,43 MeV issues directement de la source de neutrons.

Le calcul à l'aide du code CITATION du flux de neutrons à trois dimensions est exécuté pour la géométrie schématisé par la figure 4.4. Le code résout les équations de diffusion multi-groupes pour donner la distribution du flux par groupes d'énergie en fonction de la position.

4.1.6 Calcul de la distribution du flux

La distribution du flux de neutrons est déterminée pour les cinq groupes d'énergie, rapides et thermiques en fonction de la profondeur de l'échantillon d'eau . Les courbes obtenues sont montrées sur la figure 4.5 selon la géométrie source, air, polyéthylène et eau. Dans l'air situé entre la source et le polyéthylène, il apparaît l'existence d'un faible flux thermique (qq centaines de neutrons) dû à l'interaction des neutrons rapides dans le porte source en paraffine. A l'intérieur de l'échantillon le ralentissement est observé, le flux thermique croit dans l'eau jusqu'à un maximum de 2600 neutrons, par contre le flux de neutrons rapides décroit à partir

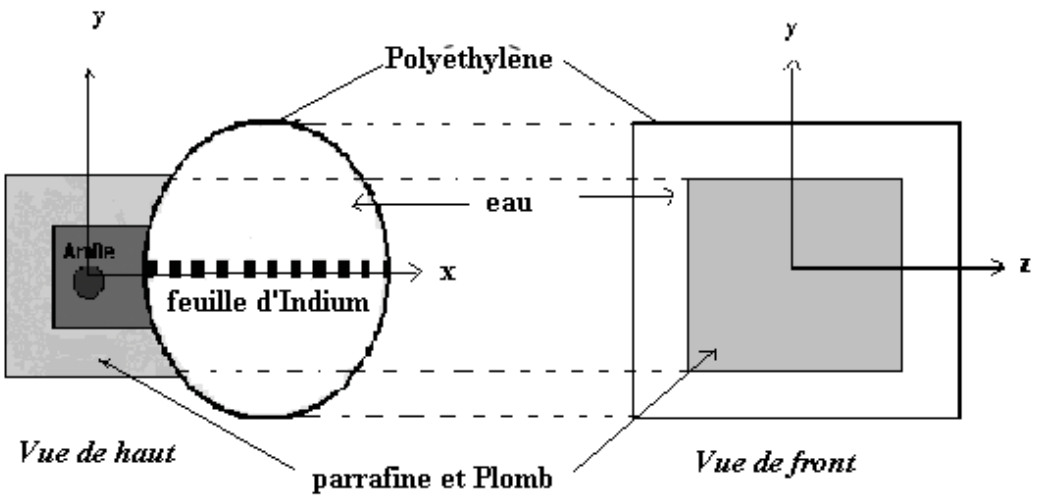


FIGURE 4.4 *Dispositif d'irradiation et de mesure du flux de neutrons*

de 0,3 cm de distance du polyéthylène du porte échantillon.

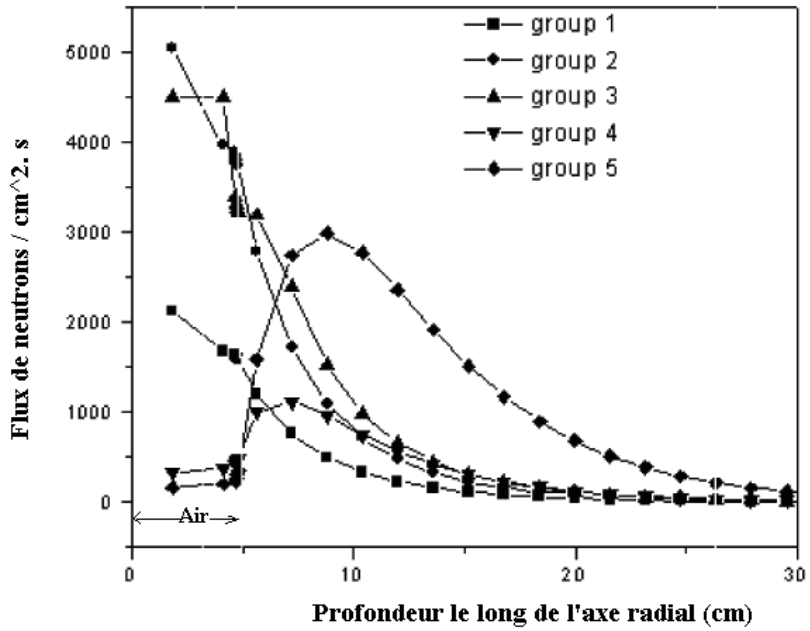


FIGURE 4.5 *Distribution du flux de neutrons en fonction de la profondeur*

La figure 4.6 , représente le flux thermique en transversale pour une série de profondeurs dans l'eau $(x_0, y, 0)$. Les courbes obtenues montrent la possibilité d'optimiser les dimensions de l'échantillon pour une bonne sensibilité (faible bruit de fond, flux thermique et rendement de détection importants).

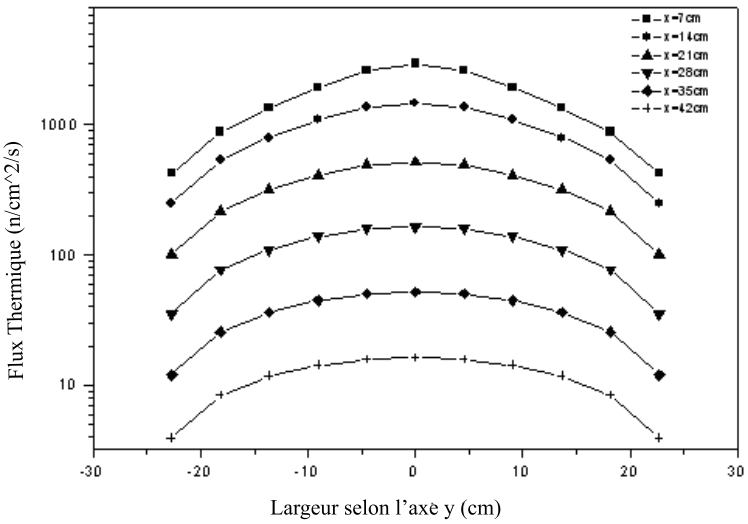


FIGURE 4.6 *Distribution transversale du flux thermique à differentes profondeurs (x,y,0)*

Le flux thermique (groupe 5) calculé par le code CITATION est représenté sur la figure 4.7

4.1.7 Mesure du flux thermique

Dans le souci de vérifier les résultats obtenus à l'aide du code CITATION, le flux thermique est mesuré par la technique d'activation neutronique avec une feuille d'indium, utilisant la réaction $^{115}In(n,\gamma)^{116m}In$, ayant une section efficace de capture de 70 b. La feuille d'indium d'1 g de très haute pureté est irradiée durant 3 heures pour une série de positions dans l'échantillon d'eau déminéralisée (figure 4.4). La composante épithermique du flux de neutrons a été estimée en plaçant la feuille d'indium dans une capsule en cadmium, ensuite irradiée et mesurée aux mêmes positions. L'activité induite est mesurée pendant 2 heures dans une station de comptage à faible bruit de fond.

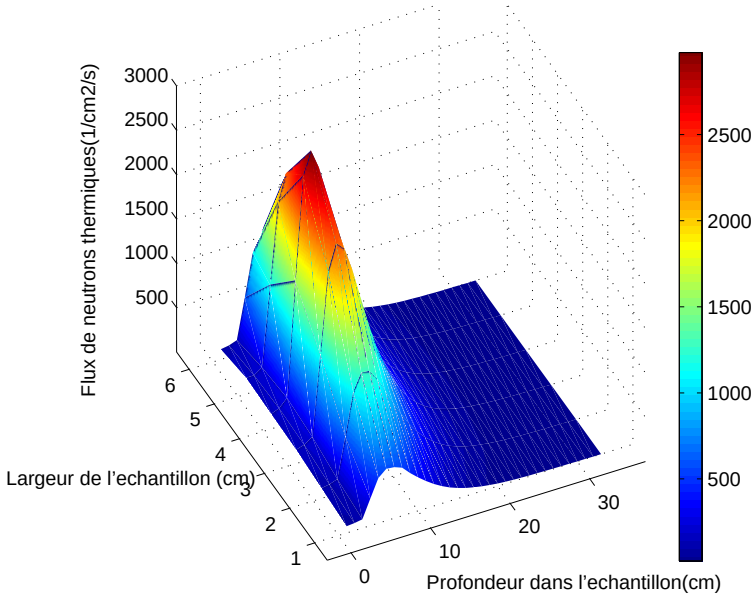


FIGURE 4.7 *Distribution du flux thermique selon (x,y,0)*

A partir du spectre obtenu, le flux de neutrons moyen est determiné pour les trois raies gamma d'énergie 417, 1097 et 1293 keV, émises par la réaction $^{115}In(n,\gamma)^{116m}In$. Le flux de neutrons est donné en neutrons par unité de surface et de temps, par la relation :

$$\varphi_{th} = \frac{A\lambda}{N_o \sigma I \varepsilon (1 - e^{-\lambda t_i})(e^{-\lambda t_d})(1 - e^{-\lambda t_c})} \tag{4.8}$$

Avec :

- N_o : nombre de noyaux cible,
- σ : section éfficace de la réaction en cm^2
- A : aire sous le pic gamma
- I : intensité de la raie gamma en $\%$.
- λ : constante de décroissance radioactive en s^{-1}
- ε : efficacité du détecteur pour le pic gamma d'intérêt
- t_i, t_d et t_c : temps d'irradiation, de décroissance et de comptage respectivement en s.

Les paramètres temps sont présélectionnés par l'utilisateur, les autres para-

mètres sont tabulés et l'aire sous le pic gamma est prise sur le spectre gamma. Seule l'efficacité du détecteur est à mesurer au préalable grâce a une source étalon d'^{152}Eu.

4.1.8 Résultats

Une comparaison de la distribution du flux thermique mesurée et calculée est représentée sur la figure 4.8. Les valeurs du flux calculé sont ajustées par une fonction pulse et il apparaît une allure identique à la distribution. Par contre une légère différence entre les valeurs mesurées et calculées se situe autour du maximum du flux thermique. Au delà de 10 cm de profondeur dans l'échantillon, les valeurs obtenues sont en bon accord.

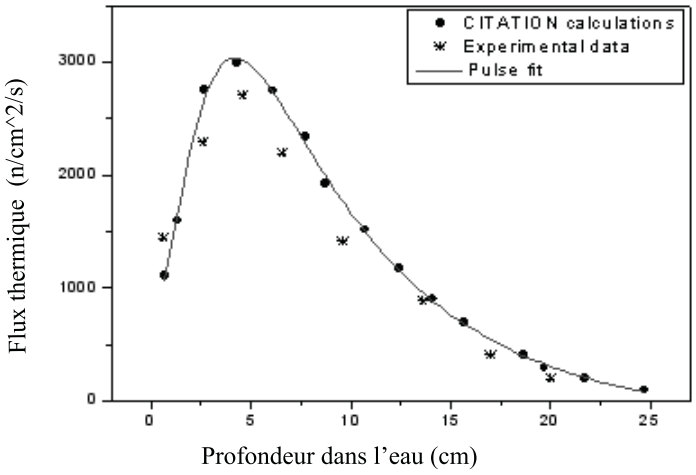


FIGURE 4.8 *Distibution du flux thermique en fonction de la profondeur dans l'échantillon*

La valeur maximale calculée du flux de neutrons est de 2.8 $10^3 cm^{-2}.s^{-1}$, obtenue à une profondeur de 4,3 cm. En revanche, le flux maximum mesuré se situe à une profondeur de 4,1 cm. Ainsi, la meilleure position d'irradiation est située entre 2 et 5 cm dans l'échantillon d'eau. A partir de 20 cm de profondeur, le flux de neutrons thermiques décroit jusqu'à une valeur de $10^2 cm^{-2} s^{-1}$.

4.1.9 Conclusion

Les valeurs obtenues avec le code CITATION sont comparables aux valeurs mesurées. La connaissance de la distribution du flux à l'intérieur d'un échantillon volumineux d'eau permet la calibration du système d'irradiation en PGNAA pour la quantification de certains éléments légers. La détermination de la région où la valeur du flux de neutrons est optimale permet l'utilisation du dispositif d'irradiation pour l'analyse d'échantillon plus petit avec une meilleure sensibilité. Les calculs du flux ont montré aussi que le volume de l'échantillon peut être réduit à un volume de 80 litres, car au delà de 20 cm de profondeur le flux devient très faible.

4.2 Limite de détection des polluants dans l'eau

4.2.1 Introduction

L'analyse par activation neutronique utilisant les gamma prompts (PGNAA) est une technique très répandue pour l'analyse in situ et en temps réel grâce à la disponibilité de sources isotopiques portables, dans différents domaines (la géologie, l'industrie minière et pétrolière, la pollution marine,.). La majeure partie des travaux, concernant la technique PGNAA, consistent en la détermination des éléments légers ou ayant une grande section efficace [44]. Cette méthode a été appliquée dans le but de développer un dispositif d'irradiation sur site [45, 38, 39, 40, 46].

Le présent travail est une estimation des limites de détection des polluants dans un échantillon volumineux d'eau (0,125 m^3) en utilisant une source de neutrons $^{241}Am - Be$. Le dispositif a été optimisé pour améliorer la précision des limites de détection, utilisant le meilleur rapport signal sur bruit pour la raie gamma d'énergie 2223 keV issue de la réaction de capture de l'hydrogène, $^1_1$H(n,γ).

Le code MCNP, version 4B [47] a été utilisé pour la détermination du flux de neutrons dans l'échantillon d'eau [48]. Le rendement de détection gamma a été mesuré et comparé aux valeurs calculées [36].

4.2.2 Simulation par Monte Carlo

La simulation par la méthode Monte Carlo du transport des neutrons a été faite à l'aide du code MCNP, version 4B, utilisant les sections efficaces de la librairie Jeff2.2.

Le code MCNP a été instruit en mode neutrons (n) pour calculer la distribution du flux de neutrons en 3 dimensions, résultant de l'interaction des neutrons dans l'échantillon d'eau. La distribution du flux thermique est calculée par point au moyen d'un "tally" F5 et le flux thermique moyen dans l'échantillon d'eau par libre parcours moyen avec le "tally" F4. Les deux "tallies" sont donnés en cm^2/neutron

La variation du flux thermique en fonction de la profondeur suivant l'axe de l'échantillon est représentée sur la figure 4.9. Les erreurs relatives de calcul sont situées suivant les écarts statistiques entre 5 - 11$\%$.

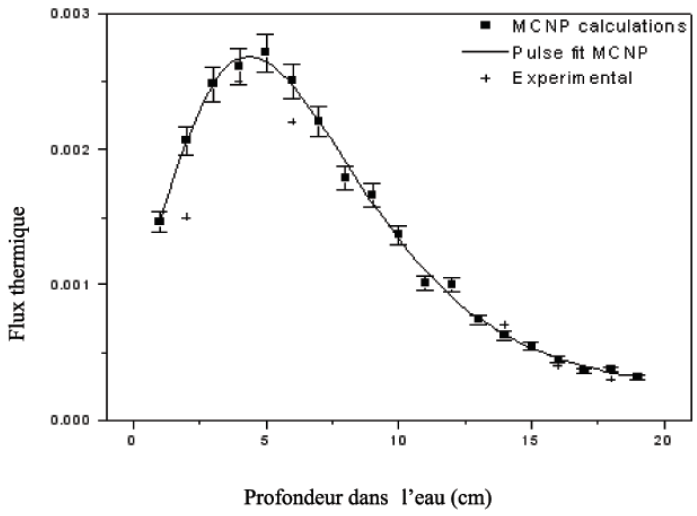


FIGURE 4.9 *Flux thermique en fonction de la profondeur suivant l'axe central de l'échantillon d'eau*

4.2.3 Résultats et discussion

Calcul du Flux de neutrons dans l'eau :

Les calculs ont été menés en mode neutron pour un nombre d'histoires de 10^6, pour estimer la distribution du flux thermique et le flux thermique moyen dans l'échantillon. La variation du flux thermique relative en fonction de la profondeur suivant l'axe de l'échantillon est représenté sur la figure 4.9.

Les valeurs obtenues pour la distribution du flux thermique ont été ajustées par une fonction "impulsion". L'hydrogène joue un rôle essentiel dans le ralentissement des neutrons rapides issus de la source. La plus importante valeur du flux de neutrons a été trouvée égale à 2628/$cm^2.s$, correspondant à une profondeur de 4,3 cm suivant l'axe de l'échantillon d'eau.

L'augmentation de la concentration d'hydrogène induit un flux thermique plus important au voisinage de la source. A 20 cm de la source $^{241}Am - Be$, 77 $\%$ du flux total est atteint et 92 $\%$ des neutrons dans l'échantillon sont confinés dans les 40 cm. Ce résultat confirme notre choix sur le volume optimum d'eau utilisé dans ce travail (49 cm de diamètre).

Le flux de neutrons thermiques, mesuré au moyen d'un compteur proportion-

nel BF_3 a été déterminé afin de vérifier que les considérations minimales de radioprotection ont été satisfaites (2,5 m.Rem/h à 3m de distance de la source). Cela permet aussi de compléter les valeurs du flux thermique estimé par calcul au niveau du container. Les valeurs obtenues sont de l'ordre de 1 n/$cm^2.s$, donc en bon accord avec les valeurs calculées par MCNP. Le flux thermique moyen dans l'eau est de l'ordre de 173 n/$cm^2.s$ et cette valeur est donnée par le code MCNP avec l'estimateur "tally" F4.

Mesure de l'éfficacité du détecteur

L'efficacité du détecteur a été faite par irradiation de 0.125 m^3 d'eau dans laquelle 13 g/l de NH_4Cl ont été dissouts. La capture neutronique du chlore possède une grande section efficace de réaction 33.2 b et donne par émission un large spectre gamma, allant de 788 keV a 7413 keV, très utilisé en calibration pour la technique PGNAA.

Le spectre gamma prompts a été collecté pendant 7200 s et l'efficacité en fonction de l'énergie a été mesurée en utilisant les aires sous les pics des raies gamma, leurs intensités et la valeur moyenne du flux de neutrons thermiques.

Calcul de l'efficacité du détecteur par le code MC-Gamma

L'efficacité du détecteur a été calculée pour l'échantillon volumineux d'eau dans son container. Le programme Monte Carlo, MC-gamma a été utilisé pour calculer l'efficacité absolue du détecteur pour les échantillons volumineux en tenant compte de l'atténuation des raies γ à l'intérieur de l'échantillon, les objets intervenants dans la protection du détecteur et les matériaux qui le composent [49].

Les dimensions exactes du détecteur GeHP, sont fournies par le constructeur. Le code MC-gamma calcule l'efficacité absolue du détecteur en considérant l'échantillon volumineux comme source gamma, sur un PC Pentium 4 pour 50,000 histoires de photons (5 batch de 10,000 photons). Le résultat final est l'efficacité moyenne sur les 5 batch.

L'efficacité relative du détecteur en fonction de l'énergie est représentée sur la figure 4.10, où les valeurs obtenues sont ajustées par une fonction exponentielle. La variation de l'efficacité relative est significative pour les énergies inférieures à 4000 keV.

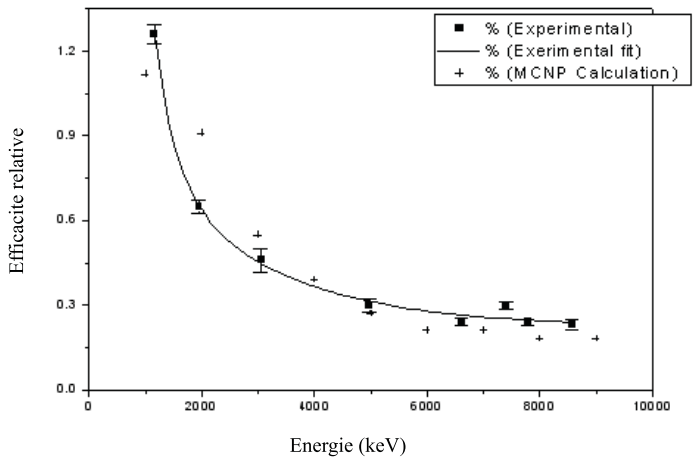


FIGURE *4.10* *Efficacité relative du détecteur en fonction de l'énergie des γ*

La comparaison entre les valeurs expérimentales et celles calculées par Monte Carlo (programme MC-gamma) est représentée sur la figure 4.10. Un bon accord est observé entre l'efficacité relative mesurée et celle calculée.

Limites de détection

Le bruit de fond du spectre gamma prompt a été mesuré après remplacement de la solution de chlorure d'Ammonium par la même quantité d'eau déminéralisée. Un spectre gamma prompt est collecté pendant 7200 secondes (figure 4.11). La plupart des pics photoélectriques observés sur le spectre sont dûs aux interactions des neutrons sur l'hydrogène et le germanium (réactions $H(n,\gamma)$ et $Ge(n,\gamma)$ respectivement).

La calibration en énergie de la chaîne de détection est faite a l'aide des pics gamma 2223 keV émis par l'hydrogène et le pic 4430 keV raie γ issue directement de la source $^{241}Am-Be$.

La détection limite pour un élément d'intérêt, L_D est proportionnelle aux fluctuations statistiques du bruit de fond sur la sensibilité de comptage et est évaluée par [34]

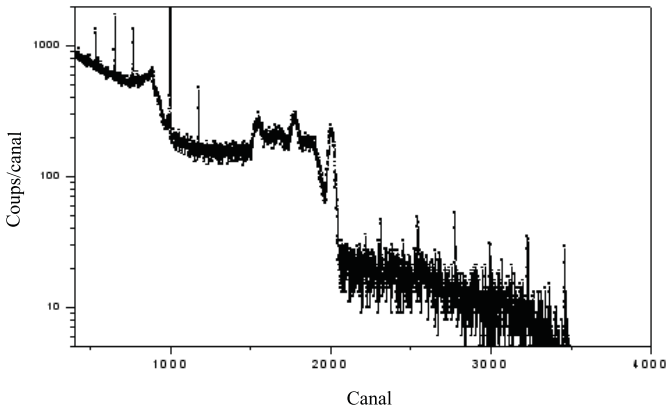


FIGURE *4.11* *Spectre gamma prompts de chlorure d'Ammonium collecté pendant 7200 s.*

$$L_D = 3\sqrt{\frac{\frac{dB}{dt}}{t_C}}\,\frac{1}{S} \tag{4.9}$$

Avec :

– dB/dt : le taux du bruit de fond en coups par seconde,
– t_C : le temps de comptage présélectionné et
– S : la sensibilité en cps/s.g.

Dans le tableau 4.2, les limites de détection de certains polluants dans 125 litres d'eau sont données (par l'équation 2.14). La première colonne montre l'énergie de la raie gamma utilisée pour l'analyse (E_γ), la seconde colonne contient les valeurs des sections efficaces effectives (σ_{th}). Dans les colonnes trois et quatre, l'intensité absolue des raies γ par capture de 100 neutrons (I_γ) et l'efficacité calculée du détecteur.

Seul le cadmium est obtenu avec une limite de détection de l'ordre du ppm $(\mu g/g)$, par contre le mercure et le chlore sont déterminés dans l'ordre de 100 ppm. Le domaine d'une eau fortement polluée est atteinte pour le nickel, le manganèse, le chrome, le cuivre et le fer avec une limite de détection d'environ 700 ppm.

La technique PGNAA utilisant cette configuration n'est pas possible pour l'analyse du sélénium et du zinc car leur limite de détection est de l'ordre du mg/g. Le

Elements	E_γ (keV)	$I^a(\gamma/capture)$	$\sigma_{th}(b)$	Efficacite (10^{-6})	Limite de detection (p.p.m)
^{113}Cd	559	0.727	2450	8.86	9.80
^{75}As	1534	0.072	4.3	8.17	23494
^{199}Hg	5966	0.139	376	5.10	86.8
^{35}Cl	6110	0.200	33.2	4.92	104
^{76}Se	6601	0.029	11.7	4.65	5758
^{55}Mn	7243	0.120	13.3	4.21	552
^{207}Pb	7367	0.941	0.17	4.13	20287
^{56}Fe	7631	0.285	2.55	3.95	783
^{67}Zn	7863	0.106	1.10	3.79	5781
^{63}Cu	7914	0.308	3.79	3.76	670
^{53}Cr	8884	0.270	3.10	3.11	645
^{58}Ni	8994	0.370	4.43	3.03	284

[a] Données obtenues dans [49]

TABLE 4.2 *Limite de detection des polluants dans l'eau par la méthode PGNAA*

plomb et l'arsenic peuvent être déterminés pour des concentrations plus élevées.

L'amélioration de la limite de détection par un facteur 10 pourra être atteint en utilisant une source de neutrons plus intense, en optimisant la technique PGNAA par une nouvelle géométrie, du dispositif d'irradiation et de mesure. L'utilisation de la simulation par Monte Carlo avec MCNP permet d'avoir le flux maximum.

Une limite de détection dix fois inférieure sera possible uniquement au moyen d'un détecteur d'efficacité supérieure. Ces améliorations du dispositif sont essentielles pour permettre à la technique PGNNA d'être un puissant outil pour l'analyse des polluants dans l'eau.

4.2.4 Conclusion

Les mesures ont montré que la méthode PGNAA au moyen de la source $^{241}Am-Be$ dans sa configuration actuelle est utilisable pour la détermination de polluants dans l'eau car les valeurs obtenues sont comparables aux valeurs standard données

pour la pollution de l'eau

Les limites de détection pour les éléments polluants dans l'eau ont été determinées et prédites pour évaluer la possibilité d'application d'une sonde neutronique pour les mesures sur site.

L'amélioration de la sensibilité pourra être atteinte avec l'augmentation du flux de neutrons au moyen d'une meilleure géométrie (introduction de collimateurs de neutrons)et avec un détecteur ayant une efficacité plus importante.

4.3 Salinité de l'eau

4.3.1 Introduction

Une utilisation répandue des composés fortement chlorés (activités d'extraction, pesticide, agent dégraissant,.) et de leur dégagement accidentel ou délibéré dans l'environnement a mené à la contamination des eaux souterraines. La contamination des sols, de l'eau potable par les composés chlorés pose un défi sérieux à beaucoup d'emplacements industriels et commerciaux [50, 51]. À la différence des techniques traditionnelles pour la détermination in situ de la salinité en mesurant les propriétés de l'eau salée prélevée, la technique PGNAA au moyen d'une source de neutrons mesure la salinité en termes de contenu de chlore par la détection des raies gamma prompts émis lors de la réaction $Cl(n,\gamma)$ [40, 39].

Le présent travail décrit l'optimisation de la méthode PGNAA installée avec une source de neutrons $^{241}AmBe$ en utilisant le code de Monte Carlo, MCNP4C [47]. Ainsi, différents matériaux employés pour la collimation des neutrons, le volume de l'échantillon ainsi que différentes dimensions des collimateurs de neutrons ont été étudiés. L'optimisation a été concentrée sur le calcul de la sensibilité maximale, du flux de neutrons transmis par rapport à la variation de la masse du chlore. La sensibilité élevée aux changements de la quantité du chlore signifie un changement rapide du flux de neutrons mesuré [52].

En application, la calibration du dispositif expérimental pour la détermination de la salinité a été effectuée en utilisant diverses quantités de chlore dans un échantillon d'eau pur [53]. Le taux de comptage du chlore, mesuré sous le pic de la raie gamma 6110 keV a été tracé en fonction de la concentration du chlore. Les résultats montrent que le taux de comptage change linéairement avec la quantité de chlore.

4.3.2 Simulation du dispositif experimental de la PGNAA par le code MCNP

Optimisation du dispositif

Le but d'optimisation du dispositif d'irradiation était d'obtenir une bonne sensibilité et un flux de neutrons thermiques élevé à l'intérieur de l'échantillon. La

sensibilité élevée aux variations de la quantité de chlore signifie un changement rapide du flux mesuré de neutrons avec le changement du contenu de chlore. Un flux élevé de neutrons signifie une erreur statistique relative faible. Ces deux buts mènent à une précision plus élevée de la mesure de salinité.

La modélisation du dispositif d'irradiation a été exécutée en utilisant le code Monte Carlo, MCNP4C sur une plateforme de calcul VMS. L'évaluation de la densité moyenne du flux de neutrons (estimateur F4) en unité (n $/cm^2$) a été employée. Le nombre d'histoires utilisé pour chaque problème était de $3\ 10^6$, qui assure une erreur statistique relative du flux de neutrons à être moins de 16%. Dans beaucoup de cas elle était moins de 2%. La bibliothèque standard de données fournies avec MCNP, basée sur des données nucléaires évaluées (ENDFB-VI) a été employée dans les calculs de simulation. La configuration expérimentale PGNAA, présentée comme entrée au code MCNP4C pour la détermination de salinité est montrée sur la figure 3.3.

Elle est composée d'une source de neutron $^{241}AmBe$ avec une activité de 2.2 $10^6\ ns^{-1}$, située à l'intérieur d'un bloc cubique en paraffine. L'échantillon utilisé est composé de 5 litres d'eau pure dans laquelle 10 g de chlorure de sodium ont été dissous. La longueur du porte échantillon en plexiglas est de 25 centimètres et son épaisseur est de 3mm.

Le détecteur utilisé pour les raies gamma prompts a été simulé par un cylindre régulier de 52.02 millimètres diamètre et de 64.9 millimètres de longueur, qui correspond aux dimensions réelles du détecteur GeHP indiqué par le constructeur. Du polyéthylène boré a été employé comme protection contre les dommages du détecteur par une densité élevée de neutrons. Un disque d'épaisseur 0.3 centimètre de Plexiglas, rempli de 1cm de Li_2CO_3, est positionné en face du détecteur pour arrêter les neutrons thermiques et leur dispersion dans le volume actif du détecteur.

Il a été mentionné précédemment que le but à atteindre est un flux de neutrons élevé dans l'échantillon et la sensibilité élevée du flux transmis par rapport à la variation de la quantité du chlore. La precision de la mesure de chlore dépend du taux de comptage, qui à son tour est proportionnel au flux de neutrons. Le facteur de sensibilité S (1/g) est donné par :

$$S = \frac{\frac{\Delta\varphi}{\varphi}}{\Delta M} = \frac{\frac{\varphi_d - \varphi_0}{\varphi_0}}{\Delta M} \tag{4.10}$$

où :

– φ_d : flux de neutrons transmis dans l'échantillon contenant ΔM g de chlore
– φ_0 : Flux de neutrons transmis à travers le récipient vide.
– ΔM : quantité de chlore en g.

De plus le rapport signal sur bruit a été présenté comme le rapport du flux de neutrons transmis vers le détecteur par rapport au flux de neutrons dispersés sur un anneau de 23 centimètres de diamètre d'air placé autour du détecteur. Ce rapport est un indicateur d'une détérioration du faisceau provoquée par les neutrons diffusés vers l'avant. Pour choisir une installation optimale, les valeurs calculées S et le rapport du signal sur bruit ont été examinées pour différentes matériaux employées pour la construction du collimateur de neutrons. La longueur de l'échantillon et différentes dimensions des collimateurs de neutrons de formes cylindriques ont été étudiées.

Préparation de l'échantillon et acquisition des données

Pour étudier la calibration du système PGNAA pour la détermination du chlore, plusieurs quantités de chlorure de sodium (NaCl) dans la gamme de 10 à 60 g ont été dissoutes dans 5 litres d'eau pure. Les spectres de raies gamma prompt ont été acquis sur analyseur MCA 8K intégré au PC. La calibration du MCA en énergie a été faite a l'aide de la raie gamma prompt du pic d'énergie 2223 keV et la raie gamma d'énergie 4430 keV émises respectivement par l'hydrogène et le carbone. Le dispositif expérimental pour la calibration en chlore dans des échantillons volumineux est donné sur la figure 3.3.

4.3.3 Résultats et discussion

Variation de la sensibilité

Le but de la simulation avec le code MCNP était le choix du meilleur collimateur de neutrons entre le Plexiglas ($C_5H_8O_2$), la paraffine, le polyéthylène $(CH_2)_n$ et le polyéthylène boré (avec 3% en poids de bore). Dans le tableau 4.3, les valeurs calculées de la sensibilité S et du rapport "signal sur bruit" sont représentées pour l'échantillon avec une longueur de 25 centimètres. La longueur et le diamètre du collimateur sont pris égaux à 10 centimètres et à 3 centimètres respectivement. Le coefficient de corrélation linéaire obtenu est de 0.87 qui représente une bonne

corrélation entre la sensibilité et le rapport "signal sur bruit".

Matériau du collimateur	Rapport signal sur bruit	Sensibilité 10^{-2}(1/g)
Graphite	1.39	0.035
Plexiglas	1.50	0.038
Paraffine	1.63	0.041
Polyéthylène	1.64	0.049
Polyétylène ($+3\%$ de B)	1.68	0.052

TABLE *4.3* *Résultats avec MCNP pour différents matériaux (Collimateurs de neutrons de longueur 10 cm et diamètre intérieur 3 cm)*

Ce dernier est un bon indicateur du meilleur matériau de collimation qui montre que le polyéthylène boré présente la valeur la plus élevée par rapport à celles des autres matériaux cités. Le collimateur de neutrons en polyéthylène boré assure une collimation optimale et ainsi que la sensibilité la plus élevée. La paraffine et le polyéthylène également ont de bonnes propriétés de collimation et sont bon marché et disponibles.

A l'aide du même estimateur (F4), les dimensions du collimateur ont été optimisées. À cette fin l'influence des différentes longueurs et diamètres des collimateurs de paraffine sur le flux de neutrons transmis par 10 g de chlorure de sodium dissous dans l'eau a été étudiée.

Sur la figure 4.12, la dépendance des valeurs calculées de la sensibilité S sur différentes longueurs de collimateur est représentée.

On peut voir sur cette figure que la valeur calculée de S devient faible après 15 cm de longueur du collimateur. La sensibilité S et la valeur de transmission du flux de neutrons sont des paramètres contradictoires. Ici l'augmentation du flux thermique avec la longueur du collimateur est due au fait que les neutrons rapides ralentissent à l'intérieur du collimateur par diffusion.

Ainsi pour atteindre un compromis entre la sensibilité décroissante S après un palier et la transmission de flux, le choix approprié est une longueur du collimateur de 10 centimètres.

La figure 4.13 montre la dépendance des valeurs calculées de la sensibilité S sur différentes longueurs d'échantillon en portant la longueur du collimateur à 10

cm.

On remarque que la sensibilité S avec la longueur de l'échantillon. Pour une longueur de l'échantillon supérieure à 25 cm, S approche de la saturation.

Ainsi la valeur optimale obtenue pour la longueur d'échantillon a est égale à 25 cm. En outre l'influence des diamètres du collimateur sur les valeurs calculées S a été étudiée. Les résultats obtenus pour le collimateur en paraffine de longueur 10 cm sont montrés sur la figure 4.14.

L'augmentation du diamètre du collimateur de 2 à 6 centimètres entraine une variation significative de la sensibilité (environ 61% de différence entre 2 cm et 6 cm du diamètre). Il apparaît à partir de la figure 4.9 un maximum de la sensibilité autour de 3 cm de diamètre du collimateur qui est la valeur optimale pour cette étude.

Calibration du dispositif

La figure 4.15 montre les pics des raies gamma les plus importantes émises par le ^{36}Cl pendant l'irradiation du NaCl dissout dans l'eau pure par les neutrons. Les spectres ont été acquis à l'aide d'un analyseur MCA 8K intégré au PC pour une

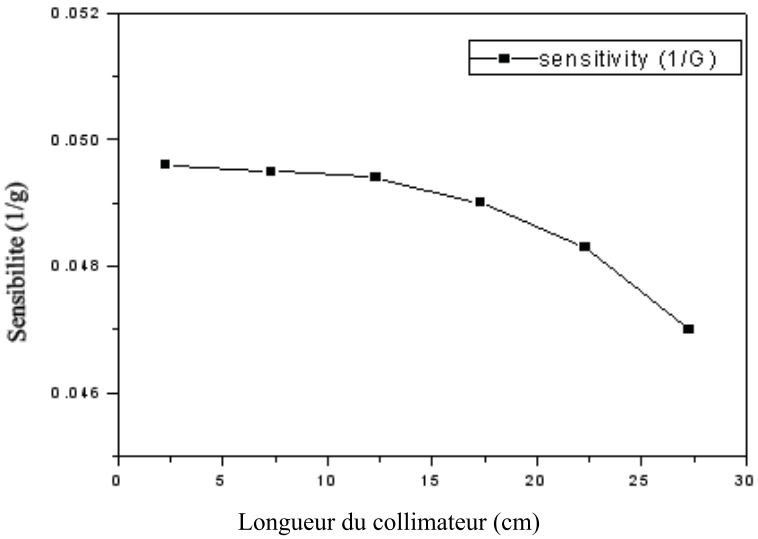


FIGURE *4.12* *Variation de la sensibilité en fonction de la longueur du collimateur*

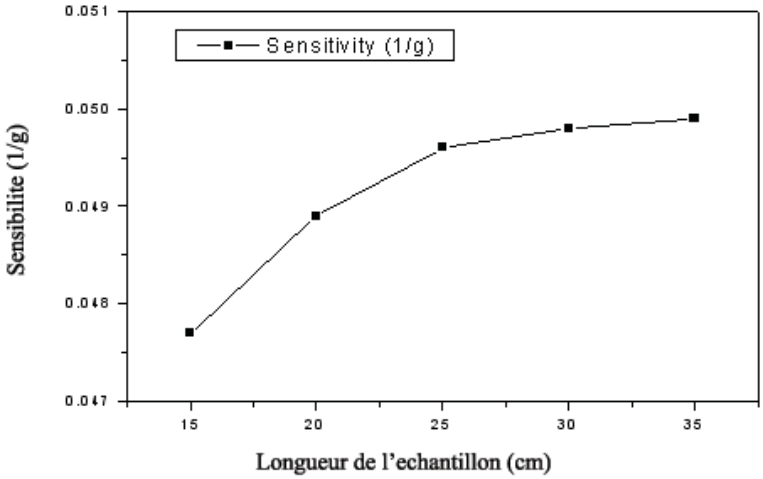


FIGURE 4.13 *Variation de la sensibilité en fonction de la longueur de l'échantillon*

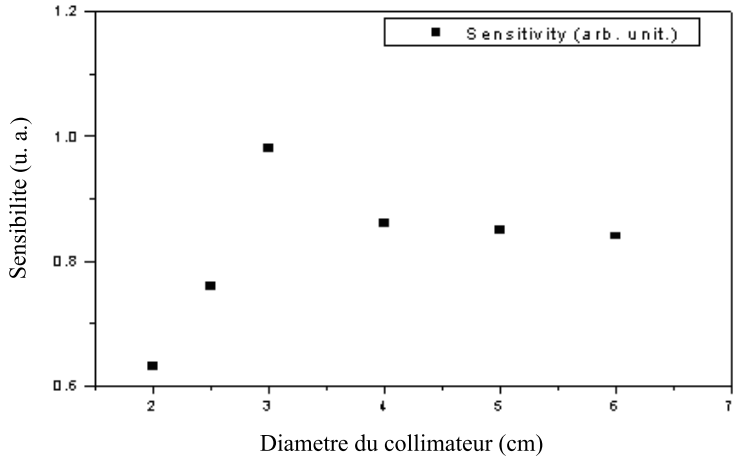


FIGURE 4.14 *Variation de la sensibilité en fonction du diamètre du collimateur*

durée d'irradiation comptage de 2000 s. Le chlore possède une section éfficace d'absorption de neutron, de 33.2 barns et une abondance d'environ 60% en poids de NaCl, mais l'hydrogène joue le rôle essentiel dans le ralentissement par diffusion des neutrons rapides. La raie gamma 2223 keV émise par l'hydrogène cause la partie importante du bruit de fond dans le spectre et son activité a été de 23 cps/s pour toutes les quantités de chlore ajoutées. Une masse de 36 g de chlore induit une activité de 0.18 cps/s pour la raie gamma 6110 keV du Chlore.

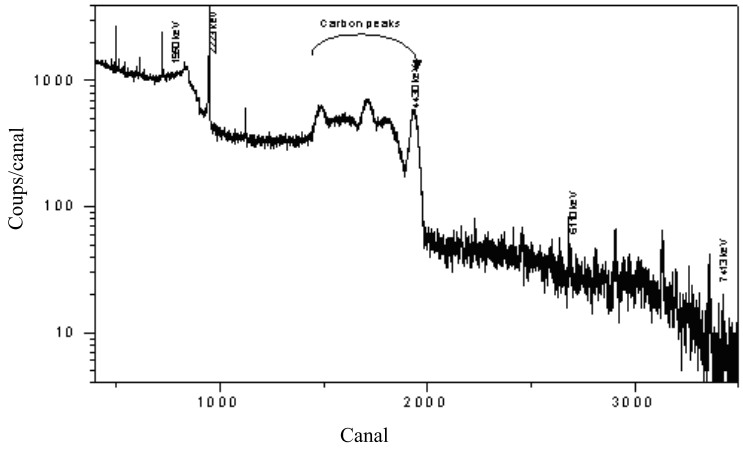


FIGURE *4.15* *PGNAA gamma ray spectrum for 6 g of NaCl*

La courbe reliant le taux de comptage mesuré sous l'aire du pic de la raie gamma d'énergie 6110 keV émise lors de la réaction $^{35}Cl(n,\gamma)^{36}Cl$ en fonction de la quantité de chlore est montrée sur la figure 4.16.

On observe à partir de la figure que le taux de comptage varie linéairement avec la quantité de chlore dans la gamme de 6g à 36 g. L'ajustement des valeurs expérimentales a été fait par une droite avec un coefficient de corrélation de 0.99367. Pour une quantité de chlore de moins de 1.2 g/l le temps de comptage devrait être plus grand car l'erreur sous l'aire du pic photoélectrique de la raie 6110 keV devient très importante. Avec la géométrie actuelle la contamination en chlore peu être déterminée juste par prélèvement d'un échantillon de volume precis (nappe

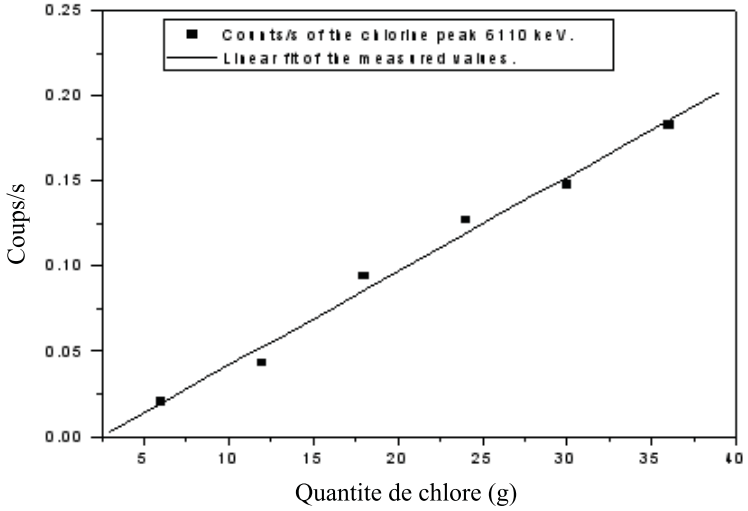


FIGURE 4.16 *Taux de comptage de la raie gamma 6110 keV en fonction de la quantité de chlore*

phréatique, lac, rejets industriels, etc,.)

4.3.4 Conclusion

Un dispositif d'irradiation a été optimisé pour les échantillons volumineux par la méthode PGNAA en utilisant le code de MCNP. Les matériaux les plus utilisés et disponibles dans le laboratoire ont été choisis pour le collimateur de neutrons. Les dimensions de l'échantillon, du collimateur ont été calculées avec fonction objectif, la sensibilité la plus élevée en prenant soin de limiter le nombre de neutrons rapides atteignant le détecteur de GeHP.

Les résultats obtenus en utilisant la configuration actuelle du dispositif d'irradiation permettent l'analyse des échantillons volumineux par la méthode PGNAA. En tant que technique non encombrante, flexible et capable de mesurer des concentrations en chlore dans un échantillon volumineux durant une période courte, la PGNAA peut être un outil de diagnostic valable pour la détermination de la contamination en chlore de l'eau.

4.4 Détermination du Cadmium dans un échantillon d'eau

4.4.1 Introduction

Le dispositif d'analyse par gamma prompts pour les échantillons en masses (PGNAA), employant une source d' $^{241}Am - Be$ a été utilisé dans le but de tester la méthode de simulation par Monte Carlo. A cet effet, la distribution du flux thermique ainsi que le calcul du rendement de detection gamma ont été obtenus par simulation avec le code MCNP4c2 pour la determination du cadmium dans un échantillon d'eau. Une méthode de calcul de la concentration d'elements présents dans un échantillon d'eau basée simplement sur la simulation du flux de neutrons et de l'éfficacité du détecteur utilisée a été developpée. Le rapport d'intensité de l'élement d'intérêt (Cadmium) sur le pic d'hydrogène obtenus sur le spectre gamma prompt a servi pour la simplification du calcul de concentration.

4.4.2 Calcul de concentration

La figure 4.17 montre le système de détection utilisé pour le calcul de la concentration dans un échantillon volumineux.

Une expression mathématique du taux de comptage d'une raie gamma prompt, issue de l'élément d'intérêt est donnée par [54] :

$$N = \int_x \int_y \int_z \varphi_{ref} \frac{\varphi(x,y,z)}{\varphi_{ref}} \, C(x,y,z) \, \rho \, a \, \sigma \, P \, \varepsilon_{ref} \frac{\varepsilon(x,y,z)}{\varepsilon_{ref}} \; e^{-\mu(z_e - z)} dz dy dz \tag{4.11}$$

- N est le taux de comptage dans le détecteur,
- $\varphi(x,y,z)$ est le flux de neutrons thermiques au point (x,y,z),
- φ_{ref} est le flux de neutrons maximum suivant l'axe z,
- $C(x,y,z)$ est la concentration en masse de l'élément au point (x,y,z),
- a est le nombre d'atomes par unité de masse,
- ρ est la masse volumique de l'élément,
- σ est la section efficace de capture radiative,
- P est la probabilité d'émission gamma prompts,
- $\varepsilon(x,y,z)$ est l'efficacité absolue du détecteur au point (x,y,z),

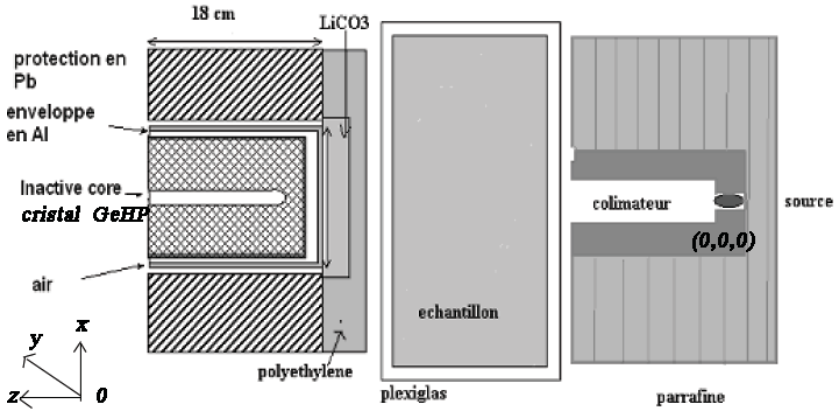


FIGURE *4.17* *Dispositif éxpérimental*

- ε_{ref} est l'efficacité absolue du détecteur pour une source point en position selon l'axe z pour une raie gamma donnée,
- μ est le coefficient d'atténuation,
- z_e et z_s sont les profondeurs entre l'entrée et la sortie du milieu traversé par le gamma.

Selon le dispositif expérimental représenté par la figure 4.17, comme la surface irradiée présente un petit rayon, le flux de neutrons thermiques $\varphi(x, y, z)$ et la concentration $C(x, y, z)$ sont indépendants de x et y. Ainsi ils peuvent être réécrits comme $\varphi(z)$ pour le flux de neutrons et $C(z)$ pour la concentration. De plus à cause de la forme cylindrique du blindage servant de collimateur au détecteur, les coordonnées x et y sont remplacées par les coordonnées polaires. Ainsi en négligeant l'aspect legèrement conique du volume mesurée, on remplace $\varepsilon(x, y, z)$ par $\varepsilon(r)$ et $\varepsilon(z)$.

$\varepsilon(z)$ est proportionnelle à $[d_{ref}/z]^2$, où d_{ref} est la distance du point de référence sur l'axe z du détecteur. Donc, l'équation precédente peut être réécrite sous la forme :

$$N = \varphi_{ref}\ \rho k \int_r \frac{\varepsilon(r)}{\varepsilon_{ref}} 2\pi r dr \int_{z_s}^{z_e} T(z)\ \ C(z)\ dz \tag{4.12}$$

Dans l'équation 4.12, le facteur k est égal :

$$k = a\ P\ \varepsilon_{ref}\ \sigma \tag{4.13}$$

L'expression $T(z)$ contient les facteurs dépendants de z, à savoir $e^{-\mu(z_e - z_s)}\varepsilon(z)$ $\varphi(z)/\varphi_{ref}$. La fonction $T(z)$ peut être considérée comme la contribution relative au signal dans le détecteur à la position z. Si en plus, on considère les échantillons liquides où l'homogénéité de la concentration est assurée, $C(z)$ sera considérée comme constante.

Généralement, les mesures relatives sont plus précises que les mesures absolues, Donc, il est utile de mesurer les raies gamma émis par l'hydrogène contenu dans les échantillons liquides par la réaction $^1H(n,\gamma)^2D$ en même temps que la raie gamma émise par l'élément d'intérêt.

A partir du rapport des deux taux de comptage, l'expression peut être simplifiée par l'équation suivante :

$$\frac{N_{Cd}}{N_H} = \frac{k_{Cd}}{k_H}\frac{1}{C_H}\frac{\int_{z_s}^{z_e} C_{Cd}T_{Cd}(z)dz}{\int_{z_s}^{z_e} T_H(z)dz} \tag{4.14}$$

Ici, l'efficacité radiale $\varepsilon(r)/\varepsilon_{ref}$ est supposée indépendante de l'énergie du photon et le rapport est donc égal à l'unité.

où les indices Cd et H se rapportent respectivement au Cadmium et à l'hydrogène. La concentaration d'hydrogène est considerée constante dans l'échantillon.

L'efficacité absolue du détecteur pour le cadmium et l'hydrogène ε_{ref}(558 KeV) et ε_{ref}(2223 KeV), respectivement dépend de la position. Toutefois, le rapport est constant et est égal au rapport de l'efficacité du détecteur pour le cadmium et l'hydrogène. Il est donc inutile de déterminer l'efficacité du détecteur, une mesure relative en fonction de l'énergie suffit.

Il est donc raisonnable de considérer le rapport k_{Cd}/k_H comme constant, les termes restants dans l'équation précédente sont :

- σ_{Cd}= 2450 b , σ_H = 0.332 b (la section efficace de capture radiative),
- P_{Cd} = 0.727 ,P_H = 1.00, (probabilité d'émission gamma prompt)
- a_{Cd}= 5.35 .10^{25} [55] et a_H = 5.98 .10^{26} [55] atomes par unité de masse.

Les coefficients d'atténuation dans l'échantillon d'eau (μ) dans la fonction T sont 0.103 cm^{-1} et 0.0846 cm^{-1} pour les raies gammas de l'hydrogène et du cadmium, respectivement. La distribution relative du flux de neutrons thermiques ($\varphi(z)/\varphi_{ref}$) est obtenue par calcul avec le code MCNP 4C2, de Monte Carlo.

4.4.3 Calibration et calcul préléminaire au dosage du Cadmium

Détermination de l'efficacité par MCNP

La détermination de $\varepsilon(r)/\varepsilon_{ref}$ pour les raies gamma 558 KeV et 2223 KeV est importante. Elle permet de mesurer d'une part la résolution spatiale de la configuration et d'autre part confirmer si l'approximation de l'équation 4.14 précédente est valable (c.a.d.$\varepsilon(r)/\varepsilon_{ref}$ est indépendante de l'énergie). A cet effet, le calcul de $\varepsilon(r)/\varepsilon_{ref}$ pour les deux raies est déterminé avec MCNP en utilisant le "tally" F8 (distribution d'impulsion par énergie déposée dans le détecteur).

Le seul facteur restant dans la constante de calibration, k_{Cd}/k_H est le rapport d'efficacité du détecteur pour les raies gamma du cadmium sur hydrogène. Le rapport est déterminé par l'irradiation du 20 g de Chlore dissout dans 5 litres d'eau et l'échantillon est centré à 8 cm de la source. Les raies gamma émises lors de la réaction $^{35}Cl(n,\gamma)^{36}Cl$ sont mesurées. Le taux de comptage sous chaque pic des raies du chlore est normalisé à son intensité gamma. Cela donne une efficacité relative du détecteur pour cette configuration en fonction de l'énergie gamma. L'intensité du taux de comptage normalisé est représentée comme une fonction de l'énergie et un ajustement des points expérimentaux par une courbe à double exponentielle est obtenu. Le rapport d'efficacité des raies gamma du cadmium sur celle de l'hydrogène est donné par ε_{ref}(558 KeV)/ ε_{ref}(2223 KeV)

Calcul du flux de neutrons thermiques

Le dispositif d'irradiation utilisé dans ce travail est représenté par la figure 4.18.

Ce dernier a été simulé en détail par le code MCNP4C2 et la distribution du flux thermique a été déterminée par intervalle de 2 cm en profondeur de l'échantillon, selon (0, 0, z). Le calcul a été lancé pour le "tally" F4 (estimation du flux moyen par cellule). Chaque valeur du flux a été normalisée à 1 pour le pic maximum (c.a.d $\varphi(z)/\varphi_{ref}$) et ensuite multipliée par les fonctions correspondantes $\varepsilon(z)e^{-\mu(z_e-z_s)}$ pour donner la fonction de transfert $T(z)$ à une profondeur donnée.

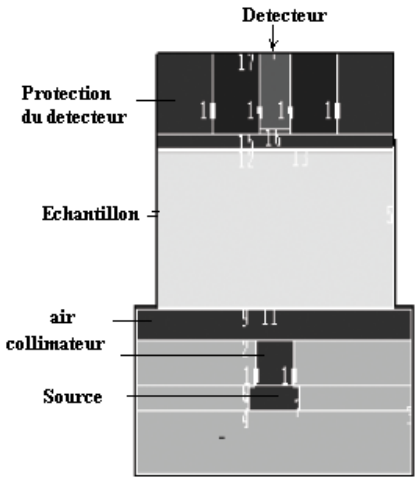


FIGURE 4.18 *Dispositif expérimental simulé par MCNP*

4.4.4 Résultats et discussion

La figure 4.19 montre la comparaison à l'aide de MCNP du rapport d'efficacité $\varepsilon(r)/\varepsilon_{ref}$ pour la raie gamma du cadmium et celle de l'hydrogène.

Les valeurs obtenues pour les raies sont en bon accord. La distribution autour de r = 0 des valeurs calculées pour le cadmium et de l'hydrogène est similaire, on considère l'hypothèse faite selon laquelle le rapport d'efficacité $\varepsilon(r)/\varepsilon_{ref}$ est indépendant de l'énergie. Pour deux positions différentes de la source suivant l'axe du détecteur, la figure 4.20 montre que le rapport d'efficacité pour une même raie gamma est similaire aussi.

Le flux de neutrons a été determiné dans l'échantillon d'eau par intervalle de 2 cm en profondeur de l'échantillon, selon (0, 0, z). Le calcul a été lancé pour le "tally" F4 (estimation du flux moyen par cellule) utilisant le code MCNP4c2. les valeurs obtenues ont été ajustées par une fonction pulse de la forme (figure 4.21). A une distance de 3.127 cm dans l'échantillon, le maximum du flux de neutrons (φ_{ref}) correspond à 1,582 $.10^4\ cm^{-2}.s^{-1}$.

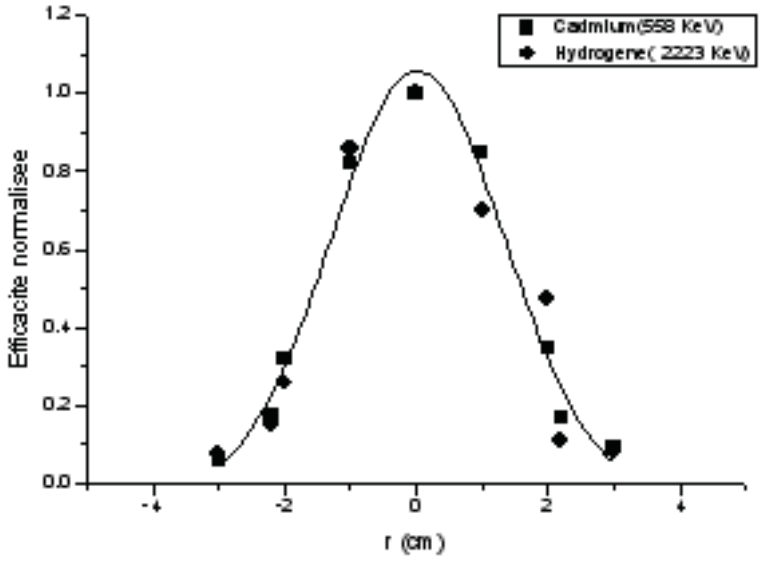


FIGURE 4.19 *Comparaison de $\varepsilon(r)/\varepsilon_{ref}$ pour les raies gamma du Cd (558 KeV) et de l'hydrogène (2223 KeV). Les efficacités ont été calculées par MCNP*

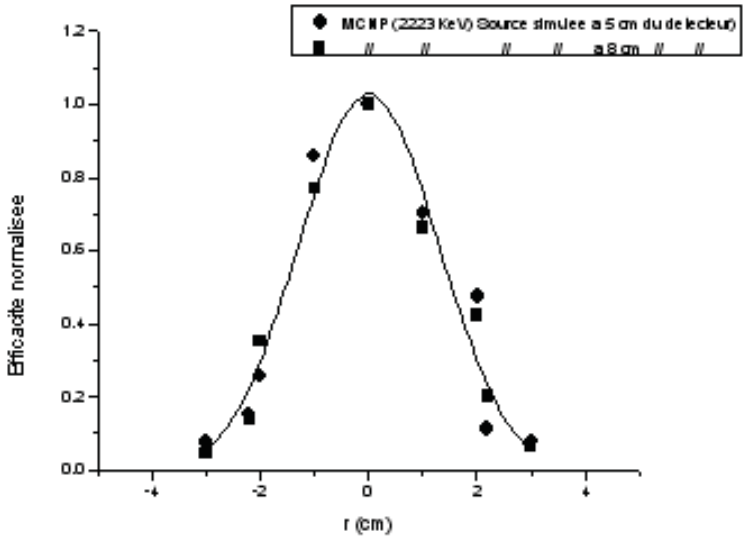


FIGURE 4.20 *Comparaison de $\varepsilon(r)/\varepsilon_{ref}$ pour 2 positions différentes de la source (5 et 8 cm suivant l'axe du détecteur) ; les efficacités ont été calculées par MCNP*

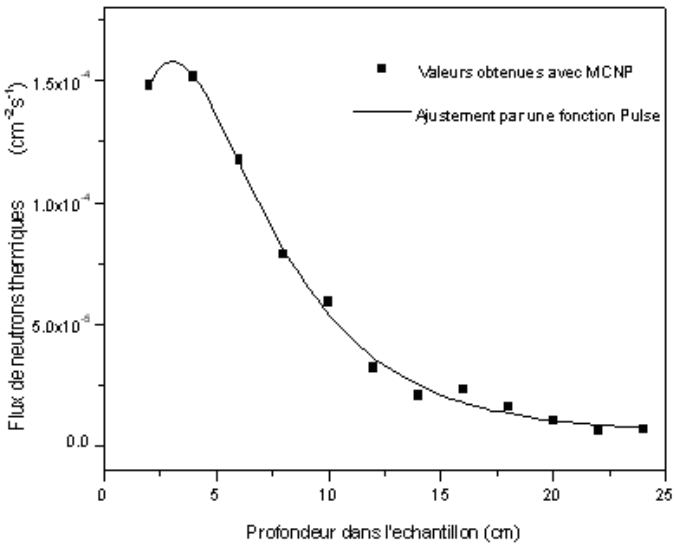


FIGURE *4.21* *Distribution du flux thermique dans l'échantillon en fonction de la profondeur*

4.4.5 Détermination de la concentration du cadmium dans l'échantillon

Le dispositif experimental de la figure 4.17 a été utilisé pour irradier 6 grammes d'oxyde de cadmium dissout dans 5.76 litres d'eau pure. Un container en plexiglass de 3mm d'épaisseur et ayant comme dimensions 24.7x18.6x13.5 cm^3 a servi de porte échantillon. Le spectre gamma prompts a été collecté pendant 4 heures (figure 4.22) à l'aide d'un détecteur GeHP ayant 3 KeV de resolution pour le pic du ^{60}Co d'énergie 1332 KeV.

Si dans l'equation 4.14, la concentration du Cd est considérée homogène dans l'échantillon (indépendante de la position), le rapport des intensités devient :

$$\frac{N_{Cd}}{N_H} = \frac{k_{Cd}}{k_H}\frac{C_{Cd}}{C_H}\frac{\int_{z_s}^{z_e} T_{Cd}(z)dz}{\int_{z_s}^{z_e} T_H(z)dz} \tag{4.15}$$

A partir du spectre representé par la figure 4.22, le rapport des intensités est donné par

$$\frac{N_{Cd}}{N_H} = \frac{15617}{59985} = 0.260$$

Par ailleurs, le rapport k_{Cd} / k_H est évalué à partir de 4.13

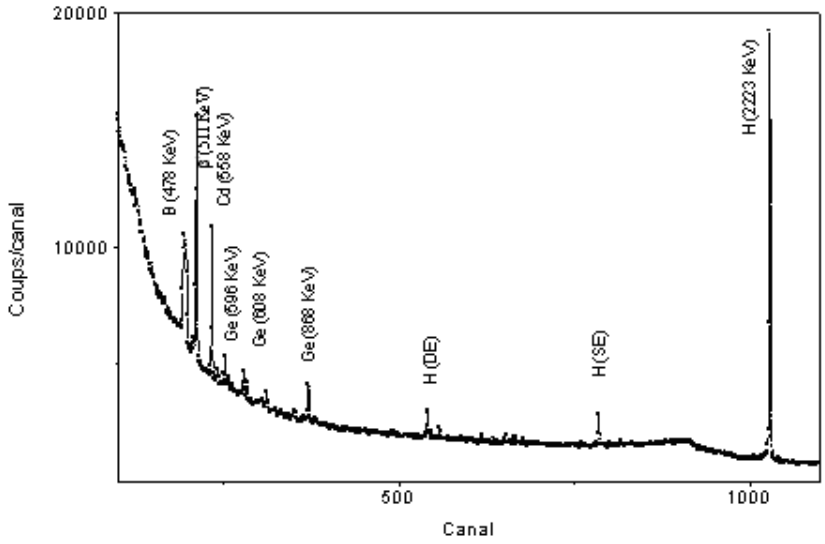


FIGURE *4.22* *Spectre du Cadmium dissout dans l'eau obtenu avec une source* $^{241}Am - Be$

$$\frac{k_{Cd}}{k_H} = \frac{\varepsilon(558)}{\varepsilon(2223)} \frac{\sigma_{Cd}}{\sigma_H} \frac{P_{Cd}\ a_{Cd}}{P_H\ a_H}$$

donnant :

$$\frac{k_{Cd}}{k_H} = 0.213\ 10^4$$

l' integration numérique, figurant dans l'équation 4.15 a été faite suivant la longueur de l'échantillon, avec

$$T(z) = e^{-\mu(z_e - z_s)} \varepsilon(z)\ \frac{\varphi(z)}{\varphi_{ref}}$$

nous obtenons alors :

$$\frac{C_{Cd}}{C_H} . \frac{(\int_0^{25} e^{-0.0846(25-z)} (1/z^2)\varphi(z)/\varphi_{ref} dz)}{(\int_0^{25} e^{-0.103(25-z)} (1/z^2)\varphi(z)/\varphi_{ref} dz)} 0.21310^4 = 0.260$$

donnant :

$$\frac{C_{Cd}}{C_H} = 0.941\ 10^{-2}$$

Sachant que la concentration de l'hydrogène dans l'échantillon est de 110 g/l, on obtient :

$$C_{Cd} = 1.03 \pm 0.15\ g/l$$

Cette valeur est en très bon accord avec la valeur réelle de cadmium dissout dans l'eau (0.91 g/l). Ce résultat permet de valider la méthode de simulation en PGNAA pour les échantillons volumineux en utilisant le code Monte Carlo MCNP.

4.5 Contrôle de la qualité du ciment au moyen d'une source de neutrons

4.5.1 Introduction

La méthode d'analyse par activation neutronique avec les gammas prompts PGNAA), utilisant une source isotopique de neutrons, a été utilisée pour l'analyse d'échantillons volumineux à savoir le béton [56], houille et minerais [15]. La technique PGNAA consiste en la détection de gamma prompts induits par la capture neutronique de l'échantillon. La technique est utilisée de manière intensive en temps réel et sur site dans différents domaines tel que l'industrie, pétrole, l'exploration minière, [12, 57].

L'identification élémentaire est obtenue par l'énergie des raies gamma spécifiques de chaque noyau et les concentrations sont déduites de l'intensité des raies gamma correspondantes. La technique ne nécessite aucune préparation de l'échantillon et n'est pas destructive.

Ce travail présente les résultats préliminaires de l'analyse du béton à l'aide de l'irradiation par la source^{241}Am-Be. L'analyse du spectre gamma a été utilisée pour tenir compte uniquement de la concentration du Ca et du Si. Cette technique a été testée avec succès avec la détermination du rapport de concentration Ca/Si qui a été comparé avec le résultat obtenu par une méthode chimique [58]. Une parfaite corrélation a été obtenue avec le rapport Si/Ca.

En utilisant un simple modèle pour la concentration du Si et du Ca dans le béton et connaissant la concentration du Si et du Ca dans le sable et le ciment, nous avons déterminé la proportion du ciment dans le béton [59].

4.5.2 Procédure experimentale

Le dispositif d'irradiation et de mesure (figure 4.23) consiste en une source isotopique de neutron $^{241}Am - Be$, ayant une activité de 185 Gbq (5 Ci) et un détecteur semi-conducteur de germanium hyper pur, (GeHP, Ortec).

A l'origine, le détecteur avait une résolution de 1.90 keV et une efficacité relative de 20% pour la raie gamma d'énergie 1332 keV. A présent, la résolution s'est dégradée à 8 keV car le cristal du détecteur est exposé aux neutrons. La suite de

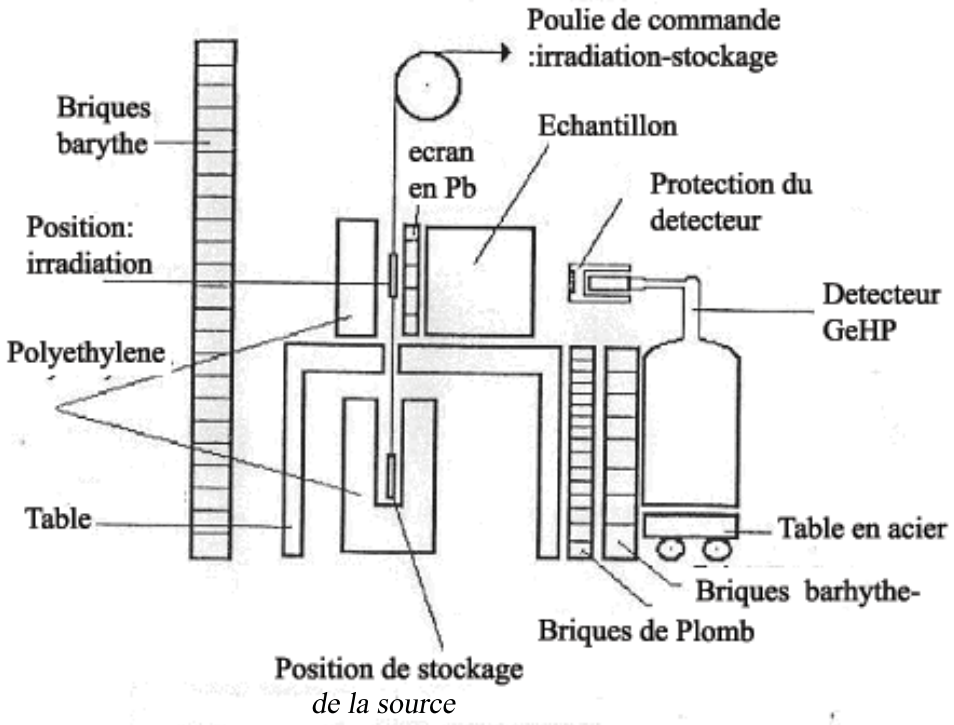


FIGURE *4.23* *Dispositif expérimental d'analyse par gamma prompts pour une brique de béton au moyen d'une source* $^{241}Am - Be$.

la chaîne de spectrométrie gamma utilisée comporte :

- un câble de type BNC de 30 mètres, permettant de connecter l'électronique associée, placée dans un tiroir NIM, hors de la salle d'irradiation de l'échantillon,
- une alimentation haute tension modèle 310D Canberra,
- un amplificateur modèle 512 Ortec,
- un PC équipé du logiciel Maestro et une carte d'acquisition $EG\&G$ modèle 916 avec 4096 canaux pour la collection du spectre de gamma prompts

La source de neutrons qui délivre $1,1\ 10^7 ns^{-1}$ est mise en position stockage dans son container ou en position irradiation grâce à un système de poulie commandé manuellement par l'utilisateur.

Le système de détection est protégé contre le rayonnement gamma environnant et les neutrons. La protection réduit le bruit de fond gamma et évite la dégradation rapide du détecteur par les neutrons. Un écran en briques de plomb ayant 10 cm d'épaisseur est entreposé entre la source de neutrons et le détecteur afin d'atténuer

les raies gamma caractéristiques de 4,43 MeV, issues directement de la source de neutrons.

Pour réduire la dose en neutrons reçus par le détecteur, un cylindre en polyéthylène boré, d'épaisseur 2,5 cm est monté sur le détecteur. La face de celui ci est remplie par du carbonate de lithium $^6Li_2CO_3$ sous forme de disque sur une épaisseur de 1,5 cm et un diamètre de 12 cm.

L'échantillon est une brique de béton de forme parallélépipédique de dimensions 30 X 23 X 19.7 cm^3 , similaire à celle utilisée dans la construction (composée de 1/3 de ciment et 2/3 de sable). Les mesures ont été réalisées au CRNA d'Alger (COMENA).

4.5.3 Résultats et discussion

La brique de béton a été irradiée durant 16 heures au cours desquelles le spectre des gamma prompts a été enregistré. Les figures 4.24 et 4.25, montrent le spectre typique des gammas prompts couvrant la gamme d'énergie : 0.5 à 10 MeV. Dans chaque spectre, les pics, les plus intenses et important pour notre étude sont identifies. Notons, la complexité du spectre, due aux interférences entre énergie des différentes raies gamma ainsi que les pics simples et doubles échappements issus des raies d'énergie supérieure à 1022 keV. Un important bruit de fond produit par la diffusion des raies gamma présente un autre inconvénient et des pics avec distorsion sont à considérer.

Heureusement, les pics associés au Ca et au Si sont bien définis dans le spectre et ils sont très intenses pour les mesures (tableau 4.4).

Pour plus de précision, le rapport silicium sur calcium a été déterminé deux fois en utilisant les deux raies gamma du silicium (4934 et 3539 keV) ainsi que la raie gamma du calcium de 1941 keV.

Elements	E_γ (keV)	Surface du pic $\pm SD$	I en $\%$	$\sigma_{th}(b)$	Efficacité en $\%$
Ca	1941	23284$\pm$ 908	72.5	0.43	(7.3$\pm$ 0.6)10^{-3}
Si	3539	18992$\pm$ 749	68	0.16	(5.8$\pm$ 0.4)10^{-3}
Si	4934	14112$\pm$ 822	62.7	0.16	(4.1$\pm$ 0.3)10^{-3}

TABLE 4.4 *Surfaces des pics , intensités des raies γ du Si et du Ca, efficacités et sections efficaces*

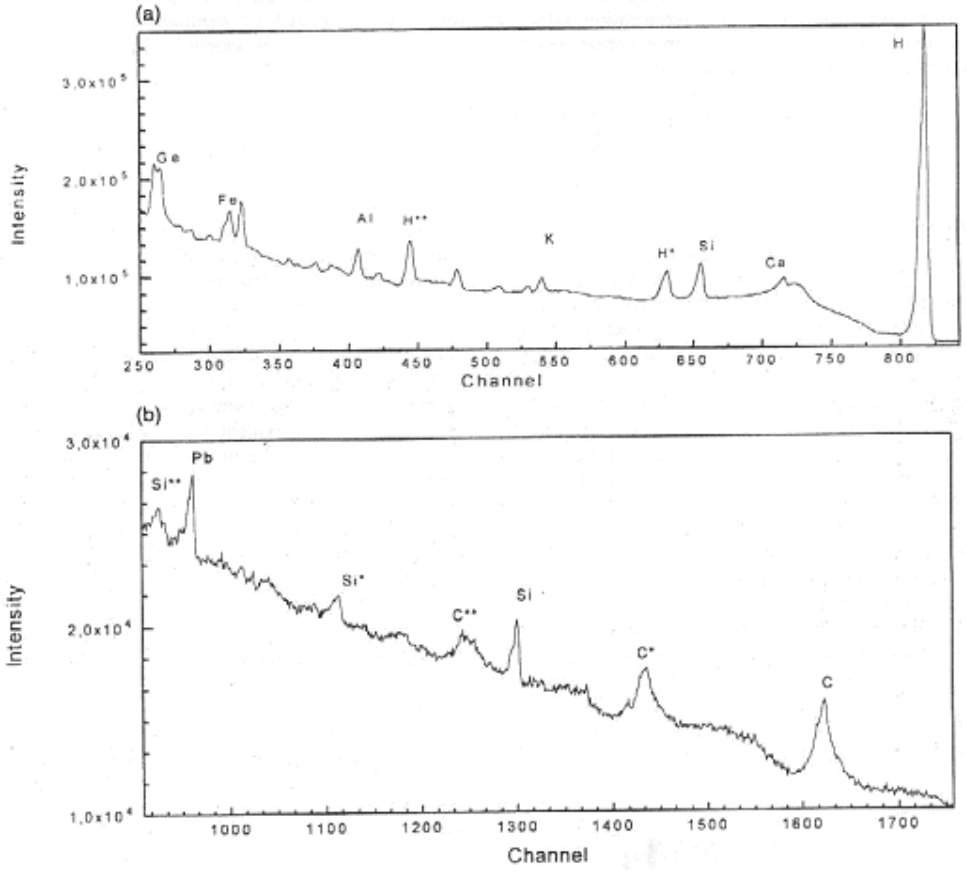


FIGURE 4.24 *Spectre des gamma prompts émis par le béton pendant 16 heures d'irradiation et comptage*

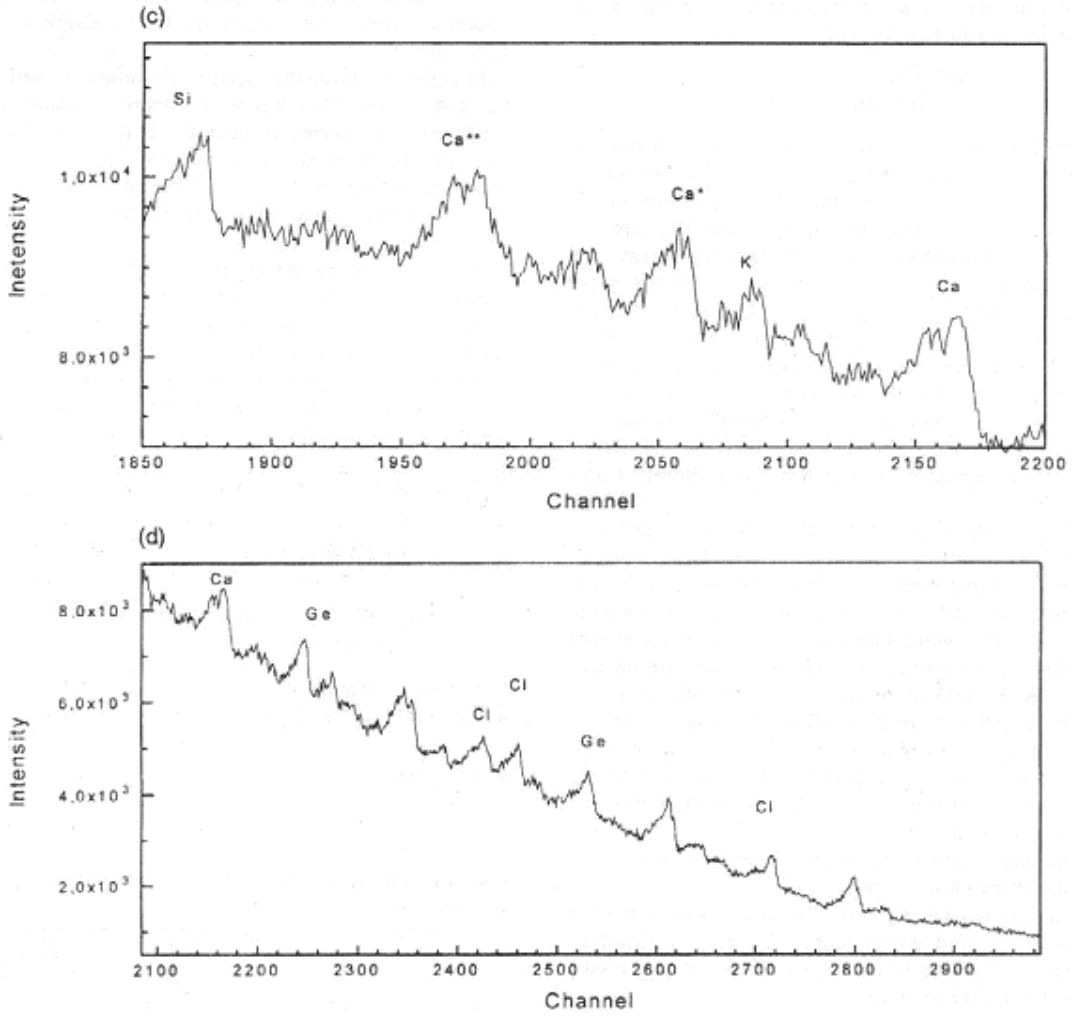


FIGURE 4.25 *Spectre des gamma prompts émis par le béton pendant 16 heures d'irradiation et comptage*

Comme, seul le rapport des concentrations nous intéresse, la connaissance de la distribution du flux thermique à l'intérieur de l'échantillon n'est pas nécessaire. Le rapport des concentrations Si/Ca est donné à partir de l'équation 2.9 :

$$\frac{[Si]}{[Ca]} = \frac{N_{Si}\sigma_{Ca}\varepsilon_{Ca}I_{Ca}}{N_{Ca}\sigma_{Si}\varepsilon_{Si}I_{Si}} \tag{4.16}$$

Avec :

- N_{Si} et N_{Ca} sont respectivement les aires sous les pics du Si et du Ca
- σ_{Ca} et σ_{Si} sont les sections efficaces de capture du Ca et du Si,
- $\varepsilon_{Ca}\ et\ \varepsilon_{Si}$ sont les valeurs de l'efficacité du détecteur pour les raies γ du Ca et du Si,
- I_{Ca} et I_{Si} sont les intensités des raies γ émises par capture dans le Ca et dans le Si.

Dans ce travail, à cause des faibles statistiques de comptage et de la mauvaise résolution des pics relatifs au Fer, nécessaires pour la détermination de l'efficacité absolue, l'efficacité pour les raies gamma d'intérêt est obtenue par un programme de calcul Monte Carlo (MC-gamma, Chapitre 3).

La détermination de l'efficacité pour une source volumineuse, de géométrie quelconque, comme le cas de la brique de béton, nécessite quelques précautions. Le programme de Monte Carlo est utilisé pour calculer l'efficacité absolue en tenant compte de la géométrie, dimensions de la source, de l'atténuation des raies gamma à l'intérieur de l'échantillon, de la source ainsi que tous les objets intervenant entre la source et le détecteur. Le calcul de l'efficacité absolue par le programme MC-gamma pour la brique de béton a été utilisé sur un P.C. Pentium (Language-C), pour un nombre d'histoire de 50,000 photons (10 batch de 5000 photons) [36]. Le résultat final est l'efficacité absolue moyenne, obtenue après 10 batch (Tableau 4.4)

La calibration en énergie de la chaîne de détection a été obtenue à l'aide d'un spectre de gamma prompts émis par le chlore dissous dans l'eau. Le chlore en capture radiative présente une importante section efficace, ainsi que la présence de raies intenses supérieures à 1,5 MeV. Les raies du chlore utilisées pour l'étalonnage se situent entre 788 to 7413 keV et permettent de faire une calibration en énergie jusqu'à 10 MeV environ.

La courbe d'étalonnage obtenue pour le système est donnée par :

Elements	Ciment	Sable	Béton
Ca	42.0 $\pm$ 1.6	4.6 $\pm$ 0.3	15.0 $\pm$ 1.0
Si	7.8 $\pm$ 0.3	35.0 $\pm$ 1.5	24.0 $\pm$ 0.5

TABLE 4.5 *Determination du Ca et du Si dans le ciment, le sable et le béton par des méthodes chimiques. Tableau des concentrations en* $\%$

$$E_{[keV]} = 8.791 + 0.361x + 4.806.10^{-7}x^2 \tag{4.17}$$

où x est le numéro du canal affiché sur l'analyseur.

La valeur moyenne du rapport de concentration obtenue, à partir de l'èquation 4.16 en utilisant les données du tableau 4.4, est de :

$$\text{[Si]/[Ca]} = 1.90 \pm 0.30$$

Dans le but de vérifier la validité de la méthode PGNAA, le Ca et le Si ont été déterminés dans le béton, le ciment et le sable en utilisant une méthode chimique [58]. Les valeurs de concentrations sont données dans le tableau 4.5 et le rapport concentration dans le béton a été trouvé égal à :

$$1.60 \pm 0.15$$

Tenant compte de l'erreur statistique mesurée, cette valeur est en très bon accord avec la valeur trouvée par la méthode PGNAA.

Un important paramètre pour le contrôle de la qualité du béton est la proportion du ciment dans le béton. Pour déterminer cette proportion de ciment, le modèle suivant a été adopté : la brique contient une fraction X de ciment et 1 - X de sable. Connaissant les abondances du Ca et du Si dans le ciment et le sable (4.5), on obtient les équations suivantes :

$$[Si] = [Si]_C X + [Si]_S(1 - X) \tag{4.18}$$

$$[Ca] = [Ca]_C X + [Ca]_S(1 - X) \tag{4.19}$$

Et connaissant aussi le rapport de concentration [Si]/[Ca], la proportion de ciment X est :

$$X = \frac{3.58 - 0.04595[Si]/[Ca]}{0.279 + 0.374[Si]/[Ca]} \tag{4.20}$$

avec

$$\text{[Si]/[Ca]} = 1.9 \pm 0.3$$

on obtient une proportion de ciment égale à :

$$\text{X} = 0.27 \pm 0.04$$

4.5.4 Conclusion

Dans ce travail, la méthode d'analyse par gamma prompts (PGNAA) sur le béton a été développée. Un important paramètre à savoir la proportion de ciment utilisée dans le béton a été déterminée. Ce paramètre permet le contrôle de la qualité du béton utilisé dans les ouvrages d'art par exemple (ponts, bâtiments,.).

La méthode PGNAA qui est non destructive, apparaît très pratique pour son utilisation sur site car l'ensemble, source de neutrons et détecteur sont facilement transportables.

Elle est appliquée si les conditions minimales de radioprotections sont respectées (2.5 m.Rem/h à 3 m de distance de la source). Tenant compte de ces avantages, son coût est préferable par rapport aux techniques destructives existantes.

La technique peut être améliorée par la réduction du temps de comptage qui est actuellement de 16 heures et cela en utilisant comme détecteur un NaI(Tl) dont le rendement de détection est beaucoup plus important. Le résultat obtenu peut être amélioré d'avantage en réduisant les erreurs sur le calcul de l'efficacité du détecteur. Ceci peut être atteint avec un moyen de calcul puissant qui permet un nombre d'histoires en photons plus élevé.

Conclusion générale

Les travaux présentés dans ce mémoire de thèse contribuent au développement et l'amélioration de la technique d'analyse par activation neutronique avec les gammas prompts pour les échantillons volumineux en utilisant une source $^{241}Am-Be$. Comme il a été mentionné dans l'introduction, un préalable pour exécuter cette technique d'analyse est que des corrections appropriées doivent être faites pour l'atténuation des neutrons, pour l'atténuation des gamma et pour des effets relatifs. Plus particulièrement, ces corrections concernent :

- la dépression et l'atténuation du flux de neutrons et
- leseffets d'auto-atténuation gamma et la distribution étalée de la radioactivité comparée à la géométrie d'une source point.

Dans un premier temps, une approche basée sur la simulation complète de l'expérience avec le code CITATION a été utilisée pour déterminer le flux de neutrons à l'intérieur d'un échantillon volumineux d'eau. Les valeurs obtenues avec le code sont comparables avec les valeurs mesurées. La connaissance de la distribution du flux à l'intérieur d'un échantillon volumineux d'eau permet la calibration du système d'irradiation en PGNAA pour le dosage de certains éléments légers. La détermination de la région où la valeur du flux de neutrons est optimale permet l'utilisation du dispositif d'irradiation lui même pour l'analyse d'échantillons plus petits avec une meilleure sensibilité. Les calculs du flux ont montré aussi que le volume de l'échantillon peut être réduit à 80 litres, étant donné qu'au delà de 20 cm de profondeur le flux devient très faible.

Cependant, l'utilisation du code CITATION a été limitée aux échantillons dont la composition élémentaire est connue et également aux dispositifs simples ayant des objets sans grandes sections efficaces d'absorption des neutrons.

Pour une première application, dans le domaine de l'environnement, les mesures ont montré que la méthode PGNAA au moyen de la source $^{241}Am - Be$ est utilisable pour la détermination de polluants dans l'eau car les valeurs obtenues sont comparables aux valeurs standard données pour la pollution de l'eau. Les limites de détection ont été estimées et prédites pour évaluer la possibilité d'application d'une sonde neutronique pour les mesures sur site. L'amélioration de la sensibilité pourra être faite avec l'augmentation du flux de neutrons au moyen d'une meilleure géométrie et avec un détecteur ayant une efficacité plus importante.

Pour application, un dispositif d'irradiation a été optimisé pour les échantillons volumineux par la méthode PGNAA en utilisant le code de MCNP. Les matériaux les plus utilisés et disponibles dans le laboratoire ont été choisi pour le collimateur de neutrons. Les dimensions de l'échantillon, du collimateur ont été calculés avec comme objectif, la sensibilité la plus élevée en prenant soins de limiter le nombre de neutrons rapides atteignant le détecteur de GeHP.

Les résultats obtenus en utilisant la configuration actuelle du dispositif d'irradiation permettent l'analyse des échantillons volumineux par la méthode PGNAA. En tant que technique non encombrante, flexible et capable de mesurer des concentrations en chlore dans un échantillon volumineux durant une période courte, la PGNAA peut être un outil valable pour la détermination de la contamination en chlore de l'eau.

La simulation numérique du flux de neutrons et du rendement de detection gamma au moyen du code de transport Monte Carlo (MCNP4c) a permis la détermination de la concentration du cadmium dans l'eau. Le résultat trouvé est en très bon accord avec la concentration de cadmium dissoute dans l'échantillon. La méthode PGNAA dans cette configuration actuelle pourra être utilisée pour l'analyse d'échantillons liquides.

Comme dernière application, la proportion de ciment utilisée dans le béton a été déterminée. Ce paramètre permet le contrôle de la qualité du béton utilisé dans les ouvrages d'art par exemple (ponts, bâtiments,...).

La méthode PGNAA qui est non destructive, est très pratique pour son utilisation sur site car l'ensemble, source de neutrons et détecteur sont facilement transportables.

Elle est appliquée si les conditions minimales de radioprotections sont respectées (2.5mRem/h à 3 m de distance de la source). Tenant compte de ces avantages, elle est préférable par rapport aux techniques destructives existantes.

La technique peut être améliorée par la réduction du temps de comptage qui est actuellement de 16 heures et cela en utilisant comme détecteur un NaI(Tl) dont le rendement de détection est beaucoup plus important. Le résultat obtenu peut être perfectionné d'avantage en réduisant les erreurs sur le calcul de l'efficacité du détecteur. Ceci peut être obtenu avec un moyen de calcul puissant qui permet un nombre d'histoires en photon plus élevé.

Références

[1] M. J. Berger, J. H. Hubbel, and S. M. Seltzer. Report nsbir, 87-3597, gaithersburg, md. National Bureau of Standards, 1978.

[2] J. Hoste. Isotopic neutron source on neutron activation analysis. *IAEA - Tecdoc, Vienna*, 248(465), 1988.

[3] Tecdoc. *Compendium of neutron spectra and detector responses for radiations protection purposes*. Technical report series N 403,International Atomic Energy Agency, Vienna, 2001.

[4] A. Lone. Prompt gamma rays from thermal neutron capture. *Atomic data And Nuclear data tables*, 26 :511–559, 1981.

[5] C. Coceva. Gamma intensity standard from thermal neutron capture in 35cl. *Nucl. Instr. And Meth.*, A378 :511–514, 1996.

[6] R. Khelifi. Pgnaa with large sample using isotopic neutrons source. 2005.

[7] P. Bode, O. Lakmaker, and P. van Aller. Feasability studies of neutron activation analysis with kilogramm-size samples. *J. Anal. Chem.*, 360 :10–17, 1998.

[8] Z. B. Alfassi and C. Chung. *Prompt gamma neutron activation analysis*. CRC press, Boca Raton , Florida, 1995.

[9] I. H. Degennaar. *Towards a methodology for large sample prompt-gamma neutron activation analysis*. PhD thesis, Delft University of Technology, 2004.

[10] R. Rosenberg. Prompt gamma neutron activation analysis in borehole logging and industrial process control. *Iaea-Tecdoc 537, International atomic enrgy, Vienna*, 1990.

[11] W. F. A. R. Verbakel. *Design and validation of gamma ray telescope for in vivo dosimetry during BNCT*. PhD thesis, NRG, Petten, the Netherlands, 2002.

[12] B. D. Sowerby. Nuclear technique in the coal industry. *IAEA-SM-308/1*, 1991.

[13] S. Baechler. Prompt gamma ray analysis for determination of boron in aqueous solutions. *Nucl. Instr. and Meth.*, A488(410), 2002.

[14] J. P. Holloway and H. Akkurt. The fixed point formulation for large sample pgnaa- part1 :theory. *Nucl. Inst and Meth in Phys. Research ,*, A522 :529–544, 2004.

[15] M. R. Wormald and C. G. Clayton. *Int. J. Appl. Radiat. Isot.*, 34(83), 1983.

[16] C. G. Clayton. *Int. J. Appl. Radiat. Isot.*, 36(757), 1985.

[17] L. G. Evans. *Nucl. Sci. Eng.*, 193(353), 1981.

[18] S. L. Shue. *Chem. Geol.*, 144(47), 1998.

[19] R. M. W. Overwater, P. Bode, J. J. M. De Goeij, and J. E. hoogenboom. Feasability of elemental analysis of kilogram size samples by instrumental neutron activation analysis. *J. Anal. Chem.*, 68(341), 1996.

[20] R. M. W. Overwater. *The physics of big sample sample instrumental neutron activation analysis*. PhD thesis, Delft University of Technology, the Netherlands, 1994.

[21] G. L. Molnar. Accurate absolute intensities for the 35cl(n,g)reaction gamma ray standard. 2002.

[22] P. Bode and R. M. W. Overwater. Trace element determination in very large samples : a new challenge for neutron activation analysis. *J. of Radioanal. Nucl. Chem.*, 167 :161–168, 1993.

[23] R. Gwodz and F. Grass. Instrumental activation analysis with mass from micrograms to hectograms. *J. of Radioanal. Nucl. Chem.*, 167 :169, 1993.

[24] R. M. W. Overwater. Large sample neutron activation analysis : Present status and prospects. *j. Radioanal. Nucl. Chem.*, 216 :5, 1997.

[25] M. Blauw. Height resolved large sample inaa of a 1 m lng, 13 cm large diameter dich bottom sample. *Nucl. Instr. Meth. in Phys. Res. A*, 505(512), 2003.

[26] K. Sueiki, K. Kobayashi, W. Sato, and T. Tomizawa. Non destructive determination of major elements in larges sample by prompt gamma ray neutron activation analysis. *Anal. Chem.*, 87 :2203, 1996.

[27] A. T. Farsoni and S. A. Mireshgi. Design and evaluationof a tna explosive detection system to screen carry in luggage. *J. of Radioanal. Nucl. Chem.*, 248 :695–697, 2001.

[28] G. F. Knoll. *Radiation detection and measurement*. $3^r d$ edition J. Willey and son„ 2000.

[29] G. Hevesy. Artificial activity of halfnium and some other elements. Det Kgl Dansk Videsk. Selskab„ Mthematisk-fysiske Meddelelser, XV„ 1938.

[30] X. Lin. *Anal. Chem.*, 349 :168, 1994.

[31] K. Janssen. *Non destructive microanalysis of cultural heritage material : Comprehensive Analytical Chemistry XLII*. Elsevier, 2005.

[32] Tecdoc. Nuclear analytical techniques in archeological investigations. *STI/DOC/010/416*, 2003.

[33] E. L. Hoffman. Instrumental neutron activation analysis in geoanalysis. *J. Geochem. Exploration*, 44 :297, 1992.

[34] L. A. Currie. *Anal. Chem.*, 40 :586, 1968.

[35] N. Metropolis and S. Ulam. The monte carlo. *j. of the Am. Stat. Asso.*, 44 :335, 1949.

[36] R. M. W. Overwater, P. Bode, and J. J. M. Degoeij. *Nucl. Instr. And Meth.*, 324 :209, 1993.

[37] L. Wielopolski. The monte carlo calculation of the average solid angle subtended by right circular cylinder from distributed sources. *Nucl. Instr. And Meth.*, 143 :577–581, 1977.

[38] N. M. Spyrou, J. B. Awotwi, and A. M. Williams. *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 259(2) :287–291, 2004.

[39] C. Chung and T. C. Tseng. *Nucl. Instr. And Meth.*, A267 :223–230, 1988.

[40] J. H. Chao and C. Chung. Optimisation of in situ prompt gamma-ray analysis of lake water using a hpge-252cf probe. *Nucl. Instr. And Meth.*, A299 :651, 1990.

[41] T. B Fowler. Nuclear reactor core analysis code : Citation. Rev. 2, ORNL-TM-2496, 1971.

[42] Khelifi, R., P. Bode, and A. Amokrane. The flux calculation with large sample using an 241(am-be) source. *J. Radioanal. and Nucl. Chem.*, 274(3), 2007.

[43] R. F. Fleming. *Int. J. Appl. Radiat. Isot.*, 33(1263-1268), 1982.

[44] R. L. Paul and R. M. Lindstrom. *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 243(1) :181, 2000.

[45] A. A. Naqvi and M. M. Nagadi. *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 260(3) :641–646, 2004.

[46] B. W. Thomas, C. G. Clayton, V. V. C. Ranasinghe, and I. M. Blair. *Int. J. of Appl. Radiat. Isot.*, 34 :437, 1983.

[47] J. F. Briesmeister. Mcnp4c, a general monte carlo n- particles transport code, los alamos national laboratory,. 2000.

[48] R. Khelifi. Detection limits of water pollutants in pgnaa using an isotopic neutron source. 2004.

[49] C. M. Lederer and V. S. Shirley. *Table of isotopes*. Willey, New York, 1978.

[50] S. L. Howell, R. A. Sigg, F. S. Moore, and T. A. De Vol. *J. of Radioanal. And Nucl. Chem.*, 244(1) :173–178, 2000.

[51] M. Borsaru and M. Biggs. *Nucl. Instr. And Meth.*, 324 :209, 2005.

[52] T. Cywicka-Jakiel. Fast neutron and gamma transmission method for coke humidity determination. *Applied Energy*, 74 :305–311, 2003.

[53] R. Sudarshan, A.G.C. Nair, and A. Goswami. A simple method for correcting the neutron self-shielding effect of matrix and improving the analytical response in prompt gamma-ray neutron activation analysis. *Anal. Chem. Acta*, 549 :205–211, 2005.

[54] P. M. Munck, W. Verbakel, C. P. Ceberg, F. Stecher, and B. Persson. Toward clinical application of prompt gamma spectroscopy for in vivo monitoring of boron uptake in boron neutron capture. *Med. Phy.*, 28(5), 2001.

[55] R. C. West. *The Handbook of Chemistry and Physics, 52 nd ed.* The Chemical Rubber Company, Boca Raton, FL, 1971.

[56] D. L. Collico Savio. Elemental analysis of concrete sample by capture gamma rays with a radioisotope neutron source. *Nucl. Inst. and Meth.*, B95 :379, 1995.

[57] C. G. Clayton. Nuclear methods for on line analysis of metalliferous and nometalliferous minerals. *IAEA-SM-308-21*, 1991.

[58] M. Pinta. Spectrmetrie d'absorption atomique, application a l'analyse chimique. *2nd ed. Masson Orstrom*, 2, 1979.

[59] R. Khelifi, Z. Idiri, L. Omari, and M. Seghir. Pgnaa of bulk concrete samples with an am-be neutrons source. *J. of Appl. Radiat. and Isot.*, 51(9-13), 1999.

Annexes

I. Code MCNP

L'utilisation de la méthode de Monte Carlo dans les phénomènes de transport a pour but l'évaluation aussi précise que possible d'une quantité intégrale, que l'on peut écrire sous la forme :

$$I = \int_D \varphi(x) f(x) dx$$

Avec :

- x : un point dans l'espace de phase (D) à 6 dimensions (nous ne considérons ici que des problèmes stationnaires), 3 dimensions d'espace R, une variable énergie (E) et deux variables directeurs (w). Les trois dernières dimensions pourront être représentées par un seul vecteur, le vecteur vitesse V
- φ : désigne le flux
- f : représente une fonction réponse qui selon le contexte, pourra prendre plusieurs formes : section efficace pour le calcul d'un taux de réaction ou indicatrice de domaine d'espace (cas d'un calcul de protection où la zone en question se trouve relativement éloignée du coeur)

Le code de simulation Monte Carlo utilisé au cours de ce travail est : Monte Carlo N-Particles (MCNP). Dans nos applications les plus courantes, les particules étudiées sont les photons et les neutrons. Le principal intérêt de cette approche est de pouvoir calculer des quantités physiques difficilement accessibles par d'autres techniques (mesure ou calcul analytique). Par exemple, elle permet l'estimation, de la dose délivrée en absence de détecteur ou de la contribution des particules secondaires.

Le code MCNP consiste en une méthode probabiliste qui permet la résolution de l'équation de transport par une méthode de tirage aléatoire. Chaque particule

émise aura une histoire propre à elle. Il suit chacune des particules émises depuis leur naissance jusqu'à leur disparition en tenant compte des probabilités d'interactions avec les différents matériaux rencontrés, representées par les sections efficaces dans les librairies annexes au code.

Pour générer un fichier d'entrées, il est nécessaire de définir les cellules, les surfaces, les matériaux les paramètres de la simulation et le type de réponses souhaitées.

I.1. Définition des surfaces

Même si la définition des surfaces intervient après la définition des cellules dans le programme, il nous semble plus logique d'en parler avant, puisque la définition des cellules fait intervenir les surfaces que nous avons définies. Le programme possède dans son code les équations d'un grand nombre de surfaces. Pour en définir une, on entre la formulation suivante :

j n a liste

j : est un nombre compris entre 1 et 99999 désignant le numéro de la surface ; il est précédé d'un astérisque * si la surface est réfléchissante ou par un plus + si la surface est une surface blanche.

n : concerne destransformations de coordonnées. Il peut être absent ou nul, si il n'y a pas de transformation ; positif, il désigne alors le numéro de la carte définissant la transformation de coordonnées, soit la carte TRn (nous parlerons de cette carte dans la partie ci-dessous consacrée aux définitions des données) ; négatif, il indique alors que la surface j est périodique avec la surface n. De manière générale, une carte désigne une ligne de huit caractères au maximum.

a et liste : représentent respectivement l'abréviation d'une surface reconnue par le programme et les paramètres qui s'y réfèrent. Par exemple P correspond à un plan, C correspond à un cylindre. Dans le tableau 1 sont données les cartes des surfaces reconnues par le code MCNP.

I.2. Définition des cellules

L'intersection, l'union ou le complémentaire de plusieurs surfaces peuvent former des régions de l'espace appelées cellules. Dans la définition d'une cellule, on

Mnemonic	Type	Description	Equation	Card Entries
P	Plane	General	$Ax + By + Cz - D = 0$	$A\,B\,C\,D$
PX	↓	Normal to X-axis	$x - D = 0$	D
PY	↓	Normal to Y-axis	$y - D = 0$	D
PZ	↓	Normal to Z-axis	$z - D = 0$	D
SO	Sphere	Centered at Origin	$x^2 + y^2 + z^2 - R^2 = 0$	R
S	↓	General	$(x-\bar{x})^2 + (y-\bar{y})^2 + (z-\bar{z})^2 - R^2 = 0$	$\bar{x}\ \bar{y}\ \bar{z}\ R$
SX	↓	Centered on X-axis	$(x-\bar{x})^2 + y^2 + z^2 - R^2 = 0$	$\bar{x}\ R$
SY	↓	Centered on Y-axis	$x^2 + (y-\bar{y})^2 + z^2 - R^2 = 0$	$\bar{y}\ R$
SZ	↓	Centered on Z-axis	$x^2 + y^2 + (z-\bar{z})^2 - R^2 = 0$	$\bar{z}\ R$
C/X	Cylinder	Parallel to X-axis	$(y-\bar{y})^2 + (z-\bar{z})^2 - R^2 = 0$	$\bar{y}\ \bar{z}\ R$
C/Y	↓	Parallel to Y-axis	$(x-\bar{x})^2 + (z-\bar{z})^2 - R^2 = 0$	$\bar{x}\ \bar{z}\ R$
C/Z	↓	Parallel to Z-axis	$(x-\bar{x})^2 + (y-\bar{y})^2 - R^2 = 0$	$\bar{x}\ \bar{y}\ R$
CX	↓	On X-axis	$y^2 + z^2 - R^2 = 0$	R
CY	↓	On Y-axis	$x^2 + z^2 - R^2 = 0$	R
CZ	↓	On Z-axis	$x^2 + y^2 - R^2 = 0$	R
K/X	Cone	Parallel to X-axis	$\sqrt{(y-\bar{y})^2 + (z-\bar{z})^2} - t(x-\bar{x}) = 0$	$\bar{x}\ \bar{y}\ \bar{z}\ t^2\ \pm 1$
K/Y	↓	Parallel to Y-axis	$\sqrt{(x-\bar{x})^2 + (z-\bar{z})^2} - t(y-\bar{y}) = 0$	$\bar{x}\ \bar{y}\ \bar{z}\ t^2\ \pm 1$
K/Z	↓	Parallel to Z-axis	$\sqrt{(x-\bar{x})^2 + (y-\bar{y})^2} - t(z-\bar{z}) = 0$	$\bar{x}\ \bar{y}\ \bar{z}\ t^2\ \pm 1$
KX	↓	On X-axis	$\sqrt{y^2 + z^2} - t(x-\bar{x}) = 0$	$\bar{x}\ t^2\ \pm 1$
KY	↓	On Y-axis	$\sqrt{x^2 + z^2} - t(y-\bar{y}) = 0$	$\bar{y}\ t^2\ \pm 1$
KZ	↓	On Z-axis	$\sqrt{x^2 + y^2} - t(z-\bar{z}) = 0$	$\bar{z}\ t^2\ \pm 1$ ±1 used only for 1 sheet cone
SQ	Ellipsoid Hyperboloid Paraboloid	Axes parallel to X-, Y-, or Z-axis	$A(x-\bar{x})^2 + B(y-\bar{y})^2 + C(z-\bar{z})^2 + 2D(x-\bar{x}) + 2E(y-\bar{y}) + 2F(z-\bar{z}) + G = 0$	$A\ B\ C\ D\ E\ F\ G\ \bar{x}\ \bar{y}\ \bar{z}$
GQ	Cylinder Cone Ellipsoid Hyperboloid Paraboloid	Axes not parallel to X-, Y-, or Z-axis	$Ax^2 + By^2 + Cz^2 + Dxy + Eyz + Fzx + Gx + Hy + Jz + K = 0$	$A\ B\ C\ D\ E\ F\ G\ H\ J\ K$
TX	Elliptical or circular torus.	$(x-\bar{x})^2/B^2 + (\sqrt{(y-\bar{y})^2 + (z-\bar{z})^2} - A)^2/C^2 - 1 = 0$		$\bar{x}\ \bar{y}\ \bar{z}\ A\ B\ C$
TY	Axis is Parallel to	$(y-\bar{y})^2/B^2 + (\sqrt{(x-\bar{x})^2 + (z-\bar{z})^2} - A)^2/C^2 - 1 = 0$		$\bar{x}\ \bar{y}\ \bar{z}\ A\ B\ C$
TZ	X-,Y-, or Z-axis	$(z-\bar{z})^2/B^2 + (\sqrt{(x-\bar{x})^2 + (y-\bar{y})^2} - A)^2/C^2 - 1 = 0$		$\bar{x}\ \bar{y}\ \bar{z}\ A\ B\ C$
X Y Z P		Surfaces defined by points		

Tableau 1 : Bibliothèque des cartes des surfaces reconnues par MCNP.

définit également plusieurs paramètres, dont nous parlerons ci-dessous, comme le type de matériau qui constitue la cellule, la densité de la matière en question et d'autres paramètres importants qui seront mentionnés plus loin. La formulation pour définir correctement une cellule est la suivante :

nc m d geom params

nc : est un nombre compris entre 1 et 99999 et définit le numéro de la cellule.

m : désigne la matière constituant la cellule nc. Si on choisit m = 0, la cellule est déclarée vide ; si m est différent de 0, il indique le numéro de la matière dont les caractéristiques sont décrites par la carte (Mm) qui se trouve dans la partie des définitions des données et sera par conséquent expliquée dans cette section.

d : désigne la densité de la matière m. Ce nombre est absent si la cellule j est vide, ou si m est 0. Sinon, si ce nombre est positif, il représente la densité atomique dans les unités de 10^{24} atomes par cm^3 Si ce nombre est négatif, il est interprété comme la densité de la matière m en exprimé en g par cm^3.

geom : spécifie la géométrie de la cellule définie par des surfaces définies. Il s'agit des numéros des surfaces séparés par des opérateurs booléens qui spécifient comment les régions séparées par les surfaces doivent être combinées. Les opérateurs booléens sont les suivants : Un espace signifie l'intersection, le sigle (:) représente l'union et le sigle () signifie le complément. Pour définir facilement des cellules intersectées, il est utile de se rappeler des formules de base des théories ensemblistes.

params : sont des spécifications optionnelles de paramètres des cellules.

I.3. Définition des données

I.3.1. Définition des sources

Une carte essentielle est celle qui définit la source : il s'agit de la carte (SDEF). Elle a la formulation suivante : SDEF source variable = specification Ĕ Si la spécification est précédée d'un D, le programme comprend qu'il s'agit d'une distribution ; sinon, il s'agit d'une valeur explicite. Il existe de nombreux paramètres pour définir la source ; nous n'en citerons que quelques-uns en guise d'exemples :

– CEL : précise quelle cellule sert de source, si cette dernière remplit entièrement la cellule

– SUR : définit quelle surface est la source,
– ERG : définit l'énergie de la source, en MeV. Dans notre cas nous avons utilisé deux sources une mono-énergétique ^{137}Cs et l'autre de l'^{152}Eu sous forme d'un spectre d'énergie (voir tableau 2),
– POS : donne le point de référence du centre de la source,
– RAD : définit le rayonde la source. Lorsqu'une source n'est déposée que sur la surface d'une cellule, il est possible de définir des rayons interne et externe, comme nous le verrons pour la carte SIn.
– EXT : signifie l'extension de la source depuis POS, le long de AXS,
– AXS définit l'axe de la source. X, Y et Z donnent les coordonnées x y et z de la source,
– PAR donne le type de particule ; il sera 1 dans le MODE N, NP et NPE, 2 dans le MODE P et PE et 3 dans le MODE E. Dans notre cas nous avons utilisé le mode P et le mode N.

Exemples de géométrie source :

Pour définir une distribution sphérique, on utilise la variable POS pour le centre de la sphère et RAD pour son rayon. Si la source est à la surface de la sphère, on utilise deux rayons définis dans la carte SIn. Si la variable RAD est omise, le programme considère cette sphère comme une source ponctuelle.

Pour définir une distribution cylindrique, on utilise la variable POS, AXS pour définir l'axe du cylindre, RAD son rayon et EXT son extension le long de AXS depuis POS. Pour définir une distribution de la source à la surface du cylindre, on définit un rayon interne et externe dans la carte SIn pour la variable RAD et l'extension depuis POS pour EXT dans une autre carte SIn.

La carte SIn a la morphologie suivante : SIn option I1, I2Ě Ik. n est le numéro de la distribution. Option précise de quelle façon les Ik doivent être interprétés. La valeur par défaut est H ou rien et signifie que c'est une distribution en histogramme. Les autres valeurs sont L pour des variables discrètes de la source, A pour des points où une densité de probabilité est définie et S pour des nombres d'une distribution. Les Ik sont les variables de la source. Dans le tableau (2) sont données les raies γ de ^{152}Eu ainsi que les rapports d'embranchement qui ont été utilisés pour la simulation des spectres de désexcitation.

Par exemple, la source multiénérgetique d'^{152}Eu a été définie de la façon suivante :

Energie (keV)	*P (%)*	*ΔP(%)*
121,78	***28,20***	***0,500***
244,69	***7,380***	***0,130***
295,94	*0,423*	*0,013*
329,44	*0,104*	*0,012*
344,28	***26,40***	***0,400***
367,76	*0,840*	*0,030*
411,12	***2,210***	***0,040***
444,00	***3,070***	***0,050***
488,68	*0,400*	*0,023*
503,47	*0,150*	*0,013*
564,02	*0,486*	*0,021*
586,26	*0,454*	*0,023*
678,60	*0,459*	*0,020*
688,68	*0,849*	*0,025*
719,30	*0,322*	*0,018*
779,00	***13,00***	***0,220***
810,47	*0,321*	*0,024*
867,38	***4,160***	***0,060***
919,34	*0,410*	*0,022*
926,29	*0,253*	*0,021*
964,05	***14,48***	***0,230***
1005,15	*0,590*	*0,030*
1085,83	***10,14***	***0,160***
1112,00	***13,55***	***0,200***
1212,94	*1,390*	*0,030*
1249,88	*0,179*	*0,015*
1299,13	*1,630*	*0,030*
1408,03	***20,70***	***0,290***
1457,62	*0,488*	*0,015*
1528,10	*0,266*	*0,015*

Tableau 2 : Principales raies γ de l'^{152}Eu et leurs probabilités d'émission.

SDEF erg=d1 pos= 0 -2.78 0 Cel=2 rad=d2 ext=d3 axs=0 0 1

SI1 L 0 0.122 0.245 0.295 0.344 0.367 0.411 0.444 0.564 0.566 0.688 0.779 0.867 0.964 1.085 1.0897 1.109 1.112 1.212 1.274 1.299 1.408

SP1 D 0 0.285 0.075 0.004 0.265 0.008 0.022 0.031 0.004 0.001 0.008 0.129 0.042 0.146 0.100 0.017 0.001 0.135 0.014 0.001 0.208

SI2 0 4.65

SI3 3.75

Cette procédure signifie qu'on a affaire à une distribution cylindrique, dont le centre est à l'origine, d'axe parallèle à Z et d'une distribution d'énergie SI d'intensité SP.

I.3.2. Définition des Tallies

Il est possible de définir différents tallies (résultats) dans le code MCNP en fonction du résultat qu'on souhaite obtenir, c'est-à-dire le courant à travers une surface, le flux en un point,...

Habituellement, seule la carte Fn est utile pour définir les tallies recherchés ; les autres paramètres sont optionnels. Dans ce qui suit, nous ne parlerons que des cartes Fn, En et FMn. La carte Fn est de loin la plus importante ; il en existe 7 différentes pour les neutrons, 6 pour les photons et 4 pour les électrons. Ils sont différenciés par leur n qui va de 1 à 8, sauf le 3. Lorsque l'on souhaite définir plusieurs tallies du même type, il est possible de placer des autres nombres avant le numéro du tally.

Voici maintenant les différents types de tallies (les deuxièmes unités données correspondent à celles obtenues par adjonction d'un astérisque) :

- F1, pour N, P et E est le courant intégré sur une surface. Son unité est un nombre de particules ou des MeV,
- F2, pour N, P ou E est le flux moyenné sur une surface, en particules par cm^2, ou en MeV/cm^2,
- F4, pour N, P ou E est le flux moyenné sur une cellule, en particules par cm^2, ou en MeV par cm2,
- F5, pour N et P est le flux en un point, en particules par cm^2, ou en MeV/cm^2,
- F6, pour N, P ou E est l'énergie déposée moyennée sur une cellule, en MeV/g ou en jerks/g,

– F7, pour N est l'énergie de fission moyennée sur une cellule, en MeV/g ou en jerks/g.
– F8, pour N, P, E ou PE est la distribution d'énergie des pulses déposée dans un détecteur, en pulses ou en MeV.

Si le tally concerne une surface ou une cellule, on note le numéro de la surface ou de la cellule directement après le nom du tally.

La carte En e1 Ĕ ek sert à définir l'énergie maximale dans le tally n. Cette valeur maximale en MeV est donnée dans les groupes ek.

Par exemple, une donnée E11 .1 1 20 sépare le tally 11 en quatre régions d'énergie :

– de l'énergie minimale à 0.1 MeV,
– de 0,1 à 1 MeV,
– de 1 à 20 MeV,
– et le total sur toutes les énergies.

Une valeur E0 peut être utilisée pour donner une structure par défaut pour l'énergie dans tous les tallies, en n'oubliant pas qu'une donnée spécifique pour un tally primera sur cette valeur par défaut. Si des résultats d'un tally doivent tous être multipliés par une constante, par exemple pour convertir des unités, il est possible d'utiliser la carte FMn k, où n est le numéro du tally et k le facteur multiplicatif. Dans cette étude nous avons travaillé avec des photons et avec le mode de réponse F8 qui détermine le dépôt en énergie dans le détecteur, en introduisant la résolution associée au détecteur en fonction de l'énergie à l'aide de la commande FGB.

I.4. Définition des matières

Comme il a été cité avant, dans la définition des cellules, on donne un numéro m à la matière qui constitue la cellule. Ce numéro m est repris dans la carte Mm, dont la formulation simplifiée est Mm zaid1 fraction*1* zaid*2* fraction*2* ..., où zaid*i* indique de quel élément il s'agit, ainsi que la librairie des sections efficaces à utiliser.

Cette entrée se décompose en ZZZAAA.nnx, où Z est le numéro atomique de l'élément considéré, A sa masse atomique, n la librairie des sections efficaces et x la classe de la donnée. Dans les calculs impliquant des photons et des électrons, les

isotopes des éléments jouent le même rôle que les éléments naturels ; par conséquent, les A peuvent être mis à 0 et les nombres nnx oubliés. Les nombres fraction*i* sont les fractions atomiques du constituant i ou la densité atomique si elle est introduite avec un signe moins.

I.5 Définition des énergies

Le Tableau 3 donne un schéma récapitulatif d'un fichier de données d'entrée spécifique pour le code MCNP.

Le code MCNP permet de préciser le traitement physique à utiliser pour les particules qui sont générées, ainsi que les particules qu'elles peuvent produire lorsqu'elles interagissent avec le milieu. Ces précisions sont fournies à l'aide de la carte PHYS. Elle peut être utilisée avec des neutrons, des photons ou des électrons.

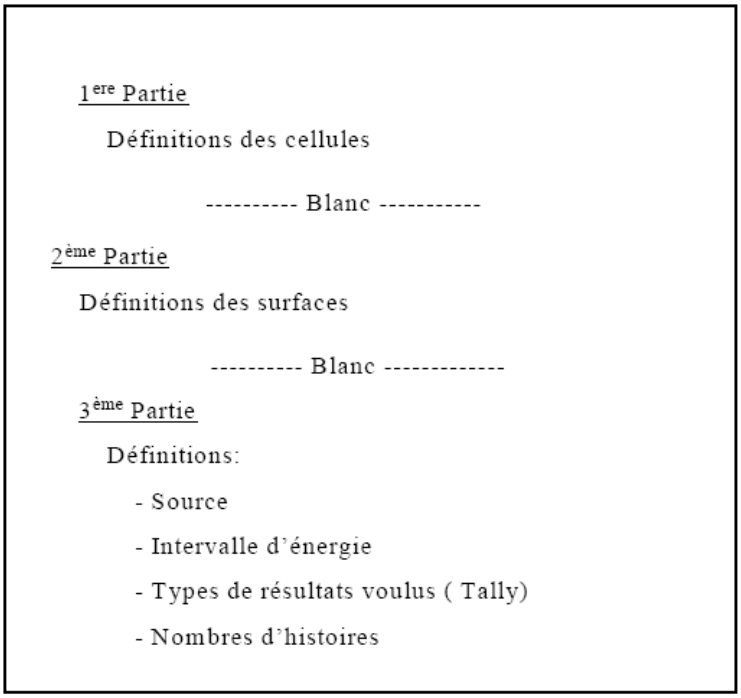


Tableau 3 : Schéma d'un fichier input du code MCNP.

II. Code CITATION

Le code CITATION est basé sur la théorie de diffusion multigroupes des neutrons. La méthode de résolution est déterministe (méthode des élements finis).

L'équation de diffusion du flux de neutrons à résoudre est donnée par :

$$\frac{d^2\phi(r)}{dr^2} - \frac{1}{L^2} = \frac{S(r)}{D}$$

où

- $\phi(r)$ est le flux de neutrons au point $r(x, y, z)$,
- L est la longueur de diffusion,
- D est le coefficient de diffusion et
- S(r), l'intensité de la source de neutrons au point r.

Le code CITATION donne en solution la valeur du flux de neutrons pour différentes énergies et positions. Il nécessite un fichier entrée composé de cartes sous format lisible par le code. Le tableau 4 montre en exemple un fichier entrée où,

- La carte 1 décrit la nature du problème (source, réacteur,..),
- Le critère de convergence et la dimension du flux est donné par la carte 3,
- la carte 4 et 5 donnent la géométrie et les dimensions de chaque matériau entrant dans le calcul du flux,
- les zones relatifs aux matériaux (pour générer les sections efficaces microscopiques) sont donnéses par la carte 12,
- la carte 20 donne le nombre de masse et la concentration élementaire de chaque objet,
- les carte 26 représente le spectre de neutrons, le nombre de groupes d'énergie et l'intensité de la source. La carte 999 signifie la fin du fichier d'entrée.

```
 CITATION input 3-D geometry
5-group neutron source problem with micr. cross section lib
001
 0  0  0    0  1  0  0   -5  0  0  0    0       0  0    0  0  0  0
 1  0  1  1  1  1  0  0  0  1


003
 0  2     11       0  0    0  0  0  0  0  0  0  0  0  0  0
    1.E-4
     0.0
004
 1     3.6  1     1.0  2     2.0 10    50.0
 1    23.2  1     3.6  5    23.2
 1    22.4  1     5.1  5    22.4
005
 1  1  3  4
 1  1  3  4
 1  1  3  4
 1  1  3  4
 2  1  3  4
 1  1  3  4
 1  1  3  4
 1  1  3  4
 1  1  3  4
012
 1  4    1      -1   name_of_zone

020
 1  1  0  0
12    0.01
 2  2  0  0
12    0.01
 3  3  0  0
11  0.02956 12  0.00985 14  0.02956
 4  4  0  0
11  0.06610 12  0.03367 17  0.00001

026
-1  1
  0.2772    0.5287    0.1905     0.0036    0.0
 2  4.20E+4
999
```

Tableau 4 : Exemple de fichier d'entrée pour le Code CITATION

Liste des travaux

1. Publications Internationales

- Z. Idiri, *R.Khelifi*, S. Tobbeche, A simple method to correct for pulses pile-up and dead time losses : application to cyclic activation analysis with 14 MeV neutrons . Appl. Radiat. Isot. 45, No 5, pp. 631-633, 1994.
- *R.Khelifi*,Z. Idiri, S. Tobbeche, Simulation and optimization of cyclic activation analysis of shorts-lived isotope with 14 MeV neutron generators. Biological Traces Research element : G.N.Schrauzer,1994 by Humana Press Inc.
- *R.Khelifi*, Z. Idiri, A. Tchantchane, Gamma ray spectra simulation and optimization in N.A.A. Vacuum, Volume 48/number1 / pages 99 to 102 (1997).
- *R.Khelifi*, Z. Idiri, M. Seghir, L. Omari, Prompt gamma neutron concrete activation analysis of bulk samples with an isotopic neutron source ". App. Radiat. Isot. Vol. 51, page 9 - 13,1999.
- *R.Khelifi*, P. Bode, A. Amokrane, Flux determination in neutron activation analysis with voluminous sample using isotopic neutrons source. J of Radioanal. and Nucl. Chem. Vol(274), N0 3, (2007).
- *R.Khelifi*, P. Bode, A. Amokrane, Detection limits of pollutants in PGNAA using an isotopic neutron source. Nucl. Instr. and Meth. B 262 (2007)329-332.
- *R.Khelifi*, P. Bode, A. Amokrane, Optimization of PGNAA set up for salinity determination in large sample using MCNP simulation. *Accepted for publication* in Nucl. Instr. and Meth.(2007).

2. Conférences Internationales

– Communication intitulée : Application d'un générateur de neutrons pour le dosage de l'oxygéne en traces dans une piéce métallique'. 1ere Rencontre National sur la Recherche et les applications à l'industrie (RNRAI), Setif, 29-30 Juin et 1 Juillet 1993.
– Communication intitulée : ' Simulation and optimization of cyclic activation analysis of shorts-lived isotopes with 14 Mev neutron generators'. Nuclear analytical methods in the life sciences, Prague (September 93).
– Communication intitulée' Analyse by neutron activation of bulk samples liquid with a source Am-Be' presentée à la première conférence euro méditerranéenne ' Analytical Chemistry', Cordoba (November 95).
– Communication intitulée : ' Prompt Gamma Neutron in bulk sample analysis ' presentée à la Deuxième conférence euro méditerranéenne ' Analytical Chemistry', Rabat (November 97).
– Communication intitulée : Simulation of prompt gamma rays spectra : calibration for pollutants determination in voluminous sample, 14th Radiochemical Conference : Marianske Lazne, Czech Republic (14-19 April 2002).
– Communication intitulée : Use of citation code for flux calculation neutron activation analysis with voluminous sample using an Am-Be source. 14th Radiochemical Conference : Marianske Lazne, Czech Republic (14-19 April 2002).
– Communication intitulée' Detection limits of pollutants in PGNAA using an isotopic neutron source', MTAA11, 21-26 June 2004, Surrey Guildford, U.K.
– Communication intitulée ' PGNAA with large sample using isotopic neutrons source' presentée au "Technical Meeting on Large sample (1G-1KG) Neutron Activation Analysis using low flux irradiation facilities ", Vienna Austria, 7-11 November 2005.