

REPUBLIQUE ALGERIENNE DEMOCRATIQUE ET POPULAIRE  
MINISTERE DE L'ENSEIGNEMENT SUPERIEUR ET  
DE LA RECHERCHE SCIENTIFIQUE

UNIVERSITE MENTOURI DE CONSTANTINE  
FACULTE DES SCIENCES  
DEPARTEMENT DE PHYSIQUE

N° de série : .....

N° d'ordre : .....

MEMOIRE

Présenté pour obtenir le diplôme de Magister

Spécialité : Physique Théorique

Option : Physique nucléaire

THEME

IMPLEMENTATION ET VALIDATION DE LA METHODE DE  
STANDARDISATION DE L'ANALYSE PAR ACTIVATION  
NEUTRONIQUE  $K_0$ -NAA

**Par : Mme ALGHEM HAMIDATOU Lylia**

Soutenu le : 14 Juin 2005

Devant le jury :

Président : Mr. L. Bahi Prof. Univ. Mentouri Constantine  
Rapporteur : Mr. M. Ramdhane Prof. Univ. Mentouri Constantine  
Examineurs : Mr. B. Bouzabata Prof. Univ. Badji Mokhtar d'Annaba  
Mr. M. Boucenna Prof. Univ. Ferhat Abbas Setif  
Mr. M. S. Rouabah M.C. Univ. Mentouri Constantine

# DEDICACE

## A

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

*Ma très chère mère, qui m'a donné tant de tendresse et d'amour, que Dieu tout puissant lui accorde sa sainte miséricorde et à l'accueillir en son vaste paradis,*

*Mon père, en témoignage d'affection et de reconnaissance, qui a été présent, moralement surtout, durant toutes mes études,*

*Mon mari et mon fils qui m'ont beaucoup soutenus et encouragés durant toute cette période,*

*Mes frères et sœurs,*

*Toute la famille, ainsi que toutes mes amies,*

*Je dédie ce modeste ouvrage.*

## *REMERCIEMENTS*

C'est par ces pages de remerciements que débute ce manuscrit de thèse et pourtant c'est cette partie qui y a été insérée en dernier lieu. En effet, il m'a paru difficile d'exprimer en quelques phrases toute la reconnaissance que je souhaiterais témoigner à bon nombre de personnes que j'ai eu l'occasion de travailler durant ces deux années de magister.

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

En tout premier lieu le tiens à remercier Mr **M. Ramdhane**, professeur au département de physique de l'université Mentouri de Constantine d'avoir accepté de diriger ma thèse. Il a su me faire part de ses connaissances scientifiques, s'est toujours montré disponible à mon égard. Qu'il trouve ici l'expression de ma profonde reconnaissance.

Je remercie Mr **B. Bahi**, Professeur à l'université Mentouri Constantine d'avoir accepté de présider le jury de ce travail.

Je remercie également Mrs : **B. Bouzabata**, Professeur à l'université Badji Mokhtar d'Annaba, **A. Boucenna**, professeur à l'Université A. Ferhat de Setif et **M. S. Rouabah**, Maître de conférence à l'Université Mentouri Constantine d'avoir accepté d'examiner ce travail.

Je tiens à remercier Mrs : **M. Mouzai** et **M. Abbaci** chargés de recherche au CRNB pour leurs obsessions d'assurer le bon déroulement des expériences.

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

Je ne voudrais pas oublier d'exprimer ma sincère gratitude à Mr **Antoine De Wispeleare** chercheur à l'université de Gent Belgique et Mr **Ho Manh Dung** chercheur à l'institut de recherche nucléaire, Vietnam. Quelque soit le problème, ils ont toujours su m'aider à résoudre

mes emblématiques conflits avec quelques définitions ! je tiens à saluer leur extrême disponibilité.

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

Je suis plus que reconnaissante pour mes collègues, Mr **S. Khaled** pour son aide et sa participation dans la partie théorique et aussi dans les expériences, Mr **T. Akhal**, je voudrais au moins rappeler ici, sa disponibilité et sa présence dans les moments critiques, Mr **A Ararem** pour sa participation dans la préparation des échantillons et la collection des spectres, Mr **S. Belaid**, je voudrais vous dire mille fois merci pour tout ce que vous avez fait pour moi durant tout ce travail, je n'oublierais surtout pas Mr **Z. Boussaad**, vous étiez toujours présent durant toute mes expériences.

Enfin j'exprime ma profonde gratitude à toute ma famille. Même si parfois loin des yeux, elle a toujours été près de mon cœur. Merci spécialement à mon mari pour la compréhension dont il a fait preuve et son soutien dans des moments que j'avoue parfois très difficiles.

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

# Table des matières

<b>INTRODUCTION</b> .....	<b>8</b>
<b>CHAPITRE I : PRINCIPES FONDAMENTAUX</b> .....	<b>10</b>
1. DESCRIPTION DU TAUX DE REACTION (n,g).....	10
1.1. Formule générale .....	10
1.2. Les fonctions section efficace (n,g) et flux neutronique .....	11
1.3. La convention de Hfgdahl .....	14
1.3.1. <i>Le choix de la convention</i> .....	14
1.3.2. <i>Energie effective de coupure du cadmium</i> .....	15
1.3.3. <i>Les taux de réaction et le rapport cadmium</i> .....	17
1.3.4. <i>Mécanisme de la convention</i> .....	20
1.3.5. <i>Facteurs de correction de self shielding du neutron et la transmission Cd</i> .....	21
2. L'EQUATION D'ACTIVATION .....	22
2.1. Formation directe de radionucléide mesuré sans burn-up.....	22
2.2. Branchement d'activation et la désintégration mère fille.....	23
2.3. Les effets Burn-up.....	24
2.3.1. <i>Burn-up de la cible et – ou du noyaux formé directement</i> .....	25
2.3.2. Burn-up du nucléide mère .....	26

2.3.3. Burn-up du nucléide grand-mère .....	27
2.4. Calcul des facteurs de self shielding des neutrons.....	28
3. ANALYSE PAR ACTIVATION (n,g) : PRINCIPE DE LA STANDARDISATION .....	32
3.1. La standardisation relative.....	32
3.2. Standardisation d'un seul comparateur (mono standard).....	34
3.3. Standardisation absolue (paramétrique).....	36
3.4. La standardisation $k_0$ .....	38
3.4.1. Les Concepts de base .....	38
3.4.2. Paramètres de la méthodes $k_0$ .....	40
3.4.3. Les incertitudes, la propagation d'erreur et les valeurs moyennes.....	41
<b>CHAPITRE II : INSTRUMENTATION .....</b>	<b>49</b>
1. DISPOSITIF D'IRRADIATION .....	49
1.1. Description du réacteur Es Salam.....	49
1.2. Description du site d'irradiation .....	49
2. DISPOSITIF DE MESURE .....	49
<b>CHAPITRE III. CALIBRATION DU DETECTEUR B96125 AIEA .....</b>	<b>51</b>
1. DETERMINATION DE L'EFFICACITE DE DETECTION DU PIC .....	51
2. DETERMINATION DU RAPPORT PIC AU TOTAL .....	53
3. CORRECTION POUR LES EFFETS DES VRAIES COÏNCIDENCES .....	55
3.1. Principe.....	56
3.2. Les facteurs de correction.....	58
<b>CHAPITRE IV. LA CONTRIBUTION DE L'ACTIVATION EPITHERMIQUE:</b>	
<b>LES PARAMETRES <math>\alpha</math>, <math>\bar{E}_r</math>, F ET <math>Q_0</math>.....</b>	<b>60</b>
1. LA DISTRIBUTION DU FLUX EPITHERMIQUE $1/E^{1+\alpha}$ ET LE CONCEPT DE $\bar{E}_r$ .....	60
1.1. Le besoin de la correction pour la distribution non $1/E$ .....	60
1.2. Introduction de la distribution $1/E^{1+\alpha}$ et l'énergie de résonance effective $\bar{E}_r$ .....	62
2. DETERMINATION DE F ET $\alpha$ POUR $k_0$ -NAA DANS UN CANAL D'IRRADIATION            DU	
REACTEUR ES SALAM .....	65
2.1. Méthode d'un multi moniteur couvert par du Cd .....	65
2.1.1. Principe .....	65
2.1.2. Expérience .....	67
2.1.3. Résultats et discussion.....	69

2.2.	Méthode rapport Cd d'un multi moniteur .....	70
2.2.1.	<i>Principe</i> .....	70
2.2.2.	<i>Expérience</i> .....	71
2.2.3.	<i>Résultats et discussion</i> .....	71
2.3.	La méthode d'un multi moniteur nu .....	73
2.3.1.	<i>Principe</i> .....	73
2.3.2.	<i>Expérience</i> .....	74
2.3.3.	<i>Analyses et discussion</i> .....	75
2.4.	Conclusion.....	76

## **CHAPITRE V. VALIDATION DE L'IMPLEMENTATION DE LA METHODE**

<b>K0-NAA PAR DES STANDARDS SRM.....</b>	<b>77</b>
1. INTRODUCTION.....	77
2. EXPERIENCE .....	77
2.1. Préparation des échantillons .....	77
2.2. Irradiation .....	77
2.3. Mesure et analyse des spectres .....	77
2.4. Calcul .....	78
3. RESULTATS ET DISCUSSION .....	79
4. CONCLUSION .....	81
<b>CONCLUSION.....</b>	<b>82</b>
<b>REFERENCES.....</b>	<b>83</b>
<b>ANNEXE .....</b>	<b>85</b>

## **Introduction**

L'analyse par activation neutronique est utilisée fréquemment pour la détermination des éléments majeurs, mineurs et de traces.

La comparaison de la méthode NAA avec les autres techniques analytiques [Jac et al., 2004, Abu et al., 2004]] AAS, ICPM/AES, CVAA/AFS etc., montre une grande sensibilité et sélectivité pour un grand nombre d'éléments. Nous citons quelques domaines d'application de la méthode NAA telles que, l'écologie, les sciences environnementales [Jer et al., 2003], la biologie [Fre et al., 2003, Abu et al., 1999], la biomédecine [Pan et al., 2001], la radiochimie [Lin et al., 2003, Men et al., 2000], la géologie [Hos et., 2003], les sciences des matériaux, la technologie nucléaire et la cosmologie, etc.

Plusieurs travaux ont fait l'objet de développement de la méthode NAA depuis sa création dans les années 60. En effet, grâce aux chercheurs qui se sont investis pour standardiser la méthode que celle-ci s'est distinguée pour sa manipulation. Certaines méthodes de standardisation (relative et  $k_0$ ) ont rendu la méthode NAA plus performante et la plus répandue dans les laboratoires au monde.

La méthode  $k_0$ -NAA a été développée par Frans De Corte [ F De Corte., 1987] et d'autres, son application nous permet d'analyser l'échantillon avec une incertitude d'environ 5%.

Cette technique est basée sur la co-irradiation de l'échantillon et le moniteur du flux neutronique, comme l'Or et l'utilisation d'un composé de constantes nucléaires appelé facteur  $k_0$ .



La méthode  $k_0$ -NAA a été rapportée pour être flexible pour les changements des conditions d'irradiation et de mesure et d'être plus simple que la technique relative en termes d'expériences, mais implique des formules et des calculs plus complexes et aussi à éliminer le besoin d'employer des standards multiéléments.

Cette méthode a été développée avec succès en utilisant la convention HøGDAHL. Son application est limitée aux sections efficaces ( $n$ , gamma), qui suivent la loi  $1/v$  dans la région de neutron d'énergie thermique (i.e., jusqu'à  $\sim 1.5$  eV). Dans cette convention, le spectre neutronique est divisé en deux parties, habituellement désigné sous le nom des neutrons thermiques et épithermiques, la division entre eux étant l'énergie de coupure de cadmium,  $E_{Cd} = 0.55$  eV.

En général, la technique  $k_0$ -NAA utilise les paramètres d'entrée tels que (1) le facteur forme  $\alpha$ , rapporté au flux des neutrons épithermiques, (2) le rapport  $f$  des flux de neutrons subcadmium à épithermique, (3) l'efficacité  $\varepsilon_p$  de détection du pic, (4) la donnée nucléaire  $Q_0$  (rapport intégral de résonance  $I_0$  à la section efficace des neutrons thermiques  $\sigma_0$ ) et les facteurs  $k_0$ .

Les deux premiers paramètres (1) et (2) dépendent du site d'irradiation, quand au troisième paramètre, il dépend des équipements de mesure. Ces paramètres doivent être déterminés pour des buts d'étalonnage et d'application.

Cependant, la connaissance du paramètre  $\alpha$  est essentielle pour la correction des intégrales de résonance ( $I_0$ ), i.e., pour la conversion des valeurs  $I_0$  aux valeurs  $I_0(\alpha)$  et enfin pour corriger le spectre réel de neutrons épithermiques.

Dans ce travail, nous avons donné beaucoup d'attention aux déterminations des deux facteurs  $f$  et  $\alpha$ , puisque ces deux paramètres varient d'un réacteur à un autre, aussi bien que dans de différents sites d'irradiation dans un réacteur donné.

Les moniteurs de flux tels que Au, Zr, Co et Zn sont utilisés dans ce travail pour l'évaluation de ces deux paramètres. Les méthodes que nous avons adoptées sont classées comme suivantes: rapport cadmium, couverture cadmium et les irradiations nues.

Il est important de noter que, la calibration du site de mesure (détecteur) est une étape essentielle pour effectuer l'acquisition des spectres, dans des conditions convenables. Ceci est établi selon la méthodologie appropriée [F De corte., 1994] pour la méthode  $k_0$ .

En effet, notre travail d'investigation est basé principalement et en premier lieu sur les méthodes et les concepts qui ont été mis en évidence depuis plus de 30 années de recherche. Ce manuscrit contient cinq chapitres, dans le premier, nous avons décrits quelques principes fondamentaux concernant l'analyse par activation neutronique, précisément les réactions

(n,γ). Les différentes méthodes de standardisation issues de NAA ont aussi pris part dans ce chapitre.

L'instrumentation utilisée dans ce travail est montrée dans le second chapitre, ensuite nous avons passé à l'implémentation de la méthode basée sur la standardisation  $k_0$ . En effet, dans le troisième chapitre, nous avons commencé nos expériences par la calibration du détecteur Ge(HP) selon une méthodologie bien déterminée. La partie la plus importante est traité dans le quatrième chapitre, dont laquelle, nous avons déterminé expérimentalement les paramètres  $f$  et  $\alpha$  en utilisant plusieurs méthodes. Nous avons montré également le besoin d'introduire le paramètre  $\alpha$  et son impact sur la qualité des résultats.

En dernier, nous avons consacré le cinquième chapitre pour la validation de la méthode que nous avons développé au niveau du réacteur Es-Salam. Ceci est effectué en analysant des standards référence par la méthode  $k_0$ -NAA.

## CHAPITRE I : PRINCIPES FONDAMENTAUX

### 1. Description du taux de réaction (n,γ)

#### 1.1. Formule générale

Pour un nucléide irradié dans un réacteur neutronique, le taux de réaction (n,γ) par noyau (en  $s^{-1}$ ) est donné par :

$$R = \int_0^{\infty} S(v) j'(v) dv = \int_0^{\infty} S(E) j'(E) dE \quad (I.1-1)$$

avec  $\sigma(v)$  = section efficace (n,γ) (en  $cm^2$  ; 1 barn (b) =  $10^{-24} cm^2$ ) à la vitesse du neutron  $v$  (en  $cm s^{-1}$ );

$\sigma(E)$  = section efficace (n,γ) (en  $cm^2$ ) à l'énergie  $E$  du neutron (en eV);

$\phi'(v)$  = flux des neutrons par unité d'intervalle (en  $cm^{-3}$ ) à la vitesse  $v$  du neutron;

=  $n'(v) v$ , avec  $n'(v)$  densité neutronique par unité d'intervalle (en  $cm^{-4} s$ ) à la vitesse  $v$  du neutron;

$\phi'(E)$  = flux des neutrons par unité d'intervalle (en  $cm^{-2} s^{-1} eV^{-1}$ ) à l'énergie  $E$  du neutron;

Dans l'Eq. (I.1-1),  $\sigma(v) = \sigma(E)$  avec  $E$  (en erg =  $6.2415 \cdot 10^{11} eV$ ) =  $\frac{1}{2} m_n v^2$

[ $m_n$ : excès de masse du neutron =  $1.6749 \cdot 10^{-24}$  g ].

Donc, par définition  $\varphi'(v) dv = \varphi'(E) dE$  (les deux en  $\text{cm}^{-2} \text{s}^{-1}$ ).

## 1.2. Les fonctions section efficace ( $n,\gamma$ ) et flux neutronique

Les fonctions dans l'Eq. (I.1-1) sont complexes et dépendent de la réaction ( $n,\gamma$ ) et du site d'irradiation, respectivement. Heureusement, l'introduction de certaines caractéristiques qui sont généralement valides, rapporte la possibilité d'éviter l'intégration et d'écrire exactement le taux de réaction d'une façon relativement simple par les supposés formalismes ou conventions.

Ces caractéristiques sont:

- La section efficace  $\sigma(v)$  en fonction de  $v$  est interprétée comme une dépendance  $\sigma(v) \sim 1/v$ , ou  $\sigma(E)$  en fonction de  $E$  comme la dépendance  $\sigma(E) \sim 1/E^{1/2}$ .
- ( $\log \sigma(E)$  en fonction de  $\log E$  est linéaire avec une pente  $-1/2$ ), dont plusieurs résonances sont superposées (Fig. I.1-1).
- Les résonances et la queue  $1/v$ , sont décrites par l'équation de Breit-Wigner [De Corte, 1987].

Seulement quelques réactions ( $n,\gamma$ ) d'intérêt dans NAA montrent une déviation significative de la dépendance  $1/v$  dans la région d'énergie inférieure à 1,5 eV (due à la basse résonance). Pour la description du taux de réaction, quelques conventions basées sur la transformation de l'Eq. (I.1-1). Les déviations qui dépendent de la température  $T_n$ , sont comptées à travers l'introduction du facteur  $g(T_n)$  de Westcott ( $\neq 1$  dans ces cas).

- Distribution du flux neutronique, c à d.  $j'(E)$  en fonction de  $E$ , peut être divisée [De Corte, 1987 et Jac, 2003] en trois composants (Fig. I.1-2) :

1. Spectre des neutrons rapides ou de fission, montre un maximum à l'énergie  $\sim 0.7$  MeV du neutron, l'énergie la plus probable, est fréquemment décrite par la représentation semi empirique de Watt. Puisque  $\sigma(v)$  devient très petite dans la région de MeV, la contribution du taux de réaction ( $n,\gamma$ ) induite par les neutrons rapides peut être négligée, aussi puisque pour

les conditions pratiques d'irradiation dans NAA, la composante du flux rapide dans la plupart des cas est relativement petite donc elle n'est pas dominante.

2. Un spectre de neutrons de faible énergie, se conduit à l'équilibre thermique avec l'environnement (modérateur) après ralentissement ou modération. Ce spectre peut être décrit par la distribution de Maxwell – Boltzmann. Dans la représentation  $j'(E)$  en fonction de E ou  $n'(v)$  en fonction de v, le maximum de la courbe (c. à. D l'énergie ou la vitesse la plus probable) est situé à  $E(T_n) = kT_n$  ou  $v(T_n) = [2E(T_n)/m_n]^{1/2} = [2kT_n/m_n]^{1/2}$ , respectivement.

(k constante de Boltzmann =  $1.3080 \cdot 10^{-16}$  erg K<sup>-1</sup>;  $T_n$  = température neutronique, en K).

Dans les conditions standards :

$T_0 = 297.59$  K,  $E_0 = 0.0253$  eV,  $v_0 = 2.200 \cdot 10^5$  cm s<sup>-1</sup> = 2200 m s<sup>-1</sup>;

la valeur  $S(v_0) = S_0$  réfère la section efficace à 2200 m s<sup>-1</sup>;

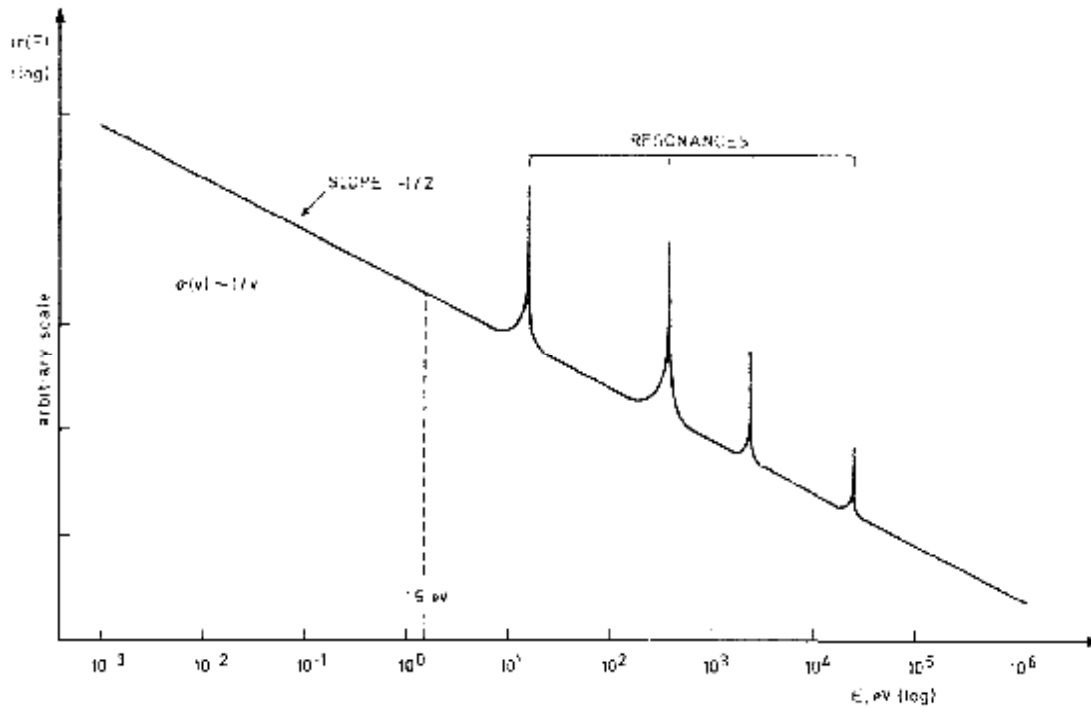


Figure I.1-1: Représentation schématique de la fonction section efficace (n,γ) en fonction de E

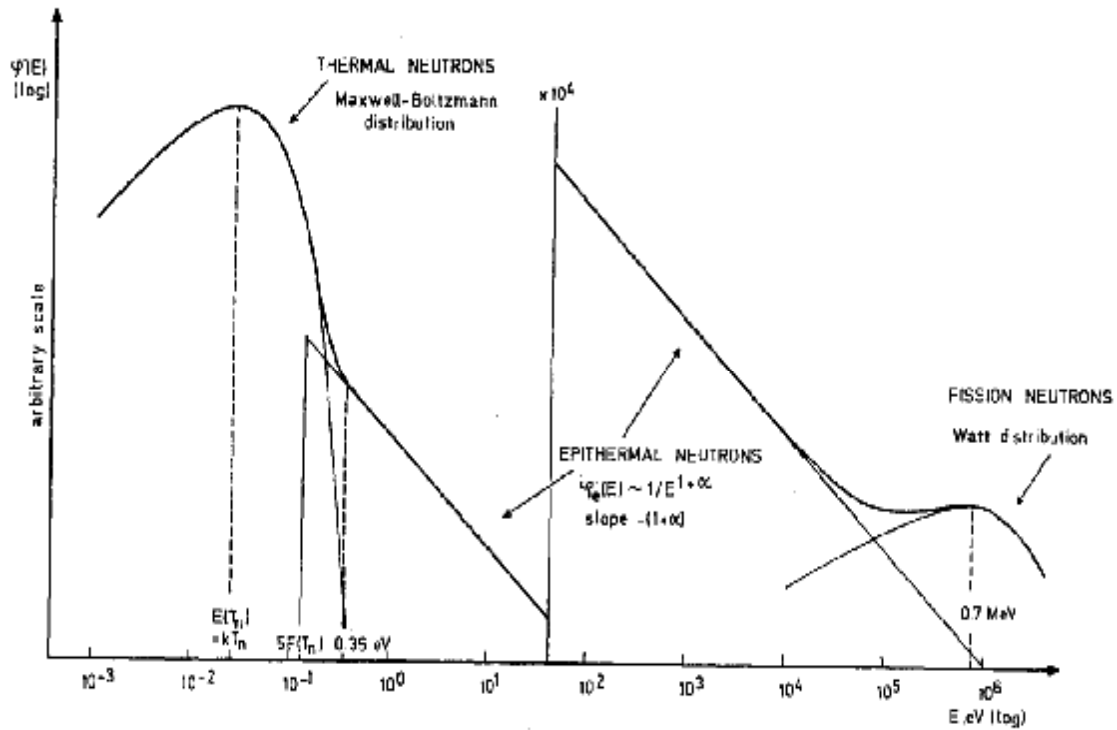


Figure I.1.2 : Représentation schématique de la distribution du flux neutronique  $j'(E)$  en fonction de  $E$

3. Le spectre des neutrons épithermiques indexé par  $e$  (intermédiaire, modulation, ralentissement) peut être décrit par la dépendance  $j'_e(E) \sim 1/E$ .

Dans les sites d'irradiation, le spectre peut être remplacé par la dépendance  $j'_e(E) \sim 1/E^{1+\alpha}$ , avec  $\alpha$  ( $f$  ou  $p$ ) étant une première approximation indépendante de l'énergie du neutron. Pour cela, on peut assumer un arrêt pointu du flux épithermique à  $5E(T_n)$ .

Les valeurs positives et négatives de  $\alpha$  correspondent [Dia et al., 1997] à l'appauvrissement et le renforcement du spectre épithermique, par rapport à l'idéal ( $\alpha = 0$ ), ceci est illustré dans la figure I.1.3.

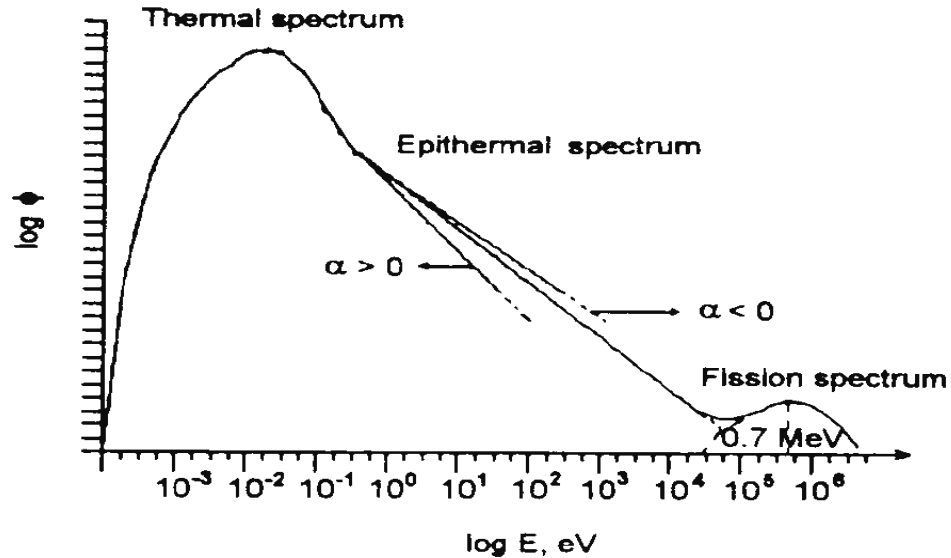


Figure I.1.3 : Nonid aliti  du spectre  pithermique

En raison des consid rations relatives   l'energie effective de coupure du Cd, il est important de remarquer que le flux Maxwellien de neutron n'affecte pratiquement pas le flux  pithermique au-dessus de l'energie  $\sim 0,35$  eV. En pratique, ceci pourrait se produire pour le spectre maxwellien chaud (haute  $T_n$ ), mais la perturbation est emp ch e car pour les conditions pratiques de NAA, le degr  de thermalisation est faible (rapport de flux thermique    pithermique faible).

### 1.3. La convention de H gdahl

#### 1.3.1. Le choix de la convention

Parmi les conventions g n ralement adopt es, ceux du Westcott et du Stoughton et du Halperin [De Corte, 1994] sont les plus appliqu es, puisqu'elles tiennent compte de la d viation possible de la d pendance  $\sigma(v) \sim 1/v$  dans la r gion de basse  nergie. Ceci implique la connaissance des facteurs du Westcott  $g(T_n)$  et par cons quent une surveillance de temp rature neutronique est exig e. Puisque,  $g(T_n) = 1$  (ind pendant de la temp rature de neutron) pour la grande majoriti  des r actions  $(n, \gamma)$  d'int r t analytique. Par cons quent, La convention la plus simple de H gdahl est adopt e pour la plupart des r actions  $(n, \gamma)$ ,

seulement  $^{152}\text{Eu}$  et  $^{176}\text{Lu}$ , qui violent sérieusement la dépendance  $1/v$ , elles sont alors exclues d'être traité.

### 1.3.2. Energie effective de coupure du cadmium

Avant d'évoquer la convention de hØgdahl, il est nécessaire de considérer le concept de l'énergie effective de coupure du Cd. En irradiant un nucléide sous Cd, le taux de réaction  $(n,\gamma)$  est rigoureusement réduit dans la région de basse énergie, car les neutrons sont largement absorbés par le Cd due à sa très grande section efficace  $(n,\gamma)$  et plus précisément causé par la résonance du  $^{113}\text{Cd}$   $(n,\gamma)$  à 0,178 eV [voir Fig. I.1.4a]. La fonction  $T(E)$  de la transmission du cadmium de 1 mm d'épaisseur est montrée dans la Fig.I.1.4b et elle est calculée comme :

$$T(E) = e^{-S_{tot,Cd}(E) d N_A l_0 / M} \quad (\text{I.1-2})$$

avec  $\delta$  = densité du Cd = 8.642 g cm<sup>-3</sup>,

$N_A$  = nombre d'Avogadro = 6.0221.10<sup>23</sup> mol<sup>-1</sup>,

$l_0$  = épaisseur du Cd = 0.1 cm,

$M$  = masse molaire du Cd = 112.41 g mol<sup>-1</sup>

$S_{tot,Cd}(E)$  = fonction de la section efficace ( Fig. I.1-3a), en cm<sup>2</sup>,

ou  $T(E) \cong 0$  pour  $E < 0.2$  eV et  $T(E) \cong 1$  pour  $E > 2$  eV.

Quelques simplifications ont été faites pour obtenir la courbe  $T(E)$  de Fig. I.1-4b, par exemple:

- Les effets de géométrie causés par l'échantillon et le Cd ont été négligés ;
- Un faisceau de neutrons considéré monodirectionnel, frappe la feuille de Cd de 1mm d'épaisseur dans une direction normale à sa surface.

Il est possible de considéré une transmission réelle de fonction  $t(E)$  [voir Fig. I.1-4b], situé à l'énergie effective de coupure  $E_{Cd}$  [c a d  $t(E) = 0$  à  $E < E_{Cd}$  et  $t(E) = 1$  à  $E > E_{Cd}$ ], de sorte que le taux de réaction épicaadmium  $R_e$  peut être écrit sous la forme:

$$\begin{aligned}
 R_e &= \int_0^{\infty} S(E) j'(E) T(E) dE \\
 &= \int_0^{\infty} S(E) j'(E) t(E) dE \\
 &= \int_{E_{Cd}}^{\infty} S(E) j'(E) dE
 \end{aligned}
 \tag{I.1-3}$$

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

1. Le nucléide ayant la dépendance  $\sigma(v) \sim 1/v$  supérieure à 1.5 eV [ou  $T(E)$  s'approche de l'unité, voir Fig. I.1-3b]. Les petites déviations ne font pas différer  $E$  de manière significative de 0,55 eV; par exemple,  $^{197}\text{Au} (n,\gamma)$ , avec  $g(293.59 \text{ K}) = 1.005$ ,  $E_{Cd} = 0.56$  eV. Les réactions  $^{151}\text{Eu} (n,\gamma)$  et  $^{176}\text{Lu} (n,\gamma)$  ne remplissent pas cette condition.
2. Le flux neutronique devrait être homogène et isotropique, avec la distribution du flux épithermique suivant la loi  $1/E$  inférieur à  $\sim 0.35$  eV [ou  $T(E)$  s'approche de zéro] ; (voir Fig. I.1-4b).

La perturbation épithermique par le flux neutronique Maxwellien au-dessus de 0.35 eV doit être arrêté, particulièrement en cas de  $T_n$  élevée ou d'une grande thermalisation. Cependant, il apparaît qu'à  $T_0 = 293.59$  K ( $E_0 = 0.0253$  eV), la valeur  $E_{Cd}$  ramené est 0,546 eV ne change pas avec le rapport de flux thermique et épithermique (jusqu'à  $\phi_s / \phi_e = 50$  ; voir I.1.3.3 pour des définitions) ; aussi, pour  $\phi_s / \phi_e = 10$ ,  $E_{Cd}$  montre seulement une petite diminution de 0,546 eV à  $T_0 = 293.59$  K, à 0.534 eV à  $T_n = 580.22$  K. En plus de ceci, il devrait réaliser que l'état de haute  $T_n$  et la thermalisation élevée (haut  $\phi_s / \phi_e$ ) sont contradictoires.

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



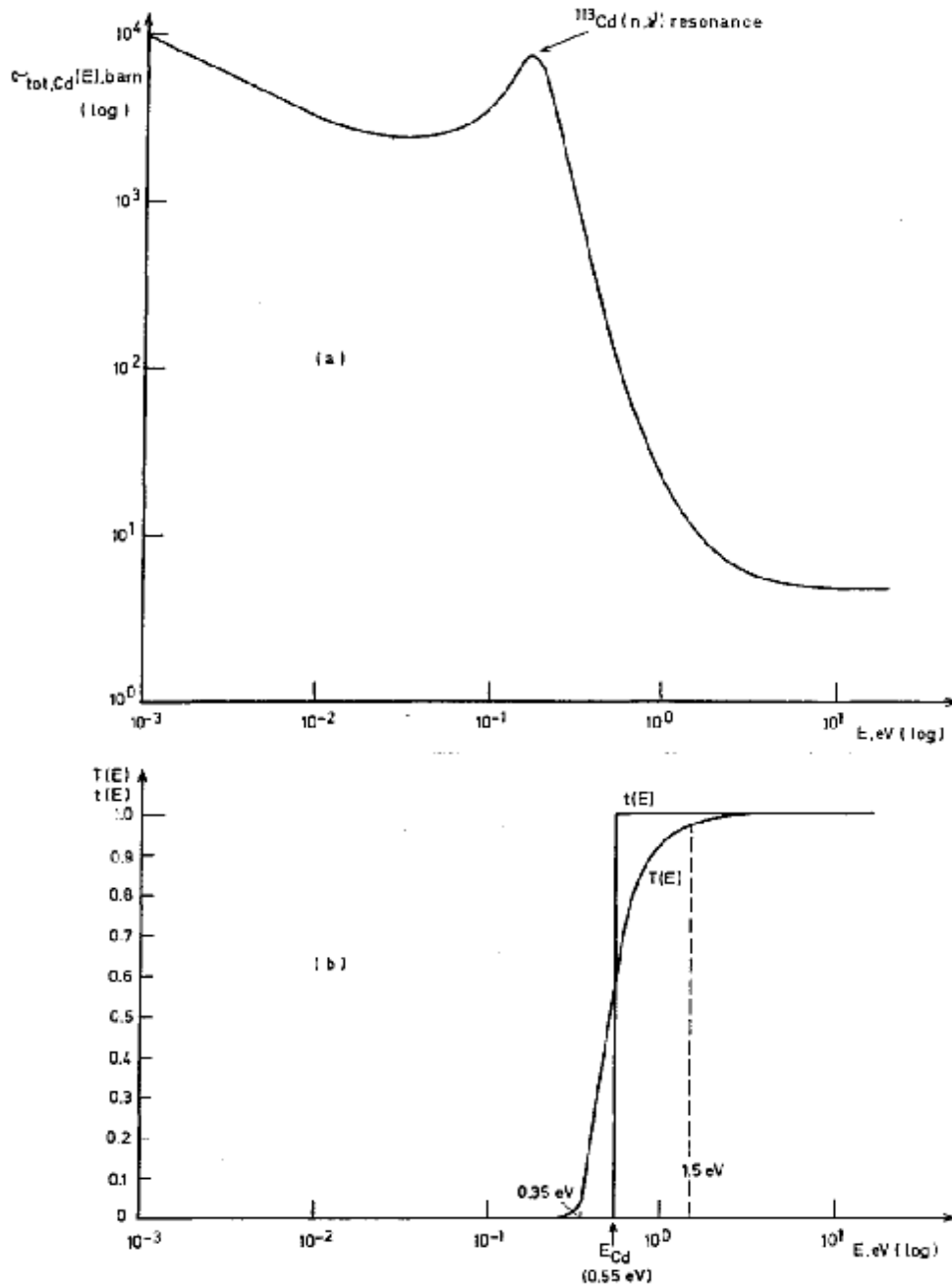


Figure I.1-4 : (a) Courbe de la section efficace totale du Cd,  $\sigma_{tot,Cd}(E)$  en fonction de E  
 (b) fonctions T(E) et t(E) de transmission Cd réelles et idéalisées de neutrons, en fonction de E

### 1.3.3. Les taux de réaction et le rapport cadmium

Selon la convention de HØgdahl, l'Eq. (I-1-1) avec l'introduction du concept  $E_{Cd}$  est utilisée en :

$$R = \int_0^{v_{Cd}} \sigma(v) j'(v) dv + \int_{E_{Cd}}^{\infty} \sigma(E) j'(E) dE \quad (I.1-4)$$

avec  $v_{Cd} = (2 E_{Cd}/m_n)^{1/2}$ . A partir de  $\sigma(v) \sim 1/v$  jusqu'à  $v_{Cd}$  (en fait, jusqu'à  $\sim 1.5$  eV), on peut écrire dans le coté gauche de l'intégrale  $\sigma(v) = \sigma_0 v_0/v$ , ou l'ensemble  $v_0$  et  $\sigma_0$  est arbitrairement choisi.

Puisqu'on peut supposer  $j'(E) \sim 1/E^{1+a}$  non perturbé [ou  $j'(E) \sim 1/E$ , si  $\alpha = 0$ ] le spectre épithermique au-dessous de  $E_{Cd}$  (en fait, au-dessous  $\sim 0.35$  eV), on peut écrire :

Pour un spectre 1/E

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

Pour un spectre 1/E<sup>1+α</sup>

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

avec 1 eV = énergie de référence choisi arbitrairement.

Par définition le flux des neutrons épithermiques ( $\text{cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ ) comme  $j_e = j'_e(1 \text{ eV}) \cdot 1 \text{ eV}$ , nous obtenons :

$$j'_e(E) = f_e / E \quad (I.1-5a)$$

$f_e$  s'appelle souvent (vraie) flux des neutrons épithermiques par unité d'intervalle  $\ln E$ , puisque l'intégration sur l'Eq. (I.1-5a) rapporte

$$f_e = \left[ \int_{E_l}^{E_h} j'_e(E) dE \right] / [\ln(E_h / E_l)]$$

avec

$E_h$  et  $E_l$  la borne supérieure et inférieure du spectre épithermique.

$$j'_e(E) = f_e \cdot 1 \text{ eV} / E^{1+a} \quad (I.1-5b)$$

Ici,  $f_e$  est le vraie flux épithermique par unité d'intervalle  $(-E^{-a}/a) \cdot 1 \text{ eV}^a$ , cependant l'intégration sur l'Eq. (I.1-5b) rapporte

$$f_e = \left[ \int_{E_l}^{E_h} j'_e(E) dE \right] / 1 \text{ eV}^a \left[ -E^{-a} / a \right]$$

$E_h$  et  $E_l$  la borne supérieure et inférieure du spectre épithermique.

Rappelant que  $j'(v) = n'(v)v$ , l'Eq. (I.1-4) peut être transformée comme :

$$\begin{aligned}
R &= S_0 v_0 \int_0^{v_{Cd}} n'(v) dv + f_e \int_{E_{Cd}}^{\infty} S(E) dE / E \\
&= S_0 v_0 n_s + f_e I_0 \\
&= f_e S_0 + f_e I_0
\end{aligned}
\quad (I.1-6a)$$

$$\begin{aligned}
R &= S_0 v_0 \int_0^{v_{Cd}} n'(v) dv + f_e 1 e V^a \int_{E_{Cd}}^{\infty} S(E) dE / E^{1+a} \\
&= S_0 v_0 n_s + f_e I_0(a) \\
&= f_e S_0 + f_e I_0(a)
\end{aligned}
\quad (I.1-6b)$$

avec

$$I_0 = \int_{E_{Cd}}^{\infty} S(E) dE / E \quad (I.1-7a)$$

= intégrale de résonance pour le spectre  
1/E (cm<sup>2</sup>)

$$I_0(a) = 1 e V^a \int_{E_{Cd}}^{\infty} S(E) dE / E^{1+a} \quad (I.1-7b)$$

= l'intégrale de résonance pour un spectre  
1/E<sup>1+α</sup> (cm<sup>2</sup>)

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

$f_s = v_0 n_s = \text{flux neutronique (thermique) subcadmium conventionnel (cm}^{-2}\text{s}^{-1}\text{)}$ .

La relation entre  $I_0$  et  $I_0(\alpha)$ , et la nécessité d'introduction de  $\bar{E}_r$ , seront traitées dans (V.1.2.)

Notant que la détermination expérimentale directe du taux de réaction épiscadmium  $R_e$  est possible en irradiant le nucléide sous couverture de cadmium dans les conditions standards mentionnés ci-dessus.  $R_e$  est simplement décrit par :

$$\begin{aligned}
R_e &= f_e I_0(a) \\
\text{où} \\
R_e &= f_e I_0
\end{aligned}
\quad (I.1-8)$$

Le taux de réaction subcadmium  $R_s$  est donc la différence entre les valeurs  $R$  et  $R_e$  déterminées expérimentalement.  $R_s$  est décrit par :

$$R_s = f_s S_0 \quad (I.1-9)$$

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

$$R_{Cd} = \frac{R}{R_e} = \frac{f_s s_0 + f_e I_0(a)}{f_e I_0(a)} = [f/Q_0(a)] + 1 \quad (\text{I.1-10})$$

ou

$$R_{Cd} = \frac{R}{R_e} = \frac{f_s s_0 + f_e I_0}{f_e I_0} = [f/Q_0] + 1 \quad (\text{I.1-11})$$

avec  $f = f_s / f_e =$  rapport de flux subcadium thermique à épithermique;

$$\left. \begin{aligned} Q_0(a) &= I_0(a) / s_0 \\ Q_0 &= I_0 / s_0 \end{aligned} \right| = \text{rapport de l'intégrale de résonance et section efficace à } 2200 \text{ m s}^{-1}.$$

Il est clair que R et  $R_e$  du nucléide mesuré ne peuvent pas être irradiés simultanément en irradiant le nucléide nu et couvert de Cd, puisque le Cd cause des dépressions significatives de flux dans sa proximité [TRS, 1970].

#### 1.3.4. Mécanisme de la convention

Avant de donner un aperçu sur ce mécanisme, il est intéressant de remarquer que  $f_s$  est lié à la somme de neutrons maxwelliens jusqu' à  $E_{cd}$  et de neutrons épithermiques au-dessous de  $E_{cd}$ .

Cependant, pour le résonnement ci-dessus, en plus et si toutes les conditions sont réunies, ceci apparaît être approprié [voir les Eqs. I.1-6a et I.1-6b]. Plus particulièrement, il devrait être noter que la connaissance de la distribution du flux Maxwellien, spécialement la température  $T_n$  du neutron, et la jonction du spectre Maxwellien – épithermique n'est pas exigé.

Le mécanisme de la convention de Høgdahl est comme suivant :

1. D'abord, nous trouvons les valeurs  $\sigma_0$  et  $I_0$  (pour une norme finale de la section efficace) par des méthodes indépendantes de l'activation neutronique. La norme la plus commune est  $^{197}\text{Au} (n,\gamma) ^{198}\text{Au}$ , avec les données recommandées [Jacimonic, 2003] suivantes :

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

2. Ensuite, par la mesure de  $R_{Au}$  et  $R_{e,Au}$ , on peut déterminer  $\phi_s$ ,  $\phi_e$  et  $f$ , pour chaque site d'irradiation, des Eqs. (I.1-8), (I.1-9) et (I.1-10), respectivement, à condition que  $I_{0,Au}$  soit converti en  $I_{0,Au}(\alpha)$ .

3. Appliquant les mêmes équations, on peut finalement déterminer  $\sigma_0$ ,  $I_0$  et  $Q_0$  de la mesure de  $R$  et  $R_e$  pour les autres réactions (n, $\gamma$ ) après avoir converti  $I_0(\alpha)$  en  $I_0$ .

Les données évaluées de  $\sigma_0$  et  $I_0$ , provenant la plupart du temps de telles déterminations, peuvent être trouvées en plusieurs compilations [De Corte et al., 1989, De Corte et al., 2001] (voir IV.1.3).

### 1.3.5. Facteurs de correction de self shielding du neutron et la transmission Cd

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

- $G_{th} (\leq 1)$ , calcul de self shielding du neutron thermique qui dépend de la densité de nucléon (nombre de nucléide /cm<sup>3</sup> \* l'épaisseur ciblée, cm) et de  $\sigma_0$ .  $G_{th}$  doit être multiplié par  $\phi_s \sigma_0$  pour le calcul de  $G_{th}$ , voir I.2.4.
- $G_e (\leq 1)$ , calcul de self shielding du neutron épithermique qui dépend de la densité de nucléon et des paramètres de résonance.  $G_e$  doit être multiplié par  $\phi_e I_0(\alpha)$  (ou  $\phi_e I_0$ ). pour le calcul de  $G_e$ , voir I.2.4.
- $F_{Cd}$ , facteur de transmission Cd des neutrons épithermiques est égale à l'unité, pour la plupart des nucléides; pour certains est  $< 1$  et exceptionnellement il peut être  $> 1$ .
- $F_{Cd}$  doit être multiplié par  $\phi_e I_0(\alpha)$  (ou  $\phi_e I_0$ ), mais seulement dans le cas d'irradiation sous cadmium.

En raison de ce qui précède, les Eqs (I.1-6b), (I.1-8), (I.1-9) et (I.1-10) doivent être réécrit comme suit :

$$R = G_{th} f_s S_0 + G_e f_e I_0(a) \quad (I.1-12)$$

$$R_e = G_e F_{Cd} f_e I_0(a) \quad (I.1-13)$$

$$R_s = G_{th} f_s S_0 \quad (\text{seulement si } F_{Cd} = 1) \quad (I.1-14)$$

$$F_{Cd} R_{Cd} = [G_{th} f / G_e Q(a)] + 1 \quad (I.1-15)$$

et similairement pour  $\alpha = 0$ .

## 2. L'Equation d'activation

### 2.1. Formation directe de radionucléide mesuré sans burn-up

La combinaison de l'activation ( $n,\gamma$ ) du réacteur avec la spectrométrie gamma est en utilisant le détecteur de Ge, la relation entre le taux de réaction et le nombre de coups ( $N_p$ ) appelé pic plein d'énergie est comme suit :

$$R = \frac{N_p / t_m}{N_A q e_p g / M} \quad (\text{I.2-1})$$

ou

$$R_e = \left( \frac{N_p / t_m}{SDCW} \right)_{Cd} \quad (\text{I.2-2})$$

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

Dans les Eqs. (I.2-1) et (I.2-2) :

$N_p$  = nombre de coups dans le pic plein, corrigé par la perte d'impulsions

(temps mort, aléatoire et les vraies coïncidences);

$t_m$  = temps de mesure (s);

$S$  = facteur de saturation =  $1 - e^{-I t_{irr}}$ ;  $I$  = constante de décroissance =  $(\ln 2) / T$ ;

avec  $T$  = demi vie;  $t_{irr}$  = temps d'irradiation (même unité que  $T$ );

$D$  = facteur de décroissance =  $e^{-I t_d}$ ;  $t_d$  = temps de décroissance (même unité que  $T$ );

$C$  = facteur de mesure =  $(1 - e^{-I t_m}) / I t_m$  (avec  $t_m$  la même unité que  $T$ );

$w$  = masse de l'élément irradié (g);

$q$  = abondance isotopique (fraction);

$e_p$  = l'efficacité de détection du pic plein, incluant la correction pour l'atténuation gamma;

$g$  = intensité absolue gamma (probabilité d'émission gamma).

Dans le présent travail

$$A_{sp} = \frac{N_p / t_m}{SDC_W} \quad (I.2-3)$$

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

La combinaison de l'Eq. (I.2-3) avec les Eqs. (I.1-12) et (I.2-1), ou avec (I.1-13) et (I.2-2) donc l'équation d'activation est donnée par (dans les conditions stables  $f_s, f_e$  et  $a$  durant  $t_{irr}$ ) :

$$A_{sp} = \frac{N_A q g}{M} [G_{th} f_s s_0 + G_e f_e I_0(a)] e_p \quad (I.2-4)$$

où

$$(A_{sp})_{Cd} = \frac{N_A q g}{M} G_e F_{Cd} f_e I_0(a) e_p \quad (I.2-5)$$

Si dans les Eqs (I.2-4) et (I.2-5) la même valeur est impliquée, on a :

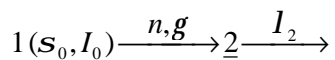
$$A_{sp} - (A_{sp})_{Cd} / F_{Cd} = \frac{N_A q g}{M} G_{th} f_s s_0 e_p \quad (I.2-6)$$

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

$$R_{Cd} = \frac{A_{sp}}{(A_{sp})_{Cd}} \quad (I.2-7)$$

## 2.2. Branchement d'activation et la désintégration mère fille

Les Eqs (I.2-1) à (I.2-7) réfère au schéma suivant :



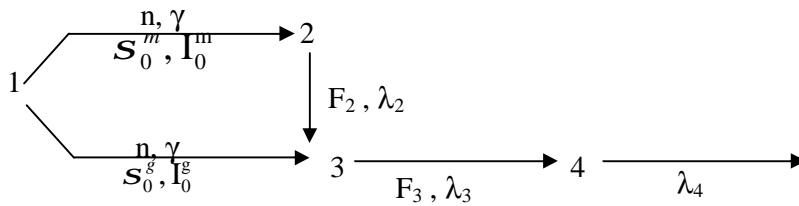
Où le radionucléide mesuré (souligné) est directement formé par  $(n, \gamma)$ .

Suivant cette notation  $A_{sp,2}$  devrait être écrit comme :

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

et  $\gamma$  peut être dénoter comme  $\gamma_2$  dans les Eqs (I.2-4) – (I.2-6).

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



Ou  $F_2$  et  $F_3$  la décroissance fractionnelle du nucléide 2 à 3 et le nucléide 3 à 4, respectivement.

En général, la définition de  $A_{sp,4}$  est plus complexe dans ces cas, et les Eqs (I.2-4) – (I.2-6) contiennent les paramètres  $S_0^m, I_0^m(a), S_0^g, I_0^g(a), I_2, I_3, I_4, F_2, F_3$ , et  $g_4$ .

Puisque dans ces cas, les termes des expressions appropriées pour  $A_{sp}$  comme une fonction des données nucléaires et des conditions expérimentales [Eqs (I.2-4) et (I.2-5)] sont strictement liées à la définition et utilise les facteurs  $k_0$ , un traitement plus détaillé est donné dans I.3.4.2.

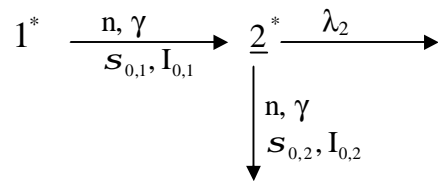
### 2.3. Les effets Burn-up

Dans ce travail, le burn-up est défini comme une disparition significative – par la réaction (n,  $\gamma$ ) - de la cible et / ou du noyaux formé, de sorte que  $A_{sp}$  ne peut pas être décrit par Eq. (I.2-3).



### 2.3.1. Burn-up de la cible et – ou du noyaux formé directement

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



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

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

avec

$$F_{burn} = \frac{I_2 e^{- (fs_1) t_{irr}} [1 - e^{- [(fs_1) - (js_2) - I_2] t_{irr}}]}{[(fs_2) + I_2 - (fs_1)] [1 - e^{- I_2 t_{irr}}]} \quad (I.2 - 8)$$

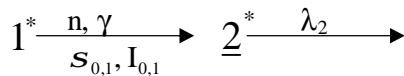
et

$$(fs) = G_{th} f_s s_0 + G_e f_e I_0 (a)$$

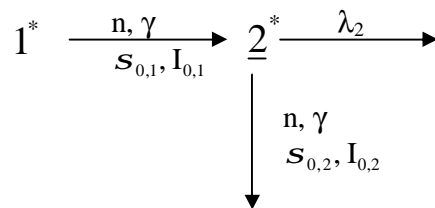
De l'Eq. (I.2-8) il est claire que le burn-up devient plus grand pour l'augmentation de  $(fs)$ ,  $I$  et  $t_{irr}$ . Si  $(fs)$  et /ou  $t_{irr}$ ,  $F_{burn} \approx 1$ .

Les équations appropriées du burn-up sont obtenues en posant  $(fs)=0$  ou  $(fs_1)=0$ , respectivement.

du nucléide cible, i.e.



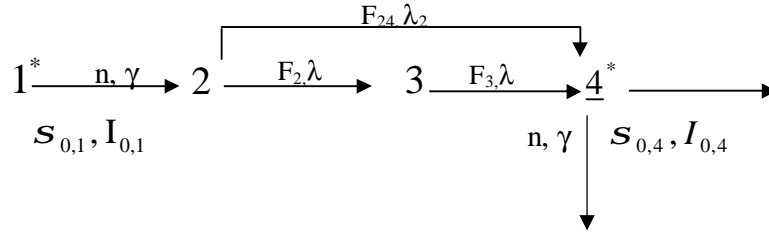
ou du nucléide formé directement, i.e.





### 2.3.3. Burn-up du nucléide grand-mère

Pour le cas :



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

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

avec

$$\begin{aligned} (SDC)_{burn} = & \frac{I_4}{I_4 - I_2} \left( \frac{I_3}{I_3 - I_2} + \frac{F_{24}}{F_2 F_3} \right) S_2 D_2 C_2 \\ & - \frac{I_2 I_4}{(I_3 - I_2)(I_4 - I_3)} S_3 D_3 C_3 \\ & - \frac{(\wedge_4 - I_2) I_4}{(\wedge_4 - I_2)(I_4 - I_2)} \left( \frac{I_3}{I_3 - I_2} + \frac{F_{24}}{F_2 F_3} \right) S_2 D_4 C_4 \\ & + \frac{I_2 I_4 (\wedge_4 - I_4)}{(I_3 - I_2)(I_4 - I_3)(\wedge_4 - I_3)} S_3 D_4 C_4 \\ & + \frac{I_2 I_4}{\wedge_4 (\wedge_4 - I_2)} \left( \frac{I_3}{\wedge_4 - I_3} + \frac{F_{24}}{F_2 F_3} \right) \Sigma_4 D_4 C_4 \end{aligned} \quad (I.2-10)$$

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

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

avec

$$\begin{aligned} (SDC) = & S_2 D_2 C_2 \frac{I_4}{I_4 - I_2} \left( \frac{I_3}{I_3 - I_2} + \frac{F_{24}}{F_2 F_3} \right) \\ & - S_3 D_3 C_3 \frac{I_2 I_4}{(I_3 - I_2)(I_4 - I_3)} \\ & + S_4 D_4 C_4 \frac{I_2}{I_4 - I_2} \left( \frac{I_3}{I_4 - I_3} + \frac{F_{24}}{F_2 F_3} \right) \end{aligned} \quad [\text{Voir tableau I.3-1}]$$

Le facteur  $F_{burn}$  (légèrement selon  $t_d$  et  $t_m$ ) peut être défini comme :

$$F_{burn} = (SDC)_{burn} / (SDC)$$

## 2.4. Calcul des facteurs de self shielding des neutrons

Comme s'est décrit dans I.1.3.5, les facteurs ( $G_{th}$  et  $G_e$ ) self shielding des neutrons thermiques et épithermiques sont définis comme des termes de correction multipliés par  $f_s S_0$  et  $f_e I_0(\mathbf{a})$ , respectivement, afin d'obtenir les taux de réaction observés pour les échantillons réels [voir Eq. (I.1-12)]. Historiquement, ceci a été interprété en termes de flux thermique moyen  $[\bar{f}_s = G_{th} f_s]$  à l'intérieur d'un échantillon ou en termes d'intégrale de résonance effective  $[I_{eff}(\mathbf{a}) = G_e I_0(\mathbf{a})]$  d'un matériel qui n'est pas infiniment dilué.

La meilleure manière de résoudre le problème de self shielding est en l'évitant, par exemple en employant des fils ou les feuilles minces, en diluant les poudres fines avec les matériaux inertes (c.-à-d. faible section efficace d'absorption), or en dissolvant les substances chimiques dans les dissolvants inertes suivis de micropipette et de sécher des taches sur le porteur inerte. Cependant, on devrait pouvoir juger si le self shielding est négligeable, mais si l'échantillon occupe une grand volume donc la correction est inévitable dans ce cas. Pour cela il est nécessaire de disposer des formules appropriées pour le calcul de ces paramètres  $G_{th}$  et de  $G_e$ .

Basé sur le travail de F De Corte et d'autres,  $G_{th}$  une distribution du flux neutronique Maxwellien homogène et isotropique peut être calculé dans un cas d'échantillons de forme simple.

• Pour une sphère :

$$G_{th, \text{sphère}} = 1 - \frac{9}{8}x \quad (\text{si } x \leq 0.003) \quad (\text{I.2-11})$$

$$G_{th, \text{sphère}} = \frac{3}{4y^3} \left[ y^2 - \frac{1}{2} + \left( \frac{1}{2} + y \right) e^{-2y} \right] \quad (\text{si } x > 0.003) \quad (\text{I.2-12})$$

$$\text{avec } y = \frac{3}{2}x$$

$$x = \frac{2V}{S} \sum_i N_i \bar{s}_{abs,i}$$

$V$  = volume de l'échantillon ( $= \frac{4}{3}\pi r^3$ ;  $\text{cm}^3$ ) ;  $r$  = rayon de la sphère (cm) ;  $S$  = surface de l'échantillon ( $= 4\pi r^2$ ;  $\text{cm}^2$ );  $2V/S = \frac{2}{3}r$  ;  $N_i$  = densité atomique de l'élément  $i$  ( $\text{cm}^{-3}$ ) ;

$$\bar{s}_{abs} = \frac{s_{abs}}{2} \sqrt{\frac{293.59p}{T_n}} \quad (\text{cm}^2) \quad [\text{section efficace d'absorption moyenne}];$$

$s_{abs}$  = section efficace d'absorption de l'élément ( $\text{cm}^2$ ) à  $2200 \text{ m s}^{-1}$ .

- une feuille infinie:

$$G_{th,foil} = \frac{1}{2x} \left( 1 - e^{-x} + x e^{-x} - x^2 \int_x^\infty \frac{e^{-u}}{u} du \right) \quad (\text{I.2-13})$$

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

et

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

$C =$  constante d'Euler  $= 0.577215\dots$

$P = 5$  si  $\xi < 0.1$   
 $P = 10$  si  $0.1 < \xi < 1$   
 $P = (\text{int } 5 \xi) + 5$  si  $\xi > 1$

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

$$G_{th,fil} = 1 - \frac{4}{3}x \quad (\text{I.2-14})$$

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

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

$$G_{th,cyl.} = G_{th,feuille} + \left( 8x^{1.4} e^{-3.72x} + 0.4e^{8x} \right) \left( G_{th,sphère} - G_{th,feuille} \right) \quad (\text{I.2-15})$$

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

Dans ce qui précède,  $\bar{s}_{abs}$  peut être calculée de  $s_{abs}$  comme compilée dans le tableau VIII.3-1 ; en posant arbitrairement  $T_n = 333.15 \text{ k}$  ( $= 60^0 \text{ C}$ ), l'erreur maximale dans  $\bar{s}_{abs}$  est  $\sim 6.5\%$  dans une gamme de température 20-100  $\text{C}^0$ , et l'effet de cette erreur est rigoureusement réduit dans toutes les formules pour le calcul de  $G_{th}$ .

Les Eqs (I.2-11) – (I.2-15) sont obtenues en supposant que la diffusion des neutrons dans l'échantillon et dans l'entourage du matériel est négligeable. Cette justification de cette supposition non - diffusion a été prouvée par Gilat [De Corte, 1987].

Car la dépendance  $S(v) \sim 1/v$  dans la gamme d'énergie thermique, tous les nucléides d'un mélange homogène subissent le même effet de self shielding thermique, et la même valeur  $G_{th}$

(calculé à partir de tous les éléments de la mixture) devrait être appliqué à toutes les réactions (n,γ) considérées.

En général, l'erreur dans le calcul des effets de self shielding est estimée d'environ 10% de la limite de correction, qui est,

$${}^sG_{th} \approx 0.1(1 - G_{th}) \quad (\text{I.2-16})$$

Le calcul du self shielding des neutrons épithermiques est considérablement plus difficile. En cas d'une résonance dominante à l'énergie  $\bar{E}_r$ , l'utilisation peut être faite des approximations décrites par Chernick et Vernon [9].

$$G_e = \left[ 1 + \frac{s(E_r)}{s_p} \frac{\Gamma_n}{\Gamma(h+1)} \left( 1 - \frac{\Gamma_n}{\Gamma(h+1)} \right) \right]^{-1/2} \quad (\text{I.2-17})$$

$$\text{si } \Gamma[s(E_r)/s_p]^{1/2} \mathbf{p} (1-b)E_r,$$

ou

$$G_e = \left[ 1 + \frac{s(E_r) \Gamma_g}{s_p h \Gamma} \right]^{-1/2} \quad (\text{I.2-18})$$

$$\text{si } \Gamma[s(E_r)/s_p]^{1/2} \mathbf{f} (1-b)E_r$$

Dans les équations précédentes :

$$b = \left( \frac{A-1}{A+1} \right)^2 ; A = \text{la masse atomique du nucléide considéré;}$$

$$h = \frac{dS}{4Ns_p m};$$

$d$  = densité de l'échantillon ( $\text{g cm}^{-3}$ );

$S$  = surface de l'échantillon ( $\text{cm}^2$ ) ;

$N$  = densité du noyau du shielding ( $\text{cm}^{-3}$ );

$s_p$  = section efficace de diffusion ( $\text{cm}^2$ )  $\approx 4p R'^2$ ;  $R'$  = rayon du potentiel de diffusion (cm) ;

$m$  = masse de l'échantillon (g) ;

$s(E_r)$  = section efficace (n,g) du pic de résonance ( $\text{cm}^2$ ) ;

$$= \frac{2.608 \cdot 10^6}{E_r} \left( \frac{A+1}{A} \right)^2 \frac{g \Gamma_n}{\Gamma};$$

$E_r$  = énergie de résonance (eV) ;

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

Puisque le paramètre de shielding épithermique est principalement provoqué par les grandes sections efficaces de résonance (la queue  $1/v$  fondamentale étant d'importance mineure), il reste spécifique pour le nuclide particulier, à moins que les résonances de plusieurs nuclides recouvrent.

La dernière situation, ce qui pourrait se produire dans l'analyse par activation réelle, est un ennui – principalement si le recouvrement de la résonance d'un constituant de trace avec la résonance de shielding d'un élément majeur est seulement partiel. le procédé le plus sûr doit alors, si la dilution de l'échantillon n'est pas possible, pour présenter pour le constituant de trace le facteur  $G_e$  comme calculé à partir de l'élément principal, assignant cependant au  $G_e$  une incertitude de pourcentage de  $(1 - G_e) 100\%$ .

En général, si des facteurs précis de self shielding des neutrons sont exigés, il est conseillé de se consacrer sur la détermination expérimentale plutôt que le calcul.

### 3. Analyse par activation ( $n,\gamma$ ) : principe de la standardisation

Dans l'analyse par activation ( $n,\gamma$ ), la masse de l'élément à déterminer (i.e. analysé, indexé par a) dans l'échantillon est obtenu des Eqs (I.2-4) et (I.2-5), respectivement :

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

$$w_a = \frac{M_a}{N_A q_a g_a} \frac{\left( \frac{N_p / t}{SDC} \right)_a}{\left[ G_{th,a} f_s S_{0,a} + G_{e,a} f_e I_{0,a}(a) \right] e_{p,a}} \quad (I.3-1)$$

Et si l'échantillon est irradié sous couverture en Cd (voir I.1.3.2), la masse de l'élément est par :

$$w_a = \frac{M_a}{N_A q_a g_a} \frac{\left[ \left( \frac{N_p / t}{SDC} \right)_{Cd} \right]_a}{G_{e,a} F_{Cd,a} f_e I_{0,a}(a) e_{p,a}} \quad (I.3-2)$$

Dans les Eqs (I.3-1) et (I.3-2), le terme SDC devrait être modifié dans le cas de l'embranchement d'activation et la décroissance mère – fille (voir I.3.4.2).

La détermination réelle de  $w_a$  peut être basée sur de diverses méthodes de standardisation.

#### 3.1. La standardisation relative

Dans la méthode de standardisation relative, le standard chimique (indexé s) en connaissant la masse  $w_s$  de l'élément à déterminer est coirradié avec l'échantillon, et les deux sont ensuite mesuré dans la même configuration géométrique concernant le détecteur Ge. Ainsi, on peut réécrire les Eqs (I.3-1) et (I.3-2) pour le standard, et la combinaison mène à (pour NAA et ENAA, respectivement) :

$$w_a = \frac{\left( \frac{N_p / t}{DC} \right)_a}{\left( \frac{N_p / t}{DC_w} \right)_s} \cdot \frac{G_{th,s} f + G_{e,s} Q_{0,s}(a)}{G_{th,a} f + G_{e,a} Q_{0,a}(a)} \frac{e_{p,s}}{e_{p,a}} \quad (I.3-3)$$



$$w_a = \frac{\left[ \left( \frac{N_p / t_m}{DC} \right) Cd \right]_a \cdot \frac{G_{e,s}}{G_{e,a}} \frac{e_{p,s}}{e_{p,a}}}{\left[ \left( \frac{N_p / t_m}{DCw} \right) Cd \right]_s} \quad (I.3 - 4)$$

Puisque  $S_a = S_s$ ,  $M_a = M_s$ ,  $g_a = g_s$ ,  $s_{0,a} = s_{0,s}$ ,  $I_{0,a} = I_{0,s}$  et  $q_a = q_s$

[Sauf dans le cas de variabilité isotopique naturelle (voir VIII.2.2 et app.2.1)].

Dans ce qui précède, on l'a supposé que le gradient de flux entre l'échantillon et standard dans le récipient d'irradiation sont négligeable.

En outre, il devrait être noté que  $e_p$  figure toujours dans les Eqs (I.3-3) et (I.3-4) afin d'expliquer la différence de l'atténuation gamma dans l'échantillon et standard; seulement dans le cas de grande énergie gamma et grande séparation source – détecteur, on peut considérer le passage gamma de la source comme une normale parallèle de faisceau vers la face du détecteur de sorte que  $e_{p,s}/e_{p,a}$  peut être remplacé par  $F_{p,s}/F_{p,a}$  (avec  $F_{att}$  =facteur de correction de l'atténuation gamma) sans l'introduction de l'efficacité de détection.

En outre, dans l'Eq. (I.3-3) on peut se débarrasser du facteur f seulement si :

- Ø  $G_{e,s} Q_{0,s}(a) \text{ pp } G_{th,s} f$  et  $G_{e,a} Q_{0,a}(a) \text{ pp } G_{th,a} f$ ;
- Ø ou  $G_{th,s} = G_{th,a} = G_{e,s} = G_{e,a} = 1$ .

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

$$w_a = \frac{\left( \frac{N_p / t_m}{DC} \right)_a}{\left( \frac{N_p / t_m}{DCw} \right)_s} \quad (I.3 - 5)$$

$$w_a = \frac{\left[ \left( \frac{N_p / t_m}{DC} \right) Cd \right]_a}{\left[ \left( \frac{N_p / t_m}{DCw} \right) Cd \right]_s} \quad (I.3 - 6)$$

et dans les termes des concentrations :

$$r_{a, \text{ppm}} = \frac{\left( \frac{N_p / t_m}{DCW} \right)_a}{\left( \frac{N_p / t_m}{DCW} \right)_s} \cdot 10^6 \quad (\text{I.3 - 7})$$

$$r_{a, \text{ppm}} = \frac{\left[ \left( \frac{N_p / t_m}{DCW} \right)_{Cd} \right]_a}{\left[ \left( \frac{N_p / t_m}{DCW} \right)_{Cd} \right]_s} \cdot 10^6 \quad (\text{I.3 - 8})$$

avec W = la masse de l'échantillon (g).

Notant que  $N_p$  des les Eqs (I.3-3) et (I.3-8) ne devrait pas être corrigé pour les effets des vraies coïncidence, puisque l'échantillon et standard sont mesuré à la même distance source détecteur.

La standardisation relative peut être exécuté au moyen de différents standards mono élément, ou par l'utilisation des standards multi élément naturels ou synthétiques.

On suppose qu'en conditions favorables son exactitude est de l'ordre de 1-2%. En particulier, il devrait être remarquer que l'exactitude de la standardisation ne peuvent pas être meilleure que l'exactitude dans  $w_s$  ; dans ce contexte, on ne devrait pas sous-estimer des erreurs possibles provoquées par la non stoechiométrie de l'élément standard dans la substance chimique choisie, ou par les manipulations telles que dilution et micropipette – souvent inévitable de réduire ou d'éliminer les problème de self shielding des neutrons.

L'inconvénient évident de la standardisation relative classique se situe dans l'analyse multi élément de routine, où la préparation, la mesure et l'évaluation du spectre des standards est pénible et ennuyeux.

### 3.2. Standardisation d'un seul comparateur (mono standard)

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

$$k_c(s) = \frac{A_{sp,s}}{A_{sp,c}} \quad (I.3-9)$$

De l'Eq. (I.2-4) il suit que  $k_c(s)$  en fait est défini comme :

$$k_c(s) = \frac{M_c q_s g_s S_{0,c}}{M_s q_c g_c S_{0,s}} \cdot \frac{G_{th,s}^f + G_{e,s} Q_{0,s}(a)}{G_{th,c}^f + G_{e,c} Q_{0,c}(a)} \cdot \frac{e_{p,s}}{e_{p,c}} \quad (I.3-10)$$

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

$$r_{a,ppm} = \frac{\left( \frac{N_p/t_m}{SDCW} \right)_a}{A_{sp,c}} \cdot 10^6 / k_c(s) \quad (I.3-11)$$

à condition que  $q_a = q_s$ , et :

- Le self shielding du neutron est essentiellement le même pour l'analyse respectivement /comparateur et standard/comparateur dans des conditions d'irradiation de l'analyse et de la détermination  $k_c(s)$ . La solution la plus franche est de prendre dans tout les cas

$$G_{th} = G_e = 1 ;$$

- $f$  et  $\alpha$  ne montre aucune différence significative dans les conditions d'irradiation de l'analyse et la détermination de  $k_c(s)$ . Ainsi, l'application de la méthode est liée à la position d'irradiation ou  $k_c(s)$  est déterminé. Cette condition peut être abandonner si  $G_e Q_0(a) \ll G_e f$  pour le standard / à analyser et le comparateur et pour les deux position d'irradiation, quelle cause les paramètres  $f$  et  $\alpha$  à supprimer dans l'Eq (1.3-10), en général, ceci se tient pour des spectres de neutrons fortement thermalisés (très grand  $f$ ). En outre, il est clair de l'Eq. (I.3-10) que la variation de  $f$  [au moment de la détermination de  $k_c(s)$  au moment de l'analyse] causera des erreurs négligeables si  $Q_{0,s} \cong Q_{0,c}$ , cette observation serait naturellement non adapté en cas de l'analyse par activation neutronique multiélément.
- L'efficacité de détection, incluant l'atténuation gamma, est essentiellement la même pour l'analysé / comparateur et standard/comparateur dans des conditions de mesure de l'analyse et la détermination de  $k_c(s)$ , respectivement. Ainsi, l'application de la méthode est liée aux

positions géométriques de comptage de la détermination de  $k_c(s)$  (notant que  $e_{p,a}$  et  $e_{p,s} \neq e_{p,c}$  est ignoré) ;

- Tout les paramètres de flux ( $f_s, f$  et  $a$ ) restent constants durant l'irradiation, pour les deux à analyser et la détermination de  $k_c(s)$ .

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

Evidemment, la méthode d'un seul comparateur peut être étendue aussi bien à ENAA, et la définition de  $k_c(s)$  est donc donnée par l'Eq. (I.3-10) avec  $f=0$  et en multipliant les termes  $G_e Q_0(\alpha)$  par le facteur  $F_{Cd}$  correspondant.

A l'extrême, si une excellente stabilité à long terme du flux du réacteur des caractéristiques est avéré, on peut omettre l'utilisation d'un seul comparateur, et à priori  $A_{sp,s}$  déterminé est égale à  $A_{sp,a}$ ; c'est le cas dans le réacteur SLOWPOKE [Ken et al. 2003] et GHARR-1 [Nya et al. ,2003].

Pour la détermination expérimentale de  $k$ , plusieurs chercheurs suggèrent de faire la conversion des facteurs  $k$  en respectant les conditions d'irradiation, exige  $f$  et le contrôle de  $\alpha$ , ou en respectant les conditions de mesure, exige la détermination de  $\epsilon_p$ .

Dans ce travail, ces développements sont d'une importance essentielle, puisque ceci mène au concept des facteurs expérimentalement déterminés de  $k_0$  (voir I.3.4.1).

Si l'exécution est faite correctement, l'exactitude de la standardisation d'un seul comparateur peut être estimée à 3% ou moins. Son évident avantage est la simplicité expérimentale, à condition que les facteurs  $k_0$  seront déterminés a priori ; son utilisation est très sollicitée dans l'analyse de routine d'une longue série d'échantillons semblables.

### 3.3. Standardisation absolue (paramétrique)

En écrivant sous l'Eq. (I.2-4) index  $m$  pour l'analysé et le moniteur de flux coirradié avec l'échantillon, la combinaison mène à :

$$r_{a,ppm} = \left( \frac{N_p / t_m}{SDCW} \right) \cdot \frac{M_c q_s g_s s_{0,c}}{A_{sp,m}} \cdot \frac{G_{th,s}^f + G_{e,s} Q_{0,s}(a)}{M_s q_c g_c s_{0,s}} \cdot \frac{e_{p,s}}{e_{p,c}} \cdot 10^6 \quad (I.3-12)$$

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

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

En effet,  $\sigma_0$ ,  $\gamma$  et  $\theta$  (par ordre d'importance décroissant) peuvent être les sources d'erreurs considérables ou des incertitudes. Après la remarque faite en I.3.2, et les considérations précédentes étaient aussi stimuler fortement l'élaboration de la méthode de standardisation  $k_0$ .

En plus des corrections habituelles de  $G_{th}$  et  $G_e$ , être appliqué en principe dans toutes les méthodes d'étalonnage, la standardisation absolue exige non seulement la connaissance de  $M$ ,  $\theta$ ,  $\gamma$ , et  $\sigma_0$ , mais aussi les valeurs  $N_p$ ,  $f$ ,  $Q_0(\alpha)$  et  $\epsilon_p$ , et valeurs  $N_p$  doivent être corriger pour les effets des vraies coïncidences. Ces paramètres supplémentaires, qui sont essentiellement les mêmes dans la standardisation  $k_0$ , seront intensivement traité dans les chapitres suivants.

Plusieurs chercheurs ont rendu compte de l'application de la méthode absolue en cas du spectre neutronique fortement thermalisé ( $f$  élevé), qui fait disparition des termes  $G_e Q_0(\alpha)$  dans l'Eq. (I.3-12). D'autre part, l'extension de la méthode à ENAA est possible ; donc, l'Eq. (I.3-12) devrait être modifié en mettant  $f=0$  et en multipliant  $G_e Q_0(\alpha)$  par les facteurs correspondants de  $F_{cd}$ .

### 3.4. La standardisation $k_0$

#### 3.4.1. Les Concepts de base

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

A. Si les facteurs  $k$  déterminés expérimentalement par la méthode d'un seul comparateur doivent être normalisés aux conditions d'irradiation ( $f, \alpha$ ) et de mesure ( $\epsilon_p$ ), on obtient de l'Eq. (I.3-9) :

$$\begin{aligned} k_{0,c}(s) &= k_c(s) \cdot \frac{G_{th,c}^f + G_{e,c} Q_{0,c}(a)}{G_{th,s}^f + G_{e,s} Q_{0,s}(a)} \cdot \frac{e_{p,c}}{e_{p,s}} \\ &= \frac{A_{sp,s}}{A_{sp,c}} \cdot \frac{G_{th,c}^f + G_{e,c} Q_{0,c}(a)}{G_{th,s}^f + G_{e,s} Q_{0,s}(a)} \cdot \frac{e_{p,c}}{e_{p,s}} \end{aligned} \quad (I.3 - 13)$$

en raison de l'Eq. (I.3-10), les facteurs  $k_{0,c}(s)$  est donc défini un composé de constantes nucléaires :

$$k_{0,c}(s) = \frac{M_c q_s g_s s_{0,c}}{M_s q_c g_c s_{0,s}} \quad (I.3-14)$$

Qui sont actuellement tabulé et publié dans la littérature<sup>1</sup> comme paramètre utile.

Supposant maintenant que l'échantillon est coirradié avec le moniteur ( $m$ ), pour que la facteur  $k_{0,c}(m)$  déterminé expérimentalement soit disponible [ $s$  remplacé par  $m$  dans l'Eq. (I.3-13) et dans la définition de (I.3-14)]. Puis, par conversion  $k_{0,c}(s)/k_{0,c}(m) = k_{0,m}(s)$  aux conditions d'analyse d'irradiation ( $f, \alpha$ ) et de mesure ( $\epsilon_p$ ), la concentration de l'analysé peut être obtenue comme [avec  $k_{0,c}(s) = k_{0,c}(a)$ ] :

$$r_{a, ppm} = \left( \frac{N_p / t_m}{SDCW} \right)_a \cdot \frac{k_{0,c}(m)}{k_{0,c}(a)} \cdot \frac{G_{th,m}^f + G_{e,m} Q_{0,m}(a)}{G_{th,a}^f + G_{e,a} Q_{0,a}(a)} \cdot \frac{e_{p,m}}{e_{p,a}} \cdot 10^6 \quad (I.3 - 15)$$

A condition que  $q_a = q_s$  (aucune variabilité isotopique naturelle).

Notant que dans les Eqs (I.3-13) et (I.3-15) les paramètres  $f, \alpha$  et  $\epsilon_p$  réfèrent clairement aux conditions expérimentales de la détermination de  $k_0$  et de l'analyse, respectivement.

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

B. si la méthode de standardisation absolue l'ensemble des données nucléaires  $\left[ M_m q_a g_a S_{0,a} / M_a q_m g_m S_{0,m} \right]$  de l'Eq. (I.3-12) est remplacé par un seul composé nucléaire constant  $k_{0,m}(a)$ , on obtient

$$r_{a, ppm} = \left( \frac{N_p / t_m}{SDCW} \right)_a \cdot \frac{1}{k_{0,m}(a)} \cdot \frac{G_{th,m} f + G_{e,m} Q_{0,m}(a)}{G_{th,a} f + G_{e,a} Q_{0,a}(a)} \cdot \frac{e_{p,m}}{e_{p,a}} \cdot 10^6 \quad (I.3-16)$$

avec  $k_{0,m}(a) = k_{0,c}(a) / k_{0,c}(m)$  [de la définition (I.3-14)], ceci mène à l'Eq. (I.3-15), et l'Eq. (I.3-13) permet la détermination expérimentale de  $k_{0,c}(a) = k_{0,c}(s)$  et  $k_{0,c}(m)$  [pour le dernier, remplaçant s par m dans l'Eq. (I.3-13)].

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

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

Des données publiées [De Corte et al., 1989 et Rév et al., 2003] par un certain nombre de compilations subséquentes, avec plusieurs extensions et mises à jour au cours des années. Ces ensembles de données partielles et fragmentaires sont assemblées et insérées dans des tables de base données électronique [Kol. et al., 2003].

Evidemment, la méthode  $k_0$  peut être appliquée à ENAA, en mettant simplement  $f = 0$  dans l'Eq. (I.3-15) [ou l'Eq. (I.3-16)] et multipliant  $G_e Q_0(\alpha)$  par le facteur  $F_{Cd}$  correspondant.

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

NAA :

$$r_{a, ppm} = \frac{\left( \frac{N_p / t_m}{SDCW} \right)_a}{A_{sp, m}} \cdot \frac{k_{0, c(m)}}{k_{0, a(a)}} \cdot \frac{G_{th, m}^f + G_{e, m} Q_{0, m(a)}}{G_{th, a}^f + G_{e, a} Q_{0, a(a)}} \cdot \frac{e_{p, m}}{e_{p, a}} \cdot 10^6 \quad (I.3 - 17)$$

ENAA :

$$r_{a, ppm} = \frac{\left[ \left( \frac{N_p / t_m}{SDCW} \right)_{Cd} \right]_a}{A_{sp, m}} \cdot \frac{k_{0, c(m)}}{k_{0, a(a)}} \cdot \frac{F_{Cd, m} G_{e, m} Q_{0, m(a)}}{F_{Cd, a} G_{e, a} Q_{0, a(a)}} \cdot \frac{e_{p, m}}{e_{p, a}} \cdot 10^6 \quad (I.3 - 18)$$

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

### 3.4.2. Paramètres de la méthodes $k_0$

A partir des Eqs (I.3-13) et (I.3-18), il suit que, pour le développement et l'application de la méthode de standardisation  $k_0$ , les matières suivantes doivent être traitées :

A. Détermination expérimentale des facteurs  $k_0$ , dont, en outre les prochains articles (B –C), tout les paramètres concernant la préparation, l'irradiation et la mesure des standards (comme dans la méthode relative) doivent être prises en considération, ceci inclus par exemple le calcul ou la détermination expérimentale des facteurs  $G_{th}$  et  $G_e$  (voir I.2.4).

B. Contribution de l'activation épithermique, incluant :

1. Détermination expérimentale de f ;
2. Détermination expérimentale de  $\alpha$  ;
3. Calcul ou la détermination expérimentale de  $\bar{E}_r$  [pour la conversion  $Q_0 \rightarrow Q_0(a)$ ] ;
4. Evaluation ou la détermination expérimentale de  $F_{Cd}$  ;
5. Evaluation ou la détermination expérimentale de  $Q_0$  ;

C. Détermination expérimentale et la conversion de  $e_p$ , incluant l'atténuation gamma.



D. Correction de  $N_p$  pour :

1. Les effets des vraies coïncidences ;
2. Les effets de burn up (voir I.2.3) ;
3. Interférences primaires [les neutrons rapides induits par les réactions  $(n, n')$  et  $(n, 2n)$ ] ;
4. Les petites déviations de  $g(T_n)$  par rapport à l'unité ;
5. Constance des paramètres de flux ( $f_s, f, a$ ) durant l'irradiation.

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

Le système de métrologie international inclut la condition que chaque résultat analytique devrait être rapporté avec son incertitude correspondante. Et en raison de l'évaluation de la méthode  $k_0$ -NAA, il est essentiel d'attribuer les incertitudes des paramètres mentionnés dans I.3.4.2, et de considérer la propagation de ces incertitudes vers des quantités dérivées de ces paramètres tels que les facteurs  $k_0$  et les résultats analytiques.

L'incertitude doit être comprise comme meilleure estimation d'inexactitude possible, due à l'erreur aléatoire et systématique.

En général, la quantité à déterminer ( $Q$ ) dépend du nombre des paramètres ( $p_j$ ), chacun est associé avec l'inexactitude ( $s_{p_j}$ ) qui s'est propagé vers cette quantité. Ces paramètres et incertitudes peuvent être classifiés [De Corte et al., 1980] comme suivant :

- Les paramètres avec l'incertitude aléatoire peuvent être décrit par les lois probabilistiques. Ces paramètres influencent la précision de la détermination. l'exemple typique dans NAA est le nombre de coups collectés sous le pic, sauf en prenant en compte l'incertitude du comptage statistique;
- Les paramètres avec l'incertitude systématique ne peuvent pas être réduit en aucun cas. Ces paramètres influencent l'exactitude intrinsèque de la détermination. Un exemple évident dans standardisation  $k_0$ -NAA (du point de vue de l'analyste) est le facteur  $k_0$  avec son incertitude citée;
- Les paramètres avec l'incertitude systématique peuvent être réduit. Ces paramètres influencent l'exactitude expérimentale de la méthode. Par exemple, dans  $k_0$ -NAA<sub>i</sub> et à partir des équations (I.3.20) et (I.3.21), l'incertitude induite par le rapport des efficacités de détection  $e_{p,m}/e_{p,a}$  peut être réduit au minimum par la mesure de l'échantillon et le moniteur à la même distance du détecteur.

Tableau I.3-1 : types de désintégration d'activation et expressions appropriées pour les paramètres impliqués dans la méthode  $K_0$ -NAA

Activation-decay type	Activation-decay scheme	$\frac{99\lambda_1^{n_1}}{M}$ in $k_0$ -definition [Eq. (I.3-14)]	$Q_0^{n_1}$ in Eqs (I.3-18) (I.3-20) (I.3-21)	$\frac{N_p^{n_1} t_m^{n_1}}{S_2 D_2 C_2}$ in Eqs (I.3-18) - (I.3-21), to be divided by $\nu$ for obtaining $\lambda_{sp}$ in Eqs (I.3-18) - (I.3-21)
I	$1 \xrightarrow[n_1, \lambda_1]{\sigma_0, I_0} 2 \xrightarrow{\lambda_2} 3$ <p>[e.g. <math>^{75}\text{As}(n,\gamma)^{76}\text{As}</math>]</p>	$\frac{\sigma_0 I_0 \lambda_1}{M}$	$\frac{I_0}{\sigma_0}$	$\frac{N_p^{n_1} t_m^{n_1}}{S_2 D_2 C_2}$
II/a	$1 \xrightarrow[n_1, \lambda_1]{\sigma_0, I_0} 2 \xrightarrow{F_2, \lambda_2} 3 \xrightarrow{\lambda_3} 4$ <p>[e.g. <math>^{101}\text{Tc}</math> from <math>^{100}\text{Mo}(n,\gamma)</math>]</p>	$\frac{\sigma_0 F_2 \lambda_1}{M}$	$\frac{I_0}{\sigma_0}$	$\frac{N_p^{n_1} t_m^{n_1}}{S_2 D_2 C_2} \cdot \frac{(\lambda_3 - \lambda_2)}{\lambda_3^2 \lambda_2^2 C_2 - \lambda_2^2 S_3 C_3}$
II/b	Special case : $\lambda_2 \gg \lambda_3$ and $D_2 = 0$ [e.g. $^{233}\text{Pu}$ from $^{232}\text{Th}(n,\gamma)$ ]	"	"	$\frac{N_p^{n_1} t_m^{n_1}}{S_2 D_2 C_2}$
II/c	Special case : $\lambda_2 < \lambda_3$ and $D_3 = 0$	"	"	$\frac{\lambda_3 - \lambda_2}{\lambda_3} \cdot \frac{N_p^{n_1} t_m^{n_1}}{S_2 D_2 C_2}$
II/d	Special case : measurement of the 140.5 keV line of $^{99}\text{Tc}$ from $^{98}\text{Mo}(n,\gamma)$	"	"	$\frac{N_p^{n_1} t_m^{n_1}}{\lambda_3 S_2 D_2 C_2 - \lambda_2 S_3 C_3} + \frac{\lambda_2}{\lambda_3} \cdot \frac{N_p^{n_1} t_m^{n_1}}{S_2 D_2 C_2}$
III/a	$1 \xrightarrow[n_1, \lambda_1]{\sigma_0, I_0} 2 \xrightarrow{F_2, \lambda_2} 3 \xrightarrow{F_3, \lambda_3} 4 \xrightarrow{\lambda_4} 5$ <p>[e.g. <math>^{97}\text{Rb}</math> from <math>^{96}\text{Kr}(n,\gamma)</math>]</p>	$\frac{\sigma_0 F_2 F_3 \lambda_1}{M}$	$\frac{I_0}{\sigma_0}$	$\frac{N_p^{n_1} t_m^{n_1}}{\lambda_3 S_2 D_2 C_2 - \lambda_2 S_3 C_3} \left[ S_2 D_2 C_2 \frac{\lambda_4}{\lambda_4 - \lambda_2} \left( \frac{\lambda_3}{\lambda_3 - \lambda_2} + \frac{F_2 C_4}{F_2 C_3} \right) - S_3 D_3 C_3 \frac{\lambda_2^2 \lambda_4}{(\lambda_4 - \lambda_3)(\lambda_3 - \lambda_2)} \right. \\ \left. + S_4 D_4 C_4 \frac{\lambda_2}{\lambda_4 - \lambda_2} \left( \frac{\lambda_3}{\lambda_3 - \lambda_2} - \frac{F_2 C_4}{F_2 C_3} \right) \right]^{-1}$

Tableau I.3-1 : (suite)


Activation-decay type	Activation-decay scheme	$\frac{80\lambda_3^m}{M}$ in $k_0$ -coefficients [Eq. (I.3-14)]	$C_0^m$ in Eqs (I.3-18) (I.3-20) (I.3-21)	$\frac{N_i/t_m^m}{SDC}$ in Eqs (I.3-16) - (I.3-21), to be divided by $v$ for obtaining $k_{sp}$ in Eqs (I.3-18) - (I.3-21)
III/b	Special case : $\lambda_3 \gg \lambda_2$ and $\lambda_2, \nu_3 = 0$	$\frac{80\lambda_3^m \nu_3 \gamma_4}{M}$	$\frac{I_0}{c_0}$	$(N_{p,4}/t_m^m) \cdot \left[ \frac{\lambda_4 \lambda_3}{\lambda_2 \nu_2 \nu_3 (\lambda_2 - \lambda_3)} \right]$ $- S_3^B \nu_3^2 \nu_4 \left[ \frac{\lambda_3 \lambda_4}{(\lambda_4 - \lambda_3) (\lambda_4 - \lambda_2)} \right]$ $+ S_4^B \nu_4^2 \nu_3 \left[ \frac{\lambda_2 \lambda_3}{(\lambda_4 - \lambda_2) (\lambda_4 - \lambda_3)} \right]^{-1}$
III/c	Special case : $\lambda_3 \gg \lambda_2$ and $\lambda_2, \nu_3 = 0$ $\nu_3 = 1, \nu_2 + \nu_3 = 1$ [e.g. $^{125}\text{Rh}$ from $^{109}\text{Ru}(n,\gamma)$ ]	$\frac{80\lambda_3^m \gamma_4}{M}$	"	$(N_{p,4}/t_m^m) \cdot \frac{\lambda_4^{-\lambda_2}}{\lambda_4 \nu_2 \nu_3 C_2 - \lambda_2 S_4^B C_4}$
IV/a	 Special case : $\lambda_2 \gg \lambda_3$ and $\nu_3 = 0$ [e.g. $^{80}\text{Br}$ from $^{79}\text{Br}(n,\gamma)$ ]	$\frac{80\lambda_3^m \nu_3}{M}$	$\frac{I_0}{c_0}$ $\frac{I_0}{c_0}$ $\frac{I_0}{c_0}$	$(N_{p,3}/t_m^m) \cdot \left[ \frac{\nu_2 \nu_3}{c_0} \frac{f + c_0^m(\alpha)}{f + c_0^k(\alpha)} \frac{\lambda_3 \nu_2 \nu_3 C_2}{\lambda_3 - \lambda_2} \right]$ $+ S_3^D C_3$ $= (N_{p,3}/t_m^m) \cdot \left[ \frac{k_0^m f + c_0^m(\alpha)}{k_0^k f + c_0^k(\alpha)} \frac{\lambda_3 \nu_2 \nu_3 C_2 - \lambda_2 \nu_2 \nu_3 C_3}{\lambda_3 - \lambda_2} \right]$ $+ S_3^D C_3$
IV/b	Special case : $\lambda_2 \gg \lambda_3$ and $\nu_3 = 0$ [e.g. $^{60}\text{Co}$ from $^{59}\text{Co}(n,\gamma)$ ]	$\frac{80(\nu_2^m + \nu_3^m) \gamma_3}{M}$	$\frac{\nu_2^m + \nu_3^m}{\nu_2^m + \nu_3^m}$ $\frac{I_0}{c_0}$	$\frac{N_{p,3}/t_m^m}{S_3^D C_3}$
IV/c	Special case : $\lambda_2 < \lambda_3$ and $\nu_3 = 0$	$\frac{80\lambda_3^m \nu_3}{M}$	$\frac{I_0}{c_0}$ $\frac{I_0}{c_0}$	$\frac{\lambda_3 - \lambda_2}{\lambda_3} \frac{N_{p,3}/t_m^m}{S_3^D \nu_2^2}$

Tableau I.3-1 : (suite)


Activation-decay type	Activation-decay scheme	$\frac{P_0^m Y^m}{M}$ in $k_0$ -definition [Eq. (I.3-14)]	$Q_0^m$ in Eqs (I.3-18) (I.3-20) (I.3-21)	$\frac{N_p/t_m}{\frac{P_0^m}{S_0^m C_0^m}}$ in Eqs (I.3-18) - (I.3-21), to be divided by $w$ for obtaining $A_{ep}$ in Eqs (I.3-18) - (I.3-21)
IV/d	Special case : measurement of the 112.9 keV and 208.4 keV lines of $^{177m}\text{Lu}$ , $^{177}\text{Lu}$ [from $^{176}\text{Lu}(n,\gamma)$ ]	$\frac{\sigma_0^m Y_3}{M}$	$\frac{I_0^m}{\sigma_0^m}$	$(N_{p,2+3}/t_m) \cdot \left[ \frac{\sigma_0^m \gamma_2}{\sigma_0^m \gamma_3} \frac{1 + Q_0^m(\alpha)}{1 + Q_0^m(\alpha)} \frac{(S_{D_2} C_2)}{S_{D_3} C_3} + \frac{F_2 \gamma_3}{\gamma_2} \frac{\lambda_3 D_2 C_2 - \lambda_2 S_{D_2} C_2}{\lambda_3 - \lambda_2} + S_{D_3} C_3 \right]^{-1}$
V/a ***		$\frac{\sigma_0^m F_3 \gamma_4}{M}$	$\frac{I_0^m}{\sigma_0^m}$	$(N_{p,4}/t_m) \cdot \left\{ \frac{\sigma_0^m F_3 \gamma_4}{k_0^m F_3 \gamma_4} \left[ S_{D_2} C_2 \frac{\lambda_4 \lambda_3}{( \lambda_4 - \lambda_3 ) ( \lambda_3 - \lambda_2 ) } - S_{D_3} C_3 \frac{\lambda_2 \lambda_4}{( \lambda_4 - \lambda_3 ) ( \lambda_3 - \lambda_2 ) } + S_{D_4} C_4 \frac{\lambda_2 \lambda_3}{( \lambda_4 - \lambda_2 ) ( \lambda_3 - \lambda_3 ) } \right] + \frac{\lambda_4 S_{D_3} C_3 - \lambda_3 S_{D_4} C_4}{\lambda_4 \lambda_3} \right\}^{-1}$
V/b	Special case : $\lambda_4 \ll \lambda_2$ and $\lambda_3$ [e.g. $^{195}\text{Au}$ from $^{198}\text{Pt}(n,\gamma)$ ]	$\frac{\sigma_0^m (Y_2^m + \sigma_0^m) F_3 \gamma_4}{M}$	$\frac{F_2 I_0^m + I_0^m}{F_2 \gamma_0^m + \sigma_0^m}$	$\frac{N_{p,4}/t_m}{S_{D_4} C_4}$
V/c	Special case : $\lambda_3 \ll \lambda_2$ and $\lambda_4$ $D_2 = D_4 = 0$ [e.g. $^{113m}\text{In}$ from $^{112}\text{Sn}(n,\gamma)$ ]	"	"	$\frac{N_{p,4}/t_m}{S_{D_3} C_3}$

Tableau I.3-1 : (suite)

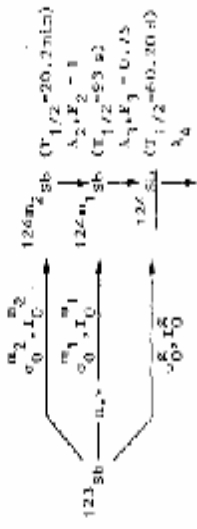

Activation-decay type	Activation-decay scheme	$\frac{\partial q_3}{\partial t}$ in $k_0$ -definition for [Eq. (I.3-14)]	$q_3$ in Eqs (I.3-19) (I.3-20) (I.3-21)	$\frac{N_3}{N} t_3$ in Eq. (I.3-18) - (I.3-21), to be divided by $N$ for obtaining $A_{sp}$ in Eq. (I.3-18) - (I.3-21)
VI	<p>Special case : measurement of <math>\frac{125}{123}\text{Sb}</math> [from <math>^{123}\text{Sb}(n, \gamma)</math>] after long decay time (<math>t_2 = t_3 = 0</math>)</p> 	$\frac{\partial [F_3(\sigma_1 + \sigma_2) + \sigma_3^0]}{\partial t}$	$\frac{F_3 (I_1 - I_2) + R}{F_3 (I_1 - I_2) + R}$	$\frac{M}{N} \frac{I_1 - I_2}{I_1 - I_2}$
VII/a		$\frac{\partial F_3}{\partial t}$	$\frac{F_3}{F_3}$	$\frac{N_3}{N} \frac{F_3}{F_3}$
VII/b	<p>Special case : <math>t_2 = 0</math>  <math>\frac{125}{123}\text{Sb}</math> from <math>^{126}\text{Sb}(n, \gamma)</math></p>	$=$	$=$	$\frac{N_3}{N} \frac{F_3}{F_3}$

Tableau I.3-1 : (suite)

Activation-decay type	Activation-decay scheme	$\frac{\theta_0 \gamma''}{M}$ in $k_0$ -definition [Eq. (I.3-14)]	$Q_0''$ in Eqs (I.3-18) (I.3-20) (I.3-21)	$\frac{N/C}{p \cdot S^m}$ in Eqs (I.3-18) - (I.3-21), to be divided by $w$ for obtaining $A_{sp}$ in Eqs (I.3-18) - (I.3-21)
VIII	<p>[e.g. <math>^{117}\text{In}</math> from <math>^{116}\text{Cd}(n, \gamma)</math>]</p>	$\frac{\theta F_{24} F_3 F_{4,0} F_5}{M}$	$\frac{I_0}{\sigma_0}$	$\frac{N/C}{p \cdot S^m} \left\{ \frac{1}{F_{24}} \left[ S_{33}^D C_{33} \frac{\lambda_5}{\lambda_5 - \lambda_3} \left( \frac{\lambda_4}{\lambda_4 - \lambda_3} + \frac{F_{35}}{F_{34}} \right) - S_{44}^D C_{44} \frac{\lambda_3 \lambda_5}{(\lambda_5 - \lambda_4)(\lambda_4 - \lambda_3)} + S_{55}^D C_{55} \frac{\lambda_3}{\lambda_5 - \lambda_3} \left( \frac{\lambda_4}{\lambda_5 - \lambda_4} - \frac{F_{25}}{F_{34}} \right) + \frac{\sigma_0^m f + Q_0^m(\alpha)}{\sigma_0^g f + Q_0^g(\alpha)} \left[ S_{22}^D C_{22} \frac{\lambda_5}{\lambda_5 - \lambda_2} \left( \frac{\lambda_4}{\lambda_4 - \lambda_2} + \frac{F_{25}}{F_{24} F_{34}} \right) - S_{44}^D C_{44} \frac{\lambda_2 \lambda_5}{(\lambda_5 - \lambda_4)(\lambda_4 - \lambda_2)} + S_{55}^D C_{55} \frac{\lambda_2}{\lambda_5 - \lambda_2} \left( \frac{\lambda_4}{\lambda_5 - \lambda_4} - \frac{F_{25}}{F_{24} F_{34}} \right) \right] \right\}^{-1}$
* $\gamma_2$ : 140.5 keV ( $^{99}\text{Mo}$ )	** $\frac{\theta_0 \gamma''}{M}$ in definition of	*** $\frac{\theta_0 \gamma''}{M}$ in definition of		
$\gamma_3$ : 140.5 keV ( $^{99m}\text{Tc}$ )	$k_0^g : \frac{\theta_0^g \gamma_3}{M}$	$k_0^g : \frac{\theta_0^g \gamma_4}{M}$		
$\gamma_2 / \gamma_3 = 0.0675$	$k_0^m : \frac{\theta_0^m \gamma_3}{M}$	$k_0^m : \frac{\theta_0^m \gamma_4}{M}$		

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

La fonction qui relie Q et P<sub>j</sub> peut être écrite implicitement comme :

$$F(Q, P_j) = 0 \quad (\text{I.3 - 19})$$

la dérivée partielle de l'Eq. (I.3-19) :

$$\frac{dF}{dQ} dQ + \frac{dF}{dp_j} dp_j = 0 \quad (\text{I.3 - 20})$$

en exprimant les incertitudes en termes différentielles, on obtient :

$$Z_Q(p_j) = \left| \frac{dQ/dp_j}{Q/p_j} \right| \quad (\text{I.3 - 21})$$

$$= \left| \frac{p_j \frac{dF}{dp_j}}{Q \frac{dF}{dQ}} \right| \quad (\text{I.3 - 22})$$

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

$$s_Q(p_j), \% = Z_Q(p_j) \cdot s_{p_j}, \% \quad (\text{I.3 - 23})$$

Si Q peut être écrit comme une fonction explicite de p<sub>j</sub> :

$$Q = F(p_j) \quad (\text{I.3 - 24})$$

les précédentes deviennent :

$$Z_Q(p_j) = \left| \frac{p_j}{Q} \cdot \frac{dQ}{dp_j} \right| \quad (\text{I.3 - 25})$$

Il devrait être noté que la validité des Eqs (I.3-22) et (I.3-25) est en principe limité pour modérer les valeurs  $s_{p_j}$  ou les fonctions F qui ne dévient pas nettement des linéarités.

A l'aide des équations (I.3-23) et (I.3-22) [ou (I.3-25)], il est possible de calculer les contributions de l'incertitude  $s_Q(p_j), \%$  de la quantité à déterminer, qui sont de nature aléatoire ou systématique. L'incertitude totale dans la quantité Q est :

$$s_Q, \% = \left\{ \sum_j \left[ z_{Q^*}(p_j) \cdot s_{p_j} \right]^2, \% \right\}^{1/2} \quad (\text{I.3-26})$$

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



## CHAPITRE II : INSTRUMENTATION

### 1. Dispositif d'irradiation

#### 1.1. Description du réacteur Es Salam

Le réacteur Es Salam est un réacteur de recherche nucléaire HWRR-M à neutrons thermiques de type réservoir de puissance nominale 15 MW. Il est refroidi et modéré à eau lourde ( $D_2O$ ) et utilise l'oxyde d'uranium ( $UO_2$ ) faiblement enrichi comme combustible. Il dispose de canaux expérimentaux horizontaux et verticaux.

#### 1.2 Description du site d'irradiation

Le canal expérimental qui fait l'objet de cette calibration est l'un des canaux verticaux du réacteur Es-Salam. Ce canal est situé dans le réflecteur à eau lourde.

### 2. Dispositif de mesure

La chaîne de mesure est constituée d'un détecteur Ge(HP) de haute résolution et un inspecteur 2000.

En effet, l'inspecteur 2000 est un spectromètre de haute performance basé sur la technologie DSP (Digital Signal Processing), il inclut tout les détecteurs : HP, NaI et Cd(Zn)Te.

Ce dernier est exploité par Canberra logiciel Génie 2000, un environnement très puissant pour l'analyse et traitement gamma. Il peut être relié à un ordinateur via les deux méthodes de communication USB ou RS-232.

La chaîne de mesure est représentée dans la figure II.2-1.

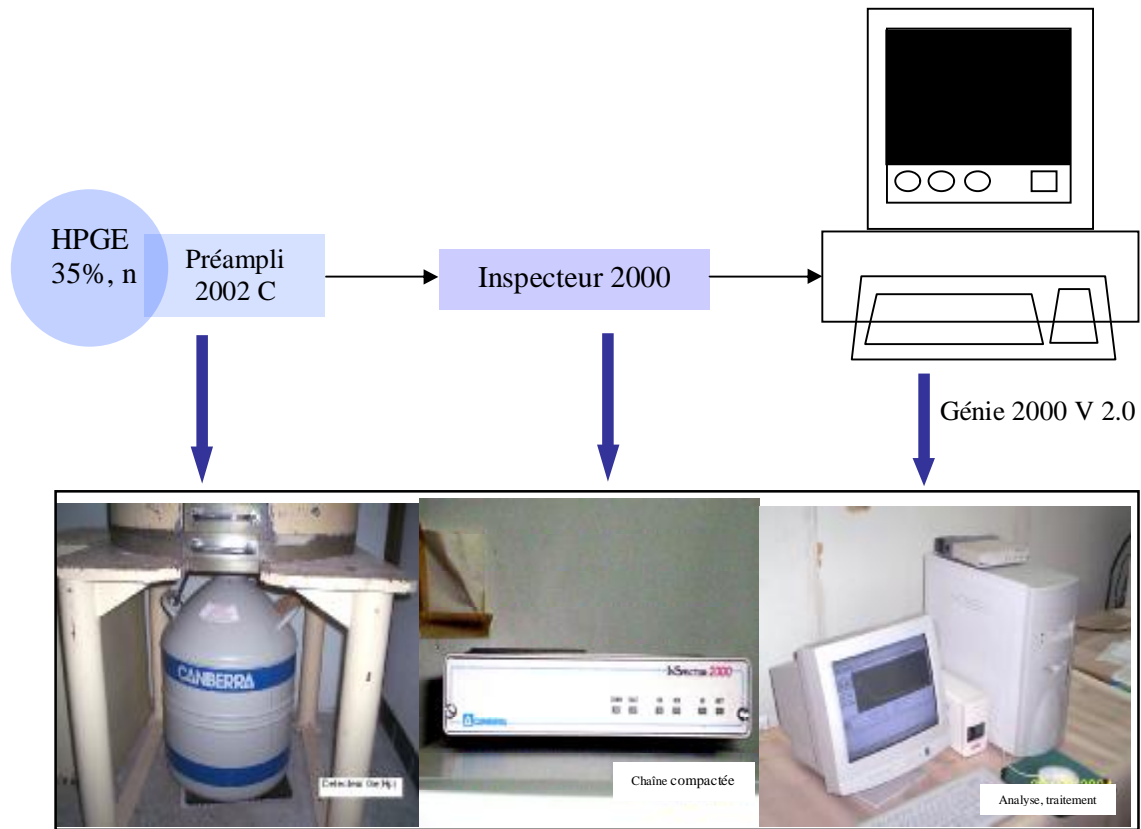


Fig. II.2-1 Chaîne de spectrométrie gamma utilisée pour  $K_0$ -NAA

Les caractéristiques du détecteur sont données dans le chap. III.

### CHAPITRE III. CALIBRATION DU DETECTEUR b96125 AIEA

La méthode  $k_0$ -NAA est nouvellement introduite dans le réacteur Es Salam et donc pour l'appliquer les caractéristiques du flux neutronique dans un site du réacteur ou les irradiations sont effectuées et le détecteur ou les spectres gamma sont mesurés doivent être connus.

Les paramètres du flux neutronique doivent être mesurés après avoir calibrer le détecteur, pour cela on doit trois points essentiels [ S. Jovanovic1988] doivent être déterminés qui sont:

1. La détermination de l'efficacité de détection du pic du détecteur pour différentes géométries et sources [Moe, 1981] ;
2. détermination du rapport Pic au Total ;
3. La correction des effets des vraies coïncidences [De Corte, 1987].

Commençant d'abord par le premier point.

#### 1. Détermination de l'efficacité de détection du pic

L'efficacité de détection du pic ( $e_p$ ) a été introduite (voir Chap. I) dans les équations appropriées [(Eqs (I.3-17) et (I.3-18)] pour la détermination de la concentration et aussi pour la détermination expérimentale des paramètres  $f$  et  $\alpha$  et la correction des vraies coïncidences. Pour la détermination de  $f$  et  $\alpha$ , les conditions de mesure optimales appelées ‘référence’ sont définies. Ceci implique que la mesure des sources quasi ponctuelles est effectuée à une grande distance source détecteur, ou les effets des vraies coïncidences sont négligeables. Heureusement ces conditions peuvent être aussi bien réalisées dans la pratique analytique. Par conséquent, la détermination expérimentale de la courbe  $\log e_p^{ref}$  versus  $\log E_g$  doit être faite.

Comme a été décrit dans [Moe et al., 1981], le cas de notre détecteur Ge(HP) la courbe s'étendant de  $\sim 55$  keV à  $\sim 1408$  keV peut être construite aisément en mesurant un certain nombre de sources gamma étalons multi et mono énergétique.

Tout les radionucléides et leurs données nucléaires appropriées ( $E_\gamma$ ,  $T_{1/2}$ , et  $\gamma$ ) sont classées dans le tableau III.1-1. la courbe obtenue de l'efficacité en fonction de l'énergie gamma est illustrée dans la figure. III.1-1. En utilisant les polynômes  $\log e_p = a_0 + a_1 \log E_g + \dots + a_n (\log E_g)^n$  on obtient un meilleur ajustement pour les points expérimentaux dans les régions distinctes, afin d'obtenir un lissage cohérent entre les deux régions.

Tableau III.1-1 : Données nucléaires de certaines sources étalons utiles ; les données sont collectées des références récentes et conformes avec la référence [Jac, 2003].

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

L'ajustement linéaire est possible dans la région d'énergie 276 keV à 1115 keV, ceci peut servir comme une ligne référence pour obtenir des points additionnels dans cette région de faible et haute énergie.

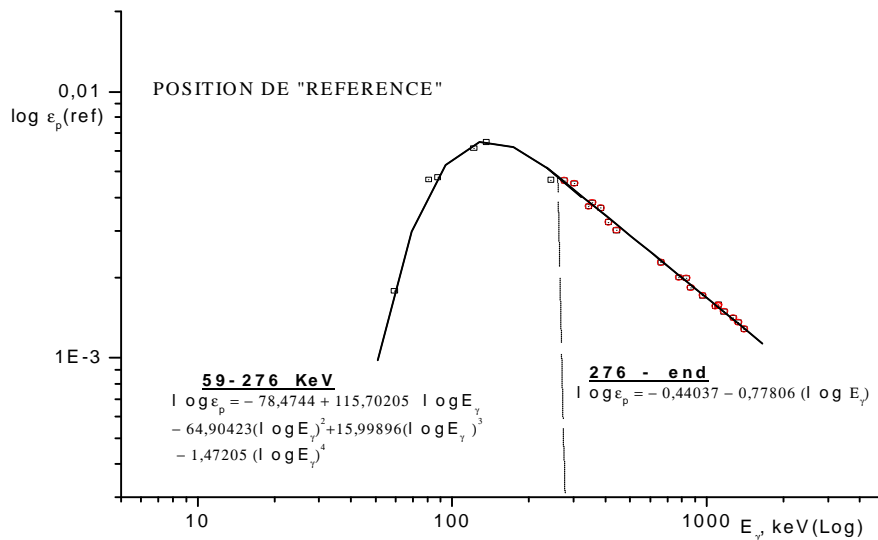


Fig. III-1-1. Courbe ε<sub>p</sub><sup>ref</sup> pour le détecteur Ge(HP) b96125 AIEA; "ref" = 11.7 cm

## 2. Détermination du rapport Pic au Total

Afin de calculer le facteur de correction (seulement les cas les plus simples donnés par les Eqs. (1-4)), l'efficacité de détection du pic à l'énergie totale ( $\epsilon_p$ ) et l'efficacité de détection totale pour les raies gamma d'intérêt doivent être connues. Les deux sont des caractéristiques du détecteur.

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

$$\frac{e_p}{e_t} = \frac{P}{T} \quad (III.3-1)$$

P/T est le rapport du comptage net du pic au comptage total du spectre, tout les deux provenant de la même transition, enregistrés par le détecteur (Figure III.3-1).

Ce dernier dépend par ordre d'importance décroissante des paramètres tels que :

- L'énergie du photon ;
- La distance source détecteur ;
- La composition et la géométrie de la source ;
- et la présence des matériels absorbants et diffusants.

Suivant la procédure suggérée par De Corte [utilitaires  $k_0$  94] nous avons déterminés  $P/T = f(E_\gamma)$  pour le détecteur qui est utilisé dans la méthode  $k_0$ -NAA. Les caractéristiques de ce détecteur sont données dans le tableau III.3-1.

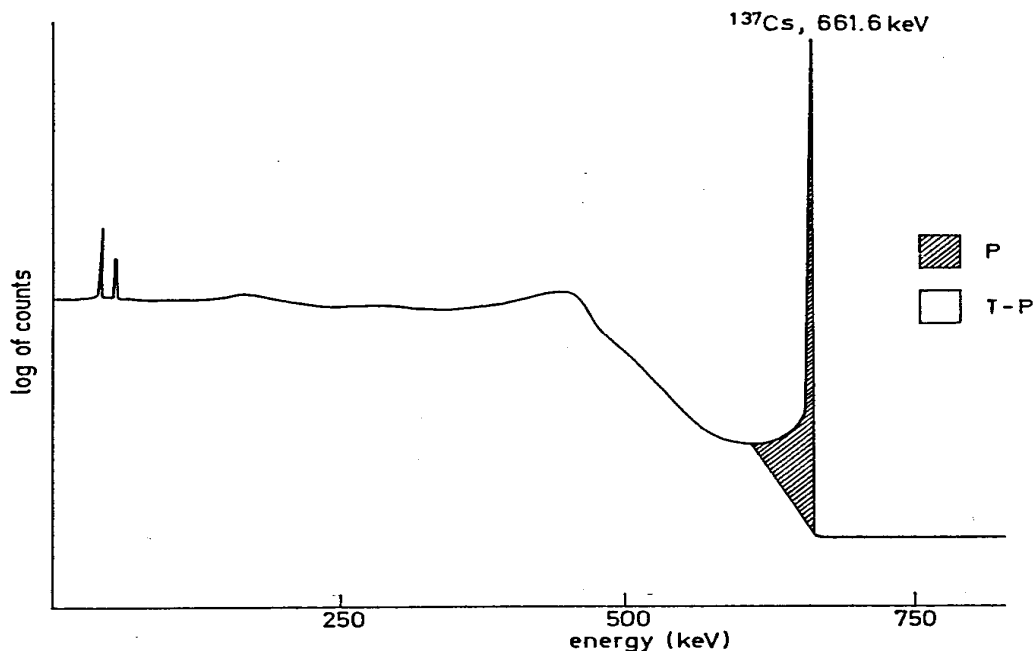


Fig. III.2-1: Définition du rapport Pic au Total du détecteur Ge(HP) pour les photon d'énergie  $E_\gamma$ .

Tableau III.2-1 : Les caractéristiques du détecteur Ge(HP) utilisé dans la méthode  $k_0$ -NAA au réacteur Es Salam

Nom du code	Ge(HP)
Fournisseur	Canberra
Type de détecteur	closed end coaxial
Efficacité relative (%) à 1332.5 keV	37.8
Résolution FWHM à 1332.5 keV	1.73

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

La collection de la première source de calibration de P/T ( $^{109}\text{Cd}$ ) qui est placée à la distance de référence 11.7 cm du détecteur, le temps de comptage doit être pris afin de réduire au maximum l'incertitude statistique du pic c à d moins de 1%.

De la même manière, on effectue la collection des autres sources en gardant toujours la même géométrie /distance pour chacune des mesures.

Après la collection et l'analyse des spectres induits par ces radionucléides  $^{109}\text{Cd}$ ,  $^{57}\text{Co}$ ,  $^{113}\text{Sn}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{54}\text{Mn}$  et  $^{65}\text{Zn}$ , on effectue la mesure du bruit de fond du détecteur pour une longue durée (environ 27 heures) afin de corriger la surface de chaque pic présenté dans les spectres en faisant la soustraction du bruit de fond.

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

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

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

Notant que les corrections citées auparavant sont incorporées dans le logiciel Génie 2K.

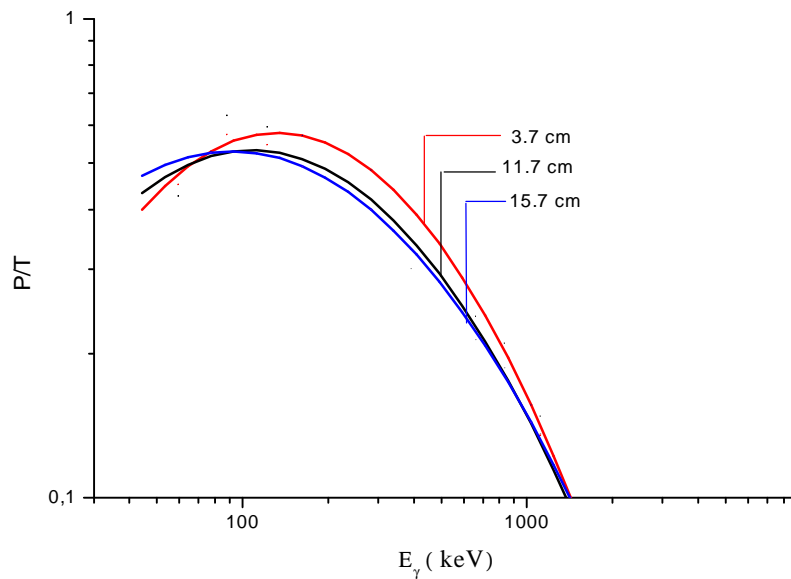


Fig. III.2-2 : Courbe expérimentale de l'efficacité du détecteur Ge(HP) utilisé dans la méthode  $k_0$ -NAA au réacteur Es-Slam.

En effet, les courbes de l'efficacité du détecteur présentée dans la figure III.3-2 sont effectuées pour trois distances qui sont respectivement, 3.7 cm inférieure à la distance référence , 11.7 cm distance référence et 15.7 supérieure à la distance référence. Nous constatons un croisement des trois courbes dans la région de faible énergie (inférieure à 100 keV).

### 3. Correction pour les effets des vraies coïncidences

La correction de la sommation des vraies coïncidences est un élément essentiel dans  $k_0$ -NAA, et elle devient importante quand les échantillons sont mesurés avec un détecteur de grande efficacité. Ceci peut être le cas où les échantillons sont mesurés dans ou à la proximité du détecteur, afin de réaliser les basses limites de détection en même temps que le flux du réacteur. Pour la détermination des facteurs de correction plusieurs programmes de calcul ont été développés et évalués [Slu et al., 2000] au cours de ces dernières années.

Dans notre laboratoire, la détermination de ces facteurs de correction est effectuée par un calcul manuel.

### 3.1. Principe

La majorité des radionucléides se désintègrent par l'émission gamma et les rayons X en cascades. Une cascade correspond à la désexcitation du noyau excité, vers le bas de l'état fondamental. En général, le temps réel de ces niveaux est très court en comparant avec le temps de résolution du semi-conducteur du détecteur. Ainsi, une coïncidence se produit quand deux photons ou plus de la cascade frappent le cristal et déposent leurs énergies partiellement ou totalement dans son volume. Le détecteur ne peut pas distinguer ces photons, mais donne une impulsion qui correspond à l'énergie entière qu'elles déposent.

Nous pouvons distingués la présence et l'absence des coïncidences d'après les deux exemples de la désintégration du  $^{60}\text{Co}$  et  $^{95}\text{Zr}$ , ceci est illustré dans la figure III.3-1.

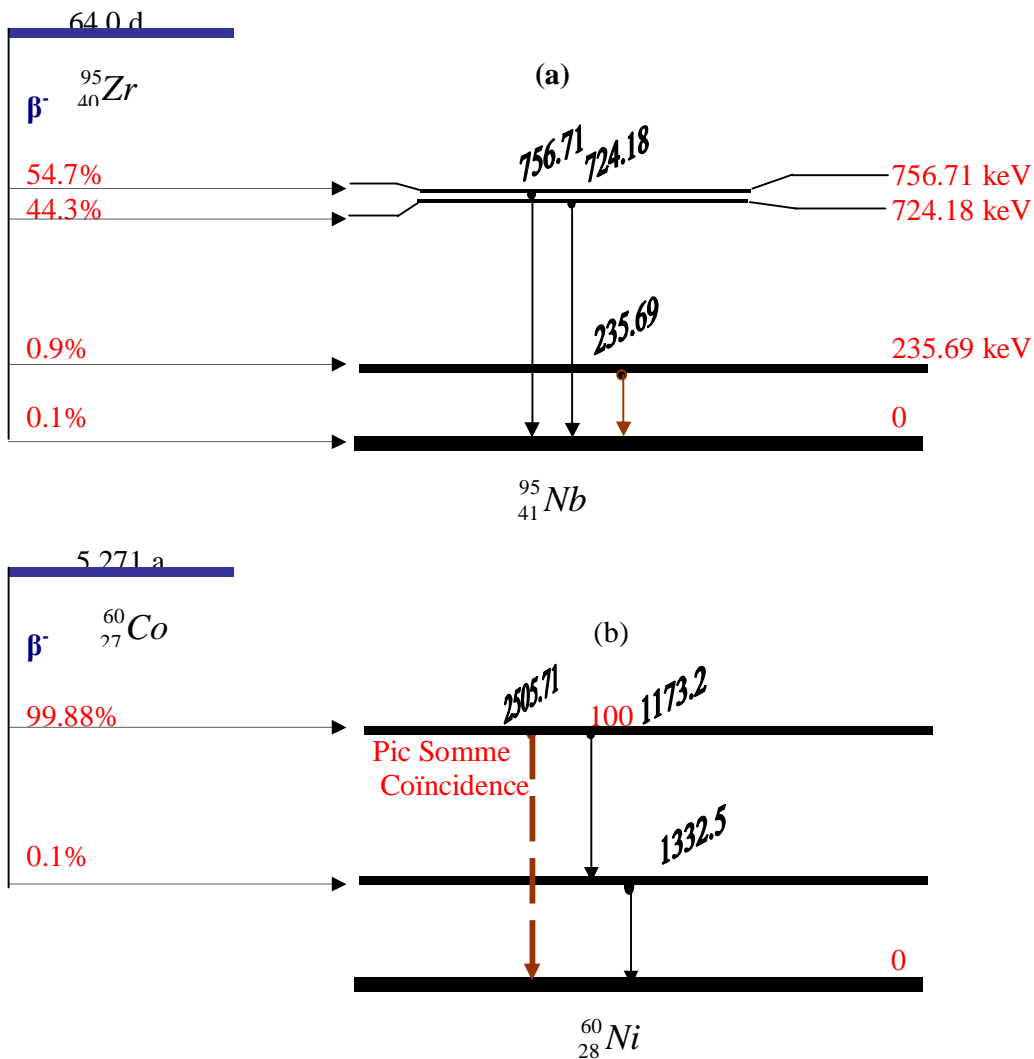


Fig. III.3-1. Désintégration  $^{95}\text{Zr}$  et  $^{60}\text{Co}$ ; (a) absence des coïncidences, (b) présence des coïncidences.



Ces effets (vraie coïncidence) ne doivent pas être confondu avec la coïncidence aléatoire, qui se produit quand deux photons ou plus de différents noyaux (photons non reliés entre eux) frappent le détecteur dans son temps de résolution. Il est clair que la proportion des vraies coïncidences pour le nuclide donné ne dépend pas du taux de comptage (c.-à-d. activité de la source) comme est le cas pour des coïncidences aléatoires, mais seulement sur l'efficacité de détecteur pour les photons considérés.

Considérant seulement les raies gamma avec des énergies supérieures à 100 keV, qui sont d'intérêt pratique principal dans NAA, les deux conséquences les plus hypothéquer des effets des vraies coïncidences [Jov et al., 1988] sont :

- a) Perte de coïncidences  $\gamma - \gamma$  et
- b) Somme de coïncidence  $\gamma - \gamma$

La perte de coïncidence  $\gamma - \gamma$  est illustrée dans la figure III.1-2a pour une cascade simple avec deux photons. La raie gamma du photon A est mesurée.

Dénotons par  $N_{p,A}$ , la surface du pic de cette raie. Quand la coïncidence A-B se produit, une impulsion sera obtenue pour la raie gamma à la somme de leurs énergies, alors que A sera perdu de  $N_{p,A}$ . par conséquent  $N_{p,A}$  est diminué par cet effet.

La somme de la coïncidence  $\gamma - \gamma$  est illustrée dans la figure III.1-2b, encore pour une simple cascade. La raie gamma de A est mesurée. Quand la coïncidence B-C se produit, une impulsion sera obtenue dans  $N_{p,A}$ , de ce fait entraînant une augmentation de  $N_{p,A}$ . le même raisonnement est valide pour des schémas de désintégration cascade plus complexe.

En général, la coïncidence perdue se produit quand le photon en cascade est écarté (exclu) de la mesure de la raie gamma, en coïncidant avec un autre gamma, tandis que les effets de sommation sont dû à la coïncidence de deux gamma ou plus de la cascade qui provoquent la même énergie que la raie gamma a mesurée.

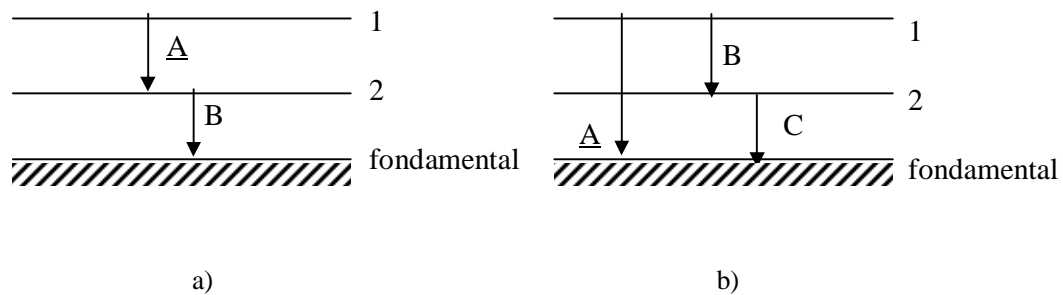


Fig. III.3-2. Les plus importants modes des effets des vraies coïncidences appropriés analytiquement ;  
a) perte de coïncidence  $\gamma - \gamma$ ; b) somme de coïncidence  $\gamma - \gamma$ ; les raies gamma mesurées sont soulignées.

### 3.2. Les facteurs de correction

Pour corriger les effets décrits ci-dessus, la procédure [De Corte 1987] appliquée dans le cas où la mesure soit effectuée à une petite distance source détecteur:

a) Perte de coïncidence  $\gamma - \gamma$ , la probabilité pour l'impulsion perdue de A due à la coïncidence avec A est donc :

$$L(\underline{A}-B) = a_B \cdot c_B \cdot e_{t,A} \quad (III.2-1)$$

$a_B$  = rapport de branchement = probabilité de la transition du niveau 2 au niveau fondamental par l'émission d'un photon B ; les autres modes de transition, lesquels peuvent aussi existés, complétant la probabilité de transition à 1,

$c_B$  = facteur de conversion = probabilité que B est émis, c à d. ne participe pas à une conversion interne ;

$e_{t,A}$  = efficacité de détection totale des photons A = la probabilité que A est détectée (c à d. son énergie est déposé partiellement ou totalement dans le cristal du détecteur).

La correction de la surface du pic

$$N_{p,A}(corr) = \frac{N_{p,A}}{1-L} \quad (III.2-2)$$

Le facteur de correction de la coïncidence  $\gamma - \gamma$  perdue est ainsi (1-L).

b) Coïncidence de sommation  $\gamma - \gamma$

Selon l'explication donnée dans les principes, la probabilité de la coïncidence de sommation  $\gamma - \gamma$   $\underline{A}$  B + C (Fig. III.2-1b) peut être exprimée comme :

$$S(\underline{A} = B + C) = \frac{I_{g,B}}{I_{g,A}} a_c c_c \frac{e_{p,B} \cdot e_{p,C}}{e_{p,A}} \quad (III.2-3)$$

Avec les rapports de branchement et les facteur de conversion décrits précédemment et

$I_\gamma$  = intensité absolue de la raie gamma = la probabilité que le photon gamma est émis dans la désintégration du radionucléide ;

$\varepsilon_p$  = efficacité de détection du pic = la probabilité que le photon gamma dépose son énergie totale dans le cristal du détecteur.

La correction de la surface du pic est donc :

$$N_{p,A}(corr) = \frac{N_{p,A}}{1+S} \quad (III.2-4)$$

Le facteur de correction est (1+S).

Le raisonnement précédent peut être étendu pour les cascades les plus complexes.

Dans le cas général [De Corte et al., 1992], la surface du pic  $N_p$  de la raie gamma (soulignée) est donnée par :

$$N_{p,\underline{A}}(corr) = \frac{N_{p,\underline{A}}(observé)}{COI_{\underline{A}}} \quad (III.2-5)$$

avec

$$COI_{\underline{A}} = (1 - L[\underline{A}])(1 + S[\underline{A}]) \quad (III.2-6)$$

Dans la partie caractérisation du site d'irradiation, la correction des effets des vraies coïncidence n'est pas incluse car nous avons choisis des moniteurs où les effets des vraies coïncidences ne sont pas présents.

## CHAPITRE IV. LA CONTRIBUTION DE L'ACTIVATION EPITHERMIQUE:

### LES PARAMETRES $\alpha$ , $\bar{E}_r$ , $f$ et $Q_0$

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

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

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

Ceci peut être illustré au moyen de deux exemples frappants :

a. Le premier exemple est lié à la détermination expérimentale de  $f$  en utilisant deux méthodes différentes, nommées :

§ Mesure du rapport Cd, en négligeant la déviation de la distribution  $1/E$ , l'Eq. (I.1-15) peut être réécrite comme :

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

avec  $r$  = rapport flux en connaissant la valeur  $Q_0$ .

§ Moniteur bi isotopique  $f$ , de l'Eq. (I.3-18) notée pour deux isotopes ( $1 = s$ ,  $2 = c$ ), et en négligeant la déviation de la distribution  $1/E$ , on peut trouver  $f$  comme [se rappeler que

$k_{0,2}(1) = k_{0,c}(1)/k_{0,c}(2)$ ]:

$$f = \frac{G_{e,1} \cdot \frac{K_{0,Au}(1)}{K_{0,Au}(2)} \cdot \frac{e_{p,1}}{e_{p,2}} \cdot Q_{0,1} - G_{e,2} \cdot \frac{A_{sp,1}}{A_{sp,2}} \cdot Q_{0,2}}{G_{th,2} \cdot \frac{A_{sp,1}}{A_{sp,2}} - G_{th,1} \cdot \frac{K_{0,Au}(1)}{K_{0,Au}(2)} \cdot \frac{e_{p,1}}{e_{p,1}}} \quad (\text{IV.1-2})$$

Les valeurs  $Q_0$  et les facteurs  $k_0$  des deux isotopes 1 et 2 sont connus dans la littérature (base de données et les compilations de  $k_0$ ).

Les résultats obtenus de  $f$  par les deux méthodes (rapport Cd de Au [Eq. (IV.1-1)] et le moniteur Zr nu [Eq. (IV.1-2)]) sont affichées dans le tableau IV.1-1, en supposant la dépendance  $j'_e(E) \sim 1/E$  ( $\alpha=0$ ).

Le tableau IV.1-1 montre -pour un canal du réacteur Es Salam – une comparaison de certains résultats typique pour la détermination de  $f$  selon les techniques précédentes, avec  $r = {}^{198}\text{Au}$ , 1 =  ${}^{95}\text{Zr}$  et 2 =  ${}^{97}\text{Zr}/{}^{97\text{m}}\text{Nb}$

Canal d'irradiation	Paramètre $f$	
	Méthode $R_{Cd, Au}$	Méthode bi isotopique Zr nu
	20.82	27.93

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

b. Le second exemple est lié à la détermination expérimentale de  $Q_0$  pour les mesures du rapport Cd. En négligeant encore la déviation de la distribution Eq. (IV.1-2) mène à

$$Q_0 = \frac{F_{Cd,r} R_{Cd,r}^{-1}}{F_{Cd} R_{Cd}^{-1}} \cdot \frac{G_{th}}{G_{th,r}} \cdot \frac{G_{e,r}}{G_e} Q_{0,r} \quad (\text{IV.1-3})$$

Le tableau IV.1-2 les résultats de  $Q_0$ , des réactions  ${}^{64}\text{Zn} (n,\gamma) {}^{65}\text{Zn}$ ,  ${}^{94}\text{Zr} (n,\gamma) {}^{95}\text{Zr}$  et  ${}^{96}\text{Zr} (n,\gamma) {}^{97}\text{Zr}$  avec  $r = {}^{198}\text{Au}$ .

Canal d'irradiation	$Q_0$ (par la méthode rapport Cd / valeur tabulée)		
	${}^{64}\text{Zn} (n,\gamma) {}^{65}\text{Zn}$	${}^{94}\text{Zr} (n,\gamma) {}^{95}\text{Zr}$	${}^{96}\text{Zr} (n,\gamma) {}^{97}\text{Zr}$
	1.77 / 1.908	3.41 / 5	112.94 / 248

D'après les résultats de  $Q_0$ , données dans le tableau IV.1-2, les anomalies sont énormes dans le cas de la distribution  $1/E$  du flux épithermique donc sans la l'introduction du paramètre  $\alpha$ . Nous constatons aussi que la différence (entre la valeur calculée en utilisant la méthode rapport cadmium et la valeur tabulée) augmente dans le cas de  $Q$  élevé. Donc si la contribution du flux épithermique est consistante la correction devient importante.

1.2. Introduction de la distribution  $1/E^{1+\alpha}$  et l'énergie de résonance effective  $\bar{E}_r$

Le taux de réaction par noyau peut être exprimé comme (I.1-3); en éliminant ( $G_{th}$  et  $G_e$ ) :

$$R = f_s s_0 + \int_{E_{Cd}}^{\infty} j'_e(E) s(E) dE \quad (IV.1 - 4)$$

Comment peut on traité l'Eq. (IV.1-4) pour la forme non 1/E épithermique, ceci peut être résolu par l'une des approches [De Corte, 1987] suivantes:

a. L'évaluation rigoureusement du terme  $\left[ \int_{E_{Cd}}^{\infty} j'_e(E) s(E) dE \right]$ , par l'introduction des

fonctions  $s(E)$  et  $j'_e(E)$ . Ces derniers peuvent être obtenus par les codes de calcul pour le déploiement du spectre du réacteur, basé sur la technique d'activation de plusieurs feuilles; pour l'aperçu de la situation actuelle. il est claire que cette méthodologie, implique l'irradiation et la mesure de certains détecteurs d'activation (incluant des irradiations avec Cd) est loin d'approprier à la pratique quotidienne de l'analyse par activation neutronique ;

b. Remplacement de l'intégrale  $\left[ \int_{E_{Cd}}^{\infty} j'_e(E) s(E) dE \right]$  par une simple expression de la forme

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

$$j'_e(E) \sim 1/E^{1+\alpha}, i.e. j'_e(E) = f_e \cdot 1 \text{ eV} / E^{1+\alpha} \quad (IV.1-5)$$

avec  $\alpha$  indépendant de l'énergie du neutron, et ou 1 eV- négligé dans les équations suivantes- représente l'énergie de référence.

Comme monté dans I.1.3.3, l'approximation (IV.1-5) permet la définition et l'introduction de :

$$I_0 = \int_{E_{Cd}}^{\infty} s(E) dE / E^{1+\alpha} \quad (IV.1-6)$$

et

$$Q_0(a) = I_0(a) / s_0 \quad (IV.1-7)$$

Donc peut être écrit comme :

$$R = f_s S_0 + f_e I_0(\mathbf{a}) \quad (\text{IV.1 - 8})$$

Cependant, les valeurs  $Q_0$  dans les Eqs (IV.1-1) et (IV.1-3) doivent être remplacées par  $Q_0(\alpha)$ , ce qui mène à :

$$f = (F_{Cd,r} R_{Cd,r}^{-1}) \cdot G_{e,r} Q_{0,r}(\mathbf{a}) / G_{th,r} \quad (\text{IV.1-9})$$

$$f = \frac{G_{e,1} \cdot \frac{K_{0,Au}(1)}{K_{0,Au}(2)} \cdot \frac{e_{p,1}}{e_{p,2}} \cdot Q_{0,1}(\mathbf{a}) - G_{e,2} \cdot \frac{A_{sp,1}}{A_{sp,2}} \cdot Q_{0,2}(\mathbf{a})}{G_{th,2} \cdot \frac{A_{sp,1}}{A_{sp,2}} - G_{th,1} \cdot \frac{K_{0,Au}(1)}{K_{0,Au}(2)} \cdot \frac{e_{p,1}}{e_{p,2}}} \quad (\text{IV.1-10})$$

$$Q_0(\mathbf{a}) = \frac{F_{Cd,r} R_{Cd,r}^{-1}}{F_{Cd} R_{Cd}^{-1}} \cdot \frac{G_{th}}{G_{th,r}} \cdot \frac{G_{e,r}}{G_e} Q_{0,r}(\mathbf{a}) \quad (\text{IV.1-11})$$

Evidement, maintenant le problème a été décalé à la détermination expérimentale de  $\alpha$  (voir IV.1.4) et le calcul de  $Q_0(\alpha)$ , comme définit par les (IV.1-6) et (IV.1-7).

Donc, il est plus encourageant de calculer  $Q_0(\alpha)$  d'une manière relative, i.e. par la conversion de l'évaluation et la compilation des valeurs  $Q_0$  avec l'introduction de  $\alpha$  et du paramètre de résonance à ce moment la, il est utile d'introduire le concept de l'énergie effective de résonance  $\bar{E}_r$ . Cette dernière est l'énergie d'une résonance simple hypothétique (équivoque) qui donne le même taux d'activation de résonance que les résonances réelles pour l'isotope.

A partir de cette description,  $\bar{E}_r$  doit dépendre de la distribution du flux des neutrons épithermiques, c.-à-d. dans le paramètre  $\alpha$ , et devrait être dénoté comme  $\bar{E}_r(\mathbf{a})$ .

En effet selon la définition:

$$[\bar{E}_r(\mathbf{a})]^{-a} = I'_0(\mathbf{a}) / I'_0 \quad (\text{IV.1-12})$$

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

$$[\bar{E}_r(\mathbf{a})]^{-a} = \frac{1}{\sum_i w_i} \cdot \sum_i w_i E_{r,i}^{-a} \quad (\text{IV.1-13})$$

avec  $I'_0$  et  $I'_0(\mathbf{a})$  = les intégrales de résonance réduits (soustraction de la partie  $1/v$ );

$$w_i = (g \Gamma_g \Gamma_n / \Gamma)_i / E_{r,i}^2;$$

$g$  = facteur de poids statistique;

$\Gamma_g$  = largeur radiative de la résonance;

$\Gamma_n$  = largeur de la résonance du neutron;

$\Gamma$  = largeur de la résonance totale.

Il a été montré que  $\bar{E}_r(\alpha)$  peut être approximée raisonnablement par la valeur  $\bar{E}_r$

indépendamment de  $\alpha$ , calculée de :

$$\ln \bar{E}_r = \frac{1}{\sum_i w_i} \cdot \sum_i w_i \ln E_{r,i} \quad (\text{IV.1-14})$$

En utilisant les équations (I.1-7a) et (I.1-7b), on peut déduire la relation entre  $I_0(\mathbf{a})$  et  $I_0$  donnée comme :

$$I_0(\mathbf{a}) = (I_0 - 0.429) s_0 (\bar{E}_r)^{-\mathbf{a}} + s_0 C_{\mathbf{a}} \quad (\text{IV.1-15})$$

ou

$$C_{\mathbf{a}} = \frac{0.429}{(2\mathbf{a} + 1)(0.55)^{\mathbf{a}}} \quad (\text{IV.1-16})$$

Analogiquement, la formule de conversion pour le rapport de l'intégrale de résonance et la section efficace (dénote par  $Q_0(\mathbf{a}) = \frac{I_0}{s_0}$  et  $Q_0(\mathbf{a}) = \frac{I_0(\mathbf{a})}{s_0}$ ) peut être écrit comme :

$$Q_0(\mathbf{a}) = (Q_0 - 0.429) (\bar{E}_r)^{-\mathbf{a}} + C_{\mathbf{a}} \quad (\text{IV.1-17})$$

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

En effet, la forme la plus générale de l'Eq. (IV.1-15) s'écrit :

$$Q_0(\mathbf{a}) = (Q_0 - 0.429) \cdot \bar{E}_r^{-\mathbf{a}} + 0.429 / [(2\mathbf{a} + 1)(0.55)^{\mathbf{a}}] \quad (\text{IV.1-18})$$

avec  $E_0 : 0.0253$  eV.

Ainsi que la conversion  $Q_0(\mathbf{a}) \longrightarrow Q_0$

$$Q_0 = (Q_0(\mathbf{a}) - 0.429 / [(2\mathbf{a} + 1)(0.55)^{\mathbf{a}}]) \cdot E_r^{-\mathbf{a}} + 0.429 \quad (\text{IV.1-19})$$



## 2. Détermination de $f$ et $\alpha$ pour $k_0$ -NAA dans un canal d'irradiation du réacteur Es Salam

Les méthodes expérimentales pour la détermination de  $\alpha$  peuvent être classifiées en trois groupes basées sur les mesures : des rapports Cd, l'irradiation couvert Cd et l'irradiation nue, respectivement.

L'utilisation des procédures de calcul mathématiques exige la qualification de programmation et la connaissance des techniques d'analyse numérique compliquées. C'est à grâce à l'approche itérative de régression linéaire qui a été décrite [Man et al., 2003], que la détermination du paramètre  $\alpha$  est devenue plus simple et facile. Les différentes étapes de calcul sont décrites explicitement dans la partie expérimentale.

Dans ce travail, nous adoptons trois types des méthodes citées ci-dessus pour la détermination de  $\alpha$ . Par contre la détermination du paramètre  $f$  est liée à la valeur de  $\alpha$  (voir les chapitres précédents) et par conséquent  $Q_0$  ( $\alpha$ ) [Eq. (IV.1-11)]. En effet, le paramètre  $f$  peut être obtenu en utilisant l'Eq. (IV.1-9) pour la méthode rapport Cd et l'Eq. (VI.1-10) pour la méthode du moniteur bi isotopique nu en utilisant Zr.

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

#### 2.1.1. Principe

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

$$\text{Log} \frac{(\bar{E}_{r,i})^{-a} (A_{s,p})}{k_{0,Au}(i) \cdot e_{p,i} \cdot F_{Cd,i} \cdot Q_0(a) \cdot G_{e,i}} \text{ en fonction de } \log \bar{E}_{r,i} \quad (\text{IV.2 -1})$$

ou 'i' dénote l'isotope 1, 2,3,....., N;

Le terme gauche de l'Eq. (IV.2-1) soit une fonction de  $\alpha$ , et ainsi une procédure itérative devrait être appliquée, avec l'analyse de régression de moindre carré pour adapter les données expérimentales aux lignes droites de chaque étape itérative.

Mathématiquement, le résultat final de  $\alpha$  pour cette procédure d'itération est identique avec la solution de  $\alpha$  à partir de l'équation :

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

avec

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

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

Le tableau IV.2-1 montre la liste moniteurs adaptés et les données nucléaires appropriées utilisés dans ce travail. La sélection des moniteurs est basée sur leurs caractéristiques physiques, feuilles et fils, métalliques ou dilués avec  $\bar{E}_r$  variant de 5 à 6000 eV. Ceci permet de vérifier la linéarité de la courbe  $\log (T_i)$  vs.  $\text{Log} (\bar{E}_r)$ . Ainsi prouvant que  $\alpha$  est constante sur toute la région d'énergie épithermique du canal d'irradiation étudié.

Le tableau IV.2-1. L'ensemble des moniteurs utilisés et leurs données nucléaires appropriées.

Moniteur	$E_r$ , eV	$Q_0$	demi-vie	E, keV	$k_{0,Au}$
$^{197}\text{Au}(n,\gamma)^{198}\text{Au}$	5.65	15.71	2.695 j	411.8	1 ( $F_{Cd}=0.991$ )
$^{59}\text{Co}(n,\gamma)^{60}\text{Co}$	136	1.99	5.271 a	1173.2	1.32
( $G_e = 0.95$ )*				1332.5	1.32
$^{96}\text{Zr}(n,\gamma)^{97m}\text{Zr}$	338	248	16.9 h	743.3	1.30E-5
( $G_e = 0,9728$ )**					
$^{68}\text{Zn}(n,\gamma)^{69m}\text{Zn}$	590	3.19	13.76 h	438.6	3,98E-04
$^{64}\text{Zn}(n,\gamma)^{65}\text{Zn}$	2560	1.908	244 j	1115.5	5.72E-3
$^{94}\text{Zr}(n,\gamma)^{95}\text{Zr}$	6260	5	64.02 d	724.2	9.32E-5
( $G_e = 0,982$ )**				756.7	1.15E-4

### 2.1.2. Expérience

Huit ensembles de moniteurs dénotés par  $E_1, E_2, \dots, E_8$ , sont préparés en utilisant le matériel suivant :

- § Feuille de Zr (pureté 99.5%, épaisseur : 0.127 mm, 6 mm de diamètre, Alfa Aesar) ;
- § Fil d' Au (Au 0.1%- Al, diamètre 1mm, 4 mm de longueur, IRMM-530) ;
- § Feuille de Co (pureté 99.99%, épaisseur 0.025 mm, diamètre 6 mm, Goodfellow) ;
- § Chute de Zn (pureté 99.99%, forme libre, chinois) ;
- § et des feuilles de Cadmium pur utilisé pour préparer des couvertures.

Les échantillons sont donc pesés et conditionnés dans des feuilles en aluminium, ensuite mis dans une boîte en cadmium afin de les placer dans la capsule d'irradiation. La disposition de ces derniers est illustrée par la figure IV.2-1.

La capsule d'irradiation est mise dans un flux thermique de  $3.8 \cdot 10^{13} \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$  pendant 1 heure dans le canal étudié.

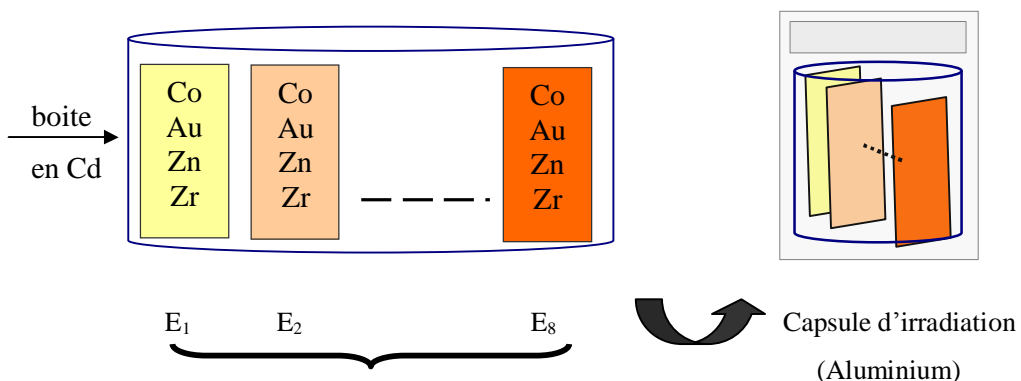


Fig. IV.2-1. Disposition des échantillons dans la capsule d'irradiation

Après un temps de refroidissement approprié d'environ 2 – 3 jours pour moniteur Zn et Zr, les activités induites par radionucléides sont mesurées pendant 100 minutes à l'aide d'un spectromètre de raies gamma calibré (voir chapitre III). En effet, dans chaque mesure, l'échantillon est placé à 11.7 cm du détecteur (distance de référence) de telle sorte les effets des vraies coïncidences sont négligeables. La mesure des autres moniteurs Au et Co est effectuée durant un temps variant entre 900 et 2000 secondes.

Dans le présent travail, la correction du comptage perdu et effectuée en mode temps réel en utilisant l'équation suivante :

$$N_{corr} = \frac{N_{obs}}{1 - \left(\frac{DT}{100}\right)} \quad (IV.2-3)$$

$N_{corr}$  = nombre de coups dans la surface du pic corrigé par le comptage perdu ;

$N_{obs}$  = nombre de coups dans la surface du pic enregistré dans le temps réel T;

DT = temps mort partiel.

Le calcul de correction de self shielding ( $G_e$ ) des neutrons épithermiques est effectué à partir des équations IV.2-4 pour les moniteurs de zirconium [Manh et al., 2003] voir le tableau IV.2-1.

$$G_e(^{97}\text{Zr}) = 1 - 2.327 \cdot 10^{-4} \cdot d + 1.487 \cdot 10^{-7} \cdot d^2$$

et

$$G_e(^{95}\text{Zr}) = 1 - 1.543 \cdot 10^{-4} \cdot d + 1.143 \cdot 10^{-7} \cdot d^2 \quad (IV.2-4)$$

ou d est l'épaisseur de la feuille Zr en  $\mu\text{m}$

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

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

Le processus itérative est stoppé si on n'observe aucune variation signification dans  $\alpha$

$[a(n-1) \cong a(n)]$ .

### 2.1.3. Résultats et discussion

Au début,  $\alpha$  est placé à zéro pour calculer  $Q_0(a), \log(T_i)$  et la pente. Le résultat résultant de  $\alpha$  est utilisé en tant que point de départ pour l'itération suivante.

Tableau IV.2-2 . Les résultats de la méthode de “régression linéaire itérative”

Moniteur	$\log(E_r)$	$Q_0$	étape 1		étape 10	
			$\log(T_1)$	$Q_0(a_1)$	$\log(T_9)$	$Q_0(a_1)$
$^{197}\text{Au} (n,\gamma) ^{198}\text{Au}$	0.7520	15.71	11.6998	14.89276	11.6999	14.7400
$^{59}\text{Co} (n,\gamma) ^{60}\text{Co}$	2.1335	1.99	11.6957	1.77124	11.6828	1.71473
$^{96}\text{Zr} (n,\gamma) ^{97m}\text{Zr}$	2.5289	248	11.7039	208.95334	11.5661	203.28617
$^{68}\text{Zn} (n,\gamma) ^{69m}\text{Zn}$	2.7708	3.19	11.6318	1.58540	11.6200	1.51770
$^{64}\text{Zn} (n,\gamma) ^{65}\text{Zn}$	3.4082	1.908	11.7125	4.12269	11.6869	3.94798
$^{94}\text{Zr} (n,\gamma) ^{95}\text{Zr}$	3.7966	5	11.5521	2.68619	11.5412	2.59360
			$\alpha_1 = 0.03196$		$\alpha_{10} = 0.03667$	

Le tableau IV.2-1. présente une partie du bilan des calculs. La première itération (étape 1) résulte en  $\alpha_1 = 0.0319$  ainsi que la dixième et dernière itération (étape 10), mène à  $\alpha_{10} = 0.0366$  et le facteur de corrélation de  $R^2 = 0.93$ .

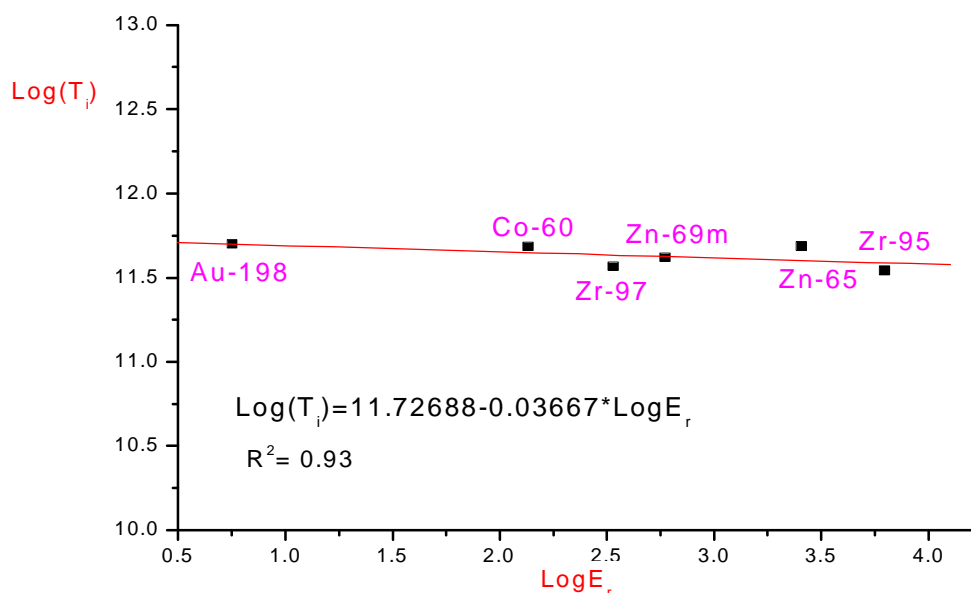


Fig. IV.2-2: Détermination expérimentale de  $\alpha$  par la méthode Cd-covered dans le réacteur Es-Salam après dix itérations

Le résultat de la dernière itération, dérivée de la méthode ‘‘multi moniteur couvert par Cd’’, est présenté graphiquement dans la figure (IV.2-2) la pente de ligne droite est ajustée a partir des point expérimentaux en utilisant tout les radionucléides énumérés dans le tableau IV.2-2 ( $^{198}\text{Au}$ ,  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{69m}\text{Zn}$ ,  $^{97m}\text{Nb}$ ,  $^{69m}\text{Zn}$  et  $^{95}\text{Zr}$ ).

En remplaçant la valeur de  $\alpha$  dans l’Eq. (IV.1-9) en obtient la valeur de f qui égale à 19.54

## 2.2. Méthode rapport Cd d’un multi moniteur

### 2.2.1. Principe

Cette méthode peut être employée a priori pour la surveillance de  $\alpha$  à condition que les caractéristiques du flux neutronique sont connues afin de contrôler leurs stabilité en fonction du temps.

Un ensemble de N moniteurs est irradié avec et sans couvercle Cd, et les activités induites sont mesurées dans un détecteur calibré. Si tous les moniteurs ont une dépendance  $\sigma(v) \sim 1/v$  supérieure à  $\sim 1.5$  eV, et chacun d’entre eux caractérisé par l’énergie de résonance effective  $\bar{E}_r$ . Le paramètre  $\alpha$  peut être obtenu comme une pente ( $-\alpha$ ) de la ligne droite en traçant :

$$\log \frac{(\bar{E}_{r,i})^{-\alpha}}{(F_{Cd,i} R_{Cd,i} - 1) \cdot Q_0(\alpha) \cdot G_{e,i} / G_{th,i}} \text{ en fonction de } \log \bar{E}_{r,i} \quad (\text{IV.2 - 3})$$

ou ‘i’ dénote l’isotope 1, 2,3,....., N ;

Le terme gauche de l’Eq. (IV.2-3) dépend de  $\alpha$ , et donc la procédure itérative devrait être appliquée (voir IV.1.2).

Mathématiquement, le résultat final de  $\alpha$  pour cette procédure d’itération est identique avec la solution de  $\alpha$  a partir de l’équation :

$$a + \frac{\sum_i^N \left\{ \left[ \log \bar{E}_{r,i} - \frac{\sum_i^N \log \bar{E}_{r,i}}{N} \right] \left[ \log T_i - \frac{\sum_i^N \log T_i}{N} \right] \right\}}{\sum_i^N \left[ \log \bar{E}_{r,i} - \frac{\sum_i^N \log \bar{E}_{r,i}}{N} \right]^2} = 0 \quad (\text{IV.2 - 4})$$

avec

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

### 2.2.2. Expérience

Dans cette méthode, nous avons utilisés les mêmes ensembles de moniteurs mais ils sont irradiés avec et sans cadmium. En effet, nous avons appliqués les étapes telles que la préparation et la disposition des moniteurs dans la capsule d'irradiation. La procédure expérimentale de cette méthode nécessite la préparation de deux capsules, une pour les moniteurs nus (sans cadmium) et l'autre pour les moniteurs couverts par du cadmium.

Les moniteurs nus et couverts par du Cd sont irradiés dans un flux thermique d'environ  $3.8 \cdot 10^{13} \text{ n} \cdot \text{cm}^2 \text{s}^{-1}$  pendant une demi heure et une heure, respectivement.

Après un temps de refroidissement de 2-3 jours, les échantillons irradiés sont mesurés par le spectromètre gamma. En effet, les moniteurs irradiés sous cadmium Zn et Zr sont mesurés avec un temps de comptage de 100 minutes ainsi que la collection des autres spectres est effectuée avec un temps variant entre 900 et 2000 secondes.

Pour la détermination  $\alpha$ , les mêmes étapes de calcul (l'approche de régression linéaire itérative) sont appliquées.

Il est important de noter que la description précédente de la méthode 'rapport Cd d'un multi moniteur' rapporte en plus le paramètre f, puisqu'il est évident à partir de la figure IV.2-2, le paramètre f peut être obtenu d'une valeur accommodée de  $\log(1/f)$  à  $\log E_r = 0$ .

La valeur obtenue de f à partir de l'Eq. (IV.1-9) est 19.25

### 2.2.3. Résultats et discussion

Comme précédemment, on applique les mêmes étapes pour déterminer  $\alpha$ .

Le tableau IV.2-3 présente une partie du bilan des calculs. La première itération (étape 1) donne  $\alpha_1 = 0.038$  et la dixième et dernière itération (étape 10), mène à  $\alpha_{10} = 0.045$  avec un facteur de corrélation  $R^2 = -0.9411$

Évidemment, cette méthode est la seule qui a l'avantage d'éviter l'introduction des facteurs  $k_0$  et permet des mesures simples sur un détecteur Ge(HP) sans besoin de la courbe d'efficacité de détection. D'autre part, en raison des deux types d'irradiations exigées, aucune surveillance instantanée de la distribution de flux des neutrons épithermiques n'est possible.

Tableau IV.2.-3 Les résultats de la méthode de “régression linéaire itérative”

Moniteur	$\log(E_r)$	$Q_0$	étape 1		étape 10	
			$\log(T_1)$	$Q_0(a_1)$	$\log(T_9)$	$Q_0(a_1)$
$^{197}\text{Au} (n,\gamma) ^{198}\text{Au}$	0.7520	15.71	-1.31859	14.69523	-1.31854	14.52102
$^{59}\text{Co} (n,\gamma) ^{60}\text{Co}$	2.1335	1.99	-1.4876	1.70014	-1.5039	1.65558
$^{96}\text{Zr} (n,\gamma) ^{97m}\text{Zr}$	2.5289	248	-1.73671	200.76120	-1.73688	193.24862
$^{68}\text{Zn} (n,\gamma) ^{69m}\text{Zn}$	2.7708	3.19	-1.44175	1.49828	-1.45659	1.43998
$^{64}\text{Zn} (n,\gamma) ^{65}\text{Zn}$	3.4082	1.908	-1.34687	3.88121	-1.397932	3.68405
$^{94}\text{Zr} (n,\gamma) ^{95}\text{Zr}$	3.7966	5	-1.52886	2.56296	-1.54271	2.47105
			$\alpha_1 = 0.038$		$\alpha_{10} = 0.045$	

Le résultat de la dernière itération, dérivé de la méthode ‘multi moniteur couvert par Cd’, est présenté graphiquement dans la figure (IV.2-3). La pente de ligne droite est ajustée à partir des points expérimentaux en utilisant tout les radionucléides énumérés dans le tableau IV.2-3 ( $^{198}\text{Au}$ ,  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{69m}\text{Zn}$ ,  $^{97m}\text{Nb}$ ,  $^{69m}\text{Zn}$  et  $^{95}\text{Zr}$ ).

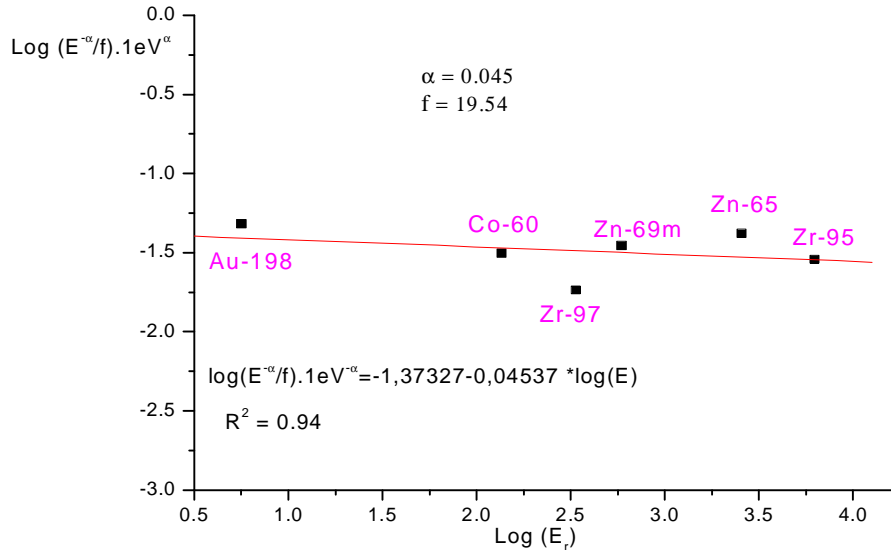


Fig. IV.2-3 détermination expérimentale de  $\alpha$  par la méthode Cd-ratio dans le réacteur Es-salam après 10 itérations



## 2.3. La méthode d'un multi moniteur nu

### 2.3.1. Principe

Cette méthode est essentielle pour la détermination de  $\alpha$  dans NAA.

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

$$\log \left\{ (\bar{E}_{r,i})^{-a} A_i \right\} \text{ en fonction de } \log \bar{E}_{r,i} \quad (\text{IV.2 - 6})$$

avec

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

et où l'index "ref" dénote moniteur de l'isotope référence.

Analogiquement aux méthodes précédentes (voir IV.2.1 et IV.2.2),  $\alpha$  peut être obtenu de l'équation suivante :

$$a + \frac{\sum_i^N \left\{ \left[ \log \bar{E}_{r,i} - \frac{\sum_i^N \log \bar{E}_{r,i}}{N} \right] \left[ \log \left\{ (\bar{E}_{r,i})^{-a} A_i \right\} - \frac{\sum_i^N \log \left\{ (\bar{E}_{r,i})^{-a} A_i \right\}}{N} \right] \right\}}{\left[ \sum_i^N \left[ \log \bar{E}_{r,i} - \frac{\sum_i^N \log \bar{E}_{r,i}}{N} \right] \right]^2} = 0 \quad (\text{IV.2-7})$$

("ref" n'est pas inclus dans les séries i).

Notant que le nombre minimale des moniteurs est trois (N = 2, plus la référence), ceci mène à la méthode "triple moniteur nu". Alors,  $\alpha$  peut être trouvé à partir de l'équation suivante :

$$(a-b)Q_{0,1}(a)G_{e,1}/G_{th,1} - aQ_{0,2}(a)G_{e,2}/G_{th,2} + bQ_{0,3}(a)G_{e,3}/G_{th,3} = 0 \quad (\text{IV.2-8a})$$

avec :

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

(IV.2 - 8b)

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

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

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

En pratique, nous avons utilisés des fils (0.1% Au – Al) de 1 mm de diamètre les quels les paramètres de self shielding  $G_{th}$  et  $G_e=1$  et aussi des feuilles minces de Zr de 127  $\mu\text{m}$  d'épaisseur, avec  $G_{th} =1$ , et  $G_e=0.983$  pour le  $^{94}\text{Zr}(n,\gamma)$  et  $G_e=0.973$  pour  $^{96}\text{Zr}(n,\gamma)$  (voir tableau IV.2-1).

En plus pour des considérations de précision et d'exactitude qui présentent des avantages pratiques, nous utilisons la combinaison Au+Zr ou les effets des vraies coïncidences ne sont pas produits. (Concernant les raies gamma appropriées ( $^{198}\text{Au}$  : 411.8 keV ;  $^{95}\text{Zr}$  : 724.2 et 756.7 keV ;  $^{97}\text{Zr}/^{97m}\text{Nb}$  : 743.3 keV).

En plus que les raies de  $^{95}\text{Zr}$ , d'énergie 724.2+756.7 keV sont différentes d'une manière significative de la raie gamma d'énergie 743.3 keV de  $^{97}\text{Zr}/^{97m}\text{Nb}$ . Ceci donne la possibilité d'utiliser la procédure du double comptage de Zr. Cependant les temps de mesure peuvent être laissé courts.

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

### 2.3.2. Expérience

De même pour la préparation, l'irradiation et la mesure des moniteurs irradiés.

Pour le calcul la procédure appliquée est comme suivant:

§ Le calcul du facteur «b» de l'Eq. (IV.2-8b) est basé sur la mesure de la feuille de Zirconium (moniteur 1 :  $^{97}\text{Zr}/^{97m}\text{Nb}$  743.3 keV) avec un temps de refroidissement très court et le fil Au-Al (moniteur 3 :  $^{198}\text{Au}$  411.8 keV) à la distance de référence (11.7 cm) dont les efficacités  $\epsilon_{p,1}$  et  $\epsilon_{p,3}$  sont exactement connues.

§ Le calcul du facteur «a» de l'Eq. (IV.2-8b) est basé sur la mesure de la feuille Zr (pour le moniteur 1 et 2), après 2-3 jours. La spécificité du moniteur Zr réside dans ces deux isotopes, dont les énergies des raies gamma sont très proches, donc on peut considéré que  $\epsilon_{p,1}/\epsilon_{p,2}=1$ , ceci permet dans ce cas, de faire la collection des spectres avec une courte géométrie (distance source détecteur).

Comme dans la méthode d'un multi moniteur couvert par Cd, les valeurs des efficacités doivent être précises pour la mesure des moniteurs et les effets des vraies coïncidences sont négligeables.

En prenant en compte toutes ces considérations et en appliquant les équations (IV.2-8a) et (IV.2-8b), la valeur obtenue du paramètre  $\alpha$  est 0.055.

Donc, pour le calcul du paramètre f nous remplaçons  $\alpha$  dans l'équation (IV.1-9) ou la valeur obtenue est 18.95.

### 2.3.3. Analyses et discussion

Quant au nombre de moniteurs et l'étendue de leurs énergies de référence, les mêmes conclusions que celles mentionnées pour la méthode couvercle Cd et rapport Cd.

Comme mentionné dans la partie expérimentale, les isotopes appropriés tel que  $^{197}\text{Au}$ , en combinaison avec deux isotopes Zr est un cas favorable, en plus Zr peut servir comme un moniteur de rapport de flux.

En plus des avantages cités précédemment, aucun des moniteurs de l'ensemble  $^{197}\text{Au}$ - $^{94}\text{Zr}$ - $^{96}\text{Zr}$  n'émettent des raies gamma en cascade, par conséquent, aucun effet de coïncidence ne devrait être corrigé pour de petites distances.

Le facteur f peut être obtenu comme dans les méthodes précédentes mais qu'avec  $\alpha = 0.055$ , donc  $f = 18.93$

On peut aussi calculé f à partir de l'équation (IV.1-10) [méthode Bi isotopique nu; Zr]

La valeur de  $f = 21.75$

Les résultats obtenus de f et  $\alpha$  pour les différentes méthodes sont rassemblés dans le tableau IV.2-3.

Tableau IV.2-4 : les paramètres du flux neutronique obtenus par différentes méthodes

méthode paramètre	rapport Cd	couverture Cd	triple moniteur nu	Bi isotopique nu Zr	moyenne
$\alpha$	0.0336	0.045	0.055	-	$0.045 \pm 0.01$
f	19.54	19.25	18.93	21.75	$20.50 \pm 1.8$

## 2.4. Conclusion

Nous estimons que les valeurs de  $\alpha$  obtenues par les différentes méthodes sont étroitement proches dont la valeur moyenne est de l'ordre 0.045 dans un intervalle d'erreur de 22%. La valeur d'erreur est analytiquement comparable avec celle obtenue dans le réacteur JRR-3M Vietnam [Dun et al., 2003] donc elle estimée acceptable.

Les mêmes conclusions sont tirées pour le paramètre  $f$  ou la valeur moyenne est de l'ordre 20.50 dans un intervalle d'erreur 8.7%.

## CHAPITRE V. VALIDATION DE L'IMPLEMENTATION DE LA METHODE K0-NAA PAR DES STANDARDS SRM

### 1. Introduction

Deux standards SRM Soil-7 et GSV-4 ont été utilisés pour évaluer la qualité des résultats analytiques obtenus par méthode  $k_0$ -INAA au réacteur Es Salam.

Il est important de noter que le standard Soil7 [Sar et al., 98, Dun et al., 2003, Nya et al., 2003] est commandé pour la vérification des résultats obtenus de la calibration du site d'irradiation et de mesure.

### 2. Expérience

#### 2.1. Préparation des échantillons

La masse pesée des moniteurs Au 0.1%-Al est de 5.4 mg et des standards SRM est dans l'intervalle 80-120 mg.

Trois exemplaires de chaque type de standard Soil-7 et GSV-4 avec les moniteurs d'Or sont placés dans la capsule d'irradiation afin d'être irradiés.

#### 2.2. Irradiation

La capsule d'irradiation est exposée dans un flux thermique  $4.77 \cdot 10^{+12} \text{ n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$  comme indiqué dans le tableau V.2-1 pendant 39 minutes dans le canal étudié.

Pour des raisons analytiques, le volume des standards et du moniteur doit être pris plus petit que possible afin de réduire les effets de self shielding des neutrons et l'atténuation gamma.

Tableau V.2-1 : Le flux neutronique du canal et ses caractéristiques

Site	$\alpha$	f ( $\phi_{th}/\phi_{epi}$ )	Flux des neutrons thermiques $\phi_{th}, \text{n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$
Canal d'irradiation	0.045	20.5	$4.77 \cdot 10^{+12}$

#### 2.3. Mesure et analyse des spectres

La collection des spectres est effectuée à l'aide d'un spectromètre gamma équipé d'un micro-ordinateur, voir Chap. III, le détecteur Ge(HP) est alimenté par une tension de polarisation + 4000 V, et sa résolution est de 1.8 keV (FWHM) à l'énergie gamma 1332.5 keV du  $^{60}\text{Co}$ .

Les standards et le comparateur sont mesurés à la distance référence 11.7 cm. Les corrections des vraies coïncidences de sommation à cette position ne sont pas considérées.

Nous avons effectués plusieurs campagnes d'analyse pour le dosage des éléments ayant des périodes moyennes et longues. Par contre le dosage des éléments caractérisés par des courtes demi-vies doit être effectué dans un canal lié à un système pneumatique.

Après des temps de refroidissement variant entre 25 heures et 12 jours comme indiqué dans le tableau V.2-2 .

Tableau V.2-2 : Classification des radionucléide basée sur le temps d'irradiation ( $t_i$ ), la demi vie ( $T_{1/2}$ ), temps de refroidissement ( $t_d$ ) et le temps de comptage ( $t_c$ )

Radionucléide	$t_i$	$T_{1/2}$	$t_d$	$t_c$
$^{76}\text{As}$ , $^{42}\text{K}$ , $^{82}\text{Br}$ , $^{152}\text{Eu}$ , $^{72}\text{Ga}$ , $^{56}\text{Mn}$ , $^{153}\text{Sm}$ , $^{24}\text{Na}$	39 mn	2 - 46 h	25 – 27 h	40 mn
$^{141}\text{Ce}$ , $^{181}\text{Hf}$ , $^{147}\text{Nd}$ , $^{175}\text{Yb}$ , $^{177}\text{Lu}$ , $^{160}\text{Tb}$ , $^{140}\text{La}$ , $^{182}\text{Ta}$ , $^{133}\text{Ba}$ , $^{47}\text{Ca}$ , $^{233}\text{Th(Pa)}$ , $^{60}\text{Co}$ , $^{51}\text{Cr}$ , $^{134}\text{Cs}$ , $^{59}\text{Fe}$ , $^{239}\text{U(Np)}$ , $^{65}\text{Zn}$ , $^{46}\text{Sc}$ , $^{124}\text{Sb}$	39 mn	jours - ans	7 – 12 j	13 h

## 2.4. Calcul

Les surface des pics correspondent à la différences des photo pics (ligne raie gamma) sont calculés par la somme des coups sous le pic et la soustraction du bruit de fond.

La surface du pic est convertie aux taux de comptage spécifiques ( $A_{sp}$ ) voir l'Eq (I.2-3) du premier chapitre. Donc la concentration de l'élément en g/g est calculée suivant l'Eq. (I.3-17).

Ou  $A_{sp,a}$  est le taux de comptage spécifique de l'élément dans l'échantillon normalisé par gramme,  $A_{sp,m}$  est le taux de comptage spécifique de  $^{198}\text{Au}$  par gramme du comparateur.

Puisque le volume des échantillons utilisés dans ce travail est petit, les effets de self- shielding sont considérés négligeables. Les données nucléaires employées dans cette étude sont prises des références [Jac. 2003, KAYZERO LIBRARY] présentées en Annexe.

### 3. Résultats et discussion

Le tableau V.2-1 montre les paramètres du spectre neutronique du canal étudié.

Les concentrations élémentaires mesurées pour le standard environnemental Soil-7 AIEA sont montrées dans le tableau V.2-3. Le tableau V.2-4 rapporte les concentrations élémentaires du standard biologique GSV-4.

Ces concentrations élémentaires sont les valeurs moyennes de trois mesures distinctes avec leurs précisions calculées comme le pourcentage des déviations standards relatives (DSR%).

La comparaison des concentrations élémentaires mesurées et certifiées (déviations % des concentrations mesurées des valeurs certifiées) des deux SRMs (Soil-7 AIEA et GSV-4) est montrée dans les figures V-1 et V-2.

Tableau V.2-3 : Concentrations élémentaires (en mg.kg<sup>-1</sup>) mesurées et certifiées du standard Soil7

Elément	AIEA - Soil 7		Elément	AIEA - Soil 7	
	Valeur mesurée	Valeur certifiée		Valeur mesurée	Valeur certifiée
As	14,2 ± 0.5	13,4 ± 0.8	Mn	680 ± 64	631 ± 29
Ba*	111,2 ± 36.14	159 ± 3.25	Na*	2600 ± 10	2400 ± 10
Br	7,2 ± 0.4	7 ± 0.35	Nd*	40 ± 10	30 ± 6
Ca*	163087 ± 724	16,3 ± 0.85	Rb	54,5 ± 6.3	51 ± 4.6
Ce	65 ± 3.4	61 ± 6.5	Sb	1,8 ± 0.39	1,7 ± 0.2
Co	8,32 ± 0.39	8,9 ± 0.89	Sc	8,7 ± 0.3	8,3 ± 1.1
Cr	70 ± 3.36	60 ± 12.6	Sm	4,84 ± 0.16	5,1 ± 0.36
Cs	5,25 ± 0.37	5,4 ± 0.76	Ta	0,88 ± 0.14	0,8 ± 0.2
Eu	1,02 ± 0.03	1 ± 0.2	Tb	0,6 ± 0.2	0,6 ± 0.2
Fe*	26900 ± 900	25700 ± 550	Th	8,5 ± 0.5	8,2 ± 1.1
Ga*	10,36 ± 0.59	10 ± 2	U	2,3 ± 0.4	2,6 ± 0.55
Hf	5,07 ± 0.19	5,1 ± 0.35	Yb	2,32 ± 0.12	2,4 ± 0.35
K	14400 ± 500	12100 ± 700	Zn	105 ± 5.9	104 ± 6.2
La	28,54 ± 0.97	28 ± 1.2			

Tableau V.2-4 : Concentrations élémentaires (en mg.kg<sup>-1</sup>) mesurées et certifiées du standard GSV-4

Chinois – GSV4		
Elément	Valeur mesurée	Valeur certifiée
As	0,31 ± 0.03	0,28 ± 0.03
Ba	50,9 ± 16.2	58 ± 3
Br	3,340 ± 0.2	3,4 ± 0.4
Cs	0,22 ± 0.03	0,29 ± 0.02
Eu	0,013 ± 0.02	0,018 ± 0.002
K	1,86 ± 0.06	1,66 ± 0.06
La	0,58 ± 0.05	0,6 ± 0.03
Mn	1239 ± 35	1240 ± 40
Rb	77 ± 4	74 ± 4
Sc	0,081 ± 0.009	0,085 ± 0.009
Sm	0,06 ± 0.009	0,085 ± 0.017
Zn	25,6 ± 2.3	26,3 ± 0.9

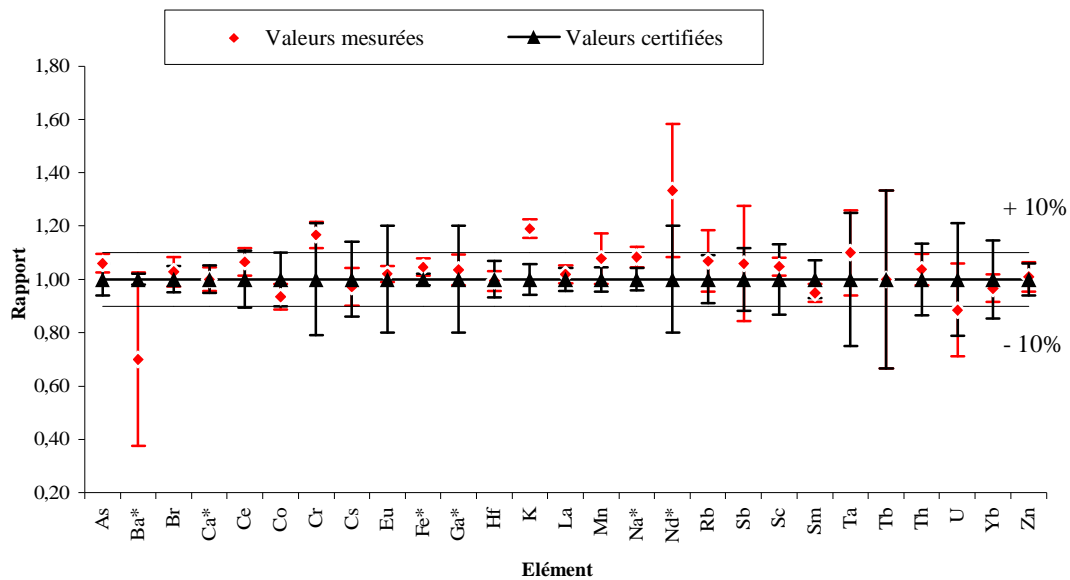


Fig.V-1. Comparaison des résultats expérimentaux k<sub>0</sub>-NAA et certifiés du Soil7

NB : les valeurs des éléments indexé par (\*) sont non certifiées



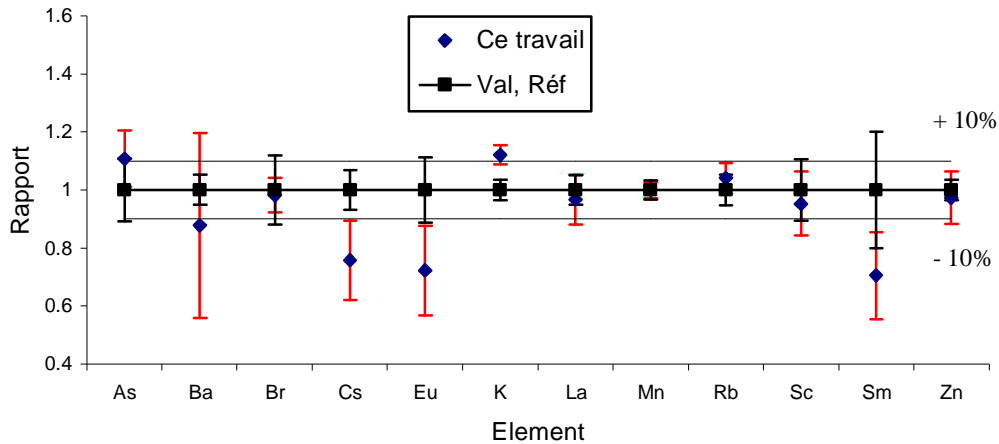


Fig.V-2. Comparaison des résultats expérimentaux  $k_0$ -NAA et certifiés du GSV4

#### 4. Conclusion

La standardisation  $k_0$ -NAA est adoptée dans le réacteur Es-Salam en utilisant un canal d'irradiation. La validation de la méthode avec les valeurs  $f$  et  $\alpha$  que nous avons obtenus montre une bonne concordance entre les valeurs mesurées et certifiées pour les deux SRM. En effet, la procédure d'analyse multi élémentaire basée sur la méthode  $k_0$ -NAA permet de déterminer simultanément la concentration de 27 éléments (As, Ba, Br, Ca, Ce, Co, Cr, Eu, Fe, Ga, Hf, K, La, Lu, Mn, Na, Nd, Rb, Sb, Sc, Sm, Th, Ta, Tb, U, Yb, Zn).

Les résultats préliminaires révèlent que la méthode  $k_0$ -NAA établie dans le réacteur Es-Salam peut être considérée comme une méthode de standardisation de NAA fiable et en même temps accessible pour des applications pratiques.

## Conclusion

L'analyse par activation neutronique (AAN) est une technique compétitive, elle nous permet donc d'analyser - avec précision - simultanément un grand nombre d'élément.

Depuis plusieurs années notre laboratoire utilise la méthode relative qui nécessite l'emploi des standards de référence. Cette obligation est considérée comme un désavantage, puisque ces standards sont chers et ne pas toujours disponibles. En plus, la détermination des éléments est conditionnée par les éléments existant dans le standard, alors que d'autres éléments (pics) présentés dans le spectre gamma de l'échantillon irradié ne peuvent être dosés à cause de l'absence de ces pics dans le standard. Pour toutes ces raisons, nous avons optés pour implémenter la méthode  $k_0$ -NAA.

En effet, cette méthode n'exige pas l'utilisation des standards et elle permet le dosage de tous les pics existants dans le spectre.

Les paramètres  $\alpha$ ,  $f$  et  $Q_0(\alpha)$  liés à la méthode  $k_0$ -NAA sont déterminés expérimentalement dans le réacteur Es Salam en plus la détermination de la courbe l'efficacité de détection  $\varepsilon_p$  du détecteur Ge(HP) en utilisant un ensemble de sources gamma de calibration.

Après la détermination des paramètres, nous avons validé les résultats obtenus par les standards de référence. La comparaison entre les valeurs des concentrations certifiées et celles calculées par  $k_0$ -NAA montre une grande concordance.

Cependant, nous estimons sur la base de l'évaluation des résultats obtenus que l'implémentation de la méthode de standardisation est fiable (donne des résultats acceptables) et disponible pour des applications pratiques.

Nous espérons dans le futur, développer la méthode  $k_0$ -NAA dans la plupart des canaux expérimentaux du réacteur Es-Salam afin d'exploiter le spectre neutronique dans de différentes positions.

## Références

- AIEA Technical Reports Series, (1970). Neutron fluence measurements N°107.
- Abugassa I., Sarmani S B et Samat S B (1999)  
Applied Radiation and isotopes, 50. 989-994.
- Abugassa I., Sarmani S B et Samat S B (1996). J. Fiz. Mal. 17, 77-79.
- De Corte F. (1987)  
The  $k_0$  Standardization Method: a Move to the Optimization of NAA, Aggregate thesis,  
University Gent.
- De Corte F., El Hammami S K., Moents L., Simonits A., De Wispeleare A et Hoste J  
(1981). J. Radioanal. Nucl. Chem., 62, N°.1-2 209-255.
- De Corte F., Simonits A., De Wispeleare A et Elek A (1989)  
J. Radioanal. Nucl. Chem. 133, N°.1 3-41.
- De Corte F et Carmo Freits M (1992)  
J. Radioanal. Nucl. Chem. 160, N°.1. 253-267.
- De Corte F., Bellemans F., De Neve P et A. Simonits (1994)  
J. Radioanal. Nucl. Chem., 179, N°.1. 93-103.
- De Corte F, A. Simonits  
Vade Mecum for  $k_0$  – users published by DSM Research, Geleen (NL) R94/11492,  
December 1994.
- De Corte F et Van Lierde S (2001)  
J. Radioanal. Nucl. Chem., 248, N°.1. 103-107.
- Diaz Rizo O , Herrera Peraza E., Lopez reyes M C., Alrez Pello I., Manso Guevare M V  
et Ixquiac Cabrera M (1997)  
J. Radioanal. Nucl. Chem., 220, N°.1, 95-97.
- Dung Ho Manh et Sasajima Fumio (2003)  
J. Radioanal. Nucl. Chem., 257, N°.3, 509-512.
- Dung Ho Manh et Cho Deung Yeon (2003)  
J. Radioanal. Nucl. Chem., 257, N°.3, 573-575.
- Dung Ho Manh et Phan Duy Hien (2003)  
J. Radioanal. Nucl. Chem., 257, N°.3, 643-647.
- Eguskiza. M, ROBOUCH. P, Watjen et De Corte. F (2003)  
J. Radioanal. Nucl. Chem., 257, N°.3, 669-676.
- Freitas M C et Al. (2003)  
J. Radioanal. Nucl. Chem., 257, N°.3, 621-625

- Hossain S M., De Corte F., Vandenberghe D et Van den Haute P (2003)  
J. Radioanal. Nucl. Chem., 257, N°3, 639-642.
- Jacimovic R. 2003  
Analyse Uporabe dans le réacteur TRIGA MARK II par la Méthode  $k_0$ -NAA, Aggregate thesis, Université Ljubljana.
- Jacimovic R et Horvat M (2004)  
J. Radioanal. Nucl. Chem. 259, N°3, 385-390.
- Jeran Z., Jacimovic R., Sansone U et Belli M (2003)  
J. Radioanal. Nucl. Chem., 257, N°3, 633-637.
- Jovanovic S., Smodis B., Jacimovic R., Vucotic P et Stegnar P (1988)  
Vestn. Slov. Kem. Drus. 35, N°4, 409-424.
- KAYZERO LIBRARY, Version 4.0
- Kennedy G et St-Pierre J (2003)  
J. Radioanal. Nucl. Chem., 257, N°3, 501-508.
- Kolotov V. P et De Corte F (2003)  
J. Radioanal. Nucl. Chem., 257, N°3, 475-480.
- Lin Xilei et Henkelmann R (2003)  
J. Radioanal. Nucl. Chem., 257, N°3, 615-620.
- Menezes M. A. de B.C., Sabino C de V S., Amaral A M et Pereira Maia E C (2000)  
J. Radioanal. Nucl. Chem., 245, N°1, 173-178.
- Menezes M. A. de B.C., Sabino C de V S., Franco M B., Kastner G. F et Montoya Rossi E H (2003)  
J. Radioanal. Nucl. Chem., 257, N°3, 627-632.
- Moens L., De Donder J., Lin Xilei., De Corte F., De Wispelaere A., Simonits A et Hoste (1981)  
Nucl. Instr. Methods, 187, 451-472.
- Nyarko B J B., Akaho E H K et Serfor-Armah Y (2003)  
J. Radioanal. Nucl. Chem. 257, N°2, 361-366.
- Panayi., Spyrou N M et Part P (2001)  
J. Radioanal. Nucl. Chem. 249, N°2, 437-441.
- Révay Zs., Molnar G L., Belgya T et Kasztovszky Zs (2003)  
J. Radioanal. Nucl. Chem. 257, N°3, 561-564.
- Sarmani S., Abugassa I et Hamzah A (1998)  
J. Radioanal. Nucl. Chem. 234, Nos 1-2, 17-20.
- Simonits A., Moens L., De Corte F., De Wispelaere A., Elek A et Hoste J (1980)  
J. Radioanal. Nucl. Chem. 60, 461-516.

## Annexe

Tableau (1) : Les données nucléaires utilisées dans ce travail (library KAYZERO 2003)

élément	nucléide	Energie(keV)	Q0	Er (eV)	K0,Au	Incertitude (%)
As	As76	559,1	13,6	106	4,83E-02	1,60E+00
As	As76	657,1	13,6	106	6,61E-03	
Ba	Ba131	496,3	24,8	69,9	6,48E-05	1,40E+00
Br	Br82m	554,3	19,3	152	2,38E-02	1,10E+00
Br	Br82m	698,08	19,3	152	9,38E-03	9,00E-01
Br	Br82m	776,5	19,3	152	2,76E-02	8,00E-01
Ca	Ca47	1297,1	1,3	1330000	9,54E-07	1,70E+00
Ce	Ce141	145,4	0,83	7200	3,66E-03	9,00E-01
Co	Co60	1173,2	1,993	136	1,32	0,4
Co	Co60	1332,5	1,993	136	1,32	0,4
Cr	Cr51	320,1	0,53	7530	2,62E-03	5,00E-01
Cs	Cs134	604,7	12,7	9,3	4,76E-01	2,00E+00
Cs	Cs134	795,8	12,7	9,3	4,15E-01	2,00E+00
Eu	Eu152	841,63	0,54	0,4	3,02E-02	0,00E+00
Fe	Fe59	1099,3	0,975	637	7,77E-05	5,00E-01
Fe	Fe59	1291,6	0,975	637	5,93E-05	4,00E-01
Ga	Ga72	834	6,69	154	5,23E-02	6,00E-01
Hf	Hf181	133	2,52	115	2,37E-02	6,00E-01
Hf	Hf181	345,9	2,52	115	7,93E-03	
Hf	Hf181	482,2	2,52	115	4,56E-02	9,00E-01
Ho	Ho166	80,6	10,9	12,3	4,94E-02	
K	K42	1524,7	0,97	2960	9,46E-04	6,00E-01
K	K42	312,76	0,97	2960	7,46E-04	
La	La140	487,02	1,24	76	6,37E-02	9,00E-01
La	La140	815,8	1,24	76	3,32E-02	6,00E-01
La	La140	1596,21	1,24	76	1,34E-01	1,10E+00

Lu	Lu177*	208,4	1,67	0,158	7,14E-02	0,00E+00
Mn	Mn56	846,8	1,053	468	4,96E-01	6,00E-01
Mn	Mn56	1810,7	1,053	468	1,35E-01	4,00E-01
Na	Na24	1368,6	0,59	3380	4,68E-02	6,00E-01
Nd	Nd147	531	2	874	4,56E-04	1,10E+00
Rb	Rb86	1077	14,8	839	7,65E-04	1,00E+00
Sb	Sb124	1691	28,8	28,2	1,41E-02	1,10E+00
Sc	Sc46	889,3	0,43	5130	1,22	0,4
Sc	Sc46	1120,5	0,43	5130	1,22	1,1
Sm	Sm153	103,2	14,4	8,5	2,31E-01	4,00E-01
Ta	Ta182	1221,4	33,3	10,4	6,45E-02	8,00E-01
Tb	Tb160	879,4	17,9	18,1	9,42E-02	9,00E-01
Th	Pa233	300,1	11,5	54,4	4,37E-03	3,00E-01
Th	Pa233	311,9	11,5	54,4	2,52E-02	5,00E-01
U	U239/Np239	228,2	103,4	16,9	2,76E-03	
U	U239/Np239	277,6	103,4	16,9	3,40E-03	8,00E-01
Yb	Yb175	282,5	0,46	602	1,46E-02	3,00E-01
Yb	Yb175	396,3	0,46	602	3,12E-02	6,00E-01
Zn	Zn65	1115,5	1,908	2560	5,72E-03	4,00E-01

## **Abstract**

In recent years the  $k_0$ -NAA method has been applied and developed at the 15 MW Es-Salam research reactor, which includes:

1. The detection efficiency calibration of gamma spectrometer used in  $k_0$ -NAA,
2. The determination of reactor neutron spectrum parameters such as  $\alpha$  and  $f$  factors in the irradiation channel,
3. The validation of the developed  $k_0$ -NAA procedure by analysing some SRMs, namely AIEA-Soil7 and GSV4 Chinese.

The analysis results obtained by  $k_0$ -NAA with 27 elements of Soil-7 standard and 14 elements of GSV-4 standard were compared with certified values.

The analysis results with  $k_0$ -NAA 27 elements of Soil-7 standard and 14 elements of GSV-4 standard compared with certified values.

The analysis results showed the deviations between experimental and certified values were mostly less than 10%.

The  $k_0$ -NAA procedure established at Es-Salam research reactor has been regarded as a reliable standardization method of NAA and as available for practical applications.

**Key words:**

Neutron flux, flux ratio and  $1/E^{1+\alpha}$  epithermal deviation parameters, neutron activation, NAA method standardization, nuclear reactor, reference standards.

#### تلخيص :

لقد تم تطوير و تطبيق الطريقة  $k_0$  في مفاعل البحث السلام فيما يتضمن:

1. تقيس فعالية الكشف لمقياس الطيف لأشعة قاما المستعملة في  $k_0$ -NAA و النسبة الحاد للكلبي (P/T) لتصحيح

لأثار التصادف الحقيقي لخطوط قاما المتتابعة ;

2. التحديد التجريبي لمعاملات الطيف النوتروني للمفاعل كالعوامل  $\alpha$  ( انحراف توزيع طيف النوترونات ما بعد

الحرارية) و  $f$  (نسبة المد الحراري و ما بعد الحراري);

3. تصديق الطريقة مع القيمات المقاسة ل  $\alpha$  و  $f$  قد فحص عن طريق تحليل لمعياري إسناد مادي، مسماة GSV4

صيني و AIEA Soil-7 لمصفوفة عضوية و غير عضوية على الترتيب.

النتائج المتحصل عليها ب  $k_0$ -NAA ل 27 عنصر للمعياري Soil-7 و 14 عنصر للمعياري GSV-4 قد قورنت مع

القيمات المؤكدة. لذلك مقارنة النتائج المتحصل عليها تبين انحرافات بين القيمات المقاسة و المؤكدة و التي معظمها اقل

من 10 % .

يعتبر إجراء  $k_0$ -NAA كطريقة معايرة للتحليل بالتنشيط النوتروني أكيدة و مهيأة للتطبيقات العملية.

#### الكلمات المفتاحية:

المد النوتروني، العوامل نسبة المد و الانحراف ما بعد الحراري  $1/E^{1+\alpha}$  ، التنشيط النوتروني، معايرة الطريقة NAA ، المفاعل النووي، معايير إسناد .



## Résumé

Durant les deux dernières années la méthode  $k_0$ -NAA a été développée et appliquée dans le réacteur de recherche Es Salam, ce qui inclut :

1. La calibration de l'efficacité de détection du spectromètre gamma utilisé dans  $k_0$ -NAA et le rapport pic au total (P/T) pour corriger les effets des vraies coïncidences des raies gamma en cascade ;
2. La détermination expérimentale des paramètres du spectre neutronique du réacteur tels que les facteurs  $\alpha$  (déviations de la distribution du spectre de neutrons épithermiques) et  $f$  (rapport des flux thermique et épithermique) ;
3. La validation de la méthode avec les valeurs mesurées de  $\alpha$  et  $f$ , est vérifiée par l'analyse de deux standards de référence matériels SRM, nommés GSV4 chinois et Soil-7 AIEA de matrice organique et inorganique, respectivement.

Les résultats obtenus par  $k_0$ -NAA de vingt sept (27) éléments du standard Soil-7 et quatorze (14) éléments du standard GSV-4, sont comparés aux valeurs certifiées. En effet, les résultats obtenus montrent des déviations entre les valeurs mesurées et certifiées dont la majorité des cas inférieure à 10%.

La procédure  $k_0$ -NAA est considérée comme méthode d'étalonnage de NAA fiable et disponible pour des pratiques analytiques.

### Mots clés :

Flux neutronique, paramètres : rapport des flux et l'indice épithermique, activation neutronique, standardisation de la méthode NAA, réacteur nucléaire, standards de référence.