

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

UNIVERSITE DES SCIENCES ET DE LA TECHNOLOGIE

« HOUARI BOUMEDIENE »

FACULTE DE PHYSIQUE



MEMOIRE

Présenté pour l'obtention du diplôme de MAGISTER

EN : PHYSIQUE

Spécialité : Sciences Nucléaires

Par : REDJEM FETHI

Sujet

**Analyse par activation neutronique avec les gammas prompts et
au moyen d'une source Am-Be d'échantillons en masse solides :
Application à l'analyse des boues des stations d'épuration des eaux
usées**

Soutenu publiquement le 08 /12/2011 devant le jury composé de :

Mr. M.BELGAID	Professeur	USTHB	Président
Mr. Z.IDIRI	Maitre de Recherches/A	CRNA	Directeur de mémoire
Mr. H.AMMI	Maitre de Recherches/A	CRNA	Examineur
Mr. B.BOUZID	Maitre de Conférences/A	USTHB	Examineur
Mr. M. A. BENAMAR	Maitre de Conférences/A	USDB	Examineur

REMERCIEMENTS

Ce travail a été effectué au centre de recherche (CNR) et au sein du Département de Physique de la Faculté des Sciences nucléaire et interaction ion-matière de USTHB.

Je tiens à adresser mes vifs remerciements à M. IDRI, Maître de recherche au (CNR), pour avoir assuré la direction de ce mémoire de Magister. Qu'il trouve ici l'expression de ma profonde gratitude : pour ses encouragements, sa disponibilité et la grande compétence dont il a fait preuve tout au long de ce travail.

Je suis très reconnaissant à monsieur M. Belgaid, Professeur à l'Université de Bab ezzouar, pour l'intérêt qu'il a porté à ce mémoire en me faisant l'honneur de présider le jury.

Mes sincères gratitudes à monsieur B. BOUZID, Maître de conférences à USTHB, d'avoir accepté de juger mon travail et de faire part au jury d'examen.

Je remercie également monsieur M. AMINE BENAMAR, Maître de Conférences à USDB, pour l'intérêt qu'il a porté à ce mémoire et pour avoir accepté de participer au jury d'examen.

Je remercie également Monsieur, H. ANANI, Maître de recherche à CRNA d'avoir accepté d'examiner ce travail, et pour l'intérêt qu'il lui a porté.

Je tiens à exprimer ma profonde reconnaissance et ma gratitude à Madame N. Bellouadah chargé de recherche au (CNR), pour sa disponibilité, ses qualités humaines, ainsi que pour l'intérêt qu'elle a manifesté pour ce travail.

Merci à l'équipe de station d'épuration du Reghaia de m'avoir fourni les échantillons.

Finalement, je tiens à exprimer ma profonde reconnaissance à mon père, ma mère, mes frères et à tous mes proches pour leur inestimable affection, leur soutien et leurs encouragements sans cesse renouvelés. À tous ces derniers, j'exprime ma reconnaissance et ma profonde gratitude.

Fethi Redjem

Résumé :

L'analyse par activation neutronique avec les gammas prompts (Prompt Gamma Neutron Activation Analysis, PGNAA) et au moyen d'une source isotopique de neutrons est une méthode utilisée pour l'analyse in-situ et en temps réel d'échantillons en masse dans divers domaines (mines, industrie, pétrole, environnement,...). Le grand pouvoir de pénétration des neutrons permet, à l'inverse des autres méthodes, l'investigation d'échantillons volumineux, donc représentatifs de la réalité [10]. La technique est non destructive et multi élémentaire. L'identification des éléments est effectuée par l'énergie des raies gamma spécifiques de chaque noyau et les concentrations sont déduites de l'intensité des raies gamma correspondantes. Dans ce travail, nous avons utilisé un dispositif expérimental de PGNAA utilisant une source Am-Be de 1 Ci et un détecteur au germanium hyper pur (GeHp) de 15% d'efficacité relative. Ce dispositif consiste en un porte-échantillon cylindrique en plexiglas au centre duquel la source de neutrons est insérée. Le détecteur GeHp est disposé contre la surface externe du porte-échantillon. Ce dispositif a été optimisé pour l'analyse des échantillons liquides [20] avec le code Monte Carlo MCNP5 de calcul de transport des neutrons et photons. Dans le cas de l'analyse des boues de station d'épuration, objet de ce travail, nous avons simulé avec le code MCNP5 ce dispositif pour déterminer les dimensions optimales des échantillons en recherchant un flux de neutrons thermiques moyen maximum dans les échantillons. Nous avons aussi calculé avec le même code l'efficacité de détecteur utilisés dans ce travail le détecteur GeHp. Pour l'analyse quantitative nous avons utilisé la méthode développée par Z. Idiri et al [35]. Cette méthode est basée sur l'efficacité du détecteur GeHp déterminée expérimentalement avec les gammas prompts émis par le chlore dissous dans un échantillon d'eau qui constitue l'échantillon de référence. On a tenu compte des variations du flux de neutron thermique en utilisant les mesures effectuées à l'aide du compteur à gaz ^3He . Pour les variations de l'atténuation gammas dans les échantillons, nous avons calculé des facteurs d'atténuation avec le code MCNP5. Cette méthode a été appliquée sur l'analyse des boues des stations d'épurations utilisées après séchage comme compost dans l'agriculture pour déterminer les éléments nutritifs (Ca, K, P, N,...) et des métaux lourds à savoir (Cd, Zn, Cr, Hg, Pb, ...).

Table des matières

Introduction générale	1
Chapitre I: Les processus d'interaction des Neutrons et des photons avec la matière	
I.1.Introduction	4
I.2.Classification des neutrons.....	4
I.3.Interaction neutron avec la matière.....	6
a). La section efficace.....	6
b).La densité, le flux et le taux de réaction neutroniques.....	8
I. 4.Les interactions induite par les neutrons.....	8
I. 5. Les Sources des Neutrons.....	10
I. 6. Détection des neutrons thermiques.....	12
I.7. Grandeurs et unités dosimétriques.....	13
I.8. Interaction photon-matière.....	15
I.9.Détection des gammas.....	17
I.9.1.Détecteur Germanium hyper pur.....	17
I.9.2.Détecteur à scintillation NaI.....	18
I.9.3.La résolution et l'efficacité de détection	20
I.9.4.L'électronique associée à la spectrométrie gamma.....	21
I.10.Empilement des impulsions.....	21
I.11.Temps mort... ..	21
I.12.dommage induit par les neutrons.....	22
Chapitre II : L'analyse par activation neutronique par les gammas prompts et au moyen de sources isotopique de neutrons	
II.1. Introduction	25
II.2. Analyse par activation neutronique	25

II.3. La technique d'analyse par les gammas prompts (PGNAA).....	26
II.3.1. Relations fondamentales de la PGNAA.....	27
II.3.2.Caractéristiques de la PGNAA	32
II.3.3.Sources d'erreurs pour la technique PGNAA.....	32
II.3.4.La limites de détection :	32
II.4. Dispositif expérimental de PGNAA	33
II.4.1.Dispositif d'irradiation.....	34
II.4.2.L'Inspecteur 2000.....	35
II.4.3. Le logiciel Génie 2000.....	36
II.4.4. La Source de neutrons ²⁴¹ Am-Be.....	38
II.5.Les techniques utilisées pour la comparaison de notre résultat.....	39
II.5.1 La technique torche à plasma.....	39
II.5.2 La technique d'absorption atomique.....	40
 Chapitre III :Le code Monte Carlo MCNP5 pour le calcul du transport des photons	
et des neutrons dans la matière	
III.1.Historique.....	41
III.2.Principe de la méthode Monte Carlo.....	41
III.3 .Le Code MCNP.....	42
III.3.1.Le traitement de la physique par MCNP5.....	42
III.3.2 Structure général d'une Input MCNP5.....	43
III.4Simulation et optimisation du dispositif expérimental de PGNAA.....	50
III.4.1Stratégie d'optimisation.....	50
III.4.2 Validation de la modélisation du dispositif expérimental	51
III.4.3Optimisation des paramètres géométriques du dispositif de PGNAA avec la source ²⁴¹ Am-Be.....	59
III.4.4 Optimisation les dimensions des échantillons pour l'analyse de la boue des stations d'épuration d'eaux usées	63
III.4.4.1 Optimisation les dimensions du dispositif pour l'analyse de la boue liquide.....	67

III.4.4.2.Optimisation les dimensions du dispositif pour l'analyse de la boue solide.....	68
---	----

**Chapitre IV Application du dispositif de PGNAA à l'analyse de la boue de la station
d'épuration des eaux usées de Reghaia**

IV.1. Introduction.....	70
IV.2. Mesure de l'efficacité du détecteur Ge HP par les gammas prompts du chlore	70
IV.3.La correction de l'atténuation des gammas dans l'échantillon à analyser	75
IV.4 La détermination de l'efficacité du détecteur et le flux de neutron thermique moyen pour un échantillon de la boue.....	77
IV.5. L'Analyse de la boue par la PGNAA.....	78
IV.5.1.Fonctionnement d'une station d'épuration.....	78
IV.5.2.Echantillonnage :.....	79
IV.5.3.Dispositif expérimental :	79
IV.5.4.Le spectre de gammas prompts enregistré avec un échantillon d'eau.....	81
IV.5.5 Irradiation de la boue solide.....	83
IV.5.6.Irradiation de la boue liquide.....	84
IV.5.7.Analyse des spectres :	85
a) Analyse qualitative :	85
b) Analyse quantitative :	86
IV.5.8.Discussion des résultats.....	87
Conclusion générale.....	90
ANNEXE : Identifications des spectres obtenus Lors de l'analyse de la Boue.....	92

Introduction générale

L'analyse par activation neutronique avec les gammas prompts (Prompt Gamma Neutron Activation Analysis, PGNAA) au moyen de sources isotopiques de neutrons est une méthode utilisée pour l'analyse in-situ et en temps réel d'échantillons en masse dans divers domaines (mines, industrie, pétrole, environnement,...). Cette méthode est complémentaire aux techniques nucléaires d'analyse conventionnelles à savoir, l'analyse par activation neutronique retardée, la fluorescence X et la PIXE. Elle permet de doser des éléments donnant après capture neutronique des éléments stables, comme les éléments légers H, B, C, N, Si, P, S et Cl et les éléments lourds à savoir le Cd, le Sm, le Gd et l'Hg. Le grand pouvoir de pénétration des neutrons permet, à l'inverse des méthodes conventionnelles précitées, l'investigation d'échantillons volumineux, donc représentatifs de la réalité [1]. La PGNAA est non destructive (qui peuvent donc être réutilisés dans d'autres expériences) et ne nécessite pas de préparation d'échantillons.

La technique PGNAA consiste en l'interaction des neutrons avec les constituants de l'échantillon à analyser, cette interaction aboutit à la formation de noyaux composés excités qui émettent alors un ou plusieurs gammas prompts dans un intervalle de temps très court (10^{-14} s - 10^{-16} s). L'énergie des gammas prompts dépend de l'énergie de liaison du neutron dans le noyau composé. Après émission des gammas prompts, le noyau produit est généralement radioactif et se désintègre en émettant un électron ou un positron suivi de gammas qu'on appelle gammas retardés. L'analyse par activation neutronique avec ces gammas retardés est appelée analyse par activation neutronique retardée (Delayed Neutron Activation Analysis, DNAA). L'analyse par activation neutronique en général permet à partir de la mesure de l'énergie et du taux d'émission des gammas émis, permet l'identification et la détermination des concentrations des éléments présents dans l'échantillon.

Les applications de la PGNAA avec des sources isotopiques de neutrons dans l'industrie, la géologie et le contrôle non destructif sont nombreuses. Nous citerons la détermination de la proportion de ciment dans le béton [2], la détermination de la qualité du charbon extrait de mines [3], la détection d'explosifs contenant de l'azote

Introduction Générale

dans le domaine de la sécurité des aéroports [4], et la mesure de l'azote total dans le corps humain [5].

Dans ce travail on a appliqué cette méthode sur l'analyse d'échantillons solides et en particulier les boues de stations d'épuration d'eaux usées utilisées après séchage comme compost dans l'agriculture. Nous avons effectué le dosage des éléments nutritifs (N, P, K, Ca) et des métaux lourds (Cd, Zn, Cr, Hg, Pb, ...) en mettant en œuvre la méthode absolue pour l'analyse quantitative.

Le présent manuscrit est structuré en quatre chapitres. Dans le premier chapitre, nous rappelons les bases théoriques nécessaires à la compréhension des mécanismes d'interaction des neutrons avec la matière, les fondamentaux de la dosimétrie des rayonnements ainsi que les défauts induits par les rayonnements dans les détecteurs de rayonnement gamma. Nous donnons aussi un bref rappel sur l'interaction des photons avec la matière.

Dans le deuxième chapitre, la relation fondamentale de la méthode d'analyse par les gammas prompts est développée. Nous présentons le dispositif expérimental utilisé qui est composé d'un porte-échantillon, une chaîne de détection gamma et une source de neutrons Am-Be de 1 Ci.

La modélisation du dispositif expérimental ainsi que l'optimisation des dimensions des échantillons au moyen du code MCNP5 font l'objet du troisième chapitre. L'outil de calcul utilisé à cet effet est le code Monte Carlo (MCNP5) de calcul de transport de neutron et de photon développé par le Laboratoire National de Los Alamos [6].

Enfin, dans le quatrième chapitre, deux échantillons de boue, l'un solide et l'autre liquide issus de la station d'épuration des eaux usées de Reghaia seront analysés. Pour l'analyse quantitative, nous suivrons une méthodologie qui utilisera des courbes d'étalonnage déterminées avec l'eau comme échantillons de référence [1]. Celles-ci seront normalisées pour le flux moyen de neutrons thermiques et l'atténuation gamma. Nous déterminerons le rendement absolu de détection gamma du système pour un échantillon d'eau en utilisant les gammas prompts pour une quantité connue de chlore préalablement dissous. Ensuite, l'atténuation gamma sera évaluée en utilisant le code MCNP5. Enfin, pour la normalisation des nombres d'impulsions enregistrées au même flux, on utilisera les mesures effectuées avec un compteur de neutrons à gaz ^3He placé à

Introduction Générale

la surface externe du porte- échantillon. Les résultats seront comparés avec ceux déterminés par une méthode chimique conventionnelle à savoir la torche à plasma et l'absorption atomique.

Chapitre I :
Interaction des
Neutrons et des
photons avec la
matière

I.1 Introduction

En 1930, Bothe et Becker découvrent l'émission d'un rayonnement très pénétrant provoqué par l'action des α du Radium sur des noyaux légers de Lithium, de Béryllium ou de Bore. En 1931, F. Joliot reprend les expériences de Bothe avec une source α de Polonium : il observe que le nouveau rayonnement, en traversant une chambre de Wilson remplie d'hydrogène, produit des protons très énergétiques et annonce que le rayonnement de Bothe est constitué de photons γ de haute énergie. Un an plus tard, en se basant sur les mêmes expériences que Joliot, James Chadwick, annonce que ce rayonnement est constitué de neutrons, c'est-à-dire des particules de masse égale au proton mais sans charge, ce qui explique qu'il soit si pénétrant. Rutherford avait prévu ce résultat par le calcul dès 1923.

I.2 Classification des neutrons

Le neutron est une particule neutre d'énergie au repos 941 MeV, qui est instable lorsqu'elle n'est pas liée, avec une demi-vie de 12 minutes dans l'air. Il interagit avec le noyau sans être gêné par le champ coulombien. Les neutrons sont généralement classés en fonction de leur énergie [7.8], qui peut s'étendre sur une dizaine de décades, depuis les neutrons thermiques jusqu'à des neutrons de plusieurs centaines de MeV. Le tableau I.1 reprend la classification des neutrons.

	Énergie
Neutron	
thermiques	$E_n \leq 0,4 \text{ eV}$
intermédiaires	$0,4 \text{ eV} < E_n \leq 200 \text{ KeV}$
rapides	$200 \text{ Kev} < E_n \leq 10 \text{ MeV}$
relativistes	$E_n \geq 10 \text{ MeV}$

Tableau I.1 : classification des neutrons en fonction de leur énergie [7].

a). Neutrons thermiques

Il s'agit des neutrons qui ont une énergie cinétique telle qu'à la température ambiante, ils se trouvent en équilibre thermique avec les noyaux du milieu récepteur en présentant un spectre de vitesses selon une distribution de Maxwell. La densité de neutron (n) en fonction de sa vitesse (v) est donnée par l'expression :

$$n(v) dv = \frac{4nv^2}{\sqrt{\pi}} \left\{ \frac{m}{2kT} \right\}^{\frac{3}{2}} \exp\left(-\frac{mv^2}{2kT}\right) dv \quad (\text{I. 1})$$

où

m : est la masse du neutron

k : est la constante de Boltzmann,

T : est la température absolue.

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. L'énergie cinétique la plus probable des neutrons thermiques E_0 est :

$$E_0 = k T = \frac{1}{2} m v_0^2 \quad (\text{I. 2})$$

A 20 °C, $E_0 = 0,0253$ eV, et la vitesse la plus probable $v_0 = 2200$ m/s. On convient de définir une limite supérieure au-dessous de laquelle ils sont considérés comme des neutrons thermiques. Cette valeur est de 0,5 eV, une valeur correspondante au changement remarquable qui est observé à la section efficace d'absorption du cadmium (fig. I.1).

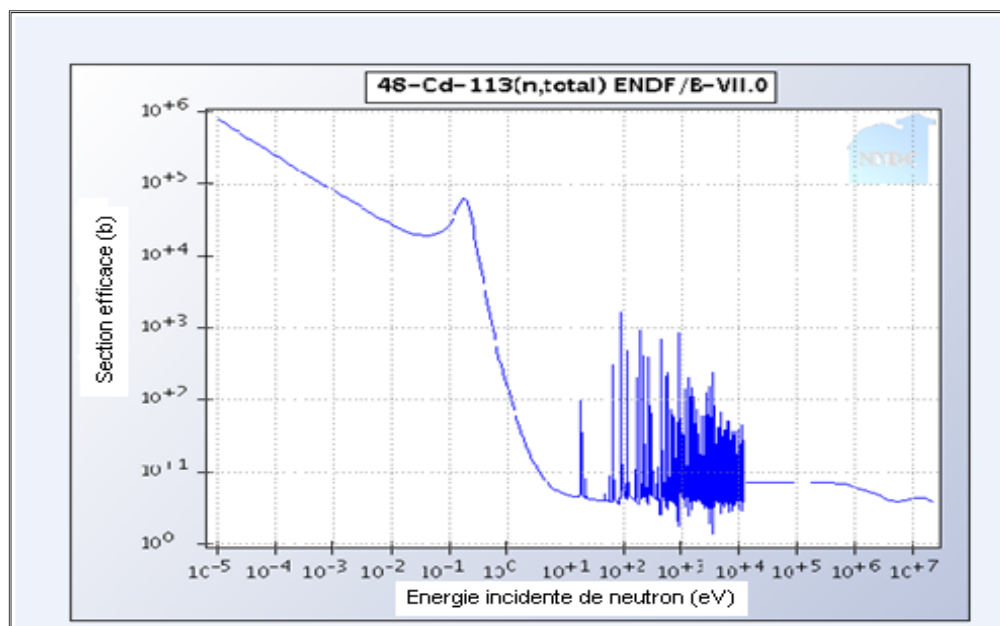


Figure I.1: représente la variation de la section efficace en fonction de l'énergie du neutron pour le Cd [1]

On observe une forte résonance à l'énergie 0.18 eV au dessus de laquelle la valeur de la section efficace décroît de manière drastique (plusieurs ordres de grandeurs). En utilisant cette propriété du ¹¹³Cd, une feuille de ce matériau d'épaisseur de 1 mm peut servir de filtre de neutrons thermiques. A des énergies inférieures à 0.5 eV, appelée énergie de coupure, les neutrons sont complètement absorbés par la feuille de cadmium.

b). Neutrons intermédiaires

Les neutrons intermédiaires résultent de la collision élastique entre des neutrons rapides et un noyau cible léger d'un matériau (Hydrogène, graphite...). Ces neutrons ont une énergie entre 0,5 eV et 200 keV et exhibent un spectre en $1/E$, E étant l'énergie des neutrons.

c). Neutrons rapides

Les neutrons considérés comme rapides sont ceux qui ont une énergie supérieure à 200 keV.

I.3 Interaction neutron avec la matière

a). La section efficace

La notion de section efficace est nécessaire pour quantifier le nombre de réactions résultant de l'interaction entre un flux de particules et une cible. Appelée aussi

probabilité d'interaction, elle peut être «microscopique» quand elle est caractéristique du « noyau-cible» individuel, ou «macroscopique» quand elle caractérise un matériau contenant un grand nombre de noyaux-cibles [7].

- La section efficace microscopique :

Elle représente la probabilité d'interaction du neutron avec le noyau cible. Elle est notée σ et s'exprime en cm^2 ou en barns ($1\text{barn}=10^{-24}\text{cm}^2$).

La section efficace totale σ_t est la somme des sections efficaces de diffusion et d'absorption

$$\sigma_t = \sigma_s + \sigma_a \quad (\text{I.3})$$

Avec

σ_s : sections efficaces de diffusion

σ_a : sections efficaces d'absorption

- La section efficace macroscopique et le libre parcours moyen :

La section efficace macroscopique Σ représente la probabilité d'interaction avec un nombre d'atomes correspondant à la densité atomique du matériau considéré. Cette grandeur est proportionnelle au nombre d'« obstacles » que les neutrons sont susceptibles de rencontrer, donc au nombre n_c de noyaux par unité de volume (cm^3), elle s'exprime par :

$$\Sigma = n_c \cdot \sigma \quad (\text{en cm}^{-1}) \quad (\text{I.4})$$

où σ : est la section efficace microscopique.

D'autre part, le libre parcours moyen des neutrons est l'inverse de la section efficace macroscopique :

$$\lambda = 1/\Sigma \quad (\text{en cm}) \quad (\text{I.5})$$

Il représente la moyenne de la distance à laquelle se produit le premier choc. Il est de l'ordre du centimètre dans les matériaux usuels.

b).La densité, le flux et le taux de réaction neutroniques

La densité n des neutrons est le nombre de neutrons observé par unité de volume, plus précisément, si l'on considère un petit élément de volume virtuel d^3r placé au point \vec{r} dans le système du laboratoire, le nombre moyen des neutrons qu'on devrait compter est :

$$n(\vec{r}) \cdot d^3r \quad (\text{I.6})$$

Le flux Φ est défini comme le nombre des neutrons traversant une surface par l'unité de temps, et s'exprime par le produit entre la densité des neutrons n et la vitesse des neutrons v .

$$\Phi = n \cdot v \quad (\text{S}^{-1}\text{cm}^{-2}) \quad (\text{I.7})$$

Le taux de réaction noté R est défini par le nombre d'interactions par unité de volume et par unité de temps :

$$R = n \cdot \Sigma \cdot v \quad (\text{I.8})$$

Le flux étant $\Phi = n \cdot v$, on exprime finalement le taux de réaction par la formule :

$$R = \Sigma \cdot \Phi \quad (\text{I.9})$$

I.4 Les interactions induites par les neutrons

L'interaction des neutrons avec la matière peut être parfaitement décrite par le modèle du noyau composé [9]. Dans ce modèle, la première étape est celle où le neutron incident est absorbé par le noyau cible pour former un noyau composé. Dans la deuxième étape, le noyau composé se désintègre en éjectant une particule ou un rayon gamma et un noyau résiduel.

Le mode de désintégration du noyau composé est indépendant de la manière avec laquelle il a été formé et dépend seulement des propriétés du noyau composé lui-même [7], telles que l'énergie et le moment angulaire. L'énergie apportée par le neutron capturé est ensuite distribuée aléatoirement entre les nucléons du noyau composé. A chaque mode de désintégration possible, est associée une probabilité représentée par la largeur partielle. A chaque niveau d'énergie est associée une largeur totale Γ , somme de toutes les probabilités (largeurs partielles) correspondants aux différentes réactions

possibles. La probabilité d'une réaction induite par les neutrons représentée par la section efficace $\sigma(n, \gamma)$ est alors donnée comme suit [9] :

$$\sigma(n, \gamma) = \sigma_c(n) \frac{\Gamma_\gamma}{\Gamma} \quad (\text{I.10})$$

où $\sigma_c(n)$ est la section efficace de formation du noyau composé, Γ est la largeur totale et Γ_γ est la largeur partielle correspondant à la probabilité d'éjection de la particule γ .

Les neutrons rapides ($0.2 \text{ MeV} < E < 10 \text{ MeV}$) interagissent avec les noyaux cibles par des diffusions élastiques et inélastiques ou par des réactions de production de particules (n, p) , $(n, 2n)$,...qui souvent, ne peuvent être induites qu'à des énergies seuil du neutron. Avec les noyaux légers tels que l'hydrogène, la diffusion élastique est prépondérante. Dans ce mode de diffusion, l'énergie cinétique totale du neutron et celle du noyau cible restent inchangées après l'interaction. Durant celle-ci, une partie de l'énergie est transférée au noyau de sorte que pour une énergie E du neutron et un nombre de masse A du noyau, la perte d'énergie ΔE du neutron est donnée par :

$$\Delta E = \frac{2EA}{(A+1)^2} \quad (\text{I.11})$$

L'expression précédente montre que pour ralentir des neutrons avec un nombre réduit de collisions, les noyaux légers sont les plus appropriés. En particulier, avec l'hydrogène, on observe la plus grande perte d'énergie par collision ($E/2$).

Pour les neutrons thermiques et épithermiques, les réactions de capture radiative (n, γ) sont prépondérantes. Dans la capture radiative, le noyau composé est dans un état dont l'énergie est bien définie. Elle est pratiquement égale à l'énergie de liaison du neutron dans le noyau. Celle-ci est située entre 6 et 10 MeV pour 80% des éléments stables. La désexcitation du noyau composé a lieu après un temps très court de 10^{-16} s environ et se traduit par l'émission de deux à quatre gammas en cascade dans un temps situé entre 10^{-9} s et 10^{-12} s, ces gammas sont dénommés les Gammas prompts. L'énergie des gammas prompts émis est caractéristique des éléments et leur intensité est proportionnelle au nombre d'atomes. Le taux de captures $R(n, \gamma)$ sur un élément est donné par l'équation :

$$R(n, \gamma) = \frac{m}{M} \theta N_A \int \sigma(E_n) \varphi(E_n) dE_n \quad (\text{I.12})$$

θ : Abondance isotopique de l'isotope d'intérêt (%)

m : masse de l'élément d'intérêt (g)

M : masse atomique de l'élément mesuré (g/mol)

N_A : nombre d'Avogadro (6,02.10²³ at. /mol)

σ : section efficace de capture neutronique (cm²)

φ : Flux de neutrons incident (n.s⁻¹.cm⁻²)

E_n : énergie du neutron incident (keV)

La relation entre l'aire A sous un pic photoélectrique du spectre gamma enregistré et la masse de l'élément irradié par les neutrons est donnée par l'équation suivante :

$$A(E\gamma) = R(n, \gamma) \cdot I(E\gamma) \cdot \varepsilon(E\gamma) \quad (I.13)$$

Avec :

$E\gamma$: énergie du gamma émis (KeV)

$I(E\gamma)$: intensité de la raie gamma d'énergie $E\gamma$

$\varepsilon(E\gamma)$: rendement de détection à l'énergie $E\gamma$

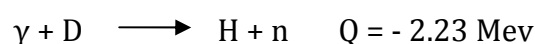
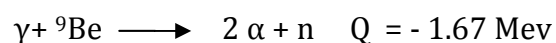
I.5 Les Sources de Neutrons

Il existe trois sources principales des neutrons: (1) les sources isotopiques, (2) les générateurs de neutron et (3) les réacteurs nucléaires.

1). Sources isotopiques

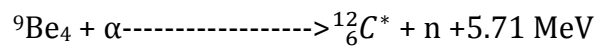
Les sources isotopiques de neutrons sont composées soit d'un radionucléide émetteur α ou γ , ou un isotope qui se désintègre par la fission spontanée.

L'émetteur γ dans les sources photo-neutron est entouré par le béryllium ou deutérium (comme D₂O) où les neutrons sont émit par la réaction (γ, n) :



Très peu de radionucléides avec une demi-vie raisonnable émettent des rayons γ avec des énergies très élevées. Pour cette raison, l'utilisation de ce type de source de neutrons est très limitée.

Les sources (α , n) sont un mélange intime d'un élément émetteur α et d'un élément cible tel que le Béryllium (Be). Les neutrons sont alors générés par l'interaction de la particule α avec un noyau de Béryllium :



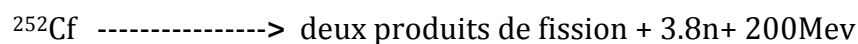
Les principales propriétés de ces sources sont résumées dans le tableau (I.2)

Emetteur α	${}^{210}\text{Po}$	${}^{234}\text{Pu}$	${}^{241}\text{Am}$
Rendement neutronique (n/s. μg)	$2.35 \cdot 10^6$	$1.37 \cdot 10^6$	$2.32 \cdot 10^6$
Demi-vie	138.34 J	24.360 ans	485 ans

Tableau I.2 : propriétés des sources de neutron de Réaction ${}^9\text{Be} (\alpha, n) {}^{12}\text{C}$ [10]

Le principal inconvénient de ce type de source est que dans 80% des interactions (α , n), le noyau ${}^{12}\text{C}$ est laissé dans état excité à 4.43 MeV, et se désintègre avec une émission des photons de 4.343 MeV[10], ces rayonnements gammas sont constitués d'un bruit de fond qu'il faut prendre en considération.

Pour les sources de la fission spontanée, il y a le ${}^{252}\text{Cf}$



La demi-vie est de 85.5ans.

Les sources ${}^{252}\text{Cf}$ sont très compactes. Le spectre de neutrons de fission du ${}^{252}\text{Cf}$ a une énergie moyenne de 2,348MeV. Le rendement des neutrons est $2,31 \cdot 10^6$ n/s. μg .

Dans le but d'augmenter le flux de neutrons, on entoure souvent le ${}^{252}\text{Cf}$ avec l' ${}^{235}\text{U}$, matériau plus facile à obtenir .De tels dispositifs sont appelés multiplicateurs de neutrons.

1mg de ${}^{252}\text{Cf}$ combiné avec 1,4g de ${}^{235}\text{U}$ (enrichi à 93,4%) avec du polyéthylène comme modérateur est équivalent à une source de neutrons de 33mg ${}^{252}\text{Cf}$. Ce dispositif délivre des flux de neutrons thermiques et rapides respectivement de $4 \cdot 10^8$ et $6 \cdot 10^8$ n /s. cm^2 [1].

2). Générateur de neutrons

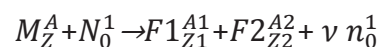
Une autre façon de produire des neutrons est la réaction nucléaire avec des noyaux légers. Les deux réactions les plus utilisées sont :

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

Ces réactions résultent de la collision entre des ions accélérés de Deutérium (tension accélératrice entre 100 à 300 KV) avec les noyaux de Deutérium ou Tritium. 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.

3). Réacteurs Nucléaires

Avec un réacteur nucléaire, la production des neutrons a lieu lors de la fission d'un noyau M_Z^A selon :



Avec :

$$A + 1 = A1 + A2 + \nu ; Z = Z1 + Z2$$

Et

A, Z : sont respectivement la masse atomique et le numéro atomique du noyau M_Z^A .

F1, F2 : sont les fragments produits .

A₁, A₂, Z₁, Z₂ : sont respectivement les masses atomiques et les numéros atomiques des fragments de fission.

ν : est un nombre de neutrons compris entre 2 et 3.

I. 6 Détection des neutrons thermiques

Les neutrons sont des particules non directement ionisantes. En traversant un milieu donné, ils produisent des particules chargées ou un rayonnement gamma. La détection des neutrons est basée sur la détection des particules produites dans le milieu traversé. Il y a deux méthodes de détection des neutrons thermiques : la méthode passive et la méthode active.

1). La méthode passive

Certains matériaux s'activent sous l'effet des neutrons et deviennent radioactifs. La quantité de la radioactivité γ émise après un certain temps d'irradiation est fonction du flux de neutrons utilisé. On utilise par exemple l'Indium dont la section efficace de réaction de capture $^{115}\text{In} (n, \gamma) ^{116}\text{In}$ possède une très grande valeur (≈ 2600 barns) [6] pour des neutrons lents. Le flux de neutrons peut être déterminé en mesurant le nombre de photons γ émis.

2). La méthode active

La détection des neutrons par la méthode active est basée sur la détection des particules produites (particule chargée, fragment de fission,..) après interaction des neutrons avec le milieu détecteur. Dans ce travail on utilisera le détecteur à gaz d' ^3He

- Le détecteur ^3He

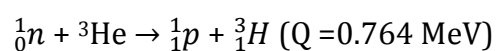
Le détecteur ^3He est un compteur proportionnel qui fonctionne selon le principe de l'ionisation et l'amplification gazeuse.

Il est constitué d'une enceinte cylindrique (cathode) reliée à la masse, traversée par un fil conducteur central (anode) porté à un potentiel élevé (≥ 1000 V) et remplie d'un gaz ^3He .



Figure I.2: Le détecteur à gaz ^3He

En utilisant le compteur proportionnel à gaz ^3He , les neutrons thermiques sont détectés grâce à l'ionisation du gaz par les produits de la réaction de capture neutronique suivante :



La section efficace de cette réaction pour les neutrons thermiques (d'environ 0.025 eV) est de 5330 barns. Quand l'énergie du neutron augmente, la section efficace de cette réaction décroît rapidement en $1/v$, v étant la vitesse du neutron incident [7,11].

I.7 Grandeurs et unités dosimétriques

Les définitions évoquées dans cette partie sont celles des grandeurs qui représentent l'outil nécessaire pour corréler des mesures physiques aux effets des irradiations.

I.7.1 Dose absorbée

La dose absorbée, D est le quotient $d\varepsilon$ par dm , où $d\varepsilon$ est l'énergie moyenne cédée par le rayonnement ionisant à la matière de masse dm :

$$D = \frac{d\varepsilon}{dm} \quad (\text{I.14})$$

Unité S.I. : Gy

Le nom de l'unité de dose absorbée est le gray:

$$1\text{Gy} = 1 \text{ J} \cdot \text{kg}^{-1}$$

Le débit de dose absorbée, \dot{D} est le quotient de (dD) par dt , où dD est l'incrément de dose absorbée pendant l'intervalle de temps dt correspondant

$$\dot{D} = \frac{dD}{dt} \quad (\text{I.15})$$

Unité S.I.: $\text{J} \cdot \text{kg}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$

Le nom spécial, gray (Gy), peut être substitué au joule par kilogramme :

$$1\text{Gy} \cdot \text{s}^{-1} = 1 \text{ J} \cdot \text{kg}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$$

I.7.2 Équivalent de dose H

Pour tenir compte des effets biologiques des rayonnements ionisants, on a défini l'équivalent de dose H . Il est exprimé en sievert (Sv) par:

$$H (\text{Sv}) = D \cdot Q \quad (\text{I.16})$$

Avec:

D : la dose absorbée.

Q: le facteur de qualité (sans dimension).

Le débit d'équivalent de dose \dot{H} (Sv/h) est défini comme étant le rapport entre l'équivalent de dose et le temps d'irradiation.

1.7.3. Les normes internationales en radioprotection

Afin qu'aucun individu ne soit exposé à des risques biologiques jugés inacceptables dans le cadre de ses activités habituelles, on a défini des doses limites. En ce qui concerne les expositions professionnelles et du public, les organismes ICRP (Commission Internationale de Protection Radiologique) et ICRU (Commission Internationale des Unités Radiologiques) dans le rapport 74 [12] recommandent les valeurs présentées dans le tableau (I.3).

	Dose Limite	
	Travailleurs	Public
Equivalent de dose HE	- 20 mSv/an en moyenne sur 5 ans - 50 mSv maximum sur une année donnée	- 1 mSv/an en moyenne sur 5 ans - 5mSv maximum sur une année donnée

Tableau I.3 : Limites de dose recommandées par la Commission Internationale de Radioprotection ICRP 74 [12]

I.8 Interaction photon-matière

L'interaction des gammas avec la matière s'effectue suivant les trois processus suivants :

1). Effet photoélectrique

Au cours de l'effet photoélectrique, le photon γ est totalement absorbé. Un électron est alors éjecté d'une des couches électroniques de l'atome. Cet électron est souvent éjecté depuis la couche K de l'atome, la plus profonde. Il émit avec une énergie cinétique E_{e^-} qui est égale à l'énergie du photon incident (E_γ) diminuée de l'énergie de liaison de l'électron sur sa couche (E_K)

$$E_e \simeq E - E_K \quad (I.17)$$

L'atome se retrouve ionisé et le réarrangement électronique instantané provoque l'émission d'un rayonnement X de fluorescence caractéristique de l'atome, soit, plus rarement, une émission d'un électron Auger.

2). Effet Compton

Lors d'une interaction Compton, le photon incident cède une partie de son énergie à un électron du cortège électronique de l'atome, qui est éjecté. Il apparaît un nouveau photon diffusé, d'énergie inférieure. Il y a donc diffusion du photon incident et ionisation de l'atome. L'énergie du photon incident E est répartie entre l'électron et le photon diffusé. L'énergie du photon diffusé E' est donnée par :

$$E' = \frac{E}{1 + \frac{E}{E_0}(1 - \cos\theta)} \quad (I.18)$$

où $E_0 = 0,511 \text{ MeV}$ est l'énergie au repos de l'électron.

θ : L'angle de diffusion du photon

3). Création des paires

C'est un effet de matérialisation qui se produit à des énergies relativement élevées ($E \geq 2m_0c^2 = 1.022 \text{ MeV}$). 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.

4). Coefficients d'atténuation d'un faisceau de photons

Au contraire des particules chargées, les photons n'interagissent que très peu avec la matière. De plus, il existe une certaine probabilité qu'un photon traverse une épaisseur de matière sans interagir. Si on désigne par I_0 l'intensité initiale d'un faisceau de photons mono énergétiques en incidence normale, la diminution de l'intensité dans l'épaisseur comprise entre x et $x+dx$ d'un absorbant dépend directement de son coefficient d'atténuation μ :

$$dI = -\mu I dx \quad (I.19)$$

Avec

μ : Coefficient d'atténuation linéaire proportionnel à la section efficace totale d'interaction:

$$\mu = n \sigma_{\text{tot}}$$

n étant le nombre de noyaux ou d'électrons atomiques par cm^3 et σ_{tot} la section efficace totale d'interaction.

I : L'intensité du flux incident

Après intégration, on déduit la loi d'atténuation suivante :

$$I(x) = I_0 e^{-\mu x} = I_0 e^{-n\sigma_{\text{tot}}x} \quad (\text{I.20})$$

I.9 détection des gammas

La détection des gammas est basée sur la détection des particules chargées créées par ces gammas en traversant un milieu détecteur (solides, gaz,...). Deux détecteurs sont largement utilisés en spectrométrie gamma : le détecteur semi conducteur germanium Hyper pur (HpGe) et le détecteur solide de scintillation (Iodure de Sodium dopé au Thallium, NaI(Tl)).

I.9.1 Le détecteur Germanium Hyper pur (GeHp)

Le détecteur de Germanium(Ge) est un détecteur de type semi-conducteur. Dans un semi-conducteur, les électrons des couches externes des atomes se répartissent dans deux bandes d'énergie. La bande ayant l'énergie la plus basse est la bande de valence, l'autre est la bande de conduction. Ces deux bandes sont séparées par une bande d'énergie interdite qui est de l'ordre de 0.67 eV pour le Germanium [11]. À $T= 0^\circ\text{K}$, la bande de valence est complètement remplie et la bande de conduction est vide. Dans cette configuration, le Germanium ne conduit pas le courant puisque des bandes pleines (ou vides) n'autorisent aucun transport d'électron. Si la température augmente et que l'agitation thermique est suffisante pour conférer à un électron une énergie de 0.67 eV, celui-ci peut passer dans la bande de conduction en laissant derrière lui un trou. Un électron dans la bande de conduction peu peuplée est libre de se déplacer. Le trou créé dans la bande de valence peut également se déplacer. Un électron va combler le trou, laissant derrière lui un autre trou et ainsi le courant se propage. Ce déplacement électron-trou produit un courant qui peut être mesuré en appliquant une différence de potentiel aux bornes du cristal.

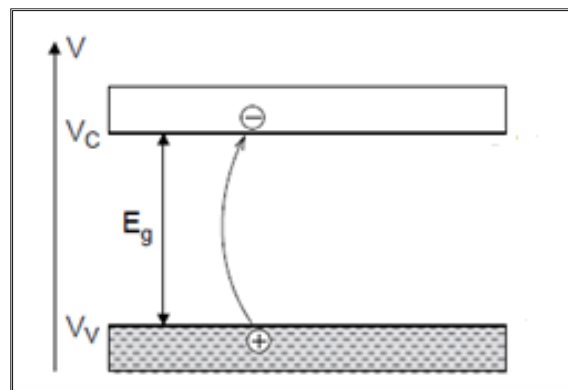


Figure I.3 : Niveaux d'énergie dans un cristal semi-conducteur, (V_V et V_C sont respectivement La bande de valence et la bande de conduction) [13]

Les semi-conducteurs tels que le germanium, même avec un très haut degré de pureté, contiennent des impuretés qui sont appelées respectivement accepteurs (type p) et donneurs (type n). Les impuretés contribuent à augmenter le nombre de trous dans le cas des impuretés de type p et celui des électrons dans le cas des impuretés de type n. Les semi-conducteurs sont classés selon la nature des impuretés qu'ils contiennent et sont appelés de type p ou n. Si on applique un champ électrique au semi-conducteur, on aura un courant résultant de la présence de ces électrons et trous. Ce courant représente un bruit de fond qui peut gêner la détection de courant issu de l'interaction des gammas avec le cristal. Pour éviter ce problème, on crée une zone intrinsèque libre de ces porteurs de charge et on obtient alors une diode de type p-i-n qu'on polarise en inverse. Une tension inverse appliquée à la jonction de type n+-p va pousser la majorité des porteurs de charge vers les deux côtés de la jonction, créant ainsi une zone intrinsèque. L'épaisseur de la zone de déplétion dépend de la tension appliquée et de la concentration des impuretés.

I.9.2 Détecteur solide de scintillation NaI(Tl)

Un détecteur à scintillation est constitué d'un matériau scintillateur optiquement couplé à un tube photomultiplicateur. Les détecteurs à scintillation les plus courants en spectrométrie gamma sont des cristaux d'Iodure de Sodium dopé au Thallium avec un pourcentage 0,1 à 0,2%. Le Thallium est un activateur qui permet de décaler la longueur d'onde de la lumière émise par le détecteur pour deux raisons: (1) afin de réduire l'auto-absorption de la lumière émise par le cristal de NaI lors de la désexcitation, et (2) le décalage de la lumière UV à la lumière visible augmente la sensibilité du photomultiplicateur

Le Crystal d'un scintillateur est caractérisé par deux bandes d'énergies : la bande de conduction et la bande de valence. Ces deux bandes sont séparées par une bande d'énergie interdite (le gap). Si on ajoute un faible pourcentage d'un élément activateur comme le thallium, la structure des bandes d'énergies du Crystal deviens comme indiqué sur le schéma suivant :

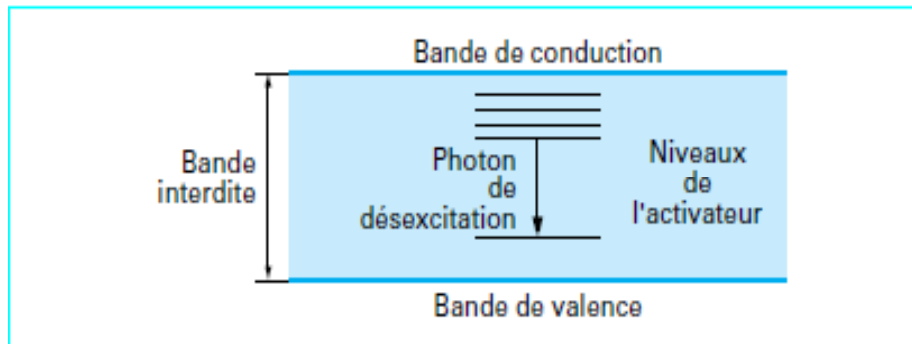


Figure I.4 : Niveaux d'énergie dans un cristal d'iodure de sodium Activé

Quand un photon interagit avec le Crystal d'un scintillateur, les électrons et les trous créés sont ralentis le matériau actif en émettant une lumière d'énergie plus faible que la largeur de la bande interdite. Il faut environ 30 eV d'énergie déposé dans le Crystal NaI pour produire un photon.

Dans le tube photomultiplicateur, et en utilisant une tension électrique, Le photon éjecte un électron de la photocathode et cet électron est accéléré vers les dynodes. Dans chaque dynode, l'électron éjecté plusieurs électrons (en général 3 à 4), multipliant ainsi le courant d'électrons.. Il faut, en moyenne, environ 10 photons pour libérer un photoélectron à la photocathode du multiplicateur. Ainsi, il faut environ 300 eV d'énergie de γ déposée dans NaI(Tl) pour libérer un photoélectron. Comme le nombre de photoélectrons est proportionnel à l'énergie γ , le nombre d'électrons final et par conséquent l'amplitude de l'impulsion aux bornes du photomultiplicateur sont proportionnels à l'énergie des photons γ . La taille du Crystal NaI(Tl) la plus couramment utilisée est celle cylindrique avec un diamètre de 7.5cm (3 pouces) et une longueur de 7.5cm (3 pouces)

I.9.3 La résolution et l'efficacité de détection

Les principales caractéristiques d'un détecteur nucléaire sont la résolution et l'efficacité de détection. La résolution est exprimée par la largeur du pic photoélectrique à la moitié de son maximum. Elle traduit la capacité de détecteur à séparer deux raies gammas proche. Le détecteur Germanium a une meilleure résolution comparé au NaI(Tl).

Pour l'efficacité de détection, on distingue deux types : l'efficacité absolue et l'efficacité intrinsèque. L'efficacité absolue du détecteur pour des gammas d'énergie E , $\varepsilon_{abs}(E)$ est définie comme suit :

$$\varepsilon_{abs}(E) = \frac{n(E)}{n_{\gamma}(E)} \quad (I.21)$$

où $n(E)$ est le nombre d'impulsions enregistrées sous le pic photoélectrique et $n_{\gamma}(E)$ le nombre de gammas d'énergie E émis par la source.

L'efficacité intrinsèque $\varepsilon_{int}(E)$ du détecteur est définie comme étant le rapport du nombre d'impulsions enregistré sous le pic photoélectrique à celui du nombre de gammas entrant dans le détecteur. La relation entre les deux grandeurs de l'efficacité est donnée par :

$$\varepsilon_{abs}(E) = \varepsilon_{int}(E) \frac{\Omega}{4\pi} \quad (I.22)$$

où Ω est l'angle solide entre la source et le détecteur

L'efficacité des détecteurs Germanium est plus faible par rapport à celle des détecteur NaI(Tl). Généralement, les constructeurs donnent l'efficacité relative pour les détecteurs germanium. Cette efficacité relative est définie comme étant le rapport des efficacités absolues respectivement du détecteur germanium et d'un détecteur NaI(Tl) de 3 pouces pour la raie 1332 keV d'une source point ^{60}Co placée à une distance bien définie des détecteurs. Dans ce travail nous avons utilisé un détecteur de germanium Hyper pur de 15% d'efficacité relative

I.9.4 L'électronique associée à la spectrométrie gamma

L'électronique associée à la spectrométrie gamma comprend un préamplificateur de charge, une alimentation en haute tension, un amplificateur linéaire et enfin un convertisseur analogique digital couplée à un ordinateur.

- Le préamplificateur de charge

Permet de convertir la charge récoltée aux bornes du détecteur en impulsion et d'optimiser le rapport signal sur bruit. A cet effet, il est doté d'un transistor à effet de champs refroidi à la température de l'azote liquide.

- L'amplificateur linéaire

L'amplificateur linéaire a pour fonctions l'amplification linéaire des impulsions issues du préamplificateur à des niveaux adéquats pour l'analyse en amplitudes. Ces niveaux se situent entre 0 et 10V.

- la mise en forme des impulsions pour l'amélioration du rapport signal sur bruit.
- l'alimentation en courant continu du préamplificateur.

- analyseur multi canal

Lorsque Les impulsions mises en forme par une amplification, elles sont traitées par un convertisseur analogique digital (Analog to Digital Converter, ADC) qui va les classer selon leur amplitude dans un registre mémoire constitué de plusieurs canaux. L'ensemble convertisseur et registre d'adresse mémoire constitue un analyseur multi canal (MCA)

I.10 Empilement des impulsions

Le phénomène d'empilement (pile up) se produit quand deux gamma ou plus interagissent dans le détecteur de façon trop rapprochée dans le temps. Les deux signaux correspondants se superposent alors et donnent une valeur d'énergie erronée qui vient augmenter le bruit de fond et fait perdre la valeur « vraie » du signal.

I.11 Temps mort

Le temps mort d'un détecteur ou plus généralement d'une chaîne de mesure correspond à une durée finie entre deux événements consécutifs pour qu'ils puissent être discriminés. Le temps mort doit être particulièrement pris en compte lors des

calculs de taux de comptage, la valeur mesurée du taux de comptage doit être corrigée afin de prendre en compte les événements qui ont eu lieu dans le détecteur mais qui n'ont pas été comptabilisés à cause du temps mort. La correction à appliquer dépend du comportement du détecteur, c'est à dire s'il est paralysable ou non-paralysable. Dans chacun des cas, le traitement du temps mort est différent (figure I.5).

- Détecteur paralysable

Le détecteur est dit paralysable lorsque se bloque pour chaque détection pendant la durée τ du temps mort (figure I.5). Il y a donc détection à partir du moment où deux événements sont séparés par un intervalle de temps supérieur ou égal à τ .

- Détecteur non-paralysable

Le détecteur est dit non-paralysable lorsque se bloque seulement pendant la durée τ après un événement. Dans ce cas là, le détecteur se débloque après le temps τ .

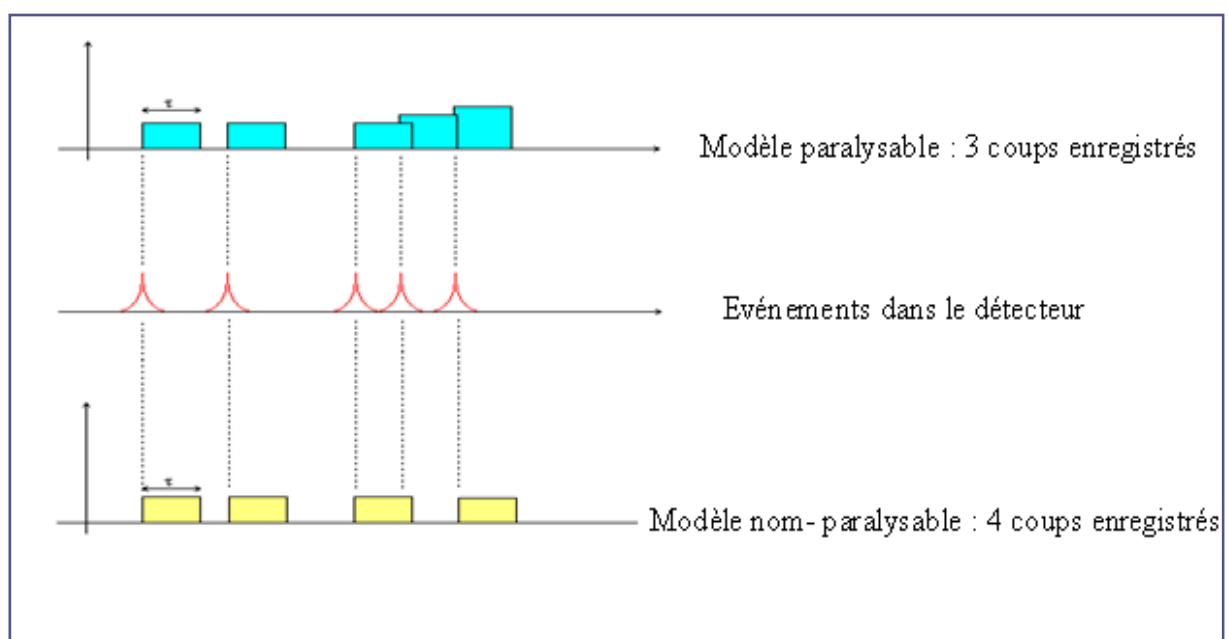


Figure. I.5: Illustration des deux modèles de temps mort [11].

I.12 dommage induit par les neutrons

L'irradiation des détecteurs de germanium par les neutrons, en particulier des neutrons rapides, peuvent donner lieu à des déplacements des atomes de leurs positions dans le réseau atomique. Les sites vacants créés, constituent des sites de piégeage des

porteurs de charge. Ceci conduit à une collection de charge incomplète donc à une dégradation de la résolution.

Le détecteur de type n est moins sensible à ces dégâts d'irradiation par rapport au détecteur de type p. Le tableau (I.4) présente les doses de neutrons rapides seuil au-dessus desquelles la dégradation de la résolution survient.

type de détecteur	Efficacité Relative (%)	Le seuil de la dose du neutron rapide (cm ⁻²)
Type- p	20	2×10 ⁸
	70	1×10 ⁷
Type -n	30	4×10 ⁹
	70	1×10 ⁸
Planar	-	1×10 ⁹

Tableau I.4: Le seuil de la dose du neutron rapide Sur un détecteur GeHp [10]

Dans les détecteurs coaxiaux fabriqués avec un germanium de haute pureté et de type p, les trous sont les porteurs de charge et sont dirigés vers le contact p+ situé vers l'axe du détecteur cylindrique. Pour les détecteurs coaxiaux faits avec du germanium hyper pur de type n, la polarité est inversée et les trous sont collectés au contact p+ situé à la surface externe du cristal cylindrique

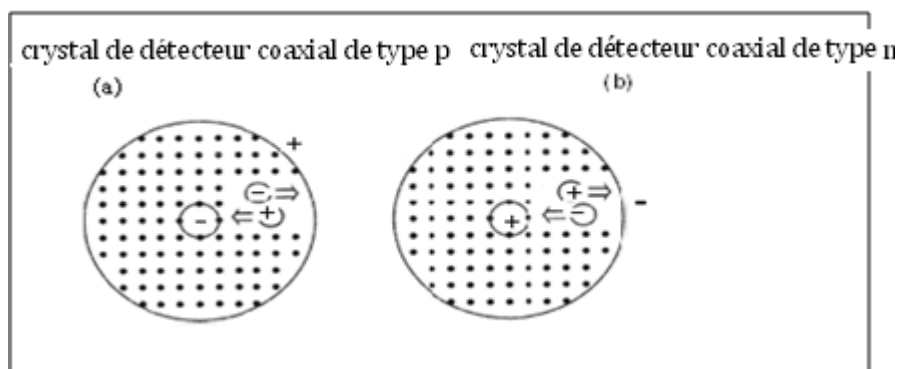


Figure I.6: la migration des charges dans un Crystal de détecteur coaxial de type p (a) et type n-type (b) [14]

Il a été observé que les détecteurs de type n présentent l'avantage d'être moins sensible aux dommages créés par les rayonnements que les détecteurs de type p [11]. L'explication réside dans le fait que les défauts créés piègent préférentiellement les trous que les électrons. Cette propriété des détecteurs de type n a fait que ce type de détecteur est couramment utilisé dans des applications neutroniques. Un autre aspect des détecteurs au germanium hyper pur est que la résolution peut être restaurée en faisant le recuit du détecteur. A une température de recuit de 120°C et pendant 72 h[11], on peut restaurer la résolution originale après un endommagement ($<4.10^9$ n/cm²) pour un détecteur de type n. Durant le réchauffement du cristal, un système de pompage externe doit être connecté pour préserver le vide dans le cryostat.

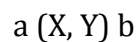
Chapitre II :

L'analyse par activation
neutronique par les gammas
Prompts et au moyen de
sources isotopique de
neutrons

Chapitre II L'analyse par activation neutronique par les gammas prompts et au moyen de sources isotopique de neutrons

II.1 Introduction

Toutes les techniques nucléaires d'analyse chimiques impliquent l'interaction entre un projectile entrant (neutron, particule chargée, ou photon) et un noyau cible. En conséquence de cette interaction, on aboutit à la formation de deux noyaux : l'un léger et l'autre plus lourd. Le particule légère est généralement un photon, un neutron ou une particule chargée. Nous pouvons écrire cette interaction sous la forme:



Avec

a : Projectile, X : noyau cible, Y:produit lourd, b : produit léger

Cette écriture n'exclut pas la possibilité de la formation d'abord d'un noyau composé qui se désintègre après pour donner les deux produits de la reaction. Le taux de reaction, R (nombre d'interactions par unité de temps), est donné par L'équation [10]:

$$R = N I X \sigma \quad (II.1)$$

où

N : La densité des noyaux de la cible

I: L'intensité du flux incident

X : L'épaisseur de la cible

σ : Section efficace d'interaction

L'équation (II-1) montre que R est proportionnelle à N, et donc par la mesure de R, on peut calculer le nombre de noyaux cible(N). C'est la base pour toutes les méthodes d'analyse par activation.

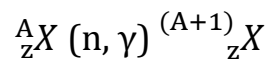
II.2 Analyse par activation neutronique

L'analyse par activation neutronique (Neutron Activation Analysis, NAA) est une méthode d'analyse multi élémentaire pour le dosage des éléments traces dans divers matériaux. Elle a été la méthode de référence dans les années 60 à 70 pour doser les éléments de traces dans des échantillons biologiques, les semi-conducteurs, les polluants industriels (Pb

Chapitre II L'analyse par activation neutronique par les gammas prompts et au moyen de sources isotopique de neutrons

dans l'air) et également en criminologie (détection de As). Cette utilisation de la NAA dans la recherche d'éléments trace ou ultra-trace était justifiée par le fait que l'analyse par activation possède une excellente sensibilité, et de plus, elle est multi élémentaire. Toutefois, cette technique se trouve concurrencée, depuis l'avènement de certaines techniques d'analyse multi-élémentaires telles que la torche à plasma couplée à un spectromètre de masse (Inductively Coupled Plasma-Mass Spectrometry, ICPMS).

En analyse par activation neutronique, l'échantillon est irradié par les neutrons thermiques (d'un réacteur, générateur de neutron ou des sources isotopiques) et dans tous les cas on obtient :



Avec

A_ZX : Le noyau cible.

${}^{(A+1)}_ZX$ Le noyau radioactif, chaque noyau radioactif émet des gammas d'énergie caractéristiques, ce qui nous permet d'identifier à partir du spectre gamma enregistré les éléments présent dans l'échantillon : on parle alors d'analyse qualitative.

De plus, à partir des activités induites pour chaque isotope produit, on peut déduire le nombre d'atomes des éléments activés, c'est à dire les concentrations des éléments recherchés.

Un des avantages fondamentaux de l'AAN est qu'elle est non destructive et l'échantillon peut être irradié sans aucun prétraitement. Enfin l'atout majeur de l'AAN est la sensibilité de détection qui permet de doser des traces infimes (de l'ordre du ppm ou ppb).

Dans le cas où le noyau descendant ${}^{(A+1)}_ZX$ se trouve dans un état fondamental, l'analyse par la technique NAA est impossible, dans ce cas l'analyse est peu être effectué en utilisant la technique d'analyse par activation neutronique avec les gammas prompts (Prompt Gamma Neutron Activation Analysis, PGNAA).

II.3 La Technique d'analyse par les gammas prompts (PGNAA)

La PGNAA est parmi les techniques nucléaires qui suscite un grand intérêt dans le domaine d'analyse en temps réel d'échantillons volumineux comme c'est souvent le cas dans plusieurs domaines (industriel, mines, agriculture,...).

Chapitre II L'analyse par activation neutronique par les gammas prompts et au moyen de sources isotopique de neutrons

Cette technique relativement nouvelle a été développée auprès des réacteurs nucléaires et aussi en utilisant différentes source isotopique de neutron ($^{241}\text{Am-Be}$, ^{252}Cf ,...). Elle est considérée comme une technique complémentaire à la NAA. Elle permet en effet de doser des éléments donnant un noyau résiduel stable par capture radiative (H, B, Cd...).

Dans la PGNAA (Fig. II.1), les nucléides stables A_ZX capturent les neutrons thermiques selon la réaction $^A_ZX (n,\gamma) (^{A+1})_Z X$. Le noyau composé $(^{A+1})_Z X$ produit est dans un état excité et va retourner à son état fondamental avec émission de rayons γ de haute énergie dans un laps de temps très court, de l'ordre de 10^{-11} à 10^{-12} s. C'est sur la détection (en temps réel) de ces gammas prompts qu'est basée cette technique.

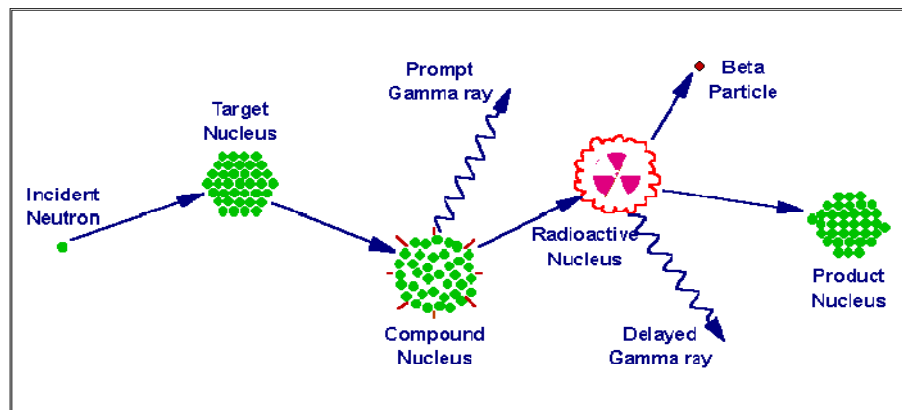


Figure II.1: Capture radiative d'un neutron par un noyau cible [15]

II.3.1 Relations fondamentales de la PGNAA

Le taux de capture neutronique dR d'un nuclide stable dans un élément différentiel de volume d^3r localisé au point (r) d'un échantillon dans un champ neutronique est donné par [1]:

$$dR = d^3r n_x(r) \int_0^\infty n(r, v) \sigma(v) v dv \quad (\text{II.2})$$

Où $n_x(r)$ est la densité du nuclide d'intérêt au point r et $n(r, v)$ la densité neutronique par unité de vitesse au point r .

Si on considère un échantillon d'une densité homogène, le taux moyen de réactions de capture sur tout le volume V est donné par l'équation :

Chapitre II L'analyse par activation neutronique par les gammas prompts et au moyen de sources isotopique de neutrons

$$\langle R \rangle = \frac{1}{t_m} \int_0^{t_m} dt \int_V dr^3 n_x(r) \int_0^\infty n(r, v) v \sigma(v) dv = \frac{1}{V} \frac{m}{M} N_A \theta \int_V dr^3 \int_0^\infty n(r, v) v \sigma(v) dv \quad (II.3)$$

Où

t_m : Le temps d'irradiation

m : est la masse de l'élément

N_A : le nombre d'Avogadro

M : la masse atomique de l'élément

θ : L'abondance isotopique

Dans la convention de Høgdahl [16], les flux thermique et epithermique sont classés en fonction de l'énergie de coupure du cadmium, si v_{cd} est la vitesse correspondant à l'énergie de coupure E_{cd} , la densité neutronique peut être alors séparée en deux termes

$$n(r, v) = n_{th}(r, v)\theta(v_{cd} - v) + n_{epi}(r, v)\theta(v - v_{cd}) \quad (II.4)$$

Où

n_{th} et n_{epi} : sont respectivement les densités neutroniques thermique et epithermique,

θ : la fonction escalier qui est égale à l'unité pour des arguments positifs et prend la valeur zéro ailleurs.

v_{cd} : La vitesse correspondant à l'énergie de coupure du cadmium $E_{cd} = 0.5$ eV.

Partant de la classification donnée par la convention précédente, le taux moyen de capture donné par l'équation (II.3) aura l'expression donnée par :

$$\langle R \rangle = \frac{1}{V} \frac{m}{M} N_A \theta \int_V dr^3 \left[\int_0^{v_{cd}} n_{th}(r, v) v \sigma(v) dv + \int_{v_{cd}}^\infty n_{epi}(r, v) v \sigma(v) dv \right] \quad (II.5)$$

L'expression (II.5) peut être simplifiée pour les sections efficaces variant en $1/v$ et devient :

$$\langle R \rangle_{1/v} = \frac{m}{M} N_A \theta [\bar{n}_{th} v_0 \sigma_0 + \bar{\varphi}_{epi} I] = \frac{m}{M} N_A \theta [\bar{\varphi}_0 \sigma_0 + \bar{\varphi}_{epi} I] \quad (II.6)$$

Où

N_A :le nombre d'Avogadro

v_0 : la vitesse la plus probable dans une distribution de Maxwell-Boltzmann ($v_0 = 2200$ m/s).

Chapitre II l'analyse par activation neutronique par les gammas prompts et au moyen de sources isotopique de neutrons

σ_0 : la section efficace de capture radiative pour des neutrons de vitesse v_0 .

I : l'intégral de résonance

\bar{n}_{th} , $\bar{\varphi}_0$, $\bar{\varphi}_{epi}$ sont respectivement les moyennes sur tout le volume V de l'échantillon de la densité neutronique totale, du flux thermique conventionnel et du flux epithermique.

Le facteur de Westcott \hat{g} a été utilisé pour tenir compte de l'écart par rapport à la loi $1/v$ des variations de la section efficace dans le domaine des neutrons thermiques. Il est donné par la relation suivante [17] :

$$\hat{g} = \frac{1}{\sigma_0 v_0} \frac{\int_0^{v_{cd}} n_{th}(v) v \sigma(v) dv}{\int_0^{v_{cd}} n_{th}(v) dv} = \frac{1}{\sigma_0 v_0} \int_0^{v_{cd}} \rho_{th}(v) \sigma(v) v dv \quad (II.7)$$

Où ρ_{th} est la fonction de distribution normalisée des vitesses des neutrons thermiques (spectre de Maxwell ou non). Pour les spectres du type de Maxwell, le facteur de Westcott est tabulé [17] pour un grand nombre d'éléments en fonction de la température.

Le taux de réaction de capture dans le cas de ces nucléides est donné alors par :

$$\langle R \rangle_{non1/v} = \frac{m}{M} N_A \theta [\bar{\varphi}_0 \hat{g} \sigma_0 + \bar{\varphi}_{epi} I] \quad (II.8)$$

La contribution epithermique au taux de capture peut être estimée en utilisant le rapport cadmium qui est le rapport mesuré de l'activité spécifique du nucléide d'intérêt dans un échantillon irradié sans enveloppe de cadmium à celle du même nucléide dans un échantillon irradié dans une enveloppe en cadmium. Physiquement, pour l'échantillon irradié sous enveloppe de cadmium, seuls les neutrons epithermique définis par la convention de Høgdahl [16] (Équation II-4) seront transmis et irradieront l'échantillon. L'activité étant proportionnelle au taux de capture, en utilisant l'équation (II-8), le rapport cadmium R_{cd} est donné par :

$$R_{cd} = \frac{\varphi_0 \hat{g} \sigma_0 + \bar{\varphi}_{epi} I}{\bar{\varphi}_{epi} I} = 1 + \frac{\bar{\varphi}_0 \hat{g} \sigma_0}{\bar{\varphi}_{epi} I} \quad (II.9)$$

Le taux de capture (II-8) peut être alors exprimé en fonction de R_{cd} par:

$$\langle R \rangle_{non1/v} = \frac{m}{M} N_A \theta \bar{\varphi}_0 \hat{g} \sigma_0 \left[\frac{R_{cd}}{R_{cd}-1} \right] \quad (II.10)$$

Si on introduit l'efficacité de détection $\epsilon(r, E_\gamma)$, le taux de comptage de gammas prompts

$\langle C \rangle$ est donné alors par :

Chapitre II L'analyse par activation neutronique par les gammas prompts et au moyen de sources isotopique de neutrons

$$\langle C \rangle = \frac{1}{V} \frac{m}{M} N_A \theta \int_V \epsilon(r, E_\gamma) \int_0^\infty P(E_\gamma, v) n(r, v) \sigma(v) v dv \quad (\text{II.11})$$

Où $P(E_\gamma, v)$ est la probabilité absolue d'émission d'un gamma prompt d'énergie E_γ par un nuclide capturant un neutron de vitesse v . Cette probabilité dépend de la vitesse (énergie) des neutrons capturés, cependant, les modèles [18] de la capture neutronique basés sur la théorie statistique prévoient que la dépendance de cette probabilité de l'énergie est négligeable dans le domaine des énergies thermiques. Partant de cette observation, et en combinant les équations (II-10) et (II-11), le taux de comptage peut s'exprimer comme suit :

$$\langle C \rangle = \frac{m}{M} N_A \theta \bar{\varphi}_0 \hat{g} \sigma_0 \bar{\epsilon}(E_\gamma) P(E_\gamma) \left[\frac{R_{cd}}{R_{cd}-1} \right] \quad (\text{II.12})$$

Où $\bar{\epsilon}(E_\gamma)$ est l'efficacité de détection gamma moyenne sur tout le volume V de l'échantillon.

Pour un milieu ayant un grand pouvoir de modération, la composante thermique est prépondérante ($R_{cd} \gg 1$), le taux de comptage donné par (II.12) devient :

$$\langle C \rangle = \frac{m}{M} N_A \theta \bar{\varphi}_0 \hat{g} \sigma_0 \bar{\epsilon}(E_\gamma) P(E_\gamma) \quad (\text{II.13})$$

En général, en spectrométrie gamma, le taux de comptage précédent est déterminé en mesurant le nombre de gammas sous le pic photoélectrique correspondant au gamma prompt utilisé pour l'analyse qu'on divise par le temps de comptage. L'équation (II.12) devient alors

$$N_\gamma = \frac{m}{M} N_A \theta \bar{\varphi}_0 \hat{g} \sigma_0 \bar{\epsilon}(E_\gamma) P(E_\gamma) t_c \quad (\text{II.14})$$

Où N_γ est le nombre d'impulsions enregistré sous le pic photo-électrique et t_c est le temps de comptage

Deux méthodes d'analyse quantitatives peuvent être citées dans la technique d'analyse par PGNAA :

🚦 Méthode absolue :

La concentration de l'élément dosé i dans un échantillon est

$$C_i = \frac{m_i}{M_e} \quad (\text{II.15})$$

où :

- M_e est la masse de l'échantillon ;

Chapitre II L'analyse par activation neutronique par les gammas prompts et au moyen de sources isotopique de neutrons

- m_i est la masse de l'élément i dans l'échantillon.

D'après l'équation (II-14), m_i s'écrit :

$$m_i = \frac{N_{\gamma_i} M_i}{N_A \theta_i \bar{\varphi}_0 \hat{g}_i \sigma_{0_i} \bar{\epsilon}(E_{\gamma})_i P(E_{\gamma})_i t_c} \quad (\text{II.16})$$

Donc :

$$C_i = \frac{N_{\gamma_i} M_i}{M_e N_A \theta_i \bar{\varphi}_0 \hat{g}_i \sigma_{0_i} \bar{\epsilon}(E_{\gamma})_i P(E_{\gamma})_i t_c} \quad (\text{II.17})$$

C'est la concentration de l'élément par la méthode absolue.

✚ Méthode relative :

Dans cette méthode et afin d'éviter les erreurs associées aux données nucléaires, on utilise un échantillon standard qui doit avoir une matrice similaire à l'échantillon inconnu et contenir une masse connue de l'élément à doser et on compare ensuite les nombres d'impulsions enregistrés avec l'échantillon standard et l'échantillon inconnu. Nous obtenons en utilisant (II.14) :

$$m_{ech} = m_{std} \frac{N_{\gamma,ech}}{N_{\gamma,std}} \quad (\text{II.18})$$

Où m_{ech} et m_{std} sont respectivement les masses de l'élément dans l'échantillon inconnu et le standard, $N_{\gamma,ech}$ et $N_{\gamma,std}$ les nombres d'impulsions enregistrés respectivement avec l'échantillon inconnu et le standard.

Il est très souvent difficile de trouver un échantillon standard présentant la même matrice que l'échantillon inconnu, il en résulte alors que l'absorption des neutrons thermiques et l'atténuation gamma peuvent être différentes dans les deux échantillons. Pour faire alors de l'analyse quantitative (équation (II-18)), le nombre d'impulsions gamma enregistré pour l'échantillon inconnu $N_{\gamma,ech}$ doit être normalisé pour le flux thermique moyen et l'efficacité de détection gamma moyenne. La masse de l'élément dans l'échantillon inconnu est alors donnée par :

$$m_{ech} = m_{std} \frac{N_{\gamma,ech} \frac{\bar{\varphi}_{0,std} \bar{\epsilon}_{std}(E_{\gamma})}{\bar{\varphi}_{0,ech} \bar{\epsilon}_{ech}(E_{\gamma})}}{N_{\gamma,std}} \quad (\text{II.19})$$

Chapitre II L'analyse par activation neutronique par les gammas prompts et au moyen de sources isotopique de neutrons

Où $\bar{\varphi}_{0,ech}$ et $\bar{\varphi}_{0,std}$ les flux moyens de neutrons thermiques respectivement dans l'échantillon inconnu et dans l'échantillon standard évalués par MCNP5, $\bar{\epsilon}_{ech}(E_\gamma)$ et $\bar{\epsilon}_{std}(E_\gamma)$ sont respectivement les efficacités de détection gamma moyennes de l'échantillon inconnu et du standard..

II.3.2.Caractéristiques de la PGNAA

La technique PGNAA présente plusieurs avantages. Elle permet de faire des analyses multi élémentaires et elle est non destructive. Si de plus, on dispose d'un détecteur et d'une électronique transportable, la technique peut être utilisée en site. L'émission des gammas prompts dans des temps très court ($< 10^{-14}$) rend la technique indispensable pour des analyses en temps réel comme cela est souvent demandé dans l'industrie (analyse en temps réel des matériaux entrant dans la fabrication du ciment).

II.3.3.Sources d'erreurs pour la technique PGNAA

Plusieurs sources d'erreurs dans la technique d'analyse PGNAA contribuent à diminuer la sensibilité de la méthode. Parmi les sources d'erreurs de cette méthode, on cite :

- Erreurs liées à l'absorption des neutrons
- Erreurs liées à l'auto absorption des photons
- Erreur statistique sur les nombre d'impulsion photoélectrique utilisé

II.3.4.Limites de détection

La concentration limite détectable dépend principalement du nombre de coups limite détectable enregistré dans le pic photoélectrique utilisé pour le dosage. Celui-ci étant superposé sur un bruit de fond constitué du Compton des pics d'énergies supérieures et du bruit de fond naturel, le nombre de coups limite détectable est lié aux fluctuations statistiques du bruit de fond dans la région d'énergie du pic d'intérêt. En effet, la question qui est souvent posée lorsque le nombre de coups détecté est relativement faible comparé au bruit de fond est la suivante : le pic détecté correspond-il à un rayonnement gamma effectif ou est-il la manifestation des fluctuations statistiques du bruit de fond dans la région d'énergie considérée ? Pour apporter des réponses à ce problème, L. Currie [19] a défini deux seuils :

Chapitre II L'analyse par activation neutronique par les gammas prompts et au moyen de sources isotopique de neutrons

- un seuil critique N_c à partir duquel on peut affirmer qu'il y a effectivement détection d'un rayonnement gamma avec une certaine probabilité K_α de se tromper (absence de rayonnement). On parle alors d'erreur de type 1.

- un seuil ou limite de détection N_d qui est la quantité de rayonnement gamma dont la probabilité de donner un nombre d'impulsions inférieur à N_c est très faible. On parle alors d'erreur de type 2 qui correspondent à la situation où même en présence de rayonnement, le signal détecté peut être inférieur à N_c et nous conduire à affirmer qu'il n'y a pas de rayonnement.

Les définitions telles que données par L. Currie [19] permettent de mieux contrôler la décision concernant la détection de rayonnement nucléaire qui est un phénomène aléatoire.

Pour un bruit de fond bien défini (écart type très faible), les deux seuils précédents sont donnés par les relations suivantes :

$$N_c = K\sqrt{N_B} \quad (\text{II.20})$$

$$N_d = K^2 + 2K\sqrt{N_B} \quad (\text{II.21})$$

où $K=1.645$ pour une distribution normale et une probabilité de 5% correspondant à un degré de confiance de 95%, et N_B est le nombre de coups du bruit de fond.

En utilisant la relation (II.21), la concentration limite détectable pour un élément donné peut s'exprimer comme suit [19]:

$$C_{LD} = \frac{1}{M_s} \frac{3.29\sqrt{N_B}}{N_s} \quad (\text{II.22})$$

où N_B est le nombre de coups du bruit de fond dans la région d'énergie du pic photoélectrique d'intérêt, et N_s est le nombre de coups spécifique (par unité de masse) dans le pic photoélectrique correspondant au gamma prompt d'intérêt, et M_s est la masse de l'échantillon utilisé dans ce travail.

II.4. Dispositif expérimental de PGNAA

Dans ce travail, le matériel utilisé pour la technique PGNAA est composé: d'un dispositif d'irradiation, une source de neutron, dans notre cas de type $^{241}\text{Am-Be}$, une chaîne de

Chapitre II L'analyse par activation neutronique par les gammas prompts et au moyen de sources isotopique de neutrons

spectrométrie gamma comprenant un détecteur GeHp associé avec un inspecteur Canberra[22] et un PC portable piloté par un logiciel Génie 2000.

II.4.1 Dispositif d'irradiation

Le dispositif expérimental utilisé dans ce travail est celui développé par Z. Idiri et al [20] et qui s'inspire de la sonde PGNAA réalisé par CHUNG [21] et contenant principalement une source de neutrons ^{252}Cf et un détecteur germanium hyper pur (Ge(Hp)). Cette sonde a été conçue pour être effectué à des analyses in situ et sous l'eau. La sensibilité dépend principalement de la distribution spatiale du flux de neutrons thermiques. Plus encore, en établissant la carte du flux de neutrons thermiques autour de la sonde contenant la source (2.7 μg de ^{252}Cf émettant $6.2 \cdot 10^6$ n/s), il a été trouvé que 90% des neutrons thermiques sont confinés dans 30 cm autour de la source [21].

L'inconvénient principal que présente cette sonde concerne le dosage des éléments tels que Cr, Ni et Fe, pour lesquels il faut tenir compte d'importantes interférences spectrales dues à l'interaction des neutrons avec les matériaux de construction de la sonde.

Z. Idiri et al [20] par leurs dispositif développé, proposent une approche alternative pour éviter les difficultés citées. Elle consiste en une conception optimale d'un dispositif basé sur une source de neutrons $^{241}\text{Am-Be}$. Une source $^{241}\text{Am-Be}$ de 37 GBq est immergée dans le centre d'une cuve cylindrique en polyéthylène remplie avec un volume d'eau optimal à analyser. Un détecteur gamma (HpGe) placé contre la paroi externe de la cuve est utilisé pour la détection des gammas prompts.

La source Am-Be présente l'avantage d'une longue demi-vie comparée à celle du ^{252}Cf . Inversement, l'inconvénient avec la source Am-Be est le bruit de fond gamma relativement intense engendré par le gamma de 4.43 MeV émis par le ^{12}C , produit de la réaction (α , n) sur le Béryllium. Pour le prototype développé dans ce travail, il doit être tenu compte d'une seconde composante du bruit de fond de moindre importance, qui est due au gamma prompt de 2.23 MeV émis par l'Hydrogène durant la capture neutronique.

Chapitre II L'analyse par activation neutronique par les gammas prompts et au moyen de sources isotopique de neutrons

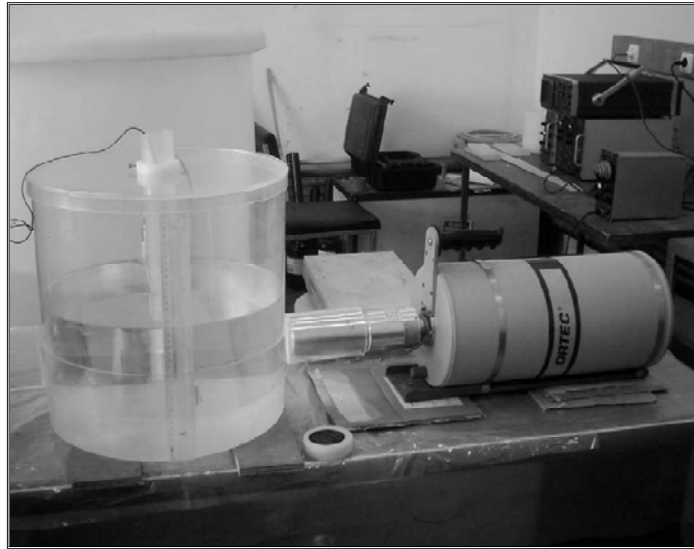


Figure II.2 : Système optimisé de PGNAA avec une source Am-Be développée au CRNA.

En prenant en considération que la plupart des éléments polluants d'intérêt (Hg, Cr, Ni, Fe, Zn,...) émettent des gammas prompts à des énergies relativement grandes et supérieures aux énergies critiques citées du bruit de fond gamma, la sensibilité pour ces éléments va dépendre principalement de l'intensité moyenne du flux de neutrons thermiques dans l'échantillon.

Dans ce travail, les dimensions de ce dispositif ont été optimisées afin de l'utiliser pour l'analyse d'un échantillon solide volumineux. A cause de la rigidité du dispositif, l'optimisation des paramètres géométriques est effectuée exclusivement sur la hauteur.

Le code MCNP5 décrit au chapitre III a été utilisé pour optimiser les dimensions (la hauteur) de l'échantillon au moyen de calculs des flux thermique.

II.4.2.L'Inspecteur 2000

L'inspecteur 2000 est un ensemble intégré comprenant l'alimentation haute tension, l'amplificateur linéaire et l'analyseur multi-canal. Il est basé sur la technologie de traitement de signal numérique (Digital Signal Processing, DSP). Il est surtout utilisé avec des détecteurs de types Ge (HP), NaI [22]

Chapitre II L'analyse par activation neutronique par les gammas prompts et au moyen de sources isotopique de neutrons



Figure II.3 : L'inspecteur 2000[22]

A l'opposé des électroniques conventionnelles qui numérisent le signal en fin de chaîne, l'Inspector 2000 effectue cette opération sur le signal issu du préamplificateur, donc en tête de chaîne, il résulte une amélioration de la stabilité de la précision et de la reproductibilité des mesures. L'utilisation d'un DSP améliore les performances globales de l'acquisition.

✚ Les caractéristiques de l'inspecteur 2000

L'inspecteur caractérisé par les avantages suivants :

- Ultra-compact et ultra-léger
- Alimentation par batterie au lithium 7.2V (Autonomie : 10H avec le détecteur GeHp, 12 heures avec le détecteur NaI) où chargeur externe, ce qui permet de faire des analyses in- situ.
- Connexion avec l'ordinateur par câble série RS-232 où USB
- Mode oscilloscope numérique intégré pour l'assistance au paramétrage

L'ensemble est contrôlé au moyen du logiciel Génie 2000 qui lui confère une excellente souplesse d'utilisation sur le terrain.

II.4.3. Logiciel Génie 2000

Le logiciel Genie2000 permet de visualiser en temps réel la sortie de l'inspecteur, à savoir un spectre avec en abscisse le numéro de canal et en ordonnée le nombre de coups dans ce canal.

Chapitre II l'analyse par activation neutronique par les gammas prompts et au moyen de sources isotopique de neutrons

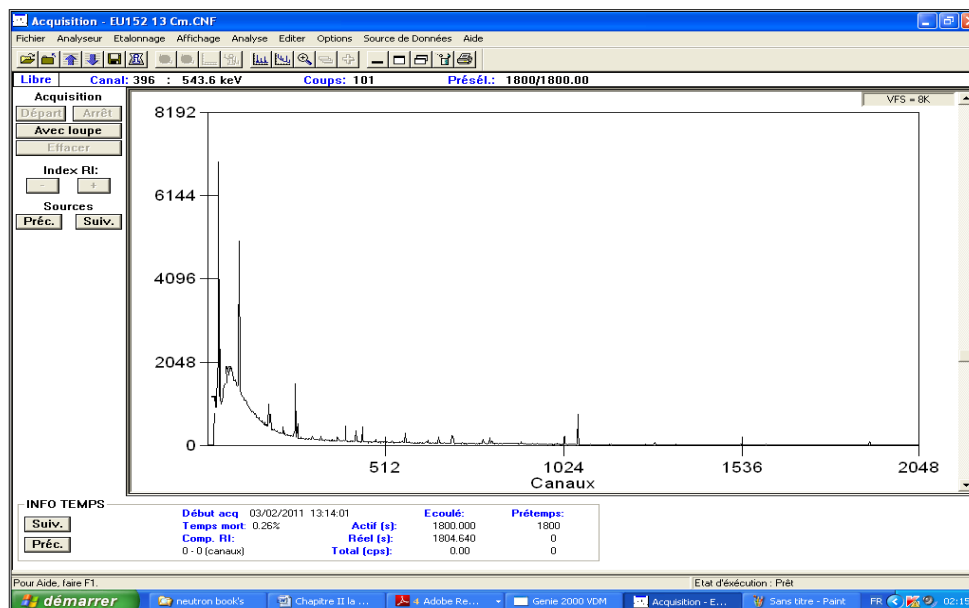


Figure II.4: exemple d'un spectre de ^{152}Eu obtenu par Génie 2000

L'analyse de spectres, c'est-à-dire le calcul de la surface des pics ne peut être possible que si l'étalonnage en énergie a été fait. Une fois ceci effectué, l'analyse sort une liste de pics avec leurs surfaces respectives.

Pour la recherche des pics, la méthode la plus utilisée est celle de la dérivée seconde [23]. Elle est basée sur la forme du pic et plus particulièrement sa forme au sommet. Un seuil de sensibilité doit être défini et correspond à un seuil à partir duquel le pic localisé peut être considéré comme significatif, ce seuil dépend du bruit de fond continu dans la région d'intérêt. On peut avoir des pics simples (singlets) ou bien des pics multiples non résolus (multiplets). Dans le premier cas, les aires sont calculées selon la méthode directe de sommation. Dans celle-ci, on somme les contenus des canaux du pic et on approxime le bruit de fond sous le pic généralement par une fonction monotone linéaire ou escalier et l'aire nette est déduite après soustraction du bruit de fond calculé. Pour les multiplets, on applique la méthode de déconvolution d'ajustement non linéaire par les moindres carrés en adoptant une forme gaussienne pour les pics.

Pour tenir compte des différents phénomènes [11] contribuant à la déformation des pics, une fonction gaussienne modifiée est utilisée comme modèle du pic et elle est donnée par [23] :

Chapitre II L'analyse par activation neutronique par les gammas prompts et au moyen de sources isotopique de neutrons

$$F_i = \begin{cases} He^{-\frac{(x_i - C_p)^2}{2\sigma^2}}, & x_i > C_p - T \\ He^{-\frac{T(2x_i - 2C_p + T)}{2\sigma^2}}, & x_i < C_p - T \end{cases} \quad (\text{II.23})$$

où F_i est la valeur de la fonction gaussienne modifiée au canal x_i , H la hauteur du pic, C_p est le canal centroïde du pic et σ est l'écart type de la gaussienne ($\sigma = \text{FWHM}/2.355$ où FWHM est la largeur à mi-hauteur du pic). T est l'abscisse du point à partir duquel l'écart par rapport à la gaussienne est observé.

Il est possible au logiciel d'identifier le radioélément responsable d'un pic en comparant avec des tables et de calculer directement l'activité. Cela nécessite au préalable la détermination de l'efficacité de détection.

II.4.4. La Source de neutrons $^{241}\text{Am-Be}$

La source de neutrons $^{241}\text{Am-Be}$ disponible au centre de recherche nucléaire d'Alger (CRNA) est une source de type (α, n) avec une période assez longue $T_{1/2} = 458$ ans, Son activité est d'1Curie et elle émet $2.2 \cdot 10^6$ n/s.

La source a une forme cylindrique avec un diamètre de 36.25 mm et une hauteur de 50.8 mm. En raison de l'activité importante de l'Américium, le mélange Am-Be de la partie active est enfermé dans une double capsule en acier (figure II.5) composée d'un cylindre de 17,5 mm de diamètre et 17,5 mm de hauteur et entourée d'acier inoxydable.

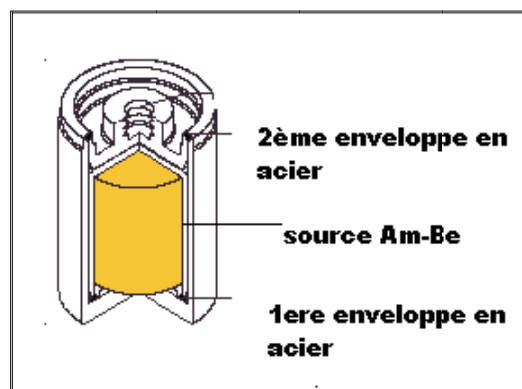
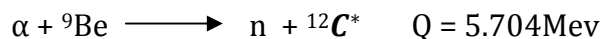


Figure II.5 : Configuration géométrique de la source $^{241}\text{Am-Be}$ [1]

Les neutrons émis par la source $^{241}\text{Am-Be}$ proviennent de la réaction suivante:

Chapitre II L'analyse par activation neutronique par les gammas prompts et au moyen de sources isotopique de neutrons



où les particules α sont émises par ${}^{241}\text{Am}$ avec des énergies autour de $E_\alpha = 5\text{MeV}$. Le ${}^{12}\text{C}^*$ est dans un état excité, il se désexcite en émettant un gamma d'énergie $E_\gamma = 4.438\text{MeV}$. Celui-ci constitue un bruit de fond gênant lors de l'analyse par activation neutronique avec les gammas prompts et une source ${}^{241}\text{Am-Be}$.

Le spectre en énergie ISO de la source ${}^{241}\text{Am-Be}$ est représenté en Figure (II.6)

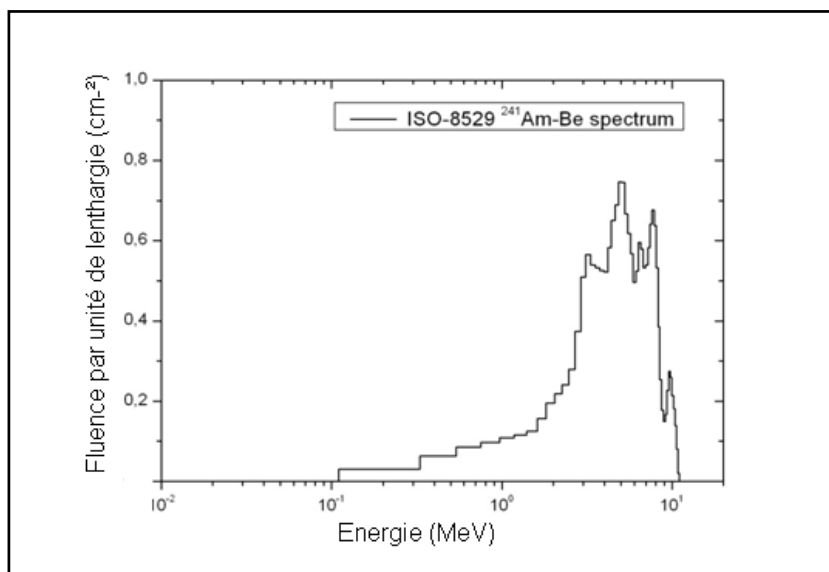


Figure II.6: Le spectre en énergie de la source Am-Be [24]

II.5 Les techniques d'analyses physico-chimiques

Les résultats de notre travail ont été comparés avec ceux de deux méthodes : la torche à plasma et l'absorption atomique.

II.5.1 La technique Torche à Plasma

La technique Torche à plasma consiste à ioniser les atomes de la matière à analyser par une sorte de flamme extrêmement chaude avec une température de l'ordre de 6 000 °K pour les applications géochimiques. Certains appareils sont cependant dotés d'une option dite « à plasma froid », qui chauffent à quelques centaines de °K, permettant l'analyse de molécules organiques qui seraient autrement détruites, Pour la spectrométrie d'émission optique, on utilise le fait que les électrons des atomes excités, lorsqu'ils retournent à l'état fondamental,

Chapitre II L'analyse par activation neutronique par les gammas prompts et au moyen de sources isotopique de neutrons

émettent un photon dont l'énergie donc la longueur d'onde est caractéristique de l'élément. La lumière émise par l'élément recherché est alors détectée et mesurée, et son intensité comparée à celle émise par le même élément contenu dans un échantillon étalon de concentration connue (standard) analysé dans les mêmes conditions.

II.5.2 La technique de l'Absorption Atomique

La spectrométrie d'absorption atomique (AAS) constitue un outil privilégié d'analyse en sciences environnementales. Couplée à un four graphite, la spectrométrie AAS autorise le dosage d'éléments majeurs et traces dans divers types de substrats : végétaux, sols, sédiments, roches, aliments, déchets solides, effluents liquides, eaux souterraines, eaux de surface, eaux usées, etc..

Dans son principe, la spectrométrie AAS consiste à vaporiser l'échantillon liquide et à le chauffer à l'aide d'une flamme ou d'un four. En mode flamme, l'équipement peut être utilisé en spectrométrie d'absorption et d'émission. La flamme est dirigée vers une lumière émise par une lampe appropriée émettant les longueurs d'onde caractéristiques de l'élément recherché. En traversant la flamme, les ondes lumineuses - dont les longueurs d'onde correspondent à l'élément dosé - sont absorbées par les ions excités présents dans la flamme. L'absorption est mesurée à l'aide d'un prisme dispersif et d'une cellule photoélectrique : elle est directement proportionnelle à la concentration de l'élément. Lorsque les atomes d'un élément ont été excités, leur retour à l'état fondamental s'accompagne de l'émission de lumière d'une fréquence F bien définie et propre à cet élément. Le même élément dispersé dans une flamme possède la propriété d'absorber tout rayonnement de même fréquence F . Il en résulte une absorption du rayonnement incident lié à la concentration de l'élément considéré.

Chapitre III :

Le code Monte Carlo
MCNP5 pour le calcul du
transport des photons et des
neutrons dans la matière

Chapitre III Le code Monte Carlo MCNP5 pour le calcul du transport des photons et des neutrons dans la matière

III.1 .Historique

On appelle méthode de Monte-Carlo toute méthode visant à calculer une valeur numérique en utilisant des procédés aléatoires, c'est-à-dire des techniques probabilistes. Le nom « Monte Carlo » est une référence à un célèbre casino de jeux de hasard situé à Monaco. Cette méthode a été inventée en 1947 au laboratoire de Los Alamos par Nicholas Métropolis et Stanislas Ulam [25] pendant le développement de la première bombe atomique. Comme les recherches étaient secrètes à Los Alamos, les premières publications ne sont intervenues qu'à partir de 1949.

III.2 Principe de la méthode Monte Carlo

La méthode Monte Carlo est un outil informatique servant à la résolution des problèmes physique ou mathématique par des processus statistiques. Le problème à résoudre est remplacé par un modèle statistique.

La simulation par monte Carlo consiste à suivre l'histoire de chaque particule dans un système, de sa « naissance » (source externe, neutrons de fission, ...) à sa « mort » (capture par un noyau ou fuite hors du système). L'histoire de chaque particule dépend des interactions qu'elle subit avec les matériaux. La trajectoire de la particule ainsi que le type de la réaction sont tirées au hasard (comme dans les jeux de hasard du Casino de Monte-Carlo). La Figure (III.1) représente le schéma de fonctionnement d'un code monte Carlo.

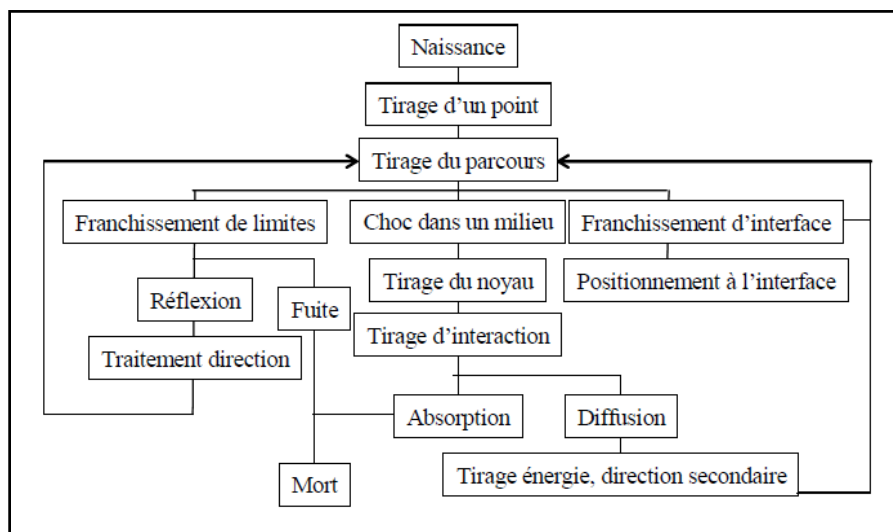


Figure III-1 : Organigramme de simulation Monte Carlo [26]

Chapitre III Le code Monte Carlo MCNP5 pour le calcul du transport des photons et des neutrons dans la matière

Le programme fonctionne de la manière suivante: après avoir défini une géométrie particulière, les positions des sources, ainsi que la composition de chacun des matériaux, le programme génère, lors de son exécution, une particule en une position aléatoire de la source et la suit ensuite jusqu'à sa « mort ». Cette dernière peut survenir par absorption, par fuite, par fission, etc. suivant la nature de la particule en question [26].

III.3 Le Code MCNP

Le code MCNP est l'un des codes de calcul de transport de particules et d'interaction avec la matière le plus utilisé pour les calculs de modélisation. Ce code a été développé initialement par le laboratoire de Los Alamos aux Etats-Unis [6]. Que ce soit dans les calculs neutroniques, radioprotection, la dosimétrie, ses domaines d'applications sont variés. Les calculs de simulation s'appuient sur le transport des neutrons, des photons et des électrons.

III.3.1 Le traitement de la physique par MCNP5

a. Interactions des photons

Le code MCNP5 traite les interactions des photons suivant deux modèles. Le premier modèle est destiné aux photons de hautes énergies, et s'appelle le traitement physique simple. L'effet photoélectrique dans ce modèle est considéré comme une absorption (sans fluorescence) et un effet Compton est considéré comme une diffusion sur un électron libre. La diffusion Thomson cohérente est ignorée. Dans le deuxième modèle il est tenu compte de la diffusion cohérente (Thomson) et de la fluorescence qui survient après absorption par effet photoélectrique. Le deuxième modèle s'appelle le traitement de physique détaillé.

b. Interactions des neutrons

Les interactions des neutrons sont traitées par le code MCNP de la manière suivante [27] :

- la Capture neutronique :

La capture est traitée de deux manières différentes : analogue ou implicite.

* Capture analogue : dans ce cas, le neutron est considéré comme définitivement absorbé. L'énergie des particules et leur poids statistiques sont mémorisés.

Chapitre III Le code Monte Carlo MCNP5 pour le calcul du transport des photons et des neutrons dans la matière

* Capture implicite : la particule n'est pas totalement éliminée, c'est-à-dire que seule une partie de son énergie et de son poids est gardée en mémoire.

- Production de photons :

Le nombre de photons produits par une capture radiative (n, γ) est fonction de la quantité de neutrons produits par la source et du volume de la cellule dont laquelle le neutron incident interagit pour produire les photons. Les énergies d'excitation et les directions des photons produits sont gardées en mémoire.

- la diffusion élastique ou inélastique

Les diffusions élastique et inélastiques sont traités avec la détermination des nouvelles énergies ainsi que la direction des particules produites : L'énergie de la particule produite et la direction sont données dans le système de coordonnées du laboratoire si la cible est au repos. Au contraire, si la cible est en mouvement, les calculs cinématiques dans MCNP seront effectués dans le système du centre de masse.

III.3.2 Structure générale des données d'entrée du code MCNP5

Le fichier d'entrée de MCNP se décompose en trois grandes parties, séparées par une ligne vide : les cartes des cellules, les cartes des surfaces et les cartes des données. La première ligne du fichier est réservée à une ligne de titre, mais toutes les autres lignes de commentaire doivent commencer par le caractère 'c'. Aucune ligne du fichier ne doit dépasser 80 caractères. Il y a lieu de terminer en cas de besoin une ligne par le caractère '&' et continuer sur la suivante. Le nom du fichier MCNP ne doit pas dépasser 8 caractères. Les deux premières lignes vides sont nécessaires pour séparer les cartes des cellules, des surfaces et des données. Tout ce qui est placé après une troisième ligne vide (après les cartes de données) n'est pas interprété par MCNP.

Pour exécuter un fichier MCNP, il est nécessaire d'avoir dans le répertoire le fichier XSDIR qui inclut le lien entre chaque noyau et l'endroit où se situe sa section efficace. Un exemplaire de ce fichier se trouve dans le répertoire d'installation des bases de données de MCNP.

Chapitre III Le code Monte Carlo MCNP5 pour le calcul du transport des photons et des neutrons dans la matière

1) .la spécification de la géométrie

Le fichier Input de MCNP5 commence par la spécification de la géométrie du problème. Celle ci est constituée de cellules entourées par des surfaces donc, il est alors nécessaire de définir les surfaces avant de définir les cellules parce que les cellules sont des résultats de l'union ou l'intersection de ces surfaces.

a).la définition des surfaces

Le programme contient des équations d'un grand nombre de surfaces. Pour en définir une, on utilise la formulation suivante :

N type coord

N: est le numéro de la surface ; il est précédé d'un astérisque * si la surface est réfléchissante

type: représentent l'abréviation d'une surface reconnue par le programme. Par exemple P correspond à un plan, C correspond à un cylindre.

coord : représente les coordonnées du surface

b).la définition des Cellules

Les cellules sont des boites constituant la géométrie à simuler, généralement de forme simple. Une cellule pleine est définie de la manière suivante :

N m d S_i Imp : x=1

Avec :

N : le numéro de la cellule

m : le numéro du matériau composant la cellule et si la cellule est vide on lui attribue le numéro 0

d : la densité en g/cm³

S_i : les surfaces définissant la cellule avec les signes adéquats

Imp:x l'importance de la cellule pour la particule x, généralement fixée à 1.

Chapitre III Le code Monte Carlo MCNP5 pour le calcul du transport des photons et des neutrons dans la matière

❖ Intersection des cellules

L'intersection des cellules est représentée par un blanc entre les numéros des surfaces, la **figure II-2** représente une intersection entre deux surface A et B

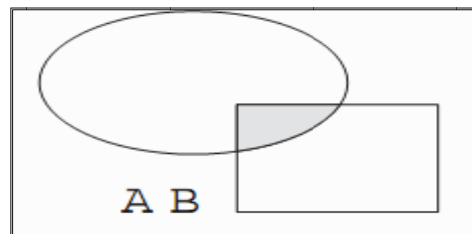


Figure III.2 : représente l'intersection A B

❖ Exclusion de cellules

Il est possible d'exclure une cellule d'un espace par le caractère #.

❖ Union des cellules

L'union de cellule se fait par le caractère : Il est cependant conseillé de limiter son utilisation au cas strictement nécessaires.

La figure III.3 représente un exemple de l'union entre deux surfaces A et B

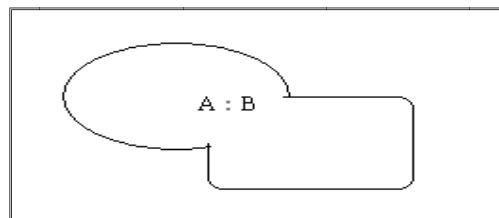


Figure III.3 : représente l'union A : B

2). La spécification des données (Data)

Ce bloc définit le type des particules que nous voulons simuler : leur transport (Mode), les différents matériaux composant les cellules, les sources des rayonnements, la bibliothèque de la section efficace utilisé. En général, cette partie définit toutes les données sauf celle se rapportant à la géométrie.

✚ La Carte Mode

Cette carte permet de définir le type de particules transportées, elle s'utilise comme suit :

Chapitre III Le code Monte Carlo MCNP5 pour le calcul du transport des photons et des neutrons dans la matière

MODE X_i

X_i = N pour le transport des neutrons

P pour le transport des photons

E pour le transport des électrons

✚ la définition des matériaux

Cette carte spécifie les compositions isotopiques de matériaux et les sections efficaces. Elle est définie de la manière suivante :

m_n ZAID1 fraction1 ZAID2 fraction2 ...

Le n correspond au numéro du matériau dans la carte des cellules et ZAID1 fraction1 ZAID2 fraction2 ...indique de quel élément il s'agit, ainsi que la bibliothèque des sections efficaces à utiliser.

✚ La définition de la section efficace

Une des spécificités majeures du code MCNP est l'utilisation de tables de sections efficaces expérimentales. Les sections efficaces de réactions considérées par MCNP proviennent de nombreuses compilations effectuées dans différents centres ou laboratoires (Tableau III.1).

Base de données	Origine
ENDF/B	Etas Unis
JEFF	Europe
JENDL	Japon
BROND	Russie

Tableau III.1 : les différents Base de donne

Ces données ont été constamment complétées et améliorées depuis plus de 30 ans par les développeurs de MCNP. Elles sont contenues dans des tables couvrant une grande gamme d'énergies pour les particules essentielles (neutrons, photons et électrons).

Chapitre III Le code Monte Carlo MCNP5 pour le calcul du transport des photons et des neutrons dans la matière

La définition de la source

La source et le type des rayonnements émit est défini dans la carte (SDEF). Elle a la formulation suivante :

SDEF variable1 variable2 variable3...

SI : précise quelle est la forme de la distribution (valeurs discrètes, histogramme, densité de probabilité...).

SP: les probabilités spécifique à la distribution SI.

Il existe des nombreuses **variables** pour définir la source, nous n'en citerons que quelques une qui ont été utilisées dans notre simulation. Elles sont résumées dans le Tableau III.2

Variable	Sens	Par défaut
ERG	l'énergie de la source, en MeV	14 MeV
POS	donne le point de référence du centre de la source ;	0, 0, 0
RAD	le rayon de la source.	0
EXT	l'extension de la source depuis POS, le long d'AXS	0
AXS	définit l'axe de la source. X, Y et Z donnent les coordonnées x y et z de la source	Pas de direction
PAR	donne le type de particule	= 1 (neutron) = 2 (photon) = 3 (électron)

Tableau III.2 : les paramètres pour définir une source

Exemple :

Source ponctuelle isotopique

SDEF POS= -100 0 0 ERG= 10

Définit une source isotrope positionnée en l'axe x à l'abscisse -1m, l'énergie des particules émises est de 10 MeV

Chapitre III Le code Monte Carlo MCNP5 pour le calcul du transport des photons et des neutrons dans la matière

🌈 Source cylindrique

SDEF CEL= 1 POS= 0 0 0 AXS= 1 0 0 RAD= D1 EXT= D2

SI1 5

SI2 50

Cette source est l'intersection entre un cylindre et la cellule 1. Ce cylindre est centré sur l'origine et son rayon est de 5 cm. Il s'étend sur 2x50 cm, 50 cm selon la direction (1, 0,0) et 50 cm selon (-1, 0,0).

3). La définition des observables « Tally »

Les « Tallies » sont les observables définies dans MCNP correspondant aux résultats qu'on souhaite obtenir dans le domaine du transport des particules : le courant à travers une surface, le flux en un point, ..etc.

Type de Tally	Description de l'observable	Type de particules	Unités
F1	Courant intégré sur une surface	N, P, E	Particules
F2	Flux moyen à travers une surface	N, P, E	Particules/cm
F4	Le flux moyen dans une cellule	N, P, E	Particules/cm ²
F5 : N ou P	Le flux en un point détecteur	N, P	Particules/cm ²
F6 : N, P et E	L'énergie moyenne déposée dans une cellule	N, P, E	MeV/g
F7	L'énergie moyenne par fission déposée dans une cellule.	N	MeV/g
F8	Distribution de la hauteur d'impulsion créée dans un détecteur en fonction de l'énergie déposée.	N, P, E, PE	Pulses/MeV

Tableau III.3 Les observables de MCNP5

Les observables F4, F5, F8, permettent de calculer respectivement le flux moyen dans une cellule, le flux ponctuel et l'efficacité absolue pour chaque photon interagissant

Chapitre III Le code Monte Carlo MCNP5 pour le calcul du transport des photons et des neutrons dans la matière

avec le détecteur. Ces observables sont particulièrement intéressants pour notre application et leur fonctionnement est expliqué par ci-dessous :

F4 : Le flux moyen dans une cellule

L'expression du flux moyen calculé par l'observable F4 est la suivante :

$$F_4 = \iiint_{V,t,E} \varphi(\vec{r}, E, t) dE \cdot dt \frac{dV}{VT} \quad (\text{III.1})$$

Où : $\varphi(\vec{r}, E, t)$ est le flux de particules d'énergie E à la position \vec{r} et à l'instant t traversant le volume V. dV étant l'élément de volume autour de la position \vec{r} et T, le temps d'irradiation. Cet observable représente le flux moyen dans le volume d'une cellule donnée.

F5 : Flux en un point détecteur

L'observable F5 est un estimateur déterministe de la fluence en un point. L'expression du flux ponctuel calculé par l'observable F5 est la suivante :

$$F_5 = \int dE \int dt \int d\Omega \Psi(\vec{r}_p, \hat{\Omega}, E, t) \quad (\text{III.2})$$

où :

Ψ : Le flux de particules

$\vec{r}_p, \hat{\Omega}, E, t$: Vecteur de la position de la particule (cm), la direction du vecteur, énergie (MeV) et le temps (Shark), (Shark = 10^{-8} s) [6].

F8 : efficacité absolue

Cet observable permet d'obtenir un Distribution de la hauteur d'impulsion créée dans un détecteur en fonction de l'énergie déposée.

Chapitre III Le code Monte Carlo MCNP5 pour le calcul du transport des photons et des neutrons dans la matière

III.4 Simulation et optimisation du dispositif expérimental de PGNAA

Le dispositif que nous avons utilisé dans ce travail est celui développé au Centre de recherche Nucléaire d'Alger par Z. Idiri et.al. [20] a été décrit au chapitre II (voir Fig. II.2) et consiste en une source $^{241}\text{Am-Be}$ de 37 GBq immergée au centre d'un porte échantillon cylindrique en plexiglas. Un détecteur gamma (HPGe) est placé contre la paroi externe de la cuve pour la détection des gammas prompts.

Ce dispositif a été optimisé pour l'analyse des échantillons liquide [20] et dans le cas de l'analyse des boues de station d'épuration, objet de ce travail, nous avons simulé avec le code MCNP5 ce dispositif pour déterminer les dimensions optimales des échantillons.

III.4.1 Stratégie d'optimisation

Dans cette étude, la stratégie suivie pour déterminer les dimensions optimales du volume de l'échantillon est faite suivant deux étapes principales :

Une modélisation avec le code MCNP du dispositif expérimental de la PGNAA avec une source de neutrons $^{241}\text{Am-Be}$ a été établie et validée ensuite par des mesures de flux de neutrons thermiques avec la technique des feuilles d'activation, où le flux de neutrons thermiques a été calculé avec la modélisation établie dans un échantillon d'eau, à différentes distances source-détecteur. Le flux ainsi calculé par le code MCNP5 a été ensuite comparé aux valeurs mesurées en activant des feuilles d'indium avec ou sans enveloppe en cadmium.

La seconde étape a été dédiée pour choisir définitivement les dimensions optimales du dispositif conçu correspondant à une valeur maximum du flux de neutron thermique moyen dans l'échantillon, nous avons tenu compte de trois contraintes :

1. Dommages causés par les neutrons rapides au détecteur gamma Ge(HP).
2. Empilement des impulsions et temps mort.
3. Dose de neutrons à la surface externe de la cuve.

Ces contraintes ont été établies pour prévenir les dommages qui peuvent affecter sérieusement la résolution du détecteur, optimiser les conditions de comptage en

Chapitre III Le code Monte Carlo MCNP5 pour le calcul du transport des photons et des neutrons dans la matière

réduisant l'empilement des impulsions et le temps mort, et enfin pour réduire les effets des rayonnements sur l'opérateur.

III.4.2 Validation de la modélisation du dispositif expérimental

La validation de ce modèle obtenu par la simulation a été réalisée par la mesure du flux de neutrons thermiques par la technique de la feuille d'activation.

III.4.2.1 Principe de la technique feuilles d'activation

Le flux ponctuel de neutrons thermiques a été mesuré à mi-hauteur de l'échantillon d'eau cylindrique et à différentes distances de la source de neutrons. Les mesures ont été effectuées en utilisant la méthode des feuilles d'activation qui consiste à irradier des feuilles minces d'Indium ou d'or et à déterminer les activités induites sur ces éléments par réaction de capture, en mesurant le nombre de gammas caractéristiques émis par les radioéléments produits (Tableau III.4).

Isotope	Abondance (%)	Réaction (n, γ)	σ_0 (barns)	Période	E_γ (KeV)
¹¹⁵ In	95.72	(n,γ) ^{116m1} In	81	54 min	417
		(n,γ) ^{116m2} In	81	2,18 s	1097
		(n,γ) ¹¹⁶ In	40	14,1 s	1293
¹⁹⁷ Au	100	(n, γ) ¹⁹⁸ In	98,8	2,7 j	

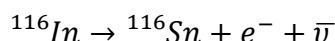
Tableau III.4. Données nucléaires des isotopes de l'Or et de l'Indium utilisées dans la méthode des feuilles d'activation pour la détermination des flux neutroniques thermiques et épistémique [41].

Dans cette validation, les mesures de flux des neutrons thermiques ont été effectuées en utilisant la réaction ¹¹⁵In (n, γ) ^{116m}In. Ce choix de l'Indium a été motivé par le fait que la saturation de l'activité induite est atteinte en quelques heures, ce qui permet de faire un gain en temps dans les procédures d'irradiation et de mesures. D'autre part, même si la section efficace de l'indium ne varie pas en 1/v, une bonne

Chapitre III Le code Monte Carlo MCNP5 pour le calcul du transport des photons et des neutrons dans la matière

précision des mesures est possible en utilisant les facteurs de Westcott pour cet élément.

Comme on peut le voir dans le schéma de décroissance donné dans la Figure (III.4) l' ^{116}In et son isomère $^{116\text{m1}}\text{In}$ vont décroître en émettant un β pour donner l'isotope stable ^{116}Sn selon la réaction suivante :



Tandis que l' ^{116}In décroît de son état fondamental (1^+) vers l'état fondamental (0^+) du ^{116}Sn en émettant un β , les états isométriques de l' ^{116}In vont décroître vers les états excités du ^{116}Sn donnant alors lieu à l'émission de gammas de différentes énergies.

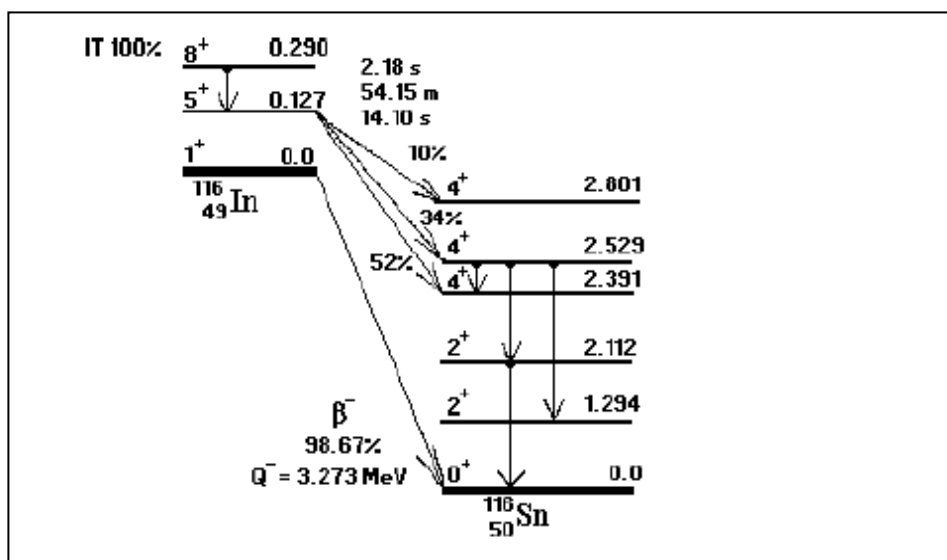


Figure III.4: Schéma de désintégration de l' ^{116}In [28]

Les feuilles d'activation d'indium sont irradiées avec et sans enveloppe de cadmium de 1mm d'épaisseur.

En utilisant le taux de comptage défini dans l'équation (II.14) dans le chapitre II, la relation entre les nombres de coups enregistrés sous le pic photoélectrique d'intérêt et le flux de neutrons thermiques est donné par :

$$\varphi_0 = (N_\gamma - N_{\gamma,acd}) / \left[\frac{m}{M} N \theta \sigma_0 g G_{th} \varepsilon_\gamma I_\gamma (1 - e^{-\lambda t_i}) e^{-\lambda t_d} (1 - e^{-\lambda t_c}) / \lambda \right] \quad (\text{III. 1})$$

Avec

Chapitre III Le code Monte Carlo MCNP5 pour le calcul du transport des photons et des neutrons dans la matière

N_{γ} : est le nombre de coups enregistré avec la feuille d'indium sans enveloppe de cadmium,

$N_{\gamma, cad}$: est le nombre de coups enregistré avec enveloppe de cadmium,

m : est la masse de la feuille d'indium

N : est le nombre d'Avogadro

θ : est l'abondance isotopique de l' ^{115}In

σ_0 : est la section efficace de capture neutronique

G_{th} : est le facteur d'auto-atténuation des neutrons dans la feuille d'indium elle-même, il vaut (0.867) pour la feuille utilisée de 10 mm de diamètre et 0.1 mm d'épaisseur [20].

g : est le facteur de Westcott, il vaut (1.019) pour l'indium utilisé pour la correction non $1/v$ [20].

ϵ_{γ} est l'efficacité absolue de détection à l'énergie du gamma d'intérêt,

λ est la constante de désintégration, $\lambda=1/T_{1/2}$.

t_i, t_d, t_c sont respectivement les temps d'irradiation, de décroissance et de comptage.

III.4.2.2 Spectrométrie Gamma et calcul du Flux

La mesure de flux de neutron thermique été effectuée par l'irradiation d'une feuille d'indium de 0.139mm d'épaisseur et 10 mm de diamètre pour différentes distances source -détecteur. La feuille a été irradié deux fois pour chaque position (Figure III.5) avec et sans Cadmium. L'irradiation de la feuille nue nous permet de mesurer les contributions des neutrons thermiques et épithermiques à l'activité induite. L'irradiation de la même feuille avec l'enveloppe de Cadmium nous permet de déterminer la contribution epithermique, le flux thermique est alors déduit par la soustraction des activités induites respectivement sans et avec le Cadmium.

Chapitre III Le code Monte Carlo MCNP5 pour le calcul du transport des photons et des neutrons dans la matière

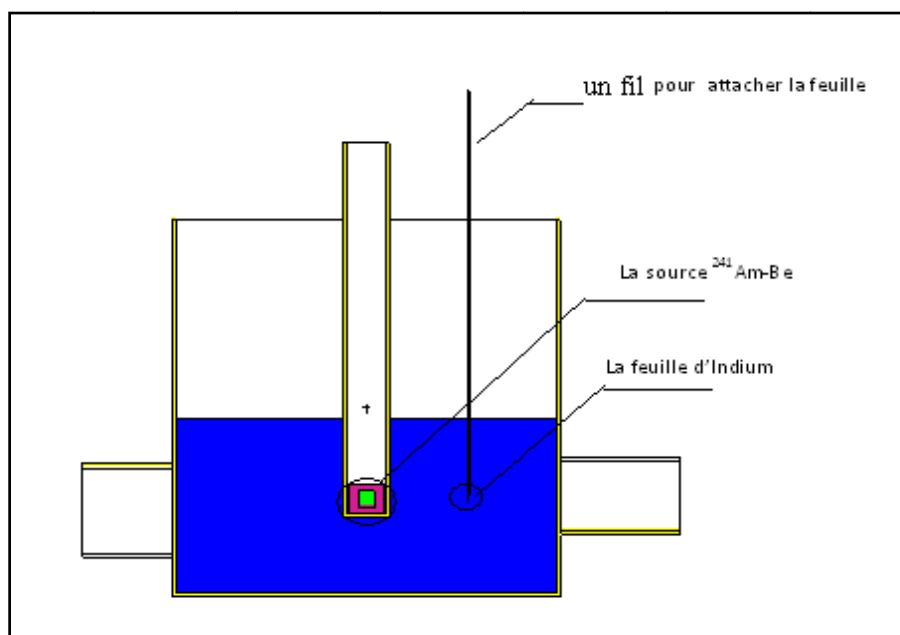


Figure III.5: les positions d'irradiation

Après un temps d'irradiation estimé de 4h pour les positions situés à coté de la source et pendant toute la nuit (environ de 16h) pour les positions situées loin de la source, un temps de refroidissement est nécessaire, a été estimé à 5 minutes .

Le comptage des gammas émis lors de la désintégration du $^{116\text{m}}\text{In}$ a été effectué par un détecteur Ge(HP) portable avec une résolution de 1.9 keV au pic 1332keV du ^{60}Co et une efficacité relative de 20%. La chaine de détection utilisée a été étalonnée avec une source d' ^{152}Eu possédant une activité de 1721.21 (Bq). La source ^{152}Eu a été choisie en raison de ses nombreuses raies caractéristiques, dont les principales sont notées avec leurs probabilités d'émission dans le tableau (III.5).

E_γ (keV)	121.78	244.69	344.28	444.00	778.90
Intensité (%)	28.2	7.4	26.4	3.07	13.0
E_γ (keV)	867.38	964.05	1085.83	1112.00	1408.03
Intensité (%)	4.16	14.48	10.14	13.55	20.7

Tableau III.5 : Principales raies γ caractéristiques de ^{152}Eu . [28]

L'efficacité absolue de détecteur est nécessaire dans la mesure de Flux de neutron thermique, elle est calculée selon la relation :

Chapitre III Le code Monte Carlo MCNP5 pour le calcul du transport des photons et des neutrons dans la matière

$$\epsilon_{\text{absolue}} = \frac{N}{A \cdot t_c \cdot \gamma} \quad (\text{III.2})$$

Avec :

N : est le comptage net sous le pic photoélectrique du spectre obtenu,

I γ : le rapport d'embranchement

t $_c$: le temps de comptage

A : l'activité de la source

La représentation graphique de l'efficacité absolue en fonction de l'énergie est représentée dans le graphe ci-dessous :

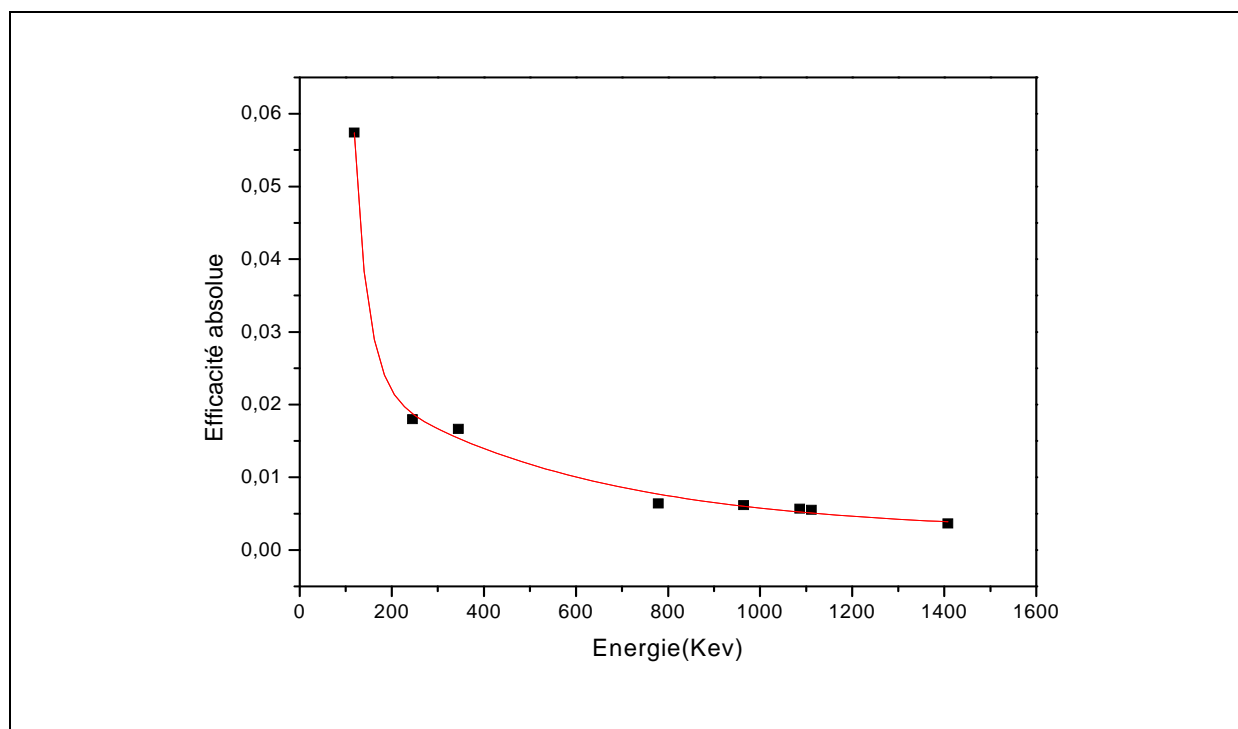


Figure III.6 : Courbe d'efficacité du détecteur Ge(HP) portable

Après la détermination de l'activité induite A en mesurant les gammas émis par les feuilles d'activation, nous pouvons enfin déduire les valeurs du flux de neutrons thermiques par l'équation (III. 1)

Les valeurs du flux thermique ont été calculées pour les raies gamma aux énergies 416 Kev, 1097 Kev et 1293 KeV. Elles sont représentées sur la figure (III.4) pour le pic photoélectrique d'énergie 416 KeV, qui présente la meilleure efficacité de détection.

Chapitre III Le code Monte Carlo MCNP5 pour le calcul du transport des photons et des neutrons dans la matière

Plusieurs erreurs peuvent entacher la mesure du flux. Ces erreurs peuvent apparaître à chaque étape de l'expérience (irradiation, mesure des activités ou calcul du flux). On en distingue deux types [29] :

- **Les erreurs aléatoires**, qui découlent du phénomène de désintégration radioactive qui est un processus aléatoire, et représente une source inévitable d'incertitude sur les mesures.

- **Les erreurs expérimentales**, sont systématiques et regroupent les incertitudes suivantes [30] :

1. Incertitudes dues aux comptages : sont les erreurs liées à l'appareillage électronique utilisé, elles affectent la mesure des surfaces nettes des photo-pics. Ce sont le phénomène d'empilement et de temps mort.

L'incertitude due à l'empilement est rendue négligeable en travaillant avec des taux de comptage relativement faibles, ne dépassant pas les 2000 cps/s.

La correction due au temps mort du codeur est faite automatiquement par l'analyseur.

De plus, nous avons pris en considération l'incertitude due aux statistiques de comptage dans l'erreur sur le contenu du pic par la formule:

$$\Delta N / N = \sqrt{N + 2B} / N \quad (\text{IV.3})$$

Où N est le nombre de coups sous le pic et B celui constituant du bruit de fond.

2. Incertitude sur la mesure de l'efficacité du détecteur: celle-ci est donnée par :

$$\frac{\Delta \varepsilon}{\varepsilon} = \left[\left(\frac{\Delta N}{N} \right)^2 + \left(\frac{\Delta A_0}{A_0} \right)^2 + \left(\frac{\Delta I_\gamma}{I_\gamma} \right)^2 \right]^{1/2} \quad (\text{IV.4})$$

Où : $\frac{\Delta I_\gamma}{I_\gamma}$ est l'erreur relative sur l'intensité I_γ des raies gamma.

3. Incertitude sur la mesure du flux : est donnée par :

$$\frac{\Delta \phi}{\phi} = \left[\left(\frac{\Delta N}{N} \right)^2 + \left(\frac{\Delta \sigma}{\sigma} \right)^2 + \left(\frac{\Delta \varepsilon}{\varepsilon} \right)^2 + \left(\frac{\Delta I_\gamma}{I_\gamma} \right)^2 \right]^{1/2} \quad (\text{IV.5})$$

Chapitre III Le code Monte Carlo MCNP5 pour le calcul du transport des photons et des neutrons dans la matière

Où : $\Delta\sigma/\sigma$ est l'erreur relative sur la section efficace de la réaction nucléaire utilisée [31].

III.4.2.3 Calcul du flux de neutrons thermiques ponctuel par MCNP5

La simulation de la distribution du flux de neutron thermique émis par la source $^{241}\text{Am-Be}$ en un point donné a été effectué en utilisant l'observable « F5 » (associé à « E5 » pour l'énergie) qui donne le flux des neutrons thermique d'énergie inférieure à 0.5 eV en un point détecteur (le détecteur ici c'est la feuille d'indium). L'observable F5 est représenté par la notation suivante dans le fichier Input :

F5: n 0 16.685 -10 0.5

E5 : 5e-7

Avec

n : représente le type de particule, dans notre cas étaient les neutrons

(0, 16.685, -10) : les coordonnées du détecteur

0.5 : le rayon de la sphère d'exclusion

Le code MCNP5 consiste à une méthode probabiliste qui permet de calculer le transport de différents types de particule. L'observable F5 est calculé par la relation suivante [6]:

$$F5 = \frac{WP(\mu)e^{-\lambda}}{2\pi R^2} \quad (\text{III.6})$$

Où :

R : la distance entre le site d'interaction et le détecteur ponctuel D

W : l'intensité de la source (est 1 par défaut).

λ : Le nombre total du libre parcours moyen intégrés sur la trajectoire entre le point d'interaction et le point D

$P(\mu)$: est la probabilité d'atteindre le détecteur (le point D)

μ : L'angle entre la direction initiale de la particule incidente et la direction d'émission vers le point D (détecteur).

Chapitre III Le code Monte Carlo MCNP5 pour le calcul du transport des photons et des neutrons dans la matière

Un rayon délimitant une zone sphérique d'exclusion doit être spécifié autour de l'observable F5 lors de son utilisation. Cette exclusion peut être justifiée par le terme $1/R^2$ qui ne doit pas tendre vers l'infini. En effet, si R tend vers zéro, $F5$ tend vers l'infini et donc la variance théorique de l'estimateur aussi, pour éviter ce problème l'utilisateur doit spécifier un rayon délimitant une sphère d'exclusion fictive à l'intérieur de laquelle les interactions sont ignorées dans les calculs.

Le résultat du flux thermique calculé par MCNP5 et mesuré par expérience est représenté dans la figure (III.5):

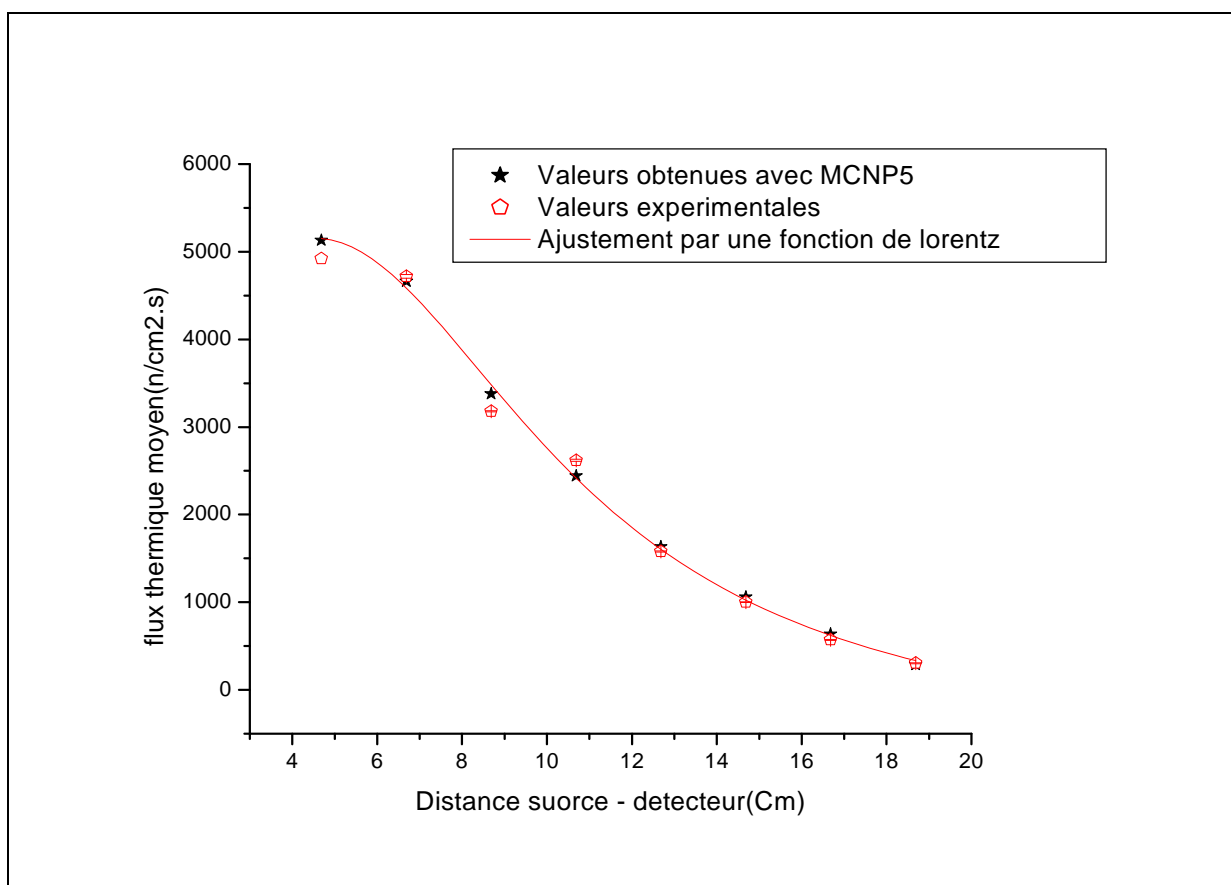


Figure III.5: flux de neutron thermique dans l'eau pour différentes distances source-détecteur

III.4.2.4 Validation de la modélisation

Les résultats pour le flux de neutrons thermiques déterminés par les calculs MCNP et les mesures effectuées avec les feuilles d'activation d'indium, pour différentes distances source-détecteur sont montrés dans la figure (III.4). On observe sur cette

Chapitre III Le code Monte Carlo MCNP5 pour le calcul du transport des photons et des neutrons dans la matière

figure une légère différence entre les résultats et ceux simulés au voisinage de la source. Cette différence peut être attribuée à la sphère d'exclusion précédemment définie et pour laquelle les interactions ayant lieu à l'intérieur ne sont pas prises en compte dans les calculs. Globalement la comparaison des flux de neutrons thermiques mesurés et simulés montre un accord satisfaisant.

III.4.3 Optimisation des paramètres géométriques du dispositif de PGNAA avec la source $^{241}\text{Am-Be}$

L'optimisation a été effectuée par le calcul de la distribution du flux de neutron thermique moyen dans un échantillon d'eau mis dans un dispositif cylindrique (Fig. III.7).

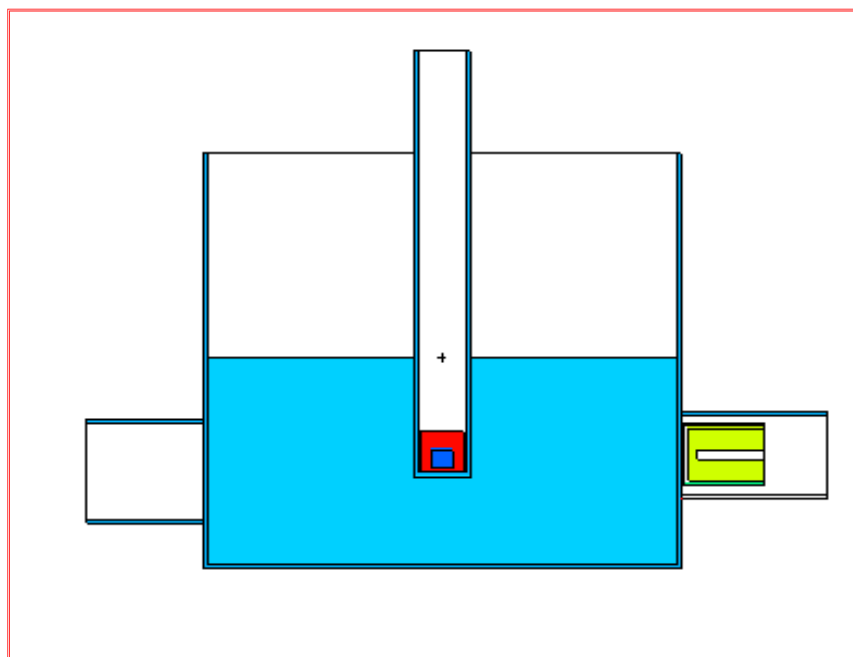


Figure III.7: Vue 2D du dispositif simulé par MCNP5

Dans les calculs on a utilisé l'observable « F4 » (associé à « E4 » pour l'énergie) qui représente le flux moyen des neutrons d'énergie inférieure à 0.4 eV sur le volume de l'échantillon d'eau.

Le flux de neutron thermique a été calculé en faisant varier le diamètre du porte échantillon tout en fixant sa hauteur à 100cm. Ensuite, après avoir déterminé le diamètre optimal correspondant à la valeur maximum du flux de neutron thermique

Chapitre III Le code Monte Carlo MCNP5 pour le calcul du transport des photons et des neutrons dans la matière

moyen, celui-ci est calculé en fonction de la hauteur en fixant le diamètre à sa valeur optimal.

Les résultats de la simulation pour le diamètre avec la hauteur fixée à 100cm sont montrés sur la figure ci- dessous :

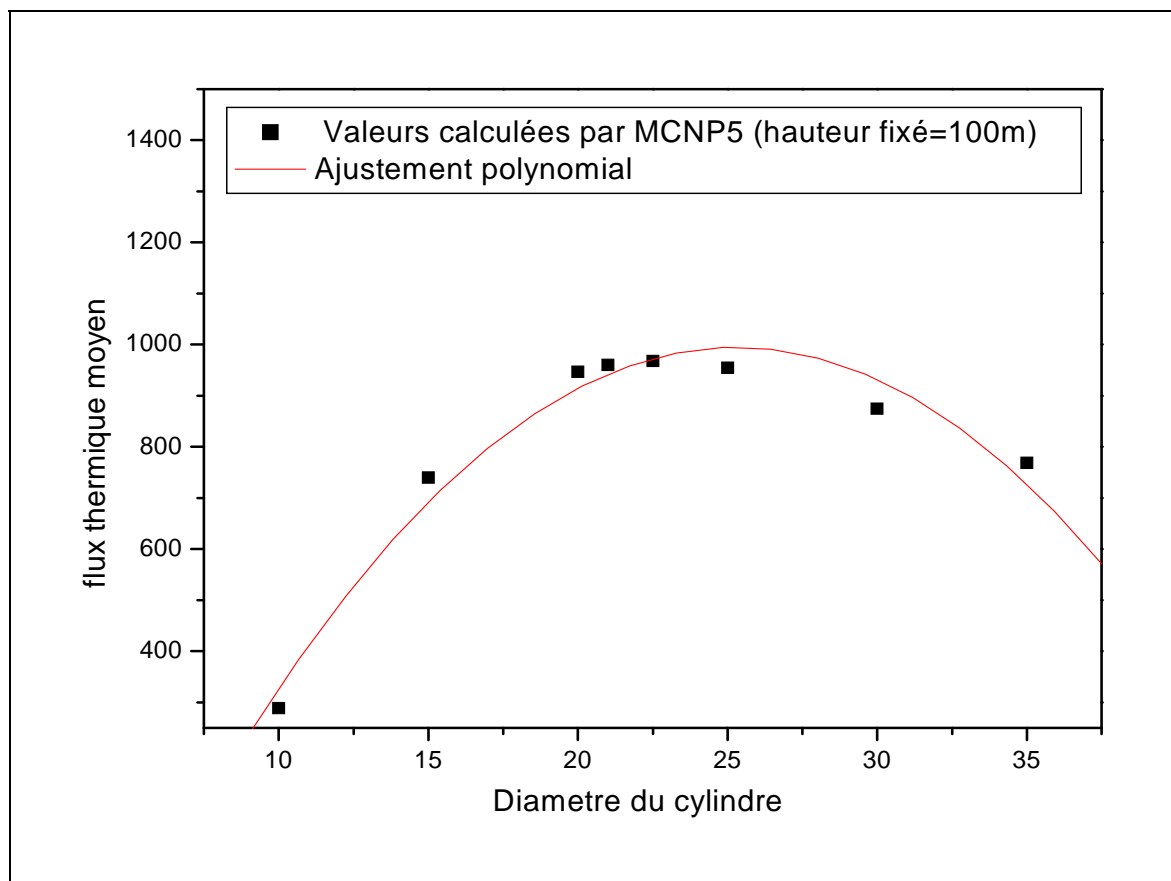


Figure III.8 Les variations du flux moyen de neutrons thermiques en fonction du diamètre avec la hauteur de la cuve fixée à 100 cm

Nous constatons que le diamètre optimal qui correspond au flux de neutron thermique moyen maximal dans l'échantillon d'eau est autour de 20cm.

Les variations du flux de neutron thermique moyen en fonction de la hauteur pour un diamètre de 20cm sont données dans la figure suivante.

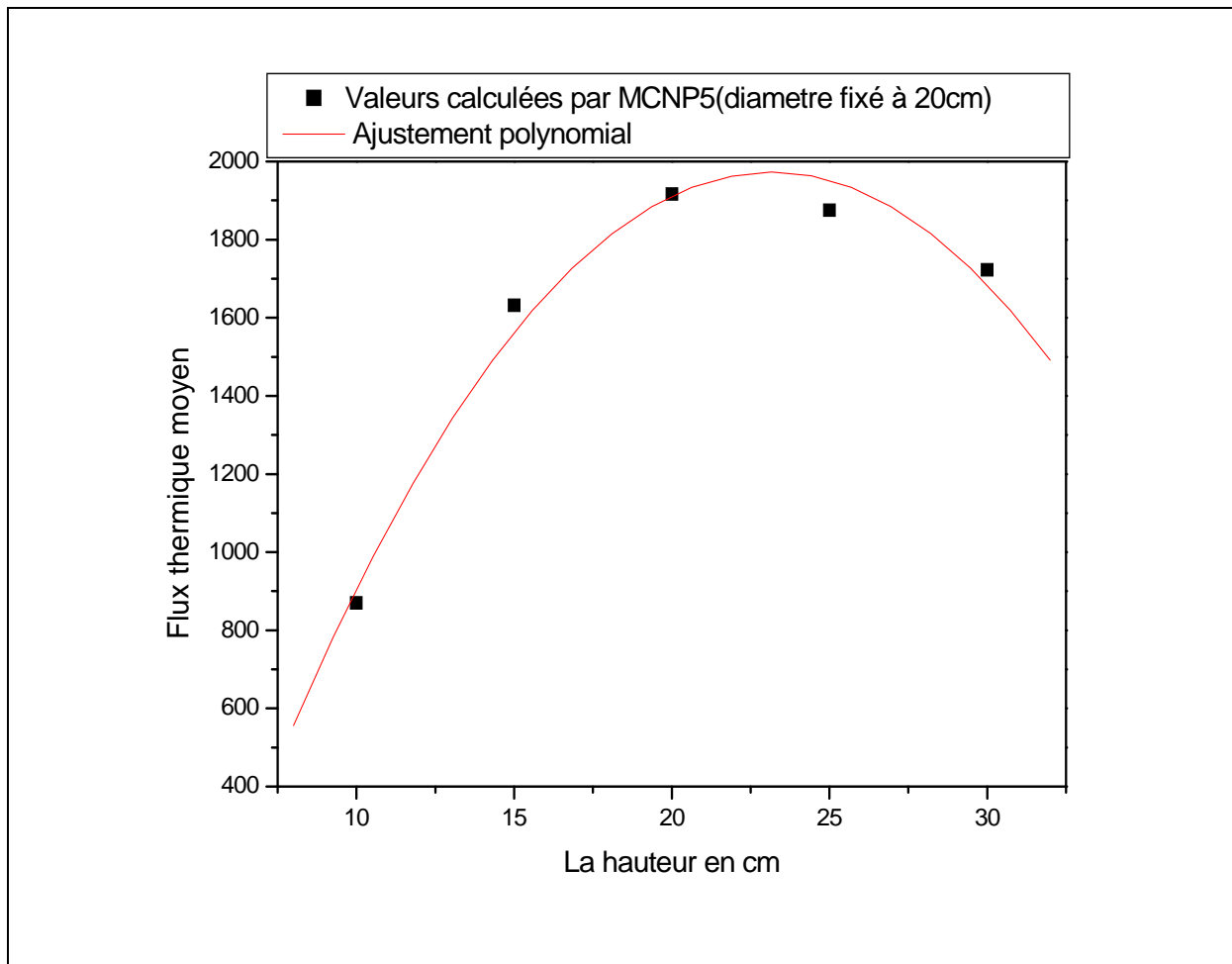


Figure III.9 Les variations du flux moyen de neutrons thermiques en fonction de la hauteur avec un diamètre fixé à 20 cm

Nous constatons sur la figure (III.9) que la valeur optimale de la hauteur de l'échantillon est de 20cm

III.4.3.1 Contrainte des dommages créés par les neutrons rapides dans le cristal du détecteur GeHp

Dans ce travail, nous avons utilisé un détecteur portable ORTEC GMX20190 avec 20% d'efficacité relative et 1.90 Kev de résolution à l'énergie de 1332.5 Kev de la raie du ^{60}Co , la valeur limite de fluence de neutrons rapides est de $4 \cdot 10^9 \text{n} \cdot \text{cm}^{-2}$ [11].

Si nous choisissons un temps d'utilisation raisonnable de 3 heures par jour, 5 jours par semaine pendant 5 ans, la valeur limite pour le flux de neutrons rapides doit être de $284 \text{n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$.

Chapitre III Le code Monte Carlo MCNP5 pour le calcul du transport des photons et des neutrons dans la matière

Pour déterminer les dimensions exactes donnant la valeur précédente pour le flux de neutrons rapides, celui-ci a été calculé à la surface externe de l'échantillon et à mi-hauteur en utilisant plusieurs simulations avec le code MCNP5 pour différents diamètres et hauteurs de l'échantillon

Les résultats obtenus par Z. Idiri et al [20] montrent que la valeur du diamètre correspondant à la valeur limite du flux de neutrons rapides est 31 cm.

III.4.3.2 La contrainte de la dose de neutrons

L'équivalent de dose de neutrons reçu par l'opérateur a été évalué en fonction du temps d'exposition près du dispositif de PGNAa avec la source Am-Be. A cet effet, trois scénarios ont été étudiés par Z. Idiri et al [20] en se basant sur des situations d'exposition réalistes de 10 min, 30 min et 01 heure.

En tenant compte des facteurs de conversion de fluence de neutrons en équivalent de dose pour une source Am-Be recommandés ISO-8525 (391 pSv /1 cm²) [32] et en utilisant la dose de neutrons maximum permise de 20 mSv/année pour les travailleurs sous rayonnement recommandée par l'ICRP-71 [33], les flux de neutrons correspondants aux trois cas cités plus haut (temps par jour, cinq jours par semaine) devraient avoir respectivement les valeurs de 355,118 et 60 neutrons.cm⁻².s⁻¹.

Comparées au flux de neutrons rapide calculé pour le prototype proposé (132 neutrons.cm⁻².s⁻¹) et en tenant compte des contributions des neutrons thermiques et des gammas à la dose équivalente totale, le temps d'exposition recommandé près du dispositif optimisé ne devrait pas excéder 10 minutes par jour [20].

III.4.3.3 La contrainte du temps mort et de l'empilement des impulsions

Dans ce travail, la méthode du générateur d'impulsions a été utilisée pour la correction de l'empilement des impulsions. Cette technique consiste à injecter un signal d'amplitude constante à partir d'un générateur d'impulsion à fréquence constante dans le préamplificateur de sorte qu'un mélange de signaux du détecteur et du générateur est traité par le reste de la chaîne de détection. L'hypothèse de base est que les deux signaux subissent les mêmes pertes dues aux effets de l'empilement et du temps mort. Avec des

Chapitre III Le code Monte Carlo MCNP5 pour le calcul du transport des photons et des neutrons dans la matière

taux de comptage croissants, les pics gamma et du générateur d'impulsion sont distordus et l'hypothèse précédente n'est plus valable. Pour connaître à quel niveau de la valeur du taux de comptage, la méthode du générateur d'impulsions n'est plus valable, nous avons effectué une expérience où le taux de comptage du pic à 1173 KeV du ^{60}Co a été corrigé pour différents temps morts générés par une source de ^{137}Cs . La chaîne de détection comprend un détecteur gamma Hp(Ge) portable ORTEC GMX 20190, un amplificateur CANBERRA2021 et une carte analyseur multi-canal ORTEC 4k-ACE. Les résultats obtenus montrent que la méthode du générateur d'impulsions n'est plus valide à des temps morts dépassant 20% [20].

Le temps mort et le taux de comptage total dans les spectres de gammas prompts ont été ensuite mesurés pour différents diamètres de l'échantillon. Le taux de comptage est principalement dû au bruit de fond de la source (4.43 MeV) et au gamma prompt de 2.23 MeV, émis par l'hydrogène après capture neutronique. La fraction du temps mort a été calculée en utilisant le temps réel et le temps d'horloge affichés sur l'analyseur multi-canal et ensuite les impulsions ont été sommées sur tout le spectre pour déduire le taux de comptage correspondant. Pour la valeur critique du temps mort relatif de 20%, le taux de comptage correspondant est de 6414 c/s et le diamètre associé est de 41.70 cm.

Ces calculs montrent que les dimensions optimales du dispositif pour l'analyse par la PGNAA d'un échantillon d'eau sont 20cm pour la hauteur et 40cm pour le diamètre.

III.4.4 Optimisation les dimensions des échantillons pour l'analyse de la boue des stations d'épuration d'eaux usées

Le dispositif optimisé de PGNAA a été utilisé pour l'analyse des boues des stations d'épuration d'eaux usées. L'optimisation des dimensions des échantillons a été effectuée exclusivement sur la hauteur, seul paramètre que nous pouvons ajuster.

Le fichier d'entrée (Input) contient toutes les données indispensables à l'exécution du programme de simulation qui est effectuée de la manière suivante :

Chapitre III Le code Monte Carlo MCNP5 pour le calcul du transport des photons et des neutrons dans la matière

1. Description de la modélisation de la géométrie de système:

La modélisation de la géométrie du dispositif expérimental est obtenue en combinant les surfaces de base dans le fichier Input afin de décrire les « cellules » représentant les volumes constituant la géométrie à simuler. Ces cellules fondamentales sont de forme simple et homogène en composition, elles représentent le matériel de l'expérience, à savoir: la source, le détecteur, dont les caractéristiques sont détaillées sur le tableau (III.6).

Afin de vérifier la géométrie modélisée (figure III.10), on utilise le logiciel nommé Vised. Ce programme de visualisation permet de vérifier la description de la géométrie en 2D et 3D avant d'exécuter une simulation.

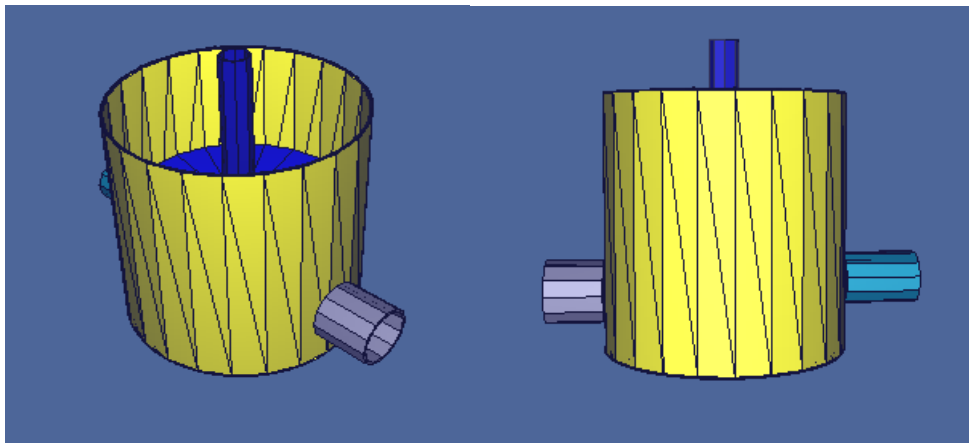


Figure III.10: Vue 3D du dispositif simulé par MCNP5

Numéro des cellules	Cellule	Matériau dans la cellule
1	Echantillon	La boue
2, 7, 12,10	Porte- échantillon	plexiglas
3, 6,13.9, 11,8	Environnement (laboratoire)	Air ambiant
4	Blindage de la source	Acier inoxydable
5	Source	Américium-Béryllium

Tableau III.6: Description des cellules

Chapitre III Le code Monte Carlo MCNP5 pour le calcul du transport des photons et des neutrons dans la matière

2 .Introduction des caractéristiques de la source:

Le code MCNP5 considère les sources isotropes par défaut, la définition de la source notée : SDEF (Source Définition) permet de spécifier l'énergie des neutrons émis, sinon le code considère l'énergie d'émission par défaut égale à 14 MeV.

Dans notre cas, nous introduisons l'intensité d'émission de la source isotrope $^{241}\text{Am-Be}$ (notée WGT), la nature des particules émises (par=1 pour le neutron) ainsi que la distribution du spectre d'émission en énergie de la source Iso [34] sous la forme de groupes d'émission φ_i , représentant des intervalles d'énergie d'émission des neutrons entre E_i et E_{i+1} :

$$\varphi_i = \int_{E_i}^{E_{i+1}} \varphi_E dE \quad (\text{III. 7})$$

Où φ_E est l'émission spectrale de la source.

Les valeurs φ_i données sont des valeurs expérimentales normalisées à l'unité:

$$\sum_{i=1}^n \varphi_i = 1 \quad (\text{s}^{-1}) \quad (\text{III. 8})$$

Les caractéristiques de la source sont introduites dans le fichier Input de la manière suivante:

```
SDEF cel=1 erg=d1 par=1 WGT=2.2E6
si1 h 4.14e-7 0.11 0.33 0.54 0.75 0.97 &
1.18 1.40 1.61 1.82 2.04 2.25 &
2.47 2.68 2.90 3.11 3.32 3.54 &
3.75 3.97 4.18 4.39 4.61 4.82 &
5.04 5.25 5.47 5.68 5.89 6.11 &
6.32 6.54 6.75 6.96 7.18 7.39 &
7.61 7.82 8.03 8.25 8.46 8.68 &
8.89 9.11 9.32 9.53 9.75 9.96 &
10.20 10.40 10.60 10.80 11.00
sp1 0.00e+0 1.44e-2 3.34e-2 3.13e-2 2.81e-2 2.50e-2 &
2.14e-2 1.98e-2 1.75e-2 1.92e-2 2.23e-2 2.15e-2 &
2.25e-2 2.28e-2 2.95e-2 3.56e-2 3.69e-2 3.46e-2 &
```

Chapitre III Le code Monte Carlo MCNP5 pour le calcul du transport des photons et des neutrons dans la matière

3.07e-2 3.00e-2 2.69e-2 2.86e-2 3.18e-2 3.07e-2 &
 3.33e-2 3.04e-2 2.74e-2 2.33e-2 2.06e-2 1.82e-2 &
 1.77e-2 2.04e-2 1.83e-2 1.63e-2 1.68e-2 1.68e-2 &
 1.88e-2 1.84e-2 1.69e-2 1.44e-2 9.68e-3 6.52e-3 &
 4.26e-3 3.67e-3 3.81e-3 5.06e-3 6.25e-3 5.52e-3 &
 4.68e-3 3.70e-3 2.78e-3 1.51e-3 3.63e-4

Figure III.11: Caractéristiques de la source dans le fichier Input

Avec `erg=d1`, la distribution d'énergie de la source précisée en « si 1 » par les intervalles d'énergie dans l'ordre croissant avec les probabilités « sp1 » pour chacune de ces énergie.

3 .Composition atomique des matériaux :

La composition atomique exacte des matériaux composant chaque cellule (tableau III.7) est définie dans le fichier Input avec le choix des sections efficaces d'interaction associées ainsi la composition massique en %.

N° des cellules	Cellule	Matériau dans la cellule	Densité (g/cm ³)
1	Echantillon	Boue (liquide. Solide)	(0.965. 1.47)
2, 7, 10,12	Porte- échantillon	plexiglas	1.18
3, 6,13.9, 11,8	Environnement (laboratoire)	Air ambiant	0
4	Blindage de la source	Acier inoxydable	7.9
5	Source	Américium-Béryllium	0.482

Tableau III.7: Matériaux utilisés dans la simulation

4. Spécification des résultats souhaités (observables) et exécution du programme:

L'observable « F4 » (associé à « E4 » pour l'énergie) calcule le flux moyen des neutrons d'énergie inférieure à 0.4 eV sur le volume de « la cellule 1 » (représentant La boue) par la notation suivante dans le fichier Input :

F4: n 1

e4: 4.e-7.

Chapitre III Le code Monte Carlo MCNP5 pour le calcul du transport des photons et des neutrons dans la matière

III.4.4.1 Optimisation des dimensions des échantillons pour l'analyse de la boue liquide

La boue liquide qu'on a échantillonné à la station d'épuration de Reghaia est composée par 91% d'eau, le reste est constitué de matière organique, la densité de la boue est de $0,965 \text{ g/cm}^3$. L'optimisation de la dimension du porte échantillon est effectuée en calculant le flux thermique moyen dans l'échantillon en fonction de la hauteur. Le résultat obtenu est représenté dans la figure ci-dessous :

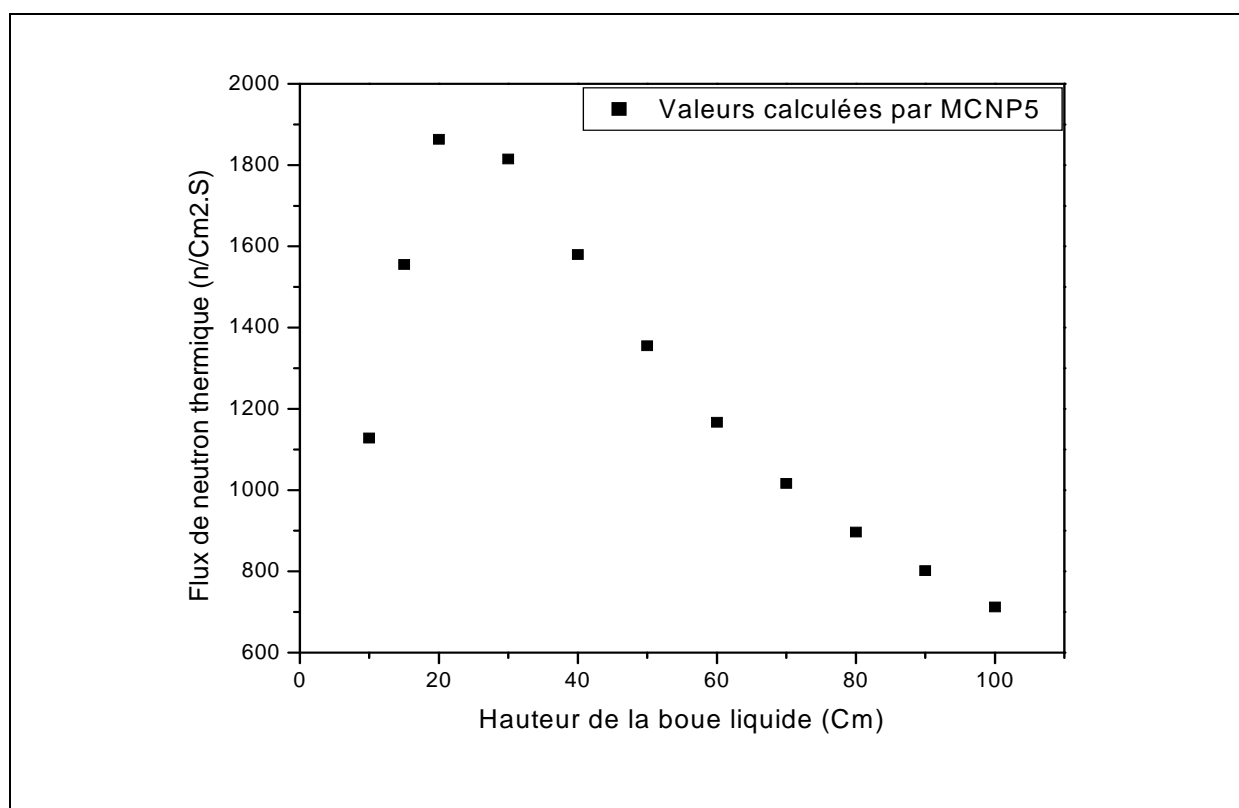


Figure III.12 : variation du flux thermique en fonction de la hauteur de l'échantillon de la boue liquide

Nous constatons que la hauteur optimale des échantillons pour l'analyse de la boue liquide est 20 cm, résultat similaire au cas d'un échantillon d'eau.

Chapitre III Le code Monte Carlo MCNP5 pour le calcul du transport des photons et des neutrons dans la matière

III.4.4.2 Optimisation des dimensions des échantillons pour l'analyse de la boue solide

La boue solide est composée de 57% d'eau et 43 % de matière organique. Sa densité est de $1,47\text{g/cm}^3$. Le calcul du flux thermique moyen est effectué de la même manière qu'avec la boue liquide. Le résultat obtenu est représenté dans la figure ci-dessous

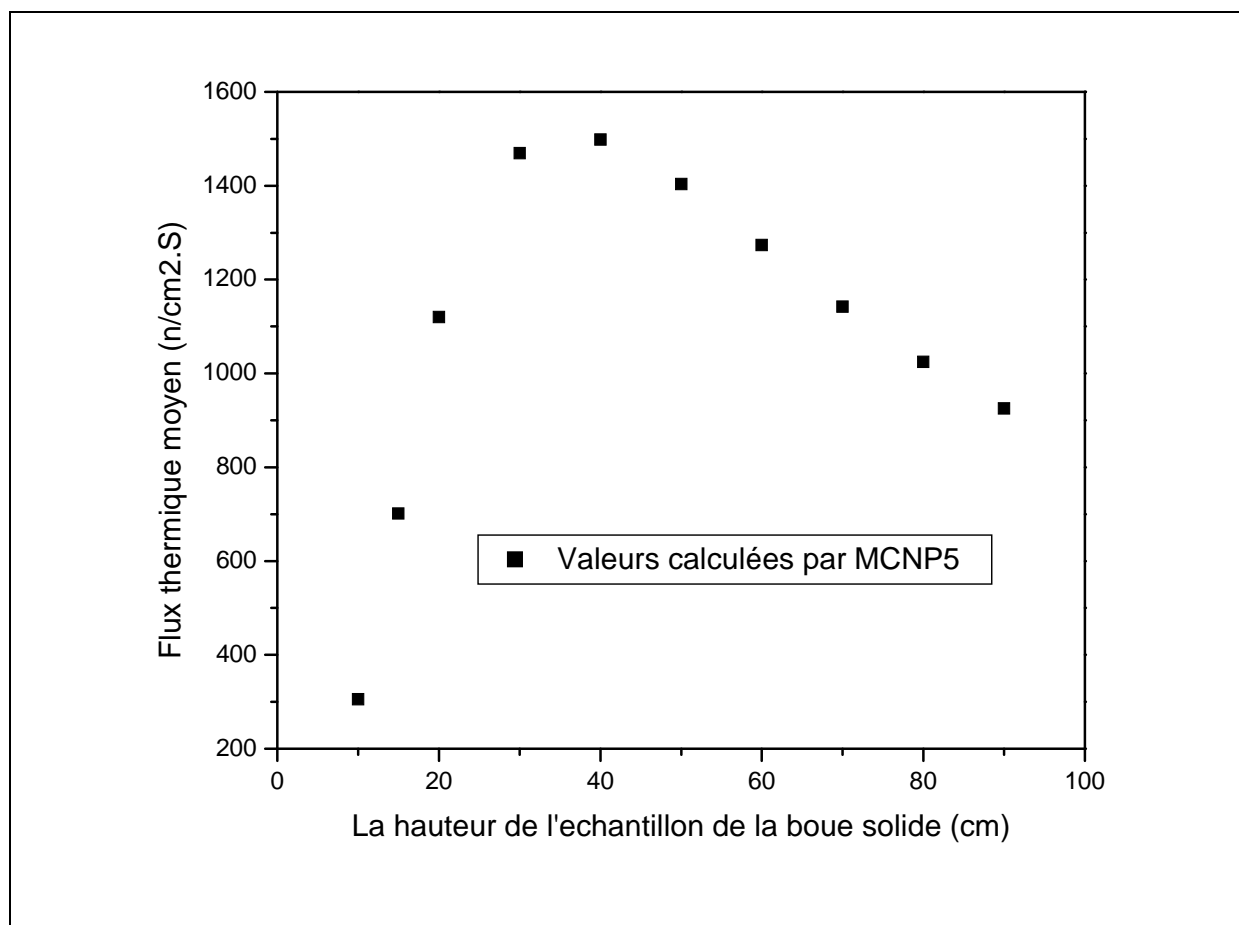


Figure III.13 : variation du flux thermique en fonction de la hauteur de l'échantillon de la boue solide

Nous observons sur le graphe précédent que la hauteur optimale des échantillons pour l'analyse des échantillons de boue solide par la méthode PGNAA est autour de 40 Cm.

Chapitre III Le code Monte Carlo MCNP5 pour le calcul du transport des photons et des neutrons dans la matière

III.4.4.3 Tableaux récapitulatif des résultats de calcul de flux de neutrons thermiques

	La densité (g /cm ³)	La quantité d'eaux(%)	valeur du flux thermique à la hauteur de20 Cm de l'échantillon (n /cm ² .s)
La boue liquide	0,965	91 %	1850
La boue solide	1 ,47	57%	1100

Tableau III.8 : Résultats de calcul de flux de neutrons thermiques

à partir du tableau nous constatons que la valeur de la hauteur optimale pour la boue solide est plus grande que celle correspondante à la boue liquide, ceci peut être lie au fait que la boue liquide contient d'Hydrogène (élément modérateur) que la boue solide.

Chapitre IV :

Application du dispositif de
PGNAA à l'analyse de la
boue de la station
d'épuration des eaux usées
de Reghaia

Chapitre IV Application du dispositif de PGNAA à l'analyse de la boue de la station d'épuration des eaux usées de Reghaia

IV.1 Introduction

Dans ce chapitre nous avons calculé avec le code MCNP5 l'efficacité du détecteur germanium hyper pur (GeHp) utilisé dans ce travail. Pour l'analyse quantitative, nous avons utilisé la méthode développée par Z.Idiri et al. [35]. Cette méthode est basée sur l'efficacité du détecteur Germanium Hyper pure (GeHp) que nous avons déterminé expérimentalement en utilisant les gammas prompts émis par le chlore dissous dans un échantillon d'eau considéré comme référence. En passant de l'échantillon d'eau de référence à l'échantillon inconnu, les variations du flux de neutron thermique sont déterminées en utilisant les mesures effectuées à l'aide du compteur à gaz ^3He . Pour l'atténuation gamma dans les échantillons, nous avons calculé des facteurs d'atténuations avec le code MCNP5.

IV.2 Mesure de l'efficacité du détecteur Ge(Hp) au moyen des gammas prompts du chlore

La méthode employée pour étalonner la chaîne de spectrométrie en efficacité à des énergies de plusieurs MeV repose sur les raies de capture neutronique du chlore ^{35}Cl . L'expérience a été effectuée par irradiation de 24l d'eau par la source $^{241}\text{Am-Be}$ dans laquelle 12 g/l de NH_4Cl ont été dissouts, où 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 517 KeV à 8575 KeV, très utilisé en calibration pour la technique PGNAA.

Chapitre IV Application du dispositif de PGNAA à l'analyse de la boue de la station d'épuration des eaux usées de Reghaia

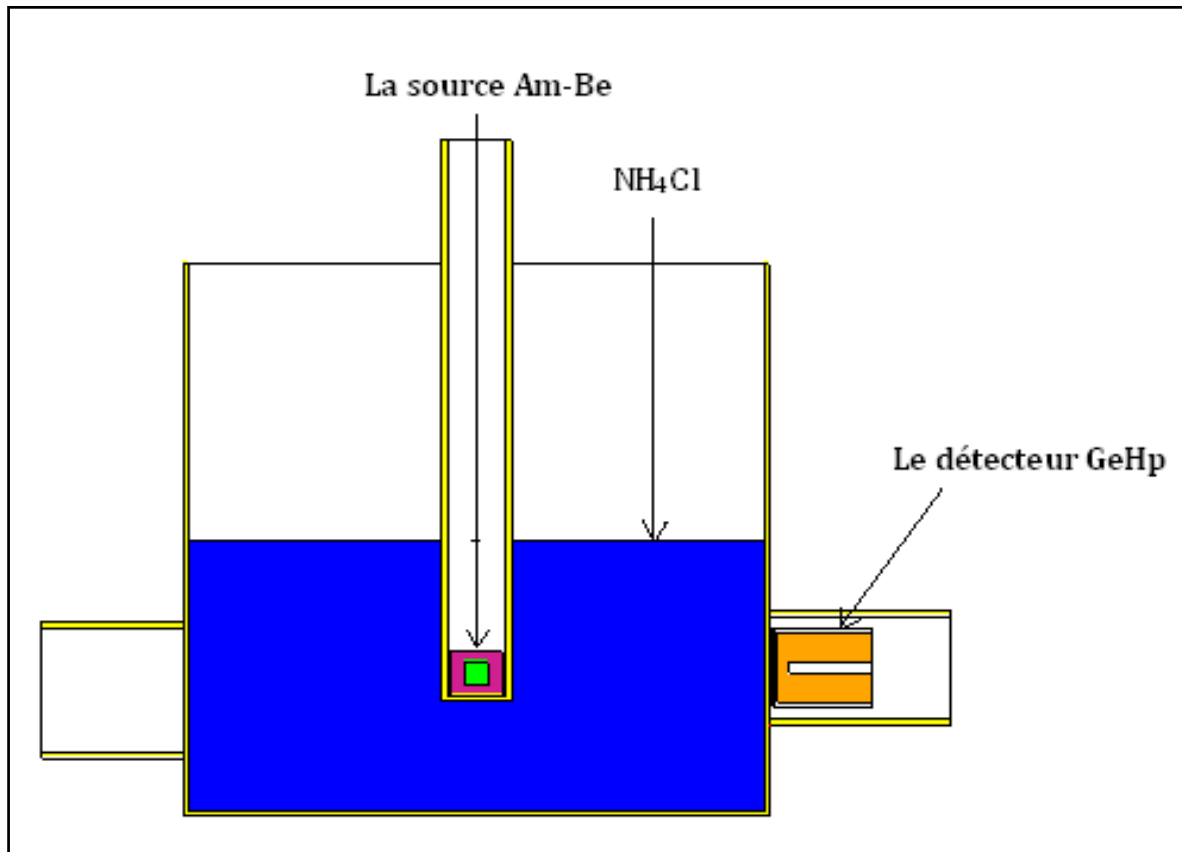


Figure IV.1 : dispositif d'irradiation pour la mesure de l'efficacité du détecteur GeHp par les gammas prompts du chlore

La détection des gammas prompts émis a été effectuée en utilisant un détecteur Ge(Hp), modèle ORTEC GMX20190 avec 15% d'efficacité relative et 1.90 keV de résolution à l'énergie de 1332.5 keV du gamma du ⁶⁰Co. Le détecteur est relié à un Inspecteur qui effectue l'amplification et le traitement numérique du signal. Le spectre est collecté pendant 10800s (voir Fig.IV.2).

Chapitre IV Application du dispositif de PGNAA à l'analyse de la boue de la station d'épuration des eaux usées de Reghaia

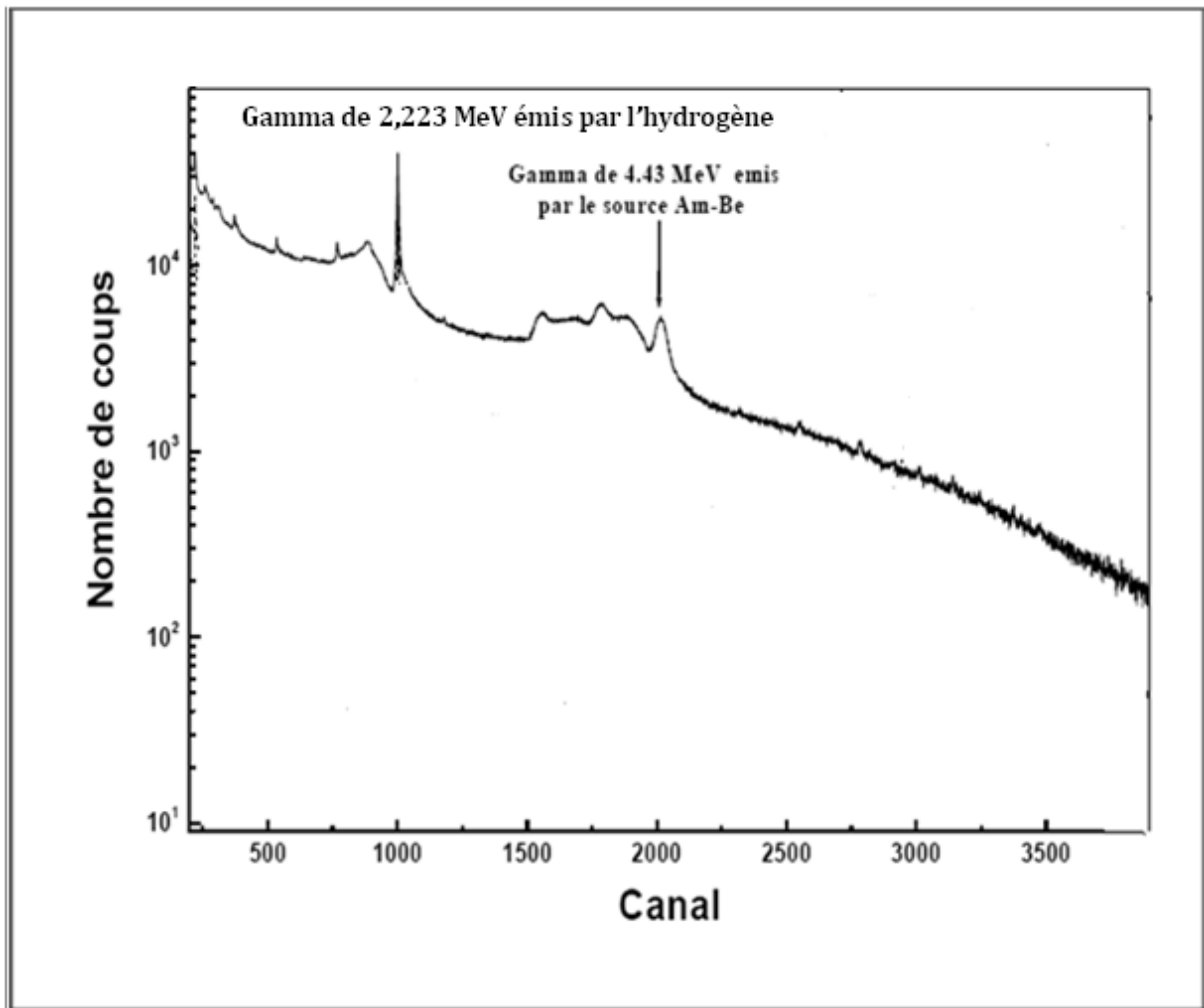


Figure IV.2: Spectre gamma prompts de NH_4Cl collecté pendant 10800 s.

L'efficacité absolue de détection a été calculée par la relation suivante :

$$\epsilon(E_\gamma) = \frac{N_\gamma \cdot M}{m \cdot \Phi \cdot \sigma \cdot I(E_\gamma) \cdot N_A \cdot t_c} \quad (\text{IV.1})$$

Avec :

M : Masse atomique de l'élément

m : la masse de l'élément

Φ : le flux neutronique dans la solution NH_4Cl pour la concentration 12g/l simulé par MCNP5 [20]

$I(E_\gamma)$: intensité de la raie gamma

Chapitre IV Application du dispositif de PGNAA à l'analyse de la boue de la station d'épuration des eaux usées de Reghaia

Les énergies des raies gammas utilisées sont représentées dans le tableau ci-dessous avec leurs intensités.

énergies (keV)	intensités	Energies (keV)	intensités
517.07	24.3 ± 1.4	3061.86	3.52 ± 0.07
786.30	10.5 ± 0.4	4979.71	3.6 ± 0.1
788.42	16.3 ± 0.4	6110.84	20.6 ± 0.7
1164.86	27.2 ± 0.7	6619.63	7.83 ± 0.16
1951.14	19.4 ± 0.6	7413.95	10.52 ± 0.24
1959.35	12.6 ± 0.3	7790.32	8.31 ± 0.19
2863.81	5.77 ± 0.11	8578.59	2.74 ± 0.06

Tableau IV.1 : les gammas prompts du chlore

Les variations en fonction de l'énergie de l'efficacité absolue de détection est donnée dans la Figure (IV.3), où les points expérimentaux sont ajustés par une fonction de Boltzmann.

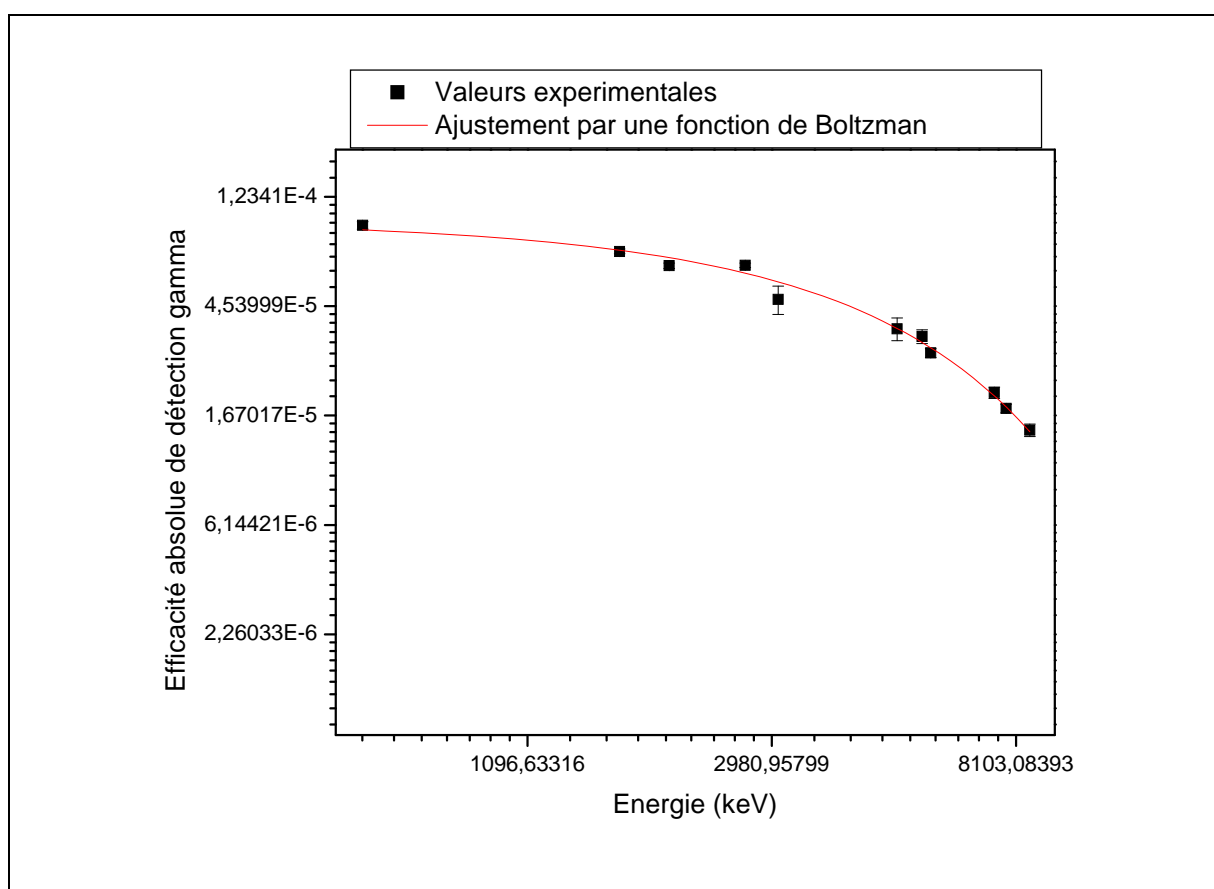


Figure IV.3 : l'efficacité en fonction de l'énergie.

Chapitre IV Application du dispositif de PGNAA à l'analyse de la boue de la station d'épuration des eaux usées de Reghaia

Simulation de l'efficacité absolue par MCNP5

La simulation de l'efficacité de détection du détecteur a été effectuée avec l'observable F8, qui représente une efficacité absolue pour chaque photon interagissant avec le détecteur [36]. Dans notre cas, chaque photon est suivi dans ses interactions jusqu'à ce que l'énergie déposée soit inférieure à une limite de 1 keV. Le nombre total des photons incidents est supérieur à $2 \cdot 10^8$ pour que l'erreur relative soit inférieure à 1% pour les pics qui nous intéressent.

Lors de l'utilisation de MCNP5, un élargissement gaussien donné par l'équation GEB (Gaussian Energy Broadening) est appliqué pour tenir compte de la résolution du détecteur GeHp pour chaque énergie de photon [6,36].

$$\text{FWHM (KeV)} = a + b\sqrt{(E \text{ (keV)} + C E^2)} \quad (\text{IV.2})$$

Cette équation comporte trois constantes a , b et c . Dans notre cas, ces trois constantes sont données à l'aide du programme d'acquisition Génie-2000 lors de la calibration en énergie du détecteur [36] et sont : $a = 0,00045 \text{ MeV}$, $b = 0,00039 \text{ MeV}^{1/2}$, $c = 0 \text{ MeV}^{-1}$.

Les concentrations des éléments existant dans la solution NH_4Cl sont introduites dans le fichier des données d'entrée de MCNP5 avec leurs sections efficaces des interactions des photons avec la matière [6]. On a aussi introduit dans le fichier des données d'entrée, les énergies émises par la source et leurs intensités.

L'observable F8 se représenté par :

F8 : P 16

E8 0 3350I 10

GEB FT8 0,00045 0,00039 0

Cet observable calcul l'efficacité absolue de détection de chaque photon de 0 Mev jusqu'à 10MeV avec un incrément de (10/3350).

Les résultats obtenu par la simulation et celle obtenu par l'expérience sont représenté dans la figure (IV.4) :

Chapitre IV Application du dispositif de PGNAA à l'analyse de la boue de la station d'épuration des eaux usées de Reghaia

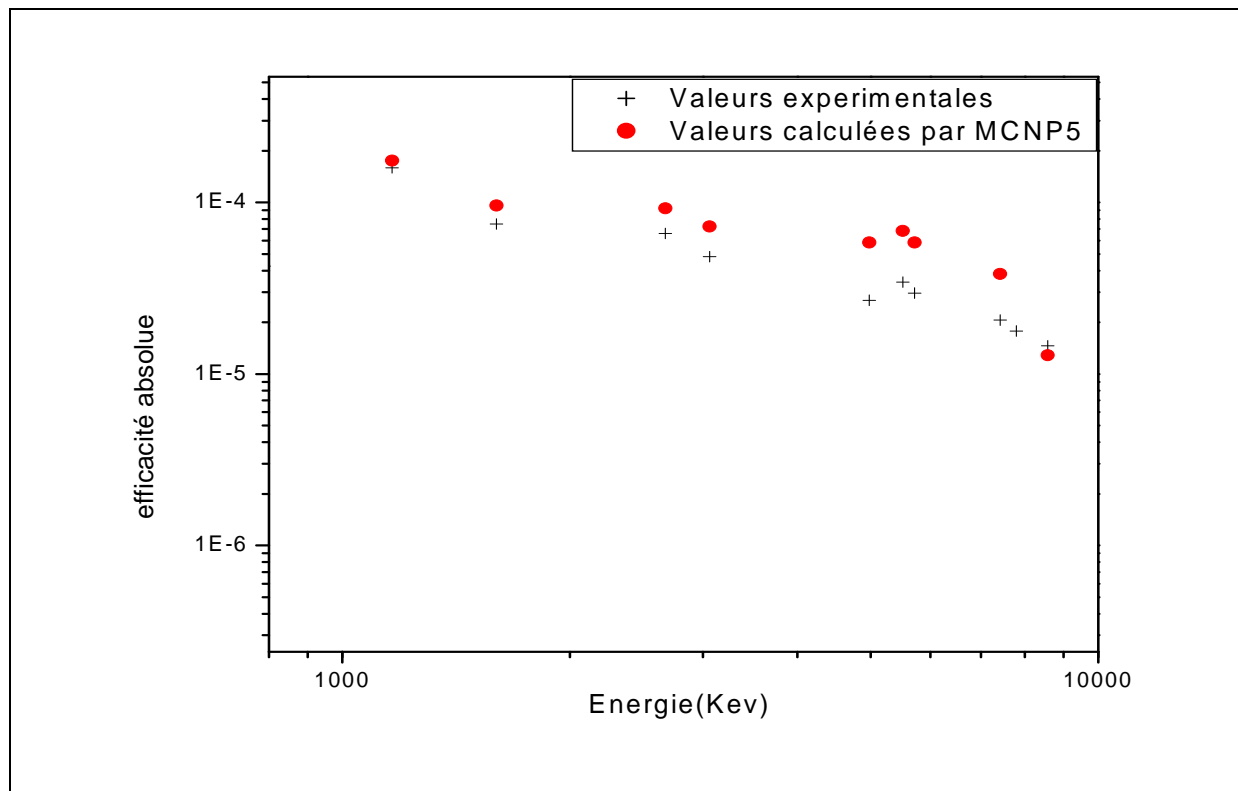


Figure IV.4 : Comparaison entre les efficacités de détection mesurées et simulées

La comparaison entre les valeurs expérimentales et celles calculées par Monte Carlo (MCNP5) montre qu'il y a une légère différence dû aux dimensions imprécise du détecteur fournies par le constructeur. ce fait est relaté par plusieurs auteur [37, 38,39].

IV.3 La correction pour l'atténuation des gammas dans les échantillons de boues

Il existe deux méthodes d'analyse quantitative dans la technique PGNAA : la méthode relative et la méthode absolue basée sur l'équation (II.16) qui donne les concentrations des éléments présents dans l'échantillon à analyser. Dans notre travail, nous disposant pas des échantillons volumineux standard de la boue, nous avons utilisé la méthode absolue. La mise en œuvre de cette méthode nécessite la résolution du problème de l'auto absorption des neutrons et de l'atténuation des gammas dans l'échantillon à analyser. Le problème d'atténuation des gammas a été traité en

Chapitre IV Application du dispositif de PGNAA à l'analyse de la boue de la station d'épuration des eaux usées de Reghaia

définissant un coefficient d'atténuation F_{att} , qui est calculé en utilisant le code MCNP5 et la composition en éléments majeurs des échantillons.

Pour le calcul du Facteur d'atténuation nous avons utilisé l'observable F5 qui nous donne comme résultat la probabilité qu'un gamma émit par la source d'atteigne le détecteur [6], on calcule cette probabilité pour un échantillon de boue qui considéré alors une source gamma homogène et isotrope le calcul est répété pour le cas il y a absence d'échantillons (porte échantillon vide), Le facteur d'atténuation F_{att} et alors donné par le rapport suivant [28]:

$$F_{att} = \frac{P_{\gamma,s}}{P_{\gamma,ws}} \quad (IV.3)$$

Où $P_{\gamma,s}$ est la probabilité pour un gamma émis dans l'échantillon d'atteindre le détecteur,

$P_{\gamma,ws}$ Est la même probabilité pour un porte échantillon vide (sans échantillon).

Les résultats obtenues pour trois échantillons de boue solide, la boue liquide et l'eau, sont représentés dans la figure ci-dessous :

Chapitre IV Application du dispositif de PGNAA à l'analyse de la boue de la station d'épuration des eaux usées de Reghaia

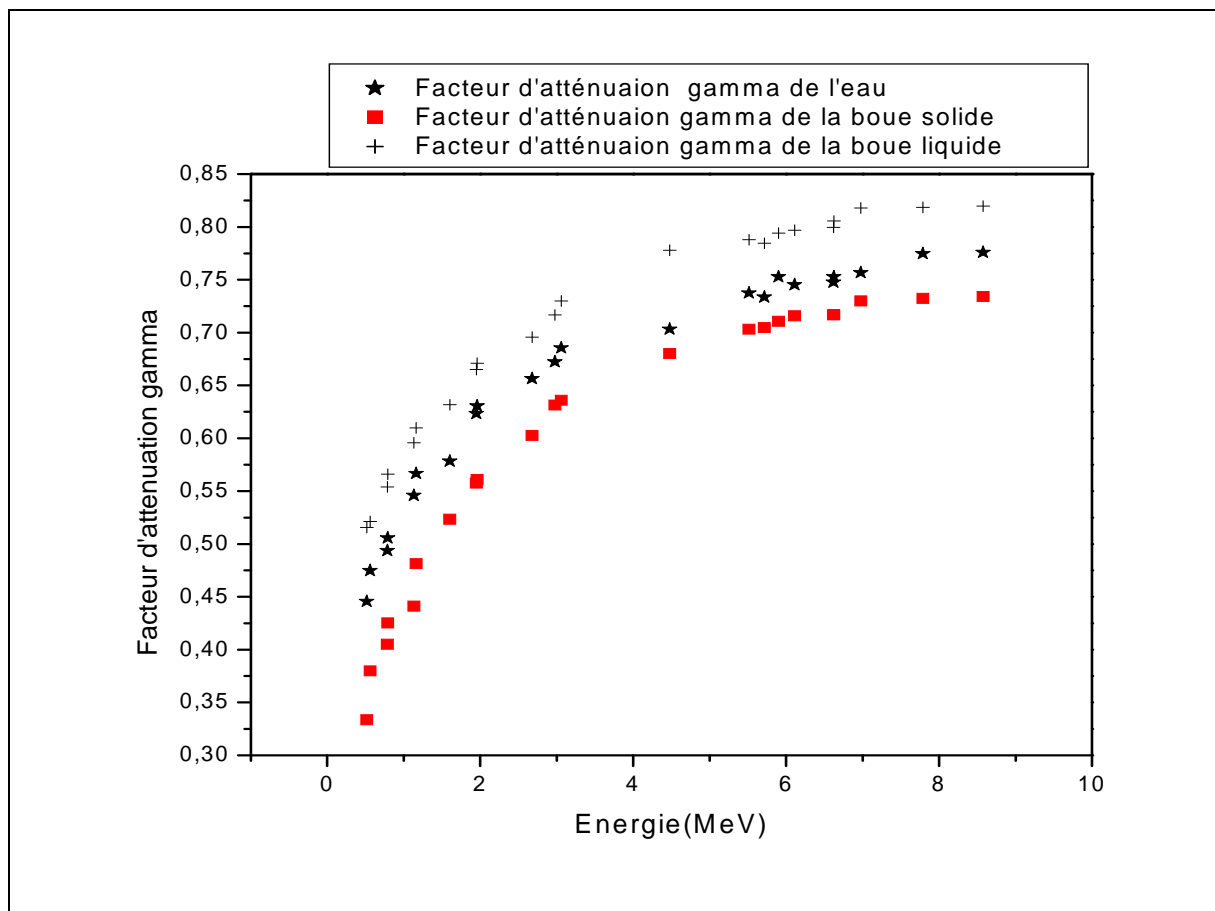


Figure IV.5 : Facteur d'atténuation des gammas en fonction de l'énergie

D'après la figure (V.5), on constate que le facteur d'atténuation gammas est différent dans les trois échantillons et ça dû à la composition de chaque échantillon. La boue solide est principalement constituée d'éléments légers tels que l'hydrogène et le carbone, sa densité (1.47g/cm^3) est légèrement supérieure à celle de l'eau (1g/cm^3) et de la boue liquide (0.965g/cm^3).

IV.4 La détermination de l'efficacité du détecteur et le flux de neutron thermique moyen pour un échantillon de la boue

Connaissant le facteur d'atténuation, on peut alors calculer l'efficacité absolue de détection du détecteur GeHp pour l'échantillon de la boue à partir de celle mesurée avec les gammas prompts du chlore [40] :

Chapitre IV Application du dispositif de PGNAA à l'analyse de la boue de la station d'épuration des eaux usées de Reghaia

$$\epsilon_i(E_\gamma) = \epsilon_w(E_\gamma) \cdot \left(\frac{F_{att,i}}{F_{att,w}}\right) \quad (IV.4)$$

Où $\epsilon_i(E_\gamma)$ est l'efficacité de détection gamma pour l'échantillon inconnu (la boue)

$\epsilon_w(E_\gamma)$ est l'efficacité de détection gamma pour l'eau donnée dans la figure (IV.3).

$F_{att,i}$ est le coefficient d'atténuation gamma de l'échantillon inconnu (la boue)

$F_{att,w}$ est le coefficient d'atténuation gamma de l'échantillon d'eau.

Le flux de neutrons thermiques dans les échantillons de boue a été déterminé en utilisant le flux de neutrons thermiques dans l'échantillon d'eau de référence et les mesures effectuées avec le détecteur ^3He placé sur la surface externe des échantillons d'eau et de boue, le flux de neutrons thermiques est donné alors par [35] :

$$\Phi(boue) = \Phi(eau) * \frac{\check{\Phi}_{He3(boue)}}{\check{\Phi}_{He3(eau)}} \quad (IV.5)$$

Avec

$\Phi(eau)$: est le flux de neutron thermique dans l'échantillon d'eau simulé par MCNP5 [20].

$\check{\Phi}_{He3(boue)}$: Le flux de neutron thermique moyen mesuré par le détecteur ^3He pour l'échantillon de la boue

$\check{\Phi}_{He3(eau)}$: Le flux de neutron thermique moyen mesuré par le détecteur ^3He pour l'échantillon d'eau

IV.5 L'Analyse de la boue par la PGNAA

Dans ce travail, nous nous sommes fixé comme objectif l'analyse d'un échantillon volumineux de boue solide de la station d'épuration de Reghaia par la technique PGNAA, les éléments d'intérêt sont les éléments nutritifs (N, P, K, Ca) et les métaux lourds (Cd, Zn, Cr, Hg, Pb, ...). Nous avons choisi la station d'épuration de Reghaia à cause de sa situation dans une zone industrielle où souvent les rejets domestiques sont mélangés aux rejets industriels qui peuvent présenter un danger pour la santé et l'environnement s'ils ne sont pas préalablement traités.

Chapitre IV Application du dispositif de PGNAA à l'analyse de la boue de la station d'épuration des eaux usées de Reghaia

IV.5.1 Fonctionnement d'une station d'épuration

Le schéma présenté dans la figure IV.6 montre le fonctionnement d'une station d'épuration à boues activées.



Figure IV.6 : Le fonctionnement d'une station d'épuration

L'eau polluée passe à travers des grilles (1) qui retiennent et enlèvent les plus gros déchets (cotons-tiges, morceaux de papier, de plastique, de bois...)

Elle entre ensuite dans un ouvrage (2) où les huiles et graisses flottantes sont récupérées en surface. Les sables et graviers plus lourds se déposent au fond de ce même ouvrage, puis sont envoyés à la décharge publique.

L'eau s'écoule ensuite dans un grand bassin appelé décanteur (3) au fond duquel se déposent les boues. On fait passer ensuite l'eau (encore très sale) dans un bassin d'aération (4) où des bactéries dégradent petit à petit la pollution. Elle passe finalement par un dernier décanteur (5) au fond duquel les matières polluantes (sous forme de boues) dégradées par les bactéries se déposent. L'eau est suffisamment propre pour pouvoir être rejetée à la rivière et peut alors reprendre son cycle naturel.

Chapitre IV Application du dispositif de PGNAA à l'analyse de la boue de la station d'épuration des eaux usées de Reghaia

Les boues récupérées du décanteur peuvent être utilisées comme engrais dans l'agriculture sinon elles sont envoyées en décharge publique ou incinérées.

IV.5.2 Echantillonnage

Deux échantillons de boues ont été prélevés, l'un solide et l'autre liquide. Ces boues ont été conditionnées dans des sachets en plastique. Elles ont été ensuite pesées pour déterminer leurs densités. On a trouvé pour la boue solide une densité de 1.47g/cm^3 et pour la boue liquide 0.956g/cm^3 .

Afin de comparer les résultats de notre travail avec d'autre technique d'analyse (absorption atomique et la torche à plasma), d'autres échantillons ont été lyophilisés et traité chimiquement pour obtenir des solutions.

IV.4.3. Dispositif expérimental

Le dispositif expérimental utilisé est celui décrit au chapitre II (figure II .2). Pour éviter les corrections pour les pertes dues au temps mort, nous avons travaillé avec des temps de comptage effectifs qui correspondent aux temps d'horloge auxquels on a soustrait les temps morts.

Pour la correction des pertes dues à l'empilement des impulsions, nous avons utilisé la méthode du générateur d'impulsions en choisissant des paramètres de manière à avoir le pic correspondant dans la partie des hautes énergies du spectre et cela pour ne pas interférer avec les pics correspondants aux gammas prompts d'intérêt. Le nombre de coups corrigés est donné par la relation suivante :

$$N_c = N_0 \frac{N_{p,d}}{N_{p,o}} \quad (\text{IV-6})$$

Où N_c est le nombre de coups corrigés sous le pic photoélectrique,

N_0 est le nombre de coups observés sous le pic photoélectrique,

$N_{p,d}$ est le nombre connu d'impulsions délivrées par le générateur d'impulsions durant le temps de comptage utilisé.

Chapitre IV Application du dispositif de PGNAA à l'analyse de la boue de la station d'épuration des eaux usées de Reghaia

et $N_{p,o}$ est le nombre de coups observés sous le pic du générateur d'impulsions.

Le détecteur ^3He est utilisé pour mesurer le flux de neutron thermique sur la surface externe du porte échantillon pour chaque irradiation. La chaîne de détection a été calibrée avec les sources de calibration de ^{152}Eu et ^{60}Co ^{137}Cs .

L'irradiation de la boue est montrée dans la figure (IV.7)



Figure IV.7 : System de détection utilisé pour l'analyse des boues

IV.5.4 Le spectre de gammas prompts enregistré avec un échantillon d'eau

L'expérience a été précédée par une mesure sur un échantillon d'eau de référence. Le spectre obtenu après un temps de comptage de 14400s est représenté dans la figure la figure (IV.8).

Chapitre IV Application du dispositif de PGNAA à l'analyse de la boue de la station d'épuration des eaux usées de Reghaia

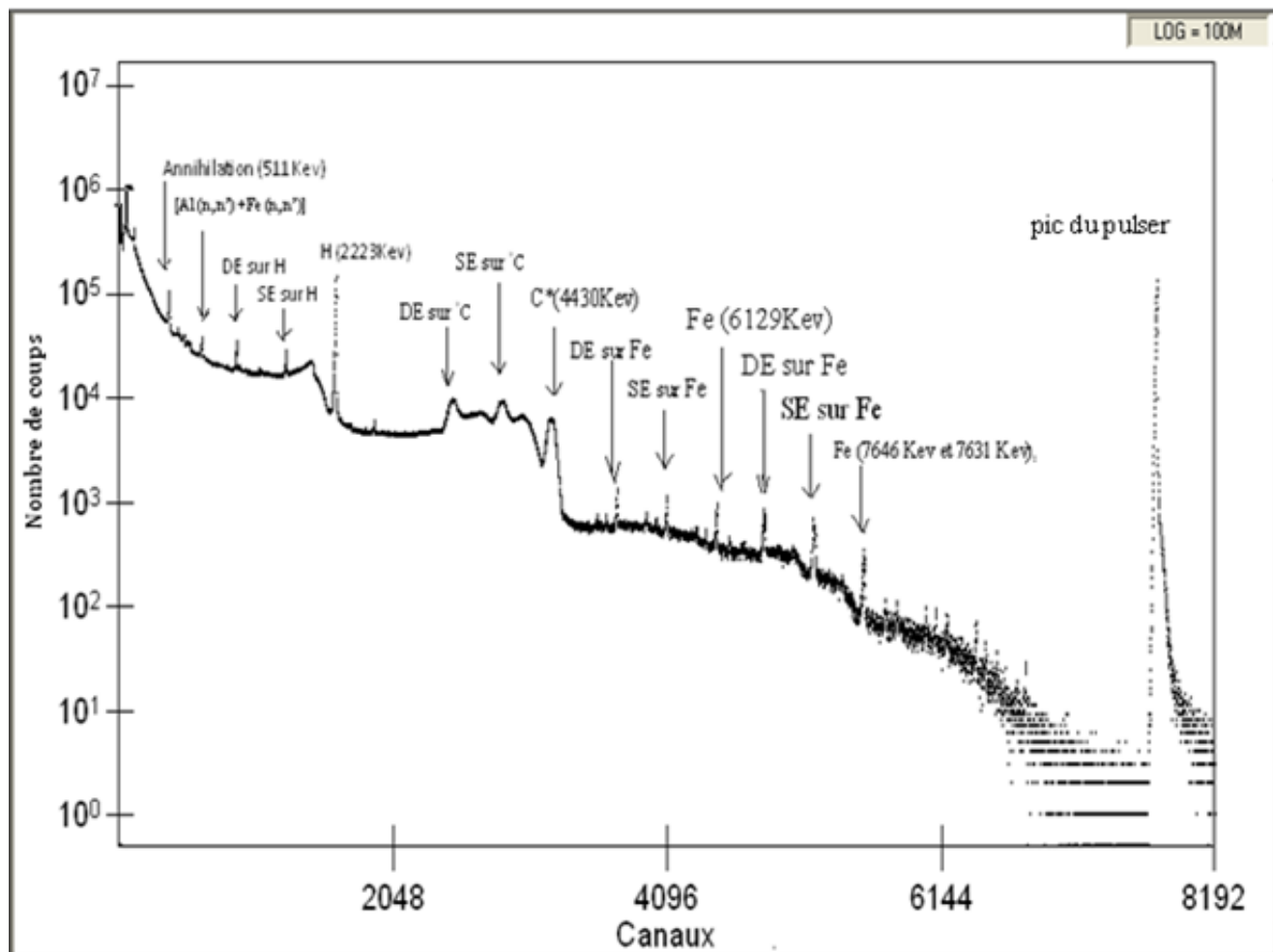


Figure IV.8 : Spectre du bruit de fond obtenu par le détecteur Ge(Hp)

Ce spectre nous a permis d'identifier les gammas prompts résultant des interactions des neutrons rapides et thermiques avec le Crystal du détecteur GeHp utilisé et les matériaux environnants.

L'identification des gammas prompts résultant des interactions des neutrons rapides avec le Crystal du détecteur GeHp utilisé est faite à l'aide du spectre obtenue par l'irradiation du détecteur Ge(Li) par un faisceau de neutron rapide (fig. IV.9) [11].

Chapitre IV Application du dispositif de PGNAA à l'analyse de la boue de la station d'épuration des eaux usées de Reghaia

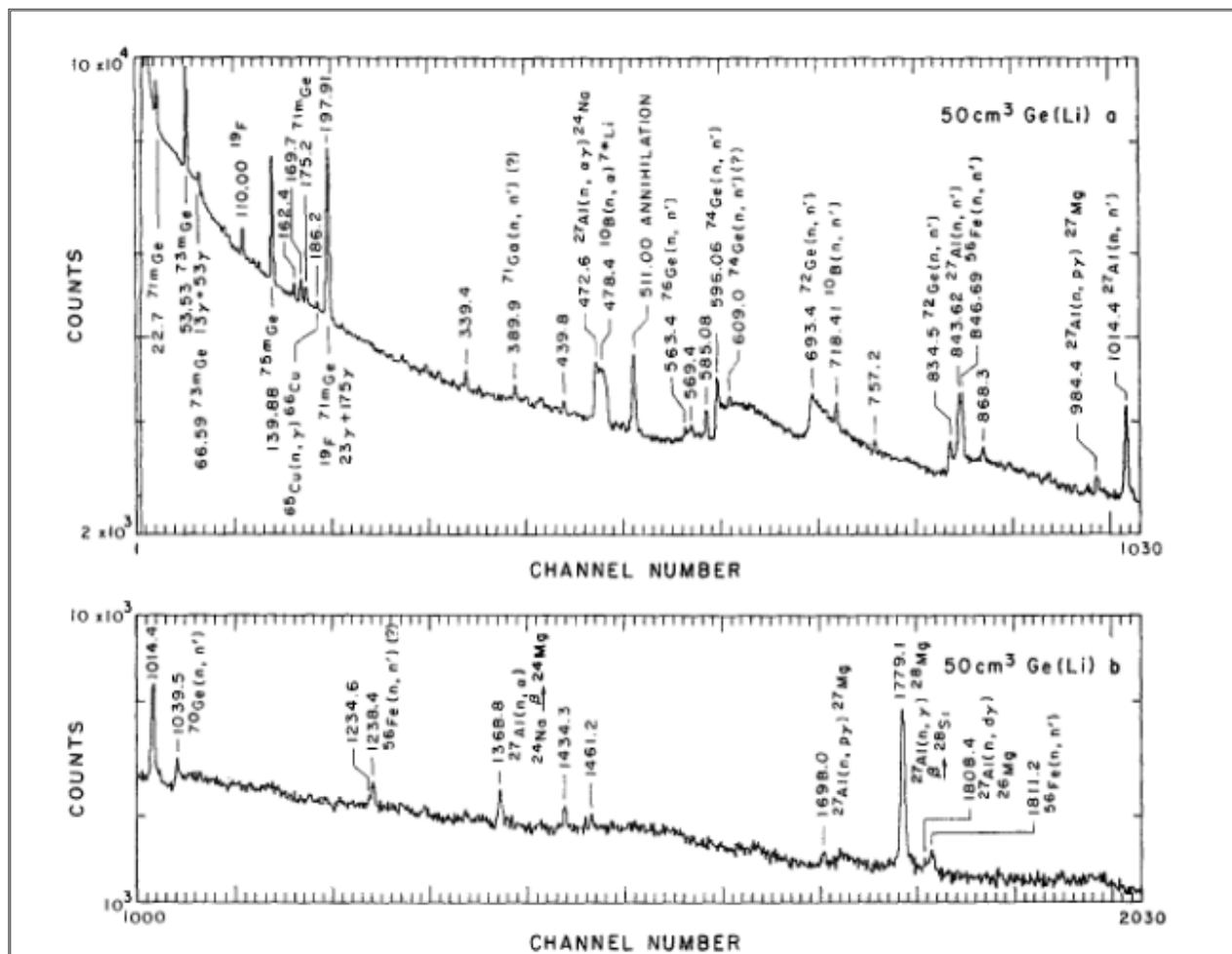


Figure IV.9 : spectre produit par l'irradiation avec les neutrons rapides 50cm³ du détecteur Ge(Li) [11]

Nous constatons à partir du spectre de gamma prompt enregistrée avec un échantillon d'eau (Figure IV.8), que dans les basses énergies, la raie de 2223 keV correspondant a l'hydrogène est très intense. Cette raie est accompagnée des deux raies simple et double échappement correspondantes (1201 et 1712 keV). Vers les hautes énergies, la raie de 4430 keV correspondant au gamma de désexcitation du ¹²C est la plus intense. Elle est accompagnée des deux raies simple et double échappement. Ces raies présentent une largeur a mi-hauteur relativement grande a cause de l'effet Doppler qui caractérise l'émission du gamma de désexcitation du noyau de recul ¹²C issu de la réaction ⁹Be (α, n) ¹²C. On observe aussi les raies du Fe (6129kev ,7631+7646Kev) avec leurs raies de simple et double échappement.

Chapitre IV Application du dispositif de PGNAA à l'analyse de la boue de la station d'épuration des eaux usées de Reghaia

Afin de déterminer le flux de neutrons thermiques dans l'échantillon de boue, le flux de neutron thermique a été mesuré à la surface externe du porte-échantillon avec le détecteur ^3He pour la boue et l'échantillon d'eau de référence et nous avons utilisé la relation (IV.5).

Six comptages de 30 secondes chacun ont été effectués et le flux moyen mesure est de $48.5 \text{ n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$.

IV.5.5 Irradiation de la boue solide

L'étalonnage de la chaîne de détection a été effectué avec la raie de capture de l'hydrogène (2223Kev), la raie 4430 Kev de désexcitation du ^{12}C et la raie 6129 Kev du Fe. L'identification du spectre de la boue solide est représentée dans l'annexe (A).

Le spectre obtenu après un temps de comptage de 14400s est représenté dans la figure (IV.10):

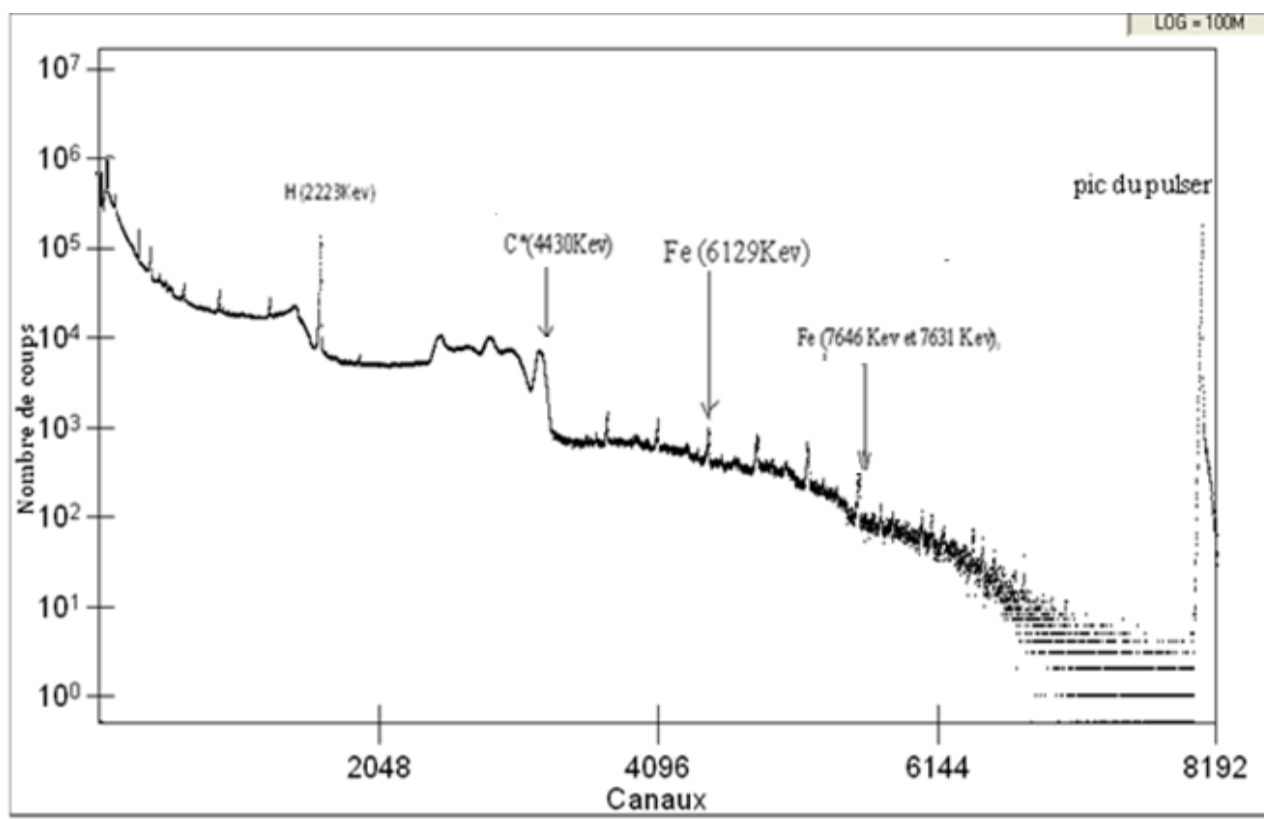


Figure IV.10 : Spectre de la boue solide par le détecteur Ge (Hp).

Chapitre IV Application du dispositif de PGNAA à l'analyse de la boue de la station d'épuration des eaux usées de Reghaia

Le flux de neutron thermique mesuré à la surface externe de l'échantillon de boue solide avec le détecteur ^3He est de $35.05 \text{ n/cm}^2.\text{s}$.

Connaissant le flux de neutrons thermiques dans l'échantillon d'eau de référence $\Phi(\text{eau}) = 1780 \text{ n/cm}^2.\text{s}$, on peut déduire le flux de neutrons thermiques dans l'échantillon de la boue solide à partir de la relation (IV.5) :

$$\Phi(\text{boues solide}) = 1286,37 \text{ n/cm}^2.\text{s}$$

IV.5.6 Irradiation de la boue liquide

Pour l'analyse de la boue liquide, on a suivi les mêmes étapes que la boue solide. Le porte-échantillon a été rempli avec 24 litres de boue liquide. La calibration de la chaîne de détection a été faite avec les raies de l'hydrogène, le carbone et le Fe, comme mentionné précédemment.

Le spectre obtenu par le détecteur GeHp après un temps de comptage de 14400s est représenté dans la figure ci-dessous :

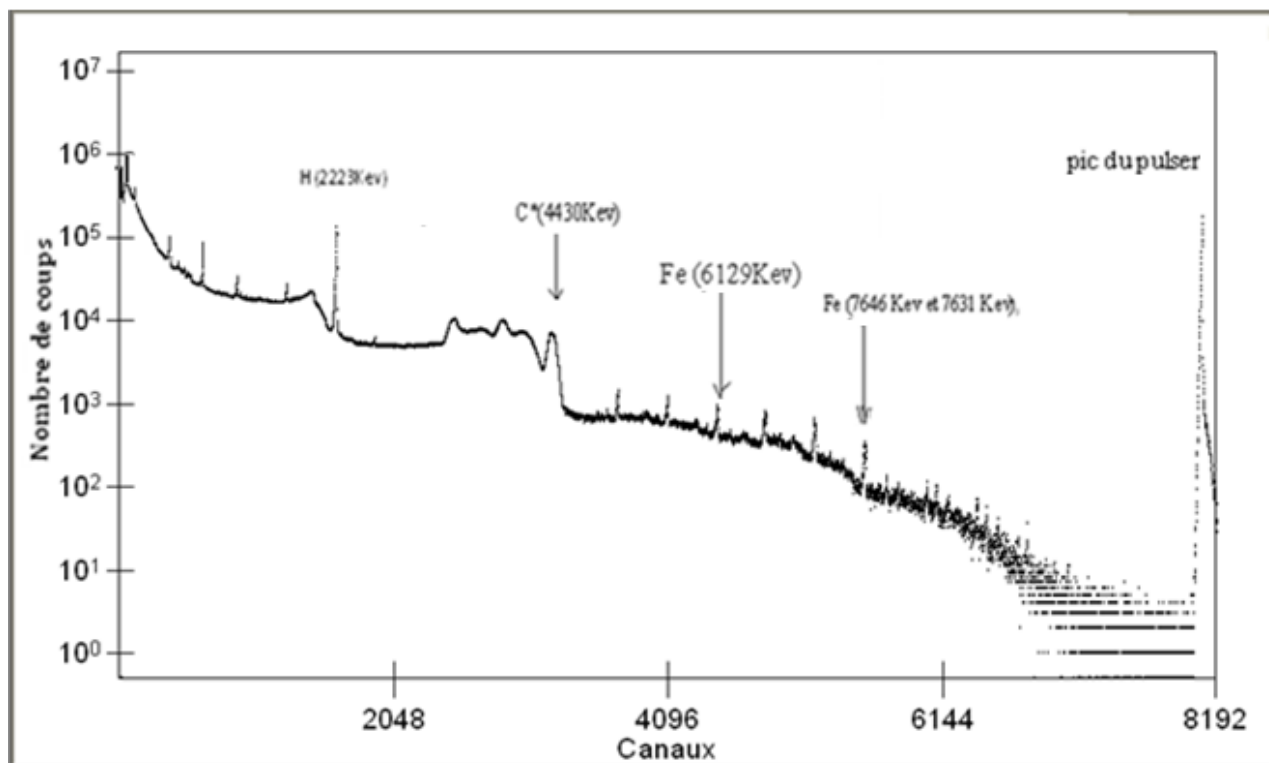


Figure IV.11 : Spectre de la boue Liquide par le détecteur Ge(Hp)

Chapitre IV Application du dispositif de PGNAA à l'analyse de la boue de la station d'épuration des eaux usées de Reghaia

L'identification du spectre est représentée dans l'Annexe (B). Le résultat de la mesure du flux de neutron thermique sur la surface externe de l'échantillon de boue liquide a donné une valeur de 51.19 n/cm².s Le flux de neutrons thermiques dans la boue liquide déduit de la relation (IV.5) est de 1878 n/cm².s.

IV.5.7 Analyse des spectres

a) Analyse qualitative :

L'identification des éléments a été faite en relevant les énergies des raies enregistrées dans les spectres des gammas prompts. Les éléments identifiés sont donnés dans le tableau ci-dessous :

La boue solide		La boue Liquide	
Elément	Energie (keV)	Elément	Energie (keV)
Si	4930 3539	Si	4930 3539
Cl	8578 7413	Cl	7413
Fe	7630	Fe	7630
Na	2518	Na	2518
Cr	8884	Cr	8884
Mn	7243	Mn	7243
K	5684 5732	-	-
N	10820 5296	-	-
P	6785	P	6785
Al	7723	-	-
Ca	6419	Ca	6419

Tableau IV.2 : Les éléments obtenus dans la boue solide et liquide par la PGNAA

Chapitre IV Application du dispositif de PGNAA à l'analyse de la boue de la station d'épuration des eaux usées de Reghaia

b) Analyse quantitative :

Les concentrations des éléments présents dans la boue sont calculées par la méthode absolue expliquée dans le chapitre II. L'expression de la concentration est donnée par la relation suivante :

$$C = \frac{N_\gamma M}{M_e N_A \theta \bar{\varphi}_0 \hat{g} \sigma_0 \bar{\epsilon}(E_\gamma) P(E_\gamma) t_c}$$

Avec :

N_γ : Nombre de coups

t_m : Le temps d'irradiation

N_A : le nombre d'Avogadro et θ l'abondance isotopique.

M : la masse atomique de l'élément

θ : L'abondance isotopique

$\bar{\epsilon}(E_\gamma)$: L'efficacité de détection calculée par la relation (IV.4)

$P(E_\gamma)$: Rapport d'branchement

φ : Flux thermique moyen calculé par la relation (IV.5)

g : Facteur de wascttof

Les concentrations des éléments identifiés sont données dans le tableau **(IV.3)**

Les résultats de l'analyse des boues sont comparés avec ceux de la méthode de la torche à plasma et l'absorption atomique et les normes publiées dans la référence [42]

Chapitre IV Application du dispositif de PGNAA à l'analyse de la boue de la station d'épuration des eaux usées de Reghaia

Elément	Concentration en (%) dans la boue solide par Notre Méthode	La limite de détection en(%) pour la boue solide	Concentration (%) Analyse de Boue solide par torche à plasma	Concentration (%) Analyse de boue solide absorption atomique	Normes pour les boues liquides (%) [42]	Concentration en (%) dans la boue liquide par Notre Méthode	La limite de détection en(%) pour la boue liquide
Si	10.04 ± 0.4	0.21	-	-	7.5	8.03 ± 0.0588	0.016
Cl	0,135 ± 0.0204	0.019	-	-	0.34	0.05 ± 0.015	0.0014
Fe	1.99 ± 0.212	0.075	-	1.75	2.50	1.34 ± 0.24	0.04
Na	6.7 ± 0,6	0.12	-	-	0,04	1.6 ± 0,3	0.016
Cr	1,04 ± 0.1	0.093	0.9	-	0,1	0,6 ± 0.1	0.10
Mn	0,588 ± 0.048	0.021	-	-	0.08	0.3 ± 0.025	0.043
K	6,87 ± 2.67	0.16	-	-	2,49	-	-
AL	4.28 ± 0.219	0.15	-	-	-	-	-
P	3.8 ± 0.41	0.41	-	-	1.2	0.35 ± 0.13	0.33
Ca	7,87 ± 0.424	0.1	-	2.22	-	2,36 ± 0.14	0.056
N	12.5 ± 1,4	0.84	-	-	4.65	-	-

Tableau IV.3 : les concentrations des éléments existants dans la boue

IV.5.8 Discussion des résultats

A partir du spectre obtenu lors l'irradiation de la boue pendant 4h, nous observons une certaine complexité des spectres en raison de la présence de raies simple et double échappement associées aux énergies supérieures à 1022Kev.

Nous constatons à partir du Tableau IV.3 que dans le cas de la boue liquide, les concentrations déterminées sont dans les normes pour les éléments (P, Fe, Cl, Si). Par contre, les normes sont dépassées pour les éléments suivants : Mn, Cr, Na. Pour le Cr et le Mn qui sont des métaux lourds, l'explication réside dans le fait que les eaux usées traitées par la station d'épuration proviennent en partie de la zone industrielle où souvent les eaux sont rejetées sans aucun traitement. En général, les concentrations

Chapitre IV Application du dispositif de PGNAA à l'analyse de la boue de la station d'épuration des eaux usées de Reghaia

trouvées dans la boue solide sont plus grandes que celles de la boue liquide, ce qui est normal car la boue solide est de la boue fraîche (liquide) qui a été déshydratée.

Les limites de détection pour les éléments qui ont été dosés dans ce travail sont relativement plus petites que les concentrations généralement rencontrées (normes), ce qui indique que cette technique est parfaitement adaptée à l'analyse des boues des stations d'épuration des eaux usées. La discussion détaillée des résultats est comme suit :

- **Silicium :**

Le silicium est dosé par la raie 4934 keV avec une intensité de 62.69 % celle de 3539 keV avec l'intensité 68%. La concentration obtenue est dans les normes de la référence [42] pour l'échantillon de boue liquide.

- **Chlore :**

Les raies gamma prompt du chlore sont nettement visibles dans les trois spectres qu'on a enregistré (le spectre de référence, la boue solide et la boue liquide). Dans la boue solide, la concentration de Cl a été calculée en utilisant la raie 8575 keV qui était absente dans le spectre de référence, mais dans le cas de la boue liquide, nous avons utilisé des raies gammas autre que celle à 7413 keV aux quelles on a soustrait le bruit de fond estimé à partir du spectre de référence de l'eau.

- **Fer :**

Le fer a été dosé au moyen de la raie 1612 keV avec une intensité de 6% et celle de 6395keV avec une intensité 28.51%. Le résultat obtenu est en accord avec celui déterminé par la technique torche à plasma

- **Sodium :**

Nous constatons que la concentration du sodium mesuré par la méthode PGNAA dans la boue solide est plus grande par rapport aux normes mentionnées dans la référence [42]. Le Na est dosé par la raie 2518 keV avec l'intensité 14.78% et la raie 6395 keV dont l'intensité est 22.18%. Pour l'énergie 2518 keV, la concentration était élevée parce que cette raie est proche de la raie double échappement du ^{28}Si (la raie

Chapitre IV Application du dispositif de PGNAA à l'analyse de la boue de la station d'épuration des eaux usées de Reghaia

2514 keV est la raie double échappement correspondant au pic de 3536 keV). Comme la résolution du détecteur est relativement grande dans cette région du spectre, cette interférence peut fausser les résultats. Pour le pic 6395 keV, il est proche de la raie double échappement du chlore et le même raisonnement que pour la raie 2518 keV peut être adopté.

- **Cr :**

La concentration du **Cr** mesuré par notre méthode est en bon accord avec celle obtenue par la méthode de la torche à plasma.

- **Ca :**

Le **Ca** est dosé par la raie 6419 keV dont l'intensité est de 38.89%. Sa concentration dans la boue solide mesurée par la PGNAA est plus grande par rapport à celle mesurée par la technique absorption atomique, l'erreur peut être attribuée à l'interférence avec la raie 6418 keV de **Ti** avec une intensité de 30.13% (le **Ti** est présent dans les boues solides, ce qui a été révélé par la technique Torche à plasma).

- **Le phosphore :**

La concentration du phosphore dans la boue liquide est dans les normes.

- **Le Nitrogène :**

Nous constatons que la concentration du Nitrogène mesuré par notre méthode dans la boue solide est plus grande par rapport aux normes de la boue liquide mentionnées dans la référence [42], ce qui est normal car la boue solide est de la boue fraîche (liquide) qui a été déshydratée.

Chapitre IV Application du dispositif de PGNAA à l'analyse de la boue de la station d'épuration des eaux usées de Reghaia

Conclusion générale

Dans ce travail nous avons développé une méthode d'analyse de boues de stations d'épurations d'eaux usées en utilisant la PGNAA avec une source Am-Be. Nous avons utilisé pour cela, un dispositif expérimental constitué principalement d'une source Am-Be, d'un porte-échantillon cylindrique en plexiglas et d'un détecteur GeHp de 15% d'efficacité relative.

Le dispositif a été optimisé pour l'analyse des échantillons volumineux en utilisant le code MCNP5. La validation expérimentale de la modélisation utilisée dans la simulation a été effectuée en comparant les mesures du flux de neutron thermique ponctuel effectuées par la technique des feuilles d'activation d'indium (avec et sans enveloppe de cadmium). Une fois la modélisation validée, nous avons optimisé les dimensions des échantillons en recherchant un flux de neutrons thermiques moyen maximum. Le diamètre étant l'actuel du dispositif, seule la hauteur de l'échantillon a été optimisée. Pour la boue liquide, la valeur optimale est de 20 cm, identique à celle calculée pour un échantillon d'eau. Pour la boue solide, la hauteur optimale est de 40 cm.

Dans une seconde étape, nous avons procédé à l'analyse qualitative et quantitative des échantillons de boues solide et liquide. Pour l'analyse qualitative, nous avons d'abord identifié les gammas prompts du bruit de fond en irradiant un échantillon d'eau. Pour l'analyse quantitative, nous avons utilisé la méthode absolue et l'efficacité de détection gamma déterminée expérimentalement avec les gammas prompts du chlore dissous dans un échantillon d'eau utilisé comme échantillon de référence. Les variations du flux de neutrons thermiques sont traitées à l'aide de mesures du flux de neutrons thermiques effectuées avec un compteur ^3He . Pour l'atténuation gamma dans les échantillons, on a utilisé des facteurs d'atténuation calculés avec le code MCNP5.

Les résultats ont montré que pour la boue liquide, les concentrations pour certains éléments (P, Fe, Cl, Si) sont dans les normes contrairement à celles de certains métaux lourds (Cr, Mn) qui sont relativement élevées. Les concentrations élevées pour les métaux lourds sont dues certainement au traitement d'eaux de rejets provenant des unités industrielles installées à Reghaia. Les concentrations trouvées pour la boue solide

Chapitre IV Application du dispositif de PGNAA à l'analyse de la boue de la station d'épuration des eaux usées de Reghaia

sont beaucoup plus grandes que celles de la boue liquide. Cette situation peut être expliquée par le fait que les boues solides sont des boues liquides qu'on a déshydratées. D'autre part, les limites de détection pour tous les éléments sont relativement plus petites que celles données dans les normes, ce qui rend cette technique tout à fait adaptée à l'analyse des boues des stations d'épuration.

ANNEX

ANNEX : Identifications des spectres obtenus Lors l'analyse de la Boue

ANNEX (A): Tableau de l'identification du spectre de la boue solide

Energie(Kev)	R	Net	Les éléments possibles	Energie	Intensité	Sigma	Elément
46	17	5.68e05					^{75m} Ge (53.53)
66	17	5.55e06	Tb Tb Mn	75.1 79.1 83.1	10.8 1 10.9	26 26 13	^{75m} Ge (66.59kev)
86	17	4.87E06	Tb Tb Mn	93.3 97.3 104.6	1.2 3 8.4	26 26 13	
106	17	4.13E06					¹⁹ F (110kev)
128	17	3.63E06	Fe As I	122.24 122.24 124	1.1	0.096 0.227 6.2	
150	17	3.78E06					^{75m} Ge (139kev)
170	17	2.16E06					^{71m} Ge (169kev)
190	17	1.62E06					⁸⁶ Cu (n, γ) ⁶⁶ Cu (186.2kev)
210	17	9.93E05					¹⁹ F ^{71m} Ge (197)
233	17		Sc Np Co	228.7 228.18 229.87	52.27	3.31 .286 7.18	
298	14	2.46E03	Ge	297.4	1.24	2.3	Ge
310	14	2.65E04	Hf I Cs Mn Tn IR	303.9 301.9 307 314.39 299.95 302.0		3.38 0.17 1.45 1.46 1.15 1.2	Hf
326	14	5.35E04	Hf P N Bi Os	325.559 325.3 326 319.78 322.98	1.42 2.96	6.96 0.18 0.075 0.015 0.242	Hf
351	14	2.76E03	⁸¹ Br				339.4
368	14	2.26E04	Hg Br Fe	81.35 1.59	380 0.23 2.6	2.1 2.3 2.1	Hg
412	5	1.05E04	Ce Ta	402.9 404	27.18 1.63	21 0.63	DE sur Al
494	9	1.07E05					SE sur Al

506	9	3.71E05					Annihilation
567	14	7.96E03					⁷⁶ Ge (n, n') (563.4Kev)
594	15	6.34E04					⁷⁴ Ge (n, n') (585Kev)
656	15	2.66E03	Cd Ga K Ca	651.3 651.0 646.7 648.4	13.9 4.19 2.61 2.6	2500 2.9 2.1 3.8	
695	15	2.45E04					⁷² Ge (n, n') (693.4Kev)
715	15	4.05E04					¹⁰ B (n, n') (718.41Kev)
801	14	2.6E03	Cl Na V Kr	788 799.9 793.9 802.3	15 2.19 2.87 4.6	33 0.4 5 25	Cl
841	14	1.25E05					⁷² Ge (n, n') (834.5Kev)
864	14	1.91E04					868.3
889	14	5.49E03	Ni CU Kr Hg Se	877.9 878 881 886.6 886.5	3.86 1.24 84 2.59 1.5	4.4 3.8 25 38 12	Kr
1011	8	-2.56E03					²⁷ Al (n, n') (1014kev)
1041	8	-1.46E04					⁷⁰ Ge (n, n') (1039Kev)
1094	8	9.87E04	O K	1087 1086	82 1.19	2.7e-4 2.1	SE sur Al
1198	9	4.91E04	Ni SM Mo	1189 1194 1199	1.05 1.81 2.16	4.4 5.8e3 6.8	DE sur H
1234	7	1.84E03					⁵⁶ Fe (n, n')
1290	9	2.95E03					SE sur Al
1431	10	5.62E03					Al (n, α) 1434
1457	10						SE sur Cl
1528	10	3.47E03					SE sur 2034
1611	7	4.81E03	Fe K Zr	1612 1614 1617	6 6.2 6.02	2.6 0.19	Fe ou K
1709	9	7.48E04	Kr NA Cl Kr	1979 1965 1959 1961	4.9 1.05 14.62 1.2	25 0.4 33 25	²⁷ Al (n, α) Mg(1698) ou SE sur H
1774	13	1.38E04					²⁷ AL (n, n') Mg ²⁸ Si (1779.1kev)
1807	14	6.89E03					²⁷ Al (n, α) Mg(1808)
1946	32	1.05E05	P Ca Na	1941 1942 1949	5.3 72.55 2	0.18 0.43 0.4	Ca

			Cl	1951	21.72	33	
1978	22	9.61E04	Cl Kr	1959 1979	14 4.9	33 25	Cl
2034.34	22	4.73E04	P K Zr Mg CO	2034.1 2040.4 2041.4 2043.4 2033.6	2.48 3.55 1.12 4.19 1.09	2.1 2.1 0.19 0.063 37	Mg
2081	22	2.87E04	K Ca Mn Si	2073 2077 2090 2092	10.75 1.94 1.04 21.52	2.1 0.43 133 0.16	K ou Si
2106	22	1.24E04	Zr Al In P	2105.8 2108 2112 2114	1.28 1.8 1.5 6.94	0.19 0.23 0.63 0.18	P
2219	10	6.13E05					H
2270	10	1.02E03	P Ca Ga Hg Al CL Fe	2262 2262 2269 2271 2272 2282 2272	1.01 1.04 1 1.8 1.51 1.4 19.7	0.18 30.43 2.9 380 0.23 33 2.6	Fe ou Cl
2380	3	-3	S K Cr	2379 2377 2389	44.5 1.43 2.1	0.52 3.1 2.1	S
2518	1	3.36E03	Na Zr N Mn	2517 2519 2520 2521	14.78 1.02 6.78 1.09	0.4 0.19 0.075 13	Na
2610	8	1.19E04	Ca K F	2607 2610 2641.4 2632	1.11 2.04 1.1 5.38	0.16 0.003 0.009	Ca
3025	4	6.87E02	F Na	3016 3026	4.01 3.46	9.5e-3 0.4	SE sur Si
3412	38	2.43E04	Mn Na Fe Mg	3409 3411 3413 3413	3.54 1.49 1.91 6.47	13 0.4 2.6 0.063	DE sur C
3536	6	2.37E03	Si K	3539 3546	68 5.21	0.16 2.1	Si
3918	37	3.15E04	P Mg K	3924 3916 3931	3.27 2.41 1.26	3.62 48.62 2.1	SE sur *C
4428	57	5.41E04					*C
4590	3	3.78E02	Ca F	4595 4612	1.13 3.18	2.9 9.8e-3	Ca
4893	18	2.39E03	Al Si	4902 4934	2.64 62.69	0.23 0.16	Al
4927	18	2.26E03	Si C	4934 4945	62.69 67.67	0.16 3.4e-3	Si
4989	18	2.50E03	K F Zr K	4992 5005 5006 5013	2.04 1.89 1.96 1.05	2.1 9.5e-3 1.9e-1 2.1	DE sur Fe
5099	9	6.81E03	Si	5107	3.75	0.16	DE sur Ge(6120)
5292	5	6.06E02	N Ni Cu	5298 5312 5319	21.02 1.01 1.09	0.035 4.4 3.8	SE sur 5803

5392	9	4.83E03	Al Cu S	5411 5417 5420	1.82 2.19.20159.08	0.23 3.8 0.52	SE sur FE(5903)
5501	7	1.7E03	Ge Cl F	5518 5517 5519	1.12 1.73 3.05	2.3 33 0.0095 51	Ge ou SE sur Fe
5607	20	6.83E03	Na Cr N	5616 5618 5619	5.17 3.87 1.08	0.4 3.1 0.075	SE surGe (6120)
5684	20	1.08E03	P Cl Ca K	5704 5715 5692 5696	3.19 5.5 1.19 6.22	0.18 33 0.43 2.1	K
5732	20	8.05E02	K V cl	5752 5751 5715	6 8.37 5.5	2.1 5 33	Clou V
5802	20	2.7E02	Cd Ni Kr	5823 5816 5824	2.13 2.12 1.4	2500 4.4 25	Kr
5901	13	4.46E03	Fe Ca	5920 5900	9.02 4.25	2.6 0.43	Ca
6010	5	4.84E02	Fe Ge	6018 6032	9 1.87	2.6 2.3	Fe
6120	10	5.9E03	Cr W Ge Cl	6136 6143 6136 6110	1.49 1.73 1.85 20	2.3 19 3.1 33	GeouCl
6245	15	1.73E03					DE sur Fe
6382	16	1.26 E03	Na Si	6395 6380	22.18 12.37	0.4 0.16	DE sur Cl
6409	16	1.94E03	Ca Ti Na	6419 6418 6395	38.89 30.13 22.18	0.43 6.1	Ca
6605	29	1.08E04	Cl Cr	6627+ 6619 6645	12.55 5.91	33 3.1	Cl
6694	29	1.89E03	Ge Pb	6707 6736	1.51 5.04	23 0.17	Ge ou DE sur CL(7723)
6753	29	2.21E03	P Mn Zn B Ti	6785 6783 6769 6759 6759	12.98 3.36 31 39.5 24.17	0.18 13 1.1 0.1 6.1	B ou Ti
6789	29	1.71E02	Be As P	6809 6809 6785	63.75 3.27 12.98	0.0062 4.3 0.18	P
6898	11	1.7E03	Ge As Mn	6915 6926 6928	1.22 1.09 2.4	23 4.3 13	DE sur Cr ou Ge
7115	25	8.47 E03					SE sur Fe
7201	25	4.44E02	Mn Li Si	7243 7246 7200	12.13 4.02 7.7	13 0.036 0.16	SE sur Al ou Si
7269	25	6.9E02	N V Mn	7299 7291 7270	9 2.3 3.36	0.075 5 13	Fe
7407	9	6.96E02	P Cl	7421 7413	5.31 10.52	0.18 33	Cl
7626	27	5.01E03	Fe	7631	28.51	2.6	Fe
7714	27	3.58E02	Kr	7749.9	1.5	25	Al

			Al	7723	27.43	0.23	
7852	11	7.17E02	P Zn	7856 7863	1 10.58	0.18 1.9	DE sur Cr
7930	11	6.51E01	Cr	7939	12.75	3.1	Cr
7967	11	1.58 E02					SE sur Cr
8266	11	4.32 E02					DE sur Fe
8363	11	5.83E02					SE sur Cr
8474	14	2.7 E02					Cr
8568	14	4.89 E01	Cl	8578	2.91	33	Cl
8685	10	1.44 E02					DE sur Cr
8777	10	2.27 E02					SE sur Fe
8875	11	3.33 E02	Cr	8884	26.97	3.1	Cr
9198	9	4.76 E01					PE sur Cr
9287	9	6.43 E01		9297	4.15	2.6	Fe
9709	9	5E01	Cr	9720	10.97	3.1	Cr
9797	11	4.76E01					DE sur N
10307	4	4.88 E01					S E sur N
10820	2	3.16E01	N	10829	7	0.075	N

ANNEX (B) :Tableau de la boue liquide

Energie(Kev)	R	Net	Eléments possibles	Energie	Intensité	Sigma	Elément
57.55	23	8.78e08					^{73m} Ge (53.53)
76.56	23	8.27e05	Tb Tb Mn	75.1 79.1 83.1	10.8 1 10.9	26 26 13	
93.56	23	5.18e05	Tb Tb Mn Cs Cs	93.3 97.3 104.6 113 116	1.2 3 8.4 4.59 15.15	26 26 13 29 29	¹⁹ F (110kev)
146.37	5	1.03e05	Pr La I	141.3 142.3 153	7.43 8.25 1.14	12 9.1 62	^{73m} Ge (139.88)
153	5	4.79E05	I TB LA	153 153.6 153.6	1.4 2.32 2.4	62 26 9.1	^{71m} Ge(162)
172.97	5	6.3E04	Te Ge Cs Tc	172.2 175.1 174.3 168.8	48.79 11.39 1.71 1.8	19 2.3 29 19	^{71m} Ge (169.7-175.2)
195.16	5	4.6E04					^{71m} Ge (197.9)
249.83	1	1.73E04	AL Se ZR	248.9 249 250	6.84 1.84 9.45	0.23 12 0.19	AL
297	14	7.83E03	Ge Zn BR	297.4 299 298	1.24 1.39 1.64	2.3 1.1 6.8	Ge

			SC	295	20.9	27	
310.57	14	3.06E04	NB Mn	310 314	4.11 6.76	1.2 13	
327.26	14	5.29E04	N Mg Ge P K	326 326.6 326.3 325.3 332.1	2.96 2.2 4.98 1.42 1.3	.75 0.063 2.3 0.18 2.1	Ge
368.07	14	2.79E03	Hg Fe BR N	368 366.5 367 369	81.35 1.59 1.51 1.14	320 2.6 6.8 0.75	Hg
413.63	7	1.22E04	Ne K	413.3 419.3	1.56 1.3	0.038 25	DE sur Al
508	8	3.89E05	Cl Ge	516 500	18.5 3.57	33 2.3	Annihilation
572.84	19	1.63E04	K Ge K Cu Cd	572.2 575575 579 558	1.69 1.33 1.14 2.91 72.73	2.1 2.3 2.1 3.8 2500	Ge
596.02	19	1.01E05					⁷² Ge (n, n') (596.06Kev)
618.8	19	5.09E04					⁷² Ge (n, n') (609.0Kev)
655.45	19	6.98E04	Cd Ca Cu	651.3 660.9 662	13.9 1.25 1.88	2500 0.43 3.8	
694.81	19	6.38E04					⁷² Ge (n, n') (693.4Kev)
716.36	19	5.06E04					¹⁰ B (n, n') (718.41Kev)
796,3	14	2.66E03	Na K Cd Cl	799 802.3 806 786+788	2.19 4.6 4.65 9.6	0.4 25 2500 33	Cl
809	14	6.33E03	Cd Zn YB Fe	806 806 809	4.65 2.05 2.62	2500 1.1 37 100%	Fe
866	15	1.63E04	Ge	868	14.79	2.3	Captures ur Ge
841	15	1.33E04					⁵⁶ Fe (n, n') (846.89kev)
1012	3	-1.6E04					²⁷ Al (n, n') (1014kev)
1198	10	1.02E05	Ni Br	1189 1199	1.05 2.16	4.4 6.8	DE sur H
1234	10	1.35E04					⁵⁶ Fe (n, n')
1290	10	6.67E03	In Cd SN	1293 1283 1293	17.59 1.77 12.76	190 2500 0.63	SE sur Al
1433	10	5.54E03	SR BA	1434 1435	1.13 14.05	1.2 1.2	ou Al (n, α) 1434
1458	10	5.91E03	LA Ka	1447 1463	1.1 26	9.1 25	SE sur cl
1528.19	7	1.84E03	Xe As	1421 1434	3.28 7.18	25 4.3	DE sur 2039
1590	2	-3.03E03	Al	1590	15.36	0.23	Al
1709	9	9.49E04	Ca K	1703 1704	1.91 1.92	0.43 2.1	SE sur H

			Mn	1705	1.39	13	
1776	7	3.47E03					²⁷ Al (n, n') Mg ²⁸ Si (1779.1kev)
1809	7	3.78E03					²⁷ Al (n, α) ²⁶ Mg
1976	22	4.65E04	Kr NA Cl Kr	1979 1965 1959 1961	4.9 1.05 14.62 1.2	25 0.4 33 25	CL
2109	3		Al In	2108.3 2112	1.28 10.71	0.23 190	AL
2219	10	7.76E05	H	2223	100	0.33	H
2269	10	1.87E03	Fe Ga Ca P	2272 2269 2264 2262	19.7 1 1.04 1.01	26 2.9 0.43 0.18	Fe
2383	15	3.89E03	Zn CR S	2389 2377 2379	2.16 1.43 44.5	2.1 3.1 0.52	S
2518	5	1.61E03	NA ZR N Mn	2517 2519 2520 2521	14.78 1.02 6.78 1.09	0.4 0.19 0.75 13	NA
2611	8	1.11E04	Ca K AR K	2607 2610 2614 2614	1.11 2.04 2.9 1.1		
3416	32	2.66E04	Mn Na Fe Mg KR	3409 3411 3413 3413 3420	3.54 1.49 1.91 6.47 1.2	13 0.4 2.6 0.63 25	DE sur *C
3921	47	2.58E04	P Mg P K	3900 3916 3924 3931	15.96 48.62 3.62 1.26	0.18 0.063 0.18 2.2	SE sur *C
4430	57		¹² C				¹² *C
4806	4	2.24E02	Fe	4810	1.8	2.6	Fe
4892	11	9.38E02	Al Co Ga	4902 4905 4890	2.64	0.23	Al
4930	11	3.53E02	Si C	4934 4945	62.69 67.64	0.16 0.003	Si
4990	11	1.01E03	K F F Zr	4992 4986 5005 5006	2.04 2.39 1.89 1.96	2.1 0.006 0.19	DE sur Fe
5101	10	8.08E03	Si NB	5107 5104	3.75 1.24	0.16 1.2	DE surGe
5399	6	2.1E03	Tl AL	5404 5411	1.22 1.82	3.4 0.23	DE sur CL
5501	9	1.34E03	K Ca	5510 5515	3.27 2.41	2.1 0.43	SE sur Fe
5611	16	6.21E03	NA Cr	5616 5618	5.17 3.87	0.4 3.1	SE surGe
5683	16	1.77E03	Ca K F	5692 5696 5688	1.19 6.22 3	0.43 2.1 0.009	Ca
5910	7	2.19E03	Fe Mn	5920 5920	9.02 1	2.6 26	Fe

6014	4	3.39E02	Fe	6018	9	2.6	Fe
6123	10	6.18E03	Ge	6136	1.85	3.1	Ge
6251	4						DE sur Fe
6386	17	1.08E03	Cu Na	6393 6395	1.18 22.8	3.8 0.4	Na
6414	17	8.62E02	Ca N	6419 6419	38.89 1.1	0.43 0.075	Ca
6608	26	7.64E03	CL	6619 6627	8.01 4.54	33	Cl
6701	26	7.82E02	Ge Pb	6707 6736	1.51 5.04	2.3 0.17	DE sur CL(7723)
6759	26	1.16E03	B Zn Mn P	6759 6769 6783 6785	24.17 31 3.36 12.98	0.1 1.1 13 0.18	Zn
6900	5	9.9E02	Zn Ge	6910 6915	1.37 1.22	2.3 2.7	SE surCl
7119	11	7.18E03					SE sur Fe
7272	3	4.39E02	Mn Fe	7270 7278	3.36 5	13 26	Fe
7409	8	4.83E02	Cl	7413	10.52	33	Cl
7630	23	3.66E03	Cu Fe	7636 7631	15.71 28.51	3.8 2.6	Fe
7707	23	6.54E01	Al	7723	27.43	0.23	Al
7785	23	9.53E03	Cl	7790	8.55	33	Cl
7856	24	5.41 E02	P Zn	7856 7863	1 10.58	0.18 1.9	P
7969	9	2.04 E02					SE sur Cr
8269	12	4.23 E02					DE sur Fe
8366	13	4.17 E02					SE sur Cr
8481	3	1.8 E02					Cr
8781	13	4.19 E02					SE sur Fe
8879	13	2.08 E02	Cr	8884	26.97	3.1	Cr
8994	4	2.85 E01	Ni	8998	37.74	4.4	Ni
9203	8	9.19					PE sur Fe
9297	8	13.7		9297	4.15	2.6	Fe
9712	1	3.05 E01	Cr	9720	10.97	3.1	Cr

Références Bibliographiques

Bibliographie

- [1]: Z.Idiri, Développement et optimisation d'un dispositif expérimental d'analyse par activation neutronique utilisant les gammas prompts et une source Am-Be : application à l'analyse in-situ d'effluents liquides de l'environnement et de l'industrie, thèse de doctorat USTHB, Faculté de physique, 2011.
- [2]: R.Khelifi, Z.Idiri, L. Omari, M. Seghir, Appl. Rad. and Isot., Vol. 51, 1(1999)9-13.
- [3]: M. Borsaru, Z. Jecnyl, Appl. Rad. and Isot., Vol. 54, 3(2001)519-526.
- [4]: Hee-Jung Im, Hyun-Je Cho, ByoungChul Song, Yong Joon Park, Yong-Sam Chung, Won-Ho Kim, Nucl. Instrum. and Meth. A, Vol. 566, 2(2006) 442-447.
- [5]: D. L. Chichester, E. Empey, Appl. Rad. and Isot., Vol. 60, 1(2004) 55-61.
- [6]: MCNP5, A General Monte-Carlo N-particle Transport Code, Version 5 (Los Alamos National Laboratory), (2003).
- [7]: Paul Reuss, Précis de Neutronique, EDP Science (2003).
- [8] Neutron Monitoring for Radiological Protection, Technical Report Series N°252, AIEA (1985).
- [9]- I.Kaplan, Nuclear Physics, Second Edition, Addison-Wesley Publishing Company, 1979.
- [10]: Z.B.Alfassi, C.Chung, Prompt gamma neutron activation analysis, CRC Press, 1995.
- [11]: G.F.Knoll, Radiation Detection and Measurement, Third Edition, John Wiley and Sons, 2000.
- [12]- International Commission on Radiological Protection, "Conversion Coefficients for Use in Radiological Protection against External Radiation", ICRP 74, (1997).
- [13]: C. Grupen, B. Shwartz, Particle detectors, Second Edition, Cambridge University Press, 2008.
- [14]: Gordon R. Gilmore, Practical Gamma-ray Spectrometry, second Edition, John Wiley and Sons, 2008.
- [15]: R. Khelifi, Optimisation de l'Analyse par Gamma Prompts d'échantillons en masse au moyen d'une source de neutrons $^{241}\text{Am-Be}$ et par simulation avec le code MCNP, thèse de doctorat, USTHB, Faculté de physique, 2007.

- [16]: O.T. Høgdahl, Proc. Symp. Radiochemical Methods of Analysis, 1964, Vol. I, Vienna (1965) 23-40.
- [17]: Technical Report Series N°107, Neutron Fluence Measurement, IAEA, Vienna, 1970.
- [18]: G.L. Molnar, Handbook of prompt gamma activation analysis with neutron beams, Kluwer Academic Publishers, 2004.
- [19]: L.A. Currie, Anal. Chem. A 40(1968) 586-593.
- [20]: Z. Idiri, H. Mazrou, S. Beddek, A. Amokrane, A. Azbouche, Nucl. Instr. And Meth, 578(2007)279-288.
- [21]: C. Chung, T. Tseng, Nucl. Instr. and Meth. A267 (1988)223.
- [22]: <http://www.canberra.cm>.
- [23]: Logiciel de traitement de spectres gamma, Genie 2000, Canberra(2007).
- [24]: Norme Internationale, Rayonnements neutroniques de référence - Iso 14152 (2001).
- [25]: Metropolis N., S. Ulam, "The Monte Carlo, J. of the Am. Stast," ,Asso. 44. 335, (1949).
- [26]: D. Mouhssine, Étude d'une nouvelle génération de dosimètre basée sur les détecteurs photo-stimulables type BaFBr(Eu) : caractérisation et application à la dosimétrie environnementale et personnelle, thèse Doctorat de l'Université Louis Pasteur-Strasbourg I. (2004).
- [27]: A. Alem, Simulation par la méthode Monte-Carlo de la production des photo-neutrons autour d'un accélérateur linéaire médical, Mémoire de Magister, USTHB, Faculté de physique, 2009.
- [28]: C. M. Lederer and V. S. Shirley, Table of Isotopes, Wiley-Interscience, 1998.
- [29]: N. Taibouni, Simulation et optimisation au moyen du Code Monte Carlo (MC NP5) d'un dispositif expérimental d'analyse d'échantillons organiques par la méthode de rétrodiffusion neutronique, Mémoire de Magister, USTHB, Faculté de physique, 2010.
- [30]: M. Belgaid, Mesures de sections efficaces de réactions nucléaires induites par des neutrons d'énergie $E_n = 14.73$ MeV - Etude systématique des réactions du type (n, p) - (1991).
- [31]: S.F. Mughabghab, Atlas of Neutron Resonance Parameters and Thermal Cross Sections $Z=1-100$, 5th Edition, Elsevier, 2006.

- [32]: International Commission on Radiological Protection, Conversion Coefficients for Use in Radiological Protection against External Radiation, ICRP 74, (1997).
- [33]: International Commission on Radiological Protection, Conversion Coefficients for Use in Radiological Protection against External Radiation, ICRP 74, (1997)
- [34]: Norme Internationale, Rayonnements neutroniques de référence -Iso 14152 (2001).
- [35].Z. Idiri, H. Mazrou, A. Am okrane, S. Bedek , Nucl. Instr. And Meth, B 268 (2010) 213–218.
- [36]: M. Mesradi, A. Elanique, A. Nourreddine, A. Pape, D. Raiser, A. Sellama ,Appl.Rad.and Isot, 66 780–785 (2008).
- [37]: José Ródenas Diago,ISIB, Bruxelles (Belgique), 22 November 2005.
- [38]:César Marques Salgado, Claudio C Conti, Paulo H B Becker,Appl Rad and Isot, 64 (2006) 700–705.
- [39]: François Bochud, Claude J. Bailat, Thierry Buchillier, François Byrde, Ernst Schmid, Jean-Pascal Laedermann, NuclInstr and Meth,A 569 (2006) 790–795.
- [40] : L. Moens, J. De Donder, X. Lin, F. De Corte, A. De Wispelaere, A. Simonits, J. Hoste, Nucl. Instr. and Meth. 187 (1981) 451–472.
- [41]: R.C. Reddy, S.C. Frankle, At.Data Tables 80, 1 (2002). <<http://www.nds.iaea.org/pgaa/>>.
- [42] : R.S. Ayers et D.W. Westcot, ‘Qualité de l’eau en Agriculture’, Bull. F.A.O.d’Irrigation et de Drainage, N°9, F.A.O., Rome, 180 p.,(1988).